

JAEA-Research 2025-002 DOI:10.11484/jaea-research-2025-002

# アメリシウム含有燃料の熱伝導率評価

Thermal Conductivity Evaluation of Am-doped Oxide Fuels

横山 佳祐 渡部 雅 大西 貴士 矢野 康英 所 大志郎 菅田 博正 加藤 正人

Keisuke YOKOYAMA, Masashi WATANABE, Takashi ONISHI, Yasuhide YANO Daishiro TOKORO, Hiromasa SUGATA and Masato KATO

> 大洗原子力工学研究所 燃料材料開発部

Fuels and Materials Department Oarai Nuclear Engineering Institute

May 2025

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。 本レポートの成果(データを含む)に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の 条件で利用してください。(<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</u>) なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究開発推進部 科学技術情報課 〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49 E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency. This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en</u>).

Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan

E-mail: ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2025

## アメリシウム含有燃料の熱伝導率評価

## 日本原子力研究開発機構 大洗原子力工学研究所 燃料材料開発部

横山 佳祐、渡部 雅+、大西 貴士、矢野 康英、所 大志郎\*、菅田 博正\*、加藤 正人\*

#### (2025年1月16日受理)

高速炉の開発目標の1つとして「高レベル放射性廃棄物量減容・潜在的有害度低減のため、マイナ ーアクチノイド(MA)を分離・回収し、燃料として利用できるようにすること。」が示されている。 これに向けて、MA を添加した MOX 燃料を高速炉で燃焼する燃料サイクルが提唱されている。MA を添加した MOX 燃料を高速炉で使用するには、燃料設計や照射挙動の解析に向けて熱伝導率等の熱 物性を把握することが重要である。しかし、MA を添加した燃料の熱物性は、報告例がわずかであり、 MA 添加濃度や酸素不定比性の影響を含めて十分に把握されていない。そこで本研究では、MA の 1 つである Am が MOX 燃料の熱伝導率に与える影響を評価することを目的として、化学量論組成近傍 における 15%までの Am を含有した MOX 燃料の熱伝導率を測定した。また、Am 含有 MOX 燃料の 照射挙動評価に資するため、Am を含有した UO<sub>2</sub>燃料の熱伝導率を測定し、Am 含有 MOX 燃料のも のと比較評価を実施した。

本研究では、Pu 含有率を 30%とし、Am 含有率が 5%、10%及び 15%と異なる 3 種類の MOX 燃料 と、Am 含有率が 15%の UO<sub>2</sub>燃料を用いた。熱伝導率は、レーザーフラッシュ法を用いて測定した熱 拡散率に試料密度及び比熱を乗じて求めた。熱拡散率の測定においては、測定雰囲気の酸素分圧を調 整することで試料の酸素・金属原子数比(O/M 比)を制御した。

すべての試料の熱伝導率は、温度及び Am 含有率の増加と共に低下し、特に、1,173 K 以下で顕著 な低下が見られた。また、得られた熱伝導率に対して古典的フォノン散乱モデルによる解析を行った 結果、熱抵抗率の変化については、Am 添加によって生じるイオン半径差に起因した格子ひずみの影 響が大きく、MOX 及び UO2の両者で同程度の影響であることがわかった。

本報告書の内容は、文部科学省 原子力システム研究開発事業「マイナーアクチニド含有低除染燃料 による高速炉リサイクルの実証研究」(No. JPMXD0219214921)及び日立 GE ニュークリア・エナ ジー株式会社からの受託研究「軽水冷却高速炉の成立性及び導入効果に係る各種検討」の成果の一 部を含む。

大洗原子力工学研究所:〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002 番地

+ 大洗原子力工学研究所 戦略推進部

\* 検査開発株式会社

#### **Thermal Conductivity Evaluation of Am-doped Oxide Fuels**

Keisuke YOKOYAMA, Masashi WATANABE<sup>+</sup>, Takashi ONISHI, Yasuhide YANO, Daishiro TOKORO\*, Hiromasa SUGATA\* and Masato KATO\*

> Fuels and Materials Department Oarai Nuclear Engineering Institute Japan Atomic Energy Agency Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

> > (Received January 16, 2025)

It is advocated as a development target of fast reactors (FRs) to allow for the of use of mixed oxide (MOX) fuels containing minor actinide (MA) separated and recovered from spent fuels with the aim of reducing the volume and toxicity of high-level radioactive waste generated from nuclear reactors. In the development of MA-MOX fuels, it is important behavior to understand the thermal properties such as thermal conductivity for fuel design and analysis of the irradiation.

However, there are only a few reports on the thermal properties of MA-MOX fuels, and neither the effects of MA contents nor of oxygen non-stoichiometry in MOX fuels on their thermal conductivities have been fully understood. In this study, the thermal conductivities of MOX fuels with up to 15% Am content were measured at near-stoichiometric composition and the relationship between thermal conductivity and Am content was evaluated. Moreover, the thermal conductivities of Am-doped  $UO_2$  fuels were also measured and evaluated by comparison with Am-MOX to evaluate the effect of Am content.

The fuel samples used in this study were three types of MOX with a Pu content of 30% and different Am contents (5%, 10%, and 15%), and UO<sub>2</sub> containing 15% Am. The thermal conductivities of specimens were calculated from the thermal diffusivities measured by the laser flash method, the density of the specimens and, the heat capacity at constant pressure. The oxygen partial pressure during the measurement was controlled at that of the targeted near-stoichiometric composition.

The thermal conductivities of all specimens exhibited a decline with increasing temperature and Am content, with a particularly pronounced reduction observed below 1,173 K. The results of the classical phonon scattering model analysis of the measured thermal conductivities showed that the effect of lattice strain due to the Am addition was significant on the thermal resistivity change, and the effect was comparable for both MOX and UO<sub>2</sub>.

Keywords: Ceramics, Thermal Conductivity, Americium, MOX, UO<sub>2</sub>, Fast Reactor,

This report includes a part of the results obtained under the MEXT Innovative Nuclear Research and Development Program Grant No. JPMXD0219214921 and the contract research commissioned by Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd.

+ Strategy and Management Department, Oarai Nuclear Engineering Institute

\* Inspection Development Company Ltd.

