(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第7350223号
(P7350223)
(45)発行日　令和5年9月26日(2023.9.26)　(24)登録日　令和5年9月15日(2023.9.15)

(51)Int.Cl.			FI		
G21F 9/30	*(2006.01)*		G21F	9/30	561F
G21F 9/32	*(2006.01)*		G21F	9/32	A
G21F 9/28	*(2006.01)*		G21F	9/28	521A
G21F 9/10	*(2006.01)*		G21F	9/10	B

請求項の数 4　(全 11 頁)

(21)出願番号　特願2019-149027(P2019-149027)
(22)出願日　令和1年8月15日(2019.8.15)
(65)公開番号　特開2021-32570(P2021-32570A)
(43)公開日　令和3年3月1日(2021.3.1)
審査請求日　令和4年6月7日(2022.6.7)

(73)特許権者　505374783
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
茨城県那珂郡東海村大字舟石川765番地1
(74)代理人　100139114
弁理士　田中　貞嗣
(74)代理人　100139103
弁理士　小山　卓志
(74)代理人　100214260
弁理士　相羽　昌孝
(74)代理人
片寄　武彦

最終頁に続く

(54)【発明の名称】放射性アルミニウム廃棄物処理方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

放射性アルミニウム廃棄物に含まれるアルミニウムを酸化アルミニウムに変換する放射性アルミニウム廃棄物処理方法であって、

放射性アルミニウム廃棄物を、アルカリ金属の水酸化物の水溶液で溶解し、不純物を沈殿させる溶解工程と、

前記溶解工程で得られた溶液を、固液分離し不純物を除去する第1固液分離工程と、

前記第1固液分離工程で得られた溶液に酸性水溶液として塩酸、硫酸、又は硝酸を添加し、水酸化アルミニウムを主成分とする固体を沈殿させる中和工程と、

前記中和工程で得られた溶液を、固液分離し固体を得る第2固液分離工程と、を含むことを特徴とする放射性アルミニウム廃棄物処理方法。

【請求項2】

前記第2固液分離工程で得られた固体を焼成する焼成工程と、を含むことを特徴とする請求項1に記載の放射性アルミニウム廃棄物処理方法。

【請求項3】

前記焼成工程を実施する前に、前記第2固液分離工程で得られた固体を水で洗浄する洗浄工程をさらに含むことを特徴とする請求項2に記載の放射性アルミニウム廃棄物処理方法。

【請求項4】

前記焼成工程を300℃以上で実施することを特徴とする請求項2又は請求項3に記載の

放射性アルミニウム廃棄物処理方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、放射性アルミニウム廃棄物に含まれるアルミニウムを酸化アルミニウムに変換する放射性アルミニウム廃棄物処理方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
発電用原子炉や試験研究炉等の原子力施設においては、例えば中性子反射体としてアルミニウムを材料とした部材が使用されている。原子力施設が廃止措置となる場合、このようなアルミニウム製の部材を放射性アルミニウム廃棄物として処分する方法には、地中に埋設して処分することを挙げることができる。
【０００３】
一方、アルミニウムは反応性が高いことから、放射性アルミニウム廃棄物をそのまま埋設処分することはできない。そこで、例えば、特許文献１（特開平１０－２２１４９３号公報）には、放射性アルミニウム廃棄物をアルカリ性溶液で溶解して水酸化アルミニウムの沈殿物として回収し、当該沈殿物をドラム缶に入れコンクリート等を充填し固化体とした上で、埋設処分することが提案されている。
【特許文献１】特開平１０－２２１４９３号公報
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００４】
金属アルミニウムは化学的に安定ではなく、コンクリートを構成するアルカリ性物質と反応し水素が発生してしまい、廃棄体（固化体）形成時にドラム缶の内圧が上昇するや内容物がドラム缶から溢れ出す等の固化体の健全性に影響する。また、特許文献１に記載の従来技術において沈殿物として回収される水酸化アルミニウムは、コンクリートの劣化要因であるアルカリ骨材反応を抑制する混和材を用いての固化が想定されているが、その使用量を超えた場合にはコンクリートの圧縮強度や中性化に影響する。このようなことから、現在、放射性アルミニウム廃棄物は難廃棄体として分類され、固化体の作製が行われず管理区域内に保管されているのが現状である。
【０００５】
放射性廃棄物を埋設により処分を行うためには、ドラム缶内で化学反応を起こさないように、放射性アルミニウム廃棄物を安定的なアルミニウム化合物とする必要があるが、従来このような提案がなされておらず問題であった。
【０００６】
また、放射性アルミニウム廃棄物を埋設処分する際には、当該廃棄物が最大放射能濃度を超えないようにすることも要請される。
【０００７】
発電用原子炉や試験研究炉等の部材として用いられるアルミニウム材には、その強度を増すためなどに鉄や銅が添加されている。アルミニウム材中の鉄や銅は、原子炉等で利用される過程で中性子による照射を受け、Ｆｅ－５９やＣｏ－６０など放射線源となる核種に変換される。放射性アルミニウム廃棄物を埋設する上で放射能濃度を抑制するため、これらの核種が除去されることが好ましいが、これまでにこれらの核種を除去する技術は提案されておらず問題であった。
【０００８】
また、アルミニウム材には極微量のウランが含まれていることが知られている。このような極微量のウランは、中性子の照射を受けることで、核分裂生成物（ＦＰ）や超ウラン元素（ＴＲＵ）が生成する。これらＦＰやＴＲＵは、揮発性、準揮発性及び非揮発性のものに分けられるが、放射性アルミニウム廃棄物を処理・処分するためには、これらの核種の放射能濃度をできるだけ低減することが必要である。例えば、ウランの核分裂により、

