燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発
(6) 模擬燃料デブリの作製

Development of ultramicro analysis technology for fuel debris analysis
(6) Preparation of simulated fuel debris

*三浦祐典[1]、大内敦[1]、樋口徹[1]、小無健司[2]、永井康介[2]
[1]NFD、[2]東北大

共沈法およびメカニカルアロイング法に着目し、各手法における模擬燃料デブリの作製条件と性状の関係を調査している。本報では前報[1]から作製条件を拡充して、各手法にて混合した未照射原料から模擬燃料デブリを作製し、組織観察および構造解析を実施した。

キーワード：模擬燃料デブリ、共沈法、メカニカルアロイング

1. 緒言　誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS/MS）は、核種の分離工程なしに微量元素の分析が可能であり、燃料デブリを効率的かつ高精度に分析する技術として期待されている。燃料デブリに適用する技術開発のためには、偏りのない均質性の高い試料が必要であり、前報では、原料の均一な混合が期待できる共沈法およびメカニカルアロイング法に着目しその適用の見込みを得た。本報では、手法の適用範囲を広げるため、共沈法では未照射原料の混合比および焼結条件、メカニカルアロイング法では焼結雰囲気をパラメータとした作製を行い、作製条件と性状の関係を調査した。

2. 実施方法　共沈法における模擬燃料デブリ作製では、粉末化した Zr を含む重ウラン酸アンモニウムの共沈試料を焙焼および還元後に圧縮成型し、100 %H_2（湿潤雰囲気）中で焼結した。混合時の組成は、立方晶＋正方晶の 2 相となる条件（U : Zr=1:1 および 3:1）および立方晶の単相となる条件（U:Zr=9:1）とした。焼結温度は、前報の条件を基準に、密度の影響を把握することを目的として 1300 ℃から 1700 ℃の中から 4 レベルを選定した。メカニカルアロイングにおける模擬デブリ作製では、CeO_2 を UO_2 の模擬材として、メカニカルアロイング装置を用いて混合した CeO_2 および FeO 粉末（CeO_2: FeO = 9:1）を圧縮成型し、Ar 雰囲気中にて FeO が溶融しない 1300 ℃で焼結した。作製後、SEM 観察、EDS 分析および XRD 測定を行った。

3. 結果　共沈法にて作製した模擬燃料デブリについて、U:Zr=9:1 の模擬燃料デブリでは、今回の条件ではいずれの焼結温度においても立方晶$(U, Zr)O_2$のみからなる均一な組織が得られた。U : Zr=1:1 および 3:1 の模擬燃料デブリでは、それぞれ 1500 ℃および 1400 ℃までは焼結が不十分であり原料粒子の残存が確認されたが、焼結が進むにつれて組織が均一化した。また、XRD 測定では、それぞれの組成で 1500 ℃までは立方晶$(U, Zr)O_2$および正方晶 ZrO_2 と推定されるピークが確認されたが、1700 ℃では構造変化を示唆するピークなどが確認された。メカニカルアロイング法にて作製した模擬燃料デブリでは、今回の条件では主に$(Ce, Fe)O_2$、$CeFeO_3$、$(Fe, Ce)_2O_3$、$(Fe, Ce)_3O_4$ と推定される 4 相がほぼ均一に分散している様子が確認された（図 1）。

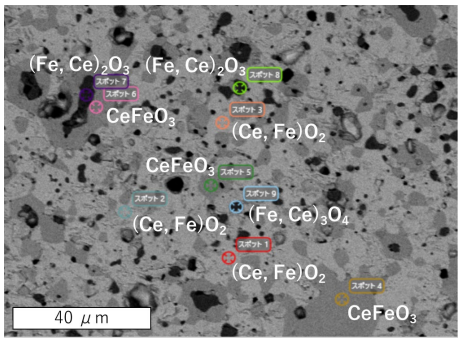

図 1　作製した模擬燃料デブリの表面（メカニカルアロイング法）

参考文献　[1] 大内ら、2D11、原子力学会 2020 年秋の大会予稿集

備考　令和 2 年度 日本原子力研究開発機構 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業「燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発」の成果の一部を含む。

*Yusuke Miura[1], Atsushi Ohuchi[1], Toru Higuchi[1], Kenji Konashi[2], Yasuyoshi Nagai[2]　[1]NFD, [2]Tohoku Univ.