

ウランL-M端XAFS同時測定系の提案



BL-27B実験ハッチ



ウランガラス



UO_2 U_3O_8 $UO_3 \cdot 2H_2O$

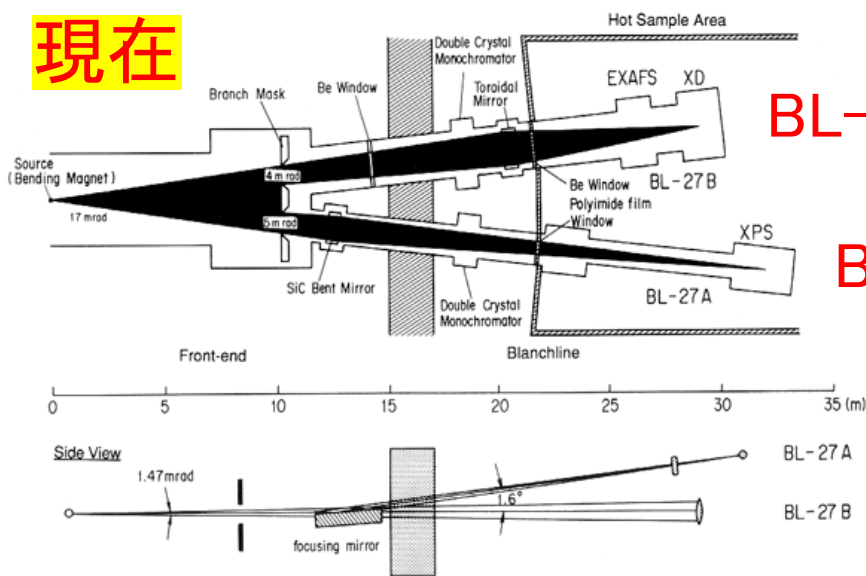
原子力基盤研究UG

JAEA: 岡本 芳浩、谷田 肇、 KEK: 宇佐美 徳子

ウランL-M端XAFS同時測定系の提案

原子力基盤研究UG

現在



BL-27B ウランL₃吸収端

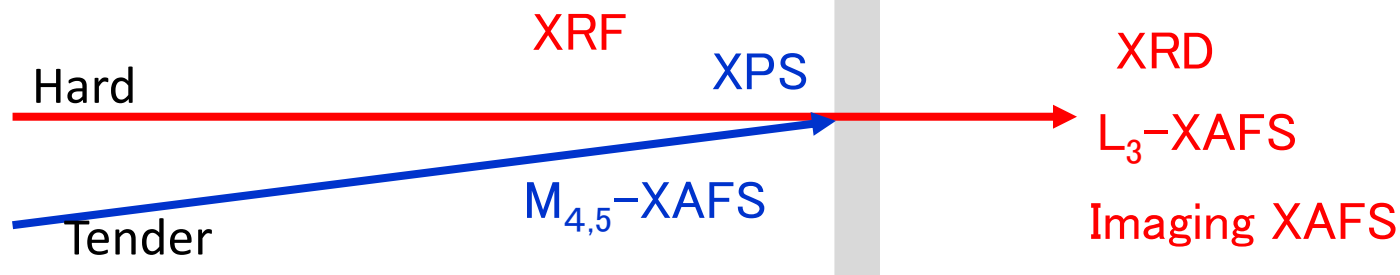
BL-27A ウランM_{4,5}吸収端

別々のBLで、別々の
試料条件で実施

将来像

ウランL-M端同時測定を軸にマルチ分析システム整備

ウラン化合物



【本提案の大前提】

BL-27における核燃RIの許認可を維持する必要性

(核燃料物質)

- ・天然ウラン、劣化ウラン及びトリウム ※液体試料はBL-27に限る

(密封RI)

- ・Np-237、Am-241、Am-243、Cm-248、Tc-99

※ α 核種に対する許認可が厳しくなり、実験は厳しくなっている。。。。

(非密封RI)

