

## U(VI)の高感度分析に向けた極低温 TRLFS の開発

Development of high-sensitive analysis of U(VI) by ultra-low temperature TRLFS

\*齊藤 拓巳<sup>1</sup>, 青柳 登<sup>2</sup>, Huiyang Mei<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東大, <sup>2</sup>原子力機構

福島第一原子力発電所の廃炉における燃料デブリの変質挙動の理解や放射性廃棄物処分における放射性核種の動態評価のための極低温時間分解型レーザー蛍光分光測定 (TRLFS) システムの開発と U(VI)を含む固相への適用結果を報告する。

**キーワード** : TRLFS, 極低温, ウラン, 化学形

### 1. 緒言

福島第一原子力発電所の廃炉における燃料デブリの変質挙動の理解や放射性廃棄物処分における放射性核種の動態評価では、多様な環境条件下での対象元素の化学形の理解が不可欠である。特に、U(VI)や Cm(III), Eu(III)のような蛍光性イオンに対しては、時間分解型レーザー蛍光分光測定 (TRLFS) が有効である[1]。そして、TRLFS では、液体ヘリウムクライオスタットを用いた極低温測定を行うことで、蛍光スペクトルの強度と分解能が向上し、対象イオンの化学形の評価性能を向上できる[2]。本発表では、そのような高感度分析を可能とする極低温 TRLFS の構築と U(VI)を含む固相への適用結果を報告する。

### 2. 実験方法

TRLFS 測定では、Spectra Physics 社の Nd:YAG レーザー (Quanta-Ray) と波長変換ユニット (VersaScan, UVScan) を用いた。励起光のパルス幅、繰り返し数、パワーは、それぞれ、約 5 ns, 10 Hz, 0.1-3 mJ/pulse であった。試料からの蛍光の時間分解測定には、分光器 (Kymera, Andor 社) と ICCD カメラ (Shamrock, Andor 社) を用いた。試料を分光窓を備えたクライオスタット (Opticool, Oxford Instruments 社) に装荷し、極低温での測定を行った。測定試料としては、コールド試料として硝酸ユウロピウム固体 (励起波長 394 nm) を、含 U(VI)試料として燃料デブリの変質相の候補となる 3 種類の固相, Metaschoepite, Studtite, Uranophane を (励起波長 419 nm) 用いた。

### 3. 結果と考察

試料装荷時のクライオスタット温度は 3.33–3.40 K であり、極低温 TRLFS システムを構築することができた。図 1 に、室温及び低温における硝酸ユウロピウムの蛍光スペクトル比較した結果を示す。極低温にすることで、ピーク幅が小さくなり、スペクトルの微細な構造がより明瞭になっていることが分かる。実際に、極低温測定では、光器の回折格子を変えることで、Eu<sup>3+</sup>水和分子の構造対称性を反映したピークが分離して検出できた。発表では、含 U(VI)固相試料の極低温蛍光スペクトルの特徴を報告する共に、(模擬)燃料デブリの変質相の同定への適用性を議論する。

#### 参考文献

[1] Collins, R. N., et al. *J. Environ. Qual.* **2011**, *40*, 731-741.

[2] Wang, Z., et al. *Environ. Sci. Technol.* **2004**, *38*, 5591-5597.

\*Takumi Saito<sup>1</sup>, Noboru Aoyagi<sup>2</sup> and Huiyang Mei<sup>1</sup>

<sup>1</sup>The University of Tokyo, <sup>2</sup>JAEA

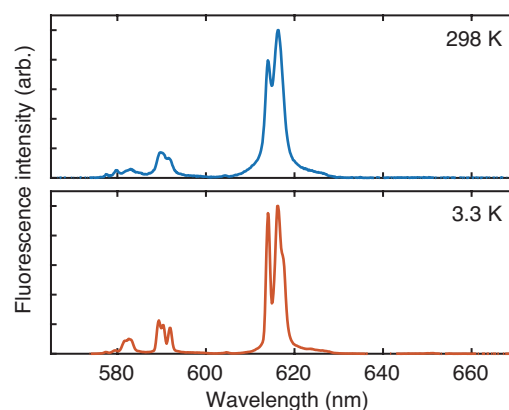


図 1. 硝酸ユウロピウムの TRLFS スペクトル。(a) 298 K, (b) 3.3 K.