

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

📅 Thu. Mar 13, 2025 10:45 AM - 11:55 AM JST | Thu. Mar 13, 2025 1:45 AM - 2:55 AM UTC 🏠 Room G(Zoom room 7)

[2G01-04] Evaluation and Analysis Technology

Chair:Kinya Nakamura(CRIEPI)

10:45 AM - 11:00 AM JST | 1:45 AM - 2:00 AM UTC

[2G01]

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

(6) Simultaneous high temperature XAFS and XRD measurements of samples containing UO_2

*Yuji Arita¹, Rikuto Ikuta¹, Kyoya Yamashita¹, Kenji Konashi², Tsuyoshi Yaita³, Toru Kobayashi³, Hajime Tanida³, Tatsuo Fukuda³, Masaaki Kobata³, Ayumi Ito⁴ (1. Univ. of Fukui, 2. Tohoku Univ., 3. JAEA, 4. ISCT)

11:00 AM - 11:15 AM JST | 2:00 AM - 2:15 AM UTC

[2G02]

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

(7) Chemical-state analysis on the Fe-U-Zr-O-type simulated fuel material using scanning transmission x-ray microscope

*Goro Shibata¹, Tsuyoshi Yaita^{1,2}, Kenta Yoshida³, Yuji Arita⁴, Ayumi Itoh⁵, Toru Higuchi⁶, Kenji Konashi³ (1. JAEA, 2. QST, 3. Tohoku Univ., 4. Univ. of Fukui, 5. Science Tokyo, 6. NFD)

11:15 AM - 11:30 AM JST | 2:15 AM - 2:30 AM UTC

[2G03]

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

(8) Comparison analysis with thermodynamic phase diagram for the UO_2 - ZrO_2 reaction at high temperatures

*Ayumi ITOH¹, Kenji KONASHI², Yuji ARITA³, Tsuyoshi YAITA^{4,5}, Goro SHIBATA⁴ (1. Science Tokyo, 2. Tohoku Univ., 3. Fukui Univ., 4. JAEA, 5. QST)

11:30 AM - 11:45 AM JST | 2:30 AM - 2:45 AM UTC

[2G04]

Development of visual inspection technology of pellets using machine learning

(3) Consideration of an algorithm to identify two types of defects

*Kenta Goto¹, Shun Hirooka¹, Yuta Horii¹, Shinya Nakamichi¹, Kosuke Saito¹, Hidekazu Ichige¹, Takanori Ono¹, Kazuya Yamamoto¹, Nobuhiro Hatanaka¹, Tatsutoshi Murakami¹ (1. JAEA)

11:45 AM - 11:55 AM JST | 2:45 AM - 2:55 AM UTC

Time reserved for Chair

核燃料の超高温その場観察技術の開発 (6) UO_2 含有試料の高温 XAFS および XRD 同時測定

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

(6) Simultaneous high temperature XAFS and XRD measurements of samples containing UO_2

*有田 裕二¹, 生田 陸人¹, 山下 京也¹, 小無 健司², 矢板 毅³, 小林 徹³, 谷田 肇³,
福田 竜生³, 小島 雅明³, 伊藤 あゆみ⁴
¹福井大, ²東北大, ³JAEA, ⁴東京科学大

透過 XAFS スペクトルと X 線回折パターンを超高温その場観察できる装置の開発を進め、 UO_2 - ZrO_2 系のサンプルを密閉状態で測定することに成功した。装置概要と得られたスペクトルデータについて報告する。

キーワード： 高温 XAFS 測定、高温 XRD 測定、核燃料分析

緒言

高温における燃材料の健全性を明らかにするためには高温における物質の相状態をそのまま測定することが非常に有用である。これまで、高温での X 線吸収微細構造 (XAFS) 測定手法を開発してきたが、密閉等取り扱いが難しいウラン含有試料の測定技術を開発することは核燃料開発やデブリ生成過程への理解のために必要である。今回は UO_2 含有試料の高温 XAFS/XRD 同時測定に使用できる技術開発を行った。

① 高温加熱装置の開発

Spring-8 のビームラインではウラン等放射性物質を密封状態で取り扱うことと加熱時における安全性の確保が求められる。そのため、既存の加熱装置からガスフロー機構や真空排気装置を省いた系に変更した。図 1 のように高温加熱測定時には加熱チャンバーをグローブボックス内に設置して安全を確保するため、検出器のレイアウトを調整し、ウラン含有試料においても 2500°C 以上の温度まで加熱し、XAFS/XRD 同時測定ができることを確認した。

