

放射性アルミニウム廃棄物の安定化処理技術の開発

関美沙紀*1 藤田善貴*1 藤原靖幸*2 Zhang, J.*2 吉永尚生*2 佐野忠史*3 堀順一*2
永田寛*1 大塚薫*1 大森崇純*1 武内伴照*1 井手広史*1 土谷邦彦*1

材料試験炉(JMTR)の炉心構造材にはステンレス鋼の他、アルミニウム(Al)やベリリウム(Be)が多く使用されている。当該炉の廃止措置に当たって、放射性雑固体廃棄物(廃棄体)を作製するが、その埋設基準にはドラム缶内に健全性を損なう物質を含まないことおよび廃棄体の放射能が基準で定められた放射エネルギーを超えないことが要求されている。とくに、Alはコンクリート等のアルカリ物質と反応し水素を発生することから、固化体中のボイド形成による強度低下、内圧上昇による廃棄体の破損等による施設管理が課題となっている。本研究では、バイヤー法を応用したAlの安定化処理技術の確立を目的とし、コールド試験にて基本的な処理工程を確立した。また、京都大学研究用原子炉(KUR)にてAl試験片を中性子照射し、本処理工程によるAl中に含まれる添加元素や不純物元素で生成する放射性核種の除去特性を調査した。結果として、本処理工程によりAlをアルミナ(Al_2O_3)に変換可能であり、通常の放射性廃棄物の処理方法と同様にセメント系充填材によって固化できる見通しが得られた。

Keywords: 材料試験炉(JMTR), アルミニウム, 安定化処理, バイヤー法, 廃棄体

The core structural materials of the Japan Materials Testing Reactor (JMTR) are mostly stainless steel, aluminum (Al) and beryllium (Be). In the decommissioning of JMTR, radioactive miscellaneous solid wastes (waste packages) are produced. The burial criteria require that the drums do not contain any materials that would impair the integrity of the drums, and that the radioactivity of the waste packages does not exceed the amount specified in the criteria. In particular, Al generates hydrogen gas when it reacts with alkaline substances. This can cause voids to form inside the waste package, reducing its strength and increasing the internal pressure, causing the solidifier to overflow. Such a waste package will affect the safe management of the facility. The purpose of this paper was to establish a stabilization treatment technology for Al by applying the Bayer process, and the basic treatment process was established through cold tests. The Al samples were irradiated with neutrons at the Kyoto University Research Reactor (KUR) to investigate the removal characteristics of radionuclides produced by additive and impurity elements in Al by this process. As a result, it was found that Al can be converted to alumina (Al_2O_3) by this process, and there is a prospect that it can be solidified by cement-based filler as in the usual treatment method for radioactive waste.

Keywords: Japan Materials Testing Reactor (JMTR), aluminum, stabilizing treatment, Bayer-process, waste packages

1 緒言

日本原子力研究開発機構(JAEA)が所有する材料試験炉(Japan Material Testing Reactor, JMTR)は軽水減速軽水冷却タンク型の研究用原子炉である。熱中性子束および高速中性子束は、いずれも最大 $4 \times 10^{18} / (\text{m}^2 \cdot \text{s})$ である。JMTRの廃止措置計画については、2019年9月に認可申請[1]を行い、2021年3月に認可された。JMTRの廃止措置を進めるに当たり、解体によって発生する廃棄物の処理方法についての検討を行ってきた[2]。

商用炉では、廃止措置によって発生する解体廃棄物のうち、放射性廃棄物は約2%、クリアランスは約5%であり[3]、低レベル放射性廃棄物の大部分は金属類で、セメント系充填材によって固化され廃棄体となる。このうち、アルミニウム(Al)のみでできているものや大きさが15cm程度以上のものについては、廃棄体の健全性を損なう物質および廃棄体中に空隙を発生させる要因とされているが[4]、Alは炉外装置や機器類に使用されているためクリアランスレベル以下であり、除去(分離)処理がなされている。

一方、JMTRは、Fig.1に示すように燃料要素、制御棒、ベリリウム(Be)枠の他、燃料を取り囲むようにBe反射体やAl反射体が配置されている[5]。このため、商用炉とは異なりJMTRの炉心解体時には約6トンのクリアランスレベルを超える放射性Al廃棄物が発生し、このAl中に含まれる長半減期の放射性核種はNi-63(半減期101.2年)、Ag-108m(半減期438年)、Ni-59(半減期 8.1×10^4 年)で、その放射能は $10^8 \sim 10^{11} \text{Bq/トン}$ と見積もられている[6]。したがって、JMTRの廃止措置を進めるうえで放射性Al廃棄物の廃棄体化方法が必要となるが、基礎的な技術について検討は進められているものの[7-11]、有効な処理方法は未だ確立されていないのが現状である。

本稿では、本廃棄体化技術として、放射性Al廃棄物をより化学的に安定なアルミナ(Al_2O_3)へ変換する処理方法(安定化処理)の検討結果について述べる。なお、 Al_2O_3 は耐火性の向上等を目的としたアルミナセメントの原料として土

Development of stabilization treatment technology for radioactive aluminum waste by Misaki SEKI (seki.misaki@jaea.go.jp), Yoshitaka FUJITA, Yasuyuki FUJIHARA, Zhang, J., Hisao YOSHINAGA, Tadamuni SANO, Junichi HORI, Hiroshi NAGATA, Kaoru OTSUKA, Takazumi OMORI, Tomoaki TAKEUCHI, Hiroshi IDE and Kunihiro TSUCHIYA

