(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第4750110号
(P4750110)

(45)発行日　平成23年8月17日(2011.8.17)　(24)登録日　平成23年5月27日(2011.5.27)

(51)Int.Cl.			F I		
G21F	9/18	(2006.01)	G21F	9/18	
G21F	9/00	(2006.01)	G21F	9/00	N
G21F	9/06	(2006.01)	G21F	9/06	521M
G21F	9/30	(2006.01)	G21F	9/06	531
			G21F	9/30	531N

請求項の数 44　(全 14 頁)

(21)出願番号　特願2007-514228 (P2007-514228)
(86)(22)出願日　平成17年5月13日 (2005.5.13)
(65)公表番号　特表2008-501113 (P2008-501113A)
(43)公表日　平成20年1月17日 (2008.1.17)
(86)国際出願番号　PCT/IB2005/051570
(87)国際公開番号　WO2005/119700
(87)国際公開日　平成17年12月15日 (2005.12.15)
審査請求日　平成20年5月2日 (2008.5.2)
(31)優先権主張番号　2004/3296
(32)優先日　平成16年5月30日 (2004.5.30)
(33)優先権主張国　南アフリカ(ZA)

(73)特許権者　506398900
ペブル・ベッド・モジュラー・リアクター・（プロプライエタリー）・リミテッド
南アフリカ共和国、センチュリオン　００４６、センチュリオン・センター、ゴードン・フッド・アベニュー　１２６７、レイク・ブエナ・ビスタ・ビルディング　３階
(74)代理人　100097984
弁理士　川野　宏
(72)発明者　ヒンドレイ・マイケル・フィリップ
南アフリカ共和国、センチュリオン　０１５７、エルドレイン、サックスビー・アベニュー　５８

最終頁に続く

(54)【発明の名称】放射性廃棄物の処理方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕して、該微粒子状の放射線照射済物質を得る処理工程、微粒子状の放射線照射済物質またはそれら物質の誘導体を流体中に懸濁して、懸濁物を形成する処理工程、懸濁された微粒子状の放射線照射済物質のサイズを低減する処理工程、およびその後、放射性同位元素を生物学的処理によって前記懸濁物から除去する処理工程を含む、放射線照射済物質の処理方法において、

放射性同位元素を生物学的処理によって懸濁物から除去する前記処理工程は、微粒子状の放射線照射済物質を懸濁物から分離する処理工程、そのように分離された微粒子状の放射線照射済物質を水と混合してスラリーを得る処理工程、およびスラリーを生物学的に処理する処理工程を含み、スラリーを生物学的に処理する前記処理工程は、該スラリーをバイオフィルターに通す処理工程を含む、放射線照射済物質の処理方法。

【請求項２】

前記放射線照射済物質は、原子炉の構造要素、もしくは核燃料または減速材要素から誘導される物質を含む、請求項１に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項３】

前記放射線照射済物質はグラファイト物質を含む、請求項１または請求項２に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項４】

前記スラリー中に存在する放射性同位元素のレベルを、該スラリーの生物学的処理後に

測定する処理工程、および該レベルが所定の最大値を超える場合には、該スラリーをさらなる生物学的処理のために再循環する処理工程を含む、請求項１～３のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項５】

懸濁された前記微粒子状の放射線照射済物質のサイズを低減する前記処理工程は、懸濁物中の粒子をミリングまたはグラインディングする処理工程を含む、請求項１～４のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項６】

前記放射線照射済物質が、そこに懸濁されたグラファイト物質および燃料粒子を含む核燃料要素から誘導される場合には、放射性同位元素を懸濁物から除去する前に、該燃料粒子を懸濁物から分離する処理工程を含む、請求項１～５のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項７】

分離された前記燃料粒子に中性子照射して、核分裂性生成物のより短寿命種への核変換を誘導する処理工程を含む、請求項６に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項８】

前記照射される中性子は、最大４ｅＶのエネルギーを有する、請求項７に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項９】

前記核分裂性生成物による中性子吸収中に生成される熱を、後工程での処理または外部の処理で用いるために抽出する処理工程を含む、請求項７または請求項８に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項１０】

放射線照射済物質を微粒子状の放射線照射済物質へ粉砕する前記処理工程は、該放射線照射済物質を破砕する処理工程を含む、請求項１～９のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項１１】

放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する前記処理工程は、該放射線照射済物質を液体媒体中に懸濁する処理工程、および放射線照射済物質を機械振動に付す処理工程を含む、請求項１～９のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項１２】

前記振動は低周波振動である、請求項１１に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項１３】

前記振動は高周波振動である、請求項１１に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項１４】

放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する前記処理工程は、高周波パルス電界を物質に印加する処理工程を含む、請求項１～９のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項１５】

放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する前記処理工程は、放射線照射済物質を加熱する処理工程、および低温流体を、加熱された物質の表面に供給する処理工程を含む、請求項１～９のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項１６】

前記低温流体は液体ヘリウムである、請求項１５に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項１７】

前記放射線照射済物質はマイクロ波照射によって加熱される、請求項１５または請求項１６に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項１８】

放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する前記処理工程は、前記放射線照射済物質を温

度－２５０℃～－２７０℃に冷却する処理工程、およびその後物質を温度１８０℃～２００℃へ急速に加熱する処理工程を含む、請求項１～９のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項１９】

放射線照射済物質を冷却する前記処理工程は、物質を冷却流体中に温度－２５０℃～－２７０℃で浸漬する処理工程を含む、請求項１８に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項２０】

放射線照射済物質を急速に加熱する前記処理工程は、物質を１８０℃～２００℃に加熱された流体媒体中に浸漬する処理工程を含む、請求項１８または請求項１９に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項２１】