# 目 次

はじめに1	Ĺ
試験方法	Ĺ
2.1. 試験装置1	Ĺ
2.2. 測定試料の作製、加工及び熱処理2	)
2.3. 熱拡散率測定及び熱伝導率の算出2	<u>)</u>
結果及び考察	ł
3.1. 測定試料について	ł
3.2. 熱伝導率の測定結果	ł
3.3. モデル解析及び考察5	5
結論	3
考文献	)

## Contents

Introduction1	L
2. Experimental1	L
2.1. Apparatus1	L
2.2. Sample preparation and thermal treatment2	)
2.3. Measurement of thermal diffusivity and thermal conductivity2	)
8. Result and discussion4	ł
3.1. Details of measurement samples	ł
3.2. Results of thermal conductivity measurement	ŀ
3.3. Analysis by classical phonon transport model and discussion5	;
l. Conclusions8	3
References9	)

# 表リスト

Table 1	測定試料の寸法・重量等特性	11
Table 2	原料粉末の不純物分析結果	12
Table 3	Am-MOX 及び Am-UO2の係数 A 及び B のフィッティング値	13
Table 4	使用した各イオンのイオン半径	13
Table 5	モデル解析により算出した係数 A 及び B の計算結果	14
Table 6	係数 A 及び B の算出に使用した各種パラメータ	14

# 図リスト

Fig. 1	レーザーフラッシュ法熱伝導率測定装置の概略図15
Fig. 2	10%Am-MOX 及び 15%Am-MOX の金相写真15
Fig. 3	10%Am-MOXの EPMA による U、Pu 及び Am の元素分析結果16
Fig. 4	10%Am-MOX 熱処理時の酸素ポテンシャル測定結果16
Fig. 5	気孔率ゼロに補正した Am-MOX 及び Am-UO2の熱伝導率測定結果17
Fig. 6	Am-MOX 及び Am-UO2の熱伝導率測定結果から得られた係数 A 及び B のフィッティング値
	と Am 含有率の関係性17
Fig. 7	係数A及びBのフィッティング値とモデル解析結果の比較18
Fig. 8	気孔率ゼロに補正した Am-MOX 及び Am-UO2の熱伝導率の実験データ及びモデル解析結果
	の比較18

### 1. はじめに

2022年12月23日の原子力関係閣僚会議で改訂された「戦略ロードマップ」では、高速炉の開発目標 の1つとして「高レベル放射性廃棄物量減容・潜在的有害度低減のため、マイナーアクチノイド (Minor Actinide: MA)を分離・回収し、燃料として利用できるようにすること。」と明記されており、高速 炉開発におけるMA燃料研究開発の重要性が広く認識されている。MA燃料の研究開発では以前から、 MAを添加した混合酸化物 (Mixed Oxide: MOX) 燃料を高速炉で燃焼する燃料サイクルが提唱されて いる<sup>1,2</sup>。MAを添加したMOX燃料の研究開発では、燃料設計や照射挙動の解析に必要となる熱伝導率 等の熱物性を把握することが重要である。しかし、MAの1つであるアメリシウム(Am)を添加した MOX燃料(以下「Am-MOX」という。)の熱物性に関する報告例はわずかであり<sup>3-8)</sup>、さらなる研究デ ータの取得が必要である。例えば、5%Am-MOXの照射試験において、燃料ペレット内のAmが半径方 向温度勾配に沿って中心部へ移動し、燃料ペレット中心部においてAm濃度が7%まで上昇したことが 報告されている<sup>9</sup>。燃料ペレット内のAm濃度が7%まで上昇した場合の熱物性は、これまでに得られ ているAm-MOXの熱物性が最大でAm含有率4.5%であることから、正確に評価することは困難である。 特に、熱伝導率は照射挙動評価の中で最も重要な要素の1つである燃料中心温度に関係する熱物性で あり、MA添加濃度や酸素不定比性の影響も含めて、AmがMOX燃料に与える影響を把握する必要が ある。また、Am-MOXではAmとプルトニウム(Pu)が同時にUO2の熱伝導率へ影響を与えていること が考えられるため、Amを含有したUO2燃料(以下「Am-UO2」という。)の熱伝導率を測定すること で、Am含有がUO2及びMOX燃料に与える影響を比較評価する。

このような背景から本研究では、これまで得られていないAm含有率5%以上のAm-MOX及びAm-UO<sub>2</sub>を対象に化学量論組成近傍における熱伝導率を測定し、その結果について古典的フォノン散乱モデル<sup>10</sup>により解析し、Am含有がUO<sub>2</sub>燃料及びMOX燃料に与える影響を評価した。

### 2. 試験方法

### 2.1. 試験装置

Fig. 1にレーザーフラッシュ法熱伝導率測定装置の概略図を示す。本装置は国立研究開発法人日本 原子力研究開発機構が概念設計を行い、それを受けて京都電子工業株式会社が詳細設計及び製作をし たものであり、グローブボックス(以下「GB」という。)内での操作を考慮した構造を有すると共に、 ガスフロー下での測定が可能である。本装置は、GB内に設置された高温加熱部、GB外に設置された 酸素分圧調整装置、レーザー発振器及び放射温度計から構成される。高温加熱部は測定試料装荷用ホ ルダーを有する試料部、C/Cコンポジット製ヒーター部及び窒化ホウ素(BN)製均熱管から構成され る。BN製均熱管は試料部とヒーター部のガス流路を分けるためのバウンダリとしても機能するため、 両部位にはそれぞれ異なる種類のガスをフローできる。試料部には酸素分圧調整装置で加湿した H2+Ar混合ガスを流すことで、試料近傍の酸素分圧を調整することが可能であり、ヒーター部には 10%N2+Ar混合ガスを流すことで、C/Cコンポジットヒーターの熱的な劣化と損傷を防ぐことができる。 試料温度は測定試料装荷用ホルダー中のW-5%Re/W-26%Re熱電対を用いて測定する。酸素分圧調整装 置はH2O=H2+1/2O2平衡反応4)を利用してガス中の酸素分圧を調整する装置であり、H2+Ar混合ガスに 加湿をする加湿部、高温加熱部の入口及び出口に設置された酸素センサーで酸素濃度を測定するモニ ター部から構成される。レーザー発振器は試料加熱のため高温加熱部の上部に設置されており、出力 約7 JのNd-YAG (λ=1.06 μm) レーザーを使用している。放射温度計はレーザー加熱後の試料裏面の 温度変化を測定しており、In-Sb赤外線検出器を使用している。放射温度計により測定された試料裏面 の温度の経時変化データをPCに収録し、カーブフィッティング法を用いて解析し熱拡散率を求めた。 カーブフィッティング法による解析ツールは国立研究開発法人産業技術総合研究所で開発された CFP32を用いた<sup>11</sup>。

