

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4名、学部3名(2021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。

【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、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、ガラス固化、ホウケイ酸ガラス、PUREX 法、液液抽出、残余のリスク

【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物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) PUREX 法の残余のリスクに係る研究

原子力燃料のエネルギー資源としての優位性の一つは、技術的に資源循環が可能であることであり、成熟した世界標準技術として、米国で開発された PUREX 法が広く商業規模で用いられている。一方で長い使用実績の間に多数の事故事象も経験しており、その安全対策の蓄積によって、資源循環に伴うリスクの最小化が進展している。一方で、リスクは原理的にゼロにすることはできないため、残余のリスクの検討が重要である。最近の実例では、英国の施設で発生した検知が困難である微少なプロセス量変化による臨界接近事例や露国や米国の施設で発生した発熱性有機分解生成物の蓄積に伴う熱暴走反応のリスクが相対的に大きいと考えられる。これらの事象の解析評価とあるべき発生検知水準の科学的推定についての研究に取り組んでいる。

(D) 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。

2021 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 3 年度はイエローフェーズ形成抑制を目的とした繊維とガラス粒子からなる固化母材の調整を試みた。ガラス熔融炉内で、廃液が仮称される際にモリブデンがアルカリもしくはアルカリ土類元素と結合し、モリブデン酸塩が形成し、この塩のホウケイ酸ガラスへの溶解が遅く、かつ溶解度も限られているため、熔融炉内でガラスとは別相(イエローフェーズ)を形成してしまう。そこでモリブデン酸塩の形成を抑制するため、廃液が分散しやすい形態である繊維にモリブデンを溶解しやすい粒子を分散させた固化母材の調整を試みることにした。具体的には繊維としてシリカウール、ガラス粒子として過去の実験からモリブデンを溶解しやすいと考えられる $15 \text{ wt}\% \text{Na}_2\text{O}-21 \text{B}_2\text{O}_3-64 \text{SiO}_2$ の組成のガラスを対象とした。

まずは対象ガラスのモリブデンの溶解度を調べたところ、現行の固化体組成を3成分系とした15 wt%Na₂O-38B₂O₃-47SiO₂の基準組成は酸化物換算で2.2 wt%であったのに対し、15 wt%Na₂O-21B₂O₃-64SiO₂では6.5 wt%とモリブデンの溶解度が約3倍であることが確認された。

次にシリカウールへの分散方法について検討し、熱したシリカウールにガラス粉末を振り掛けることでシリカウール:ガラス=1:4(重量比)の重量0.5 g直径3 cm程度の球状固化母材を調整した。実際にこの母材を用いてモリブデン酸ナトリウムの3 N硝酸水溶液の固化を試みたが、残念ながら、ホットプレートで蒸発乾固させる際に時間がかかってしまい、分散させたガラスが硝酸によって溶解し、ウールと分離してしまったため、実験方法やガラス組成を再検討する必要があることが明らかとなった。

一方、先述の溶解度を調べる実験の際に、当初は白金るつぼではなく、安価なアルミなるつぼを用いていたところ、対象ガラス(15 wt%Na₂O-21B₂O₃-64SiO₂)のモリブデンの溶解量が高くなる傾向がみられ、仕込み値で14 wt%以上であることが確認された。るつぼからのアルミナの混入により溶解度が上昇したものと推測される。今後、アルミナの影響について調べる予定である。

【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3年度も引き続き、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、通常の低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ている。前年度である令和2年度は、廃棄物とガラス原料を溶融した後の冷却過程における結晶形成に着目し、結晶形成組成を明らかとした。令和3年度はガラスの浸出率を測定し、適用性について検討を行った。冷却速度1°C/minの28Na₂O-16Al₂O₃-56SiO₂のネフェリンの微小結晶が析出したガラス試料に対して、米国で採用されている浸出試験(Product Consistency Test, PCT)を実施したところ、ハンフォードサイトで採用される基準値を上回る浸出率となった。この条件に対し、耐浸出性の向上のためのジルコニアを0.5 wt%添加することで基準値を下回ることができた。

【PUREX法の残余のリスクに係る研究】

令和2年度までに実施してきたPUREX液液抽出プロセスの解析に係る成果を利用して、年800トン処理規模の再処理施設におけるプルトニウム蓄積現象の評価研究を実施し、溶媒供給量の減少に伴う長時間にわたる検知し難い緩慢な蓄積現象の生起条件の整理に関する数理モデルの試構築を行った。

【プラズマ分光分析システムの開発】

令和3年度は、レーザー共鳴イオン化質量分析の原子源として、レーザーアブレーションと誘電体バリア放電プラズマに関する研究を行った。

レーザーアブレーションについては、ナノ秒パルスレーザーを用いた酸化アルミニウム Al_2O_3 のレーザーアブレーション実験を行い、原子化したアルミニウム原子の吸収スペクトルを取得した。観測されたスペクトルから、サンプル面と水平方向に膨張する原子に起因したスペクトルの分裂が確認された。これらの原子は、原子化したアルミニウム原子の約 40%を占め、イオン化部に到達せず、そのまま排気されることを明らかにした。今後、オリフィス又はノズルを用いて損失を減らす実験的検討を実施する予定である。

次に、誘電体バリア放電プラズマについては、安価な高圧交流電源 (10 kV・10 kHz) を利用したプラズマ装置を開発し、プラズマの着火条件 (放電管の径・ガス流量) を調査した。また、 CO_2 レーザーを用いたヘテロダインレーザー干渉計を構築し、電子密度計測を行った。その結果、放電管出口付近で 10^{22} m^{-3} 程度の電子が生成されていること、プラズマが照射された金属材料表面付近では、フリーストリームと比べ電子密度が 2 倍程度増加することが確認された。今後、低圧下でのプラズマ生成と電子密度計測を実施する予定である。

【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 | 3 | 3 | 3 | 3 |
| 学生 | 6 | 0 | 0 | 0 |

(※ 毎年 3 月末に、その年度の教員及び大学院生の研究業績について、工学研究科事務からとりまとめの依頼がある。その内容を使用することで、この表を容易に作成することが可能。予稿と学術論文については、共著が多いと思われるが、ダブルカウントしないこととする。)

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】

- ・原子力燃料再処理での液液抽出プロセスにおける核燃料物質蓄積に関する研究
- ・セシウム吸着ゼオライトのガラス固化体の浸出性について
- ・高真空下におけるアブレーションプラズマのレーザー吸収分光についての研究

【修士論文】

- ・燃料デブリ廃棄へ向けたステンレス鋼の鉛ホウ酸ガラスによる固化
- ・ガラス固化における結晶生成に関する研究
- ・高レベルガラス固化体製造時のイエローフェーズ形成抑制のためのガラス母材に関する研究

その他・特記事項

- ・榎田洋一, 2021 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, 2021 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, 2021 年度 原子力安全研究協会, 核燃料サイクル安全性の自主的取組みに関する調査研究委員会委員
- ・榎田洋一, 2021 年度 電力中央研究所 再処理施設運転管理技術データサイエンス研究委員会主査