

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4787998号  
(P4787998)

(45) 発行日 平成23年10月5日(2011.10.5)

(24) 登録日 平成23年7月29日(2011.7.29)

(51) Int. Cl. F 1  
**G 2 1 F 9/30 (2006.01)**  
 G 2 1 F 9/30 5 1 1 A  
 G 2 1 F 9/30 5 1 5 C

請求項の数 7 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2009-69552 (P2009-69552)	(73) 特許権者	505374783
(22) 出願日	平成21年3月23日 (2009. 3. 23)		独立行政法人日本原子力研究開発機構
(65) 公開番号	特開2010-223663 (P2010-223663A)		茨城県那珂郡東海村村松4番地49
(43) 公開日	平成22年10月7日 (2010. 10. 7)	(74) 代理人	100139114
審査請求日	平成21年12月1日 (2009. 12. 1)		弁理士 田中 貞嗣
		(74) 代理人	100092495
			弁理士 蛭川 昌信
		(74) 代理人	100139103
			弁理士 小山 卓志
		(74) 代理人	100095980
			弁理士 菅井 英雄
		(74) 代理人	100094787
			弁理士 青木 健二
		(74) 代理人	100097777
			弁理士 葦澤 弘

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 放射性廃棄物の固化処理方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

放射性廃棄物と酸化マグネシウムとを攪拌する工程と、  
 攪拌された放射性廃棄物と酸化マグネシウムとに、リン酸二水素ナトリウムを添加し混練する工程と、を有することを特徴とする放射性廃棄物の固化処理方法。

【請求項 2】

前記放射性廃棄物が焼却灰状の放射性廃棄物であることを特徴とする請求項 1 に記載の放射性廃棄物の固化処理方法。

【請求項 3】

前記放射性廃棄物には両性金属が含まれることを特徴とする請求項 1 に記載の放射性廃棄物の固化処理方法。

【請求項 4】

放射性廃棄物と共に攪拌する酸化マグネシウムは酸化マグネシウム軽質であることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 3 のいずれか 1 項に記載の放射性廃棄物の固化処理方法。

【請求項 5】

放射性廃棄物と共に攪拌する酸化マグネシウムは酸化マグネシウム重質であることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 3 のいずれか 1 項に記載の放射性廃棄物の固化処理方法。

【請求項 6】

酸化マグネシウムとリン酸二水素ナトリウムの比が、モル比換算 ( $MgO / NaH_2PO_4$ ) で 0.5 ~ 1.0 であることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 5 のいずれか 1 項に記載

10

20

の放射性廃棄物の固化処理方法。

【請求項 7】

添加するリン酸二水素ナトリウムとして放射性廃液から得られるリン酸二水素ナトリウムを用いることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 6 のいずれか 1 項に記載の放射性廃棄物の固化処理方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、焼却によって減容された焼却灰状の放射性廃棄物に用いると特に好適な放射性廃棄物の固化処理方法に関する。

10

【背景技術】

【0002】

原子力発電所等の核燃料を扱う施設で発生する放射性廃棄物は、最終的に地下に埋設するなどして処分する必要がある。放射性廃棄物は、このような処分に適した状態にするため、減容および安定化のための各種処理が行われている。例えば、可燃性廃棄物は専用の焼却炉で焼却することにより減容した上で、長時間が経過しても放射性元素が外部に拡散せず、安定に保持されるようにするための各種の処理が施される。

【0003】

このような放射性廃棄物に対する各種の処理方法としては、セメント系固型化材料を用いて放射性廃棄物を固化するセメント固化法等が実用化されている。セメントは広く一般に用いられている材料であって、安価であり、取り扱いが容易であることに加え、高い強度が得られるなどの多くの利点を有している。このためセメント固化法は、放射性廃棄物を固化して固定する方法として特に有用な方法である。

20

【0004】

このような従来のセメント固化法は廃棄物を安定化できる技術であるが、焼却灰にはアルミニウム等の両性金属が入っていることが多く、セメントで焼却灰を固めると、これら両性金属がセメント中のアルカリ成分、特に水酸化カルシウムと反応して水素ガスが発生することがある。この場合は、発生した水素ガスにより固化体の膨張、ひび割れ、空隙が生じる可能性があり、セメントを固化材として固定化する固化方法の更なる改善が望まれている。

