

## UO<sub>2+x</sub> の酸素ポテンシャルと欠陥化学

Oxygen potential and defect chemistry of UO<sub>2+x</sub>

\*渡部 雅<sup>1</sup>, 松本 卓<sup>1</sup>, 加藤 正人<sup>1</sup>, 砂押 剛雄<sup>2</sup>

<sup>1</sup>日本原子力研究開発機構, <sup>2</sup>検査開発株式会社

これまでデータが限られていた 1673-1873 K の温度領域における UO<sub>2+x</sub> の酸素ポテンシャルを精度良く測定することに成功し、得られたデータを欠陥化学モデルにて評価した。

**キーワード**：酸素ポテンシャル、欠陥化学

### 1. 緒言

UO<sub>2</sub> の酸素ポテンシャルについては先行研究が多数存在するが、1673-1873 K の高温領域における定比組成近傍の酸素ポテンシャルデータは限られている。一方、Kato らが(U, Pu)O<sub>2</sub> の酸素ポテンシャルを温度、O/M 比及び Pu 含有量を変数として定式化した[1]、UO<sub>2</sub> の酸素ポテンシャルは UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> 固溶体の酸素ポテンシャルを評価するうえで重要なデータである。

本研究では UO<sub>2+x</sub> の酸素ポテンシャルデータを気相平衡法によって測定し、これまでデータが限られていた 1673-1873 K の温度範囲まで拡張することを目的とした。また、得られたデータを欠陥化学モデルにより評価し、先行研究と併せて比較・整理した。

### 2. 実験

UO<sub>2</sub> 粉末をペレットへ成型した後、加湿した Ar-4.5%H<sub>2</sub> ガス中で 1923 K の焼結を行い試料とした。試料の O/U 比変化は熱天秤にて測定した。測定時の温度は 1673、1773 及び 1873 K の三水準とし、雰囲気中の酸素分圧を変化させた際の熱重量変化から O/U 比変化を算出した。

### 3. 結果・考察

図 1 に 1673、1773 及び 1873 K における UO<sub>2+x</sub> の O/U 比と酸素分圧( $P_{O_2}$ )の関係を示す。定比組成からのずれ  $x$  は、 $P_{O_2}^{1/n}$  に比例することが知られており、 $n$  は欠陥の種類に特有な値である。図 1 の酸素ポテンシャルデータを  $n = +2$  の領域と仮定し、フィッティングを実施すると以下の式を得た。

$$x = 7.08 \times 10^5 \exp(-8500/RT) P_{O_2}^{1/2}$$

上式の計算結果は図において実線で表されるが、実験結果とよく一致することがわかる。

先行研究によると UO<sub>2±x</sub> について hyper-stoichiometric region では  $n$  は+2 及び+6、hypo-stoichiometric region では  $n$  は-3 となることが報告されている[2]。この報告をもとに高温領域における UO<sub>2±x</sub> の Brouwer 図を作成した。

#### 参考文献

[1] M. Kato et al., J. Nucl. Mater., 414 (2011) 120

[2] A Nakamura and T Fujino, J. Nucl. Mater., 140 (1986) 113

\*Masashi Watanabe<sup>1</sup>, Taku Matsumoto<sup>1</sup>, Masato Kato<sup>1</sup> and Takeo Sunaoshi<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Japan Atomic Energy Agency, <sup>2</sup>Inspection Development Company Ltd.

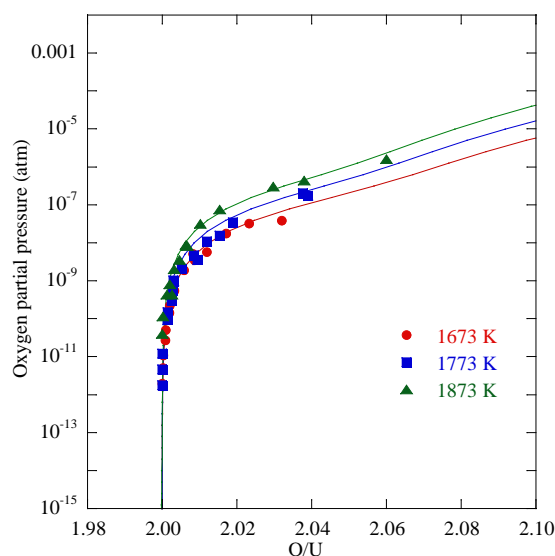


図 1 1673-1873 K における UO<sub>2+x</sub> の O/U 比と酸素分圧の関係