

審査の結果の要旨

氏名 魚住 浩一

U-Pu-Zr 3元合金からなる金属燃料の乾式再処理では、LiCl-KCl共晶熔融塩を溶媒とする電解精製によりU、Pu等のアクチノイド元素を回収するが、その際、電解精製槽の浴塩中にはアルカリ金属、アルカリ土類、希土類などの核分裂生成物（FP）が陽イオンとして、また、IやTe等の熔融塩中で陰イオンになるFP元素が浴塩中に蓄積する。浴塩中のこれらのFPの蓄積は浴塩の融点変化、発熱、回収アクチノイド製品中の不純物増加などをもたらすため、これらのFPを除去し、地層処分に適した固化体に転換する必要がある。本研究は、熔融塩中のFPを選択的に吸着する物質として知られているA型ゼオライトへの熔融塩中のI、Br、Teの吸着特性を調べるとともに、カラム方式による使用済塩処理の成立性を検討し、さらには、カラム内でのFP元素の吸着挙動をモデル化し、これをゼオライトカラム試験の結果に適用させて本モデルの妥当性を確認したもので、全7章からなる。第1章は序論であり、本研究の背景と目的について述べている。

第2章では、陰イオンFP元素のゼオライトへの平衡吸着挙動について述べている。LiCl-KCl-KIとしてIを含む熔融塩にA型、X型、Y型ゼオライトを浸漬させたところ、A型ゼオライトを用いた場合でのみ有意にI濃度が減少したことから、陰イオンFPの吸着に適したゼオライトとしてA型ゼオライトを選択した。次に、熔融塩中の陰イオンFP元素濃度を変化させて、A型ゼオライトによる吸着特性を調べるところ、IはClに比べて選択的に吸着された。更に、Iと同じ-1価でイオン径の小さいBrは選択的吸着性をほとんど示さなかったのに対し、Iとはほぼ同じイオン径を有し-2価で存在するTeは非常に高い吸着性を示した。

第3章では、IとBrの吸着特性の違いをMD計算により明らかにしている。MD計算のプログラムとしてMXDORT0を用いて、A型ゼオライト中にアルカリ金属元素（Li, Na, K）およびハロゲン元素（Cl, Br, I）が一定量存在する場合の吸着時のエンタルピー変化を計算し、塩化物-臭化物の混合系と塩化物-ヨウ化物の混合系とでの吸着エンタルピー変化の違いにより、第2章で述べたIとBrの吸着性の違いの説明を試みた。その結果、A型ゼオライト中のハロゲン元素としてClとIが混合した系の方が、ClとBrが混合した系に比べて生成エンタルピーが小さくなり、Iが存在する系では塩中に比べてゼオライト中のI濃度が増加することを定性的に説明できた。

第4章では、カラム方式による使用済塩処理の成立性の検討を行っている。交換可能なカラムを備えた工学規模装置を設置し、粒状のゼオライトが充填されたカラムを熔融塩が通過する際の流動特性を把握した。また、模擬FPとしてCsやIを含む模擬使用済塩をゼオライトカラムで処理し、これらの模擬FPがゼオライトに吸着されることを確認し、カラム方式の概念が成立することを実証している。

第5章では、速度論を考慮したゼオライトカラムにおけるFP吸着挙動評価手法を確立し

ている。攪拌下の溶融塩中に粒状のA型ゼオライトを浸漬してCsやIの吸着速度を求めたほか、文献値をもとに水溶液系での吸着モデルを溶融塩系に用いてゼオライトへの吸着速度定数を求めた。これを工学規模試験装置にて模擬使用済塩を用いて実施したカラム試験に適用したところ、カラム通過後の溶融塩中のCs濃度変化を概ね再現できたことから、今回用いたカラム内での吸着モデルおよび速度定数が妥当であると判断している。

第6章では、実機における使用済塩中のアルカリ金属FPとハロゲンFPの除去挙動の予測について述べている。速度論を考慮したゼオライトカラムでのCsとIの吸着挙動評価法を、従来想定されている実機でのプロセスフローに適用したところ、ハロゲンFP に関しては現行のプロセスフローが満たされるものの、アルカリFP に関しては想定量をゼオライトカラムにより除去することができないことが分かった。そして、必要量のアルカリFPを除去するには、使用するゼオライト量を2.5倍に増やし、かつ、ゼオライトカラムで処理する使用済塩の量を2倍に増やす、あるいは電解精製槽浴塩中のアルカリFP濃度が2.6倍程度になることを許容するなどの方策を提案している。

第7章はまとめであり、本研究結果を総括するとともに、今後の研究課題について述べている。

以上を要すれば、本研究は、乾式再処理使用済塩処理のゼオライトによる処理に関して、実験と計算科学的アプローチにより明らかにした結果を取りまとめたものであり、原子力工学に貢献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。