30

【0005】

このような改善策の一つとして、特許文献 1（特公平 2 - 6 2 2 0 0 号公報）には、焼却灰とアルカリを予め混合し固化前に水素ガスの発生をある程度終了させておき、セメントとの混合後の水素発生を抑制する方法が開示されている。

【0006】

また、特許文献 2（特開平 6 - 1 0 2 3 9 7 号公報）には、両性金属と固型化材との反応抑制のため（1）固化材に両性金属の表面に保護皮膜を生成する（2）固化材にセメントの水和反応を促進する（3）固化材のアルカリ度の低減の 3 つの手段いずれか 1 つまたは任意の複数を実施する方法が提案されている。

【特許文献 1】特公平 2 - 6 2 2 0 0 号公報

40

【特許文献 2】特開平 6 - 1 0 2 3 9 7 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

特許文献 1 に記載の方法では、焼却灰のセメント固化において前処理工程が必要となり、アルミニウム等の金属の含有量が多いときには前処理に長時間を要することとなり、処理コスト増大の要因となる、という問題があった。また、前記の前処理で金属は溶解されるため、例えばヨウ素などの放射性核種が拡散する恐れがあり、これを管理するための処置なども必要となるので、処理コストが上昇し問題であった。

【0008】

50

また、特許文献2に記載の方法においても、セメント材添加前に廃棄物もしくはセメント材に複数の前処理が必要であり、設備の複雑化に伴い、処理コストが上昇し問題であった。

【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、請求項1に係る発明は、放射性廃棄物と酸化マグネシウムとを攪拌する工程と、攪拌された放射性廃棄物と酸化マグネシウムとに、リン酸二水素ナトリウムを添加し混練する工程と、を有することを特徴とする放射性廃棄物の固化処理方法である。

【0010】

また、請求項2に係る発明は、請求項1に記載の放射性廃棄物の固化処理方法において、前記放射性廃棄物が焼却灰状の放射性廃棄物であることを特徴とする。

【0011】

また、請求項3に係る発明は、請求項1に記載の放射性廃棄物の固化処理方法において、前記放射性廃棄物には両性金属が含まれることを特徴とする。

【0012】

また、請求項4に係る発明は、請求項1乃至請求項3のいずれか1項に記載の放射性廃棄物の固化処理方法において、放射性廃棄物と共に攪拌する酸化マグネシウムは酸化マグネシウム軽質であることを特徴とする。

【0013】

また、請求項5に係る発明は、請求項1乃至請求項3のいずれか1項に記載の放射性廃棄物の固化処理方法において、放射性廃棄物と共に攪拌する酸化マグネシウムは酸化マグネシウム重質であることを特徴とする。

【0014】

また、請求項6に係る発明は、請求項1乃至請求項5のいずれか1項に記載の放射性廃棄物の固化処理方法において、酸化マグネシウムとリン酸二水素ナトリウムの比が、モル比換算 ( $MgO / NaH_2PO_4$ ) で0.5~1.0であることを特徴とする。

【0016】

また、請求項7に係る発明は、請求項1乃至請求項6のいずれか1項に記載の放射性廃棄物の固化処理方法において、添加するリン酸二水素ナトリウムとして放射性廃液から得られるリン酸二水素ナトリウムを用いることを特徴とする。

【発明の効果】

【0017】

本発明の放射性廃棄物の固化処理方法によれば、セメント固化のための前処理工程などが不要であり、混練工程などの簡単なプロセスを経るだけであるので、処理コストを抑制することが可能となる。また、金属が溶解する工程などが無いために、放射性核種の拡散などの問題も発生することがない。

