

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, 学位の種類: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)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

## 論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	中沢 亮太		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	小林 能直	教授	審査員	吉田 克己	准教授
	審査員	林 幸	教授			
		河村 憲一	准教授			
上田 光敏		准教授				

### 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「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」と題し、7章から構成されている。

第1章「緒言」では、2011年3月の東日本大震災により炉心溶融に至った福島第一原子力発電所の事故経過、炉内状況の調査結果および事故進展に関する既往知見を概観し、2号機では水蒸気枯渇雰囲気下で炉心が溶融して生成した金属・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あり、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分配およびデブリの水蒸気酸化挙動の評価が必要であると述べている。その上で、これら要素現象が重畳するデブリふるまいの知見拡充のための大規模模擬試験において、使用制限のある核物質Uを非放射性元素Lnで代替できる可能性に着目し、ランタノイド(Ln)含有系の金属・酸化物間の相平衡実験および模擬デブリの酸化試験による代替性評価の必要性を指摘し、本論文の目的と意義を述べている。

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ている。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している。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ている。

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ている。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ている。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ている。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ている。

第4章「Ce-Zr-O-S、S(ステンレス鋼)-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ている。その結果、雰囲気中の酸素分圧の違いによって、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>液相の形成および合金中全元素の酸化と、模擬燃料デブリの酸化プロセスが大きく変化することを明らかにしている。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ている。

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>、Ln系の核分裂生成物(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ている。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ことを見出している。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

留すると推定している。

第6章「1F2号機のデブリ特性評価に向けて」では、第3章および第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ている。炉心損傷初期段階での、制御棒被覆管(S.S)およびチャンネルボックス(Zr合金)からの熔融金属デブリの形成過程において、従来報告と異なり平衡相は $\text{Fe}_2\text{Zr}$ 固相ではなく液相であるため(第3章)、熔融が促進されやすい傾向があると推定している。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唆している。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提示している。

第7章「結言」では、本論文で得られた結果を総括している。

以上を要するに、本論文は、1Fの過酷事故進展解析において、金属デブリとRPVの共晶熔融反応、金属・酸化物デブリ間のUおよびZr分配およびデブリの水蒸気酸化挙動の評価を行うとともに、これら要素現象が重畳するデブリふるまいの知見拡充のための大規模模擬試験におけるCeによる核物質Uの代替の可能性を提示し、さらに金属デブリ中へのLn Fpsおよび中性子毒物( $\text{Gd}_2\text{O}_3$ )の移行可能性を評価したものであって、今後の事故進展シナリオの高精度化および廃炉プロセス検討にも役立つ知見として、工学上および工業上貢献するところが大きい。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として、十分な価値があるものと認められる。

注意:「論文審査の要旨及び審査員」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。