

極低温 TRLFS 法を用いた UO_2 変質相に関する研究

Alteration of UO_2 studied by ultra-low temperature TRLFS

*斉藤 拓巳¹, 青柳 登², Huiyang Mei^{1,2}

¹東大, ²原子力機構

UO_2 の変質は東京電力福島第一原子力発電所の廃止措置におけるデブリの取り出しや使用済み燃料の直接処分において重要である。本研究では、 U(VI) に対する高感度の化学種分布分析が可能な極低温 TRLFS 測定により、 UO_2 粒子上に生成する含 U(VI) 変質相を評価した結果を報告する。

キーワード：二酸化ウラン，変質，時間分解型レーザー蛍光分光

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) 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 (LT) を行うことで、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。本発表では、模擬デブリとして UO_2 を用い、LT-TRLFS と多変量解析を組み合わせ、異なる化学条件で UO_2 粒子上に生成する含 U(VI) 変質相を評価した。

2. 実験方法

UO_2 の変質実験を、大気環境下で、ホウ酸や過酸化水素、セメント平衡水、人工海水などの異なる溶質成分が存在する条件で行った。浸漬から約 5 ヶ月後、試料を回収し、固液分離、乾燥後、測定に供した。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、約 3 K で測定を行った。試料の励起には 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、試料からの蛍光の時間分解測定には、分光器 (SpectraPro 2300i, Acton 社) と ICCD カメラ (PI-MAX, Princeton Instruments 社) を用いた。得られた一連のデータの解析には、多次元データに対する多変量解析手法一種である Parallel Factor Analysis (PARAFAC) [2]を用いた。

3. 結果と考察

変質試料の X 線回折測定から、5 ヶ月経過後も、バルク組成としては UO_2 のままであることが分かった。一方、LT-TRLFS 測定からは、 U(VI) に特徴的な蛍光スペクトルが得られた。このことは、LT-TRLFS の U(VI) に対する選択性が高く、局所的に生成する変質相を高感度で検出できていることを意味する。また、PARAFAC 解析から、データの変動を 3 つの成分によって説明できることが分かった。この内、1 つは検出システムに固有のノイズ成分であることから、変質相として 2 種類の含 U(VI) 相が存在することが示唆された (図 1)。発表では、これらの成分の蛍光寿命や試料間での分布を紹介すると共に、参照試料のスペクトルデータとの比較を行う。

参考文献

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

[2] Saito, T., et al. *Environ. Sci. Technol.* **2010**, 44, 5055-5060.

*Takumi Saito¹, Noboru Aoyagi² and Huiyang Mei^{1,2}

¹The University of Tokyo, ²JAEA

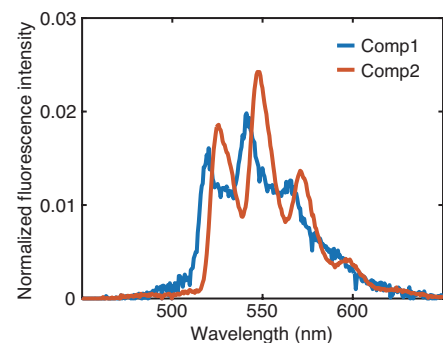


図 1. PARAFAC から得られた異なる蛍光成分のスペクトル。