*1 日本原子力研究開発機構

Japan Atomic Energy Agency

〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002番地

*2 京都大学複合原子力科学研究所

Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University

〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西2丁目

*3 近畿大学原子力研究所

Kindai University Atomic Energy Research Institute

〒577-8502 大阪府東大阪市小若江3-4-1

(Received 2 November 2021; accepted 4 April 2022)

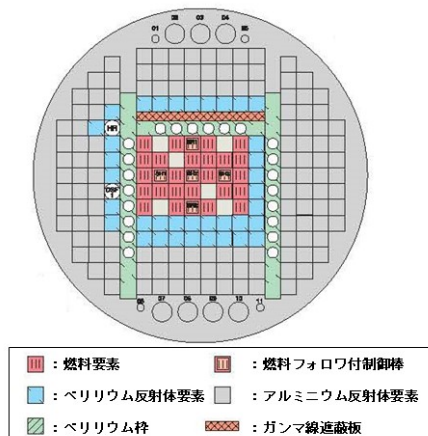


Fig.1 Arrangement of JMTR core[5]

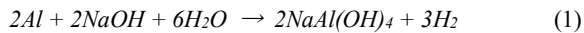
木・建築業界で使用されており、 Al_2O_3 とセメントの反応性や安全性については既知[12-14]である。また、Al が放射化すると Al-28(半減期 2.25 分)、Na-24(14.96 時間)等の放射性核種が生成されるが、これらは比較的短半減期の核種であるため、長半減期の他核種を除去(分離)した場合、Al 廃棄物の放射エネルギーを低減できると考えられる。よって本稿では他核種の除去(分離)による放射エネルギー評価についても述べる。

2 実験方法

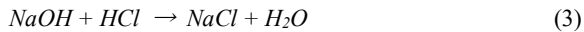
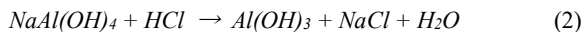
Al の表面は酸化被膜で覆われており、安定化処理においてはこの酸化被膜を破壊し、Al を溶解する連続的な反応である必要がある。そこで Al の溶解液として水酸化ナトリウム(NaOH)を選定し、同様に NaOH を用いてアルミナを得ることができるバイヤー法に着目した。

バイヤー法はボーキサイトを NaOH にて溶解し、水酸化アルミニウム($\text{Al}(\text{OH})_3$)に変換させた後、Al を選択的に得る工業的 Al 精練方法である。ボーキサイトに含まれるシリカや他の金属等は NaOH に溶解せず、固体の残渣物として回収される。これと同様に Al 合金を NaOH で溶解すると、Al 合金に含まれる他元素を除去(分離)が可能であると考えた。バイヤー法を応用した基本的な Al の安定化処理工程を Fig.2 に示す。Al の安定化処理は、①Al の溶解、②中和および③焼成の 3 つの工程で行う。それぞれの工程の化学反応式を以下に示す。

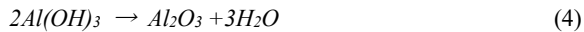
【溶解】



【中和】



【焼成】



なお、中和工程における NaOH の中和は、溶解工程の際に過剰に NaOH を用いるために行う。

本来のバイヤー法においては、 200°C の NaOH にてボーキサイトを溶解しているが、式(1)の反応は常温常圧環境においても化学反応が進むことおよび管理区域もしくはホットセル内での作業となることが想定されるため、本検討は常温常圧環境下で実施した。

本実験において、Al 供試材は JMTR の炉内構造物や照射キャプセルで使用されている A6061 を用いた。Al 供試材の化学分析値を Table 1 に示す。また、Al 供試材の溶解条件を Table 2 に示す。溶解に当たっては、NaOH/Al 比(モル

比)を化学反応式から 1.0、バイヤー法では、 $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 比が 1.6 で安定した溶液が得られるとされている[16]ことから NaOH/Al 比に変換した 1.6、溶解後の $\text{NaAl}(\text{OH})_4$ はアルカリ領域で安定であるため、アルカリ過剰環境となる 3.2 の 3 条件とした。一方、中和において、硝酸(HNO_3)や硫酸(H_2SO_4)などの酸性溶液も使用することも可能であるが、焼成工程において NO_x や SO_x 等の有害ガスの発生を抑制することを考慮し、本試験では塩酸(HCl)を選定した。

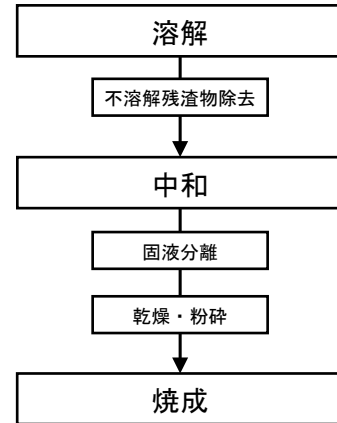


Fig.2 Al stabilization process flow diagram

2.1 基本工程試験

まず、溶解条件を決定するために、 $10 \times 5 \times 2$ mm(約 0.25 g)の Al 供試材を準備し、式(1)に示す NaOH/Al 比による溶解への影響を調べた(Table 2 の試験 No.A-1~A-5)。Al の溶解は、NaOH(関東化学、水酸化ナトリウム、特級、 $>97\%$)を用いて NaOH 溶液を作製し、反応生成物および不溶解残渣物の観察を行った。溶解終了は、目視による気泡の発生が確認できなくなったときとした。溶解後、反応生成物および不溶解残渣物をセルロースろ紙(アドバンテック、定量濾紙 5C)を用いて、吸引ろ過によって固液分離した。回収した反応生成物および不溶解残渣物は、FE-SEM/EPMA(日本電子、JXA-8530F)により、微構造観察および定性分析を行った。

