

名古屋大学工学研究科 総合エネルギー工学専攻  
エネルギー・システム工学講座

## エネルギー資源循環工学研究グループ

榎田洋一(教授), 澤田佳代(准教授), 桑原彬(助教)  
博士前期課程 6名, 学部学生 2名 (2020年度の実績)

---

### 研究分野と研究方針

#### 【概要】

原子力エネルギー利用のような大規模集中型から移動体のような小規模分散型までの様々なエネルギー利用形態におけるエネルギー資源とその利用に伴って発生する廃棄物の処理, 処分および資源循環, すなわち, 廃棄物管理についてプロセス・システム工学的観点から研究と教育を行っている。

特に, 原子力エネルギー利用に関しては, 利用に伴って発生する高レベル放射性廃棄物である使用済原子力燃料の処理, 処分および資源循環について, 現行の世界標準技術である PUREX 法再処理, ホウケイ酸ガラス固化および地層処分に係る先進技術の開発, 実証, 安全研究に加えて, 将来の原子力エネルギー・システムに整合する長期的に合理的な処理, 処分, 資源循環システムの開発, 実証, 安全研究にも取り組み始めている。すなわち, 喫緊の取り残された技術課題の解決に取り組むとともに, 将来システムの研究と教育を行うことが我々の研究グループの方針である。

また, 自動車排気ガス浄化触媒に関して, 含まれている白金族元素が世界的に極めて希少な資源であることに鑑み, 資源循環の観点から省エネルギー性と省資源性に優れた資源循環プロセスの原理実証研究に注力している。

#### 【キーワード】

原子力エネルギー・システム, プロセス・システム工学, エネルギー廃棄物管理, 省エネルギー, 省資源, 資源循環の経済的合理性, 白金族元素, エネルギー資源循環, 放射性廃棄物処理, 放射性廃棄物処分, 希少金属の資源循環, ガラス固化, ホウケイ酸ガラス, 鉛ガラス, 廃棄物・廃棄体直接転換, PUREX 法, 液液抽出, 超臨界流体抽出。

#### 【主な研究と内容】

##### (A) 高レベル放射性廃液のガラス固化

原子力燃料の資源循環に伴って発生する高レベル放射性廃液の安全は, まず, 放射性物質が漏洩しがたい固体として廃棄体がパッケージ化されることにより確保される。媒体は例外なくガラスが選定されるが, ガラスの安全な製造が現在の成熟した工業技術で十分可能であること, 製造するガラスが多少の組成変動に対してロバストであること, 製造したガラスが長期間安定であり, 特に耐水性も高いこと, がその理由である。しかし, 最近の技術経験によって, 本格的な製造の前にガラス固化体とその製造方法にかかる改善すべき点とも明らかになってきており, エネルギー工学分野における喫緊の取り残された技術課題の一

つとしての位置づけから、その本質的解決方法の提示、解決方法の学術的裏付け、工業的製造方法への反映についての研究に取り組んでいる。

#### (B) 多様な原子力エネルギー・システムに対応するバックエンド研究

将来の日本における原子力エネルギー利用の姿は、これまでの利用体系だけに拘泥することなく、安全に富んだ多様なエネルギー源として期待されている。原子力エネルギー利用に伴う資源循環と廃棄物処理・処分、すなわちバックエンドについても安全、経済的合理性、社会的受容性のすべてを満足することが求められており、新規で多様な原子力エネルギー利用体系におけるバックエンドについて、既存技術では対応できない形態の放射性廃棄物に対応する管理技術について研究テーマとして取り組んでいる。さらに新規で多様な利用体系に応じて開発された管理技術自体を中心として、既存技術の延長に決別した経済的合理性、社会的受容性に富んだ新しい時代に整合する管理体系の技術提案にも取り組んでいる。

#### (C) マルチスケール液液抽出システムの開発

原子力燃料の資源循環のためには、大規模な液液抽出法が工業的に用いられている。この技術は80年の歴史を有する成熟した技術であり、他の沈殿法やイオン交換法等の技術で代えがたい経済的合理性と廃棄物管理上の優位性を有している。一方で、液液抽出の最近の学術的発展は、高機能な新規抽出溶媒の開発研究に特化しているが、新規溶媒の採用は安全性や経済的合理性に不安がある。このため、新規溶媒に代えてナノメートル～マイクロメートル～ミリメートルの各スケールにおける物質移動現象を機能的に調整して組み合わせるマルチスケール液液抽出システムの開発研究に取り組んでいる。この手法は、実績ある既存の抽出溶媒を利用して安全性と経済的合理性を確保しながら、物質移動や溶解・抽出反応を最も適切なスケールで最適化して集中的に生起することで総合的な性能を確保する手法であり、物理的な液滴形成方法と組み合わせる研究を行っている。

