

燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発

(10) メスバウアー分光ならびに X 線回折を用いた模擬デブリの評価

Development of ultramicro analysis technology for fuel debris analysis

(10) Mössbauer and XRD analyses of simulated fuel debris

*本間 佳哉¹, 風間 裕行², 鈴木 克弥¹, 松尾 悟¹, 吉田 健太¹, 大内 敦³, 三浦 祐典³,
樋口 徹³, 小無 健司¹, 永井 康介¹
¹ 東北大, ²JAEA, ³NFD

本研究では還元雰囲気中で調製された模擬デブリに対し、⁵⁷Fe メスバウアー分光、粉末 X 線回折 (XRD)、走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて、母相 (ウラン酸化物) ならびに析出相の分析を行った。

キーワード : 模擬デブリ, メスバウアー分光, XRD, SEM

1. 緒言

メルトダウンした福島第一原発のデブリには、核燃料に加え圧力容器のステンレス鋼ならびに燃料被覆管のジルコニウム合金が相当量溶け込んでいると推察される。本研究では実験室で再現した模擬デブリに対し、メスバウアー分光、粉末 X 線回折、SEM を適用することにより、燃料母相ならびに Fe と Zr の存在形態を明らかにした。

2. 実験方法

本研究は、NFD で調製されたペレット状の模擬デブリを東北大学金属材料研究所・附属量子エネルギー材料科学国際研究センターに移送して行った。X 線回折はペレットをすり潰した粉末試料に対して Cu 回転対陰極の高強度 X 線源を有するリガク製 RINT-2000 を用いて $2\theta=20\sim 120^\circ$ の範囲で行った。さらに同じ粉末試料をカプトンフィルムに 30 μm 程度の厚さに塗布し、透過法による ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定を室温で行った。またペレットの表面分析を走査型電子顕微鏡 W-SEM によって行った。

3. 結果と考察

X 線回折より母相の格子定数は理想的なウラン二酸化物 UO_2 よりも 1%程度縮小した $a=5.4177 \text{ \AA}$ となっており、酸素過剰の $\text{UO}_{2.35}$ [1]もしくは三元系の $\text{Zr}_{0.17}\text{U}_{0.83}\text{O}_2$ [2]が形成されていると考えられる。さらに、 $\alpha\text{-Fe}$ 、正方晶ジルコニア $t\text{-ZrO}_2$ 、単斜晶ジルコニア $m\text{-ZrO}_2$ のブラッグピークが観測された。一方、模擬デブリの ⁵⁷Fe メスバウアースペクトルは 6 本に磁気分裂し、純鉄 $\alpha\text{-Fe}$ のスペクトルと内部磁場・アイソマーシフト・半幅幅も完全に一致することから、デブリ中の Fe 原子はすべて単体の純鉄 $\alpha\text{-Fe}$ として析出することが判明した。鉄が金属単体として存在してさらにジルコニウムが低温相の $t\text{-ZrO}_2$ と高温相の $m\text{-ZrO}_2$ の酸化物として混在する実験結果に対し、エリンガムダイアグラム等による熱力学的な解釈を加えると、デブリが晒されていた雰囲気や温度、さらには冷却過程を推し量ることが可能である。学会では W-SEM の結果も加えて模擬デブリの存在形態に対する知見を総括する予定である。

参考文献

- [1] A.V. Alekseyev, L.A. Anan'yeva, and R.P. Rafal'skiy, Int. Geol. Rev. **23** (1981), 1229.
[2] N.K. Kulmarni, K. Krishnan, and U.M. Kaser, J. Nuc. Mat., 384 (2009), 81.

*Yoshiya Homma¹, Hiroyuki Kazama², Katsuya Suzuki¹, Satoru Matsuo¹, Kenta Yoshida¹, Atsushi Ohuchi³, Yusuke Miura³, Toru Higuchi³, Kenji Konashi¹, Yasuyoshi Nagai¹

¹Tohoku Univ., ²JAEA, ³NFD