

レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定

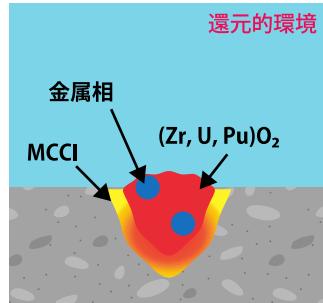
○斎藤拓巳¹, 青柳 登², Huiyang Mei^{1,2}

1: 東大院工, 2: JAEA先端基礎研究センター

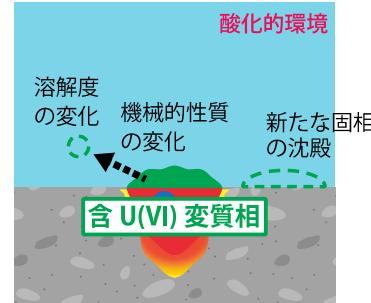


極低温TRLFSと多变量解析を組み合わせることで、模擬デブリ上に微量で生成する含U(VI)変質相の同定を可能とする分析手法を開発

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



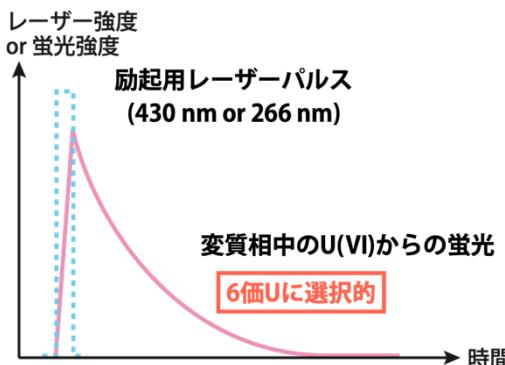
燃料デブリ変質相(= 含U(VI)鉱物)に対する高感度、高弁別な分析手法が求められる。

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*と多变量解析を組み合わせた含U(VI)変質相の同定

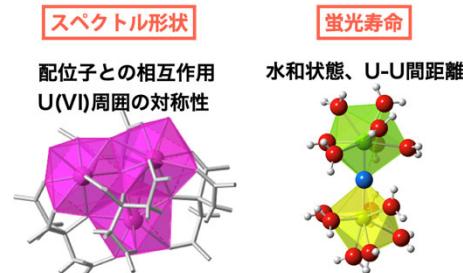
*時間分解レーザー蛍光分光法



TRLFSによる化学形弁別

スペクトル形状

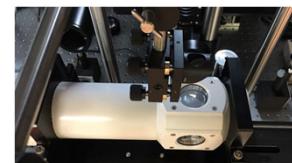
配位子との相互作用
U(VI)周囲の対称性



極低温測定による高感度、高分解能

蛍光寿命

水和状態、U-U間距離



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

TRLFS Data

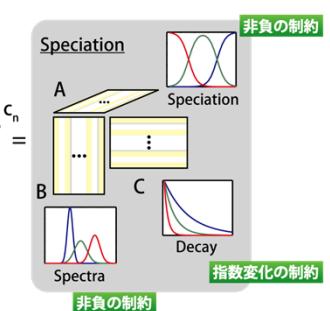
chemical condition
time
wavelength

Soft constraints

$$X(x_{i,j,k}) = a_1 + \dots + a_n$$

$$+ b_1 + \dots + b_n$$

$$+ c_1 + \dots + c_n$$

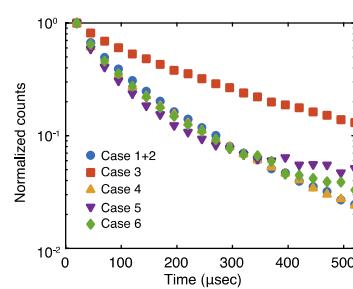
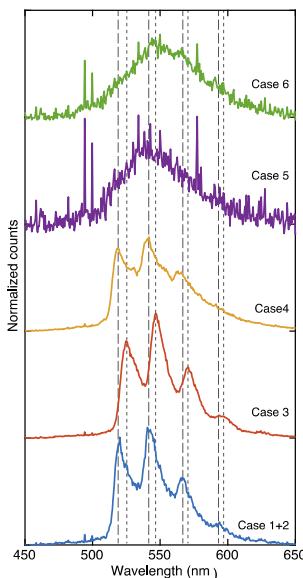


実験方法



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_2O_2 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倍希釀の人工海水
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

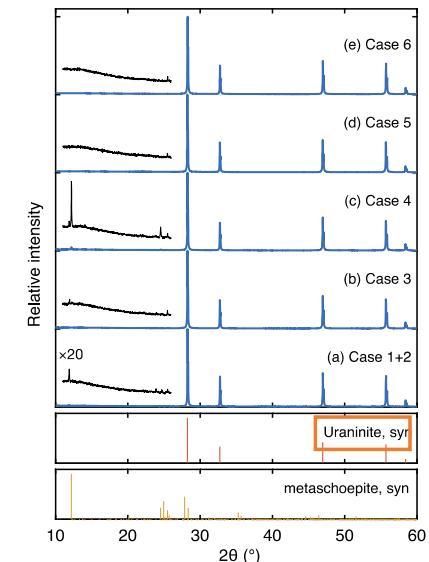
変質試料のLT-TRLFS測定結果



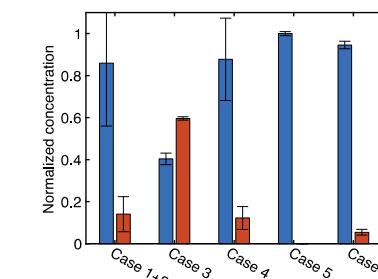
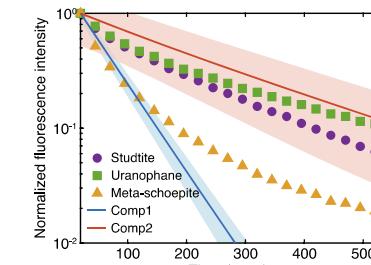
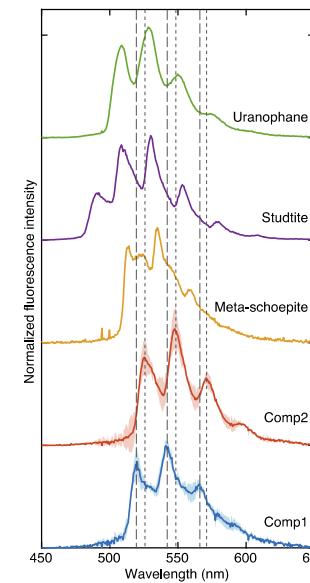
- Case 1+2, 3, 4: 強いU(VI)由来の蛍光スペクトル
- LT-TRLFSにより、 UO_2 表面に僅かに形成した含U(VI)変質相を高感度で検出できた。
- 含U(VI)変質相は複数の蛍光成分からなる。

XRDによるバルク鉱物組成の評価

- バルク組成としては、 UO_2 (uraninite)
- Case 1+2, Case 3, Case 4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).