#### (D) PUREX 液液抽出システムのプロセス・システム解析

現行の使用済み原子力燃料の資源循環は、第2次世界大戦直後に技術開発が行われた再処理方法が使用されており、その中心プロセスは、PUREX 液液抽出システムである。この液液抽出プロセスのプロセス・システム解析について、名古屋大学で開発した計算モデルを含む3種類のモデルを用いて、中性子臨界安全性や核不拡散性の観点からプルトニウム製品濃度のプロセス制御方法についてシミュレーション解析を行い、プロセス制御手法や最適化手法の開発を目指している。

#### (E) プラズマとレーザーを利用した放射性廃棄物の分析技術の開発

放射性廃棄物の処理処分にあたっては、環境や一般公衆の安全性を確保するため、廃棄物に含まれる放射性核種の分析が必要である。しかし、従来の市販の質量分析装置を利用した分析法は人手による緻密な作業を要するため、迅速性や遠隔性に問題がある。このため、超音速プラズマジェットやアブレーションプラズマとレーザーを利用したレーザー吸収分光法やレーザー共鳴イオン化質量分析法を駆使することで迅速性と遠隔性の両者を兼ね備える独自の分析法の開発に取り組んでいる。

## 令和2年度の研究・教育の概要

### 【高レベル放射性廃液のガラス固化】

令和2年度は、ガラス母材形態が廃棄物閉じ込め性能に及ぼす影響を調べ、より良いガラス固化プロセスを構築するための指針を得ることを目的とし、ガラス母材形状によるガラス母材自体の熔融挙動の違いの有無、および、高レベル放射性廃棄物成分閉じ込め性能への影響の観点から、廃棄物成分としての閉じ込めが特に重要なモリブデン化合物について、モリブデン酸塩のガラスへの移行挙動へのガラス母材の形状の影響を調べた。繊維状および粉末状、粒子状の3種の熔融挙動を観察した結果、三者三様の溶解挙動を示した。繊維状ガラス試料は周囲から徐々に溶けていくのに対し、粉末状ガラス試料は全体が巻き上がり、繊維状と比較して多量の気泡が残留する様子を確認した。分解によって気体を発生する硝酸ナトリウムを加えた場合、繊維状、粉末状共、気泡が抜けることによる融体上面のブクブクとした盛り上がりが複数回観察された。一方、現行ビーズと同程度のガラス粒の場合は、硝酸ナトリウムを加えた場合においても、比較的穏やかに熔融していく様子が観察された。モリブデンのガラスへの移行挙動については、モリブデン酸塩のガラスへの移行量を出発ガラス母材の比表面積で整理することで、繊維状の試料についても、粉/粒状ガラスのモリブデン酸塩の移行量と大差はないことが確認された。また、出発ガラス母材の比表面積がモリブデン酸塩の移行量に影響を及ぼすのは固体から液体に変化する熔融過程であり、周囲の温度が高く、ガラス自体が速く溶けるような場合は比表面積の影響も小さくなると考えられる。

### 【多様な原子力エネルギー・システムに対応するバックエンド研究】

令和元年度に引き続き、低レベル放射性廃棄物のガラス固化処理を中心に研究を行った。万が一、原子力発電所において東京電力福島第一原子力発電所(1F)のようなシビアアクシデントが発生した場合、汚染水処理により放射性元素を吸着したゼオライトや放射性元素を含む鉄殿物の発生が予想されるが、現状の1Fの状況でも、これらの廃棄物の処理法は決まっていない。例えば、ゼオライトに吸着しているCs137の半減期は約30年であるため、線量が1桁落ちるのに必要な期間は約100年、2桁では200年と非常に長期間安全に固化体中に放射性物質を保持している必要があり、通常の高レベル放射性廃棄物の固化に用いられているセメントの耐用年数から考えるとセメント固化での対応は困難であることが推測される。このような状況を鑑み、これらの廃棄物に対して高レベル放射性廃棄物に用いられるガラス固化の適用について検討を行った。非放射性セシウムを吸着した模擬ゼオライトを調整し、これとガラス原料を混合・熔融し、 $1 \text{ wt}\% \text{Cs}_2\text{O}-x\text{Na}_2\text{O}-10\text{B}_2\text{O}_3-y\text{Al}_2\text{O}_3-(89-x-y)\text{SiO}_2$ の5成分系の冷却速度 $1^\circ\text{C}/\text{min}$ でのガラス化可能組成領域をるつぼ規模の実験により取得したところ、令和元年度の $\text{Na}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ の単純4成分系での領域とほぼ同じであり、 $1 \text{ wt}\% \text{Cs}_2\text{O}$ 程度の添加では結晶形成には影響がないことが明らかとなった。一方、鉄殿物を対象とした $\text{Fe}_2\text{O}_3-\text{Na}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ の5成分系でのガラス化領域は、急冷条件では非常に広範囲にわたっているのに対して、冷却速度 $1^\circ\text{C}/\text{min}$ とした場合、極めて狭いことが明らかとなった。鉄殿物をガラス固化する場合は融体の冷却過程における結晶析出への注意が必要であることが示唆される。