#### 2.2. 測定試料の作製、加工及び熱処理

測定に用いた試料は、Pu含有率が30%一定、Am含有率が5%、10%及び15%の3種類のAm-MOX、Am 含有率が15%のAm-UO<sub>2</sub>の計4種類とした。測定に用いた試料の組成、寸法、重量及び密度をTable1に 示す。

Am-MOX及びAm-UO2はTable 2に示す4種類の原料粉末を使用し、粉末冶金法により作製した。初め に、原料粉末はAr+5%H2混合ガスフロー下で903 K、2時間加熱し、付着水分の除去を行った。加熱後 の原料粉末は所定のPu及びAm濃度となるように計量し、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を0.7%添加 した後、ボールミルによる機械混合を実施した。5%Am-MOXはTable 2における②及び④の原料粉末、 10%Am-MOX及び15%Am-MOXは①、②及び③の原料粉末、15%Am-UO2は①及び②の原料粉末をそれ ぞれ計量、混合した。混合粉末を成形ダイスに充填し、380 MPaの一軸プレスによりグリーンペレッ トへ成形し、加湿したAr+5%H2ガスフロー下で1,073 K、2時間の加熱によりステアリン酸亜鉛を除去 した後、同様の雰囲気下で1,973 K、3時間の熱処理条件で焼結を行った。焼結した燃料ペレットは、 試料断面の金相観察及び電子プローブマイクロアナライザー(Electron Probe Micro Analyzer: EPMA)

(Cameca製:SX100R)測定に供し、U、Pu及びAmの分布状態の確認を行った。

作製した燃料ペレットは熱伝導率測定に供するため、切断等の加工を行った。初めに、燃料ペレットをアルミニウム製シース管の中に入れ、シアノアクリレート系瞬間接着剤(商標名:アロンアルファ)で固定した。シース管は切断時のバリの発生を抑制し断面を平行とするため使用し、燃料ペレット外径よりも直径1 mm程度大きいものを用いた。シース管と燃料ペレットは刃厚0.3 mmのダイヤモンドホイールを装着した低速切断機(リファインテック製:RCA-005)により乾式で切断した。その後、切断片をアセトン中に浸漬することでアロンアルファを除去し、燃料ディスクのみを回収した。燃料ディスクの表裏面をGrit400の耐水研磨紙で研磨し、切断痕の除去を行った。最後に、燃料ディスクは寸法・重量を測定し、幾何学法により密度を算出した。

燃料ディスクは、酸素と金属原子数の比(以下「O/M比」という。)を定比組成に調整すること及び自己照射に起因する格子欠陥の回復を目的として、加湿したAr+4%H2ガスフロー下で1,473 K、4時間の熱処理を実施した。それぞれ燃料ディスクの熱処理条件はTable1に示す。熱処理時の雰囲気については、Hirookaらが報告しているMOX燃料の酸素ポテンシャルとO/M比の関係性<sup>3)</sup>を参考に決定した。 また、熱処理時間及び温度は、Katoらの報告<sup>6</sup>を基に、自己照射に起因した格子欠陥が完全に回復する時間及び温度として4時間、1,473 Kに決定した。

#### 2.3. 熱拡散率測定及び熱伝導率の算出

燃料ディスクをレーザーフラッシュ法熱伝導率測定装置内の測定試料装荷用ホルダーにセットした後、室温から1,473 Kまで100 K毎に熱拡散率を取得した。各温度において3回の測定を行い、その平

均を測定値とした。

測定した熱拡散率から熱伝導率を算出するために、以下の式(1)を用いた。

$$\lambda = \alpha \cdot C_p \cdot \rho \tag{1}$$

ここで $\lambda$ は熱伝導率、 $\alpha$ は熱拡散率、 $C_p$ は比熱容量、 $\rho$ は試料の密度である。Am-MOX及びAm-UO<sub>2</sub>の比熱容量は、Neumann-Koppの法則に $C_p(UO_2)$ 、 $C_p(PuO_2)$ 及び $C_p(AmO_2)$ の文献値<sup>12,13)</sup>を代入して算出し、それぞれの文献値を式(2)、式(3)及び式(4)に示す。

$$C_p(UO_2) = 52.4743 + 87.947 \cdot T - 84.2412 \cdot T^2 + 31.54208 \cdot T^3 - 2.6334 \cdot T^4 - 0.71391 \cdot T^{-2}$$
(2)

$$C_p(PuO_2) = 84.495 + 10.639 \cdot T - 0.61137 \cdot T^2 - 1.90056 \cdot T^{-2}$$
(3)

$$C_p(AmO_2) = 88.240 + 1.3150 \times 10^{-3} \cdot T - 3.4227 \times 10^6 \cdot T^{-2}$$
(4)

ここで、Tは絶対温度である。試料の密度は温度によって変化するため、Carbajoらが報告している密度補正式<sup>12)</sup>を用いて、測定時の各温度における密度となるように補正を行った。273 – 923 K及び923 K以上の温度領域で使用する密度補正式を、それぞれ式(5)及び式(6)に示す。

273 - 923 K

 $\rho(T) = \rho(273K)$ 

$$\times (9.9734 \times 10^{-1} + 9.802 \times 10^{-6} \cdot T - 2.705 \times 10^{-10} \cdot T^2 + 4.391 \times 10^{-13} \cdot T^3)^{-3}$$

$$923 \text{ KUL}$$

$$(5)$$

$$\rho(T) = \rho(273K)$$

$$\times (9.9672 \times 10^{-1} + 1.179 \times 10^{-5} \cdot T - 2.429 \times 10^{-9} \cdot T^{2} + 1.219 \times 10^{-12} \cdot T^{3})^{-3}$$
(6)

また、熱伝導率の評価においては、先行研究のデータと比較するため、試料の気孔率補正を行い、 気孔率ゼロ(100%TD)の熱伝導率を求めた。気孔率補正は、以下の式(7)に定義した。

$$\lambda = F \times \lambda_0$$

(7)

ここで、 $\lambda$ は測定で得られた(気孔率補正しない)熱伝導率、 $\lambda_0$ は気孔率ゼロ(100%TD)に補正した 熱伝導率、Fは気孔率の関数として定義した補正係数である。補正係数Fは Am-MOX の熱伝導率を報 告している Morimoto らの先行研究<sup>8)</sup>では式(8)の Maxwell-Eucken 式を用いており、本研究においても 同様の方法により気孔率を補正した。

$$F = (1-p)/(1+\beta \times p) \tag{8}$$

ここで、pは気孔率、 $\beta$ は実験的に得られた係数である。本研究においては、Morimoto らが 3%Am-MOX の気孔率の補正に使用した  $\beta=0.5$  と同様の値を用いた <sup>8</sup>。