【0018】

また、本発明の放射性廃棄物の固化処理方法によれば、両性金属が含まれる放射性廃棄物を充填固化する場合でも水素ガスの発生が緩和される。

【図面の簡単な説明】

【0019】

【図1】本発明の実施形態に係る放射性廃棄物の固化処理方法における攪拌工程の概略を模式的に示す図である。

【図2】本発明の実施形態に係る放射性廃棄物の固化処理方法における混練工程の概略を模式的に示す図である。

【図3】本発明の実施形態に係る放射性廃棄物の固化処理方法の各工程の概略をフローにまとめた図である。

10

20

30

40

50

【図4】本発明の他の実施形態に係る放射性廃棄物の固化処理方法における攪拌工程の概略を模式的に示す図である。

【図5】本発明の他の実施形態に係る放射性廃棄物の固化処理方法の各工程の概略をフローにまとめた図である。

【発明を実施するための形態】

【0020】

以下、本発明の放射性廃棄物の固化処理方法について適宜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廃棄物の固化処理方法における攪拌工程の概略を模式的に示す図であり、図2は本発明の実施形態に係る放射性廃棄物の固化処理方法における混練工程の概略を模式的に示す図である。また、図3は本発明の実施形態に係る放射性廃棄物の固化処理方法の各工程の概略をフローにまとめた図である。図1及び図2において、10は固化容器、11は攪拌装置、12は酸化マグネシウム供給配管、13は酸化マグネシウム貯槽、15は酸化マグネシウム計量装置、16は酸化マグネシウム供給装置、17は混練装置、18はリン酸溶液供給装置、19は飛散防止用フード、20はモーターをそれぞれ示している。

10

【0021】

本発明の放射性廃棄物の固化処理方法においては、まず、焼却炉で焼却され、焼却灰の状態となった放射性廃棄物が固化容器1に投入される(ステップS201)。

【0022】

次のステップS202における攪拌工程では、まず、固化容器10中に、酸化マグネシウム供給配管12から酸化マグネシウム(MgO)が添加される。この酸化マグネシウムは、酸化マグネシウム計量装置15が設けられているホッパーなどの酸化マグネシウム貯槽13から供給される。酸化マグネシウム供給配管12から供給される酸化マグネシウムは、フィーダーなどの酸化マグネシウム供給装置16によって規定量ずつが固化容器10中に添加されるようになっている。

20

【0023】

酸化マグネシウム計量装置15で定量分取された酸化マグネシウムの粉末は、酸化マグネシウム供給配管12から固化容器10内に供給される。なお、酸化マグネシウムの粉末としては、酸化マグネシウム重質、酸化マグネシウム軽質のいずれのものも用いることができる。なお、本実施形態では、酸化マグネシウム供給配管12から粉末の酸化マグネシウムを添加するようにしているが、予め酸化マグネシウムに微量の水を添加しおき、スラリー状とした酸化マグネシウムを添加するようによっても良い。

30

【0024】

攪拌装置11はその攪拌翼の回転によって固化容器10中の内容物を攪拌するものであり、ステップS202における攪拌工程では、焼却灰状の放射性廃棄物及び上記のごとく添加された酸化マグネシウムの粉末を、この攪拌装置11によって攪拌することによってそれぞれを均一に分散させるようにする。

【0025】

上記のような攪拌工程によって、酸化マグネシウムが均一に分散された放射性廃棄物で満たされた固化容器10は、攪拌装置11、酸化マグネシウム供給配管12、酸化マグネシウム貯槽13、酸化マグネシウム計量装置15、酸化マグネシウム供給装置16からなる図1に示すようなシステムから図2に示すようなシステムに移設され、混練工程を経ることとなる。

40

【0026】

図2に示すように、固化容器10には、飛散防止用フード19が取り付けられて蓋がされる。このような飛散防止用フード19は、混練中で放射性廃棄物が固化容器10からあふれ出ないようにするためである。また、この飛散防止用フード19には、混練装置17の回転軸及びリン酸溶液供給装置18の供給が挿通される。混練装置17はその回転翼によって固化容器10中の内容物を混練するものであり、リン酸溶液供給装置18からはリン酸二水素ナトリウム( $\text{NaH}_2\text{PO}_4$ )溶液が固化容器10中に添加されるようになって

50

いる。

【 0 0 2 7 】

このリン酸溶液供給装置 1 8 から供給されるリン酸二水素ナトリウムは濃度がおよそ 3 0 w t % 程度であると好ましい。この 3 0 w t % という濃度は、リン酸二水素ナトリウムの塩が析出しない上限の濃度であるからである。