準揮発性で数十年の半減期を持つＳｒ－９０やＣｓ－１３７、非揮発性で長半減期核種であるＴｃ－９９などが生成される。放射性アルミニウム廃棄物を埋設する上では、このようなＳｒ－９０、Ｃｓ－１３７やＴｃ－９９も除去されることが好ましいが、これまでに当該核種を除去する技術は提案されておらず問題であった。

【課題を解決するための手段】

【０００９】

上記のような問題点を解決するために、本発明に係るアルミニウム廃棄物処理方法は、放射性アルミニウム廃棄物に含まれるアルミニウムを酸化アルミニウムに変換する放射性アルミニウム廃棄物処理方法であって、放射性アルミニウム廃棄物を、アルカリ金属の水酸化物の水溶液で溶解し、不純物を沈殿させる溶解工程と、前記溶解工程で得られた溶液を、固液分離し不純物を除去する第１固液分離工程と、前記第１固液分離工程で得られた溶液に酸性水溶液として塩酸、硫酸、又は硝酸を添加し、水酸化アルミニウムを主成分とする固体を沈殿させる中和工程と、前記中和工程で得られた溶液を、固液分離し固体を得る第２固液分離工程と、を含むことを特徴とする。

また、本発明に係るアルミニウム廃棄物処理方法は、前記第２固液分離工程で得られた固体を焼成する焼成工程と、を含むことを特徴とする。

【００１０】

また、本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法は、前記焼成工程を実施する前に、前記第２固液分離工程で得られた固体を水で洗浄する洗浄工程をさらに含むことを特徴とする。

【００１１】

また、本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法は、前記焼成工程を３００℃以上で実施することを特徴とする。

【発明の効果】

【００１２】

本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法は、第２固液分離工程で得られた固体を焼成する焼成工程を有しており、このような本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法によれば、放射性アルミニウム廃棄物に含まれるアルミニウムを、化学的に安定である酸化アルミニウムに変換することができ、ドラム缶内にコンクリート等と共に封入し固化体となし、埋設処分することが可能となる。

【００１３】

また、本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法は、溶解工程で得られた溶液を、固液分離し不純物を除去する第１固液分離工程を有しており、このような本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法によれば、Ｆｅ－５９やＣｏ－６０など放射線源となる核種を除去でき、放射能濃度を抑制することが可能となり、埋設処分のための管理を容易とすることができる。

【００１４】

また、本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法は、中和工程で得られた溶液を、固液分離し固体を得る第２固液分離工程を有しており、このような本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法によれば、準揮発性のＳｒ－９０、Ｃｓ－１３７や長半減期核種であるＴｃ－９９などを除去でき、放射能濃度を抑制することが可能となり、埋設処分のための管理を容易とすることができる。