#### 3. 結果及び考察

3.1. 測定試料について

Fig. 2に10%Am-MOX及び15%Am-MOX焼結ペレットの試料断面の金相写真を示す。一部に1 mm程度の比較的大きなポアが確認されたが、欠けや割れ等のない組織が得られていた。また、Fig. 3に10%Am-MOXのU、Pu及びAmの面分析結果を示す。U、Pu及びAmはほぼ均一に分布しており、面分析結果から算出したU及びPuのリッチスポットはそれぞれ0.68%及び0.34%であった。9%以下のU及びPuのリッチスポットが熱伝導率にとがStaicuらによって報告されており<sup>14)</sup>、今回のAm-MOXにおいてもU及びPuのリッチスポットが熱伝導率に与える影響がほとんどないと推察される。他試料においても同様の金相及びEPMA結果であった。

Fig. 4に10%Am-MOXディスクの熱処理時に測定した酸素ポテンシャルを、Hirookaらの関係式から 算出したO/M比と共に示す。この図から、燃料ディスクのO/M比は1.999-2.000であると評価した。他 のAm-MOX及び15%Am-UO2燃料ディスクも同様に、O/M比が1.999-2.000となるように熱処理を行っ た。

3.2. 熱伝導率の測定結果

Fig.5に気孔率ゼロ(100%TD)に補正した Am-MOX 及び Am-UO<sub>2</sub>の熱伝導率を示す。なお、図中には比較のため文献値<sup>12)</sup>も示す。本図から、Am 含有量の増加と共に熱伝導率が低下する傾向が見られ、1,173 K 以下でその傾向が顕著であることがわかった。MOX 燃料等の蛍石型構造の熱伝導率は1,500 K 以下ではフォノン伝導が支配的であることが知られており<sup>15)</sup>、Am-MOX 中の Am が置換型の不純物としてふるまい、フォノン伝導の散乱因子となるため、Am 含有率の増加と共に熱伝導率が低下したと考えられる。Am-UO<sub>2</sub>の熱伝導率もまた UO<sub>2</sub> より低下しており、500 K 以下においては15%Am-MOX とほぼ同等の値であった。この熱伝導率の低下についても、Am-MOX と同様に、Am が不純物としてフォノン伝導を阻害するためと考えられる。

複数の先行研究において、MOX の熱伝導率は古典的フォノン散乱モデルにより評価が行われている <sup>7,8,15-18)</sup>。このモデルにおいて、1,500 K 以下のフォノン伝導が支配的である温度域では、熱伝導率 と温度の関係が式(9)により表される。

 $\lambda = (A + BT)^{-1}$ 

(9)

式(9)における係数 A 及び B は実験データのフィッティングにより求められる値であり、本研究で得られた係数 A 及び B を Morimoto ら<sup>8)</sup>が報告した値と共に Table 3 に示す。また、Am 含有率と係数 A 及び B の関係を Fig. 6 に示す。Am-MOX について、係数 A は Am 含有率の増加に伴い直線的に増加しており、係数 B は Am 含有量に依存せずほぼ一定の値を示した。これらの結果から、 $(U_{0.7-z}Pu_{0.3}Am_z)O_2$  (z=0-0.15)の熱伝導率は、室温から 1,473 K の範囲において、以下の式(10)で表現できることがわかった。

$$\lambda = \frac{1}{(1.27 \times z + 9.51 \times 10^{-3}) + 2.4 \times 10^{-4} T}$$

Am-UO<sub>2</sub>について、15%Am-MOX と比較した結果、係数 A は同程度の値となり、係数 B はわずかに 低下することが確認された。係数 A 及び B に対する Am 含有率に対する影響は、評価結果が 1 点の みであるため、現状では明確に評価することが困難であるが、係数 A は Am-MOX と同様に Am 含有 率に応じて直線的に増加する傾向を示した。

MOX において、係数 A に対する Am の影響は大きく、係数 B に対する Am の影響はわずかである ことが知られている<sup>8</sup>)。また、Pu 含有率が 15%以上の MOX においては、係数 A に対する Pu の影響 はほぼ見られないが、係数 B に対する Pu の影響はわずかであるが報告されている<sup>15</sup>)。本研究で確認 された傾向は、これらの先行研究により報告されている傾向に加えて、Am は UO<sub>2</sub>においても係数 A に MOX と同程度の影響を及ぼすことが考えられる。係数 B に対する Pu の影響についてはさらなる 測定が必要であると考えられる。

#### 3.3. モデル解析及び考察

古典的フォノン散乱モデルにおいて、式(9)における係数 A はフォノンと格子ひずみに起因する熱 抵抗率を表しており、係数 B はウムクラップ散乱に基づくフォノン-フォノン相互作用による熱抵抗 率を表している。

Ambegaokar の理論<sup>19</sup>に基づき、係数 A の格子ひずみに起因する熱抵抗率は以下の式(11)で表される。

$$A = \frac{\pi^2 \bar{V} \theta}{3\bar{v}^2 h} \sum_i \Gamma_i \tag{11}$$

ここで、 $\bar{V}$ は平均原子体積、 $\theta$ はデバイ温度、 $\bar{v}$ は平均フォノン速度、hはプランク定数、 $\Gamma_i$ は点欠陥iによるフォノンの散乱断面積パラメータであり、 $\Gamma_i$ は以下の式(12)で表される。

$$\Gamma_{i} = X_{i} \left[ \left( \frac{\overline{M} - M_{i}}{\overline{M}} \right)^{2} + \varepsilon \left( \frac{\overline{r} - r_{i}}{\overline{r}} \right)^{2} \right]$$
(12)

ここで、 $X_i$ は原子分率、 $M_i$ は点欠陥iの質量、 $\overline{M}$ はホスト格子の平均原子質量、 $r_i$ はホスト格子欠陥iの イオン半径、 $\overline{r}$ はホスト格子の平均イオン半径、 $\varepsilon$ は格子欠陥による格子ひずみの大きさを表現するパ ラメータである。 $\varepsilon$ は式(12)で実験データをフィッティングすることにより得られる。

