

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2016-122006
(P2016-122006A)

(43) 公開日 平成28年7月7日(2016.7.7)

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)	
G 2 1 F	9/16	(2006.01)	G 2 1 F	9/16	5 4 1 D
G 2 1 F	9/12	(2006.01)	G 2 1 F	9/12	5 1 1 A
			G 2 1 F	9/12	5 0 1 J

審査請求 有 請求項の数 23 O L 外国語出願 (全 17 頁)

(21) 出願番号	特願2016-3341 (P2016-3341)	(71) 出願人	512231853 クリオン インコーポレイテッド アメリカ合衆国 99352 ワシントン、リッチランド、コロンビアパークトレイル 1355
(22) 出願日	平成28年1月12日 (2016.1.12)	(74) 代理人	110000855 特許業務法人浅村特許事務所
(62) 分割の表示	特願2012-557195 (P2012-557195) の分割	(72) 発明者	デントン、マーク、エス、 アメリカ合衆国、テネシー、ノクスビル、バイントン ソルウェイ ロード 3339
原出願日	平成23年3月9日 (2011.3.9)		
(31) 優先権主張番号	61/312,029		
(32) 優先日	平成22年3月9日 (2010.3.9)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

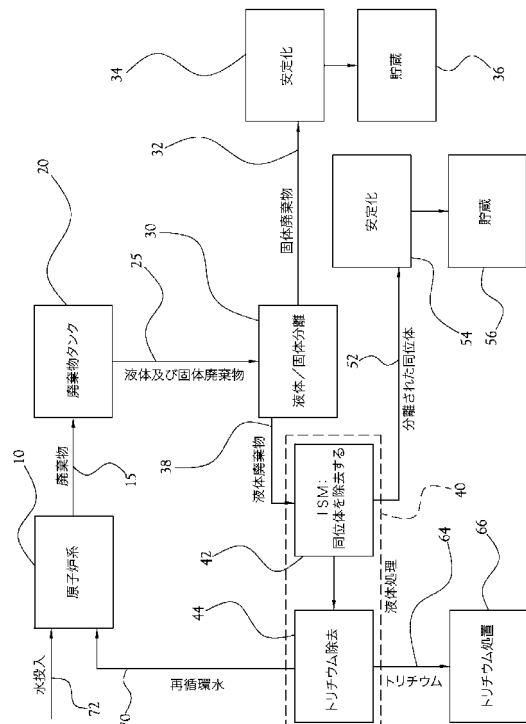
(54) 【発明の名称】 同位体特定分離及びイオン特定媒体を使用するガラス固化

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 廃棄物分類を決める同位体を、現場貯蔵のために非常に小さいパッケージに導き入れ、現場外廃棄のために低次分類の廃棄物の体積を高める特定放射性同位体の安定化方法を提供する。

【解決手段】 特定の放射性同位体を液体放射性廃棄物から同位体特定媒体 (ISM) を用いて分離、単離、又は除去し、次いで分離、単離、又は除去された同位体を ISM と共にガラス固化する。この同位体特定ガラス固化 (ISV) は、多くの場合、放射性同位体を長期貯蔵又はその他の処置のために調製する大型計画におけるステップである。

【選択図】 図 1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

原子炉からの放射性廃棄物を処理し、前記放射性廃棄物から特定の放射性同位体を分離し、前記分離している特定の放射性同位体を安定化させるための方法であって、放射性廃棄物を、放射性同位体を含む液体廃棄物と固体廃棄物とに分離するステップと

、放射性同位体を含む前記液体廃棄物を、カラムの頂端部上の注入管路を通過させて、略垂直方向に生成された浸漬管を下方に、前記カラムの底端部に通過させるステップであって、

前記液体廃棄物は、前記浸漬管に取り付けられ、前記コラムの前記底端部の略水平方向上側に吊るされる分配環により、前記カラム全体にわたって分散され、前記分配環は前記コラムの前記底端部に向かって下側方向に前記液体廃棄物を案内する複数の分配穴を有し、前記分散された液体廃棄物は、前記液体廃棄物から特定の放射性同位体を補足するために、前記カラムの前記底端部から前記カラム内に含まれる同位体特定媒体に押圧されるステップと、