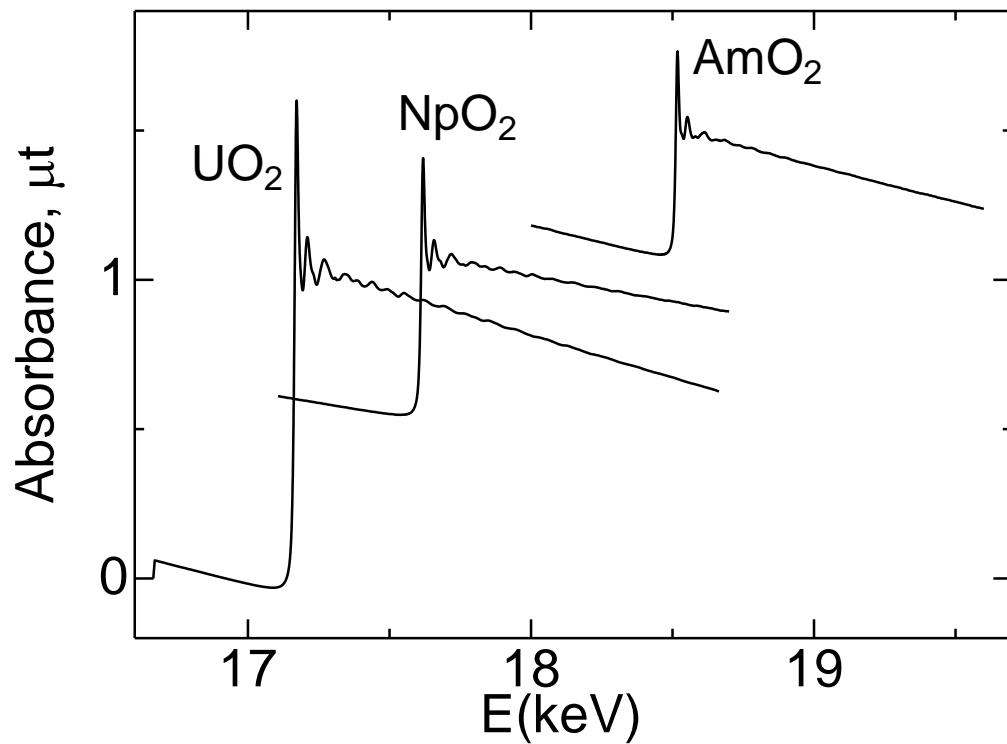
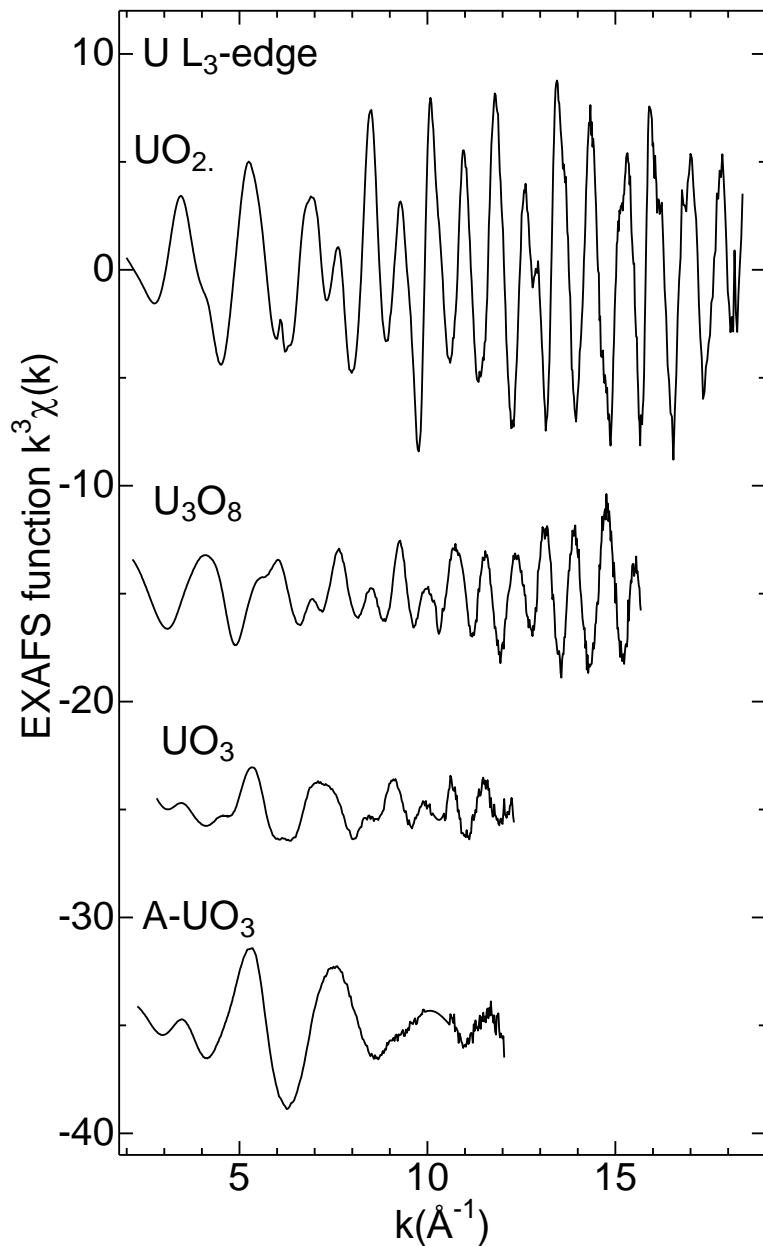
- ・随時変更されているので、KEK放射線科学研究センター情報参照されたし

