

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	次世代核燃料サイクルの再処理工程におけるフェロシアン化アルミニウムを用いたPGM、Mo分離の導入による高レベル放射性廃棄物の処分負荷低減に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	三島理愛
Author(English)	Ria Mishima
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京科学大学, 報告番号:甲第360号, 授与年月日:2025年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:中瀬 正彦,松本 義久,相樂 洋,塚原 剛彦,原田 琢也
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Institute of Science Tokyo, Report number:甲第360号, Conferred date:2025/3/26, 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

論文審査の要旨及び審査員

(2000字程度)

報告番号	乙 第 号	学位申請者	三島 理愛	
論文審査員	氏 名	職 名	氏 名	職 名
	主査 中瀬 正彦	准教授	原田 琢也	准教授
	松本 義久	教授		
	相楽 洋	教授		
	塚原 剛彦	教授		

本論文は「次世代核燃料サイクルの再処理工程におけるフェロシアン化アルミニウムを用いた PGM、Mo 分離の導入による高レベル放射性廃棄物の処分負荷低減に関する研究」と題し、全5章で構成している。

第1章「緒言」では既設の再処理工場における再処理およびガラス固化の概要を述べ、高レベル放射性廃液(HLLW)からのPGM、Mo分離の重要性並びに先行研究についてまとめている。HLLWに含まれる白金族元素(PGM; Ru、Rh、Pd)とMoはガラス熔融炉の運転安定性低下、ガラス固化体の品質低下、ガラス固化体発生本数および処分場面積が増大する原因となる。そこで、本研究の目的をPGM、Mo収着能を有するシアノ基架橋型配位高分子材料であるフェロシアン化アルミニウム(AIHCF)によるバックエンドプロセスの合理化としている。

第2章「バックエンドプロセスへの適用に向けたAIHCF合成方法ならびにAIHCF硝酸溶解性の解明」ではAIHCFによるMo、PGM分離の再処理工程への適用を見据え、AIHCF合成の反応機構の考察、合成条件を変化させた際に得られるAIHCFの物性評価、元素収着性能評価を行っている。合成温度、乾燥温度、反応時間を変えた15種類の合成物は、Fe-CN-Fe骨格とFe-CN-Al骨格の混在比の違いから白色～青色を呈し、この色の違いは中間体のプルシアンホワイト(白色)とその酸化によるFe-CN-Fe骨格(青色)の形成に由来することを明らかにしている。色の違いに関わらずAIHCFの組成と収着性能は同程度であることから、再処理工程での利用では精密なFe-CN-Fe骨格とFe-CN-Al骨格の混在比制御は不要であると結論付けている。また、AIHCFはPGM、Moの同時収着性能を有するものの硝酸に溶解する挙動を明らかにしている。AIHCFの溶解に及ぼす硝酸濃度依存性は、HLLWと同程度の3、4 M付近で最も溶出量が大きくなるため、工学適用においては硝酸濃度を2 M以下とすることが有効と結論付けている。

第3章「無機収着材AIHCFによるPGM、Moの収着挙動」ではAIHCFによるPGM、Mo収着におよぼす金属イオン濃度、硝酸濃度、共存元素の影響を一元系と多元系で明らかにしている。一元系の場合、PdではAIHCFへの収着によりAIHCF構造の溶解が抑えられ、Mo、Rhでは一旦はAIHCFに収着するもののAIHCFの酸溶解にともない液相に再溶解し、RuではAIHCFに収着後、再溶解しにくいことを明らかにし、想定される反応パスと律速過程を考察している。Ru、RhはAIHCF由来のFeイオンとの共沈により液相から除去される機構も明らかにしている。以上を踏まえ、実際の軽水炉使用済燃料組成を考慮した20成分系模擬HLLWの収着試験により、各元素の収着率とAIHCFからの元素溶出量を次章のプロセス諸量評価用にまとめている。

第4章「無機収着材AIHCFを用いたPGM、Mo分離のバックエンドプロセスへの導入による高レベル廃棄物の処分負荷低減効果と適用条件の評価」では前章までの結果を用いてAIHCFによるPGM、Mo分離導入が高レベル廃棄物の処分場面積に及ぼす影響を諸量評価により解析し、AIHCFによるPGM、Mo分離プロセス導入の優位性を定量的に明らかにしている。ガラス固化体のAl含有率、PGM含有率、Mo含有率、最大発熱量といった制限を満足するAIHCF使用量は100～200 kg/tHMとなり、AIHCF使用量100 kg/tHMかつガラス固化体の廃棄物充填率を40 wt%とすることでガラス固化体発生本数は約20%にまで削減でき、さらに廃棄物をPrefabricated Engineered Barrier System Module-3 (MPEM3)方式で定置し、ガラス固化体の中間貯蔵を86年として発熱性のCs、Srを減衰させることで、処分場面積は約4 %にまで削減できることを明らかにしている。以上により、再処理工程へのAIHCF導入が処分場面積削減に及ぼす効果を定量的に示すことに成功している。

第5章「結言」では各章を総括し、AIHCFによるPGM、Mo分離により核燃料サイクルを合理化可能であると結論付けている。

これを要するに、本論文はAIHCFによるMo、PGM分離挙動を明らかにし、これを使用済み核燃料再処理に適用する範囲を定量的に示しており、合理的な核燃料サイクル構築に資するものであり、工学上および工業上貢献することが大きい。よって本論文は、博士(工学)の学位論文として十分価値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、東京科学大学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。