10

前記カラムの前記頂端部の排出管路を通過して、前記カラムの外側に、減少した量の前記特定の放射性同位体を含む前記液体廃棄物を押圧するステップと、

前記カラムに含まれる前記同位体特定媒体及び補足された放射性同位体をガラス固化して、ガラスマトリックスにするステップであって、前記浸漬管及び前記分配環は両方とも前記マトリックス内に包み込まれるステップと、

20

【請求項 2】

前記カラムは、特定の放射性同位体の第 1 の群を補足するための第 1 の同位体特定媒体を含む第 1 のカラムを備え、

前記第 1 のカラムの前記排出管路から第 2 のカラムの頂端部上の第 2 の注入管路に、前記液体廃棄物を通過させて、浸漬管を下方に前記第 2 のカラムの底端部へ通過させるステップと、

前記液体廃棄物から特定の放射性同位体の第 2 の異なる群を補足するために、前記第 2 のカラム内に含まれる第 2 の同位体特定媒体の中に、前記第 2 のカラムの前記底端部から前記液体廃棄物を上方に押圧するステップと、

30

減少した量の前記特定の放射性同位体の第 2 の異なる群を含む前記液体廃棄物を前記第 2 のカラムの前記頂端部上の第 2 の排出管路を通過して外側に押圧するステップと。を更に含む請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記第 2 の排出管路から第 3 のカラムの頂端部上の第 3 の注入管路に前記液体廃棄物を通過させて、浸漬管を下方に前記第 3 のカラムの底端部へ通過させるステップと、

前記液体廃棄物から特定の放射性同位体の第 3 の異なる群を補足するために、前記第 3 のカラム内に含まれる第 3 の同位体特定媒体の中に、前記第 3 のカラムの前記底端部から前記液体廃棄物を上方に押圧するステップと、

減少した量の前記特定の放射性同位体の第 3 の異なる群を含む前記液体廃棄物を前記第 3 のカラムの前記頂端部上の第 3 の排出管路を通過して外側に押圧するステップと、を更に含む請求項 2 に記載の方法。

40

【請求項 4】

前記第 1 の同位体特定媒体はセシウム特定の放射性同位体を補足するように構成され、前記第 2 の同位体特定媒体はストロンチウム特定の放射性同位体を補足するように構成され、前記第 3 の同位体特定媒体はテクネチウム特定の放射性同位体を補足するように構成される、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 5】