【 0 0 2 8 】

次に、以上のように構成される図 2 のシステムによる混練工程について説明する。まず、リン酸溶液供給装置 1 8 から供給するリン酸二水素ナトリウム溶液の温度は 2 0 ~ 4 0 程度とする。リン酸二水素ナトリウム溶液の温度が高すぎる場合には、混練工程で十分な混練を行うことができないまま急激に固化してしまうこととなるので、このようにリン酸二水素ナトリウム溶液の温度を室温程度とすることが望ましい。

10

【 0 0 2 9 】

次に、ステップ S 2 0 3 の混練工程では、固化容器 1 0 内に挿通した混練装置 1 7 の回転翼によって、放射性廃棄物の攪拌を開始する。そして、ステップ S 2 0 4 に示すように、リン酸溶液供給装置 1 8 によってリン酸二水素ナトリウム溶液を固化容器 1 0 内に供給する。

【 0 0 3 0 】

ここで、放射性廃棄物に添加する酸化マグネシウムとリン酸二水素ナトリウム溶液の量について説明する。本発明に係る放射性廃棄物の固化処理方法においては、酸化マグネシウムとリン酸二水素ナトリウムの比が、モル比換算 ( $MgO / NaH_2PO_4$ ) で 0 . 5 ~ 1 . 0 であること、より好ましくは略 0 . 5 であることを一つの特徴としている。

20

【 0 0 3 1 】

上記のように設定する理由は、酸化マグネシウムとリン酸二水素ナトリウムの比が、モル比換算 ( $MgO / NaH_2PO_4$ ) で 0 . 5 未満であると、固化体上部に浮き水が残ってしまうこととなり、また、当該比がモル比換算で 1 . 0 を超えると、ステップ S 2 0 3 の混練工程における混練物の粘性が急激に上昇し均質な固化体の作製が難しくなるからである。

【 0 0 3 2 】

ステップ S 2 0 4 に示すように、酸化マグネシウムが均一に分散された放射性廃棄物で満たされた固化容器 1 0 に、リン酸二水素ナトリウム溶液が添加されると、次式に示すような反応が起こり、リン酸ナトリウムマグネシウムと水の結晶が生成される。

30

【 0 0 3 3 】



ステップ S 2 0 3 の混練工程では、このような結晶が生成されるに伴い、固化容器 1 0 内の放射性廃棄物が徐々に粘度を増し固化体となる。混練工程では、放射性廃棄物に規定量のリン酸二水素ナトリウム溶液添加後、さらに 1 0 分間程度の混練を行うことが好ましい。

【 0 0 3 4 】

放射性廃棄物は、混練工程後、1 時間以内に凝結が開始するが十分な強度が発現するまで養生する (ステップ S 2 0 5 )。セメント系材料を用いた固化法と比較し、本発明に係る放射性廃棄物の固化処理方法は凝結時間が著しく短く、酸化マグネシウム添加後、1 0 分 ~ 6 0 分の内に硬化反応が始まり混練後 4 時間程度で放射性廃棄物が完全に固化するという有為な特徴を有する。

40

【 0 0 3 5 】

また、上記の反応式によって得られるリン酸ナトリウムマグネシウムの混練物の pH は、6 . 7 0 ~ 8 . 3 9 の範囲となり、アルミニウムなどの両性金属が安定に存在する pH の範囲 pH 4 . 1 ~ 8 . 4 (〔非特許文献〕世利修美：“アルミニウムの腐食・「防食研究における電位-pH 図と分極曲線の基礎」：軽金属, 5 7 p p . 3 7 1 - 3 8 0 ( 2 0 0 7 ) ) に包含されるので、本発明の放射性廃棄物の固化処理方法によれば、アルミニウム、鉛などの両性金属が含まれる放射性廃棄物を充填固化する場合でも水素ガスの

50

発生が緩和される、という有為な特徴を有するものである。

【0036】

以上のように、本発明の放射性廃棄物の固化処理方法によれば、セメント固化のための前処理工程などが不要であり、混練工程などの簡単なプロセスを経るだけであるので、処理コストを抑制することが可能となる。また、金属が溶解する工程などが無いために、放射性核種の拡散などの問題も発生することがない。

