

# レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定

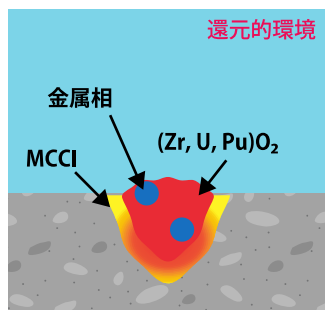
○斉藤拓巳<sup>1</sup>, 青柳 登<sup>2</sup>, Huiyang Mei<sup>1,2</sup>

1: 東大院工, 2: JAEA先端基礎研究センター



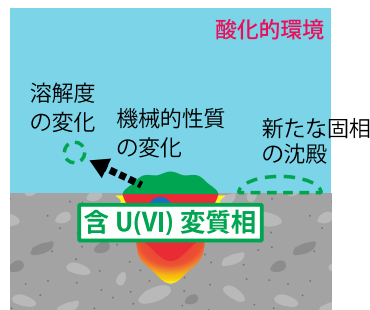
極低温TRLFSと多変量解析を組み合わせることで、模擬デブリ上に微量で生成する含U(VI)変質相の同定を可能とする分析手法を開発

## 問題設定



### 環境条件の変化

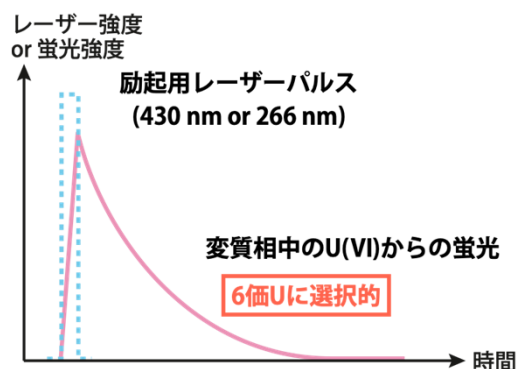
- ・ 負圧管理強化
- ・ 臨界管理強化
- ・ 取り出し時の擾乱



燃料デブリ変質相(= 含U(VI)鉱物)に対する高感度、高弁別な分析手法が求められる。

プロセスの解明 → 機構論的なモデル構築  
→ 経年変化予測

## 提案手法 極低温TRLFS\*と多変量解析を組み合わせた含U(VI)変質相の同定 \*時間分解レーザー蛍光分光法

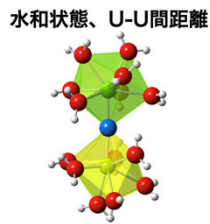


### TRLFSによる化学形弁別

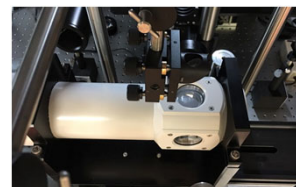
#### スペクトル形状



#### 蛍光寿命

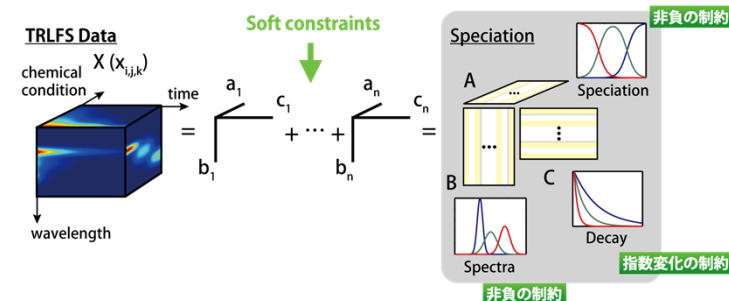


### 極低温測定による高感度、高分解能

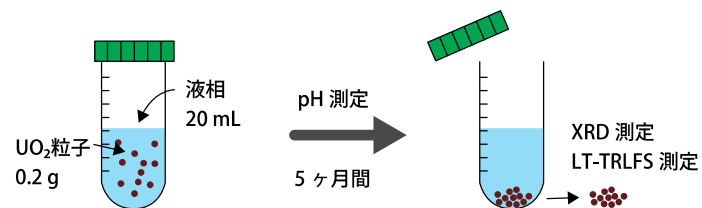


分光窓を備えた液体Heクライオスタット (~ 3.3 K)

