

## 審査の結果の要旨

氏名 五十嵐 幸

環境負荷が小さく資源の有効活用が可能で経済性に優れた核燃料サイクルの確立は資源小国の日本にとって非常に重要な課題である。高温化学再処理法はコンパクトなプロセスに基づく再処理施設の小型化、廃棄物発生量の低減などの特徴によってサイクルコストの低減に寄与する事が期待されており、次世代のサイクル技術として有望視されている。この方法をシステムとして確立するためには、低いUとTRUの回収率に由来する環境負荷の増大と低い資源の利用率を解決する必要がある、1) UとTRUについて可能な限り高い回収率が得られる事、2) 回収物には不純物、特に希土類元素の混入が少ない事、が要求されるが、これらを同時に実現した高温化学再処理プロセスはこれまでに充分には検討されていない。

このような状況を念頭に置き、本論文は、高温化学再処理法排出塩化物からUとTRUを高い回収率と低い不純物混入率で抽出するプロセスを検討するための解析手法を研究すること、具体的には、排出塩化物からのUとTRU抽出プロセスに関する熱力学的平衡論に基づく抽出計算方法の確立と、計算に必要な熱力学データベースの構築を行い、その成果を用いて様々な核種について抽出挙動の研究と効果的な抽出プロセスの検討を行うことを目的として行った研究の成果を取りまとめたものであり、全7章から構成されている。

第1章は序論であり、本研究の背景、目的、構成について述べている。第2章は熱力学平衡に基づく抽出計算方法について述べており、支配方程式の導出および整理を行っている。第3章では高温化学再処理に係る熱力学情報の調査と評価を行っており、抽出計算で使用する熱力学情報と物理物性値について調査と評価を行い、本研究で統一的に使用するデータベースを構築している。なお、活量係数についての値が報告されていない元素については、代替値を設定した。

第4章では抽出計算によって熱力学的非理想状態における排出塩化物からのUとTRU抽出挙動を評価した結果について述べている。抽出法はUとTRUを含む排出塩化物と還元剤を含む溶融Cdを接触させる多数回液-液抽出とし、平衡状態を仮定した熱力学的計算によって評価した。還元剤にはNdとUを対象とし、塩相に接触する還元剤を溶解させたCd相の量をパラメータとして行った。その結果、Uを還元剤とした場合もNdを還元剤とした場合もUとTRUだけを選択的に抽出出来る条件は見つからなかったが、それぞれ特徴が明らかとなり、特に、還元剤としてのUとNdの性質は相補的であることが明らかになった。

そこで、UとNdとを組み合わせた”複還元法”を案出し、計算によって抽出特性を調べた。抽出系の前段の還元剤にUを用い、後段にNdを用いる事でUとTRUの高い回収率が実

現できた。更に前段に還元剤として使用したUの未反応分が回収物に混入する事による希釈効果で、不純物濃度の低い回収物が得られる事が分かった。また、活量係数の不確実性が抽出結果に及ぼす影響を評価するため、活量係数の感度評価を実施し、影響の評価を行った。

第5章は、計算結果の妥当性を確認するために、模擬材料による抽出実験を行った結果を述べている。抽出実験は計算で用いた組成の内、主要な希土類元素とアルカリ族の塩化物で構成した模擬材料を用い、還元剤にNdを用いて行った。実験後、塩化物を分析し抽出前後の濃度変化から回収量を求めた。あわせて、抽出実験と同条件の抽出計算を行い、両者の比較を行うことにより、計算による予測が十分な妥当性を持つものであることを確認した。

第6章は、活量係数についての理論的導出についての試みを行った結果について述べている。第3章で述べたように、調査の結果、活量係数の情報が非常に少ないことが明らかになった。活量係数は熱力学情報として重要であると共に、プロセス検討のための解析手法の研究に必要であるが、十分な実験データが求められているわけではなく、またこれまで、理論的予測も行われていなかった。そこで、本章では、理論的な活量係数導出を目的として熔融塩中の金属塩化物の活量係数計算のため、分子動力学法を応用する手法を案出し試算を行った。そして、活量係数の実測値が報告されている塩化物 ( $\text{MgCl}_2$ ) について比較を行った。比較の結果、計算された塩化物の活量係数は実測値の約10倍大きな値となった。この相違を説明するため、実験状態でのイオン運動と分子動力学で想定しているイオン運動の関係を示す理論を提示した。本章の内容は、本研究の流れの中では少し異質なものであるが、今後の熔融塩化学の分野において、大きな展開が期待される分野である。

第7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、排出塩化物からのUとTRU抽出プロセスに関する熱力学的平衡論に基づく抽出計算方法の確立と、計算に必要な熱力学データベースの構築を行い、その成果を用いて様々な核種について抽出挙動の研究と効果的な抽出プロセスの検討を行ったものであり、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。