② XAFS および XRD 同時測定

上記加熱装置体系にて XAFS および XRD の同時測定を行い、これまで同様各温度において 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。高温では若干 S/N 比が劣化してしまうが試料濃度や測定時間の延長等で対応できるものと考えている。得られたスペクトルを用いた解析結果は次講演で報告する。

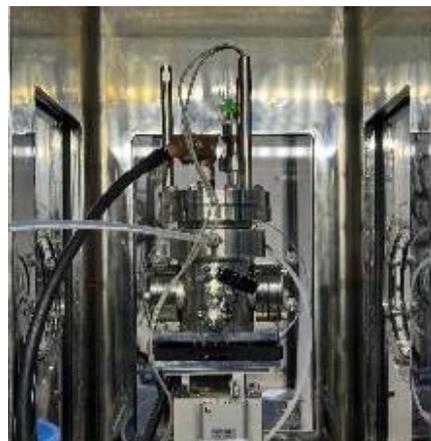


図 1 ボックス内に設置した高温加熱チャンバー

まとめ

本技術開発によってウラン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継続することにより新たな知見を得ることが期待される。

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, Rikuto Ikuta¹, Kyoya Yamashita¹, Kenji.Konashi², Tsuyoshi Yaita³, Toru Kobayashi³, Hajime Tanida³, Tatsuo Fukuda³, Masaaki Kobata³, Ayumi Ito⁴

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

核燃料の超高温その場観察技術の開発

(7) 走査型透過 X 線顕微鏡による Fe-U-Zr-O 系模擬試料の化学状態分析

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

(7) Chemical-state analysis on the Fe-U-Zr-O-type simulated fuel material

using scanning transmission x-ray microscope

*芝田 悟朗¹, 矢板 毅^{1,2}, 吉田 健太³, 有田 裕二⁴, 伊藤 あゆみ⁵, 樋口 徹⁶, 小無 健司³¹JAEA, ²QST, ³東北大, ⁴福井大, 東京科学大⁵, NFD

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、走査型透過 X 線顕微鏡(STXM)装置の開発を行い、それを用いて Fe-U-Zr-O 系模擬試料の化学状態分析を行ったため、その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)では、大型放射光施設 SPring-8 RI 実験棟の軟 X 線専用ビームライン BL23SU において、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、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 装置を用いた実際のウラン含有試料の測定例として、核燃料の模擬デブリ試料である Fe-U-Zr-O 薄膜の分析を行った結果を紹介する。

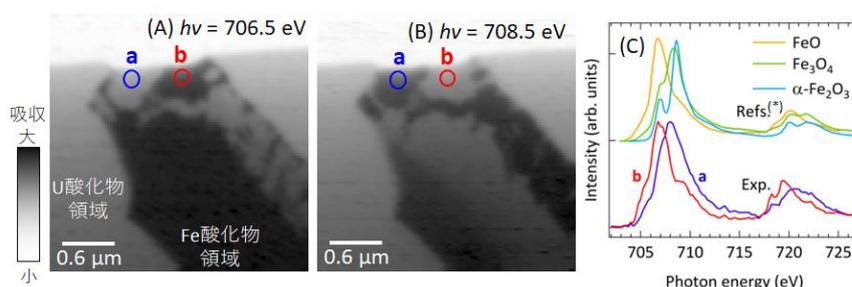
2. 実験結果

核燃料 UO_2 、被覆管 Zr、および鋼材中の Fe が超高温で熔融反応を起こした状況を模擬した試料として、U-Fe-Zr 系酸化物を酸化雰囲気下で焼成し、集束イオンビーム(FIB)加工によって薄片化した試料を準備した。鉄 $L_{2,3}$ 吸収端 (700~730 eV) およびウラン $N_{4,5}$ 吸収端 (730~780 eV) において、分解能 50 nm のフレネルゾーンプレートを用いて STXM 測定を行った。

Fe $L_{2,3}$ 吸収端において、X 線光子エネルギー $h\nu$ のわずかな変化により Fe 酸化物相のコントラストが反転するのが見られ、2 成分が相分離状態していることが示された [図 1(A), (B)]。参照スペクトルとの比較によれば、図の点 a においては FeO

を主成分とする相、点 b においては Fe_3O_4 に類似するより価数の高い相となっており [図 1(C)]、FeO/ Fe_3O_4 相平衡となっていることが示唆された。