- ・原子力基盤研究UGとして、

「原子力発電所の圧力容器の照射試験片実試料(非密封RI扱い)の持ち込みが可能な許認可の維持」

を要求し、維持していただいている。

これまでの核燃RI試料XAFS測定例



- ・ウラン、ネプツニウム、アメリシウム酸化物
 - ・ウラン塩化物(高温溶融状態)
 - ・トリウムフッ化物(高温溶融状態)
 - ・ウラニル溶液系電解その場
 - ・中性子照射試料(非密封RI)
- ほか多数

福島第1原発事故対応における放射光の活用

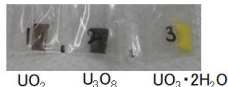
(UGとしての目的) 1F事故におけるデブリ取り出し及び環境回復の活動において、放射光を有効に利用すること、さらに、それを担う人材を育成し伝承すること。

【ウラン模擬デブリのXAFS分析】 JAEA、東北大、京大、シェフィールド大

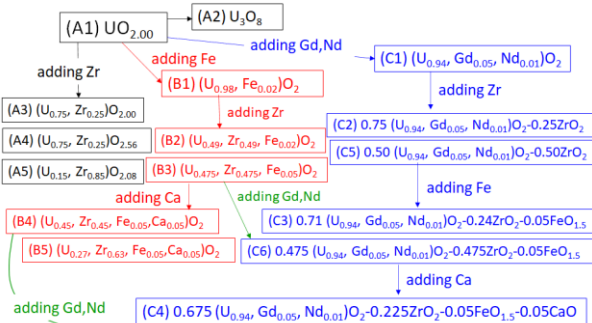
ウラン酸化物 UO_2 に対して、被覆管(Zr)、構造材(Fe)、コンクリート(Ca)及び核分裂生成物(Gd,Nd)を加えた系統的な模擬デブリのXAFS分析を実施。



ウランガラス



UO_2 U_3O_8 $UO_3 \cdot 2H_2O$



Prog.Nucl.Sci.Tech.,5,200(2018)