前記液体廃棄物を同位体特定媒体のカラムに通過させた後、前記液体廃棄物を前記原子炉に再循環させるステップを更に含む、請求項 1 に記載の方法。

50

- 【請求項 6】
前記特定の放射性同位体が、少なくとも 1 つのセシウム同位体を含む、請求項 1 に記載の方法。
- 【請求項 7】
前記特定の放射性同位体が、少なくとも 1 つのストロンチウム同位体を含む、請求項 1 に記載の方法。
- 【請求項 8】
前記同位体特定媒体が、ヒドロキシアパタイトを含む、請求項 7 に記載の方法。
- 【請求項 9】
前記同位体特定媒体が、ヒドロキシアパタイトを含む、微小球を含む、請求項 7 に記載の方法。 10
- 【請求項 10】
前記特定の放射性同位体が、少なくとも 1 つのテクネチウム同位体を含む、請求項 1 に記載の方法。
- 【請求項 11】
前記特定の放射性同位体が、少なくとも 1 つのヨウ素同位体を含む、請求項 1 に記載の方法。
- 【請求項 12】
前記特定の放射性同位体が、ニッケル、コバルト、及び鉛からなる群から選択される少なくとも 1 つの同位体を含む、請求項 1 に記載の方法。 20
- 【請求項 13】
前記同位体特定媒体、及び補足された放射性同位体を、前記カラムに配置している間に前記ガラスマトリックスにガラス固化するステップを更に含む請求項 1 に記載の方法。
- 【請求項 14】
前記同位体特定媒体は、ナトリウム、カルシウム、及びホウ素の混合物から作られるガラスビーズを含み、前記ガラスビーズはリン酸カリウム溶液と混合され、前記ナトリウム、カルシウム、及びホウ素は、前記リン酸カリウム溶液と反応して、ヒドロキシアパタイト層を前記ガラスビーズ上に形成する、請求項 1 に記載の方法。
- 【請求項 15】
前記浸漬管及び前記分配環は、両方共セラミック材料で形成される、請求項 1 に記載の方法。 30
- 【請求項 16】
前記浸漬管及び前記分配環は、両方共多孔質のグラファイト材料で形成される、請求項 1 に記載の方法。
- 【請求項 17】
前記カラムはヘルシェライト材料を含む請求項 1 に記載の方法。
- 【請求項 18】
前記カラムは、外側のステンレス鋼層と内側のグラファイト層とを備え、前記カラムの前記内側のグラファイト層をサセプタとして使用して誘電加熱される前記同位体特定媒体を備える前記同位体特定媒体をガラス固化するステップを含む、請求項 1 に記載の方法。 40
- 【請求項 19】
前記内側のグラファイト層は、前記同位体特定媒体を融解するつぼを形成する、請求項 18 に記載の方法。
- 【請求項 20】
前記カラムは、前記外側のステンレス鋼層と前記内側のグラファイト層との間に配置される絶縁体の中間層を更に備える、請求項 18 に記載の方法。
- 【発明の詳細な説明】
- 【技術分野】
- 【0001】
本出願は、2010年3月9日に提出された米国特許仮出願第 61 / 312 , 029 号 50

の利益を主張する。

【0002】

連邦支援の研究又は開発に関する記述

適用なし

【0003】

本発明は、全般的に放射性廃棄物の処理に関し、特に放射性廃棄物質からの特定の放射性同位体の分離に関する。

【背景技術】

【0004】

特定の放射性同位体を単離し、管理することができることは、放射性物質を出さない清浄安全で確実な放射性廃棄物管理のために必要であり、この管理は、原子力の安全で費用効率の高い使用のために不可欠である。原子力発電所において、放射性同位体は、軽水原子炉の一次水及び二次水ループ中に漏出し、この漏出は、核燃料の崩壊及び炉構成要素の核活性化（炉心からの放射線にさらされることによる）の不可避の結果である。

10

【0005】

廃棄物質中の特定の放射性同位体の濃度は、廃棄物質の廃棄物分類（例えば、クラスA、クラスB、クラスC）によって一般に決定される。廃棄物質の廃棄物分類は、順に、その廃棄物質に対する貯蔵及び廃棄要件を詳細に説明する。通例、高次分類（例えばクラスB又はクラスCなど）が与えられる廃棄物質は、より厳しい貯蔵及び廃棄要件に直面し、管理のためにより多くの費用がかかり、合法的に貯蔵できる場所はより少ない。それ故、廃棄物分類を決めるような特定の放射性同位体を廃棄物質から分離又は除去することによって、高次分類が与えられるその廃棄物質の体積及び量を制限することが望ましい。この関連において、特に望ましいのは、Cs - 137、Sr - 90、Ni - 63、Tc - 99、Am - 241、Co - 58、Co - 60、及びいくつかのウラン同位体を分離するためのシステム、方法及びプロセスである。長期貯蔵又は廃棄のためにそうした特定の放射性同位体を処理する技術、例えば固形化又はガラス固化を介した技術も促進しこれを利用することも、同位体分離技術にとって有利であろう。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

30

【特許文献1】米国特許出願第12 / 985 , 862号明細書

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

イオン特定媒体（Ion-Specific Media）は、廃棄物分類を決定する同位体を選択的に除去する。本発明の1つの目的は、廃棄物分類を決める同位体、特にセシウム - 137、ニッケル - 63、及びストロンチウム - 90を、現場貯蔵のために非常に小さいパッケージに導き入れ、現場外廃棄のために低次分類の廃棄物の体積を高めることである。

