

蛍石型酸化物の熱物性評価

Thermal properties evaluation of fluorite structure oxides

*加藤 正人¹, 松本 卓¹, 中村 博樹¹, 町田 昌彦¹

¹ 日本原子力機構

UO₂ や PuO₂ などの蛍石構造を有する 6 種類の酸化物について、熱物性及び機械物性について比較・評価し、比熱及び熱伝導率を記述する式について検討した。

キーワード : 蛍石酸化物, アクチナイド酸化物, 熱物性

1. 緒言

酸化物燃料の基礎物性について機構論的に記述することを目的に、蛍石構造を有する CeO₂、ThO₂、UO₂、NpO₂、PuO₂、AmO₂ の 6 種類の酸化物について基礎特性を比較評価した。さらに、基礎データ間の関連性について検討し、比熱及び熱伝導率について評価を行った。

2. 実験データベース

実験データとして、酸素ポテンシャル、格子定数、ヤング率、せん断率、ポアソン比、熱膨張率、比熱、熱伝導率及び融点についてレビューし、比較評価した。6 種類の化合物のうち、UO₂ はハイパーストイキオメトリの領域に、ThO₂ を除く残りの 4 種類は、ハイポストイキオメトリ組成領域に広がっている。ThO₂ は定比組成で安定であり、広範囲の酸素ポテンシャルで安定に存在し、他の酸化物は、NpO₂<UO₂<PuO₂<CeO₂<AmO₂ の順で酸素ポテンシャルが高くなる傾向である。融点と熱膨張率の関係などの他の特性においては、明らかな傾向は観察できなかった。

3. 熱物性の評価

図 1 に比熱の温度依存性 [1] を示す。機械物性及び熱膨張係数を用いると、デバイ温度とグリユナイゼン係数を評価することができるため、比熱(C_p)を定積比熱(C_v)と熱膨張の寄与(C_d)の和として得ることができる。図 1 中に例として CeO₂ の計算結果を示すが、実験データと良い一致を示している。

これらの化合物は、同じ結晶構造で、熱膨張も大きな違いがないことから $C_p = C_v + C_d$ は、ほぼ同じ値となることが期待される。ThO₂ の比熱は CeO₂ とほぼ同じ値を示すが、他のアクチノイド酸化物は 10-30 J/mol K 高く、PuO₂ が最も高い値である。これらの酸化物における実験データと計算で得られた結果の差は、5f 電子の寄与であるショットキー項として評価された。熱伝導率は、フォノン伝導の Slack の式 [2] で評価した。CeO₂ 及び ThO₂ はフォノン伝導とよく一致したが、NpO₂、UO₂、PuO₂ 及び AmO₂ は、他のメカニズムの寄与があることを確認した。

参考文献

[1] Konings, et al., J. of Phy. Chem. Ref. Data, 43, 013101(2014)

[2] Slack, Solid State Physics, 34(1979)1-71

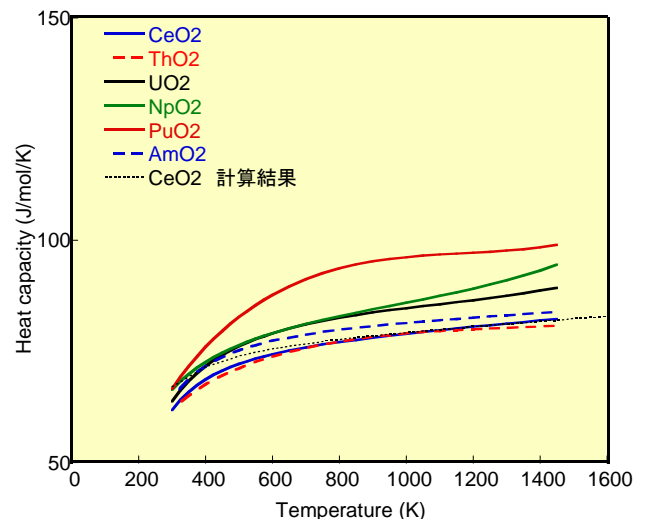


図 1 蛍石型酸化物の比熱の比較

*Masato Kato¹, Taku Matsumoto¹, Hiroki Nakamura¹ and Masahiko Machida¹

¹Japan Atomic Energy Agency