

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials : 502-1 Nuclear Materials, Degradation, Radiation Effects, and Related Technology

📅 Wed. Sep 11, 2024 2:45 PM - 4:00 PM JST | Wed. Sep 11, 2024 5:45 AM - 7:00 AM UTC 🏠 Room O(Recture RoomsB 2F B204)

[1O06-10] Nuclear Materials 1

Chair:Suzuki Chikashi(JAEA)

2:45 PM - 3:00 PM JST | 5:45 AM - 6:00 AM UTC

[1O06]

Development of ultra-high temperature in-situ observation technique for nuclear fuel

(1) Outline of the Project

*YUJI ARITA¹, Kenji Konashi², TSUYOSHI YAITA³, AYUMI ITO⁴ (1. Univ. of Fukui, 2. Tohoku Univ., 3. JAEA, 4. Tokyo Tech)

3:00 PM - 3:15 PM JST | 6:00 AM - 6:15 AM UTC

[1O07]

Development of ultra-high temperature in-situ observation technique for nuclear fuel

(2) Development of high-temperature heating equipment

*Rikuto Ikuta¹, Yuji Arita¹, Kenji Konashi², Keisuke Niino¹, Kyouya Yamashita¹, Yusei Mizuma¹ (1. Univ. of Fukui, 2. Tohoku Univ.)

3:15 PM - 3:30 PM JST | 6:15 AM - 6:30 AM UTC

[1O08]

Development of ultra-high temperature in-situ observation technique for nuclear fuel

(3) Development of simultaneous XAFS-XRD measurement system

*Tohru Kobayashi¹, Tsuyoshi Yaita¹, Hajime Tanida¹, Masaaki Kobata¹, Tatsuo Fukuda¹, Ayumi Itoh², Kenji Konashi³, Yuji Arita⁴ (1. Japan Atomic Energy Agency, 2. Tokyo Institute of Technology, 3. Tohoku University, 4. University of Fukui)

3:30 PM - 3:45 PM JST | 6:30 AM - 6:45 AM UTC

[1O09]

Development of ultra-high temperature in-situ observation technique for nuclear fuel

(4) Analysis of transient state during Zr-Y₂O₃ test at high temperatures

*Ayumi Itoh¹, Tuyoshi Yaita⁴, Hajime Tanida⁴, Thoru Kobayashi⁴, Tatsuo Fukuda⁴, Masaaki Kobata⁴, Kenji Konashi², Yuji Arita³ (1. Tokyo Tech, 2. Tohoku Univ., 3. Fukui Univ., 4. JAEA)

3:45 PM - 4:00 PM JST | 6:45 AM - 7:00 AM UTC

[1O10]

Development of ultra-high temperature in-situ observation technique for nuclear fuel

(5) Development of scanning transmission x-ray microscope and its application to the simulated fuel material Zr-Y₂O₃

*Goro Shibata¹, Tsuyoshi Yaita^{1,2}, Kenji Konashi³, Kenta Yoshida³, Yuji Arita⁴ (1. JAEA, 2. QST, 3. Tohoku Univ., 4. Univ. of Fukui)

核燃料の超高温その場観察技術の開発

(1) プロジェクトの概要

Development of ultra-high temperature in-situ observation technique for nuclear fuel

(1) Outline of the Project

*有田 裕二¹, 小無 健司², 矢板 毅³, 伊藤 あゆみ⁴

¹福井大学, ²東北大, ³JAEA, ⁴東工大

UO₂ の融点を超える高温まで試料を加熱し XAFS (X 線吸収端微細構造) 測定と XRD (X 線回折) 測定ができる装置の開発を進めている。装置開発の概略および模擬酸化物試料での測定結果について紹介する。

キーワード：高温 XAFS 測定、高温 XRD 測定、核燃料分析

緒言

近年、事故耐性燃料や小型モジュール炉のために様々な燃料開発が進められている。これらの開発には、安全性重視の観点から高温安全性試験は避けて通れない課題である。しかし原子炉を使った照射試験は時間と費用がかかるため、新しい技術の早期実現を図るには、照射試験と並行して炉外試験を実施し効率的に技術を完成する必要がある。高温安全性試験の課題は、2000K を越える高温での測定手法が確立していないことである。高周波加熱法等で試料を高温まで加熱しそれを冷却後に室温で調べる方法では、試料の冷却速度により室温での相の現れ方が変わり、高温での状態を正確に予測することが難しい。本研究では、UO₂ 等核燃料の高温における状態変化をその場観察することのできる高温加熱装置を開発し、構造解析棟のデータを得ることを目的としている。本発表では以下の 4 項目について概略を紹介する。

