

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	大気圧非平衡プラズマによる化学転換と湿式分離を用いた燃料デブリの化学処理に関する基礎研究
Title(English)	Basic study on fuel debris treatment using chemical conversion by atomic-pressure non-thermal plasma and the aqueous separation
著者(和文)	北垣 徹
Author(English)	Toru Kitagaki
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10167号, 授与年月日:2016年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:鈴木 達也,池田 泰久,小澤 正基,竹下 健二,塚原 剛彦
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10167号, Conferred date:2016/3/26, 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

# 論文要旨

## THESIS SUMMARY

専攻：	原子核工学	専攻	申請学位（専攻分野）：	博士	（工学）
Department of			Academic Degree Requested	Doctor of	
学生氏名：	北垣 徹		指導教員（主）：	鈴木 達也	
Student's Name			Academic Advisor(main)		
			指導教員（副）：	池田 泰久	
			Academic Advisor(sub)		

### 要旨（和文 2000 字程度）

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters )

本論文は、「大気圧非平衡プラズマによる化学転換と湿式分離を用いた燃料デブリの化学処理に関する基礎研究」と題し、難溶性物質である燃料デブリを対象として、大気圧非平衡プラズマを用いた化学転換により可溶化する手法とイオン交換による湿式分離法を組み合わせた新規化学処理法を提案し、各工程の技術的成立性を明らかにした上で一連のプロセスとして具現化したものであり、7 章より構成されている。

第 1 章「序言」では、これまでの原子力過酷事故で発生した燃料デブリの特性と処置方法について概観し、燃料デブリは難溶性で化学処理が困難であることを明らかにした上で、計量管理方法や処理・処分法が課題となっている燃料デブリから U および Pu の回収が可能な化学処理法の提案とその技術的成立性を明らかにするという本研究の目的を述べた。

第 2 章「燃料デブリの熱力学的評価」では、過酷事故で発生する燃料デブリの相状態について、福島第 1 原子力発電所の過酷事故で生じたと想定される熔融燃料とコンクリートの反応 (MCCI: molten-core concrete interaction) による生成物を熱力学平衡計算により推定している。この結果、MCCI 生成物中で U の多くは  $(U, Zr)O_2$  および  $(Zr, U)SiO_4$  の化学形で存在している可能性を示唆した。

第 3 章「大気圧非平衡プラズマによる模擬燃料デブリの可溶化処理」では、燃料デブリの可溶化処理として、大気圧非平衡プラズマによる酸化及び塩素化処理の技術的成立性を検討している。酸化処理は燃料デブリ中の  $UO_2$  の粉体化を目的としており、 $UO_2$  の模擬物質として酸化挙動が比較的類似している  $WO_2$  を用いて、大気圧非平衡プラズマによる酸化処理試験を行い、酸化により粉体が得られることを明らかにしている。塩素化処理は難溶性物質を可溶性の塩化物に化学転換することを目的としており、 $CCl_4$  ガスを塩素源として難溶性の  $CeO_2$  を大気圧非平衡プラズマ塩素化処理により、常圧且つ  $100^\circ C$  以下の低温で化学転換し、純水中に Ce を溶解させることが可能であることを明らかにした。

第 4 章「電解凝集法による模擬溶解液からのセシウムの分離」では、電解凝集法による模擬燃料溶解液からの Cs 分離について技術的成立性を検討している。燃料デブリ中に含まれる Cs は高い放射能を有し、U および Pu の分離工程で使用するイオン交換樹脂を放射線劣化させる懸念があり、事前に除去することが望ましく、電解凝集により Cs 以外の U を含む元素の大部分が沈殿物中に移行することを確認した上で、沈殿物の濾過と塩酸溶解により Cs を分離した溶解液が得られることを明らかにした。

第 5 章「イオン交換による模擬溶解液からのウランの回収」では、耐放射線性、耐熱性に優れたイミダゾール系陰イオン交換樹脂をシリカビーズに担持させたイオン交換体を用いて、模擬燃料デブリ溶解液からの U 回収の適用性を評価した。分配係数の測定試験、クロマトグラフィー分離試験により燃料デブリ溶解液中から U が回収可能であることを明らかにした。

第 6 章「新規化学処理方法の提案」では、第 3 章から第 5 章までで技術的な成立性が検証された個別化学処理技術を統括し、燃料デブリ中からの U および Pu の分離処理のための新規化学処理方法を提案した。すなわち、具体的には第 2 章で検討した燃料デブリに対し、第 3 章で検討した大気圧非平衡プラズマによる可溶化処理を行い、塩酸溶液に溶解させた後に、第 4 章で検討した電解凝集法を用いて Cs を分離し、第 5 章で検討したイオン交換法により U および Pu を分離するプロセスを提案した。提案したプロセスを実用化させるための課題についても明らかにした。

第 7 章「結言」では、各章で得られた結果を総括し、本論文の結論とした。

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 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

専攻：	原子核工学	専攻
Department of		
学生氏名：	北垣 徹	
Student's Name		

申請学位 (専攻分野)：	博士	( 工学 )
Academic Degree Requested	Doctor of	
指導教員 (主)：	鈴木 達也	
Academic Advisor(main)		
指導教員 (副)：	池田 泰久	
Academic Advisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words )

The title of this doctoral thesis is “Basic study on fuel debris treatment using chemical conversion by atomic-pressure non-thermal plasma and the aqueous separation”. In this thesis, novel treatment method for hardly soluble fuel debris was proposed. This treatment method is composed of the chemical conversion of fuel debris to easily soluble material by atomic-pressure non-thermal plasma (APNTP) and aqueous separation by ion exchange method.

The fuel debris generated by the severe accident in a nuclear power plant (NPP) is hardly soluble material such as (U,Zr)O<sub>2</sub>. Although it is required to be treated from the view point of measuring control and disposal of nuclear fuel, there is no available method. The objective of this study is suggestion of the reasonable treatment method to separate U and Pu from fuel debris.

The chemical structure of fuel debris is unclear and need to be defined in order to develop the treatment method. The chemical structures of molten-core concrete interaction (MCCI) products which generated in Fukushima Daiichi NPP unit 1 were simulated by a thermodynamic calculation. The calculation results indicated that main structures of MCCI products are (U,Zr)O<sub>2</sub> and (Zr,U)SiO<sub>4</sub>, and they are hardly soluble materials.

The oxidation and chlorination of fuel debris by APNTP were studied for the chemical conversion of fuel debris to easily soluble material. Oxidation of WO<sub>2</sub> which is simulant material of UO<sub>2</sub> by APNTP was confirmed. It was confirmed that CeO<sub>2</sub> which is hardly soluble material is able to be converted to chlorides and to be dissolved in the water.

The separation study of Cs from fuel debris solution by an electrocoagulation was carried out for avoiding the radiation decomposition of the ion exchange resin in the next process. Cs was successively separated from U and other elements.

The separation of U from fuel debris solution by imidazole-type anion-exchange resin was tested. Distribution coefficients of the elements to the resin were evaluated and U separation was demonstrated by the chromatography experiment. U and a few other elements were successively separated from Zr and other elements. This method will be available for U and Pu separation.

In conclusion, the technical feasibility of each chemical process was confirmed, and the total treatment system of fuel debris was embodied.

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).