OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	ペロブスカイト型酸化物の熱物性とその挙動評価
Author(s)	松田, 哲志
Citation	大阪大学, 2003, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/44320
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

氏名	松田哲志（まつだてつし）
博士の専攻分野の名称	博士（工学）
学位記番号	第17860号
学位授与年月日	平成15年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科原子力工学専攻
学位論文名	**ペロブスカイト型酸化物の熱物性とその挙動評価**
論文審査委員	（主査） 教授 山中 伸介 （副査） 教授 西嶋 茂宏　助教授 山本 孝夫　助教授 宇埜 正美

論文内容の要旨

本論文は、軽水炉燃料で生成する可能性のあるBa、Sr、Zr、Ce及びUからなるペロブスカイト型酸化物の熱物性を評価するとともに燃料ペレット中の挙動を評価することを目的とする。本論文は以下の4章から構成される。

1章では、軽水炉燃料の高燃焼度化という観点から、Ba、Sr、Zr、Ce及びUからなるペロブスカイト型複合酸化物に着目した背景を示した。上記系において形成される可能性のある化合物についてまとめ、ペロブスカイト型酸化物の位置づけを示した。

2章では、Ba-M-O系（M：U、Zr、Ce）およびSr-M-O系（M：Zr、Ce）のペロブスカイト型酸化物を固相反応にて合成し、デバイ温度、熱膨張率、比熱、溶融温度、熱伝導率をそれぞれ測定した結果を示した。デバイ温度は、Ba系ペロブスカイト、Sr系ペロブスカイトに類別することにより、原子の質量及び隣接イオン間距離で整理できることを示した。熱膨張率については、Ruffaのモデルで予測される熱膨張係数はいずれも、実測値より大きな値となることを示した。比熱に関しては、$BaUO_3$を除き調和振動子モデルの調和項と膨張項の和で表現できることを示した。溶融温度に関しては、熱膨張率との関連、熱振動との関連から整理すると$BaUO_3$は他のペロブスカイト型酸化物と異なる挙動であるが、凝集エネルギーという観点からクーロン因子でまとめると、$BaUO_3$も他のペロブスカイト型酸化物に近いふるまいであることを確認した。Uを含むペロブスカイト型酸化物の熱伝導率は、室温付近においてフォノンの平均自由行程が格子定数程度まで低下しており、温度依存性を示さず熱伝導率下限値に近い値であることを示した。

3章では、燃料ペレット中で生成したFP元素の化学形態を理解するため、ペロブスカイト型酸化物の熱力学量を評価し、化学ポテンシャル図及び状態図によりその安定性について示した。格子振動を評価するため、分子動力学法で$BaUO_3$結晶中のイオンのふるまいを評価し、フォノンの状態密度を評価し、金属イオンに比べ酸素イオンが高い振動数でピークを持つことを示した。

4章は結論であり、本研究で得られた成果を要約した。

論文審査の結果の要旨

本論文は、軽水炉燃料で生成する可能性のあるBa、Sr、Zr、Ce及びUからなるペロブスカイト型酸化物の熱物性を評価するとともに燃料ペレット中の挙動を評価することを目的としている。軽水炉燃料の経済性向上および使用済み燃料の発生量低減の観点から、燃料の高燃焼度化が進められている。さらなる高燃焼度を目指す際、高燃焼度化による燃料ペレットの挙動に関する理解を深めることが重要となる。その場合、Ba、Sr、Zr、Ce及びUからなるペロブスカイト型複合酸化物の基礎物性を把握し、燃料ペレットの特性に及ぼす影響を予め評価しておくことが、高燃焼度燃料の健全性を評価する上で重要である。本論文は、上記系において形成される可能性のある化合物の熱物性について系統的に測定・評価するともに、燃料ペレット中でのその挙動に関する研究の成果をまとめたものである。

主な成果は以下のように要約できる。

Ba-M-O系（M：U、Zr、Ce）およびSr-M-O系（M：Zr、Ce）のペロブスカイト型酸化物を固相反応にて合成し、デバイ温度、熱膨張率、比熱、溶融温度、熱伝導率を測定し、1）デバイ温度は、Ba系ペロブスカイト、Sr系ペロブスカイトに類別することにより、原子の質量及び隣接イオン間距離で整理できることを、2）熱膨張係数はRuffaのモデルで予測される熱膨張係数より小さくなることを、3）比熱は$BaUO_3$を除き調和振動子モデルの調和項と膨張項の和で表現できることを、4）Uを含むペロブスカイト型酸化物の熱伝導率は熱伝導率下限値に近い値であることを、明らかにしている。

燃料ペレット中でのペロブスカイト型酸化物の挙動については、1）計算機手法を用い燃料ペレット中で生成したFP元素の化学形態及びペロブスカイト型酸化物の安定領域を、2）分子動力学法で$BaUO_3$結晶格子振動を評価することにより、フォノンの状態密度により金属イオンに比べ酸素イオンが高い振動数でピークを持つことを、明らかにしている。

以上のように、本論文は軽水炉燃料中で生成する可能性のあるペロブスカイト型複合酸化物の熱物性および燃料ペレット中でのその挙動に関して、重要な知見を与えている。さらに、Ba、Sr、Zr、Ce及びUからなるペロブスカイト型複合酸化物に関して多くの基礎的知見を提供している。これらの知見は、原子力工学及びセラミックス工学の発展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。