### 【マルチスケール液液抽出システムの開発】

令和元年度に引き続き、抽出速度が非常に遅いことが知られているジ-n-ヘキシルスルフィド(DHS)によるパラジウム抽出に対して、ファインバブル装置の適用について検討を行った。令和元年度にDHSをファ

インバブル装置で塩酸水溶液中に微細化した o/W エマルションを用いることでパラジウムの抽出速度の向上が確認されており、本年度は分配比や抽出速度の温度依存性、選択性、再利用による溶媒劣化などの基礎データ取得とファインバブル装置を抽出装置の一部として組み込んだ直接抽出手法の実証を実施した。水相を 1 N 塩酸水溶液とした場合のパラジウムの分配比は約  $1 \times 10^5$  と非常に高いことが確認された。抽出速度は温度に対して増大し、抽出速度の活性化エネルギーは  $53 \text{ kJ mol}^{-1}$  と求められた。劣化に関しては、FT-IR による劣化生成物の確認を行ったが、塩酸水溶液では劣化生成物は確認されなかったのに対し、硝酸水溶液や王水と接触させた DHS では劣化生成物由来と考えられるピークが確認された。Gaussian 09 による計算結果より、DHS の硫黄が酸化され、スルホキシドもしくはスルホン基が生成したものと推測された。1 mmol dm<sup>-3</sup> のパラジウムの塩酸水溶液に対して、シェイカーによる抽出とファインバブル装置による直接抽出を比較した結果、シェイカーでは全量抽出に 30 分かかったのに対し、ファインバブル装置では溶媒の吸引にかかった 7.5 分で既に全量抽出されていることが確認され、ファインバブル装置の有用性が実証された。

#### 【プラズマ分光分析システムの開発】

令和 2 年度は、半導体レーザーを利用したストロンチウム同位体(安定同位体を使用)の簡易・迅速分析を目的とし、超音速プラズマジェット中でのストロンチウム原子を対象としたレーザー誘起蛍光測定を行った。溶液で塗布したストロンチウム溶液は、高エンタルピープラズマで気化し、蛍光スペクトルとして観測された。さらに、レーザー光をプラズマジェット中で対向させることで、存在量の最も大きい Sr88 の蛍光スペクトルを選択的に検出できることが実証された。また、ナノ秒パルスレーザーを用いた酸化アルミニウム Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のレーザーアブレーション実験を行い、レーザー共鳴イオン化質量分析の原子源としての有効性を調べた。観測されたアルミニウム原子の吸収スペクトルからサンプル近傍では、ガス温度がレーザー照射後、数マイクロ秒でおおよそ 8000 K まで上昇しており、今後、同位体の選択的イオン化には低温化が必要であることが示された。

#### 【本年度の研究成果発表の概要】

	国内会議発表	国際会議発表	国際会議予稿	学術論文
教員	2	0	0	1
学生	4	0	0	0

### 本年度の卒業論文・修士論文・博士論文のタイトル

#### 【卒業論文】

- ・汚染水処理で発生した廃ゼオライト固化のためのガラス化組成
- ・アークジェットを用いたレーザー誘起蛍光システムの検討

#### 【修士論文】

- ・ホウケイ酸ガラスへのモリブデンの溶解にガラス母材比表面積が与える影響
- ・Recovery of Palladium from Used Automotive Catalysts Using Liquid-liquid Extraction
- ・ウラン資源循環を目指す使用済み燃料ガラス固化法

## その他・特記事項

- ・ 榎田洋一, 2020 年度 日本原子力学会中部支部原子力エネルギー・システム研究委員会主査
- ・ 榎田洋一, 2020 年度 原子力規制委員会核燃料安全審査会審査委員
- ・ 榎田洋一, 2020 年度 原子力規制委員会技術評価検討会委員