式(9)、(11)及び(12)を用いた解析を行うにあたり、原子半径及び原子質量はカチオンの価数により 変動するため、カチオンが取り得る価数を仮定する必要がある。アクチニド酸化物において、U原子 は U<sup>4+</sup>、U<sup>5+</sup>及び U<sup>6+</sup>、Pu 原子は Pu<sup>3+</sup>及び Pu<sup>4+</sup>、Am 原子は Am<sup>3+</sup>及び Am<sup>4+</sup>がそれぞれ存在可能な価数 であり、(U,Pu,Am)O<sub>2</sub>におけるこれらの価数の組み合わせについて検討した。U<sup>6+</sup>は UO<sub>3</sub> が存在する低 温領域において安定である。また、Am<sup>3+</sup>は Pu<sup>3+</sup>と比較して安定に存在できることが知られている。 Fukushima らの報告では、(U,Nd)O<sub>2</sub>及び(U,Pu,Nd)O<sub>2</sub>において 10–15%の Nd<sup>3+</sup>を添加した場合、U<sup>4+</sup>が

(10)

U<sup>5+</sup>または U<sup>6+</sup>に変化するが、U<sup>6+</sup>よりも U<sup>5+</sup>の方が容易に変化することが示されている <sup>16</sup>。したがっ て、本解析における格子欠陥による散乱のモデルは(U<sup>4+</sup>,U<sup>5+</sup>,Pu<sup>4+</sup>,Am<sup>3+</sup>)O<sub>2</sub> 及び(U<sup>4+</sup>,U<sup>5+</sup>,Am<sup>3+</sup>)O<sub>2</sub> である と仮定した。また本解析では、定比組成の固溶体を対象としているため、O<sup>2-</sup>イオンが占有するアニオ ンサイトに欠陥が生じないと仮定する。同様の仮定は、0.7-3%Am-MOX の熱伝導率解析において適 用されていることから <sup>7,8</sup>、本研究においても妥当な仮定であると判断した。本解析で使用した各イオ ンのイオン半径を Table 4 に示す <sup>5,20</sup>。

このモデルにおける格子ゆがみパラメータ**∑**<sub>i</sub> Γ<sub>i</sub>は以下の式で表される。

$$\begin{split} \Gamma_{i} &= \Gamma_{U^{4+}} + \Gamma_{U^{5+}} + \Gamma_{Pu^{4+}} + \Gamma_{Am^{3+}} \\ &= \left( \frac{(X_{U^{4+}} + X_{U^{5+}})M_{U}^{2} + X_{Pu^{4+}} \cdot M_{Pu}^{2} + X_{Am^{3+}} \cdot M_{Am}^{2}}{\bar{M}^{2}} - 1 \right) \\ &+ \varepsilon \left( \frac{X_{U^{4+}} \cdot r_{U^{4+}}^{2} + X_{U^{5+}} \cdot r_{U^{5+}}^{2} + X_{Pu^{4+}} \cdot r_{Pu^{4+}}^{2} + X_{Am^{3+}} \cdot r_{Am^{3+}}^{2}}{\bar{r}^{2}} - 1 \right) \end{split}$$
(13)

ここで M及び r は各原子の質量及び半径の平均であるため、以下の式(14)及び式(15)で表される。

$$M = (X_{U^{4+}} + X_{U^{5+}})M_U + X_{Pu^{4+}} \cdot M_{Pu} + X_{Am^{3+}} \cdot M_{Am}$$
(14)

$$\bar{r} = X_{U^{4+}} \cdot r_{U^{4+}} + X_{U^{5+}} \cdot r_{U^{5+}} + X_{Pu^{4+}} \cdot r_{Pu^{4+}} + X_{Am^{3+}} \cdot r_{Am^{3+}}$$
(15)

式(11)において、係数 A の算出には平均原子体積、デバイ温度及び平均フォノン速度の値が必要である。平均原子体積は式(16)で表される。

$$\bar{V} = (a \times 10^{-10})^3 / 4 \tag{16}$$

ここでaは格子定数であり式(17)で表され、原子分率及び原子半径より算出した 5。

$$a = 4/\sqrt{3} \left( \bar{r} + r_{0^{2-}} \right) \tag{17}$$

デバイ温度はLindemann relationship<sup>21)</sup>により式(18)を用いて算出される。

$$\frac{\theta_{Am}}{\theta_{UO_2}} = \frac{\left(\overline{M_{UO_2}}\right)^{1/2} \left(\overline{V_{UO_2}}\right)^{1/3} (T_{Am})^{1/2}}{\left(\overline{M_{Am}}\right)^{1/2} \left(\overline{V_{Am}}\right)^{1/3} \left(T_{UO_2}\right)^{1/2}}$$
(18)

ここで、 $\theta_{Am}$ 及び $\theta_{UO_2}$ は Am-MOX もしくは Am-UO<sub>2</sub>並びに UO<sub>2</sub>のデバイ温度、 $T_{Am}$ 及び $T_{UO_2}$ は Am-MOX もしくは Am-UO<sub>2</sub>並びに UO<sub>2</sub>の融点である。これらの計算において、 $\theta_{UO_2}$ は Hirooka らが報告 している 384 K を使用し<sup>22)</sup>、 $T_{UO_2}$ は Kato らが報告している 3,123 K を使用した<sup>23)</sup>。Am-MOX 及び Am-UO<sub>2</sub>の融点は報告がないため、理想固体モデル式(19) – (23)を用いて UO<sub>2</sub>、PuO<sub>2</sub>及び AmO<sub>2</sub>の融 点及び融解熱により推測した<sup>22,23)</sup>。

$$\frac{\Delta h_m(UO_2)}{R} \left( \frac{1}{T_{UO_2}} - \frac{1}{T_{AmMOX}} \right) = ln \left( \frac{x^l(UO_2)}{x^s(UO_2)} \right)$$
(19)

$$\frac{\Delta h_m(PuO_2)}{R} \left( \frac{1}{T_{PuO_2}} - \frac{1}{T_{AmMOX}} \right) = ln \left( \frac{x^l(PuO_2)}{x^s(PuO_2)} \right)$$
(20)

$$\frac{\Delta h_m (AmO_2)}{R} \left( \frac{1}{T_{AmO_2}} - \frac{1}{T_{AmMOX}} \right) = ln \left( \frac{x^t (AmO_2)}{x^s (AmO_2)} \right)$$
(21)

$$x^{l}(UO_{2}) + x^{l}(PuO_{2}) + x^{l}(AmO_{2}) = 1$$
(22)

$$x^{s}(UO_{2}) + x^{s}(PuO_{2}) + x^{s}(AmO_{2}) = 1$$
(23)

ここで、 $\Delta h_m(i)$ は物質iの融解熱、 $x^l(UO_2)$ 及び $x^s(UO_2)$ は物質iの液相及び気相のモル分率、Rは気体定数である。

