

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials : 501-1 Basic Properties

📅 Fri. Mar 14, 2025 9:45 AM - 10:45 AM JST | Fri. Mar 14, 2025 12:45 AM - 1:45 AM UTC 🏠 Room G(Zoom room 7)

### **[3G01-03] Advance Fuel and Utilization of FP**

Chair:KAN SAKAMOTO(NFD)

9:45 AM - 10:00 AM JST | 12:45 AM - 1:00 AM UTC

[3G01]

Development of Sphere-Pac Metallic Fuel for SMR

Investigation on filling status and its heat transfer of metal Sphere particles

\*Jialin Sun<sup>1</sup>, Isamu Sato<sup>1</sup>, Kyoma Tsuden<sup>1</sup> (1. Tokyo City University)

---

10:00 AM - 10:15 AM JST | 1:00 AM - 1:15 AM UTC

[3G02]

Study on evaluation of catalytic function of platinum group alloys

Effects of phase transformation on Mo oxidation at elevated temperatures

\*Kiyosuke Osawa<sup>1</sup>, Yuki Oiwa<sup>1</sup>, Hongfu Liu<sup>1</sup>, Isamu Sato<sup>1</sup>, Hayato Uchida<sup>1</sup> (1. Tokyo City Univ.)

---

10:15 AM - 10:30 AM JST | 1:15 AM - 1:30 AM UTC

[3G03]

Preparation and characterization of simulated platinum group alloy nanoparticles

\*Hayato Uchida<sup>1</sup>, Kiyosuke Osawa<sup>1</sup>, Isamu Sato<sup>1</sup>, Yuki Oiwa<sup>1</sup> (1. Tokyo City University)

---

10:30 AM - 10:45 AM JST | 1:30 AM - 1:45 AM UTC

Time reserved for Chair

---

# SMR 用 Sphere-Pac 金属燃料の開発

## (1) 金属 Sphere 粒子の充填状態と伝熱に関する検討

### Development of Sphere-Pac Metallic Fuel for SMR

#### (1) Investigation on filling status and its heat transfer of metal Sphere particles

\*孫 佳林<sup>1</sup>, 佐藤 勇<sup>1</sup>, 通傳 響真<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東京都市大学

通常の原子炉と比べ建設時間やメンテナンス性にメリットがある SMR 原子炉の運用管理やメンテナンス性を更に向上するため、本研究では燃料粒子を被覆管に直接充填する Sphere-Pac 燃料の充填状態や充填後の物性評価を行い、燃料形態燃料交換スパンを伸長できる燃料を開発する。

**キーワード：球充填、多相熱伝達率、小型モジュール原子炉、金属燃料**

#### 1. 緒言

Sphere-Pac 燃料中、金属燃料の充填や熱伝導特性のデータが不足している。本研究では SMR での燃料交換スパン伸長を可能とする Sphere-Pac 金属燃料を開発するため、金属製燃料模擬ボールを使用し、模擬被覆管への充填密度などの充填特性および充填後模擬試料の伝熱特性を検討した。

#### 2. 金属 Sphere 模擬試料実験

直径が異なるステンレス鋼ボールで金属管へ充填、充填率とボール寸法の依存性を評価する。充填中の振動なしのランダム最密充填法[1]で充填密度の確認実験を行った。被覆管を模擬するステンレス鋼製の金属管と直径 3 種類のステンレス鋼ボール（直径 0.3mm、1.0mm および 1.5mm）で充填作業を行った。



Fig1 : 1.5mm ボール充填の試料

##### 2-1. 模擬試料充填実験（ランダム最密充填法[1]）

被覆管を模擬する金属管を洗浄と乾燥後、電子天秤で重量を測定し、蒸留水を金属管に注入、蒸留水の重量を測定した。水の密度の温度依存性を考慮し、金属管の内体積を計算を行った。充填密度のボール直径依存性を確認するため、3 種類のステンレス鋼ボールを混合せずにそれぞれ金属管に充填、充填高さを水位と同様にし、充填後のステンレス鋼ボールと水の重量を測定した。ステンレス鋼 (Cr18-Ni8) 材料の理論密度と水の密度差に基づき、SUS の充填率を 5 回計測を行い、充填密度と不確かさを評価を行った。

##### 2-2. 模擬試料伝熱実験試行

Sphere-Pac 金属燃料の伝熱に関しては熱伝導率実験や有限要素法シミュレーションにより特性を試行評価した。前者では、ボール中心と被覆管の温度差で熱伝導率を評価に使用した。ステンレス鋼 (Cr18-Ni8) の熱伝導率の文献値を用いて、Bruggeman[2] モデルを適用して得られた計算値と比較した。