【課題を解決するための手段】

【0008】

40

本発明は、その実施例のいくつかにおいて、放射性廃棄物から特定の放射性同位体を分離、単離、又は除去（まとめて「分離」という）するためのプロセス、方法、及び装置を含み、これらのプロセス及び方法は同位体特定媒体（ISM）を採用する。いくつかの実施例において、プロセス及び方法は分離された同位体を一般に同位体特定媒体と共にガラス固化することを更に含み、この同位体特定ガラス固化は、多くの場合、長期貯蔵又はその他の処置のために放射性同位体を調製する大型計画におけるステップである。いくつかの実施例において、本発明は、ガラス固化のための特定の放射性同位体のISMへの同位体特定再生を含む。

【0009】

いくつかの実施例において、ISMは、多孔質の微小球又はヘルシェライトのような多

50

孔質の鉱物を含み、全てのこれら媒体材料は媒体の重量当たりの反応性表面積が大きい。これらの多孔質又は高度に多孔質の媒体は、他の廃棄物質から放射性同位体を分離し、保持する。放射性同位体は、それらが媒体の粒子又は構成物質と接触すると、同位体特定媒体の反応性表面域上又は多孔質構造の間隙空間内に保持される。多くの実施例において、媒体には、その特定の同位体特定媒体が分離するように構成されている、特定の放射性同位体が埋め込まれ、含浸され、又はコーティングされている。一般に、本発明で使用されるISMの各タイプは、特定の同位体又は特定の類若しくは群の同位体を分離するように選択される。

【0010】

本発明の多くの実施例において、特定の放射性同位体の液体廃棄物からのISMに基づく分離は、液体廃棄物が改質されたイオン交換カラム（以後「ISMカラム」）を通過することを含み、ここで液体は、ISMのカラムを通過し、ISMは、液体中の特定の放射性同位体を引き付け、保持し、次いで放射性同位体は、ISMと共にカラム中に留まり、一方液体は、カラムから抜け出る。いくつかの実施例において、分離された放射性同位体を含むISMは、カラム収容器から取り除かれ、ガラス固化のためのるつぼ又は溶融炉に搬送される。いくつかの実施例において、分離された放射性同位体を含むISMは、カラム収容器中に留まり、分離された放射性同位体を含むISMのガラス固化は、カラム収容器内で起こる。ガラス固化がカラム収容器内で起こるこれらの実施例においては、カラム収容器は、ガラス化するつぼとして及び最終廃棄物用の長期貯蔵容器として作用するように構成されたキャニスタを一般に含む。場合によっては、キャニスタは、ステンレス鋼又は同等の材料の外層、絶縁体の中間層、及びグラファイト又は類似の材料の内層（又はライナー層）を備えることにより、放射性同位体を含むISMの熱分解、溶融、及びガラス固化のためのるつぼ又はモジュールとして作用し、いくつかの実施例において、グラファイトの内層は、放射性同位体を含むISMの誘導加熱のためのサセプタとして作用する。これらの実施例のいくつかにおいて、ISMは、ガラス固化プロセスの開始を補足又は助長する材料と混合される。放射性同位体を含むISMの熱分解、溶融、及びガラス固化は、一般に、誘導加熱又はマイクロ波加熱によって達成されるが、熱分解、溶融、及びガラス固化のためのその他の方法もまた本発明に適合する。

【0011】

上記の及び更なる本発明の特徴は、図面と共に読み込まれる以下の発明の詳細な説明からより明確に理解されよう。

【図面の簡単な説明】

【0012】

【図1】液体放射性廃棄物質から特定の放射性同位体を分離するためのISMに基づくシステムを含む、放射性廃棄物質を処理するためのシステムの1つの実例を示すブロック図である。

【図2A】液体放射性廃棄物質から特定の放射性同位体を分離するためのISMに基づくシステムにおいて使用するためのガラス系微小球の電子顕微鏡画像の写真である。

【図2B】液体放射性廃棄物質から特定の放射性同位体を分離するためのISMに基づくシステムにおいて使用するために、後に使用又は改質される、ガラス系微小球を形成するための1つのプロセスを示す図である。