微粒子状の放射線照射済物質またはそれら物質の誘導体を流体中に懸濁する前記処理工程は、液中粒子のエマルジョンを形成する処理工程を含む、請求項１～２０のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項２２】

前記エマルジョンを形成する前に、粒子を２００℃へ加熱する処理工程を含む、請求項２１に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項２３】

前記懸濁物が、前記微粒子状の放射線照射済物質または該微粒子状の放射線照射済物質の誘導体をガス状懸濁物中に含む場合には、前記放射性同位元素を生物学的処理によって懸濁物から除去する前記処理工程は、ガス状懸濁物を水に溶解してスラリーを得る処理工程、およびその後該スラリーを生物学的に処理する処理工程を含む、請求項１～２０のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項２４】

前記微粒子状の放射線照射済物質または該微粒子状の放射線照射済物質の誘導体を流体中に懸濁する前記処理工程は、前記微粒子状の放射線照射済物質を酸化剤の存在下に加熱して、該微粒子状の放射線照射済物質の誘導体を前記ガス状懸濁物中から得る処理工程を含む、請求項２３に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項２５】

前記放射性同位元素を、前記懸濁物から、該懸濁物の生物学的処理前に除去する処理工程を含み、該除去は、該懸濁物を流路に沿って方向付ける処理工程、該放射性同位元素を、該懸濁物から、流路の長さに沿って定められる同位元素収集域の方向に偏向させる処理工程、および同位元素を同位元素収集域で収集する行程による、請求項１～２４のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項２６】

放射性同位元素を収集する前記処理工程は、該放射性同位元素を同位元素沈積床に包埋する処理工程を含み、該同位元素沈積床は、グラファイト、クロム、白金、クロム合金、炭化ケイ素、ＳｉＮ、ＳｉＦＣ、およびダイヤモンドからなる群から選択される同位元素拡散抵抗物質の少なくとも一層を含む、請求項２５に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項２７】

前記同位元素沈積床が、流体沈積物質の少なくとも一層を含む場合には、該同位元素沈積床の流体沈積物質を除去および置換する処理工程を含む、請求項２６に記載の放射線照射済物質の処理方法。

【請求項２８】

前記流体沈積物質を循環させる処理工程、および該流体沈積物質を第二の同位元素除去処理に付す処理工程を含み、該第二の同位元素除去処理に付す処理工程は、該流体沈積物質を流路に沿って方向付ける処理工程、前記放射性同位元素を、該流体沈積物質から、流路の長さに沿って定められる同位元素収集域または一連の同位元素収集域の方向に偏向させる処理工程、および該放射性同位元素を該同位元素収集域で収集する処理工程を含む、

請求項２７に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項２９】
放射性同位元素を収集する前記処理工程は、循環通路を提供する処理工程、および前記放射性同位元素を該循環通路に導く処理工程を含む、請求項２５に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項３０】
放射性同位元素を前記循環通路に導く前記処理工程は、該循環通路を横切って磁界を印加する処理工程を含む、請求項２９に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項３１】
放射性同位元素を懸濁物から偏向させる前記処理工程は、荷電同位元素が前記流路中で磁気的に偏向されるように、該流路を横切って磁界を印加する処理工程を含む、請求項２５～３０のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項３２】
放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕して、微粒子状の放射線照射済物質を得る処理工程、該微粒子状の放射線照射済物質またはそれら物質の誘導体をガス中に懸濁して、ガス状懸濁物を形成する処理工程、該ガス状懸濁物を水に溶解して、スラリーを得る処理工程、およびその後、該スラリーを生物学的に処理し、放射性同位元素を懸濁物から除去する処理工程を含む、放射線照射済物質の処理方法。
【請求項３３】
スラリーを生物学的に処理する前記処理工程は、該スラリーをバイオフィルターに通す処理工程を含む、請求項３２に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項３４】
前記スラリー中に存在する放射性同位元素のレベルを、該スラリーの生物学的処理後に測定する処理工程、および該レベルが所定の最大値を超える場合には、該スラリーをさらなる生物学的処理のために再循環する前記処理工程を含む、請求項３３に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項３５】
流体中に懸濁される微粒子状の放射線照射済物質のサイズを、前記放射性同位元素を前記懸濁物から除去する前に低減する処理工程を含む、請求項３２～３４のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項３６】
懸濁された微粒子状の放射線照射済物質のサイズを低減する前記処理工程は、前記懸濁物中の微粒子をミリングまたはグラインディングする処理工程を含む、請求項３５に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項３７】
前記放射線照射済物質が、そこに懸濁されたグラファイト物質および燃料粒子を含む核燃料要素から誘導される場合には、放射性同位元素を懸濁物から除去する前に、該燃料粒子を懸濁物から分離する処理工程を含む、請求項３２～３６のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項３８】
放射線照射済物質を微粒子状の放射線照射済物質へ粉砕する前記処理工程は、該放射線照射済物質を破砕する処理工程を含む、請求項３２～３７のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項３９】
放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する前記処理工程は、該放射線照射済物質を液体媒体中に懸濁する処理工程、および該放射線照射済物質を機械振動に付す処理工程を含む、請求項３２～３７のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項４０】
放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する前記処理工程は、高周波パルス電界を物質に印加する処理工程を含む、請求項３２～３７のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の

