

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	原子炉を利用した核分裂生成物の核変換による元素資源の創製に関する研究
Title(English)	Study on creation of element resources by nuclear transmutation of fission products using nuclear reactors
著者(和文)	寺島敦仁
Author(English)	Atsunori Terashima
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10812号, 授与年月日:2018年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:千葉 敏,小原 徹,竹下 健二,片渕 竜也,相樂 洋
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10812号, Conferred date:2018/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

平成 29 年度学位論文

原子炉を利用した核分裂生成物の核変換による
元素資源の創製に関する研究

Study on creation of element resources
by nuclear transmutation of fission products using nuclear reactors

寺島 敦仁

東京工業大学 大学院理工学研究科

原子核工学専攻

要約

本論文では、核分裂生成物の核変換による元素資源の創製に関して、優先度および実現性の高い分離変換プロセスを提案し、その成立性を示すことを目的とし、原子炉を利用した核変換に係る計算機シミュレーションを中心に、必要となる要素技術に関する研究開発を実施した。まずは、40 種類の核分裂生成元素に対して、原子炉を利用した核変換による元素生成効率、生成量、生成元素の比放射能、並びにその資源価値を評価し、研究対象とすべき重要元素を選定した。次に、研究用原子炉を用いた中性子照射実験により、核分裂生成物領域における燃焼計算および評価済み核データの信頼性を評価した。それらを踏まえ、特に、ルテニウム及びロジウムの核変換によるパラジウムの創製を対象を絞り、加圧水型軽水炉を利用した核変換手法、およびクラウンエーテル樹脂を用いたパラジウムの分離回収手法を提案し、分離変換の諸量を評価した。

第 1 章「序論」では、まず、使用済み核燃料中に含まれるレアメタル元素とその分離回収を目指す先進的核燃料サイクルについて説明し、その資源利用における課題について言及した。次に、使用済み核燃料からレアメタル資源を生み出すための新たなアイデアとして核分裂生成物の核変換による元素資源の創製を提言し、その現状や今後に向けた課題について言及した。それらを踏まえ、核分裂生成物の核変換による元素資源の創製に関して、優先度および実現性の高い分離変換プロセスを提案し、その成立性を示すことを、本論文の目的とした。

第 2 章「核分裂生成物の核変換による元素資源の創製における重要元素の選定」では、核分裂生成物の核変換による元素資源の創製において、分離変換プロセスに関する要素技術の研究開発を実施していく価値のある重要元素を選定することを目的に、ORLIBJ40 を用いた簡便な解析手法により、全核分裂生成元素(40 元素)の核変換に関する諸量を網羅的に評価した。最終的に、創製された元素の生成効率、生成量、比放射能、資源価値といった観点から、ルテニウム、パラジウム、テルル、ネオジム、並びにジスプロシウムの 5 元素を、核変換による創製研究を推進すべき重要元素として選定した。その中でも特に、パラジウムを最重要元素として提唱した。

第 3 章「核分裂生成物領域における燃焼計算および評価済み核データの信頼性評価」では、核分裂生成物領域における短寿命核種の取り扱いを燃焼チェーンデータに追加した MVP-BURN による燃焼計算の妥当性確認、および当該領域における評価済み断面積データの検証を目的として、米国カリフォルニア大学アーバイン校(University of California, Irvine)の TRIGA[®]炉において中性子放射化分析実験を実施することで、放射化生成核種の原子個数

密度の実験測定値(E)を求め、さらに、MVP-BURN を用いてその実験を模擬した燃焼計算を実施することで、同物理量の計算値(C)を求め、双方の結果を比較評価した。まず、 $(C/E-1)$ 値の核種平均から、5%程度の差異で計算が実験を再現できることを確認した。その上で、 ^{153}Sm の生成量で規格化した相対的な $(C/E-1)$ 値を用いて、JENDL-4.0 における熱中性子捕獲断面積 σ_0 の評価値を補正することにより、本実験に基づく σ_0 の推定値を算出した。その結果、複数の評価済みライブラリ間での差異よりも大きな差異である 10%程度の相対的 $(C/E-1)$ 値を示した核種においても、その σ_0 の推定値は近年に得られた実験測定値をサポートしていることから、本推定手法により妥当な値を導出できたと結論付けた。

第 4 章「パラジウムの創製を目的とした加圧水型軽水炉による元素変換に関する基礎研究」では、第 2 章で最重要元素として選定したパラジウムの創製に対象を絞った上で、具体的な核変換手法を提案すること、および核変換に関する諸量を定量的に評価することを目的として、加圧水型軽水炉のバーナブルポイズン棒を利用した元素変換に関する炉物理計算を実施した。核変換ターゲットの組成を、核分裂生成物由来のルテニウム単体、ロジウム単体、並びにルテニウムとロジウムの混合物とした 3 つのケースについて、MVP-BURN を用いた燃焼計算解析を実施し、パラジウムの生成量、生成率、並びに比放射能を定量的に評価することで、核分裂生成物由来のルテニウムおよびロジウムの核変換によって、単に放射能の減衰を待つ場合と比較して、それらの資源化に要する期間を大幅に短縮することが可能となることを明らかにした。

第 5 章「パラジウムの創製を目的としたクラウンエーテル樹脂による元素分離に関する基礎研究」では、核変換で生成したパラジウムの分離回収手法を見出すことを目的とし、Benzo-15-crown-5 ether (B15C5)樹脂の持つ元素分離性能を調査した。まずは、硝酸環境下におけるルテニウム、ロジウム、並びにパラジウムの共存系に対する吸着バッチ試験より、硝酸濃度に依存せず、パラジウムは強吸着、一方、ルテニウムおよびロジウムは非吸着となることを明らかにした。続いて、吸着後のパラジウムに対する溶離バッチ試験より、溶離剤として硝酸とエチレンジアミンの混合溶液を使用することで、B15C5 樹脂に強吸着していたパラジウムを溶離することが可能となることを明らかにした。それらを踏まえ、ルテニウム、ロジウム、並びにパラジウムの共存系に対するカラムクロマト試験を実施することで、はじめに低濃度硝酸でルテニウムおよびロジウムを溶出させ、その後硝酸とエチレンジアミンの混合溶液でパラジウムを溶出させることにより、パラジウムを選択的に分離回収できることを実証した。

第 6 章「結論」では、以上の各章で得られた成果を総括し、本論文の結論をまとめた。