【図2C】液体放射性廃棄物質から特定の放射性同位体を分離するためのISMに基づくシステムにおいて使用するためのヘルシェライト材料の電子顕微鏡画像の写真であり、画像はヘルシェライトをおよそ1050倍の倍率により示す。

【図3A】本発明によるISMカラムの1つの実施例の透視図である。

【図3B】図3Aに示されている実施例を真上から見た図であり、図3Cに示されている断面図が捉えられる線を示す。

【図3C】図3A及び図3Bに示されている実施例の断面図である。

【図4】本発明の1つの実施例を示す図であり、順次に使用されている複数のISMカラムを示す。

10

20

30

40

50

【図5】別の放射性廃棄物処理プロセスのオフガスから放射性同位体を分離するために、ISMカラムが使用される本発明の1つの実施例を示す図である。

【図6】本発明によるISMカラムの代替の実施例の断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0013】

本発明は、その実施例のいくつかにおいて、放射性廃棄物から特定の放射性同位体を分離、単離、又は除去（まとめて「分離」）するためのプロセス及び方法を含み、これらのプロセス及び方法は同位体特定媒体（ISM）を採用する。いくつかの実施例において、プロセス及び方法は、分離された同位体を一般にISMと共にガラス固化することを更に含み、この同位体特定ガラス固化（ISV）は、多くの場合、長期貯蔵又はその他の処置のために放射性同位体を調製する大型計画におけるステップである。多くの場合において、ISMを使用する同位体分離及び同位体特定ガラス固化の両方を含む複合プロセス（即ち、ISM/ISV複合プロセス）は、放射性廃棄物処理のためのより大きなシステムの一部である。

10

【0014】

いくつかの実施例において、ISMは、媒体の重量当たりの反応性表面積が大きい多孔質の微小球を含む。例えば、ISMのために、本発明のいくつかの実施例は、10~100ミクロン程度のオーダの平均直径、1グラム当たり100~200平方メートルの外側と内側とを合わせた表面積、及びおよそ35%~40%の全孔隙率を有するガラス系微小球を使用する。他の実施例は、1グラム当たりおよそ500平方メートルの外側と内側とを合わせた表面積を有する多孔質の鉱物であるヘルシェライトに基づく又はこれを含するISMを使用する。これらの多孔質又は高度に多孔質の媒体は、放射性同位体を他の廃棄物から分離し、保持する。放射性同位体は、それらが媒体の粒子又は構成物質と接触すると、ISMの反応性表面域上又は多孔質構造の割れ目の空間内に保持される。多くの実施例において、媒体は特定の放射性同位体が埋め込まれ、含浸され、又はコーティングされ、特定のISMは特定の放射性同位体を分離するように構成されている。それ故、例えば、セシウム同位体を液体から分離するために使用されるISMの1つのタイプは、セシウムを含むガラス系微小球を含み、これらのセシウムを含むガラス系微小球はセシウム同位体を引き付け、保持するのに特に効果的である。一般に、本発明で使用されるISMの各タイプは、特定の同位体又は特定の類若しくは群の同位体を分離するように選択される。

20

30

【0015】

図1は、ISM/ISVプロセスが構成要素であるより大きいシステムの1つの実施例を示す。図に示されているように、原子炉10からの放射性廃棄物は、最初に廃棄物タンク20に搬送され15、ここで廃棄物は、水中に沈んだ状態で保たれる（それによりこれ自体が一定濃度の放射性同位体を含むようになる）。この段階で液体廃棄物及び固体廃棄物の両方を含む廃棄物は、廃棄物タンク20から液体/固体分離システム30に搬送され25、ここで液体廃棄物（廃棄物タンク20からの水を含む）が固体廃棄物から分離される。液体/固体分離システム30から、固体廃棄物は、安定化34及び貯蔵36に進む32。いくつかの事例においては、固体廃棄物と混合されている水分又は液体の全てが固体廃棄物から液体/固体分離システム30によって分離されないことがあり得、この場合、それらの廃棄物の安定化及び貯蔵は異なって進むことになる。