処理方法。
【請求項４１】
放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する前記処理工程は、前記放射線照射済物質を加熱する処理工程、および低温流体を、加熱された物質の表面に供給する処理工程を含む、請求項３２～３７のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項４２】
放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する前記処理工程は、前記放射線照射済物質を温度－２５０℃～－２７０℃へ冷却する処理工程、およびその後物質を温度１８０℃～２００℃へ急速に加熱する処理工程を含む、請求項３２～３７のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項４３】
微粒子状の放射線照射済物質またはそれら物質の誘導体を流体中に懸濁する前記処理工程は、前記微粒子状の放射線照射済物質を酸化剤の存在下に加熱して、前記微粒子状の放射線照射済物質の誘導体をガス状懸濁物中から得る処理工程を含む、請求項３２～４２のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【請求項４４】
前記放射性同位元素を、前記懸濁物から、該懸濁物の生物学的処理前に除去する処理工程を含み、該除去は、該懸濁物を流路に沿って方向付ける処理工程、該放射性同位元素を、該懸濁物から、流路の長さに沿って定められる同位元素収集域の方向に偏向させる処理工程、および同位元素を同位元素収集域で収集する処理工程による、請求項３２～４３のいずれか１項に記載の放射線照射済物質の処理方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
この発明は、放射性廃棄物の処理方法に関する。より詳しくは、本発明は、放射線照射済グラファイト物質の処理方法、原子炉からの放射線照射済構造物質の処理方法、放射性廃棄物の処理方法、および使用済み核燃料要素の処理方法に関する。
【発明の開示】
【課題を解決するための手段】
【０００２】
本発明の一態様にしたがって、放射線照射済物質の処理方法が提供される。該方法は、放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕して、該微粒子状の放射線照射済物質を得る処理工程、微粒子状の放射線照射済物質またはそれら物質の誘導体を流体中に懸濁して、懸濁物を形成する処理工程、懸濁された微粒子状の放射線照射済物質のサイズを低減する処理工程、およびその後、放射性同位元素を生物学的処理によって前記懸濁物から除去する処理工程を含む、放射線照射済物質の処理方法において、
放射性同位元素を生物学的処理によって懸濁物から除去する前記処理工程は、微粒子状の放射線照射済物質を懸濁物から分離する処理工程、そのように分離された微粒子状の放射線照射済物質を水と混合してスラリーを得る処理工程、およびスラリーを生物学的に処理する処理工程を含み、スラリーを生物学的に処理する前記処理工程は、該スラリーをバイオフィルターに通す処理工程を含む。
【０００３】
一般的には、放射線照射済物質とは、原子炉（例えば、炉心の中央減速材カラム、もしくは炉心のトップ、サイド、またはボトム反射体）の構造要素から、グラファイトまたは核分裂性物質（燃料粒子に組込まれる）を含む核燃料要素から、または減速材要素から誘導されるグラファイトであろう。グラファイト出発物質は、したがって、一般的には、構造要素から誘導されるグラファイトの場合には、ブロックの形態であろうし、核燃料要素および減速材要素の場合には、球の形態であろう。
【０００４】
本方法は、放射性同位元素を懸濁物から除去する前に、流体中に懸濁される微粒子状の

放射線照射済物質のサイズを低減する処理工程を含んでもよい。微粒子状の放射線照射済物質のサイズを低減する処理工程は、懸濁物中の粒子をミリングまたはグラインディングする処理工程を含んでもよい。

【０００５】

放射線照射済物質が、そこに拡散されたグラファイト物質および燃料粒子を含む核燃料要素から誘導される場合には、典型的には、グラファイト微粒子状の放射線照射済物質またはそれら物質の誘導体、および燃料粒子は両方とも、流体懸濁物中に存在するであろう。本方法は、次いで、放射性同位元素を懸濁物から除去する前、または懸濁物中のグラファイト微粒子状の放射線照射済物質のサイズを低減する前に、燃料粒子を懸濁物から分離する処理工程を含んでもよい。

【０００６】

本方法は、懸濁された燃料粒子を中性子照射して、核分裂性生成物のより短い寿命種への核変換を誘導する処理工程を含んでもよい。照射される中性子は、最大４ｅＶのエネルギーを有してもよい。本方法は、核分裂性生成物による中性子吸収中に生成される熱を、後工程での処理または外部の処理で用いるために抽出する処理工程を含んでもよい。

【０００７】

放射線照射済物質は、サイズ最大約３ｍｍを有する粒子を含む微粒子状の放射線照射済物質へ粉砕されてもよい。放射線照射済物質を微粒子状の放射線照射済物質に粉砕する処理工程は、放射線照射済物質を破砕する処理工程を含んでもよい。代わりに、放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する処理工程は、放射線照射済物質を液体媒体中に懸濁する処理工程、および放射線照射済物質を機械振動に付す処理工程を含んでもよい。振動は、低周波振動であってもよいし、高周波振動さらには超音波振動であってもよい。他の実施形態においては、放射線照射済物質は、高周波パルス電界（例えば「人工ライトニング」）により微粒子形態に粉砕されてもよい。さらに他の実施形態においては、放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する処理工程は、放射線照射済物質を加熱する処理工程、および低温流体を加熱された放射線照射済物質の表面に供給する処理工程を含んでもよい。より詳しくは、低温流体は、液体ヘリウムであってもよい。液体ヘリウムは、加圧されてもよい。放射線照射済物質は、マイクロ波照射により加熱されてもよい。

【０００８】

さらに他の実施形態においては、放射線照射済物質を微粒子形態に粉砕する処理工程は、放射線照射済物質を温度約－２５０℃～約－２７０℃へ冷却する処理工程、およびその後放射線照射済物質を温度約１８０℃～約２００℃へ急速に加熱する処理工程を含んでもよい。放射線照射済物質を冷却する処理工程は、放射線照射済物質を冷却流体中に温度約－２５０℃～約－２７０℃で浸漬する処理工程を含んでもよい。放射線照射済物質を急速に加熱する処理工程は、放射線照射済物質を温度約１８０℃～約２００℃へ加熱された流体媒体中に浸漬する処理工程を含んでもよい。