次に、上記試験で設定した溶解条件で得られた溶液(Table 2 の試験 No.B-1)に、HCl(富士フイルム和光純薬、塩酸、特級、 $35.0 \sim 37.0\%$)を 2 mol/L に調整して添加し、溶液の pH を 3~11 の範囲となるように中和させた。中和後、セルロースろ紙を用いて自然ろ過によって固液分離した。溶液について、ICP-AES(パーキンエルマージャパン、OPTIMA 7300DV)を用いて Al 濃度を分析し、収率を算出した。

Table 1 Chemical compositions of aluminum specimen

	Al	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti
JIS 規格値									
[15]	Bal.	0.40~ 0.8	0.7 以下	0.15~ 0.40	0.15 以下	0.8~ 1.2	0.04~ 0.35	0.25 以下	0.15 以下
Al 供試材	97.39	0.61	0.42	0.28	0.02	0.99	0.24	0.01	0.04

(単位: wt%)

Table 2 Experimental conditions in dissolution process of aluminum specimens

試験 No.	Al 供試材の条件		溶解液(NaOHaq)の条件		NaOH/Al 比	
	寸法(mm)	重量(mg)	液量(mL)	濃度(mol/L)	目標値	実測値
A-1	10×5×2	243	1.6	6	1.0	1.10
A-2		257	5.0	2		1.05
A-3		251	2.5	6	1.6	1.61
A-4		264	5.0	3		1.53
A-5		264	5.0	6	3.2	3.10
B-1	10×10×2	2040 (4 枚分)	40	6	3.2	3.17
B-2	10×100×2	22000 (4 枚分)	440	6		3.23
C-1	10×5×2	253	5.0	6	3.2	3.20

最後に、焼成条件を決定するために、上記ろ過により回収した中和生成物(Table 2 の試験 No.B-2 の一部)42 mg を 90℃の恒温槽にて乾燥させ、TG-DTA(Bruker AXS , TG-DTA2000SA)を用いて昇温速度 20℃/分、焼成温度 1000℃、保持時間 2 時間の条件で重量変化(TG)および示差熱(DTA)を測定した。比較試料として、市販 Al(OH)₃ 粉末(高純度化学、水酸化アルミニウム(III)、特級)40 mg について同様に測定した。

次に、同試料をそれぞれ 1 g、卓上電気炉(ヤマト科学、FO610)を用いて 400～1000℃、昇温速度 8℃/分、保持時間 10 時間の条件で焼成し、得られた粉末を X 線回折装置(リガク、Ultima IV)を用いて、相同定した。

2.2 添加元素除去試験

基本工程試験で設定した基本条件にて、Al 供試材に含まれる Al 元素以外の元素の除去特性を調べた。A6061 中には約 2%の他元素が添加されているが、ICP-MS 等を用いた化学分析では Al の濃度が高いため添加元素の定量が困難である。一方で放射化分析では供試材から発生するガンマ線を測定すれば、核種およびその添加量の算出が容易であるため、放射能測定により除去特性を評価することとした。

KUR の圧気輸送管(Pn-2)にて、Al 供試材(Table 2 の試験 No.C-1)の中性子照射を行った。中性子照射条件を Table 3 に示す。照射後、約 4 日間冷却し、Al の放射能を十分に減衰させてから、照射容器から Al 供試材を取り出し、設定した基本条件にて、Al 供試材の処理を行った。各工程、すなわち①溶解および②中和・分離で得られる溶液および固体物について、ゲルマニウム半導体検出器(ミリオンテクノロジー・キャンベラ、GC4020)を用いて、ガンマ線測定を行い、Al 元素以外の添加元素の除去特性を評価した。

Table 3 Irradiation condition of aluminum specimens

項目	条件
KUR の熱出力	5 MW
Pn-2 の熱中性子束	2.8×10^{17} n/m ² /s
照射時間	20 分
冷却時間	4 日

3 結果および考察

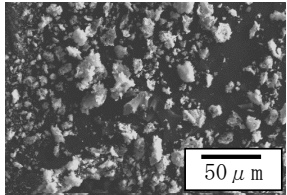
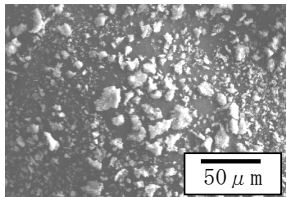
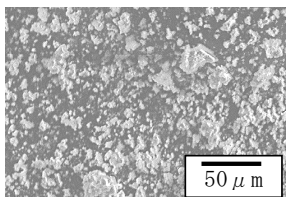
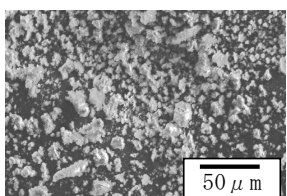
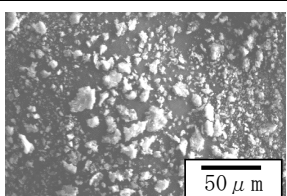
3.1 溶解条件