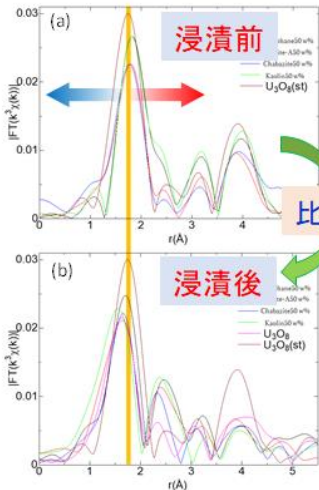
【デブリ取り出し後の処理法研究】 東北大、JAEA

ウラン酸化物-ゼオライト混合焼結体表面からのウラン溶出を蛍光XAFSから評価した結果

水環境に対し、ウラン溶出が無い、閉じ込め性能の高い処分方法を評価・探索する。

最適なデブリの処理方法を提案

東北大学修士論文に収録、論文投稿予定



【土壌汚染の機構解明と応用】

JAEA

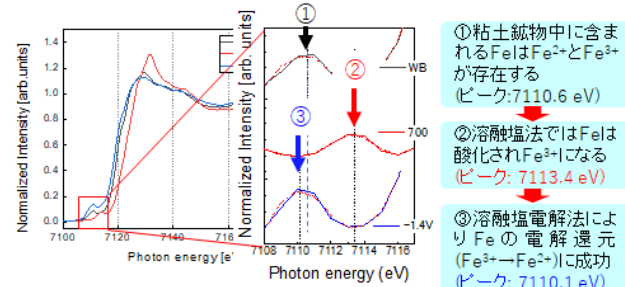


図 Fe K-edge XAFSスペクトルにおけるPre-edge領域(左)とその拡大図(右): ①粘土鉱物(黒線)、②溶融塩法(赤線)、③溶融塩電解法(青線)

Feの還元により Fe_3O_4 結晶が創製されることを確認、新たな熱電材料創製へ向けた研究へ。

AIMS Electronics and Electrical Engineering, 3, 102 - 110 (2019).

【コンクリート汚染の機構解明】 東京都市大

汚染水の滞留・拡散により、コンクリート内部に複数の核種が浸透していると予想される。

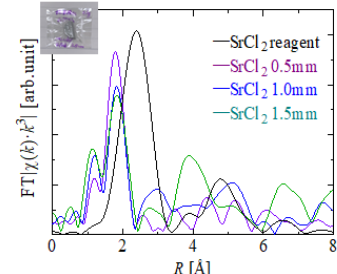
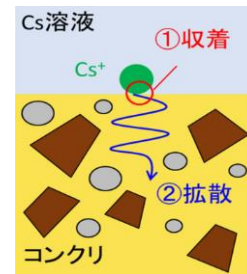


Fig. Sr動径構造関数($SrCl_2$)