①高温加熱装置の開発

U 字型 W 板ホルダーのスリット部分に試料を詰め、W 板ホルダーに電流を流すことで加熱を行う手法を用いて改良を行った。W 板ホルダーは最高 3000℃程度になるため、耐熱性や冷却について検討を行った。2500℃以上の温度までの加熱が安定的にできることを確認した。

②XAFS および XRD 同時測定システムの開発

SPring-8 の放射光ビームラインにおいて XAFS および XRD の同時測定を行うために検出器等の配置を工夫した。2 分程度の時間で解析に供することのできるスペクトルデータが得られた。

③模擬試料による高温状態変化観察

Zr-Y₂O₃ を用いて測定した高温 XAFS スペクトルおよび高温 XRD スペクトルを解析し、酸化物の構造変化や酸化状態の変化等に関する情報を解析した。その結果、昇温しながら相変態の様子を解析できた。

④X 線顕微鏡による試料観察

急冷の過程で分別固化した試料では、固化時の雰囲気や温度などの情報がメモリーとして残されている可能性があることから、走査型 X 線顕微鏡を用いたナノスケールでの二次元観察の技術開発も行う。これによりデブリ等の分析に応用できる事も期待される。

まとめ

本技術開発によって酸化物の高温時の構造変化を安定的に観測できる事が示された。今後、精度の良い測定のための改良を予定している。また、UO₂ の高温測定にも成功したので講演時には速報として紹介する予定である。

謝辞 本研究は文部科学省の原子力システム研究開発事業 JPMXD0223813709 の助成を受けたものです。

* Yuji.Arita¹, Kenji.Konashi², Tsuyoshi Yaita³, Ayumi Ito⁴

¹Univ. of Fukui, ²Tohoku Univ., ³JAEA, ⁴Tokyo Tech

核燃料の超高温その場観察技術の開発

(2) 高温加熱装置の開発

Development of ultra-high temperature in-situ observation technique for nuclear fuel

(2) Development of high-temperature heating equipment

*生田 陸人¹, 有田 裕二¹, 小無 健司², 新納 圭亮¹, 山下 京也¹, 水間 有清¹

¹福井大学, ²東北大

スリット付きタングステン板を用いることで、高温における安定した XAFS 測定ができることを確認した。温度測定においては、放射温度計と有限要素解析を用いて予測し、補正を行った。また、Ti 粉末を封入した酸素ゲッターを用いて酸素分圧を低下させることで高温下での Zr 試料の酸化防止を達成できた。

キーワード：高温測定，温度計測，酸素分圧制御

1. 緒言

本研究の目的は、 UO_2 等核燃料の高温における状態変化をその場観察するために信頼性の高いデータを取得することのできる高温加熱装置を開発することである。今回は試料を高温に加熱できる試料加熱方法の開発と温度測定についてコールドサンプルを用いて検討を行った。

2. 加熱装置に関する技術開発・改良

2-1. 試料加熱

図 1 右図のように、U 字型 W 板ホルダーのスリット先端に試料を詰め、電流を流すことによって加熱を行う。W 板ホルダーの温度は最高 3000℃程度になるため、X 線の光路にあるポリイミドフィルムや電流導入部等の温度が過熱しないよう設計を行った。

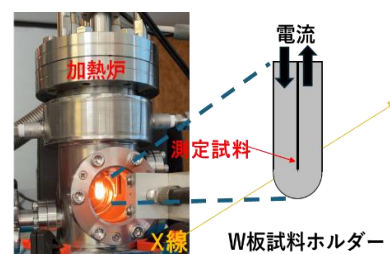


図 1 加熱炉とその内部の様子

2-2. 有限要素法による温度補正

試料の温度は、加熱炉の石英ガラス窓を通して放射温度計にて行うが測温位置の決定や温度補正のため。有限要素解析により W 板ホルダーの温度分布と通電させる電流値による温度変化を計算した。これにより、試料のあるスリット先端部分の温度が最も高くなることがわかった。

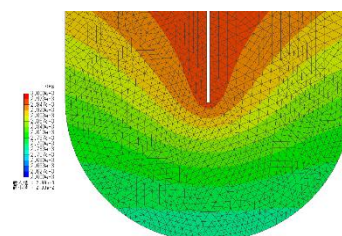


図 2 温度分布評価結果

2-3. 酸素分圧の低減

被覆管との反応を見る試験においては、残留 O_2 によって Zr が酸化される場合があるため、酸素分圧の制御も必要となる。そのため、Ti 粉末を充填した酸素ゲッター使用の検討を行った。酸素ゲッターを用いることで酸素分圧は 1.0×10^{-20} atm 程度まで低下させることがわかった。