NaOH/Al 比が異なる Al 供試材の溶解工程で回収した生成物の微細構造観察結果および EPMA による半定量分析結果を Table 4 に示す。外観観察の結果、NaOH/Al 比 1.0 および 1.6 の条件では回収した反応生成物は白色であったが、NaOH/Al 比 3.2 の条件では黒色であった。微細構造観察の結果、反応生成物は NaOH/Al 比に関わらず約 15～50 μm の粒径であった。EPMA による半定量分析の結果、NaOH/Al 比 1.0 および 1.6 においては、検出元素は Al と O であり、その存在比は、Al が 25～29 at%、O が 71～75 at%であった。このことから、この白色生成物は Al(OH)₃ と示唆される。一方、NaOH/Al 比 3.2 については、Al が 9.6 at%、O が 63.9 at%、Fe が 26.5 at%であった。これより Fe₂O₃ や FeO₂ 等の酸化鉄と Al(OH)₃ との混合物であることが示唆され、溶解工程での Fe 除去が可能であることを確認した。本試験結果より、アルカリ過剰環境である NaOH/Al 比 3.2 の方が Al の溶解率は高く、かつ溶解後のろ過により、Fe 等の添加元素も不溶解残渣物として除去できることも明らかになったことから、Al 合金中の Al と添加元素とを高い割合で分離するため、本試験では溶解条件を NaOH/Al 比 3.2 と決定した。

3.2 中和条件

中和後の固液分離した溶液中の Al 含有量を Table 5 に示す。なお、Al は溶液または中和生成物のいずれかに移行するものとして扱った。溶液の pH と Al イオン濃度の関係を Fig.3 に示す。Fig.3 中の実線は、25℃におけるパイヤライト系の溶解度に与える pH の影響[17]を示しており、pH=5 のとき最も溶液中イオン濃度が低くなると言われている。すなわち、Al を固体として最も多く回収できる pH である。実験値のプロットは、固液分離後の溶液の pH とイオン濃度である。なお、検出下限値は点線で示した。この結果、文献値では pH=5 付近で溶解度が最も低くなるのに対し、本工程における Al の溶解度は pH が 6～9 において低くなっている。これらはそれぞれ Al(OH)₃、ベーマイト、パイヤライトの溶解度と近い値であることから、本工程で生成さ

Table 4 Microstructure observation image of aluminum specimen after melting and semi-quantitative analysis results by EPMA

No.	微細構造観察 SEM 写真	EPMA による定性 結果 [at%]		
		O	Al	Fe
A-1		71.2	28.8	ND
A-2		74.8	25.2	ND
A-3		73.3	26.7	ND
A-4		74.1	25.9	ND
A-5		63.9	9.6	26.5

(ND : Not Detected (未検出))

れる中和生成物は $\text{Al}(\text{OH})_3$ 、ペーマイト、バイヤライトであると示唆される。よって本工程において Al を固体として回収する pH として 6~9 の範囲と決定した。

3.3 焼成条件

はじめに Table 2 の試験 No.B-2 の溶液を用いて、pH 7 にて中和して回収した析出物を乾燥させ、焼成試験を行った。乾燥させた析出物の X 線回折結果を Fig.4 に示す。Fig.4 には市販 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 粉末の結果も示している。この結果、乾燥させた析出物は中和により生成する NaCl のピークが確認された以外は市販 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 粉末とほぼ同じピーク形状であった。これにより、析出物は $\text{Al}(\text{OH})_3$ であることが確認できた。一方、析出物および市販 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 粉末の結晶構造はバイヤライトが主であったが、ペーマイトのピークも確認

Table 5 Amount of HCl used for neutralization and results of Al ion concentration measurement in the solution after solid-liquid separation

Al 溶解液		中和処理／固液分離後の溶液		
No.	Al [mg]	pH	Al [mg]	イオン濃度 $\log[(\text{Al}^{3+})+(\text{AlO}_2^-)]$
B-1	10	4.89	0.41	-3.52
B-2	90	4.89	2.77	-2.99
B-2	100	3.28	102	-1.42
		2.98	101	-1.43
		4.32	2.94	-2.96
		6.28	<0.05 ¹⁾	-4.73 ²⁾
		7.37	<0.05 ¹⁾	-4.73 ²⁾
		7.66	<0.05 ¹⁾	-4.73 ²⁾
		9.25	<0.05 ¹⁾	-4.73 ²⁾
		11.34	13.70	-2.30
		11.90	1.84	-3.17

1) : ICP-AES の検出下限値。

2) : 検出下限値より算出したイオン濃度)