平均フォノン速度は式(24)より算出される。

$$v = \left(\frac{2\pi k_B \theta_{Am}}{h}\right) \left(\frac{\bar{V}}{6\pi^2}\right)^{1/3} \tag{24}$$

ここで、k<sub>B</sub>はボルツマン定数である。

係数 B は以下の式(25)より算出した<sup>24)</sup>。

$$B = \frac{\gamma^2}{\left[\frac{24}{10}4^{1/3}\left(\frac{h}{k_B}\right)^3 \bar{M}\bar{V}^{1/3}\theta_{Am}^3\right]}$$
(25)

ここで、γはグリューナイゼン定数であり、式(26)により表される<sup>22)</sup>。

$$\gamma = \frac{\alpha K \overline{V} A_v}{4C_v} \tag{26}$$

ここで、 $\alpha$ は線熱膨張係数、Kは圧縮率、 $C_v$ は定積比熱、 $A_v$ はアボガドロ定数である。これらの値は  $(U_{0.7}, Pu_{0.3})O_2$ のものと同様であると仮定し、Hirooka らが報告した値<sup>22)</sup>を使用した。

式(11)-(26)から算出した 5%Am-MOX、10%Am-MOX、15%Am-MOX 及び 15%Am-UO<sub>2</sub>の係数 A 及び B を Table 5 に示す。係数 A の算出において、実験データのフィッティングにより $\varepsilon$ =42が得られた。この値は先行研究で報告されている 0.7-3%Am-MOX の $\varepsilon$ =41と概ね一致しており<sup>8</sup>、Fukushima らが報告した、(U,Pu)O<sub>2</sub>に少量のアクチノイドやレアアースを添加した場合に $\varepsilon$ =55±50で一定となる傾向とも一致している<sup>10</sup>。Am 含有率と係数 A 及び B の関係を Fig. 7 に示す。これらの係数 A 及び B の算出に使用した各種パラメータを Table 6 に示す。また、算出した係数を用いて計算した熱伝導率と実験データを Fig. 8 に示す。Fig. 8 に示すように、Am-MOX の熱伝導率は測定値と計算値がよく一致している。係数 A の計算において、U-238、Pu-239 及び Am-241 それぞれの原子質量がほとんど同じであるため、原子質量によって生じる格子欠陥の影響は小さいことがわかる。一方、原子半径

の変化による格子ひずみによって生じる格子欠陥は、Table 4 からわかるように各イオン半径の差が 顕著なため、影響が大きいことがわかる。また、係数 B は計算において変化がほとんどなく、Am 含 有は係数 B にほとんど影響を与えないことが示唆される。

Am-UO<sub>2</sub>の熱伝導率については、Fig. 8 に示すように測定値と計算値は 500 K 以下の温度範囲では よく一致しているが、それ以上の温度では測定値の方が高い傾向が見られた。さらに、Fig. 7 に示す ように、係数 A は計算値と測定値が概ね一致することから Am 含有の影響を精度よく評価できてい ると推測されるが、係数 B は測定値の方が低く、計算値とずれることがわかったことから、係数 B の 算出方法が UO<sub>2</sub>への Am 含有の影響を評価する上での課題であると考えられる。また、分子動力学法 により算出された Am-UO<sub>2</sub> の熱伝導率においては、係数 A は Am 含有量により増加するが、係数 B は Am 含有量に依存しないことが報告されている<sup>25)</sup>。この結果は、本研究における Am-UO<sub>2</sub>の熱伝導 率測定結果から得られた傾向とは一致しなかった。この原因は明らかとなっていないが、今後、Am 含有率の異なる Am-UO<sub>2</sub>燃料の熱伝導率を測定し、Am 含有率による UO<sub>2</sub>への影響を評価することで 明らかとなると考えられる。さらに、本解析における Am-UO<sub>2</sub>の音速や比熱等の物性値は計算値を使 用しており、実測値の拡充を行うことでもより精度よく評価できる可能性がある。

#### 4. 結論

Am 含有量が異なる3種類の MOX 燃料(Pu 含有率: 30%、Am 含有率:約5%、10%及び15%)、 Am 含有率が15%の UO2燃料の化学量論組成近傍における熱伝導率を室温から1,473 K までレーザー フラッシュ法により測定し、以下の結論を得た。

- 1) Am-MOX の熱伝導率は Am 含有量の増加に伴い減少する傾向を示し、1,473K までは古典的フ オノン散乱モデルに従う挙動を示した。係数 A は直線的に増加し、係数 B は Am 含有量に依 存せず一定であった。15%Am-UO2の熱伝導率についても、係数 A は 15%Am-MOX とほぼ同 程度の値となり、係数 B はわずかに低下していた。Am-UO2の測定は1 点のみであり、今回の 結果からは Am 含有率の影響を明確に評価することは困難であるが、Am は UO2及び MOX の 両者で係数 A に同程度の影響を及ぼすことが考えられる。
- 古典的フォノン散乱モデルを適用した熱伝導率解析において、カチオンとその価数は (U<sup>4+</sup>,U<sup>5+</sup>,Pu<sup>4+</sup>,Am<sup>3+</sup>)O<sub>2</sub>もしくは(U<sup>4+</sup>,U<sup>5+</sup>,Am<sup>3+</sup>)O<sub>2</sub>であると仮定した。Am-MOX は係数 A 及び係 数 B の両方で、Am-UO<sub>2</sub>は係数 A のみで計算結果と測定結果がよく一致した。係数 A の計算 では Am 含有により置換されたカチオンサイトのイオン半径の差に起因する格子ひずみの影 響が顕著であり、MOX 及び UO<sub>2</sub>の両方で同程度の影響を与えることがわかった。
- 3) 古典的フォノン散乱モデルにおける格子ひずみの大きさを表現するためのパラメータεは 42 と算出された。この値は Am 含有量の低い MOX の熱伝導率データから求められた値とほぼ一致した。