3. まとめ

本高温加熱装置の開発により、 UO_2 -Zr 等の高温時の挙動を安定的な試料加熱や試料の酸化抑制状態で観測できるようになった。今後、精度の良い温度測定技術を確立することで、高温での核燃料挙動の理解が深まることに寄与できる。また、Spring-8 ビームラインでの UO_2 の高温測定に対応した装置開発についても講演時には速報として紹介する予定である。

謝辞 本研究は文部科学省の原子力システム研究開発事業 JPMXD0223813709 の助成を受けたものです。

参考文献

[1] Development of extremely high-temperature X-ray absorption fine structure measurement method for oxide samples, Journal of Nuclear Science and Technology, 2023, 61:6, 733-739

* Rikuto Ikuta¹, Yuji Arita¹, Kenji Konashi², Keisuke Niino¹, Kyoya Yamashita¹, Yusei Mizuma¹

¹Univ. of Fukui, ²Tohoku Univ.

核燃料の超高温その場観察技術の開発

(3) XAFS-XRD 同時測定システムの開発

Development of ultra-high temperature in-situ observation technique for nuclear fuel

(3) Development of simultaneous XAFS-XRD measurement system

*小林 徹¹, 矢板 毅¹, 谷田 肇¹, 小畠 雅明¹, 福田 竜生¹, 伊藤 あゆみ², 小無 健司³,
有田 裕二⁴,

¹JAEA, ²東工大, ³東北大, ⁴福井大

核燃料の超高温下での反応をその場観察するための XAFS-XRD 同時計測システムの開発を行い、Zr-Y₂O₃ 混合試料の高温状態での Zr および Y-K 吸収端の XAFS スペクトルと X 線回折パターンの同時測定を実現した。

キーワード：核燃料、高温融体、放射光、XAFS、XRD

1. 緒言

核燃料の超高温下での反応過程における構造変化や化学状態変化をその場観察することを目的に、XAFS および XRD の同時計測システムを開発した。本発表では、SPring-8 の JAEA 専用ビームライン BL22XU に整備した XAFS-XRD 同時計測システムの概要と性能について紹介するとともに、実際にこのシステムを用いて高温状態の Zr-Y₂O₃ 混合試料を測定した結果について報告する。

2. 実験

BL22XU は真空封止型アンジュレータを光源とする硬 X 線ビームラインで、X 線は分光器で分光された後に、XAFS および XRD 測定システムを設置した実験ハッチに導かれる。X 線光軸上にシリーズ発表(2)で報告した加熱チャンバーを設置し、その前後にイオンチャンバーを、斜め後方に 2 次元検出器を設置することで XAFS スペクトルと XRD パターンを取得した。本実験では、アンジュレータギャップは固定し、分光器を高速掃引しながらスペクトルを取得する QXAFS 法にて XAFS 測定を行った。また、XRD パターンは XAFS 測定前に分光器を停止した状態で取得した。

3. 結果と考察

高温状態の Zr-Y₂O₃ 試料を測定した結果の一例を図 1 に示した。XAFS 測定では、アンジュレータからの 2 次光を用いることで、Y-K 吸収端から Zr-K 吸収端の EXAFS 領域までを含む 16.9~18.6 keV の XAFS スペクトルを 60 秒程度の短時間で取得できた。また、XRD パターンは、XAFS 測定範囲の中点付近である 17.6 KeV にて 1 秒程度で取得できた。図 1 に示すように、XAFS, XRD とともに良好なデータが得られており、Zr の酸化に伴うスペクトル形状と回折パターンの変化を確認できた。データの詳細な解析と考察については、シリーズ発表(4)にて報告する。また、このシステムを用いてウラン試料の高温測定にも成功しており、その結果についても紹介する予定である。

謝辞 本研究は文部科学省の原子力システム研究開発事業 JPMXD0223813709 の助成を受けたものです。

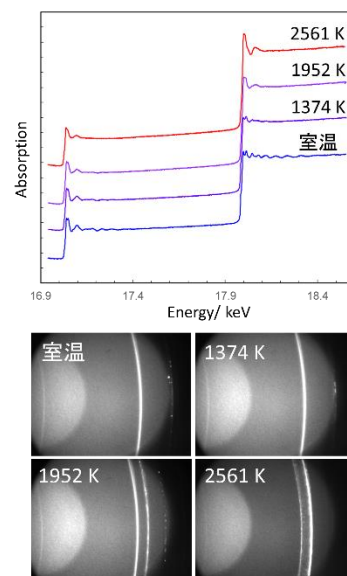


図 1. Zr-Y₂O₃ 試料の高温での XAFS スペクトル(上)と XRD パターン (下)