【0037】

なお、混練工程において、混練物の粘性が短時間で増加する急結現象を抑制するには、ほう酸塩（例えば四ほう酸ナトリウム）を添加するとよい。

【0038】

本発明に係る放射性廃棄物の固化処理方法において、作製する固化体内の $\text{NaH}_2\text{PO}_4$ の占める割合としては、重量比で20～50%の範囲であること、より好ましくは45～50%であることが理想的である。固化体内の $\text{NaH}_2\text{PO}_4$ の割合が、重量比で50%を超える場合には、混練工程において混練物の粘性が増加する原因となるからである。

【0039】

なお、上記の実施形態においては、固化容器1内に固化体を作製するようにしたが、リン酸ナトリウムマグネシウムをペレット状に整形し、それを容器に充填しそこにセメントモルタルを流し込む充填廃棄体として廃棄体化することなども可能である。

【0040】

次に、本発明の他の実施形態について説明する。先の実施形態においては、固化容器10内に供給するリン酸二水素ナトリウム溶液としては試薬を用いたが、本実施形態では、固化容器10内に供給するリン酸二水素ナトリウム溶液にも放射性廃液を用いるようにする。このようなリン酸二水素ナトリウム溶液を含む放射性廃液が発生する背景について説明する。核燃料の再処理においては、使用済み燃料を硝酸で溶解した後、ウラン、プルトニウム等を回収している。このための処理方法として、ピューレックス（PUREX）法が実用化されており、このピューレックス法では、溶媒としてリン酸トリブチル（TBP）を使用する。このTBPをドデカン（希釈剤）に溶かした有機溶媒を、使用済み燃料を溶かした硝酸溶液に混ぜると、ウランとプルトニウムは溶媒側に移り、核分裂生成物の大部分は硝酸溶液に残る。これを利用してウラン及びプルトニウムと核分裂生成物とを分離することができる。

【0041】

上記のようにウラン及びプルトニウムの回収のために用いられたTBPを含む有機溶媒には、85%のリン酸（ $\text{H}_3\text{PO}_4$ ）溶液が加えられる。これによって、TBPとリン酸とで付加体が形成され、この付加体をドデカンと分離することが可能となる。なお、分離されたドデカンは希釈剤として上記の処理で再利用される。

【0042】

一方、TBPとリン酸とで形成された付加体にはさらに純水が加えられ、TBPとリン酸とに分離される。前者はプラスチックとともに溶融混合してプラスチック固化処理され、後者は中性化するために $\text{NaOH}$ が加えられリン酸二水素ナトリウム（ $\text{NaH}_2\text{PO}_4$ ）溶液とされ、さらに減容のために水分を蒸発させ、およそ30wt%程度のリン酸二水素ナトリウム溶液とされる。従来は、このリン酸二水素ナトリウム溶液は、放射性廃液としてセメント系材料などを用いる方法での固化処理が検討されていたが、この方法では、固化体中のリン酸二水素ナトリウムの重量比は6%程度とするのが限界であり、より処理効率の高い固化体を作製する方法が模索されていた。

【0043】

本実施形態では、上記のような放射性廃液としてのリン酸二水素ナトリウム溶液を用い、これを焼却灰状の放射性廃棄物と共に固化処理することによって廃棄物の充填率が高い固化体を作製することが可能となり、処理コストを抑制することができる。

【0044】

他の実施形態は、攪拌工程については先の実施形態と同様であるので、以下、先の実施

10

20

30

40

50

形態と異なる工程について説明する。図4は本発明の他の実施形態に係る放射性廃棄物の固化処理方法における攪拌工程の概略を模式的に示す図であり、図5は本発明の他の実施形態に係る放射性廃棄物の固化処理方法の各工程の概略をフローにまとめた図である。

【0045】

図4及び図5に示すように、本実施形態では、攪拌工程中において、ステップS204'で添加するリン酸二水素ナトリウムに放射性廃液を用いるようにしている。

【0046】

ここで、ステップS204'に用いる放射性廃液の調整について説明する。ステップS204'で用いるリン酸二水素ナトリウムの濃度は、およそ30wt%程度となるように調整されている。この30wt%という濃度は、リン酸二水素ナトリウムの塩が析出しない上限の濃度である。塩が析出することによって溶液の取り扱いを難しくさせることを回避しつつ、最大の濃度のリン酸二水素ナトリウムを処理するために、このような30wt%という濃度が選択されている。