#### 参考文献

- Sakamoto, Y., Garnier, J.-C., Rouault, J., Grandy, C., Fanning, T., Hill, R., Chikazawa, Y., Kotake, S., Selection of sodium coolant for fast reactors in the US, France and Japan, Nuclear Engineering and Design, vol. 254, 2013, pp. 194-217.
- 2)Takeda, R., Miwa, J., Moriya, K. BWRS for long-term energy supply and for fissioning almost all transuranium, American Nuclear Society, 555 North Kensington Avenue, La Grange Park, IL, 2007.
- 3)Hirooka, S., Matsumoto, T., Kato, M., Sunaoshi, T., Uno, H., Yamada, T., Oxygen potential measurement of (U,Pu,Am)O<sub>2±x</sub> and (U,Pu,Am,Np)O<sub>2±x</sub>, Journal of Nuclear Materials, vol. 542, 2020, 152424.
- 4)Kato, M., Ikusawa, Y., Sunaoshi, T., Nelson, A.T., McClellan, K.J., Thermal expansion measurement of (U,Pu)O<sub>2-x</sub> in oxygen partial pressure-controlled atmosphere, Journal of Nuclear Materials, vol. 469, 2016, pp. 223-227.
- 5)Kato, M., Konashi, K., Lattice parameters of (U, Pu, Am, Np)O<sub>2-x</sub>, Journal of Nuclear Materials, vol. 385, no. 1, 2009, pp. 117-121.
- 6)Kato, M., Maeda, K., Ozawa, T., Kashimura, M., Kihara, Y., Physical Properties and Irradiation Behavior Analysis of Np- and Am-Bearing MOX Fuels, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 48, no. 4, 2011, pp. 646-653.
- 7)Morimoto, K., Kato, M., Ogasawara, M., Kashimura, M., Thermal conductivities of hypostoichiometric (U, Pu, Am)O<sub>2-x</sub> oxide, Journal of Nuclear Materials, vol. 374, no. 3, 2008, pp. 378-385.
- 8)Morimoto, K., Kato, M., Ogasawara, M., Kashimura, M., Abe, T., Thermal conductivities of (U, Pu, Am)O<sub>2</sub> solid solutions, Journal of Alloys and Compounds, vol. 452, no. 1, 2008, pp. 54-60.
- 9)Tanaka, K., Miwa, S., Sekine, S.-I., Yoshimochi, H., Obayashi, H., Koyama, S.-I., Restructuring and redistribution of actinides in Am-MOX fuel during the first 24h of irradiation, Journal of Nuclear Materials, vol. 440, no. 1-3, 2013, pp. 480-488.
- 10)Parrott, J.E., Stuckes, A. D., Thermal conductivity of solids, Applied physics, Pion, 1975, 157 p.
- 11)Baba, T., Cezairliyan, A., Thermal diffusivity of POCO AXM-5Q1 graphite in the range 1500 to 2500 K measured by a laser-pulse technique, International Journal of Thermophysics, vol. 15, no. 2, 1994, pp. 343-364.
- 12)Carbajo, J.J., Yoder, G.L., Popov, S.G., Ivanov, V.K., A review of the thermophysical properties of MOX and UO<sub>2</sub> fuels, Journal of Nuclear Materials, vol. 299, no. 3, 2001, pp. 181-198.
- 13)Nishi, T., Itoh, A., Ichise, K., Arai, Y., Heat capacities and thermal conductivities of AmO<sub>2</sub> and AmO<sub>1.5</sub>, Journal of Nuclear Materials, vol. 414, no. 2, 2011, pp. 109-113.
- 14)Staicu, D., Barker, M., Thermal conductivity of heterogeneous LWR MOX fuels, Journal of Nuclear Materials, vol. 442, no. 1-3, 2013, pp. 46-52.
- 15)Philipponneau, Y., Thermal conductivity of (U, Pu)O<sub>2-x</sub> mixed oxide fuel, Journal of Nuclear Materials, vol.
   188, 1992, pp. 194-197.
- 16)Fukushima, S., Ohmichi, T., Maeda, A., Handa, M., Thermal conductivity of near-stoichiometric (U, Pu, Nd)O<sub>2</sub> and (U, Pu, Eu)O<sub>2</sub> solid solutions, Journal of Nuclear Materials, vol. 116, no. 2-3, 1983, pp. 287-296.

- 17)Morimoto, K., Kato, M., Ogasawara, M., Kashimura, M., Thermal conductivity of (U,Pu,Np)O<sub>2</sub> solid solutions, Journal of Nuclear Materials, vol. 389, no. 1, 2009, pp. 179-185.
- 18)Gibby, R.L., The effect of plutonium content on the thermal conductivity of (U, Pu)O<sub>2</sub> solid solutions, Journal of Nuclear Materials, vol. 38, no. 2, 1971, pp. 163-177.
- 19)Ambegaokar, V., Thermal Resistance due to Isotopes at High Temperatures, Physical Review, vol. 114, no. 2, 1959, pp. 488-489.
- 20)Shannon, R.D., Revised effective ionic radii and systematic studies of interatomic distances in halides and chalcogenides, Acta Crystallographica Section A, vol. 32, no. 5, 1976, pp. 751-767.
- 21)Lindemann, F., The calculation of molecular vibration frequencies Phys, Z, vol. 11, 1910, 609 p.
- 22)Hirooka, S., Kato, M., Sound speeds in and mechanical properties of (U,Pu)O<sub>2-x</sub>, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 55, no. 3, 2017, pp. 356-362.
- 23)Kato, M., Morimoto, K., Sugata, H., Konashi, K., Kashimura, M., Abe, T., Solidus and liquidus temperatures in the UO<sub>2</sub>–PuO<sub>2</sub> system, Journal of Nuclear Materials, vol. 373, no. 1-3, 2008, pp. 237-245.
- 24)Pillai, C.G.S., George, A.M., Thermal conductivity of uranium dioxide, Journal of Nuclear Materials, vol. 200, no. 1, 1993, pp. 78-81.
- 25)Jossou, E., Malakkal, L., Ranasingh, J., Szpunar, B., Szpunar, J., Thermophysical properties of (U<sub>x</sub>Am<sub>1-x</sub>)O<sub>2</sub> MOX fuel, Computational Materials Science, vol. 172, 2020, 109324.

		5%Am-MOX	10%Am-MOX	15%Am-MOX	15%Am-UO <sub>2</sub>
Pu富化度	(mol%)	29.21	29.72	29.01	-
Am含有率	(mol%)	5.31	10.17	15.02	14.98
理論密度	$(g/cm^3)$	11.14	11.18	11.21	11.06
理論密度比	(%TD)	90.17	87.88	80.90	91.18
試料重量	(g)	0.2349	0.25171	0.21281	0.30004
試料直径	(m)	0.005416	0.005434	0.005430	0.005440
熱処理温度	(K)	1473	1473	1473	1473
熱処理時間	(s)	14400	14400	14400	14400
酸素分圧	(Pa)	$6.39 \times 10^{-7}$	$2.54 \times 10^{-6}$	$1.01 \times 10^{-5}$	$1.14 \times 10^{-5}$
酸素ポテンシャル	(kJ/mol)	-316	-298	-282	-281