*Tohru Kobayashi¹, Tsuyoshi Yita¹, Hajime Tanida¹, Masaaki Kobata¹, Tatsuo Fukuda¹, Ayumi Itoh², Kenji Konashi³, Yuji Arita⁴

¹JAEA, ²Tokyo Tech., ³Tohoku Univ., ⁴Univ. of Fukui

核燃料の超高温その場観察技術の開発

(4) Zr-Y₂O₃ の高温状態変化観察

Development of ultra-high temperature in-situ observation technique for nuclear fuel

(4) Analysis of transient state during Zr-Y₂O₃ test at high temperatures

*伊藤 あゆみ¹, 小無 健司², 有田 祐二³,

矢板 毅⁴, 谷田 肇⁴, 小林 徹⁴, 福田 竜生⁴, 小畠 雅明⁴

¹ 東京工業大学, ² 東北大学, ³ 福井大学, ⁴ 原子力研究開発機構

抄録

本研究では、高温その場観察測定システムを用いて測定した Zr-Y₂O₃ 混合物質の室温から約 2500 K までの XAFS スペクトルと X 線回折像から高温反応過程における構造変化を解析した。

キーワード： XAFS, XRD, 構造解析, ジルコニウム高温反応

1. 緒言

軽水炉過酷事故の核燃料挙動評価では熔融反応過程における構造変化を理解することが重要である。その場観察測定で得られた X 線回折像から物質の平均構造を、XAFS スペクトルから金属原子の局所構造を分析し、理論予測と比較評価することにより妥当性を検証する。本報では、予備的に行った Zr-Y₂O₃ 測定結果について、知見が蓄積されている ZrO₂-Y₂O₃ 系との比較により妥当性を検証した結果を報告する。

2. 解析方法

測定で得られた X 線回折像を 1 次元プロファイル化し回折パターンから相同定を行い、XAFS スペクトルは EXAFS 振動を抽出し FEFF フィッティングにより Zr/Y 原子局所構造を解析した。また、Zr-K 端については標準試料 (Zr 箔、ZrO₂ 粉末) のデータを用いて吸収端エネルギーシフトから Zr 酸化度の評価を行った。

3. 結果と考察

図 1 (a) (b) に温度変化に伴う XANES スペクトルと動径構造関数を示す。試験開始時 (300 K) では Zr 金属であったが炉内残留酸素によって酸化し ZrO₂ へ変化したことがわかる。動径構造関数からは、ZrO₂ が正方晶に相転移した後の 1500 K 以上で Y₂O₃ と ZrO₂ の固溶体形成反応が進行し、Y-K の約 3 Å 近傍に見られる Y-Y 結合が影響を受けて振幅が低下する現象を確認した。また、UO₂ の高温測定にも成功したので講演時には速報として紹介する予定である。

謝辞

本研究は文部科学省の原子力システム研究開発事業 JPMXD0223813709 の助成を受けたものです。

*Ayumi Itoh¹, Kenji Konashi², Yuji Arita³, Tsuyoshi Yaita⁴, Hajime Tanida⁴, Tohru Kobayashi⁴, Tatsuo Fukuda⁴, Masaaki Kobata⁴

¹Tokyo Tech., ²Tohoku Univ., ³Univ. of Fukui, ⁴JAEA.

