

## 審査の結果の要旨

氏名 中園祥央

アクチノイド水素化物は、トリガ型原子炉用燃料  $U-ZrHx$  として広く用いられてきたほか、近年になって長寿命放射性廃棄物マイナーアクチノイド (MA) の核変換ターゲット材料として、また超長寿命燃料などとしても注目されて研究されるようになった。本研究では、水素保持力が大きい複合水素化物  $ThZr_2Hx$  に着目し、その水素吸蔵特性、熱伝導率、熱容量など重要な物性値を測定評価することにより本水素化物の核燃料としての可能性を調べたものである。

第 1 章は序論で、水素化物燃料に関する従来の研究をまとめるとともに、本研究の目的を述べている。

第 2 章では、実験方法についてまとめており、本研究で用いた主要な実験手法であるアーク炉による合金調製、水素化・脱水素化測定、走査型電子顕微鏡、熱重量—示差熱分析 (TG-DTA)、示差走査熱量測定 (DSC)、熱膨脹率測定、微小硬度測定などについて説明している。

第 3 章では、結果と考察をまとめている。 $ThZr_2$  合金の水素吸蔵試験により、ボタン状の合金からクラックを発生させることなく  $ThZr_2H_4$  の試料を作成する方法を確立している。水素化過程での試料温度と水素供給圧を時系列的に適切に制御することにより、亀裂のないバルク試料が作成できることを明らかにした。作成された水素化物試料は、 $ThZr_2Hx$  と  $ZrHx$  の 2 相混合物であることが分った。ここで、トリウム之余剰量は、 $ThZr_2Hx$  の Th/Zr 比不定比性によるものと推定している。

$ThZr_2H_{6.7}$  の試料の TG-DTA 分析によって、1000K、1100K、1150K 付近に吸熱ピークが観察され、重量減少とも対応していた。これらのうち 1150K の吸熱ピークは  $ZrH_{1.98}$  の分解によるピークであることがつきとめられ、他の 2 つのピークは、 $ThZr_2Hx$  の bcc Laves 構造中の 96g と 32e の水素吸蔵サイトからの水素放出によることが推定された。これらの吸蔵サイトに入りうる水素原子の各サイト内安定性について、Miedema の理論に基づく Jacob の理論により吸収エンタルピーの評価を行っており、その結果、水素原子は両サイトに交互に入っていくことが導かれた。この挙動は、中性子回折による観測結果とよく対応することが示された。

$ThZr_2Hx$  試料の熱拡散率の温度依存性を測定した結果、その温度依存性は水

素含有量  $x$  とともに変化することが分った。約 800K までの測定では、水素濃度  $x$  が約 5 以下の試料では熱拡散率は温度とともに増加し、 $x = 5.2$  でほぼ温度依存性がなくなり、 $x > 5$  では温度とともに減少するという傾向があることが明らかにされた。このような傾向は金属性の特徴から、水素濃度が増加するにつれて非金属性の特徴へと変化したことを物語っている。600K 付近の温度では水素濃度の相違に拘らず一定の熱拡散率を示すという興味深い特性を見出している。熱拡散率の測定値と、熱容量の推定値、並びに密度の測定値を合わせて計算することにより熱伝導率を評価している。熱伝導率の温度依存性についても、ほぼ熱拡散率の温度依存性と類似の傾向を示すことが示された。またその絶対値の評価値は  $\text{UO}_2$  の値の約 2 倍となり、水素化物燃料の核燃料としての有利性を明らかにしたと考える。

第 4 章は、決論であり、本研究で得られた成果をまとめている。

以上を要するに、本論文は、アクチノイド水素化物燃料の代表的構成水素化物として、水素容量の大きい  $\text{ThZr}_2\text{H}_x$  を合成し、その水素吸蔵特性の研究から亀裂のないバルク状試料を作成する方法を確立するとともに、熱重量・示差熱分析で観測された吸熱ピークを、理論的解析による水素吸蔵サイトの水素吸収エンタルピ値から説明づけ、さらに熱伝導率などの物性値の測定評価を行うことにより、本水素化物の核燃料としての適性を明らかにしたものであり、工学の進展に寄与するところが少なくない。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。