【０００９】

微粒子状の放射線照射済物質またはそれらの誘導体を流体中に懸濁する処理工程は、液体中の微粒子状の放射線照射済物質のエマルジョンを形成する処理工程を含んでもよい。液体は、乳化剤／界面活性剤によって提供されてもよい。商品名「エコール３５Ｎ（ＥＫＯＬ３５Ｎ）」として入手可能なものなどである。本方法は、エマルジョンを形成する前に、微粒子状の放射線照射済物質を約２００℃へ加熱する処理工程を含んでもよい。典型的には、放射線照射済物質は、炭化樹脂によって結合された天然グラファイトおよび熱分解グラファイトを含むグラファイトを含んでもよい。炭化樹脂は、グラファイト結晶構造中の結合剤と同様に、乳化剤によって分解されてもよく、一方グラファイト粒子物質は、乳化剤の懸濁物中にある。

【００１０】

これに替えて、微粒子状の放射線照射済物質またはそれらの誘導体を流体中に懸濁する処理工程は、微粒子状の放射線照射済物質を酸化剤（例えばフッ素または酸素ガスなど）の存在下に加熱して、微粒子状の放射線照射済物質の誘導体をガス状懸濁物中で得る処理

工程を含んでもよい。例えば、炭素化合物である、グラファイト粒子の誘導体および／または炭素のガス状酸化生成物（ＣＯおよびＣＯ$_2$など）である。微粒子状の放射線照射済物質は、加圧下で加熱されてもよい。

【００１１】

放射性同位元素を懸濁物から除去する処理工程は、懸濁物を流路に沿って方向付ける処理工程、放射性同位元素を、懸濁物から、流路の長さに沿って定められる同位元素収集域の方向に偏向させる処理工程、および同位元素を同位元素収集域で収集する処理工程を含んでもよい。

【００１２】

放射性同位元素を収集する処理工程は、同位元素を同位元素沈積床に包埋する処理工程を含んでもよい。同位元素沈積床は、同位元素拡散抵抗物質の少なくとも一層を含んでもよい。同位元素拡散抵抗物質は、グラファイト、クロム、白金、クロム合金、炭化ケイ素、ＳｉＮ、ＳｉＦＣ、および炭素（ダイヤモンド）からなる群から選択されてもよい。好ましくは、同位元素沈積床は、グラファイトの第一層、クロム、白金、クロム合金、水銀、および液体ナトリウムからなる群から選択される物質の第二層、ならびに炭化ケイ素、ＳｉＮ、ＳｉＦＣ、およびダイヤモンドからなる群から選択される物質の第三層を含む。第二層は、第一層および第三層の間に挟まれた中間層を提供してもよい。第一層は、典型的には、作用可能な内側層を提供し、第三層は、典型的には、流路に隣接する作用可能な外側層を提供するであろう。一実施形態においては、同位元素沈積床は、少なくとも一層の流体沈積物質を含む。本方法は、その際、同位元素沈積床の流体沈積物質を除去および置換する処理工程を含む。より詳しくは、本方法は、流体沈積物質を循環する処理工程を含んでもよい。流体沈積物質を循環する処理工程は、流体沈積物質を第二の同位元素除去処理に付す処理工程を含んでもよい。これは、流体沈積物質を流路に沿って方向付ける処理工程、同位元素を、流体沈積物質から、流路の長さに沿って定められる同位元素収集域または一連の同位元素収集域の方向に偏向させる処理工程、および同位元素を同位元素収集域で収集する処理工程を含んでもよい。

【００１３】

これに替えて、同位元素を収集する処理工程は、循環通路を提供する処理工程、および同位元素をその循環通路に導く処理工程を含んでもよい。放射性同位元素を循環通路に導く処理工程は、循環通路を横切って磁界を印加せしめる処理工程を含んでもよい。

【００１４】

放射性同位元素を懸濁物から偏向させる処理工程は、荷電同位元素が流路中で磁気的に偏向されるように、磁界を流路を横切って印加せしめ処理工程を含んでもよい。同位元素が、同位元素収集域中に磁気的に偏向される場合には、本方法は、放射性同位元素を含む懸濁物を、同位元素イオン化装置（例えば、中性子源または電磁放射、特にＸ線またはＵＶ放射装置など）を通して送る予備処理工程を含んでもよい。

【００１５】

磁界を印加する処理工程は、少なくとも一つの永久磁石を、流路との磁気偏向関係で配置する処理工程を含んでもよい。これに替えて、磁界を印加する処理工程は、少なくとも一つの電磁石を、流路との磁気偏向関係で配置する処理工程を含んでもよい。磁界を印加する処理工程は、その際、磁界を脈動させる処理工程を含んでもよい。

【００１６】

前述したように、放射性同位元素を生物学的処理によって懸濁物から除去する処理工程は、微粒子状の放射線照射済物質を懸濁物から分離する処理工程、そのように分離された微粒子状の放射線照射済物質を水と混合してスラリーを得る処理工程、およびその後スラリーを生物学的に処理する処理工程を含む。また、懸濁物が、微粒子状の放射線照射済物質の誘導体をガス状懸濁物中に含む場合には、放射性同位元素を生物学的処理によって懸濁物から除去する処理工程は、ガス状懸濁物を水に溶解してスラリーを得る処理工程、およびその後スラリーを生物学的に処理する処理工程を含んでもよい。

