

FPの有効利用に関する研究 -照射済燃料中における白金族合金の模擬体作製及び冶金学的観察-

Study on Effective Utilization of Fission Products

-Preparation of simulated noble metal alloy in irradiated fuel and metallurgical observation-

*新田 旭¹ 服部 亮平¹ 佐藤 勇¹ 松浦 治明¹

¹東京都市大学

核分裂生成物の有効利用にかかる研究では、照射済燃料中における白金族合金の水素吸蔵能力や触媒としての有用性を明らかにする前段階として、白金族合金模擬体を作製し、水素吸蔵性能に大きく関わると考えられる結晶構造等の知見を得るために冶金学的観察を行った。

キーワード：白金族合金、FP、直接利用

1. 緒言

東京都市大学重点推進研究では、核分裂生成物の有効利用に関する研究を行う事で、核燃料サイクルにおける放射性廃棄物マネジメントに資する事を目的としている。核分裂生成物中には再処理後不溶解残渣として析出する白金族合金(Mo、Ru、Rh、Pd及びTcで構成される)が存在する。そのうちRu、Rh及びPdという元素は酸素と水素の再反応のための触媒や、水素吸蔵合金として利用されている。一方で、福島第一原子力発電所の燃料デブリは、再臨界や放射性物質の飛散等から危険性を持つため、取り出し収納容器に密封する必要があるとされるが、内在する水分の放射線分解によって水素が発生するため対策が必要である。一つの方法として白金族合金を水素吸蔵・触媒材料として直接利用することがあげられる。そこで、本研究では、白金族合金の水素吸蔵・触媒材料としての機能を調べることを目的とし、模擬体の作製を行い、詳しく冶金学的な観察を行った。また、より詳しい白金族合金の知見を得るための、第一原理計算を用いて結晶構造変化による水素吸蔵・触媒機能の影響を評価手法の構築を開始した。

2. 実験方法

Mo、Ru、Rh及びPdの純度99.9%、約 $\phi 5\mu\text{m}$ の粉末を防湿容器にて、実際の照射済燃料中に存在するFPの割合を考慮した4元系、水素吸蔵能力を持つとされるRu、Rh、Pdに限定した3元系、アニーリングの効果を確かめるためのMo-Pdの2元系で混合させ、ダイス($\Phi 6.9\text{mm}$)を用いてプレス成型にて200MPaで圧粉体を作製した。次に、東工大との協力のもとアーク溶解装置を用いた試料溶解を行い、試料をエポキシ樹脂埋め固め、研磨を行った。作製した合金試料に対し、冶金学的な観察として、SEM-EDSを用いた元素分析やX線回折による結晶構造観察を行った。

3. 結果と考察

作製した合金試料(a)(Mo20, Ru60, Rh10, Pd10(wt%, 以下同様))に対する、SEM-EDSによる元素マッピングを図1に示す。マッピングの結果から試料表面における構成元素の偏在が確認されなかったため、試料準備の段階で合金の作製方法に問題はなく、4元系の単相が得られたと判断した。

次に、作製した合金試料(a)(b)(Mo15, Ru55, Rh15, Pd15)

(c)(Mo40, Ru45, Rh7.5, Pd7.5)に対する、XRDによる測定結果を図2に示す。参考文献^[1]と組成の近い試料(c)とを比較するとピークの一致を確認し、格子定数は、Ref a=2.744Å c=4.391Å

(c) a=2.723Å c=4.327Å となり六方最密構造であると判断した。

また、試料(a)及び(b)は、ピークが文献データより低角側へシフトしていることが確認された。これは文献データのMoの割合が高くMoの結晶構造である体心立方構造の影響を受けたことで格子定数が増加したのではないかと考えた。また、固溶体の形成過程において、Ruを主成分とする六方最密構造に対して、Moの体心立方構造が置換するような形で入り込み、格子面間距離が大きくなり、結晶全体が広がったと考えられる。

今後は、水素吸蔵が起きやすいとされる(001)結晶面が合金試料の表面においてどの程度存在するかを評価するためにEBSDを用いた結晶方位分布を行う予定である。また、白金族合金の結晶構造や水素吸蔵した際の格子欠陥といった結晶構造学的メカニズムを、第一原理計算を用いて解明していく。

参考文献(Reference)

[1] Z. Metallkd., 1983, 74, 652-664, Paschoal J.O.A., Kleykamp H., Thümmel F.,

*Asahi Nitta¹, Ryohei Hattori¹, Isamu Sato¹, Haruaki Matsuura¹

¹Tokyo City University

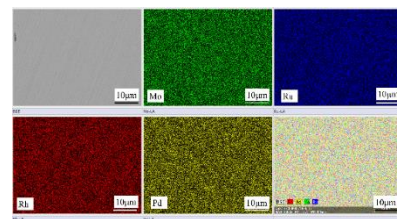


図1 四元系合金に対するSEM+EDS マッピング

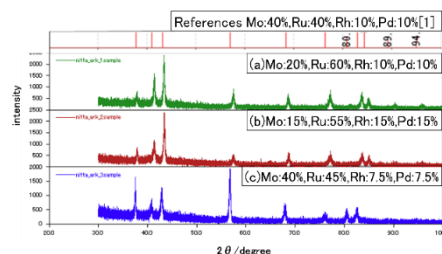


図2 四元系合金に対するXRDの測定結果