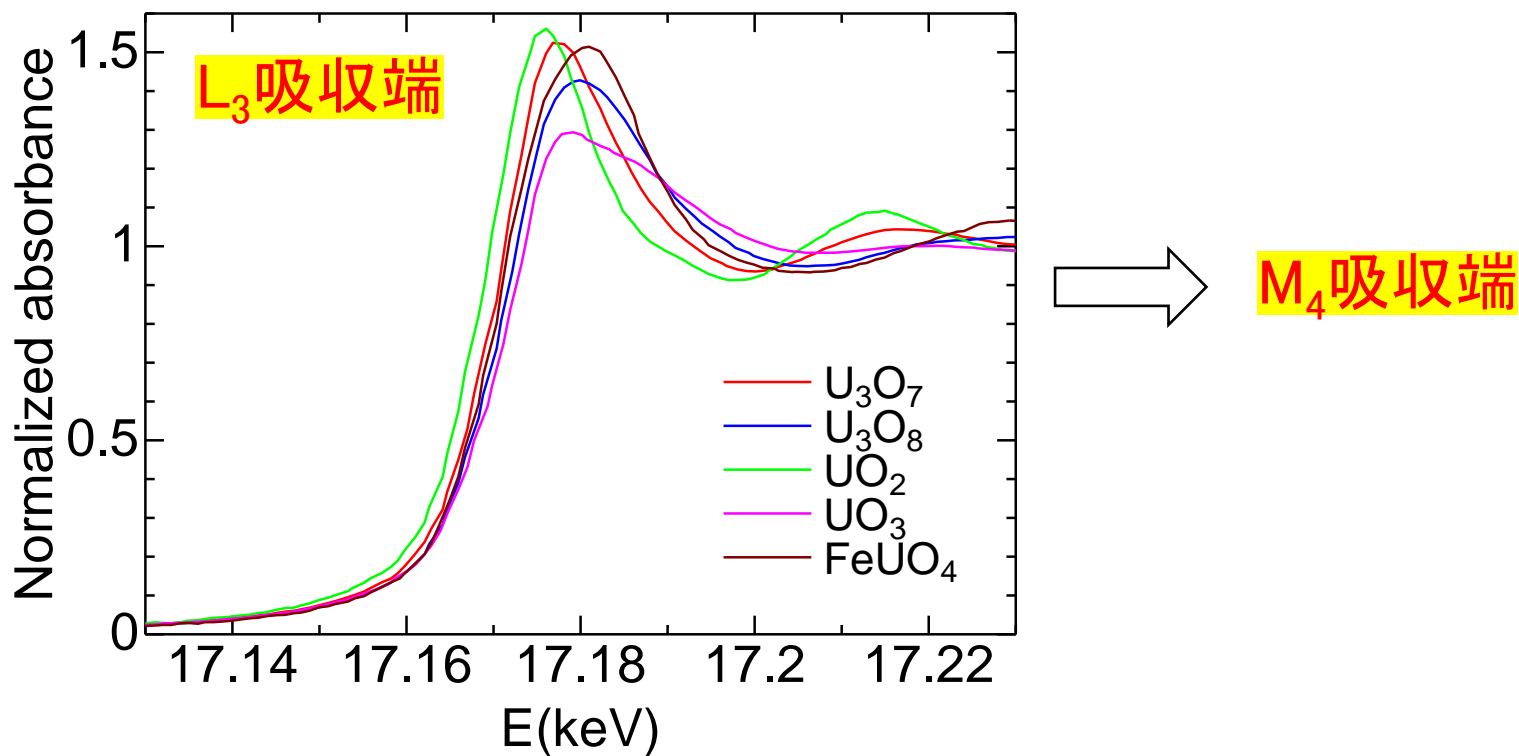
格納容器内構造材料であるコンクリートに対するCsやSrの浸透挙動を評価する。

東京都市大M2院生の研究(年度に修論、さらに投稿を期待)

ウランL-M端XAFS同時測定が必要な理由

デブリ分析において、ウランの価数把握は最重要事項

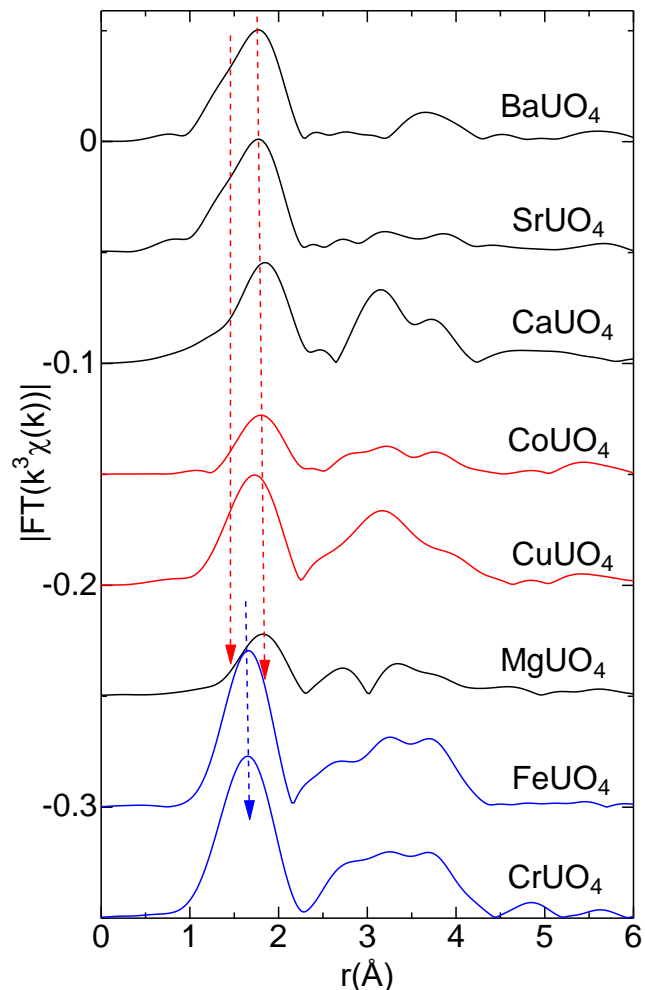
現状では、BL-27BにおいてL₃吸収端を利用して実施しているが、M₄吸収端のほうが精度が高く、世界中で利用(併用?)されている。