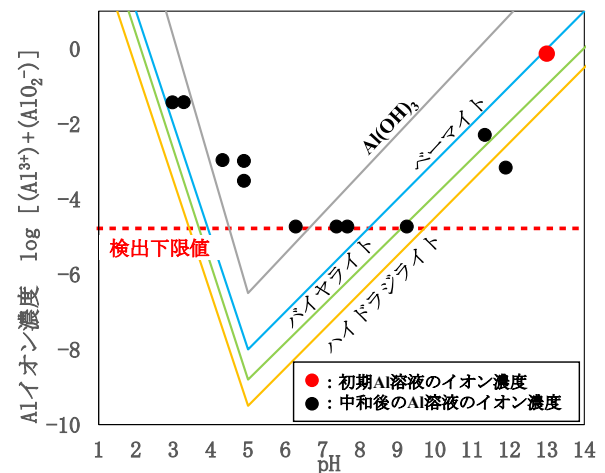


Fig.3 Effect of pH on the solubility of Bayerite system (line) and experimental values (dots)

することができた。焼成条件を決定するために行った TG-DTA の測定結果を Fig.5 に示す。ここで、Fig.5(a)は中和生成物、Fig.5(b)は市販 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 粉末の結果である。Fig.5(a)では 134℃を極小値として重量の減少を伴う吸熱が確認され、これは中和生成物および NaCl の脱水であると考えられる。式(4)に示す $\text{Al}(\text{OH})_3$ の脱水温度は 300℃であるが、極小値が低温側へシフトした理由として、固液分離後の中和生成

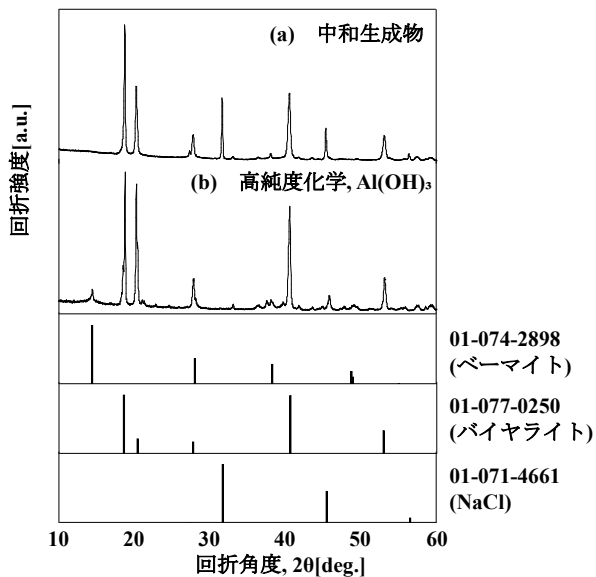


Fig.4 X-ray diffraction figure of neutralization products and commercial aluminum hydroxide powder

物はゲル状であり、水分を多く含んでいた。また式(2)および式(3)に示した中和工程での反応により生成される NaCl は吸湿性を有する。Fig.5(a)に示す中和生成物の重量変化において、100℃付近から始まる脱水のピークは、中和生成物および副生成物である NaCl の乾燥による脱水であり、その後 300℃付近において、式(4)に示す中和生成物($\text{Al}(\text{OH})_3$)の脱水が起こると考える。式(4)より $\text{Al}(\text{OH})_3$ の脱水による重量減少率は 34.6% であるので、6~9% 程度低いが大気中での焼成試験であるので妥当と考える。また 806℃を極小値とする重量の減少を伴う吸熱が確認され、これは NaCl の揮発と考えられる。NaCl の融点は 800.4℃(物性値)であり、重量減少率は室温~522℃で 25.2%、681~1011℃で 25.6% であった。一方 Fig.5(b)では 301℃を極小値として重量の減少を伴う吸熱がみられ、これは $\text{Al}(\text{OH})_3$ の脱水であると考え。重量減少率は室温~1007℃で 28.1% であった。

次に卓上電気炉を用いて、析出物の焼成を行い、焼成温度による Al_2O_3 の結晶構造への影響を調べた。その結果を

Fig.6 に示す。ここで、Fig.6(a)は析出物、Fig.6(b)は市販 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 粉末である。また、文献[18, 19]から整理したアルミナの結晶構造の遷移図を Fig.7 に示す。析出物を焼成した結果から、400℃において η - Al_2O_3 およびペーマイト、600℃において η - Al_2O_3 および γ - Al_2O_3 、800℃において η - Al_2O_3 、 γ - Al_2O_3 および δ - Al_2O_3 、1000℃において δ - Al_2O_3 および θ - Al_2O_3 が同定され、 Al_2O_3 の焼成温度による結晶構造の変化は、市販 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 粉末とほぼ同じ傾向であった。また、本結果は、Fig.7 で整理した Al_2O_3 の遷移と同様であった。一方、析出物には、中和による NaCl のピークが 400℃~800℃の範囲で観測されたが、1000℃では観測されていない。この結果は TG-DTA での測定結果と同様であったが、コンクリート中の塩化物含有量は塩化物イオン(Cl^-)量として 0.3 kg/m³ 以下[20]とされており、仮に 200 L ドラム缶の廃棄体を作製する際の Cl^- 量を算出すると、NaCl 量として 99.4 g 以下であることが必要である。このことから、 Al_2O_3 中の NaCl の低減および安定した結晶構造を持つ Al_2O_3 の作製のためには焼成温度 850℃以上が好ましいと考えられる。

