

二酸化アクチニドにおけるポーラロンの第一原理計算

First-principles calculations of polarons in actinide dioxide

*中村 博樹¹, 町田 昌彦¹

¹原子力機構

核燃料の物性値の数値シミュレーションによる評価には、経験的なパラメータを必要としない第一原理計算が多くの場合、有効である。本発表では、酸化物燃料の熱物性に対して、1500K 以上の高温領域で大きな影響を与えるとされるスモールポーラロンを第一原理計算で評価した。

キーワード : MOX 燃料、第一原理計算

1. 緒言

二酸化ウランをはじめとする二酸化アクチニドは 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、アクチニドを含む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、我々は二酸化アクチニドに対して、フォノンなどの影響を考慮して、比熱や熱伝導率などの熱物性値の第一原理計算による評価を行ってきた。しかしながら、1500K を超える高温領域ではスモールポーラロンと呼ばれる準粒子が励起され、熱物性や電気伝導に大きな影響を与えることが指摘されている。このポーラロンによる物性の第一原理計算による評価はあまり行われてこなかった。本発表では第一原理計算を用いて二酸化ウランのポーラロン状態を再現し、その生成エネルギーなどの物性を評価する。

2. 計算方法

UO₂ において、スモールポーラロンは U 原子に電子または空孔が局在して、その周辺の原子配置をゆがませることで生成されると考えられている。これは、UO₂ 中の U⁴⁺が U⁵⁺や U³⁺と価数を変化させていると考えることができる。そのため、ポーラロンを計算で再現するには UO₂ のスーパーセルに対して電子数を増減させ、それらを局在させる必要がある。これに対して、電子や空孔が局在した電荷密度を初期状態として、第一原理計算を行うことによってスモールポーラロン状態を得ることに成功した。この状態を用いて、ポーラロンの生成エネルギー等の評価を行なった。

3. 結果・考察

$2U^{4+} \rightarrow U^{5+} + U^{3+}$ の反応における電子ポーラロンと空孔ポーラロンの対生成エネルギーは 1.9eV となり、これまでの実験で知られている値と近い値が得られた。発表では、スモールポーラロン状態等の詳細について議論する。

*Hiroki Nakamura¹, and Masahiko Machida¹

¹Japan Atomic Energy Agency.