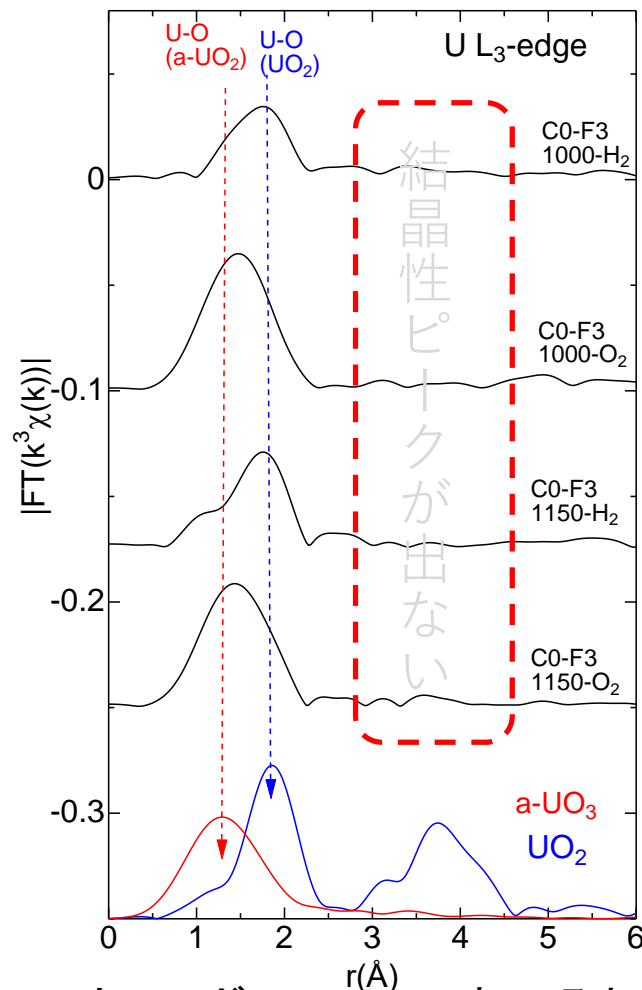
ウラン酸化物XANESデータ@BL-27B

ウランL₃端と軽元素のXAFS同時測定の可能性

ウラン複合酸化物 (CaやMg) 及びウランガラス (SiやB) において、ウランと軽元素の同時XAFS測定が必要



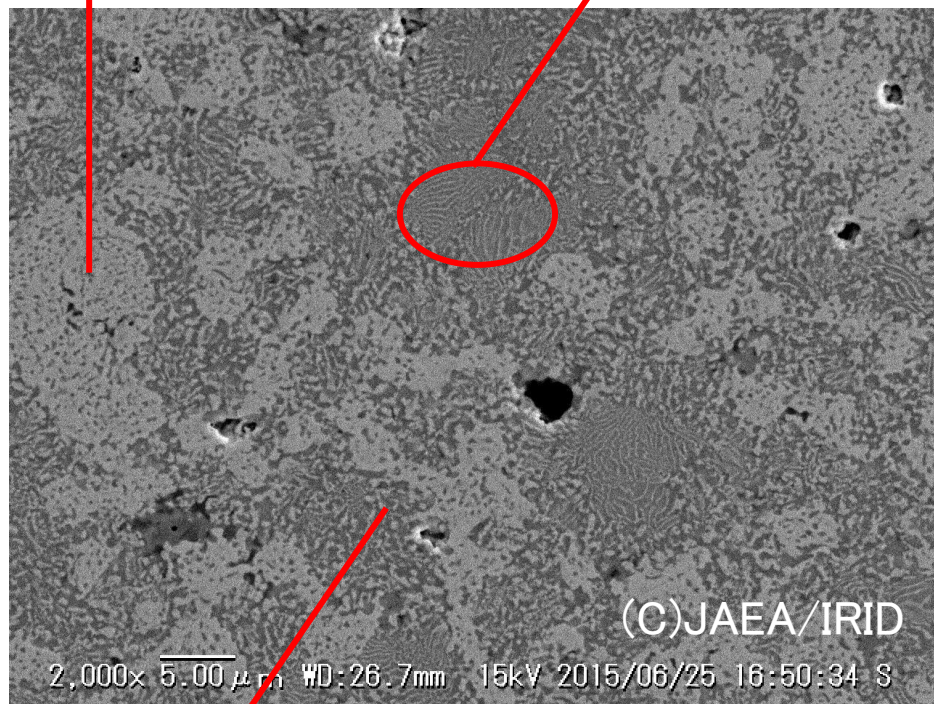
主なウラン複合酸化物のU元素L₃吸収端EXAFS-FT@BL-27B



ウランガラスのU元素L₃吸収端EXAFS-FT@BL-27B

マイクロビーム(同時測定)の必要性 ※現在はキャピラリーレンズで対応

- (1)対象とする燃料デブリは、**ミクロン単位で相状態が異なる**
⇒ XAFSが不得意とする多相系である。
- (2)マクロサイズビームによる分析では、**平均化された情報をもたらす**。
⇒ 平均化された情報では不十分なことがある。



