

燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発

(27) 球面収差補正透過電子顕微鏡を用いた模擬デブリの微細組織評価 (II)

Development of ultramicro analysis technology for fuel debris analysis

(27) Characterization of microstructures in a simulated debris using AC-TEM (II)

*吉田健太¹、松尾悟¹、風間裕行²、本間佳哉¹、小無健司¹、永井康介¹、三浦祐典³、樋口徹³¹東北大学、²大阪大学、³NFD

燃料デブリの生成時の温度や雰囲気の推定のために必要な構造・組成情報を取得することを目的として、模擬燃料デブリ表面の酸化鉄粒子の結晶構造、および、(U,Zr)O₂ 粒界層中の Fe クラスターの有無を、球面収差補正透過電子顕微鏡(AC-TEM)を用いて調べた。

キーワード： 模擬燃料デブリ、(U,Zr)O₂、透過電子顕微鏡

1. 緒言 我々は、還元雰囲気および酸化雰囲気で調整された Fe 添加(U,Zr)O₂ 模擬燃料デブリ中の Fe 原子の分布に着目し、3D-FIB-SEM 解析および特性 X 線分析によって、Fe 原子が含まれる結晶粒のサイズと酸化状態を評価した。還元雰囲気で焼成された Fe 添加(U,Zr)O₂ 模擬燃料デブリでは、結晶粒サイズの大小に寄与する粒界 Fe クラスターを球面収差補正透過電子顕微鏡(AC-TEM)で可視化した。令和 5 年度には、この AC-TEM を用いて、結晶粒サイズのばらつきも大きく、より複雑な酸化状態が予想される酸化雰囲気で焼成された Fe 添加(U,Zr)O₂ 模擬燃料デブリの結晶構造、粒界層中の Fe クラスターの有無を評価した。

2. 実験 実験試料には、共沈法で 20%Fe 添加(U,Zr)O₂ 模擬燃料デブリ（酸化雰囲気焼成）を用いた。球面収差補正透過電子顕微鏡 (AC-TEM, ARM 200F)によって、制限視野電子線回折(SAED)および干渉像を測定し、(U,Zr)O₂ 模擬燃料デブリ表面・界面近傍の Fe 原子の結晶構造解析、Fe クラスター観察を行った。

3. 結果と考察

図 1(a)の STEM 特性 X 線分析により、明確な O-K 殻線を示す Fe 含有結晶粒ほど大きく、多角形状だった。図 1(b)下段のサイズ 1000nm 以上の Fe 結晶粒を SAED で調査し、図 1(c)上段に示すような FeO に対応する回折点が見つかった。一方で、(U,Zr)O₂ 結晶粒の示す単結晶パターンとの比較から、Fe 含有結晶粒は、FeO、非晶質 FeOx、純鉄クラスターなどからなる混合物であることが示唆された。図 1(c)下段の、AC-TEM 干渉像からも、前述の純鉄クラスター（数 nm）、非晶質 FeOx が確認され、多結晶混合物と判定した。この、主として Fe 原子を含有する多結晶混合物内には、U 原子も含まれており、今後、詳細な結晶構造および化学組成の分析が必要である。

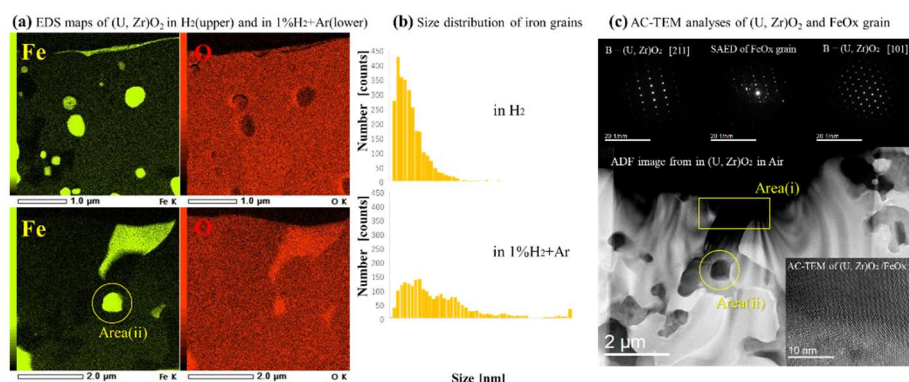


図 1 (a) Fe 添加(U,Zr)O₂ 模擬燃料デブリからの Fe, O マップ、(b)Fe 含有結晶粒のサイズ分布、(c) 酸化雰囲気下焼成 20%Fe-(U,Zr)O₂ 模擬燃料デブリの SAED パターン (上段) および AC-TEM 干渉像 (下段)

本件は、令和 3 年度-令和 5 年度文部科学省「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の研究 課題「燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発」の研究成果を含む。

*K. Yoshida¹, S. Matsuo¹, H. Kazama², Y. Homma¹, K. Konashi¹, Y. Nagai¹, Y. Miura³, T. Higuchi³

¹Tohoku Univ., ²Osaka Univ., ³NFD