【００１５】

本発明は、放射性アルミニウム廃棄物を湿式法により化学的に安定な酸化アルミニウム（アルミナ）に変換するものである。このように、放射性アルミニウム廃棄物を化学的に安定な酸化アルミニウム（アルミナ）とすることを安定化処理と称する。

【００１６】

本発明では、放射性アルミニウム廃棄物を安定化処理し、安定化処理した固化体がコンクリート等と反応せず、かつ放射性アルミニウム廃棄物中の放射性同位元素を除去・低減させることで、廃棄体の作製を容易とし、廃棄体を安全に管理することを可能とした。

【図面の簡単な説明】
【００１７】
【図１】本発明の実施形態に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法の各工程のフローの一例を模式的に示す図である。
【図２】アルミニウム合金（Ａ６０６１）の化学成分を示す図である。
【図３】アルミニウム合金（Ａ６０６１）の照射済み試験片の放射能測定結果を示す図である。
【図４】第１固液分離工程Ｓ２で分離された固体の不純物の放射能測定結果を示す図である。
【図５】第１固液分離工程Ｓ２で分離された液体（不純物除去液）の放射能測定結果を示す図である。
【図６】第２固液分離工程Ｓ４で分離された液体（中和濾液）の放射能測定結果を示す図である。
【発明を実施するための形態】
【００１８】
以下、本発明の実施の形態を図面を参照しつつ説明する。図１は本発明の実施形態に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法の各工程のフローの一例を模式的に示す図である。本発明は、発電用原子炉や試験研究炉等の原子力施設で使用済みの放射性アルミニウム廃棄物に含まれるアルミニウムを化学的に安定な酸化アルミニウム（アルミナ）に変換する放射性アルミニウム廃棄物処理方法である。
【００１９】
ここで、本明細書において、「放射性アルミニウム廃棄物」は、発電用原子炉や試験研究炉等の原子力施設で既に用いられ、中性子による照射を受けた部材であり、アルミニウムを主材料とするものである。また、本明細書において「アルミニウム」には、純粋な金属アルミニウム、及び、それに対して他の金属が添加されたアルミニウム合金が含まれるものとする。
【００２０】
すなわち、本明細書における「アルミニウム」には、意図的に添加された鉄や銅などを含有するアルミニウム合金がその範疇に入る。また、本明細書における「アルミニウム」には、極微量のウラン等を含有するものもその範疇に入る。なお、アルミニウム合金中の鉄や銅などが、アルミニウム合金から分離された場合には、鉄や銅を「不純物」と称する。
【００２１】
本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法は、湿式法により放射性アルミニウム廃棄物を溶解し、金属アルミニウムとそれに含まれる放射性同位元素を分離する。続いて、中性化処理により、アルミニウム成分を沈殿させ、それを焼成することにより、安定な酸化アルミニウム（アルミナ）とする工程を基本としている。
【００２２】
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構においては、材料試験炉としてＪＭＴＲ(Japan Materials Testing Reactor）を運営している。このＪＭＴＲは、発電用軽水炉燃料や材料の照射試験を中心に、新型転換炉、高速炉、高温ガス炉、核融合炉などの燃料・材料の照射試験に広く利用されてきた。
【００２３】
ＪＭＴＲの炉心構造物には、ステンレス鋼の他、中性子反射体として、アルミニウム製の部材が使用されている。ＪＭＴＲは廃止措置の方針が決定しており、その炉心で用いられていた当該アルミニウム製の部材は、適切に廃棄処分される必要がある。
【００２４】
図１における放射性アルミニウム廃棄物は、例えば、上記のようなアルミニウム製の部材を想定している。本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法では、工程Ｓ１において、このような放射性アルミニウム廃棄物をアルカリ金属の水酸化物の水溶液に溶解す

る。

【００２５】

代表的なアルカリ金属の水酸化物としては、水酸化ナトリウム（ＮａＯＨ）を挙げることができる。また、他のアルカリ金属の水酸化物としては、水酸化カリウム（ＫＯＨ）を挙げることができる。

【００２６】

なお、このような溶解工程Ｓ１を実施する前段の工程として、放射性アルミニウム廃棄物を粉砕する工程を設けることも好ましい。このような粉砕工程では、機械粉砕を用いることができる。

