

二酸化プルトニウムの点欠陥に関する第一原理計算

First-principles study on point defects in plutonium dioxide

*中村 博樹¹, 町田 昌彦¹

¹原子力機構

第一原理計算を用いて MOX 燃料主要成分である二酸化プルトニウムの点欠陥を評価した。電荷を持った酸素欠損などの点欠陥を扱い、その生成エネルギーや移動エネルギーなどの評価などから、点欠陥と物性値の関係について考察する。

キーワード：二酸化プルトニウム、第一原理計算、点欠陥

1. 緒言

二酸化プルトニウムは MOX 燃料の主要成分の 1 つである。それゆえに、MOX 燃料の開発においてはその詳細な物性値が必要となる。しかし、二酸化プルトニウムを始めとする核燃料物質は取り扱いの制限や高温での実験の困難さのため、測定によって詳細な物性を得ることが簡単ではない。それゆえに、数値計算によって測定された物性値の精度を補間していくことは燃料開発やシビアアクシデントの解析において重要な役割を担ってくる。物性評価のための数値計算手法としては、経験的なパラメータを必要としない第一原理計算を用いるのが最も信頼性が高いと考えられる。

これまで、我々は定比組成の二酸化プルトニウムの電子状態や熱物性値を第一原理計算で評価してきた。しかしながら、二酸化プルトニウムでは不定比組成の PuO_{2-x} の存在が知られており、酸素空孔の性質を理解することが、燃料物性を評価する上で重要と考えられる。そこで、本研究では、酸素空孔や粒子間酸素の生成エネルギー及び移動エネルギーを、第一原理計算を用いて評価する。

2. 計算方法

二酸化プルトニウムは螢石型の結晶構造を持っている。計算においては $2 \times 2 \times 2$ のスーパーセルを用いた。酸素空孔に関する計算では、このスーパーセル中の酸素を 1 個取り除いた構造を用いた。また、粒子間酸素に対しては、スーパーセル中に酸素を 1 つ追加することで計算を行った。どちらの計算でも、格子定数は固定して、原子の内部座標に関してのみ最適化を行った。また、電荷を持った点欠陥に関する計算では系全体の電子数を増減することで対応した。移動エネルギーの計算に対しては、Nudged Elastic Band 法を用いて評価した。計算コードとしては VASP を用いて、強相関効果(LDA+U)とスピン軌道相互作用を考慮した。

3. 結論

酸素空孔及び粒子間酸素においては 2 価の電荷が安定であることが分かった。また、移動エネルギーに関したは空孔も粒子間原子もほぼ同程度の値になることが分かった。本発表ではこれらの結果が物性に与える影響について議論する。

*Hiroki Nakamura¹, and Masahiko Machida¹

¹Japan Atomic Energy Agency.