【００１７】

前述したように、スラリーを生物学的に処理する処理工程は、スラリーをバイオフィルターに通す処理工程を含む。「バイオフィルター」とは、生物（例えばバクテリア）を用いてスラリー中の粒子を消費／分解し、同様にスラリーから除去される汚染物を捕捉するろ過装置と理解されるべきである。より詳しくは、生物／バクテリアは、スラリー中に含まれる放射性同位元素（例えば、炭素－１４（C_{14}）などの炭素－１２（C_{12}）より重い原子）を捕捉してもよい。典型的には、バイオフィルターは、微生物を含浸された膜フィルター要素、および／または微生物を被覆されたスラリー流路を含むであろう。スラリー流路を通るかまたはそこに沿って、スラリーが送られる。

【００１８】

本方法は、スラリー中に存在する放射性同位元素のレベルを、スラリーの生物学的処理後に測定する処理工程、およびレベルが所定の最大値を超える場合には、スラリーをさらなる生物学的処理のために再循環する処理工程を含んでもよい。

【発明を実施するための最良の形態】

【００１９】

本発明は、ここで、実施例により、添付の線図を引用して説明されるであろう。

【００２０】

図１においては、引用数字１０は、一般に、本発明の放射線照射済グラファイト物質の処理方法を指す。処理工程１２で、放射線照射済グラファイト物質は、典型的には、原子炉の構造要素（例えば炉心の中央カラムまたはサイド反射体）から、グラファイト減速材要素から、または燃料粒子中に組込まれたグラファイトおよび核分裂性物質を含む核燃料要素から生じるが、これは、微粒子形態に粉砕される。グラファイト出発物質は、典型的には、物質が原子炉の構造要素から誘導される（派生する）場合にはブロックの形態にあるか、もしくは核燃料要素または減速材要素の場合には球の形態にある。しかし、本発明はまた、他の形態のグラファイトにも適用可能である。

【００２１】

本発明の一方法においては、グラファイト物質は、処理工程１２で、ベル－クラッシャー（ｂｅｌｌ－ｃｒｕｓｈｅｒ）、ジョー－クラッシャー（ｊａｗ－ｃｒｕｓｈｅｒ）などを用いることによる機械破砕によって微粒子形態に粉砕される。この方法は、典型的には、反応器（原子炉）構造物質または減速材要素のグラファイトブロックに対して用いられ、したがってグラファイト出発物質組込み燃料粒子に対しては用いられない。サイズ約２ｍ×１ｍ×１ｍのブロック、または減速材要素は、クラッシャー中に挿入され、サイズ最大約３ｍｍの粒子へ粉砕される。

【００２２】

本発明の他の方法においては、処理工程１２で、グラファイト物質は、液体媒体（典型的には、懸濁流体（下記説明を参照されたい）によって提供される）中に懸濁され、液体媒体内で、低周波によって生じる機械振動に付される。これにより、グラファイト物質が分解されて、粒子が得られる。この方法は、典型的には、球状の核燃料要素に対して用いられる。

【００２３】

これに替えて、液体媒体内のグラファイト物質は、高周波または超音波によって生じる機械振動に付されてもよい。これにより、同様に、グラファイト物質が微粒子形態に分解および粉砕される。この方法は、典型的には、反応器（原子炉）構造物質のグラファイトブロックに対して用いられる。

【００２４】

本発明のさらに他の実施形態においては、微粒子形態に粉砕されるべき物質は、パルス高周波電界（例えば人工ライトニング）に付される。

【００２５】

さらに他の方法においては、グラファイト物質は、処理工程１２で、マイクロ波照射によりそれらを約６００℃へ加熱し、同時に低温流体（加圧液体ヘリウムなど）を、例えば

ノズルからの噴霧によりグラファイト物質の表面へ供給することによって、微粒子形態に粉砕される。これは、迅速に、グラファイト物質の層を分解および「剥離」する効果を有する。この方法は、典型的には、反応器（原子炉）構造物質のグラファイトブロック、ならびに球状の核燃料要素および減速材要素の両方に対して用いられる。

【００２６】

さらに他の方法においては、グラファイト物質は、処理工程１２で、グラファイト物質を温度約－２５０℃～約－２７０℃へ冷却（グラファイト物資を冷却流体中にこの温度で浸漬することによる）し、その後グラファイト物質を温度約１８０℃～約２００℃へ急速に加熱することによって、微粒子形態に粉砕される。グラファイト物質は、冷却後、約１８０℃～約２００℃へ加熱される流体媒体中に浸漬することによって急速に加熱される。これは、一実施形態においては、乳化剤（以下に記載される）によって提供される。この方法は、典型的には、反応器（原子炉）構造物質のグラファイトブロック、ならびに球状の核燃料要素および減速材要素の両方に対して用いられる。

【００２７】

処理工程１４においては、グラファイト微粒子物質は、約１８０℃～約２００℃へ加熱され、液体（乳化剤によって提供される）中に懸濁され、それにより液体中にグラファイト微粒子物質のエマルジョンが形成される。乳化剤は、商品名「エコール３５Ｎ（ＥＫＯＬ３５Ｎ）」として入手可能な乳化剤であってもよい。勿論、いかなる他の乳化剤も用いられてよい。典型的には、グラファイト物質は、炭化樹脂によって結合された天然および熱分解の両グラファイトを含む。乳化剤は、グラファイト結晶構造中の結合剤同様に、炭化樹脂を分解するように働く。熱は、この分解処理を促進し、化学分解によって得られるグラファイト微粒子物質は、乳化剤／液体中に懸濁される。温度１６０℃～２００℃では、エマルジョン／懸濁物は、水のそれに匹敵する粘度を有する。