Table 1 測定試料の寸法・重量等特性

	①UO <sub>2</sub> 原料粉末	(2)AmO <sub>2</sub> and UO <sub>2</sub>	京料粉末 (mass ppm)	③MOX原料粉末	④PuO2原料粉末	
兀茶	(mass ppm)	AmO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub>	(mass ppm)	(mass ppm)	
Al	<10	<10	72	<100	135	
В	<0.2	<1	<1	<5	<5	
Cd	<0.5	< 0.1	< 0.1	7	<5	
Ca	<2	<10	140	<30	55	
Cr	<5	<6	<6	<50	<50	
Cu	<3	1.4	<0.3	10	<10	
Fe	<15	30	57	<100	<100	
Mg	<3	12	5	<15	<15	
Mn		<10	<10	<20	<20	
Ni	<7	<1	<1	<50	<50	
Si		<10	<10	190	<100	
Мо	<2	<1	<1	<50	<50	
Cl		21	1			
С		5	<1			
F		17	24			
Ν		<10	<10			
Pd	<4	<1	<1	<70	<30	
Zn		<30	<30	<100	<100	
Sn	<4	<0.3	<0.3	<30	<30	
Dy+Eu+Gd+Sm					<0.2	

Table 2 原料粉末の不純物分析結果

試料	係数A	係数B	Reference
0.7%Am-MOX	$2.333 \times 10^{-2}$	$2.434 \times 10^{-4}$	[8]
2%Am-MOX	$2.727 \times 10^{-2}$	$2.434 \times 10^{-4}$	[8]
3%Am-MOX	$4.189 \times 10^{-2}$	$2.336 \times 10^{-4}$	[8]
5%Am-MOX	$8.667 \times 10^{-2}$	$2.276 \times 10^{-4}$	This work
10%Am-MOX	$1.290 \times 10^{-1}$	$2.400 \times 10^{-4}$	This work
15%Am-MOX	$2.026 \times 10^{-1}$	$2.289 \times 10^{-4}$	This work
15%Am-UO <sub>2</sub>	$2.075 \times 10^{-1}$	$1.655 \times 10^{-4}$	This work

Table 3 Am-MOX 及び Am-UO2の係数 A 及び B のフィッティング値

Table 4 使用した各イオンのイオン半径

イオン	配位数	イオン半径 (nm)	Reference
アニオン			
O <sup>2-</sup>	4	0.1372	[5]
カチオン			
$U^{4+}$	8	0.09972	[5]
$\mathrm{U}^{5^+}$	8	0.0840	[20]
$Pu^{4+}$	8	0.09642	[5]
$Am^{3+}$	8	0.109	[20]

		-	
試料	係数A	係数B	Reference
0.7%Am-MOX	$2.017 \times 10^{-2}$	$2.387 \times 10^{-4}$	This work
2%Am-MOX	$3.528 \times 10^{-2}$	$2.391 \times 10^{-4}$	This work
3%Am-MOX	$4.495 \times 10^{-2}$	$2.395 \times 10^{-4}$	This work
5%Am-MOX	$7.045 \times 10^{-2}$	$2.401 \times 10^{-4}$	This work
10%Am-MOX	$1.301 \times 10^{-1}$	$2.417 \times 10^{-4}$	This work
15%Am-MOX	$1.910 \times 10^{-1}$	$2.434 \times 10^{-4}$	This work
15%Am-UO <sub>2</sub>	$1.881 \times 10^{-1}$	$2.342 \times 10^{-4}$	This work

Table 5 モデル解析により算出した係数A及びBの計算結果

Table 6 係数A及びBの算出に使用した各種パラメータ

	•	•	5%Am-MOX	10%Am-MOX	15%Am-MOX	15%Am-UO <sub>2</sub>
$\overline{V}$	平均原子体積	(m <sup>3</sup> )	$1.344 \times 10^{-29}$	$1.340 \times 10^{-29}$	$1.337 \times 10^{-29}$	$1.354 \times 10^{-29}$
θ	デバイ温度	(K)	377	377	377	376
$\bar{v}$	平均フォノン速度	(m/s)	$4.470 \times 10^{3}$	$4.470 \times 10^{3}$	$4.470 \times 10^{3}$	$4.350 \times 10^{3}$
$\Gamma_i$	フォノンの散乱断面積パラメータ	(-)	$5.567 \times 10^{-2}$	$1.018 \times 10^{-1}$	$1.481 \times 10^{-1}$	$1.387 \times 10^{-1}$
a	格子定数	(m)	$5.44350  imes 10^{-10}$	$5.43851  imes 10^{-10}$	$5.43351 \times 10^{10}$	$5.45634  imes 10^{-10}$
$\overline{M}$	ホスト格子の平均原子重量	(kg)	$3.962\times10^{\text{-}25}$	$3.965\times10^{-25}$	$3.967\times10^{\text{-}25}$	$3.958\times10^{\text{-}25}$
$\bar{r}$	ホスト格子の平均イオン半径	(m)	$9.85 \times 10^{-11}$	$9.83 \times 10^{-11}$	$9.81  imes 10^{-11}$	$9.91 \times 10^{-11}$
$T_{Am}$	Am-MOXもしくはAm-UO <sub>2</sub> の融点	(K)	3037	3022	3008	3072
Y	グリューナイゼン定数	(-)	2.096	2.063	2.032	2.025
α	線熱膨張係数	(1/K)	$2.849\times10^{-5}$	$2.817\times10^{-5}$	$2.785 \times 10^{-5}$	$2.839\times10^{-5}$
K	圧縮率	(Pa)	$2.114\times10^{11}$	$2.113 \times 10^{11}$	$2.111 \times 10^{11}$	$2.034\times10^{11}$
$C_v$	定積比熱	(J/K mol)	69.79	69.83	69.85	69.72



Fig.1 レーザーフラッシュ法熱伝導率測定装置の概略図



Fig. 2 10%Am-MOX及び15%Am-MOXの金相写真



Fig.3 10%Am-MOXのEPMAによるU、Pu及びAmの元素分析結果



Fig. 4 10%Am-MOX熱処理時の酸素ポテンシャル測定結果



Fig.5 気孔率ゼロに補正したAm-MOX及びAm-UO2の熱伝導率測定結果



**Fig. 6** Am-MOX及びAm-UO<sub>2</sub>の熱伝導率測定結果から得られた係数A及びBの フィッティング値とAm含有率の関係性



Fig.7 係数A及びBのフィッティング値とモデル解析結果の比較



 Fig. 8
 気孔率ゼロに補正したAm-MOX及びAm-UO2の熱伝導率の

 実験データ及びモデル解析結果の比較