



四元系白金族金属相の局所構造解析

松浦 治明、服部 亮平、野元 嗣英、佐藤 勇
東京都市大学

キーワード：ファイン、白金族元素、モリブデン、ルテニウム

1. 背景と研究目的

高レベル放射性廃液に含有する白金族元素は、ガラス固化工程の際に蒸気圧の高い酸化物となり揮発したり、金属微粒子となって流下ノズルを閉塞させるなど、種々の問題を引き起こす可能性のある物質である。本研究では、将来の混合酸化物燃料の再処理にガラス固化工程が適用された場合に備え、軽水炉由来の使用済み燃料より高濃度になると推察される白金族元素がガラス固化工程に際しどのような影響を及ぼすか予測するための種々の基礎データを取得するため、まず、複数の手法で作製した白金族元素の合金（模擬ファイン相）を対象とした EXAFS 構造解析を実施し、白金族元素合金中のモリブデン、およびルテニウムの局所構造を明らかにすることにより、合金作製時の元素の挙動解明に役立てることとした。

2. 実験内容

模擬ファイン相の組成は実際の核分裂生成物の組成比に近く、均一な合金化が達成された場合は状態図により実残渣と同様の ϵ 相(HCP)を形成すると予測される、重量比で $\text{Mo}:\text{Ru}:\text{Rh}:\text{Pd}=25:50:10:25$ とした。作製方法は高周波誘導加熱炉（1500 °C/min 急速加熱で 2650 °C にて 1 分保持、Ar 雰囲気中）およびマッフル炉（60 °C/min 加熱で 1700 °C にて 20 分保持、大気中）を適用した。得られた試験片を粉碎しチャックシールに充填したものを BL11S2 ビームラインにて Mo および Ru-K 吸収端について SDD 検出器を用いた蛍光法による EXAFS 測定を実施した。

3. 結果および考察

各種測定試料の EXAFS 構造関数を Fig.1(a,b)に示す。Ru については、マッフル炉で作製した試料の方が高周波加熱炉に比べて金属粉末単体に特徴が類似しており、マッフル炉ではより低温での作製のため他の成分との融和が進行せず、また第一近傍の Ru-メタルの相関より長距離側の 3.5 Å 辺りのピークが認められたことは、Ru の一部が酸化している可能性がある。このピークはより高温で短時間加熱処理した高周波誘導加熱炉の場合は出現しておらず、Ru-メタルの相関は若干幅が広がりピークが短い距離側にシフトしていることから、他の成分との融和が進行し、より理想的な試料作製環境であったことを示している。一方 Mo については、マッフル炉で作製した試料には全く Mo の存在が認められなかった一方、高周波誘導加熱炉により作製された構造分布は原料粉よりシャープな第一近傍ピークに特徴があり、マッフル炉では加熱中酸化物として揮発したこと、高周波加熱炉では他の成分との融和が進み構造の安定化が図られていることが分かった。本成果は経済産業省資源エネルギー庁「平成 31 年度放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究事業」の一部である。

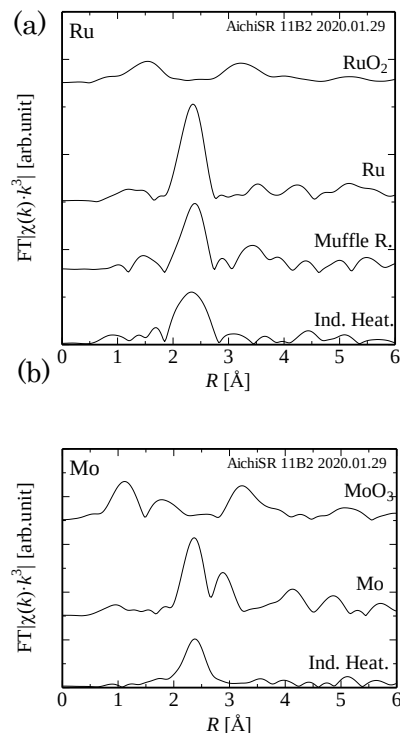


Fig.1 (a)Ru,(b)Mo 周りの構造関数