

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	軽水炉シビアアクシデント模擬燃料デブリ試験における ウラン代替元素としてのランタノイドの熱力学的評価
Title(English)	
著者(和文)	中沢亮太
Author(English)	Ryota Nakazawa
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第12720号, 授与年月日:2024年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:小林 能直,林 幸,河村 憲一,上田 光敏,吉田 克己
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12720号, Conferred date:2024/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

論文要約

2011年3月に起きた福島第一原子力発電所(1F)の過酷事故(SA)において、1～3号機が炉心溶融に至った。特に1F2号機は、従来の過酷事故の典型シナリオと異なり金属・酸化物共存デブリが原子炉圧力容器(RPV)と反応して破損させた可能性が検討されている。金属・酸化物共存デブリふるまいの要素現象について基礎研究が進められているが、様々な現象が重畳するSAでは、大規模模擬試験により知見を拡充することが重要である。大規模模擬試験では核物質ウラン(U)の使用により法的制限が伴うが、本研究ではUを非放射性元素Lnで代替できる可能性に着目し、LnのU代替性の評価に必要な基礎データを収集し、代替が有効となる条件を検討した。さらに、金属・酸化物デブリ間におけるLnの分配挙動を系統的に調べることで、金属デブリ中へのLn系の核分裂生成物(Ln FPs)および中性子毒物(Gd)の移行可能性を評価した。

以下に各章の概要を記す。

第1章「緒言」では、1F2号機の事故経過と炉内状況の調査結果、事故進展に関する既往知見を概観した。2号機では水蒸気枯渇雰囲気下で炉心が溶融し、生成した金属・酸化物共存デブリがRPVと反応して破損させた可能性が検討されている。そこで、RPV破損時における金属・酸化物共存デブリのふるまい、特に金属デブリとRPVの共晶溶融反応、金属・酸化物デブリ間のUおよびZr分配、デブリの水蒸気酸化挙動の評価が必要となる。さらに、大規模模擬試験により、これらの要素現象が重畳するデブリふるまいの知見を拡充する必要がある。大規模模擬試験では核物質Uの使用により法的制限が伴うが、本研究ではUを非放射性元素Lnで代替できる可能性に着目し、Ln含有系の金属・酸化物間の平衡実験および模擬デブリの酸化試験を行い、その結果に基づいてUをLnで代替し評価できる熱力学的条件を提示することを目的とした。また、1F廃炉の基礎知見として、Ln-O系の熱力学評価を行い、Ln FPsおよび中性子毒物Gd₂O₃の金属・酸化物デブリ間の分配比を熱力学計算により推定した。

第2章「ランタノイドとウランの熱力学的類似性評価によるU代替元素候補の選定」では、金属・酸化物共存デブリによるRPV破損の模擬試験におけるU代替元素としての各Lnの適性について、文献調査と検討を行った。まず、Uを含むアクチノイド(An)とLnは、酸化物の生成ギブスエネルギーや昇華エンタルピーなどの熱物性が類似することを確認し、元素群LnはU代替物質に適すると評価した。さらに、各LnとUについて二酸化物相の安定性、熔融金属中酸素溶解度を比較し、各Lnの中で最もUに近いCeを代替元素候補として選定した。

第3章「Ce-Zr-Fe-O系の溶融金属・酸化物平衡の熱力学的評価」では、Ce-Zr-Fe-O系の溶融金属・酸化物間の相平衡データの取得と熱力学評価を行い、UをCeで代替して金属・酸化物デブリ間のU、Zr分配を評価できる条件を検討した。Ce-Zr-Fe-O系について、相平衡実験により金属液相中への酸素溶解度を明らかにした。さらにZr-Fe-O系について、 α -Zr、ZrO₂と三相平衡する相の決定を行った。得られた実験データに基づいて最適化された熱力学データベースを用いて行った熱力学計算により、CeでUを代替することで、溶融金属中U濃度が数at%以下となる酸素分圧範囲(2000 Kでは 10^{-17} atm以上)で金属・酸化物間のZrの分配が評価可能と判断した。

第4章「Ce-Zr-O-S.S-B₄C系の溶融金属・酸化物模擬燃料デブリの酸化挙動の評価」では、UをCeで代替させて金属・酸化物共存デブリの水蒸気酸化挙動を評価できる条件を明らかにするため、Ce-Zr-O-S.S-B₄C系の模擬燃料デブリの酸化試験を行って酸化プロセスを評価し、U-Zr-O-S.S-B₄C系の既往知見との類似性を検討した。その結果、酸化の進行に伴って、合金中Zrの酸化によるZrO₂膜の形成、合金中Bの酸化に伴うB₂O₃液相の形成、合金中全元素の酸化、と酸化プロセスが変化することを明らかにした。特に合金中Zr酸化プロセスが既報のU系試験と類似することを示し、金属中にZrが残存する場合にCeによるU代替が有効と評価した。

第5章「ランタノイドの溶融金属・酸化物間における物質分配の熱力学評価」では、1F廃炉の基礎知見として、デブリ中の中性子毒物Gd₂O₃、Ln FPsの分配挙動を評価するため、必要となるLn-O系の溶融金属・酸化物間の相平衡データの実験的評価および熱力学パラメータ評価を行った。評価したLn-O系の熱力学パラメータを用いた熱力学計算により、各溶融Ln中酸素溶解度は原子番号がSmに近い元素ほど高く、アルカリ土類金属のBaに近づく傾向があると評価した。また、熱力学計算により、Gd、Ln FPsの金属・酸化物デブリ間の分配比は約0.02%（金属/酸化物）と試算し、これらの元素はほぼ酸化物デブリに残留すると推定した。

第6章「1F2号機のデブリ特性評価に向けて」では、第3、4章で得られた知見を基に、1F2号機の炉心損傷～RPV破損に至るまでの金属デブリのふるまいを考察した。炉心損傷初期段階において、溶融金属デブリは制御棒被覆管(S.S)やチャンネルボックス(Zr合金)の相互作用で形成され则认为られる。従来評価では、S.S/Zr接触部で酸素飽和な α -Zrと平衡する相がFe₂Zr固相になりやすく、液相の形成を抑制する傾向があると推定されていた。本研究では、平衡相がFe₂Zr固相ではなく液相であるという第3章の実験結果に基づき、溶融デブリの形成はむしろ促進されやすい傾向があると推定した。

また、金属デブリの主成分(U-Zr-O-S.S-B₄C系混合物)の水蒸気酸化について、水蒸気供給量に対する反応生成物の変化を熱力学的に評価し、酸化の進行に伴い金属デブリ中 U および Zr の酸化から金属デブリ中 B の酸化へと移行する可能性を示した。さらに、本解析結果は、第 4 章で明らかにした Ce-Zr-O-S.S-B₄C 系の模擬金属デブリの酸化過程と類似することを踏まえ、Ce で U を代替した模擬試験により本解析結果の酸化プロセス変化を検証することを提言した。