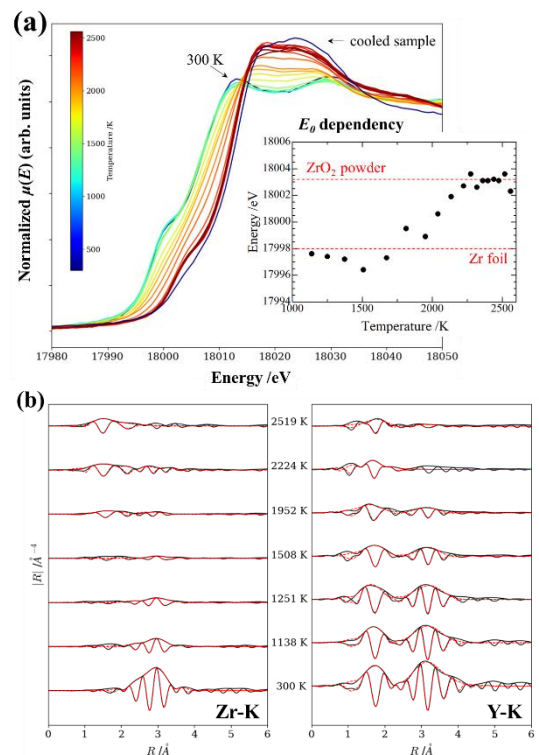


図 1 温度変化に伴う Zr-Y₂O₃ 反応の
(a) XANES スペクトル, および,
(b) 動径構造関数

核燃料の超高温その場観察技術の開発

(5) 走査型透過 X 線顕微鏡の開発と模擬試料 $\text{Zr-Y}_2\text{O}_3$ への適用

Development of ultra-high temperature in-situ observation technique for nuclear fuel

(5) Development of scanning transmission x-ray microscope and

its application to the simulated fuel material $\text{Zr-Y}_2\text{O}_3$

*芝田 悟朗¹, 矢板 毅^{1,2}, 吉田 健太³, 小無 健司³, 有田 裕二⁴

¹JAEA, ²QST, ³東北大, ⁴福井大

超高温に加熱した核燃料材料の化学種および酸化還元状態を数十 nm の空間分解能で分析する手法として、JAEA 専用ビームライン SPring-8 BL23SU において、走査型透過 X 線顕微鏡装置の開発を行った。本講演ではその性能評価および、模擬試料 $\text{Zr-Y}_2\text{O}_3$ 中の酸素の化学状態を分析した結果について発表する。

キーワード：核燃料，走査型透過 X 線顕微鏡，化学分析，顕微分光，放射光

1. 緒言

日本原子力研究開発機構(JAEA)は、大型放射光施設 SPring-8 RI 実験棟において硬 X 線(BL22XU)および軟 X 線(BL23SU)の 2 本の専用ビームラインを運用している。この度 JAEA では、福島第一原子力発電所の廃炉作業に資するための放射性物質の分析手段として、RI 実験棟内の BL23SU に走査型透過 X 線顕微鏡(STXM)装置を設置・整備した。本講演ではこの STXM 装置の概要と、実際の測定例として核燃料の模擬デブリ試料である $\text{Zr-Y}_2\text{O}_3$ 薄膜の分析を行った結果を紹介する。

2. 実験結果

BL23SU では、400～1900 eV の光エネルギーの軟 X 線を利用することが可能であり、酸素・窒素・ランタノイド・アクチノイド・3d/4d 遷移金属を含む幅広い元素が研究対象になる。特にウラン $\text{N}_{4,5}$ 吸収端 (730～780 eV)を利用できるため、核燃料をはじめとする原子力材料の研究に適している。

本 STXM 装置では、フレネルゾーンプレートを用いることで数十 nm 程度の空間サイズまでの集光が可能である。テストパターンを用いた空間分解能評価では、最高で 30 nm の空間分解能を達成した。

本研究では、 UO_2 と Zr の超高温での熔融反応を模擬した試料として、集束イオンビーム(FIB)加工によって薄片化した $\text{Zr-Y}_2\text{O}_3$ 試料について STXM 測定を行った。O 1s 吸収端 (~530 eV)において、図 1 のように明瞭な観察像を得ることができた。また、O 1s 吸収スペクトルのピーク形状はわずかながら位置依存性を示した。これは Zr/Y 組成比の空間的変調を反映したものと推測される。

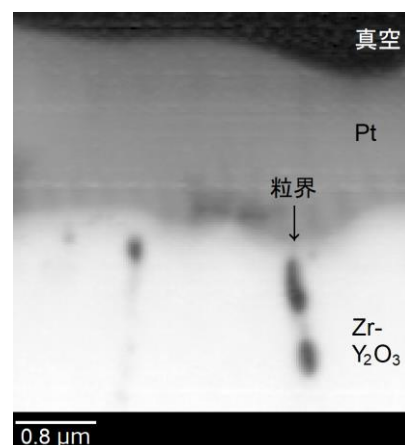


図 1: $\text{Zr-Y}_2\text{O}_3$ 薄片試料の O 1s 吸収端における STXM 観察像

本研究は文部科学省の原子力システム研究開発事業 JPMXD0223813709 の助成を受けたものです。

*Goro Shibata¹, Tsuyoshi Yaita^{1,2}, Kenta Yoshida³, Kenji Konashi³, and Yuji Arita⁴

¹JAEA, ²QST, ³Tohoku Univ., ⁴Univ. of Fukui