【００２７】

溶解工程Ｓ１で、例えば水酸化ナトリウムを用いてアルミニウムを溶解させると、アルミン酸ナトリウム（Ｎａ［Ａｌ（ＯＨ）$_4$］）が反応式（１）に示すように生成される。

$2Al + 2NaOH + 6H_2O \rightarrow 2Na[Al(OH)_4] + 3H_2$・・・（１）

溶解工程Ｓ１を経ると、放射性アルミニウム廃棄物を構成するアルミニウムは溶解し液体となり、放射性アルミニウム廃棄物から分離した不純物が沈殿した状態となる。

【００２８】

続く工程Ｓ２においては、溶解工程Ｓ１で得られた溶液に対して、第１固液分離工程を実施することで、前記の不純物を除去する。第１固液分離工程Ｓ２で用いる方法としては、濾過を挙げることができるが、その他の固液分離法も適宜用いることができる。

【００２９】

第１固液分離工程Ｓ２で除去される不純物には、Ｆｅ－５９やＣｏ－６０などが含まれており、本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法によれば、Ｆｅ－５９やＣｏ－６０など放射線源となる核種を除去でき、またＴＲＵはアルカリと反応すると沈殿物を生成するまたは加水分解をするので同様に除去でき、放射能濃度を抑制することが可能となり、埋設処分を行うことができるようになる。

【００３０】

次の工程Ｓ３は中和工程であり、この工程においては、第１固液分離工程Ｓ２で得られた溶液に酸性水溶液を添加し、水酸化アルミニウムを主成分とする固体を沈殿させる。代表的には、酸性水溶液として塩酸（ＨＣｌ）を用いることができる。また、この工程では他の酸性水溶液として、硫酸（H_2SO_4）、硝酸（HNO_3）なども用い得る。

【００３１】

中和工程Ｓ３で水酸化アルミニウムはゲル状である。この水酸化アルミニウムは中和によって生成される塩化ナトリウムはゲル状水酸化アルミニウムに内包される。中和工程Ｓ３で発生する反応は、式（２）によって現すことができる。

$Na[Al(OH)_4] + HCl \rightarrow Al(OH)_3 + NaCl + H_2O$・・・（２）

続く工程Ｓ４においては、中和工程Ｓ３で得られた溶液に対して、第２固液分離工程を実施する。第２固液分離工程Ｓ４で用いる方法としては、濾過を挙げることができるが、その他の固液分離法も適宜用いることができる。

【００３２】

第２固液分離工程Ｓ４によって固液分離された液体側には、Ｓｒ－９０、Ｃｓ－１３７やＴｃ－９９などが含まれている。このため、本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法によれば、準揮発性のＳｒ－９０、Ｃｓ－１３７や長半減期核種であるＴｃ－９９などを除去でき、放射能濃度を抑制することが可能となり、埋設処分のための管理が容易となる。

【００３３】

続く工程Ｓ５においては、第２固液分離工程Ｓ４で得られた固体を水で洗浄する洗浄する。この洗浄工程Ｓ５は、脱塩を行うことが目的である。洗浄工程Ｓ５の際には、前記固体を乾燥させることが好ましい。ただし、Ｓ６の焼成工程を１０００℃以上で実施する場合には、塩化ナトリウムは揮発するので洗浄工程Ｓ５を必ずしも実施する必要はない。

【００３４】

焼成工程Ｓ６では、第２固液分離工程Ｓ４で得られた固体、又は、洗浄工程Ｓ５を経た固体に対して焼成が行われる。このような焼成工程Ｓ６における反応は、（３）によって示すことができる。

$2Al(OH)_3 \rightarrow Al_2O_3 + H_2O$ ・・・（３）

本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法は、第２固液分離工程Ｓ４で得られた固体を焼成する焼成工程Ｓ６を有しており、このような本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法によれば、放射性アルミニウム廃棄物に含まれるアルミニウムを、化学的に安定である酸化アルミニウムに変換することができ、ドラム缶内にコンクリート等と共に封入し固化体となし、埋設処分することが可能となる。