【００２８】

グラファイト物質が、核燃料要素から誘導される場合には、燃料要素の一部分を構成し、懸濁物中にグラファイト物質と一緒に保持される核分裂性物質の燃料粒子は、処理工程１６で、懸濁物からろ過される。燃料粒子は、任意に、ヘリウムキャリアガス中に懸濁され、核変換反応器（原子炉）、または所謂「アクチニド焼却炉」を通して供給されるか、またはキャニスターに移送されて、処理工程１８で、バルクで核変換反応器（原子炉）を通過する。ここで、燃料粒子は、中性子照射されて、燃料粒子中に含まれる長寿命核分裂性生成物の核変換が誘導される。照射される中性子は、典型的には、最大４ｅＶのエネルギーを有し、そのため、次原子粒子の置換えを伴うことなく、またそれに付随する連鎖反応を開始することなく中性子吸収を誘導する。中性子吸収は、燃料粒子中に含まれる長寿命の核分裂性生成物／アクチニドを、より短い半減期を有する放射性種にかえる。出願人は、これが、効果的に、燃料粒子中に存在する多数のアクチニドを、長期間貯蔵のために許容可能なレベルまで低減するのに役立つと考える。典型的には、熱が、これらの中性子吸収および核変換中に生成される。この熱は、後工程での処理または外部の処理で用いるために抽出されてもよい。例えば、淡水化または発電プロセスなどである。

【００２９】

処理工程２０においては、グラファイト微粒子物質の懸濁物は、粉砕装置を通して供給され、一つ以上の連続ミリング処理工程に付される。懸濁物は、典型的にはポンプを通して送られる。これにより、懸濁物／エマルジョンが粉砕装置を通して圧送される。各ミリング処理工程は、エマルジョン／懸濁物中のグラファイト微粒子物質のサイズを低減する。連続ミリング処理工程の後、グラファイト粒子は、典型的には、最大約４ナノメートルのサイズを有する。

【００３０】

処理工程２２においては、放射性同位元素を含む精製懸濁物は、先ず、同位元素イオナイザーを通して送られる。同位元素イオナイザーは、例えばフォトン源、中性子源、熱源、または電磁波照射源（Ｘ線またはＵＶ放射装置など）などである。懸濁物は、次に、荷電粒子（荷電放射性同位元素を含む）を懸濁物から偏向するための磁気偏向配置された磁

気偏向構成により、流路に沿って送られる。同位元素沈積床は、流路内に提供され、その中でまたはその方向に、荷電粒子が偏向され、そこに荷電粒子が収集および保持される。放射性同位元素は、したがって、処理工程２２で、懸濁物から除去される。

【００３１】

図３を引用する。ここでは、引用数字１５０は、一般に、本発明の方法で用いるための磁気偏向配置を指す。磁気偏向配置１５０には、流路１５４（それに沿って、懸濁物が方向付けられる）を定める流路画定手段１５２の周りに配置される磁石が含まれる。磁石は、永久磁石である。しかし、磁石は、電磁石であってもよい。磁気偏向配置１５０には、二組（１５６、１５８）の環状セグメント磁石１６０が含まれる。これは、縦方向に間隔を置いた位置で、流路画定手段１５２に隣接して配置される。各組１５６、１５８における磁石１６０のペアは、それぞれ互いに反対位置に配置され、磁石１６０の異極性の極が、それぞれ、内側および外側を向くように配置される。このように、各組１５６、１５８は、それぞれ、外側方向のＮ極および反対の外側方向のＳ極、ならびに対応する内側方向のＳ極および反対の内側方向のＮ極を有する。磁石１６０の組１５６、１５８の極性の極は、角度的に相殺される。好ましくは、図３に示されるように、組１５６、１５８の磁石１６０の極を、互いに約４５度の角度関係とすることにより相殺される。

【００３２】

磁気偏向配置３０にはまた、環状磁石１６４が含まれる。これは、流路画定手段１５２の周りに配置され、磁石の１５６、１５８の組から縦方向に間隔を置かれる。磁気偏向配置１５０は、磁界を流路１５４内に発生させる。電荷を有する粒子（懸濁物中のイオン化された放射性同位元素など）、および磁界中を通って高速で移動する粒子は、所定方向から力を受け、その移動路から、流路画定手段１５２の内部表面の方向へ偏向される。

【００３３】

図４は、流路画定手段１５２の一部分を縦断面で示し、特段に示されない限り、図３について上記に用いられた同じ引用数字が、類似の部分を示すのに用いられる。流路画定手段１５２の内部表面は、その上に配された沈積ライニング１７０を有する。沈積ライニング１７０は、同位元素沈積床であり、そこに順番にイオン化された放射性同位元素が、偏向および包埋され（すなわち収集および保持され）、懸濁物から除去される収集域を提供するものである。

【００３４】

沈積ライニング１７０は、複数層の物質を含む。これは、そこを通る放射性同位元素の拡散を抑制するからである。好ましい実施形態においては、ライニング１７０は、グラファイトの半径方向に最も内側の層１７２を含み、イオン化された同位元素の着床域および放射性同位元素の減速器を提供する。層１７２は、しかし、代わりに、いかなる他の適切な緩やかな温度抵抗物質からなってもよい。クロムの中間層１７４は、グラファイト層１７２および炭化ケイ素の外側層１７６の間に挟まれる。クロムの代わりに、放射線照射損傷に耐性のある白金または合金（特殊クロム合金など）が用いられてもよい。さらに他の実施形態においては、中間層１７４は、流体沈積物質（例えば水銀または液体ナトリウムなど）からなる。流体沈積物質は、典型的には、循環され、循環中に第二の同位元素除去処理が施される処理工程に付される。その際、流体沈積物質は、グラファイト粒子懸濁物と同様に、流路に沿って磁気偏向配置を通って送られる。それによって、流体沈積物質中に含まれる同位元素（その中に混入され、グラファイト粒子懸濁物から除去されている）は、同位元素収集域の方向へ偏向されて、そこに収集される。炭化ケイ素は、イオン化された同位元素および他のイオンが流路画定手段１５２を通って拡散するのを防止するための外側のバリヤー層１７６を提供する。炭化ケイ素の代わりに、外側層は、ＳｉＮ、ＳｉＦＣ、またはダイヤモンドから形成されてもよい。

