

7-5 MA 含有 MOX 燃料に及ぼす Am の影響を評価する - (Pu_{0.928}Am_{0.072})O_{2-x} における酸素ポテンシャルと O/M 比の関係 -

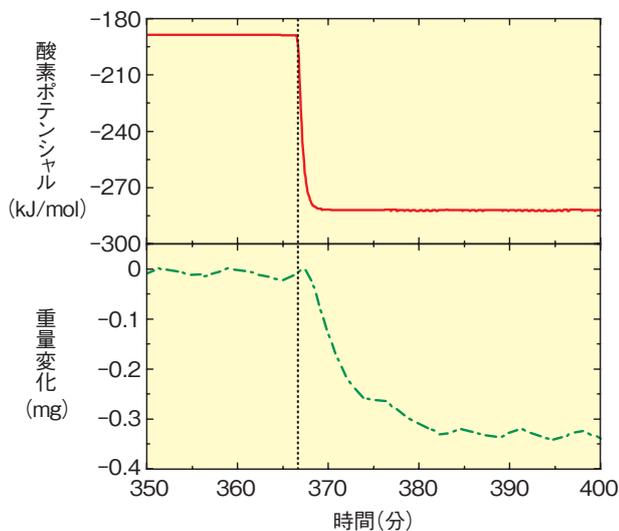


図 7-9 酸素ポテンシャルの変化と重量の変化
 上のグラフが雰囲気酸素ポテンシャル変化を、下のグラフが試料の重量変化を示しています。酸素ポテンシャルが低下すると試料の重量が減少（還元）します。図中の破線において雰囲気酸素ポテンシャルを変化させました。

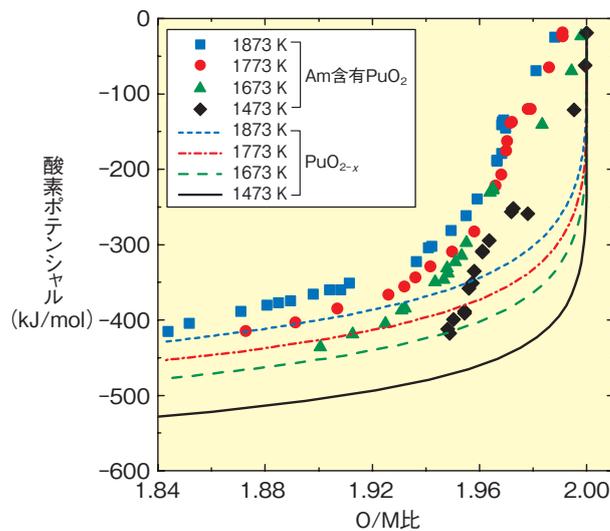


図 7-10 酸素ポテンシャルと O/M 比の関係
 Am を含有することで、O/M 比が 2.00 に近い領域で酸素ポテンシャルが著しく増加することが分かります。

原子力発電所から出る使用済み核燃料の中には、アメリシウム (Am) やネプツニウム (Np) 等のマイナーアクチノイド (MA) と呼ばれる元素が含まれています。この MA は放射能強度が高く、半減期が長いことから、高速炉等を利用して短寿命または非放射性的の核種へ変換処理することが考えられており、その一環として MA を多く含む酸化物燃料の開発が進められています。新型の酸化物燃料の開発には、様々な基礎熱物性データが必要ですが、MA の一つである Am は、基礎熱物性の中でも酸素ポテンシャルに影響を与えます。酸素ポテンシャルとは、酸化・還元の指標であり、酸素ポテンシャルの変化に伴い、酸化物燃料中の酸素 (O) と金属 (Pu 及び Am) の原子数比 (O/M 比) が変化し、この O/M 比の変化が燃料製造や照射挙動に大きな影響を与えることが知られています。

そこで私たちは、Am を含有した Pu 酸化物 (Am 含有 PuO₂) を作製し、熱天秤を用いることで、酸素ポテンシャルと O/M 比の関係を評価し、Am の影響を評価することに成功しました。試料中の酸素は、酸素ポテンシャルが変化することで、試料中から雰囲気中へ抜け出る若しくは試料中に雰囲気中から入り込むため、試料の重量がわずかに変化します (図 7-9)。この重量変化を、

熱天秤を用いて様々な酸素ポテンシャルの雰囲気中で測定することで、酸素ポテンシャルと O/M 比の関係を求めることができます。

各温度で得た酸素ポテンシャルと O/M 比の関係を図 7-10 に示します。また、Am の影響を評価するため、過去に測定された PuO₂ の酸素ポテンシャルと O/M 比の関係も示します。この結果から、温度の上昇に従い酸素ポテンシャルが増加することが分かりました。また、同じ温度の結果を比較すると、Am 含有 PuO₂ の酸素ポテンシャルは、PuO₂ に比べ全体的に増加しますが、特に O/M 比が 2.00 に近い領域で著しく増加していることが分かり、Am が大きな影響を与えることが確認できました。Am の酸化物である AmO₂ は PuO₂ よりも非常に酸素ポテンシャルが高いことが知られています。そのため、Am が Pu よりも先に還元されることにより、PuO₂ に比べ Am 含有 PuO₂ は O/M 比が 2.00 に近い領域で酸素ポテンシャルが増加したと考えられます。

今後は、Am を含有した MOX 燃料を用いて酸素ポテンシャルと O/M 比の関係を求め、Am が酸素ポテンシャルに与える詳細なメカニズムを明らかにしたいと考えています。

●参考文献

Matsumoto, T. et al., Oxygen Potential Measurement of (Pu_{0.928}Am_{0.072})O_{2-x} at High Temperatures, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.52, issue 10, 2015, p.1296-1302.