

燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発

(11) 球面収差補正透過電子顕微鏡を用いた模擬デブリ粒界偏析の評価

Development of ultra micro analysis technology for fuel debris analysis

(11) Evaluation of grain boundary segregation in a simulated debris using AC-TEM

*吉田健太¹, 宮田穂高¹, 小無健司¹, 永井康介¹¹東北大学

燃料デブリの生成時の温度や酸素雰囲気等の推定、および、燃料デブリの物性評価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、模擬燃料デブリ中の Fe 原子の分布、(U, Zr)O₂ 粒界層中の Fe クラスターの原子構造を球面収差補正透過電子顕微鏡(AC-TEM)によるナノスケールの分析顕微鏡法を用いて調べた。

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 Molten corium-concrete interaction: MCCI 生成物の性状を正しく理解することは、燃料デブリの取り出しを始めるうえで重要である。我々は、3次元 SEM-FIB 観察および原子分解能 AC-TEM 観察など最先端の分析顕微鏡法を(Zr, M)SiO₄ 模擬 MCCI 生成物(M; U, Fe, Al etc.)に適用し、サブミクロンスケールの構造解析を行ってきた。これまでに、一部の(Zr, U)SiO₄ 模擬 MCCI 生成物(M; U, Fe, Al etc.)中にステンレス鋼由来の Fe 領域が生成し、その Fe 領域がクラック形成に影響していることを見出した。本研究では、Fe 添加(U, Zr)O₂ 模擬燃料デブリに分析顕微鏡法を適用し、(U, Zr)O₂ 粒界近傍の Fe 原子の分布を詳細に調べた。

2. 実験 実験試料には、25%Fe 添加(U, Zr)O₂ 模擬燃料デブリを用いた。3次元 SEM-FIB 観察によって Fe 粒子の分布を調べた後、球面収差補正透過電子顕微鏡 (AC-TEM, ARM 200F)によって原子分解能で(U, Zr)O₂ 模擬燃料デブリ表面・界面近傍の Fe 原子の構造解析を行った。

3. 結果と考察

図 1(a)には、3次元 SEM-FIB 観察で判明した Fe 添加(U, Zr)O₂ 模擬燃料デブリ中の Fe 粒子の分布を示す。黒い領域が Fe ナノ粒子を示し、一部に Fe ナノ粒子の凝集が確認された。図 1(b)は基準位置から Z 方向に 26μm の断層像(2 値化)であり、模擬燃料デブリ内部にも黄色丸で示されるような 20μm サイズの凝集体が形成していることが分かった。本研究では、マイクロサンプリング法で薄膜試料を作製し、原子スケールの構造解析を行った。図 1(c)には、低倍率の AC-TEM 像および回折図形、図 1(d)には、(U, Zr)O₂ 模擬燃料デブリの粒界の原子分解能像をそれぞれ示す。AC-TEM 観察によって、(U, Zr)O₂ 多結晶粒の結晶系は正方晶、格子定数は 0.49nm であることが確認された。また、Fe はランダム粒界に純鉄 (BCC, 立法晶) の結晶格子を有する 1nm 程度のクラスターとして存在していることが判明した。(図 1(c)中、破線丸が Fe クラスター)

本件は、令和 3 年度-令和 4 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。

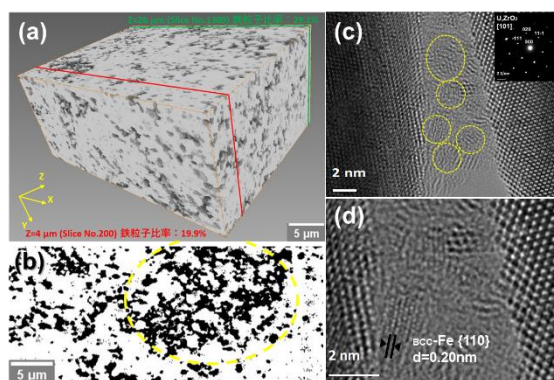


図 1 Fe 添加(U, Zr)O₂ 模擬燃料デブリからの (a)3D-FIB-SEM, (b) Z=26μm の断層像(2 値化), (c) AC-TEM 像 (低倍率、回折図形), (d)粒界 Fe クラスターの原子構造像。

*K. Yoshida¹, H. Miyata¹, K. Konashi¹, Y. Nagai¹

¹Tohoku Univ.