【００３５】

また、本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法は、溶解工程Ｓ１で得られた溶液を、固液分離し不純物を除去する第１固液分離工程Ｓ２を有しており、このような本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法によれば、Ｆｅ－５９やＣｏ－６０など放射線源となる核種を除去でき、放射能濃度を抑制することが可能となり、埋設処分のための管理が容易となる。

【００３６】

また、本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物処理方法は、中和工程Ｓ３で得られた溶液を、固液分離し固体を得る第２固液分離工程Ｓ４を有しており、このような本発明に係る放射性アルミニウム廃棄物方法によれば、準揮発性のＳｒ－９０、Ｃｓ－１３７や長半減期核種であるＴｃ－９９などを除去でき、放射能濃度を抑制することが可能となり、埋設処分のための管理が容易となる。

【実施例】

【００３７】

試料片として、アルミニウム合金であるＡ６０６１を用いた。図２にＡ６０６１の化学成分を示す。このようなアルミニウム合金に対して京大炉で照射を行った。これにより、放射性アルミニウム廃棄物を模擬する照射済みアルミニウム合金（Ａ６０６１）の試験片を得た。試験片の形状は、１０ｍｍ×１０ｍｍ×２ｍｍであった。

【００３８】

また、照射条件は、熱中性子束2.8×10^{13}［ｎ／ｃｍ^2／ｓ］、照射時間２０分、冷却時間４日であった。

【００３９】

また、図３はアルミニウム合金（Ａ６０６１）の照射済み試験片の放射能測定結果を示す図である。本実施例における全ての放射能測定では、ゲルマニウム半導体検出器（キャンベラ製）を用いた。

【００４０】

図３の放射能測定結果から、アルミニウム合金（Ａ６０６１）の照射済み試験片には、Ｔｃ－９９ｍ、Ｃｒ－５１、Ｓｒ－８５、Ｍｎ－５４、Ｆｅ－５９、Ｃｏ－６０、Ｃｕ－６４、Ｎａ－２４、Ｌａ－１４０などの核種が含まれることがわかる。

【００４１】

ここで、検出されたＴｃ－９９ｍ、Ｓｒ－８５、Ｌａ－１４０はウランの核分裂核種であると考えられ、長期に使用されたアルミニウム製の中性子反射体にはＴｃ－９９ｍの崩壊によるＴｃ－９９、Ｓｒ－９０、Ｃｓ－１３７などの長寿命核種やＴＲＵが存在することとなる。また、Ｃｒ－５１、Ｍｎ－５４、Ｆｅ－５９、Ｃｏ－６０、Ｃｕ－６４、Ｎａ－２４などは、アルミニウム自体、或いはアルミニウムを合金化するために添加された金属に由来すると考えられる核種である。

<u>溶解工程Ｓ１</u>

アルミニウム合金（Ａ６０６１）の照射済み試験片の溶解には、水酸化ナトリウム溶液を使用した。濃度は３～６Ｍ程度で十分照射済み試験片を溶解することが可能であった。

【００４２】

溶解時間を短縮するためには、水酸化ナトリウム溶液が沸騰しない６０℃以下程度まで

水酸化ナトリウム溶液を昇温した上で、溶解工程を実施すると効果的であることを確認した。

【００４３】

溶解後、照射済み試験片中に含まれている固体の不純物は溶液中に残留した。溶解工程で得られた溶液は、黒色であった。

第１固液分離工程Ｓ２

第１固液分離工程Ｓ２として、溶解工程で得られた溶液に対して、濾過によって不純物の除去を行った。濾過によって不純物を除去した液体側を、不純物除去液と称する。濾過によって除去した不純物が乾燥により褐色や灰色となった。

【００４４】

図４に、第１固液分離工程Ｓ２で分離された固体の不純物の放射能測定結果を示す。不純物側においては、Ｃｒ－５１、Ｍｎ－５４、Ｆｅ－５９、Ｃｏ－６０、Ｃｕ－６４、Ｌａ－１４０などの核種を確認することできる。

【００４５】

このように、溶解工程Ｓ１で得られた溶液を、固液分離し不純物を除去する第１固液分離工程Ｓ２により、Ｃｒ－５１、Ｍｎ－５４、Ｆｅ－５９、Ｃｏ－６０、Ｃｕ－６４、Ｌａ－１４０など放射線源となる核種を除去でき、放射能濃度を抑制することが可能である。