10

【0047】

また、ステップS204'に用いる放射性廃液の温度としては、20～80程度、より好ましく温度が20～40程度であるとよい。放射性廃液の温度が高すぎる場合には、混練工程で十分な混練を行うことができないまま急激に固化してしまうこととなるので、このように放射性廃液の温度は室温程度とすることが望ましい。

【0048】

以上のような実施形態によれば、先の実施形態と同様の効果に加え、却灰状の放射性廃棄物と共にリン酸二水素ナトリウム溶液を含む放射性廃液を同時に処理するので、極めて処理効率の高い固化体を作製することが可能となる。

20

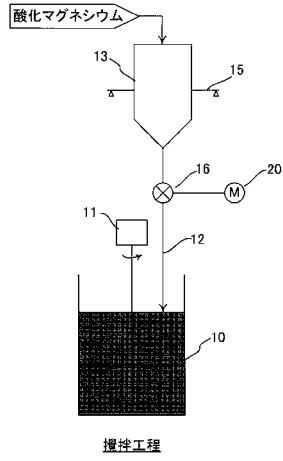
【符号の説明】

【0049】

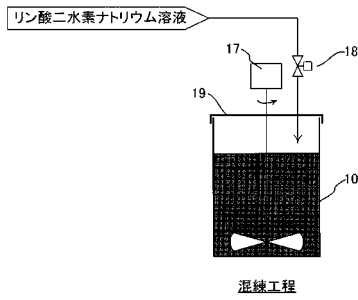
- 10・・・固化容器
- 11・・・攪拌装置
- 12・・・酸化マグネシウム供給配管
- 13・・・酸化マグネシウム貯槽
- 15・・・酸化マグネシウム計量装置
- 16・・・酸化マグネシウム供給装置
- 17・・・混練装置
- 18・・・リン酸溶液供給装置
- 19・・・飛散防止用フード
- 20・・・モーター

30

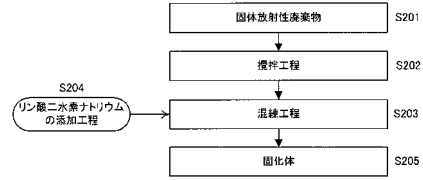
【図1】



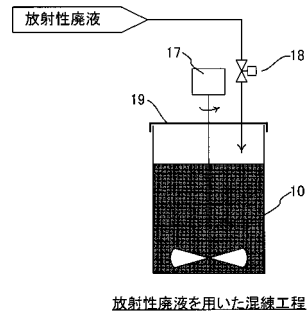
【図2】



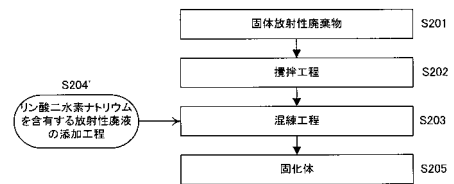
【図3】



【図4】



【図5】





## フロントページの続き

- (74)代理人 100091971  
弁理士 米澤 明
- (74)代理人 100119220  
弁理士 片寄 武彦
- (72)発明者 堀口 賢一  
茨城県那珂郡東海村村松4番地33 独立行政法人日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター  
核燃料サイクル工学研究所内
- (72)発明者 菅谷 篤志  
茨城県那珂郡東海村村松4番地33 独立行政法人日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター  
核燃料サイクル工学研究所内
- (72)発明者 田中 憲治  
茨城県那珂郡東海村村松4番地33 独立行政法人日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター  
核燃料サイクル工学研究所内

審査官 村川 雄一

- (56)参考文献 特開平06-102397(JP,A)  
特開2005-207885(JP,A)  
特開昭62-201399(JP,A)  
特開平02-207940(JP,A)  
特開昭62-003698(JP,A)  
特開平10-167754(JP,A)  
特開昭63-115099(JP,A)  
特開昭62-233799(JP,A)

## (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G21F 9/00 - 9/36  
JSTPlus(JDreamII)  
JST7580(JDreamII)