3.4 添加元素除去特性

中性子照射した Al 供試材、不溶解残渣物および中和生成物の γ 線スペクトル結果を Fig.8 に示す。ここで、Fig.8 (a)は不溶解残渣物、Fig.8 (b)は中和生成物である。本照射試験では、短時間での照射であるため、定量された主な核種は Cr-51、Mn-54、Fe-59、Cu-64 および Na-24 であった。得られた測定結果により、本工程で生じる不溶解残渣物、中和生成物および廃液の放射能の総量を 100 に規格化し、除去率を算出した結果を Table 6 に示す。この結果、Cr-51、Fe-59 および Cu-64 はアルカリに不溶であることから、ほぼ 100 % 不溶解残渣物として Al 成分から除去できることが分かった。また、Na-24 は半減期 14 時間の核種であり、Al-27(n, α)Na-24 によって生成するが、実際に JMTR の施設を解体する際には十分に減衰しているので考慮する必要はない。しかし、Mn-54 については、50 % 程度であった。

JMTR の廃止措置計画において実際に JMTR で使用された Al 構造物材中の主な核種の放射能に関する評価結果を

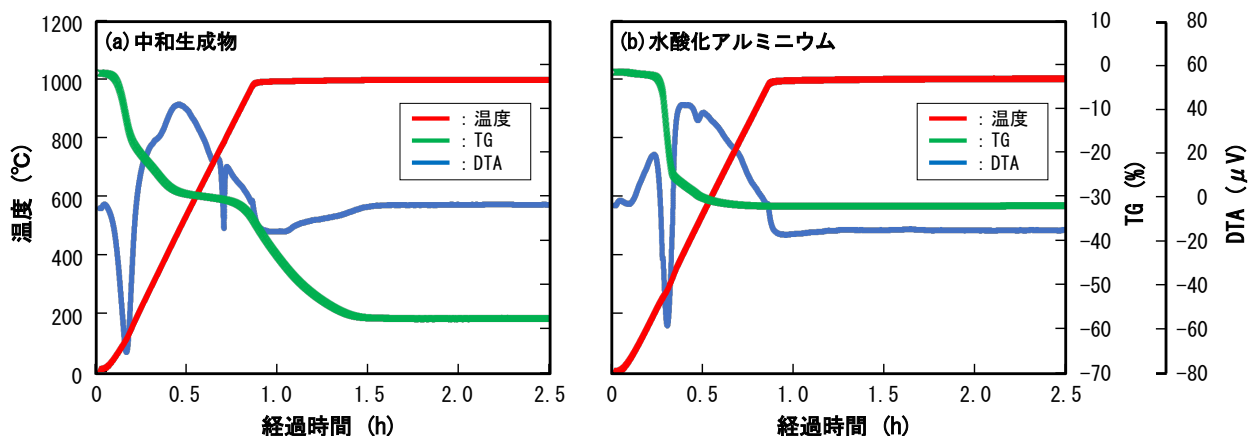


Fig.5 Simultaneous thermogravimetry-differential thermal analysis results of neutralization products and commercial aluminum hydroxide powder

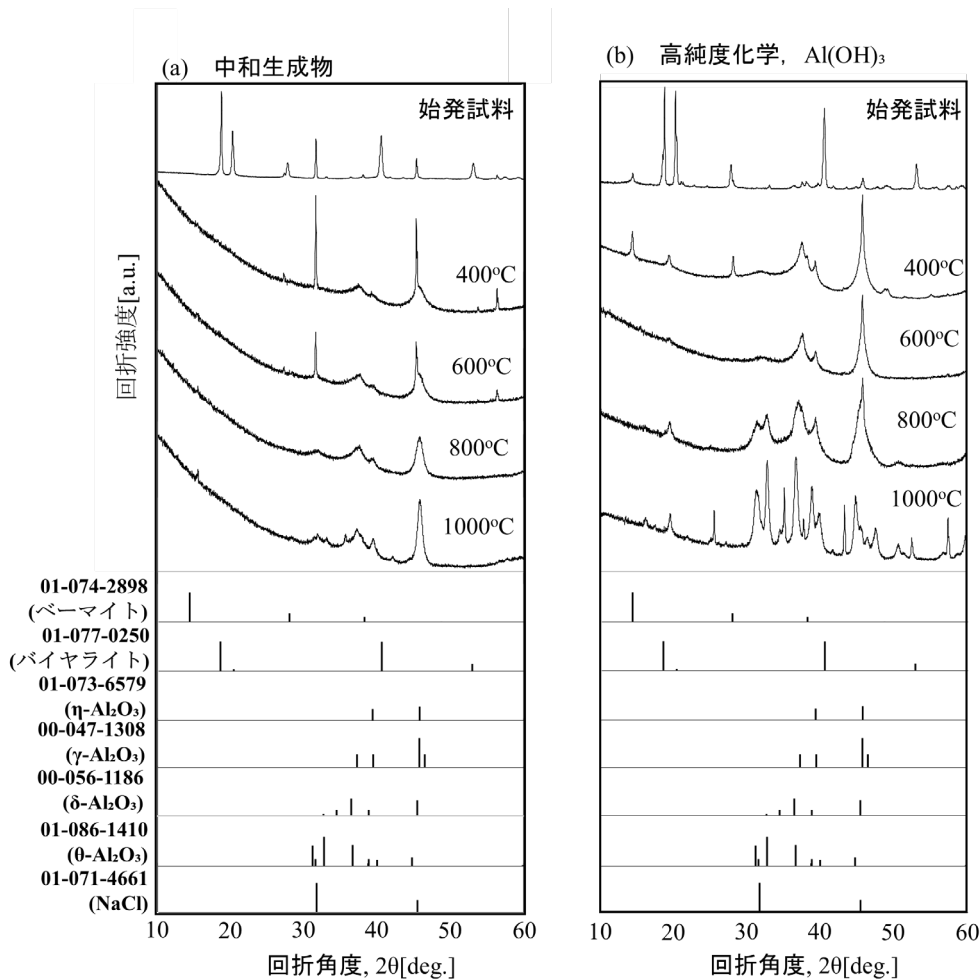


Fig.6 X-ray diffraction figures of the precipitates calcined of neutralization products and commercial aluminum hydroxide powder at each temperature