【００４６】

図５に第１固液分離工程Ｓ２で分離された液体（不純物除去液）の放射能測定結果を示す。不純物除去液においては、Ｔｃ－９９ｍ、Ｃｒ－５１、Ｓｒ－８５、Ｍｎ－５４、Ｎａ－２４などの核種が確認できた。

中和工程Ｓ３

本工程においては、第１固液分離工程Ｓ２で分離された液体（不純物除去液）に対して、塩酸を添加することによりアルミン塩酸から水酸化アルミニウムを生成する。不純物除去液に塩酸を加える際には、撹拌しながら塩酸を加えた。中和工程Ｓ３で生成される水酸化アルミニウムはゲル状であった。

第２固液分離工程Ｓ４

第２固液分離工程Ｓ４として、中和工程Ｓ３で得られた溶液に対して、濾過によって不純物の除去を行った。

【００４７】

濾過によって得られる水酸化アルミニウムには、中和によって生成される塩化ナトリウムが、ゲル状の水酸化アルミニウムに内包されるため、洗浄工程Ｓ５を実施する場合には、一度乾燥させる。乾燥は５０℃の恒温槽にて行った。ゲル状水酸化アルミニウムから水分が抜けるまで十分長い時間乾燥を行った。

【００４８】

また、第２固液分離工程Ｓ４による濾過によって、水酸化アルミニウムを除去した液体側について、放射能測定を実施した。図６に第２固液分離工程Ｓ４で分離された液体（中和濾液）の放射能測定結果を示す。中和濾液においては、Ｔｃ－９９ｍ、Ｎａ－２４などの核種が確認できた。

【００４９】

このように第２固液分離工程Ｓ４で分離される液体（中和濾液）には、長半減期核種であるＴｃ－９９などが含まれており、水酸化アルミニウム側からはＴｃ－９９ｍなどを除去でき、放射能濃度を抑制することが可能である。

【００５０】

なお、図５及び図６の放射能測定結果から、Ｃｒ－５１、Ｓｒ－８５、Ｍｎ－５４は液体中に溶解しており、本分離工程で除去が可能である。ここで、Ｓｒ－８５の除去性能から、ストロンチウムの同位体である半減期が２８.８年であるＳｒ－９０の除去も可能であることが明らかとなった。一方、第２固液分離工程Ｓ４で分離される固体（主にＡｌ

O_3、ＮａＣｌ）側には、一部Ｃｒ－５１、Ｓｒ－８５、Ｍｎ－５４が残留することが予想されるが、本工程でのこれらの核種の残留率は、１／１０以下であることを確認している。さらに、分離された固体（主にAl_2O_3、ＮａＣｌ）を洗浄することにより、これらの核種が除去されることも予想される。

【００５１】

乾燥させた水酸化アルミニウムの固体物について、Ｘ線回折の測定を行った結果、バイヤライト系水酸化アルミニウムと、塩化ナトリウムとが検出された。着目しているセシウムについては、ナトリウムと同じアルカリ金属であり、化学的挙動がナトリウムとほぼ同じであることから、中和により、塩化セシウム（ＣｓＣｌ）が検出されるものと予想される。

洗浄工程Ｓ５

第２固液分離工程Ｓ４で得られた水酸化アルミニウムを主成分とする固体に対して、洗浄工程Ｓ５を実施した。洗浄を行う前段に、当該固体を粉砕すると好ましい。洗浄はイオン交換水等の純水を用いて行った。水酸化アルミニウムは水に対して不溶性であるので、洗浄によってアルミニウムが溶出することはないと考えられる。

焼成工程Ｓ６

洗浄工程Ｓ５で洗浄した水酸化アルミニウムを４００～１０００℃にて焼成する。焼成工程Ｓ６においては、焼成温度を上昇させていくことに伴い、２００～３００℃付近にて、反応式（３）に示すように水酸化アルミニウムの脱水が起こり、化学的に安定である酸化アルミニウム（アルミナ）が生成される。

【００５２】

脱水後の昇温に伴い、酸化アルミニウム（アルミナ）は、アモルファス状の遷移酸化アルミニウム（アルミナ）となる。さらに３００℃～１０００℃の温度範囲で焼成されると結晶性の酸化アルミニウム（アルミナ）にすることができる。さらに、８００℃以上で焼成することにより、生成した酸化アルミニウム（アルミナ）から塩化ナトリウムを除去することができるようになる。