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。



(*) P. S. Miedema & F. M. F. de Groot, J. Elec. Spectro. Rel. Phen. 187, 32 (2013); D. H. Kim et al., Phys. Rev. B 79, 033402 (2009)

図 1: (A,B) Fe-U-Zr-O 薄膜試料の Fe $L_{2,3}$ 吸収端における STXM 観察像。X 線の光子エネルギー ($h\nu$) によりコントラストが反転する。(C) 点 a, b における Fe の X 線吸収スペクトルおよび参照スペクトル。

*Goro Shibata¹, Tsuyoshi Yaita^{1,2}, Kenta Yoshida³, Yuji Arita⁴, Ayumi Itoh⁵, Toru Higuchi⁶, and Kenji Konashi³

¹JAEA, ²QST, ³Tohoku Univ., ⁴Univ. of Fukui, ⁵Science Tokyo, ⁶NFD

核燃料の超高温その場観察技術の開発

(8) $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 系反応の温度変化過程における状態と平衡状態図の比較評価

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

(8) Comparison analysis with thermodynamic phase diagram for the $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ reaction at high temperatures.*伊藤 あゆみ¹, 小無 健司², 有田 裕二³, 矢板 毅⁴, 芝田 悟朗⁴¹東京科学大学, ²東北大学, ³福井大学, ⁴原子力研究開発機構

抄録

超高温その場観察実験で得られた $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 系の昇温・降温過程における構造変化を熱力学状態図と比較評価し、事故時燃料ふるまいへの平衡論の適用範囲について検討した結果を報告する。また、STXM 装置の化学状態分析に用いた Fe-U-Zr-O 系試料の熱力学的評価の結果についても報告する。

キーワード: XAFS, XRD, 構造解析, $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 高温反応

1. 緒言

軽水炉過酷事故進展は必ずしも平衡状態で進行しないことから実際の材料反応実験では状態図とは異なる相状態が観察される^[1]。本研究では、その場観察測定で得られた X 線回折像および XAFS スペクトルから、反応過程 (昇温・冷却) の構造が状態図から乖離する条件について検討した。また、十分時間をかけて焼結処理したデブリ模擬試料の冷却後状態は平衡論によって説明できることを示す。

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/U 原子局所構造を解析した。また、デブリ模擬試料の熱力学解析は、Thermo-Calc^[2] と TAF-ID データベース^[3]を用いて Fe-U-Zr-O 系の凝固パス解析を実施した。

3. 結果と考察

図 1 に $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 反応昇温過程における格子定数変化(a)と冷却過程における XRD パターン変化(b)を示す。(a)より ZrO_2 が正方晶へ相転移した後、1800 K (図中 A) より高温で UO_2 の固溶反応が起こったことがわかった。また、(b)から冷却過程では 1890 K 前後で相転移が観察されたが、これは状態図よりも数百 K 高い。 ZrO_2 単体物質ではみられなかった現象であり、 $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 系に特有な反応過程を捉えられた可能性がある。

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。

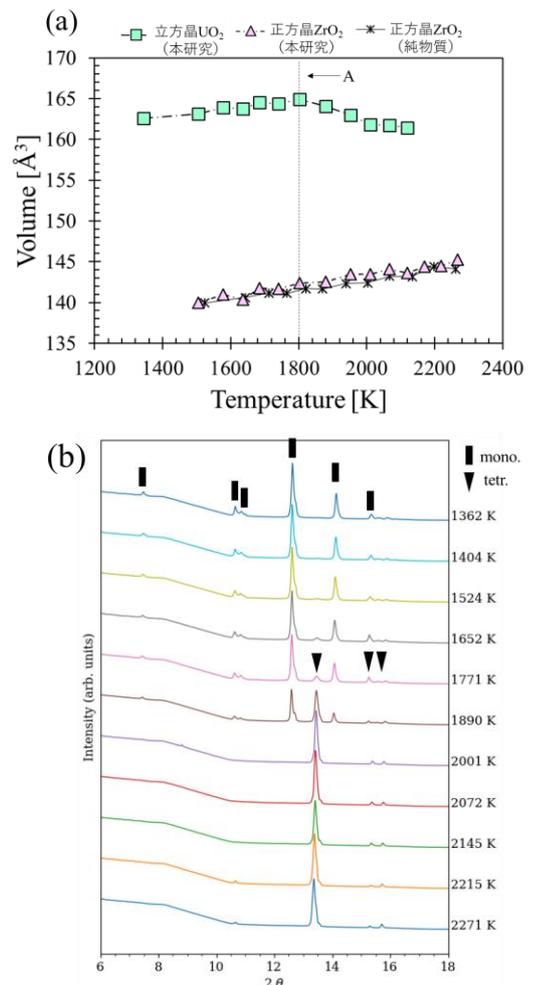
*Ayumi Itoh¹, Kenji Konashi², Yuji Arita³, Tsuyoshi Yaita⁴, Goro Shibata⁴.¹Science Tokyo., ²Tohoku Univ., ³Univ. of Fukui, ⁴JAEA.