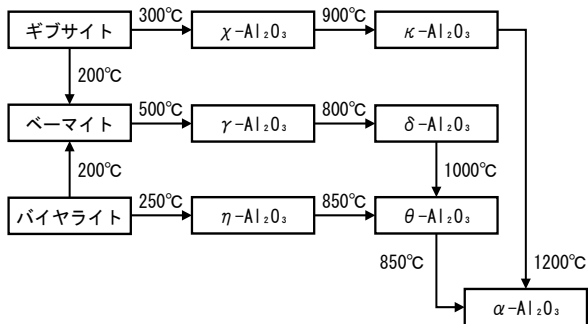


Fig.7 Relationship between temperature and transition alumina [17, 18]

Table 7 に示す[1]. Fe-55 については, 本試験で得られた Fe-55 の挙動と同じであることから, 本工程で十分除去できることが示唆される. Mn-54 については, 本試験では除去率は 50%程度であった. 溶解液中での Mn は式(5)に示す平衡状態で存在していると仮定する.



Mn(OH)₂, Mn²⁺, OH⁻の標準生成ギブスエネルギー, G° (298.15 K, 0.1 MPa)は-615.4 kJ/mol, -228.1 kJ/mol, -157.2 kJ/mol[21]なので, $\Delta_r G^\circ = 72.9$ kJ/mol となる. また, 化学平衡は式(6)で示される.

$$K = \exp(-\Delta_r G^\circ / RT) \quad (6)$$

ここで, 平衡定数 K , 気体定数 R , 絶対温度 T である. 式(5)より, 平衡定数 K は,

$$K = [\text{Mn}^{2+}][\text{OH}^-]^2 / [\text{Mn(OH)}_2] \quad (7)$$

であることから, Mn-54 の回収率は pH 8 以上に調整することで改善することが可能である. 一方, Mn-54 は比較的短半減期の核種であり, Table 7 に示す通り, 長期間経過した JMTR の Al 構造物中の放射能は, 他の核種と比較して約 2~5 桁低い[1]ことから, 高い除去率は要求されないと考える. 他の核種について, Table 1 より Si, Fe, Cu, Mg, Cr, Zn, Ti はアルカリ溶液に不溶であることから, 本試験で得られた Cr, Fe および Cu と同等の除去率を確保できるものと考えられる.

以上のことから, JMTR で使用されていた Al 構造物材中に含まれる放射性核種の 90 %以上は不溶解残渣物として除去可能であり, Al 成分の放射能レベルを低くできることが示唆された.

4 結言

本研究により, 金属 Al をパイヤー法を応用した工程により Al₂O₃ へと変換できることを明らかにした. 本条件にて Al を溶解し, HCl による中和処理により Al(OH)₃ として

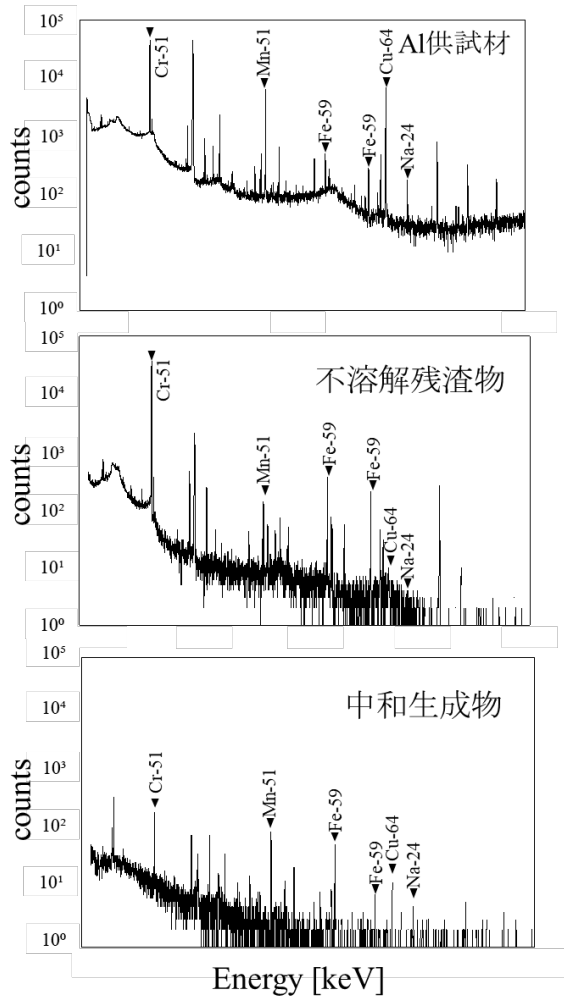


Fig.8 Gamma-ray spectra of Al test piece, insoluble residue, and neutralization products

