

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),<br>学位授与機関:東京科学大学,<br>報告番号:甲第360号,<br>授与年月日:2025年3月26日,<br>学位の種別:課程博士,<br>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),<br>Conferring organization: Institute of Science Tokyo,<br>Report number:甲第360号,<br>Conferred date:2025/3/26,<br>Degree Type:Course doctor,<br>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                                                                                                                                                                                   |

(論文博士)  
(Dissertation Doctorate)

## 論 文 要 旨 (和文2000字程度)

## Dissertation Summary (approx. 2000 characters in Japanese)

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |       |             |         |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------|-------------|---------|
| 報告番号<br>For<br>administrative<br>use only                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                | 乙 第 号 | 氏 名<br>Name | 三 島 理 愛 |
| <p>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。</p> <p>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はガラス溶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。</p> <p>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。</p> <p>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。</p> <p>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</p> |       |             |         |

有率、最大発熱量といった制限を満足するAlHCF使用量は100～200 kg/tHMとなり、AlHCF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、さらに廃棄体をPrefabricated Engineered Barrier System Module-3 (MP3)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AlHCF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、AlHCF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。

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: Dissertation summaries must be written in either of the following formats: (A) both in Japanese (approx. 2000 characters) and in English (approx. 300 words), or (B) in English (approx. 800 words).

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。

Important: Dissertation summaries will be published online on the Tokyo Tech Research Repository (T2R2). Do not include information treated as confidential under certain circumstances.

(論文博士)  
(Dissertation Doctorate)

## 論 文 要 旨 ( 英 文 ) (300語程度)

## Dissertation Summary (approx. 300 words in English)

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |          |             |       |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------|-------------|-------|
| 報告番号<br>For<br>administrative<br>use only                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              | 乙 第<br>号 | 氏 名<br>Name | 三島 理愛 |
| <p>This thesis is entitled "Research on reducing the burden of disposing of high-level radioactive waste by introducing the separation of PGM and Mo using aluminum hexacyanoferrate in the reprocessing process of the next-generation nuclear fuel cycle." This study shows the applicability of aluminum hexacyanoferrate (AIHCF), which has the capability of PGM and Mo absorption from highly acidic nitric acid, to rationalize the nuclear fuel cycle (NFC) by reducing the amount of high-level radioactive waste (HLLW).</p> <p>In Chapter 1, the system of NFC and the back-end system of reprocessing vitrification and geological disposal, as well as the importance of separating PGM and Mo from high-level radioactive liquid waste (HLLW) and the research background, were summarized.</p> <p>In Chapter 2, the synthetic condition of AIHCF was investigated by varying scale, temperature, and synthesis time. Based on the results of adsorption experiments, I concluded that precision in synthesis conditions was unnecessary. We revealed that AIHCF dissolution depends on nitric acid concentration and contact time, and finally, we concluded that the lower HNO<sub>3</sub> concentration is appropriate.</p> <p>In Chapter 3, the systematic investigation of the adsorption behavior of PGMs and Mo in single-element, double-element, and simulated HLLW with 20 elements by AIHCF with varying HNO<sub>3</sub> concentration and solid/liquid ratio was summarized.</p> <p>In Chapter 4, the AIHCF utilization condition for reducing radioactive waste and the size of disposal area was analyzed by considering Minor Actinide (MA), PGM and Mo separation from HLLW by varying the solid/liquid ratio, waste loading of vitrified waste, interim storage period, emplacement methods with considering some limits such as concentration of PGM, Mo and Al, heat emission, total radioactivity of vitrified waste, and temperature of the buffer materials based on thermal conductive calculation. It revealed that the solid/liquid ratio of 0.1 – 0.2 (kg/L) and 100 – 200 kg/tHM of AIHCF could expect the merit. The highest reduction in vitrified waste was calculated to be 1/5, and MPEM3, which accommodates 3 vitrified wastes in one PEM package, can reduce the disposal area by up to 4 % compared with no AIHCF utilization condition.</p> <p>In Chapter 5, the results and insights obtained in the chapters and conclude this thesis were summarized. We also summarize the future prospects for this study.</p> |          |             |       |

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: Dissertation summaries must be written in either of the following formats: (A) both in Japanese (approx. 2000 characters) and in English (approx. 300 words), or (B) in English (approx. 800 words).

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。Important: Dissertation summaries will be published online on the Tokyo Tech Research Repository (T2R2). Do not include information treated as confidential under certain circumstances.