#### 3. 結論

3 種類の SUS ボール充填率の平均値と標準偏差は、直径 0.3mm で充填率 0.58・標準偏差 0.0052、直径 1.0mm で充填率 0.59・標準偏差 0.0014 および直径 1.5mm で充填率 0.60・標準偏差 0.0013 となった。ランダム最密充填法は振動なしの「緩い充填」で充填率は 0.59-0.60 となるとあり[1]、本実験と一致する。熱伝導率の評価結果は 10.40 W/m/K、モデル計算結果は 6.6 W/m/K となった。この差異の要因は検討中である。

#### 参考文献

[1] Dullien, F. A. L. (1992). Porous Media: Fluid Transport and Pore Structure (2nd ed.). Academic Press. ISBN 978-0-12-223651-8

[2] DAG Bruggeman (1935): "Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Systemen.", Ann. Phys. 24 ,636

\*Jialin Sun<sup>1</sup>, Isamu Sato<sup>1</sup> and Kyoma Tsuden<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Tokyo City Univ.

# 白金族合金の触媒機能評価に関する研究 高温下での相変化による Mo 酸化への影響

Study on evaluation of catalytic function of platinum group alloys

Effects of phase transformation on Mo oxidation at elevated temperatures

\*大澤響祐<sup>1</sup>、大岩祐毅<sup>1</sup>、劉洪甫<sup>1</sup>、佐藤勇<sup>1</sup>、内田隼斗<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東京都市大学

抄録 白金族合金は、減圧加熱することで水素低減機能の向上が見込まれるが、合金の相変化による Mo 酸化に伴う固溶状態等をミクロなレベルで把握する事は重要である。そこで、当該合金に対する TEM による詳細観察のため、観察用試料の作製及び冶金観察、FIB 加工、並びに EBSD による測定に取り組んだ。

**キーワード**：白金族合金、酸化、TEM、EBSD

## 1. 緒言

使用済燃料の再処理工程で不溶解残渣として発生する白金族合金は、水素低減触媒としての有効利用が考案されている[1]。過去の研究事例には、実機の模擬合金(Mo-Ru-Rh-Pd)を減圧加熱し、水素低減機能を阻害する Mo 除去による一定の触媒性能向上が見られた[2]。この時当該合金で、相変化を起因とする Mo 酸化に伴い、固溶体(Ru 及び Pd)が形成されると考えている。本研究では、減圧加熱による触媒機能向上を当該元素における固溶状態の詳細観察により解明する。EBSD で局所的な結晶方位及び分布の観察、TEM による原子レベルでの結晶構造の観察を目指す。なお、TEM 観察は前準備として FIB 装置により薄膜試料を作製した。

## 2. 実験方法

模擬白金族合金を作製するにあたり、Mo 除去による結晶構造変化に着目するため、組成を通常より Mo に富んだ組成の Mo40-Ru45-Rh-7.5Pd7.5[wt.%]とした。各粉末試料を組成どおりに秤量、混合して圧粉体にし、アーク溶解により合金とした。その後 SEM-EDS 及び XRD による冶金観察を行い、電気炉で減圧加熱(1.3[kPa])後[2]、再度同様の手法で冶金観察した。加熱前後の試料表面を観察のために研磨で平滑化し、EBSD により結晶方位及び結晶分布を測定した。その後、加熱前試料から FIB 装置で厚さ 0.1[ $\mu\text{m}$ ]の薄膜試料を作製した。なお FIB 装置は Ga をイオン源とし、加速電圧 30[kV]、電流値 167~13500[pA]とした。

## 3. 結論

減圧加熱前後で、Mo 酸化物の蒸発によるものと思われる重量変化を確認した。XRD では、酸化物の MoO<sub>3</sub> 及び RuO<sub>2</sub> を示すピークが見られた。図 1 に示す SEM-EDS は加熱後試料の断面で、試料表面から Mo が減少した相が新たに確認された。EBSD 測定では、急速加熱・冷却による小さい相の形成を予想していたが、Ru を母体とするおおまかな結晶方位が見られた。研磨を施すことで詳細に見えると思われる。図 2 は FIB 装置で作製した薄膜試料(加熱前)で、観察に適した厚さ(約 0.1[ $\mu\text{m}$ ])であった。今後は EBSD で正確な結晶方位を取得する。加熱前後試料の相変化部分から薄膜試料を得て TEM 観察し、加熱前後の相を含んだ薄膜試料作製も実施する。

## 参考文献

[1] 樽見 直樹 令和 5 年度 修士論文

[2] 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-

日本原子力学会 2023 年春の年会 樽見直樹,他

\*Kiyosuke Osawa<sup>1</sup>, Yuki Oiwa<sup>1</sup> and Hongfu Liu<sup>1</sup>, Isamu Sato<sup>1</sup>, Hayato Uchida<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Tokyo City Univ.

