Osaka University Knowledge Archive

Title	高温質量分析法による酸化物および窒化物燃料の蒸気圧測定
Author(s)	中島, 邦久
Citation	大阪大学, 2006, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48572
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。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

【37】

氏　　名	中　島　邦　久（なかじま　くにひさ）
博士の専攻分野の名称	博　士（工　学）
学　位　記　番　号	第　２０６６０　号
学 位 授 与 年 月 日	平成 18 年 9 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第４条第２項該当
学　位　論　文　名	**高温質量分析法による酸化物および窒化物燃料の蒸気圧測定**
論 文 審 査 委 員	（主査） 教　授　山中　伸介 （副査） 教　授　竹田　敏一　　教　授　山口　　彰　　教　授　山本　孝夫 助教授　宇埜　正美

論 文 内 容 の 要 旨

本研究の目的は、高温質量分析法による蒸気圧測定から酸化物燃料および窒化物燃料に関係する物質について、これまで不確かであった、あるいは、未知であった熱力学諸量を取得することである。本研究のテーマである原子炉燃料の蒸気圧は、燃料の熱化学的安定性を評価する上で必要な熱力学諸量を評価するために利用されている基礎物性のひとつである。特に、原子炉燃料の蒸気圧を測定することは必然的に高温領域のデータ取得につながるため、蒸気圧測定は燃料のふるまいを理解する上で重要な高温領域の熱力学諸量を取得する手段として適している。

第１章では、高温質量分析法による蒸気圧の測定方法について説明した。また、酸化物燃料や窒化物燃料の蒸気圧特性に関するこれまでの研究状況を紹介した。

第２章では、酸化物燃料に関係する物質の熱力学諸量に関する研究成果について記述している。始めに、これまで不確かであった揮発性ウラン含有蒸気分子 UO_3（g）の標準生成自由エネルギーの値を確かめるため、２つの異なる方法で行われた高温質量分析測定結果について説明を行った。そして、これらの測定から、より信頼できる UO_3（g）の標準生成自由エネルギーの値を示すことに成功した。ウラニアーイットリア固溶体 $U_{1-y}Y_yO_{2-x}$（x＝y/2）の酸素ポテンシャルに関する測定結果については、固溶体の酸素ポテンシャルは同じ不定比組成（亜化学量論組成）の UO_{2-x} の酸素ポテンシャルとほぼ一致することが分かった。最後に、これまで熱力学諸量に関する実測値が報告されていなかったペロブスカイト型複合酸化物 $BaPuO_3$ および $SrPuO_3$ の蒸発エンタルピーや標準生成エンタルピー $\Delta_f H^\circ_{298}$ に関する測定結果について説明を行った。

第３章では、窒化物燃料に関係する物質、特に NpN の熱力学諸量に関する研究成果について記述している。始めに NpN 単体の高温質量分析測定結果について記述した。その結果、NpN の標準生成自由エネルギーの値は、UN と PuN の値に対して中間的な値を示すことがわかった。ところが、この標準生成自由エネルギーの算出にあたっては、文献から得られる解離圧（窒素圧）の外挿値を使用していたため、相合蒸発する PuN と共存させた NpN の高温質量分析測定を試みた。その結果、NpN の標準生成自由エネルギーは、UN と PuN の値に対して中間的な値を示すことが再確認された。最後の NpN と PuN との固溶体（Np、Pu）N に関する高温質量分析測定では、固溶体中の PuN の活量に関する取得を試みた。

第４章では、本研究の結論として得られた成果などを要約している。

論文審査の結果の要旨

本研究のテーマである原子炉燃料の蒸気圧は、燃料の熱化学的安定性を評価する上で必要な熱力学緒量を評価するために利用されている基礎物性のひとつである。特に、原子炉燃料の蒸気圧を測定することは必然的に高温領域のデータ取得につながるため、蒸気圧測定は燃料のふるまいを理解する上で重要な高温領域の熱力学諸量を取得する手段として適している。本論文では、これまで不確かであった、あるいは、未知であった酸化物および窒化物燃料に関連した物質についての熱力学諸量に関する評価を行っている。本論文の内容を要約すると以下のようになる。

⑴ 酸化物燃料に関係する物質の熱力学諸量については、これまで不確かであった揮発性ウラン含有蒸気分子 UO_3（g）の標準生成自由エネルギーの値を明らかにしている。また、これまでに報告例のなかった複合酸化物（$BaPuO_3$、$SrPuO_3$）の標準生成エンタルピーや亜化学量論組成ウラニアーイットリア固溶体（U、Y）O2－x の酸素ポテンシャルに関する熱力学緒量を明らかにしている。

⑵ 窒化物燃料に関する物質については、これまでに報告例のなかったネプツニウム窒化物の標準生成自由エネルギーを測定し、ウラン窒化物とプルトニウム窒化物の値に対し中間的な値であること明らかにしている。

以上のように、本論文は原子炉や炉心燃料の設計者や安全研究者にとって必要な燃料のふるまいを理解する上で重要な高温領域の熱力学諸量に関する知見が多く得られている。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。