

審査の結果の要旨

氏名 天本 一平

使用済酸化燃料の再処理には、ピューレックス (Purex) プロセスによる湿式法が、完成された技術として、日本を含む世界各国で採用されている。原子力を将来的にも競争力のある産業としていくためには、再処理費用のさらなる低減化も考慮に入れて、これからの軽水炉燃料サイクルの設計を行っていくべきである。湿式法の他にも、小型化することができ、二次廃棄物の発生量が少なく、かつ経済的にも有利とみなされている熔融塩電解法やフッ化物揮発法を採り入れた乾式法が、FBR 使用済燃料の再処理に適用すべく開発が進められている。

乾式法においては、使用済 MOX 燃料中のウラン (U) 及びプルトニウム (Pu) の分離精製を行うために、熔融塩電解法では目的物質の電気化学的特性を、またフッ化物揮発法ではフッ化特性と蒸気圧の違いを利用することになるが、対象物質の物性や化学的特性等がこれまでに全て明らかになっているわけではない。したがって、乾式法による再処理技術の開発を進めていくためには、基礎試験や工学規模試験を通して、必要とされるデータを取得していく必要があるが、試験に先んじて、理論的な解析を行い、各物質の挙動をある程度予測しておくことが重要である。また、過去に取得されたデータや運転実績等の知見を収集し、これら进行评估することにより、今後の技術開発に反映させていくことも必要である。加えて、構築したプロセスを実現させるためには、廃棄物の低減化の観点から、二次廃棄物の除染法についても検討しておくべきである。

本論文は、乾式法の一つであり、多くの利点を有しながら、これまで実用化に至らなかったフッ化物揮発法を用いた再処理技術 (以下、フッ化物揮発プロセス) について、文献調査や熱力学解析、構造材料の腐食についての検討、プロセスの結果として発生する放射性廃棄物の除染等に関する実験を通して、その問題点を明確化するとともに、従来法の欠点を克服した新たなプロセスの概念 (ブロックフロー) を提案したもので、全6章からなっている。

第1章の序論では、本論文の対象であるフッ化物揮発プロセスについて、研究の背景、目的及び論文の構成について述べている。

第2章はフッ化物揮発プロセスを用いた元素分離と反応装置の材料腐食を取り扱っている。まず、フッ化物揮発プロセスに関わるウラン及びプルトニウム化合物のフッ化特性について文献調査した結果を化学平衡や反応速度の観点を中心としてとりまとめるとともに、市販の熱力学計算ソフトである MALT2 を利用して各種フッ化条件における熱力学計算を行い、フッ化挙動について論じた。なお、MALT2 に収録されている熱力学量の妥当性について

は、類似のソフト (FactSage) のデータおよび文献から得られたデータと比較評価することによる事前検証を行っている。

続いて、「使用済MOX中に含まれるさまざまな超ウラン元素 (TRU) や核分裂生成物 (FP) の元素の挙動を考慮に入れておかなければウランとプルトニウムの適切な精製はできない」という背景の下に、当該温度における各物質の標準生成自由エネルギー ($\Delta_f G^0$) を基にした計算と文献調査により、関連物質の蒸気圧を考察した。さらにその結果から、フッ化物揮発プロセスにおける元素の分離限界についての議論を行っている。

さらに、ウラン転換に通常反応装置として用いられている流動床炉やフレーム炉が、フッ化物揮発プロセスにおいても採用されるものと想定されることから、実際にウラン転換に使用されたフレーム炉内部の腐食度合いや腐食機構の調査を行い、これに熱力学的な解析を加えることにより、反応装置の材料のフッ化特性について解析を行った。

第3章は「収着プロセスの分離特性とその限界」と題し、「回収ウラン転換実用化試験」において、回収ウラン中にごく微量存在するFPやTRUのフッ化特性や蒸気圧に関するデータの取得を行った結果について述べている。またその結果から、吸着プロセスにおける元素の分離限界についての議論を行っている。

第4章は「収着材及び構造材料の除染」と題し、まず、フッ化物揮発プロセスで、蒸気圧の違いを利用して対象とする物質の分離を図るため、ケミカルトラップが設けられていることを背景に、TRU放射性廃棄物等発生量低減化の観点から、破過した収着材に吸着した物質の分離・回収を行うべく、その有効性が予見される熔融塩を利用した乾式除染法について、ウラン試験により、プロセスとしての成立性を評価した。また、フッ化物揮発プロセスから発生する金属系被汚染物の除染手法として「熔融塩電解法」の利用を想定することにより、その成立性について理論解析を行い、得られた結果の妥当性について、基礎試験を実施することによりその有効性を評価している。

第5章は総合討論であり、フッ化物揮発プロセスによるウラン及びプルトニウムの分離・精製方法に関して、第2章から第4章で得られた成果をもとに、より合理的であると考えられるプロセスを構築し、TRU廃棄物等発生量の低減化も踏まえた新しいプロセス概念を提案するとともに、そのために必要とされる今後の研究開発課題を整理し、本研究のまとめとしている。

第6章は結論であり、本論文の内容を要約するとともに、本研究で得られた結論について述べている。

以上のように、本論文は、熱力学・構造材料腐食・熔融塩電気化学等の観点からフッ化物揮発プロセスについての検討を行い、その成果をもとに従来法の欠点を克服した新たなプロセスの概念を構築し、そのための今後の課題を整理したものであり、システム量子工学の進展に寄与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。