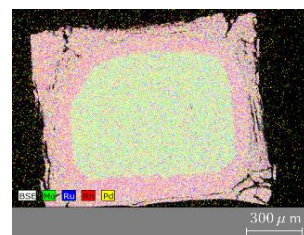


図 1 加熱後試料の SEM-EDS 結果

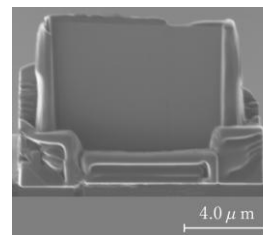


図 2 加熱前試料の薄膜試料

## 模擬白金族合金ナノ粒子の作製と物性評価

### Preparation and characterization of simulated platinum group alloy nanoparticles

\*内田 隼斗<sup>1</sup>、大澤 響祐<sup>1</sup>、佐藤 勇<sup>1</sup>、大岩 祐毅<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東京都市大学

**抄録** 本研究では、再処理工程で得られる核分裂生成物の白金族合金(Mo-Ru-Rh-Pd)を水素低減触媒として有効利用することを目的としている。そのためには、模擬粒子を作製し、触媒機能を評価する必要がある。触媒機能は粒の形や大きさに影響するため、実機に近づける必要がある。そこで、白金族合金の代替材料として硝酸銀を水溶媒に溶かし還元させて銀粒子を取り出す液相法を検討した。

**キーワード**：白金族合金、ナノ粒子、物性評価、液相法

#### 1. 緒言

使用済燃料の再処理において不溶解残渣の主成分として白金族合金が得られる。模擬白金族元素の触媒機能の向上のためには、粒径を小さくして表面積を増加させることが有用である。先行研究ではバルク状試料を作り、機械的粉砕することにより、微細化を図った[1]。しかし、この手法では実機の不溶解残渣の粒径が数十 nm～数 μm のものとは違い、粒径が数 μm～数十 μm 程度までしか加工できない。また、試料表面も実機の球面と異なり乱れている。そこで、溶液中で模擬白金族合金のナノ粒子を作製する方法を模索する。固溶体の合金を溶液中で作るためには各元素イオンの還元を一定にする必要がある[2]。そこで、白金族合金で実験をする前に、比較的ナノ粒子が得やすい硝酸銀を用いて作製方法や評価方法についての知見を得ることを目的とした。

#### 2. 実験方法

ナノ粒子の作製方法は固体のまま粉砕する固相法、物質を気化させて発生した蒸気を冷却する気相法および液中に溶けた物質を化学反応で核を形成・成長させる液相法がある。固相法では粒子径を小さくしづらく、また砕かれた粒子内部に残留応力が生じ、その結果粒子がさらに粗くなる。そこで、今回の実験では液相法を用いて粒子を作製した。液相法では金属を溶液中に溶解するため、粒子を取り出すには還元剤を加える必要がある。溶液中では表面エネルギーが高くなり、凝集してしまうため保護剤を加えて分散させる。ここでは硫酸鉄溶液を還元剤として、くえん酸三ナトリウム溶液を保護剤として使い、2つの溶液を混合して硝酸銀溶液を添加し、銀粒子溶液を作製した。図1に今回作製した試料のフローチャートを示している。また、各実験操作①②③で溶液を取り出し、乾燥させたものを試料としている。

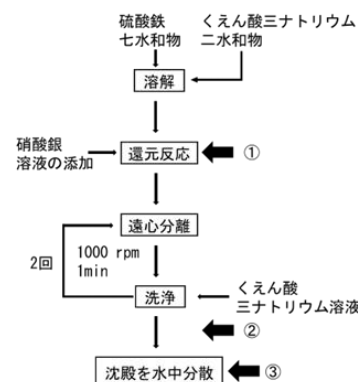


図1 実験操作のフローチャート

#### 3. 結果・考察

図2は図1の実験操作での水中分散後③を乾燥させ、粉体にしたものをSEM観察したものである。粒径が1～2μm程度の銀粒子が得られた。また、還元反応後①、遠心分離洗浄後②、水中分散後③での銀粒子の化学状態を調べるために、放射光を用いたEXAFS分析を行った。詳しい結果については発表の際にお伝えする。今後はナノ粒子の作製方法を検討するとともに白金族合金の模擬粒子作製に着手し、使用済み燃料におけるナノ粒子の製造過程を考察していく予定である。

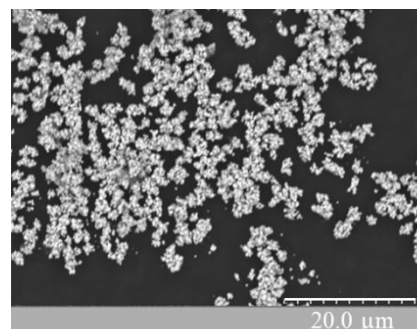


図2 水中分散後③のSEM像

#### 参考文献

- [1] 樽見直樹 燃料デブリ収納缶での水素低減を目的とした触媒開発 日本原子力学会 2024年春の年会  
 [2] Kohei K. et al (2014). Journal of the American Chemical Society, 136(5), [1864–1871]

\*Hayato Uchida<sup>1</sup>, Kyosuke Osawa<sup>1</sup>, Isamu Sato<sup>1</sup> and Yuki Oiwa<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Tokyo City Univ.