図 1 温度変化に伴う (a) 格子定数の変化、および、(b) 冷却過程の XRD パターン

参考文献

- [1] Piluso et al. *J. Nucl. Mater.* 344(2005)259-264.
 [2] Thermo-Calc software, veron 2024b.
 [3] Dumin et al., *Calphad.* 72(2001)1022-12.

機械学習を利用したペレット外観検査技術開発 3 ～2種類の欠陥を識別するアルゴリズムの検討～

Development of visual inspection technology of pellets using machine learning, 3;

Consideration of an algorithm to identify two types of defects

*後藤 健太、廣岡 瞬、堀井 雄太、中道 晋哉、齋藤 浩介、市毛 秀和、小野 高德、
山本 和也、畑中 延浩、村上 龍敏 (日本原子力研究開発機構)

原子力機構 MOX 燃料技術開発部で進めている AI 技術を用いた MOX ペレットの自動外観検査技術の開発として、より精度の高い学習モデルを構築するための機械学習プログラムを開発し、実際の合否基準に準じたアルゴリズムの検討を行った。

キーワード : MOX, ペレット, 外観検査, 機械学習, 画像解析, AI

1. 緒言

MOX 燃料製造における有望な新技術として AI による自動外観検査技術の開発を進めている。本研究では、これまで開発した機械学習プログラムにデータオーグメンテーション機能と交差検証機能を付加し、ペレット表面の欠け・割れを識別する精度の向上を図るとともに、割れの長さを解析して合否判定を行うようアルゴリズムを改良し、製造ラインへの導入に向けた検討を行った。

2. 機械学習プログラムの機能付加と欠陥識別アルゴリズムの改良

焼結や研削等の処理過程で欠け・割れが生じた MOX ペレットの画像 277 枚を用意し、オーグメンテーションと交差検証を含む機械学習により学習モデルを作成した。この結果、従来、欠けに対して約 67%、割れに対して約 36%だった識別精度(人間が与えた欠陥領域に対してモデルが正しく識別できた領域の割合)が、それぞれ約 86%、約 69%まで向上した(図 1)。また、実際の検査に準じた合否判定を行うため、ペレットの高さ方向と周方向で割れの方向を検知し、それぞれ異なる合否判定基準で合否判定ができるようにアルゴリズムを改良した。さらに、途中で途切れた割れについても、連続する 1 本の割れとして認識できるよう改良した(図 2)。

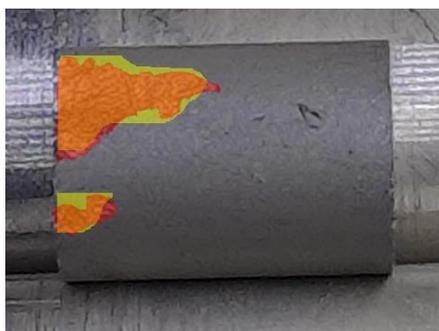


図 1. 人間が与えた欠陥部(赤)と機械が識別した欠陥部(黄)



図 2. 途切れている割れを 1 本として識別

3. 結論

これまでに作成してきたプログラムを改良し、実用化に向けた検討を行った。課題であった欠け・割れに対する識別精度が向上するとともに、実際の基準に準じた合否判定を行えることを確認した。今後は、より多くのペレットを対象に測定を行い、学習モデルの堅牢性(より複雑な欠陥等に対する柔軟性、適用性)や検査員(人)による判定との違いなどを評価し、学習モデルの実用性、信頼性を高めて行く。

*Kenta Goto, Shun Hirooka, Yuta Horii, Shinya Nakamichi, Kosuke Saito, Hidekazu Ichige, Takanori Ono,

Kazuya Yamamoto, Nobuhiro Hatanaka, Tatsutoshi Murakami

JAEA