U-Zr-Fe-O系模擬デブリのSEM

燃料デブリの基本組成である UO_2-ZrO_2 系は分相しやすく、局所的にU/Zr比が大きく異なる相が入り乱れている。

分相の程度等は、冷却速度や他の元素(Ca、Si)の影響によって大きく変化する。



まとめ:考えられる測定パターン

(1) マイクロビームを利用した硬軟同時XAFS測定

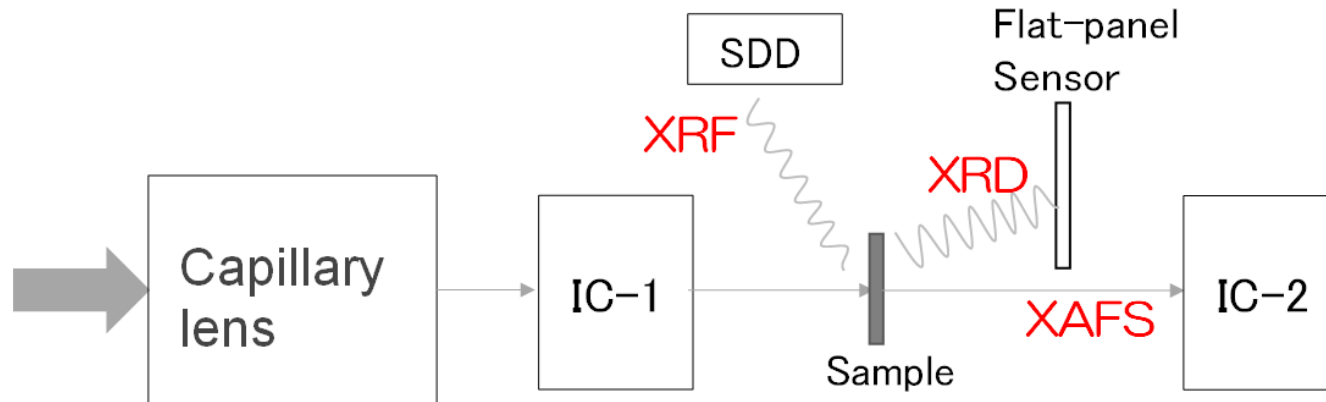
① ウランのL端及びM端の同一視野・同時測定

② ウランのL端及び軽元素のK端の同一視野・同時測定

(2) マイクロビームを利用したXRD及び軟X線XAFS同時測定

① 燃料デブリのXRD及びウランM端XAFS測定

※R5年度に、 μ XAFS/XRD/XRF同時測定を実施計画中(下図)



(3) これまで実施してきたマクロサイズビームによるイメージングXAFSについて維持するべき