

照射済燃料中における核分裂生成物の有効利用に関する研究 -減圧加熱による白金族合金の挙動観察-

Study on effective utilization of fission products in irradiated fuel

-Analysis of the behavior of noble metal elements by decompression heating-

*樽見 直樹¹, 山崎 晃也¹, 大岩 祐毅¹, 松浦 治明¹, 鈴木 俊一², 佐藤 勇¹

¹東京都市大学, ²東京大学

抄録 福島第一原子力発電所事故で発生した燃料デブリ収納缶で使用される水素低減触媒の開発として、照射済み燃料内で析出する白金族合金を利用することを提案している。白金族合金の触媒材料としての加工性を確かめるために、模擬体に対して減圧下での加熱を行い、深さ方向における含有元素の挙動観察を行った。

キーワード：核分裂生成物、触媒、白金族合金、冶金学、酸化・蒸発

1. 緒言

福島第一原子力発電所事故で発生した燃料デブリには放射性物質が含まれているため、容器に閉じ込めてしまう必要がある。そこで、燃料デブリを取り出す前にジオポリマーで固定し、収納缶に保管する方法が提案されている[1]。しかしながら、燃料デブリに含まれる水分が放射線分解されることによって水素が発生し、収納缶の内圧を上昇させることや水素爆発の要因になる。水素の除去方法として、触媒を使用する方法があるが、高価な Pd などの触媒材料を使用することは現実的ではない。一方、これまでに核分裂生成物の有効利用が研究された。使用済燃料には、Mo、Tc、Ru、Rh 及び Pd で構成された白金族合金が含まれており[2]、白金族合金は硝酸に難溶なため、容易に抽出できる可能性が高い。そこで、使用済燃料から得られる白金族合金を、水素発生低減触媒として直接利用することを提案する。本報告では白金族合金の触媒材料としての機能を調べることを目的とし、作製した模擬体を用いた各種観察を行った。より性能の良い触媒を得るための加工法の一つとして考えている減圧下での加熱を施した試料を XRD、SEM-EDS および EXAFS にて深さ方向における構造変化等について評価した。

2. 実験方法

アーク溶解法により作製した結晶系(Ru をホストとする HCP 相)を持つ厚さ 1 mm に切断された模擬白金族合金(Mo:Ru:Rh:Pd=40:45:7.5:7.5(wt%))に対し、1 Pa での減圧下で 1000°C まで昇温後、1 時間保持し、徐冷という手順で加熱した。試料を切断し、断面を SEM-EDS 観察したところ、表面付近において Mo の酸化・蒸発や相分離が見られた。加熱後の試料内部に均一に存在する Rh 及び別相を形成する Pd において、深さ方向の積層構造を明らかにするため表面から 100 μm ずつ 300 μm まで研磨し、各研磨面に対してあいち SR 光センター BL11S2 にて Rh 及び Pd 近傍の動径構造関数を観察した。また、試料を表面から 50 μm ずつ 250 μm まで研磨を行い、同様に XRD 分析にて結晶構造を観察した。

3. 実験結果

EXAFS 分析の結果より、いずれの深さ位置において、Rh 及び Pd 近傍には金属のみの構造を示していた。これは、減圧下の加熱であるため、Rh 及び Pd は酸化せずに金属の状態で固溶していることを示している。図 1 に各深さ位置での XRD ピークパターンを示す。加熱前と比較して HCP 相のピークが高角にずれることから、加熱することにより、表面付近の Mo が酸化・蒸発していることが分かる。また、加熱後、深さ位置につれて HCP 相を示すピークが低角に次第にずれていき、Mo が表面へと移行していくことが示される。一方 200 μm 以深は Mo の移行が生じておらず、その周囲では Mo 濃度の高い HCP 相と Mo 濃度の低い HCP 相が共存している。Mo の酸化・蒸発が著しい表面と 2 種の HCP 相が共存している界面付近において Mo 濃度の減少により新たに Rh と Pd をホストとする FCC 相の創出が観測された。

4. 結言

実験結果より、模擬白金族合金に含有される Mo の移行挙動と相変化が明らかになった。特に選択的な Mo 酸化・蒸発や Mo 濃度の減少による FCC 相(Rh-Pd 相)の創出は触媒効果の向上が期待できる。今後の展望として、白金族合金の抽出方法や経済性に着目した工法を検討していく必要がある。

参考文献

- [1] 鈴木俊一ら, 「ジオポリマーを活用した燃料デブリ取り出し工法の提案」, 日本保全学会第 14 回学術講演会要旨集, 2017.
[2] H. Kleykamp, "The chemical state of the fission products in oxide fuels", J. Nucl. Mater., Volume 131, Issues 2-3, April 1985, Pages 221-246.

*Naoki Tarumi¹, Koya Yamazaki¹, Yuki Oiwa¹, Haruaki Matsuura¹, Shunichi Suzuki² and Isamu Sato¹

¹Tokyo City Univ., ²The Univ. of Tokyo.

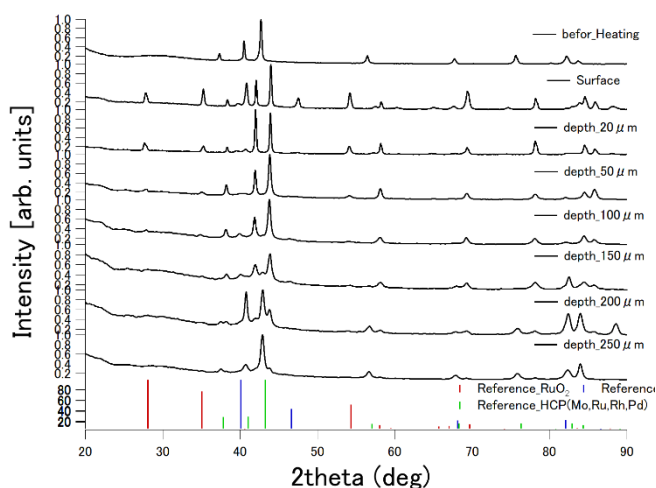


図 1 深さ方向をパラメータとした XRD ピーク