高温における$(U_{0.623}Pu_{0.35}Am_{0.027})O_{2\pm x}$の酸素ポテンシャル測定

The oxygen potential measurement of $(U_{0.623}Pu_{0.35}Am_{0.027})O_{2\pm x}$ under high temperature

*松本 卓[1]，加藤 正人[1]，森本 恭一[1]，砂押 剛雄[2]
[1]日本原子力研究開発機構，[2]検査開発

$(U_{0.623}Pu_{0.35}Am_{0.027})O_{2\pm x}$の酸素ポテンシャルを気相平衡法により 1873~1673K の温度範囲において測定した。得られた結果を格子欠陥化学に基づき解析し、酸素ポテンシャルを O/M 比と温度の関数として定式化した。

キーワード：酸素ポテンシャル，O/M 比、Am 含有 MOX 燃料

1. 緒言

高レベル放射性廃棄物の減容・有害度低減を目的とする高速炉燃料の開発において、MA 含有 MOX 燃料の評価が進められている。アクチニド酸化物の物性は O/M 比に大きく依存するため、燃料製造や照射挙動評価等では酸素ポテンシャル（ΔGo_2）と O/M 比の関係が重要となる。Am は MA の中でも生成量が多く比放射能が高いなど環境負荷の大きい核種であり、その酸化物である AmO_{2-x} はΔGo_2が高いため、MOX 燃料のΔGo_2に及ぼす Am の影響評価が重要となる。これまでに Am 含有 MOX 燃料のΔGo_2は数例報告されているが、1623 K 以上の温度におけるΔGo_2は報告されていない。本研究では$(U_{0.623}Pu_{0.35}Am_{0.027})O_{2\pm x}$の$\Delta Go_2$を 1673 ~ 1873 K において測定し、格子欠陥化学を用いて評価を行った。

2. 実験

UO_2及び$(Pu_{0.928}Am_{0.072})O_2$の原料粉末を混合して$(U_{0.623}Pu_{0.35}Am_{0.027})O_2$の焼結ペレットを作製した。当該ペレットを厚さ約 1 mm の平板状に切断し、1273 K×5 h、ΔGo_2 = -346 kJ/mol の条件で熱処理を行い O/M 比 2.00 に調整した。$(U_{0.623}Pu_{0.35}Am_{0.027})O_{2\pm x}$の$\Delta Go_2$測定は、熱重量測定装置を用いて気相平衡法により行った。気相平衡法は、試料を一定温度と既知の酸素分圧の供給ガス中で熱処理し、平衡後に異なる酸素分圧の供給ガスに切換え、切換え前後の試料の重量変化から O/M 比を、また酸素分圧からΔGo_2を求める手法である。本研究ではこれを様々な酸素分圧の供給ガスで行い O/M 比とΔGo_2の関係を評価した。

3. 結果・考察

格子欠陥化学では定比組成からのずれxは$P_{O_2}^{1/n}$に比例し、n は欠陥反応により様々な値をとることが知られている。これまでの研究で UO_2や MOX は、定比組成近傍では電気的欠陥が支配的となり、n = ±2 の関係に従うことが報告されている。このため本試験結果について n = ±2 の関係に従うように定比組成を決定した。また各 n の値に対応する欠陥反応を考慮することで、$(U_{0.623}Pu_{0.35}Am_{0.027})O_{2\pm x}$の O/M 比を酸素分圧及び温度の関数として定式化した。図 1 に測定結果及び計算値（1873 K）を示す。またレファレンスとして、文献値[1,2]から評価した$(U_{0.65}Pu_{0.35})O_{2\pm x}$の計算値（1873 K）を示す。測定結果はレファレンス同様の傾向を示したが、1873 K における亜化学両論組成領域では、2.7 %の Am 含有によりΔGo_2が 20~35 kJ/mol 増加した。

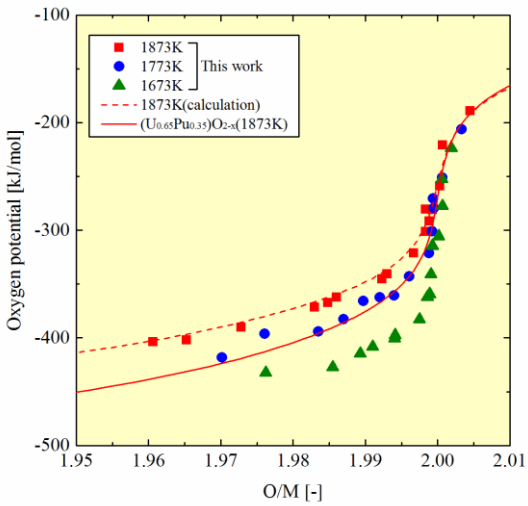

図 1 酸素ポテンシャル測定結果

参考文献

[1] Kato et al. J.Nucl.Mater 414(2011)120.
[2] Kato et al. J.Nucl.Mater 385(2009)419.

*Taku Matsumoto[1], Masato Kato[1], Kyoichi Morimoto[1] and Takeo Sunaoshi[2]
[1]Japan Atomic Energy Agency, [2]Inspection Development Company