【００３５】

本発明の他の実施形態（図６に示される）においては、同位元素収集域は、上述した態様の代わりに、一連の縦方向に間隔を置かれた磁気トラップ２００によって提供される。これは、流路画定手段１５２の内部表面２０６上に配される。各磁気トラップ２００は、

通路セクション環形態２０２によって提供され、磁気内部壁２０４を有する。環形態２０２は、流路画定手段１５２の内部表面２０６に対して並列関係で配置され、そのために流路画定手段１５２の円周上に延び、縦方向に間隔を置かれた周辺通路２０８（それぞれ循環通路を提供する）を構成する。磁界は、各通路２０８内において、その磁気内部壁２０４によって発生され、流路１５４を横切って印加される磁界により、通路２０８方向へ偏向されるイオン化された同位元素は、通路２０８の磁界の影響下で循環通路に沿って置換えられるであろう。

【００３６】

図５は、図３の磁気偏向配置１５０に対する磁界を示す。それはまた、懸濁物中の偏向された放射性同位元素の移動路を示す。図５は、単に例証目的のためのものであり、偏向経路が示される粒子は、模擬粒子である。

【００３７】

処理工程２２で除去される放射性同位元素は、乾燥され、処理工程２４での長期間貯蔵のために圧縮される。

【００３８】

処理工程２６で、グラファイト微粒子物質は、分離タンク中で、水をエマルジョンに添加することによって、エマルジョンから分離される。水を添加した際に、エマルジョンは、乳化剤（一番上）、水（中間）、およびグラファイト微粒子物質（分離タンクの底部上に沈降される）の三つの異なる層に分かれる。処理工程２６へ送る前に、分光計検査が、エマルジョンに対して行われてもよい。グラファイト微粒子物質は、処理工程２８で収集され、グラファイト微粒子物質をエマルジョンから分離する処理工程は、乳化剤がグラファイト粒子上に全く残っていないことが確実になるまで繰返される。処理工程３０で、収集されたグラファイト微粒子物質は、水と混合され、スラリーが得られる。

【００３９】

処理工程３２で、スラリーは、スラリーを、バクテリア（バチルス属のバクテリアなど）を用いるバイオフィルターろ過装置を通って送ることによって、生物学的に処理されて、スラリー中のグラファイト微粒子物質が消費／分解され、さらに同様にスラリー中に含まれる放射性同位元素（典型的には、炭素－１２（C_{12}）より重い原子、より詳しく言えば、炭素－１４（C_{14}）を有する）が捕捉される。いかなる残存乳化剤であれ、炭素－１２（C_{12}）より重い粒子の除去手段としてのバイオフィルターの効率を妨げる可能性がある。一実施形態においては、バイオフィルターは、バクテリアを含浸された膜フィルター要素（トレーの形態）を含んでおり、それを通ってスラリーが送られる。他の実施形態においては、バイオフィルターは、バクテリアで被覆されたスラリー流路と定められる。それに沿ってスラリーが送られる。

【００４０】

好ましくは、バイオフィルターを通って送られた後、スラリー中に存在する放射性同位元素のレベルは、検知および測定され、所定の最大値と比較される。所定の最大値を超える場合には、スラリーは、許容可能なレベルが達成されるまで繰返して、バイオフィルターを通して再循環される。バイオフィルターの効率が、所定のレベル未満に落ちる場合には、これは、バクテリアの新規バッチが必要とされることを示すかもしれない。

【００４１】

典型的には、バイオフィルターで用いられるバクテリアは、より重い原子との接触によって殺菌されてしまう。いずれにしても、いかなる残存するバクテリアも、スラリーの生物学的処理後、直ちに消滅して、その変異が防止される。