【００５３】

塩化ナトリウムの融点は８００℃であり、液体になると揮発性をもつことが知られている。焼成温度８００℃にて塩化ナトリウムの揮発が起こる。従って８００℃以上で焼成すると塩化ナトリウムは除去できる。

【００５４】

酸化アルミニウム（アルミナ）に塩化ナトリウムが残留している場合には、より好ましくは、１０００℃にて焼成することで除去する。本実施例では、１０００℃にて焼成することで、塩化ナトリウムを排した、酸化アルミニウム（アルミナ）を回収した。

【００５５】

このように、塩化ナトリウムとほぼ同じ化学的性質を持つ塩化セシウムの除去も可能であることが分かり、Ｃｓ－１３７の除去の可能性も見出すことができた。

【００５６】

以上のような実施例から、放射性アルミニウム廃棄物を模擬する照射済み試験片を、アルカリ溶液と反応させて、水素ガスを発生させながら溶解し、溶解液を中和し得られた沈殿物を焼成して酸化アルミニウムに変換することが確認できた。このように変換された酸化アルミニウムは固化剤と混合しコンクリート固化しても水素ガスが発生しないものである。

【００５７】

また、本発明では、溶解工程Ｓ１後に、溶解液に放射性アルミニウム廃棄物中に含有する放射化不純物が不溶化物質として除去されることで、放射線源となる核種を除去できる。実施例では、第１固液分離工程Ｓ２により、Ｃｒ－５１、Ｍｎ－５４、Ｆｅ－５９、Ｃｏ－６０、Ｃｕ－６４、Ｌａ－１４０などの核種の除去が確認できた。

