

Title	酸化物個体表面における液体セシウム化合物の濡れ性
Author(s)	石井, 大翔
Citation	大阪大学, 2020, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/76567">https://doi.org/10.18910/76567</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

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

Osaka University

## 論文内容の要旨

氏名 ( 石井大翔 )

論文題名 酸化物固体表面における液体セシウム化合物の濡れ性

## 論文内容の要旨

2011年3月に東京電力福島第一原子力発電所で発生した原子力過酷事故では、核燃料から放出されたセシウム(Cs)やヨウ素(I)といった核分裂生成物(Fission Products: FPs)が原子炉外に放出されることで環境汚染や公衆被ばくを引き起こした。原子力過酷事故時に放出されるCsやIの放出・移行挙動の詳細が明らかになることは、事故解析や被害予測の高精度化、更には事故を起こした原子炉内部の状況の把握など多岐にわたり活用される知見となる。これまでに原子力過酷事故時における放射性物質の放出挙動は多岐にわたり研究されてきてはいるが、現象の完全な解明には至っていない。

本研究では、これまでに着目されてこなかったCsやIの化合物が事故進展に伴い溶融した際の挙動を詳しく評価することで、原子力過酷事故時におけるFPs放出挙動の本質的な理解に資する知見を創出することを目的とした。具体的には核燃料母相である二酸化ウラン(UO<sub>2</sub>)多結晶固体表面を含む酸化物固体表面でのセシウム化合物が溶融した際の濡れ性を評価した。本論文は以下の5章で構成されている。

1章では、原子力過酷事故時におけるFPs放出挙動の研究動向をまとめる中で、現状の課題を分析し、本研究の位置づけを記した。先行研究[K. Kurosaki et al., Sci. Rep. 7, Article number: 11449 (2017).]で明らかとなったUO<sub>2</sub>多結晶固体表面で、主要なFPs化合物であるヨウ化セシウム(CsI)が溶融した際に、その固体表面に対して吸着されるように濡れ広がる特異な挙動が、CsやIの放出に与える影響を考察した。章末では、液体CsIで報告された特異な濡れのみカニズムの解明を進めることが、CsやIの事故時における放出挙動の解明に資する知見となりうることを考察した。

2章では、一般的に濡れという現象が固体表面と液体の相互作用で決定されることに注目し、液体CsIのUO<sub>2</sub>多結晶固体表面での濡れのみカニズムを、CsIや、CsIと同じセシウムハライドである塩化セシウム(CsCl)や臭化セシウム(CsBr)を種々の酸化物固体表面で溶融させた際の挙動を評価した。

3章では2章までに得られた知見をもとに、照射燃料内部で生成することが想定されるCsI以外のセシウム化合物のUO<sub>2</sub>多結晶固体表面における濡れ挙動を評価した。ここではCsIの酸化物であるヨウ素酸セシウム(CsIO<sub>3</sub>)と、CsやIと同じ揮発性のFPsの一種であるテルル(Te)とCsの化合物であるセシウムテルライド(Cs<sub>2</sub>Te)の濡れ性を実験的に調査した結果をとりまとめた。

4章では、実際の事故で燃料から放出されたCsIが、原子炉構造材に付着した際の挙動を評価した。具体的には、放出されたCsIが原子炉構造材の1つであるステンレス鋼(SUS316)固体表面に付着し、事故進展に伴いその固体表面で溶融するシナリオを想定し、液体CsIのSUS316固体表面に対する濡れ性と、溶融後の性状を評価した。

5章では、本研究の総論として液体セシウム化合物の酸化物固体表面や液体CsIのSUS316固体表面での濡れのみカニズムを考察する中で、本研究を通じて新たに得られた知見をまとめた。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( 石 井 大 翔 )			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	准教授	牟田 浩明
	副 査	教授	村田 勲
	副 査	教授	佐藤 文信
	副 査	教授	黒崎 健 (京都大学複合原子力科学研究所)

## 論文審査の結果の要旨

2011年3月に東京電力福島第一原子力発電所で発生した原子力過酷事故では、核燃料から放出されたセシウム(Cs)やヨウ素(I)といった核分裂生成物(Fission Products: FPs)が原子炉外に放出されることで環境汚染や公衆被ばくを引き起こした。原子力過酷事故時に放出されるCsやIの放出・移行挙動の詳細が明らかになることは、事故解析や被害予測の高精度化、更には事故を起こした原子炉内部の状況の把握など多岐にわたり活用される知見となる。これまでに原子力過酷事故時における放射性物質の放出挙動は多岐にわたり研究されてきてはいるが、現象の完全な解明には至っていない。

本研究では、これまでに着目されてこなかったCsやIの化合物が事故進展に伴い溶融した際の挙動を詳しく評価することで、原子力過酷事故時におけるFPs放出挙動の本質的な理解に資する知見を創出することを目的とした。具体的には核燃料母相である二酸化ウラン(UO<sub>2</sub>)多結晶固体表面を含む酸化物固体表面でのセシウム化合物が溶融した際の濡れ性を評価した。本論文は以下の5章で構成されている。

1章では、原子力過酷事故時におけるFPs放出挙動の研究動向をまとめる中で、現状の課題を分析し、本研究の位置づけを記した。先行研究[K. Kurosaki et al., Sci. Rep. 7, Article number: 11449 (2017).]で明らかとなったUO<sub>2</sub>多結晶固体表面で、主要なFPs化合物であるヨウ化セシウム(CsI)が溶融した際に、その固体表面に対して吸着されるように濡れ広がる特異な挙動が、CsやIの放出に与える影響を考察した。章末では、液体CsIで報告された特異な濡れのみか、メカニズムの解明を進めることが、CsやIの事故時における放出挙動の解明に資する知見となりうることを考察した。

2章では、一般的に濡れという現象が固体表面と液体の相互作用で決定されることに注目し、液体CsIのUO<sub>2</sub>多結晶固体表面での濡れのみか、メカニズムを、CsIや、CsIと同じセシウムハライドである塩化セシウム(CsCl)や臭化セシウム(CsBr)を種々の酸化物固体表面で溶融させた際の挙動を評価した。

3章では2章までに得られた知見をもとに、照射燃料内部で生成することが想定されるCsI以外のセシウム化合物のUO<sub>2</sub>多結晶固体表面における濡れ挙動を評価した。ここではCsIの酸化物であるヨウ素酸セシウム(CsI<sub>3</sub>O<sub>7</sub>)と、CsやIと同じ揮発性のFPsの一種であるテルル(Te)とCsの化合物であるセシウムテルライド(Cs<sub>2</sub>Te)の濡れ性を実験的に調査した結果をとりまとめた。

4章では、実際の事故で燃料から放出されたCsIが、原子炉構造材に付着した際の挙動を評価した。具体的には、放出されたCsIが原子炉構造材の1つであるステンレス鋼(SUS316)固体表面に付着し、事故進展に伴いその固体表面で溶融するシナリオを想定し、液体CsIのSUS316固体表面に対する濡れ性と、溶融後の性状を評価した。

5章では、本研究の総論として液体セシウム化合物の酸化物固体表面や液体CsIのSUS316固体表面での濡れのみか、メカニズムを考察する中で、本研究を通じて新たに得られた知見をまとめた。

以上のように、本論文は原子力過酷事故時におけるCs等のFP放出挙動に影響する因子の解明およびその理解に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。