

1-9 PuとSiの化合物を調べる

—MOX燃料に含まれる不純物の挙動評価—

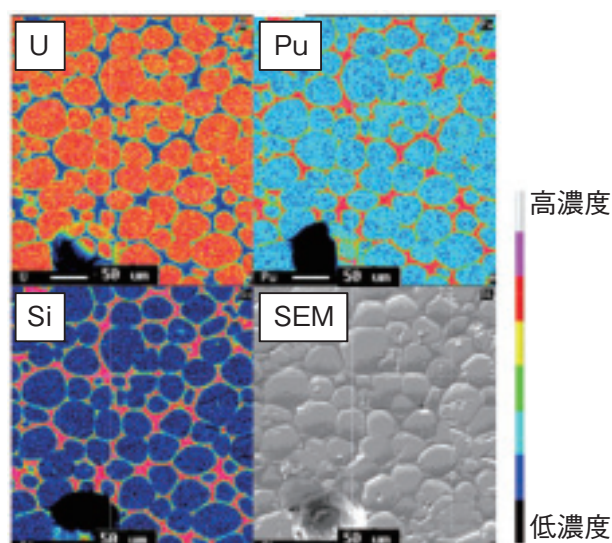


図1-23 MOX-6.9 wt%SiO₂ペレット断面の元素分析結果
熱処理を行ったペレット断面の元素分析結果を示します。赤い領域が濃度の高い領域です。PuとSiは同じ箇所で相対濃度が高くなっており、ネットワーク状に広がっています。右下は電子顕微鏡による組織観察結果です。

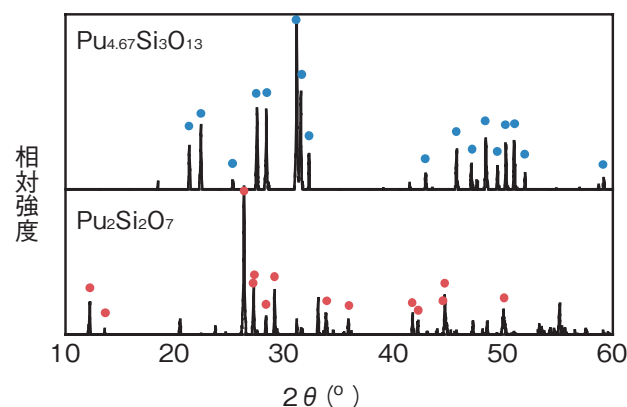


図1-24 熱処理を行ったPuO₂-SiO₂混合粉末のX線回折パターン

熱処理を行った試料のX線回折パターンを示します。Pu₂Si₂O₇は析出する条件が限られており、析出する相の多くはPu_{4.67}Si₃O₁₃を含む相でした。Pu₂Si₂O₇は、本研究で、初めて明らかにした化合物です。

私たちはFBR燃料としてMOX燃料の開発を進めています。MOX燃料は、原料粉末である二酸化ウラン (UO₂) と二酸化プルトニウム (PuO₂) を混合、成型、焼結を行うことによって製造していますが、原料粉末の混合工程において、混合設備に用いられるシリコン (Si) ゴムが燃料中に不純物として混入する可能性があります。そのため、MOX燃料中にSiが混入した場合のSiの挙動を調べて評価することが必要です。本研究では、MOX燃料中におけるSiの挙動を明らかにするために、MOXまたはPuO₂にSiを混合させ、反応生成物を調べる試験を実施しました。

MOX粉末に6.9 wt%のSiO₂粉末を混合し、ペレットを作製して2400 °Cで熱処理を行いました。図1-23に酸素分圧 (Po₂) が低い雰囲気 (3.0×10⁻⁷ Pa) で熱処理を行ったペレット断面の元素分析結果を示します。測定は電子線プローブマイクロアナライザで行いました。PuとSiの相対濃度の高い領域が同じ箇所に存在していることから、SiはMOX燃料中のPuと反応して化合物を形成していると考えられます。

この化合物の生成条件及び化学形態を確認するために、PuO₂-SiO₂反応試験を実施しました。PuO₂とSiO₂の混合比をモル比で3:1, 3:2及び3:3に変化させた試料を調整して、温度 (1350~1700 °C) と酸素分圧 (10⁻⁷~10⁻¹⁰ Pa) をパラメータにして熱処理を施しました。図1-24に、熱処理を行った試料のX線回折パターンを示します。温度と酸素分圧により、Pu_{4.67}Si₃O₁₃及びPu₂Si₂O₇の二種類の化合物が析出することが明らかになりました。Pu₂Si₂O₇を含む相は混合比が3:2及び3:3のサンプルで1600 °C以上の温度、10⁻⁷ Pa以下の酸素分圧の領域で析出しましたが、析出する相の多くはPu_{4.67}Si₃O₁₃を含む相であることが分かりました。さらに、それ以外の条件ではPuO₂とSiO₂が反応しないことを確認しました。これらのことからMOX中にSiが存在する場合、温度及びMOX中の酸素量に依存してSiO₂、Pu_{4.67}Si₃O₁₃及びPu₂Si₂O₇の化学形態をとることが分かりました。

このように、本研究によってMOXに含まれる不純物Siの挙動を調べ、各化合物の生成条件を明らかにすることができました。

●参考文献

Uchida, T. et al., Phase States in the Pu-Si-O Ternary System, IOP Conference Series; Materials Science and Engineering, vol.9, 2010, p.012004-1-012004-5.