

## 燃料模擬物質 $CeO_{2-x}$ における空気雰囲気中の O/M 比変化挙動に関する研究

Study on O/M ratio change behavior of a simulated fuel,  $CeO_{2-x}$ , under air atmosphere

\*服部 亮平<sup>1</sup>, 佐藤 勇<sup>1</sup>, 墨田 岳大<sup>2</sup>, 小林 能直<sup>2</sup>

<sup>1</sup>東京都市大学, <sup>2</sup>東京工業大学

ウラン酸化物燃料に Pu, Am を添加すると酸燃料内の O/M 比に影響があることが知られている。このような混合酸化物燃料は空気中で容易に O/M 比が変化することも指摘されており、本研究では、 $CeO_2$  をペレット成型し空気中での O/M 比挙動観察を行った。

キーワード： 模擬燃料 ( $CeO_2$ )、O/M 比、酸素分圧

### 1. 緒言

燃料サイクルにおける最終処分への負荷低減の一環として、Am 等のマイナーアクチニドを MOX 燃料に添加し、高速炉にて燃焼させるマイナーアクチニドの消滅処理が検討されている。ウラン酸化物燃料に Pu, Am を添加すると酸素ポテンシャルが高くなることが分かっている。したがって、このような混合酸化物燃料の O/M 比（金属元素に対する酸素の割合）は適切に管理されなければならない。一方で、燃料製造・保管時空気中においてこのような燃料の O/M 比が容易に変化する現象が確認されている [1]。本研究では、模擬物質として  $CeO_2$  を用い、その O/M 比を低下させ、空気中に保管した際の O/M 比変化挙動を観察し、結晶学的考察を行った。

### 2. 実験方法

$CeO_2$  粉体 0.8 g（富士フイルム和光純薬：純度 99.9 %）、PVA 溶液 20wt.% を 50  $\mu$ l、アセトン 100  $\mu$ l において混合し、ダイセット（ $\Phi$ 6 mm、成型圧力 60 MPa）でグリーンペレットを作製した。これを空気雰囲気中において温度 1600  $^{\circ}C$ ・1 時間の焼結を行った（昇温：10  $^{\circ}C/min$ 、降温：徐冷）。次に、Ar ガスに満たされたグローブボックス内に設置されている電気炉で 900  $^{\circ}C$ ・5 時間の熱処理を行い、O/M 比を低下させた。熱処理後のペレットを空気雰囲気に保ち、その重量変化を計測し、 $CeO_2$  の O/M 比変化挙動を評価した。また、同時にペレットに対する X 線回折（XRD）を GB 取出し後（12、52 および 312 分後）に 3 回行い、ピークパターンの分析をした。さらに、 $CeO_2$  焼結ペレット解砕片 30 mg に対して 900  $^{\circ}C$ ・Ar ガス雰囲気下での熱重量分析（TG）を行った。

### 3. 結果・考察

焼結温度 1600  $^{\circ}C$ ・1 時間の焼結で、75 %TD の  $CeO_2$  のペレットを得た。また、焼結後の O/M 比を 2.0 とした場合、Ar ガス雰囲気下の熱処理で O/M 比は 1.93 程度となった。その後、空気雰囲気下に保存することで、1 日以内で O/M 比は 2.0 まで上昇した。次に、O/M 比が変化している最中のペレットに対して X 線回折分析した。その結果、O/M 比の上昇時は高角側にピークがシフトした。XRD ピークパターンから格子定数の経時変化を得た（図 1）。また、TG より O/M 比の変化速度を定量的に評価した。 $CeO_{2-x}$  ペレットは、空気中で O/M 比が上昇し、結晶構造も変化していることが明らかとなった。

#### 参考文献

[1] 三輪周平、逢坂正彦、吉持宏「Am 含有 MOX 燃料の焼結に及ぼす酸素ポテンシャルの影響」 JNC TN9400 2005-023 (2005) 核燃料サイクル機構

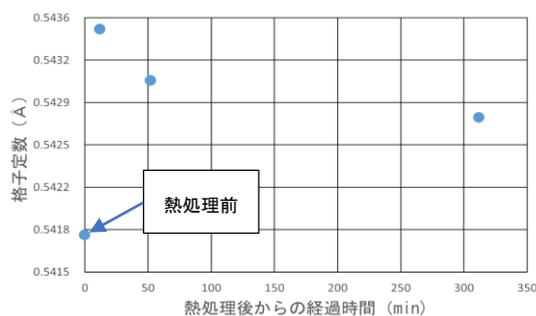


図 1  $CeO_2$  ペレットにおける格子定数と時間の関係

\*Ryohei Hattori<sup>1</sup>, Isamu Sato<sup>1</sup>, Takehiro Sumita<sup>2</sup> and Yoshinao Kobayashi<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Tokyo City Univ., <sup>2</sup>Tokyo Institute of Technology.