【００４２】

ここで、図２を引用する。ここでは、特段に示されない限り、上記に用いられると同じ引用数字が、類似の処理工程を示すのに用いられる。

【００４３】

処理工程１２で、グラファイト物質は、上記の図１に関して記載されるものに類似の方法によって、微粒子形態に粉砕される。

【００４４】
処理工程３４で、グラファイト微粒子物質は、ガス状酸化剤（例えば、酸素またはフッ素）の存在下でチェンバー内の圧力下に加熱されて、ガス状懸濁物中の炭素化合物および／または炭素のガス状酸化生成物が得られる。
【００４５】
ガス状懸濁物は、処理工程１６へ送られ、そこで燃料粒子は、存在する場合には、懸濁物から除去され、上記されるように、処理工程１８で処理される。
【００４６】
放射性同位元素は、図１における上記の処理工程２２に記載されているように、処理工程２２で、ガス状流体中においてグラファイト微粒子物質を得た懸濁物から除去される。
【００４７】
処理工程３６で、グラファイト微粒子物質を懸濁物中に含むガス状流体は、水に溶解されて、スラリーが得られる。スラリーは、図１の方法の場合のように、処理工程３２で、バイオフィルターを通って送られる。
【００４８】
バイオフィルターによって得られたグラファイト微粒子物質は、典型的には、乾燥され、加圧され、例えば原子炉の構成要素に再構成される。
【００４９】
出願人は、本発明の方法が、放射性廃棄物質、より詳しくは原子炉、もしくは核燃料要素または減速材要素から得られるグラファイト中に含まれる放射性同位元素を処理する効果的な手段を提供するであろうと考える。本発明の処理方法により、長期間の貯蔵に対してより適切な反応器（原子炉）燃料が得られるであろうと考えられる。燃料の容積は、周囲のグラファイトを除去することによって、効果的に、約９５％未満に低減され、長寿命の核分裂性生成物は、より短寿命の種へ核変換され、そのために貯蔵は、より良好に促進される。本発明の方法により得られるグラファイト微粒子物質は、再利用が可能であろうし、原子炉の構成要素として再構成されることができると考えられる。
【００５０】
ガス冷却反応器（原子炉）においては、炭素－１４（C_{14}）、同様に他の核種の取扱いは特に重要である。大気中への炭素－１４（C_{14}）のいかなる放出／漏出も、環境の観点から望ましくなく、炭素－年代測定法を用いることによる年代測定能力に影響を及ぼす。出願人は、バクテリアを用いて生物学的に処理して、炭素－１４（C_{14}）および他の核種を除去する処理工程を組み込む本発明の方法が、これらの問題を解決するであろうと考える。
【図面の簡単な説明】
【００５１】
【図１】本発明にしたがって、放射線照射済グラファイト物質の処理方法における処理工程の流れの概略図を示す。
【図２】本発明にしたがって、放射線照射済グラファイト物質の他の処理方法における処理工程の流れの概略図を示す。
【図３】本発明の方法にしたがって、懸濁物が送られる流路の一部分の三次元図を示す。
【図４】本発明の方法にしたがって、懸濁物が送られる流路の一部分の縦断面図を示す。
【図５】本発明の方法にしたがって、図３の流路の一部分を横切って印加される磁界、および三次元縦断面の流路の一部分における荷電粒子の偏向の概略図を示す。
【図６】本発明の方法にしたがって、懸濁物が送られる他の流路の一部分の縦断面図を示す。

【図１】

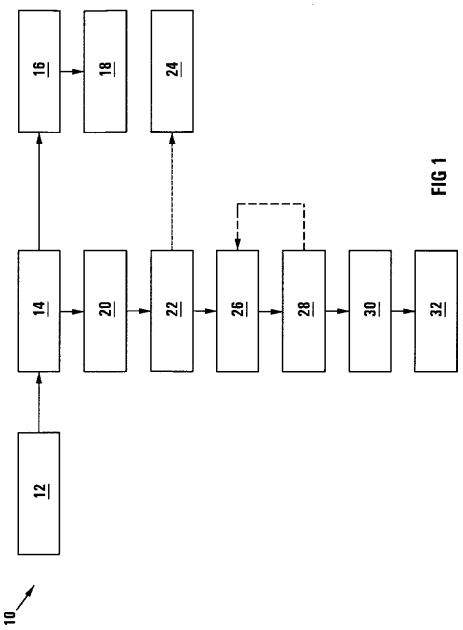


FIG 1

【図２】

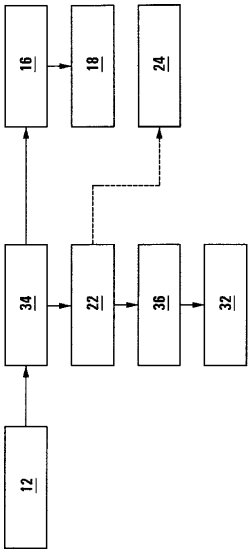


FIG 2

【図３】

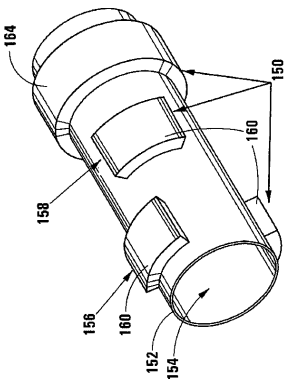


FIG 3

【図４】

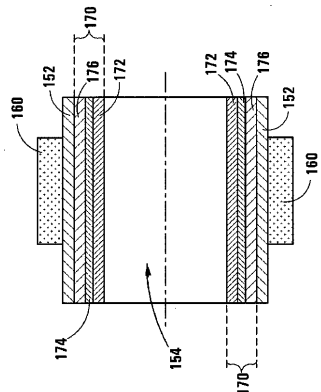


FIG 4

【図５】

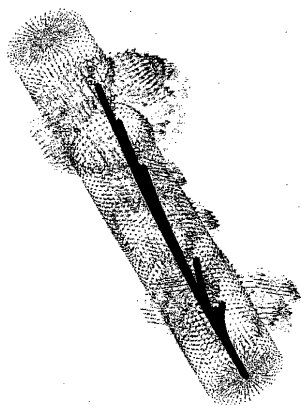


FIG 5

【図６】

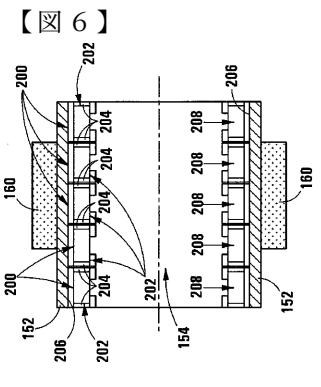


FIG 6

フロントページの続き

(72)発明者　クツィンスキー・レツェック・アンドゥルツェフ
南アフリカ共和国、メンロ・パーク　００８１、ガースフォンテン、スノーウィ・ウォーカー・ストリート　３５４
(72)発明者　バン　ラベンズウェーイ・フランシス・ピーター
南アフリカ共和国、バンダービルパーク　１９１１、カーブーム・ストリート　９

審査官　村川　雄一

(56)参考文献　特開昭６３－２７９２００（ＪＰ，Ａ）
特表２００３－５１１７１０（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
G21F　9/00　-　9/36
C02F　3/00
B01D　59/36