回収でき、その構造はベーマイトおよびパイヤライトであることを明らかにした。これは、400～1000℃にて焼成することによって、各温度に則った結晶相の Al_2O_3 に遷移することを明らかにした。安定かつ Al_2O_3 中に NaCl が含まれない Al_2O_3 への変換条件について、焼成温度が 1000℃であることとした。また、本処理工程により通常の放射性廃棄物の処理方法と同様にセメント系充填材によって固化できる見通しが得られた。さらに、中性子照射試験の結果から、本処理工程により溶解工程において不溶解残渣物である Fe や Cr の除去が可能であり、廃棄物の放射能量を 1～2 桁減らすことができる見通しも得られた。

謝辞

本研究は、京都大学複合原子力科学研究所共同利用研究で得られた成果を含むものである。

参考文献

- [1] 日本原子力研究開発機構：国立研究開発法人日本原子力研究開発機構大洗研究所(北地区)JMTR 原子炉施

Table 6 Results of radionuclide removal characteristics of irradiated Al specimens in each process

核種	不溶解残渣物	中和生成物	廃水
Cr-51	99.5	0.5	LOQ
Mn-54	43.5	56.5	LOQ
Fe-59	100	LOQ	LOQ
Cu-64	100	LOQ	LOQ
Na-24	97.9	0.2	1.9

LOQ:定量下限値未満

Table 7 Radioactivity of major nuclides in Al structures used in JMTR[1]

経過時間*	12 年後 [Bq / kg]	21 年後 [Bq / kg]
Mn-54	4.5×10^8	3.0×10^5
Fe-55	8.8×10^{12}	9.1×10^{11}
Co-60	1.5×10^{13}	4.6×10^{12}
Ni-63	1.9×10^{13}	1.8×10^{13}
Nb-94	9.2×10^9	9.2×10^9
Ag-108m	1.5×10^7	1.5×10^7

※：原子炉停止後(2006 年 8 月 1 日)からの経過時間

設(材料試験炉)に係る廃止措置計画認可申請書。(2019).

- [2] 関美沙紀, 他: JMTR の廃止措置に向けた難処理廃棄物の廃棄体化のための処理方法の開発—炉内構造物と使用済みイオン交換樹脂—. デコミッションング技報, No.62 (2020).
- [3] 電気事業連合会: 原子力発電所等の廃止措置及び運転に伴い発生する放射性廃棄物の処分について. 原子力規制委員会「第 2 回廃炉等に伴う放射性廃棄物の規制に関する検討チーム会合」(2015).
<https://www.nsr.go.jp/data/000096058.pdf> (accessed 2020-6-15).
- [4] 原子力環境整備センター: 低レベル放射性廃棄物処分用廃棄体作製技術について(各種固体状廃棄物). pp.9-11 (1998).
- [5] 日本原子力研究所大洗研究所: JMTR. p.11 (2003).
- [6] 日本原子力研究開発機構: 第 2 回廃炉等に伴う放射性廃棄物の規制に関する検討チーム会合. 資料 2-2 (2015).
<https://www.nsr.go.jp/data/000096060.pdf> (accessed 2020-6-15).
- [7] 株式会社日立製作所: 放射性廃棄物の固化方法およびその装置. 特開平 8-179097. 1996-7-12.

- [8] 日本碍子株式会社: 放射性アルミニウム廃棄物の処理方法. 特許 3580597. 2004-10-27.
- [9] 日揮株式会社, 日本化薬株式会社: 金属アルミニウム含有放射性固体廃棄物の処理方法. 特開平 10-153694. 1998-6-9.
- [10] 日本碍子株式会社: 放射性アルミニウム廃棄物の処理装置. 特開平 10-221493. 1998-8-21.
- [11] 株式会社日立製作所, 日立エンジニアリング株式会社: 放射性アルミニウム廃棄物の処理方法及びその処理装置. 特開 2003-028989. 2003-1-29.
- [12] 杉木六郎: アルミナセメントの構造物への利用について. コンクリートジャーナル, Vol.2, No.1, pp.9-10 (1964).
- [13] 長滝重義: アルミナセメントコンクリートの強度について. Vol.6, No.11, pp.16-38 (1968).
- [14] 近藤連一: アルミナセメントの化学. コンクリートジャーナル, Vol.6, No.12, pp.4-8 (1968).
- [15] JIS H 4000: 2014. アルミニウム及びアルミニウム合金の板及び条.
- [16] 金原幹夫, 望月文男: アルミニウム産業の資源とエネルギー問題. 軽金属, Vol. 30, No. 1, pp.53-61 (1980).
- [17] 兒島洋一, 本川幸翁, 大谷良行: アルミニウムの腐食のおはなし その 6, Furukawa-Sky Review, 7, pp.38-44, (2011).
- [18] 平野眞一, 無機化学: 丸善出版株式会社, p.91 (2012).
- [19] Walter H. Gitzen: Alumina as a ceramic material. The American Ceramic Society, p.17, (1970).
- [20] JIS A 5308: 2019. レディーミクストコンクリート.
- [21] Donald D. Wagman, William H. Evans, et al: The NBS table of chemical thermodynamic properties, Journal of Physical and Chemical Reference Data Vol.11 Suppl. 2, American Ceramic Society and American Institute of Physics for the National Bureau Standards, pp.2-191 (1982).