

審査の結果の要旨

氏名 関口 裕真

本論文は、次世代原子炉として現在研究開発が行われつつある熔融塩型原子炉の事故時ソースターム評価の高度化を目指して、アルカリハライド熔融塩中のCsとIの蒸発の熱力学について、実験及び計算科学手法の双方を用いて検討をおこなったものであり、全体は6章から構成されている。

第1章は序論であり、本研究の背景と目的を述べている。原子力エネルギー・熔融塩炉の現状及び課題から始まり、本論文研究の目的を説明している。熔融塩炉は、核燃料物質を熔融塩に溶解させて取り扱う液体燃料概念を用いていることから、一次冷却系の破断により放射性物質の炉外への放出が想定される。しかしながら、核分裂生成物に着目した熔融塩からの放出挙動に関しては報告例が乏しく、現状では正確な事故時ソースターム評価は困難である。このような背景の下で、本研究では、アルカリフッ化物・塩化物熔融塩中に溶解したCsとIの蒸発について包括的に解明することを目的とし、研究手法として蒸気圧測定および分子動力学計算を用いることとしたと述べている。

第2章では、気相流動法とTG-DTA-MSという二つの手法により、CsとIを溶解したアルカリハライド熔融塩の蒸気圧測定の実験結果について述べている。これら2つの手法での蒸気圧測定によるCsとIの挙動の分析結果では、いずれにおいても、アルカリハライド熔融塩中に溶解したCsでは、塩中のIの有無によって蒸気圧が大きく変動し、Iが存在する場合にはCsIとして理想溶体想定よりも蒸発しやすい傾向を示した。なおフッ化物熔融塩と塩化物熔融塩の比較では、Cs含有化学種の蒸気圧は塩化物塩の場合のほうが低いが、I含有化学種の蒸気圧は塩化物塩の場合のほうが高く、これは測定時に雰囲気に含まれるHIの放出によるものと推定されている。

第3章では、分子動力学計算を用いたアルカリハライド熔融塩中のCsとIの局所構造と混合エンタルピーの評価結果を報告している。混合エンタルピー評価では、アルカリハライド熔融塩に対するCsIの溶解が熱力学的に不安定であることが示され、他方で、塩中にIを伴わないCsF、CsClでは混合状態が安定であることが示された。また局所構造からは、熔融塩中のCsとIは互いに近傍に存在する傾向を持つことが示されており、これは蒸気圧測定でのI濃度増大によってCs含有化学種の蒸気圧が変動することと定性的に整合する。

第4章では、分子動力学法によりアルカリハライド熔融塩の蒸発を直接模擬し、そこから得られる知見を報告している。その結果として、熔融塩中のCsやIの蒸発形態はアルカリハロゲン化物の化合物形態であることや、溶媒塩中のLi、Naがアルカリハロゲン化物の複数組み合わせさせた複塩分子として蒸発することといった、蒸気圧測定では直接

には測定できていない現象が見いだされたとしている。

第5章では、第2章および第3章で得られた結果について、蒸発エンタルピーという形に整理して、それらの整合性についての議論を行っている。分子動力学計算により得られた混合エンタルピーから熱力学的な式変換を通して得られた蒸発エンタルピーは、実験により得られた蒸発エンタルピーとよく一致しており、本研究全体としての結果の整合性が取れていることを示している。また後半では、本結果で得られた熱力学パラメータを用いて溶融塩炉の事故時ソースターム評価の高度化についても検討を行っており、理想溶体想定を用いるよりもCs放出量が多く、また、塩中I濃度によりCs放出量の変動することを報告している。

第6章は本論文の結論であり、各章で得られた結果の概要を示すとともに、今後の検討課題を提示している。

以上をまとめると、本研究は、アルカリハライド溶融塩中のCsとIの蒸発の熱力学について、実験と計算の両面から検討をおこなったものであり、溶融塩型原子炉の研究開発に関して有益な知見を与えるものであるのみならず、高温化学や原子力工学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。