### PARAFACによる蛍光成分の分離

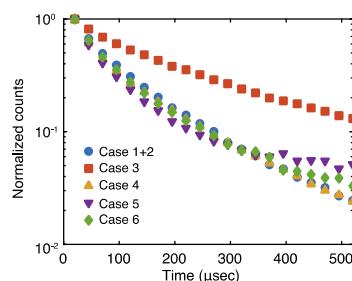
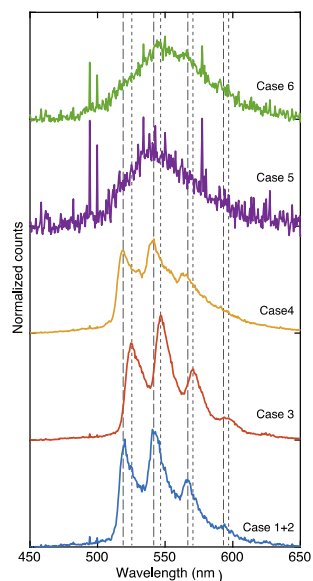


## 実験方法



ケース	概要	変質試験条件
ケース1+2	酸素 + 二酸化炭素混入	大気雰囲気、イオン交換水
ケース3	酸素混入 + ホウ酸添加	大気雰囲気、0.05 Mホウ酸溶液
ケース4	酸素混入 + 放射線影響	大気雰囲気、1 mM H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 溶液
ケース5	酸素、二酸化炭素混入 + 海水影響	大気雰囲気、2倍希釈の人工海水
ケース6	酸素 + セメント影響	大気雰囲気、OPCセメント平衡水

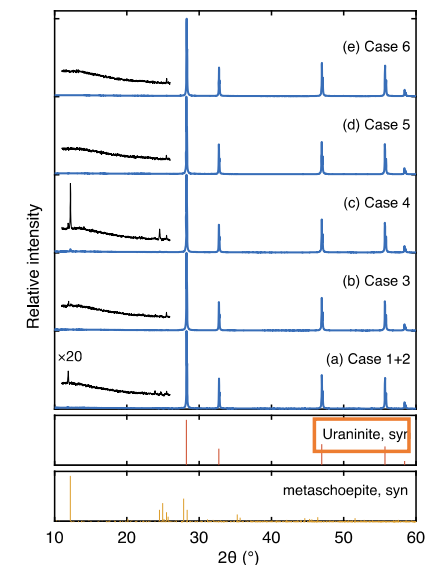
## 変質試料のLT-TRLFS測定結果



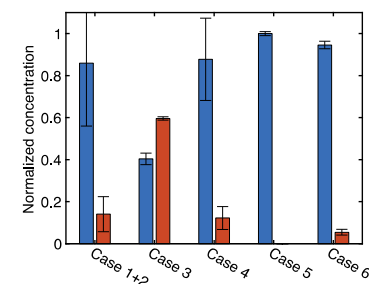
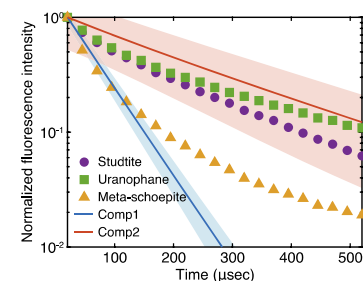
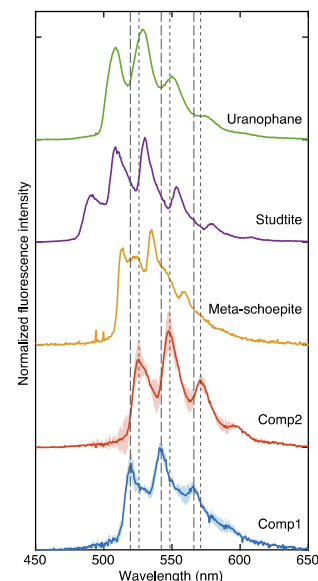
- Case1+2, 3, 4: 強いU(VI)由来の蛍光スペクトル
- LT-TRLFSにより、UO<sub>2</sub>表面に僅かに形成した含U(VI)変質相を高感度で検出できた。
- 含U(VI)変質相は複数の蛍光成分からなる。

## XRDによるバルク鉱物組成の評価

- バルク組成としては、UO<sub>2</sub> (uraninite)
- Case1+2, Case3, Case4において、若干のMetashoepiteの生成が確認された。



## PARAFAC分解による成分抽出



- 成分1: 短寿命, 成分2: 長寿命
- 成分1のピーク位置は、成分2と比べて、若干短波長方向にシフトしている。
- 先行研究\*との比較から、成分1, 2は共に、meta-schoepite由来。
- Case 3のみ、成分2に富んでいる  
→ pH影響の可能性

\* Z. Wang, J.M. et al., Radiochim. Acta 96 591-598 (2008).