【００５８】

また、本発明では、中和工程Ｓ３の後、放射化不純が溶液側に残留することを利用して

、放射線源となる核種を除去できる。実施例では、第２固液分離工程Ｓ４により、Ｔｃ－９９ｍ、Ｎａ－２４などの核種の除去が確認できた。

【符号の説明】

【００５９】

Ｓ１・・・溶解工程

Ｓ２・・・第１固液分離工程

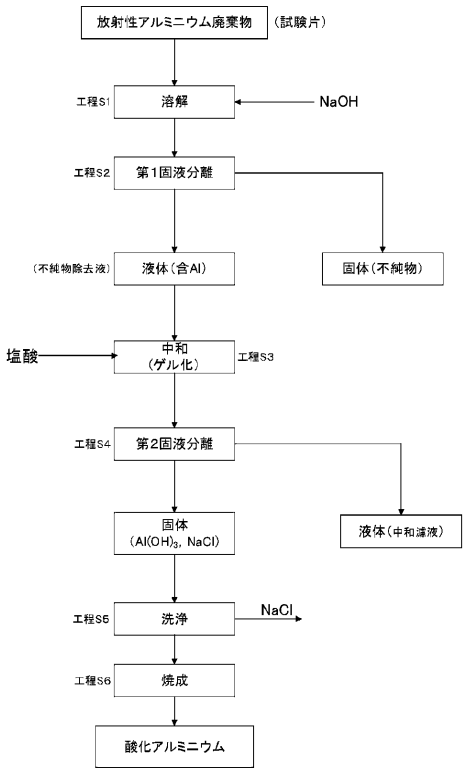
Ｓ３・・・中和工程

Ｓ４・・・第２固液分離工程

Ｓ５・・・洗浄工程

Ｓ６・・・焼成工程

【図１】

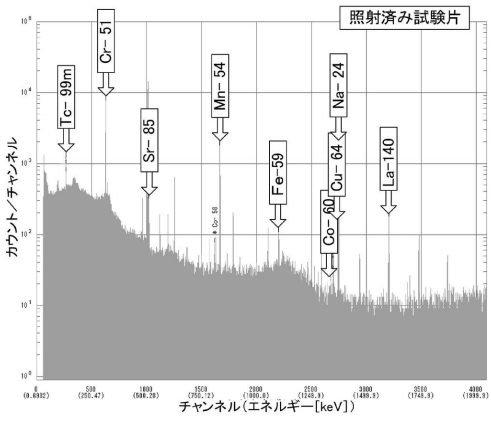


【図２】

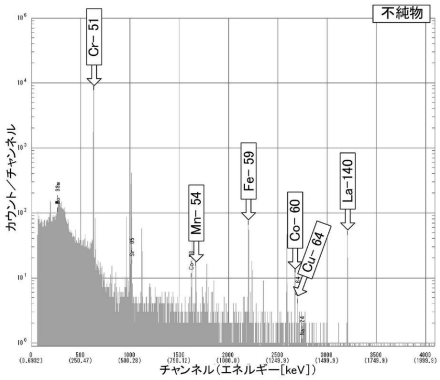
Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
0.4～0.8	0.7	0.15～0.40	0.15	0.8～1.2	0.04～0.35	0.25	0.15	残部

アルミニウム合金（A6061）の化学成分[%]

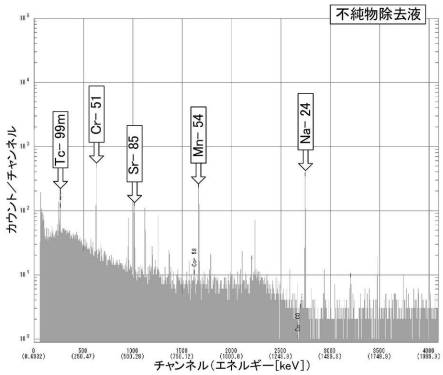
【図３】



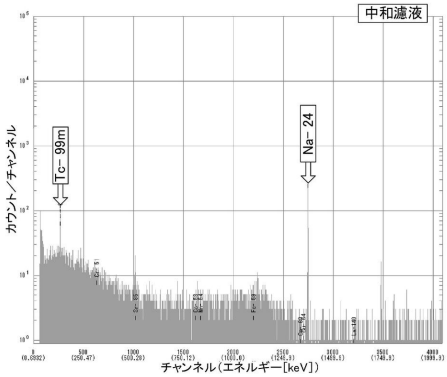
【図４】


不純物
Cr－51
Mn－54
Fe－59
Co－60
Cu－64
La－140
カウント／チャンネル
チャンネル（エネルギー[keV]）

【図５】


不純物除去液
Tc－99m
Cr－51
Sr－85
Mn－54
Na－24
カウント／チャンネル
チャンネル（エネルギー[keV]）

【図６】


中和濾液
Tc－99m
Na－24
カウント／チャンネル
チャンネル（エネルギー[keV]）

フロントページの続き

(72)発明者　関　美沙紀
茨城県東茨城郡大洗町成田町４００２番地　国立研究開発法人日本原子力研究開発機構　大洗研究所内
(72)発明者　井手　広史
茨城県東茨城郡大洗町成田町４００２番地　国立研究開発法人日本原子力研究開発機構　大洗研究所内
(72)発明者　永田　寛
茨城県東茨城郡大洗町成田町４００２番地　国立研究開発法人日本原子力研究開発機構　大洗研究所内
(72)発明者　大塚　薫
茨城県東茨城郡大洗町成田町４００２番地　国立研究開発法人日本原子力研究開発機構　大洗研究所内
(72)発明者　大森　崇純
茨城県東茨城郡大洗町成田町４００２番地　国立研究開発法人日本原子力研究開発機構　大洗研究所内
(72)発明者　石川　幸治
茨城県水戸市堀町１０４４　株式会社化研内
(72)発明者　川上　智彦
茨城県水戸市堀町１０４４　株式会社化研内
(72)発明者　田仲　睦
茨城県水戸市堀町１０４４　株式会社化研内
(72)発明者　鈴木　祐未
茨城県水戸市堀町１０４４　株式会社化研内

審査官　小林　幹

(56)参考文献　特開２００３－０２８９８９（ＪＰ，Ａ）
中国特許出願公開第１０３２１４０１３（ＣＮ，Ａ）
特開平１０－２２１４９３（ＪＰ，Ａ）
特開平１０－１５３６９４（ＪＰ，Ａ）
特開平０４－２８７０００（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｇ２１Ｆ　　９／００－９／３６
Ｃ０１Ｆ　　１／００－１７／３８