

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)	論文要旨
Type(English)	Summary

(博士課程)  
Doctoral Program

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	材料 材料	系 コース	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	（工学）
学生氏名： Student's Name	中沢亮太		審査員主査： Chief Examiner	小林能直	

要旨（英文 300 語程度）

Thesis Summary (approx.300 English Words)

In the severe accident (SA) at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (FDNPS) in March 2011, core meltdowns occurred at unit 1 to 3. In Unit 2, there is a possibility that metal-oxide coexisting debris may be generated and damaged the reactor pressure vessel (RPV), which is different from conventional typical SA scenario. Recently, fundamental research is in progress on the elemental behavior of metal-oxide coexisting debris in SA. To estimate progression of SA at unit 2, in which various phenomena overlapped, it is important to expand knowledge of complex behavior of debris through large-scale simulation tests. However, implementation of large-scale simulation test is legally restricted due to use of the nuclear material uranium (U), and non-radioactive surrogate for U is desired. This study focused on substituting U with lanthanide (Ln), and aims to elucidate thermodynamic conditions in which substitution is effective. For this purpose, we investigated phase equilibria and oxidation behavior of simulant debris containing U or Ln by literature research and experiment, and considered similarity of U and Ln. First, we conducted a literature survey on phase equilibria of systems containing U or Ln, and evaluated Ce is suitable for surrogate for U in various Ln element. Subsequently, we collected further phase equilibrium data between metals and oxides in Ce-containing system and performed an oxidation test on Ce-containing simulated debris. In comparison with U-containing system, these results showed similarities in the specific oxygen partial pressure range or degree of oxidation of the simulated debris. Based on these results, we evaluated the conditions under which the substitution of U by Ce is effective to evaluate reaction behavior in metal-oxide coexisting debris and steam oxidation behavior of the simulated debris. Furthermore, by systematically investigating the phase equilibria between metal and oxide in Ln-O systems, we evaluated distribution ratio of Ln-based fission products (Ln FPs) and neutron poisons (Gd) between metal and oxide debris.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note: Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

## 論文要旨

### THESIS SUMMARY

系・コース： Department of Graduate major in	材料 材料	系 コース	申請学位(専攻分野)： 博士 Academic Degree Requested Doctor of	( 工学 )
学生氏名： Student's Name	中沢亮太		審査員主査： Chief Examiner	小林能直

#### 要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters )

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Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>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、溶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、 $\alpha$ -Zr、ZrO<sub>2</sub>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<sup>-17</sup> 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-B<sub>4</sub>C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-B<sub>4</sub>C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-B<sub>4</sub>C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ZrO<sub>2</sub>膜の形成、合金中Bの酸化に伴うB<sub>2</sub>O<sub>3</sub>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Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、LnFPs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、LnFPs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ると考えられる。従来評価では、S.S/Zr接触部で酸素飽和な $\alpha$ -Zrと平衡する相がFe<sub>2</sub>Zr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Fe<sub>2</sub>Zr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-B<sub>4</sub>C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Ce-Zr-O-S.S-B<sub>4</sub>C系の模擬金属デブリの酸化過程(第4章)と類似することを踏まえ、デブリの酸化プロセス評価でCeによるU代替が有効な条件は、第4章での評価結果から「デブリ中にZrもしくはBが残存する場合」に拡張できる可能性を示した。

備考：論文要旨は、和文2000字と英文300語を1部ずつ提出するか、もしくは英文800語を1部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).