40

【0016】

液体/固体分離システム30から、固体廃棄物を実質的に含まない液体廃棄物が液体処理システム40に進む38。いくつかの実施例、例えば図1に示されているものにおいて、液体処理システム40は、特定の同位体を分離するためのISMに基づくシステム42及びトリチウムを液体廃棄物から除去するためのトリチウム除去システム44を備える。ISMによって液体廃棄物から除去された分離された同位体52は、安定化され54、貯蔵56又はその他の処置に移される（最終処置又は貯蔵条件は、関与する特定の同位体に多くの場合依存する）。液体廃棄物から除去されたトリチウムは、64からそれ自体の

50

処置 66 に進む。一般的に、回収されたトリチウムは貴重な生成物である。特定の放射性同位体及びトリチウムを今や実質的に含まない液体（殆んどが水）は通常、炉 10 中に再循環され 70、ここでそれは炉 10 中に供給される他の水 72 と組み合わせられる。いくつかの実施例において、液体処理システム 40 から出てくる液体は、再循環されるために炉 10 には進まず、低次分類の廃棄物のための貯蔵に進む。

【0017】

本発明の多くの実施例において、特定の放射性同位体の液体廃棄物からの ISM に基づく分離は、液体廃棄物が改質されたイオン交換カラム（以後「ISM カラム」）を通過することを含み、ここで液体は、ISM のカラムを通過し、ISM は、液体中の特定の放射性同位体を引き付け、保持し、次いで放射性同位体は、ISM と共にカラム中に留まり、一方液体は、カラムから抜け出る。

10

【0018】

多数の ISM 材料が本発明によって企図される。ISM に基づく同位体分離のために使用される媒体の多くは、多孔質のガラス又は多孔質のガラス系材料を含む。ISM に基づく同位体分離のために使用される媒体の多くは、ある形態のヘルシェライト又は 1 つ若しくは複数のヘルシェライト誘導体を含む。ISM に基づく同位体分離のために使用される媒体の多くは、ある鉱物又は鉱物系物質を含む。カラム中で使用される ISM の性質は、一般に、除去されるべき同位体に依存する。例えば、いくつかの実施例において、セシウムを分離するための媒体（即ち、セシウム特定媒体）は、改質されたヘルシェライト（ $(Na, Ca, K)AlSi_2O_6 \cdot 3H_2O$ ）を含む。いくつかの実施例において、セシウム特定媒体は、ヘキサシアノ鉄酸カリウムコバルト（「KCCF」）により改質された（例えば、KCCF が混合された、コーティングされた、又は含浸された）ヘルシェライトを含む。いくつかの実施例において、ストロンチウム同位体を分離するための媒体（即ち、ストロンチウム特定媒体）は、ヒドロキシアパタイトに改質されたガラス系微小球（「HA 微小球」）を含む。いくつかの実施例において、テクネチウム同位体を分離するための媒体（即ち、テクネチウム特定媒体）は、セチルトリメチルアンモニウム（「CTMA」）により改質されたヘルシェライトを含む。いくつかの実施例において、テクネチウム特定媒体は、界面活性剤改質ゼオライト（SMZ）、例えばゼオライトの表面カチオンの一部が CTMA 等の高分子量界面活性剤により置き換えられているゼオライトなどを含む。いくつかの実施例において、ニッケル同位体を分離するための媒体（即ち、ニッケル特定媒体）は、ヘルシェライト又は HA 微小球を含む。いくつかの実施例において、コバルト同位体を分離するための媒体（即ち、コバルト特定媒体）は、ヘルシェライト又は HA 微小球を含む。いくつかの実施例において、鉛同位体を分離するための媒体（即ち、鉛特定媒体）は、ヘルシェライト又は HA 微小球を含む。いくつかの実施例において、ヨウ素同位体を分離するための媒体（即ち、ヨウ素特定媒体）は、銀が含浸されたヘルシェライトを含む。いくつかの実施例において、ヒ素同位体を分離するための媒体（即ち、ヒ素特定媒体）は、鉄が含浸されたヘルシェライトを含む。いくつかの実施例において、セレン同位体を分離するための媒体（即ち、セレン特定媒体）は、CTMA により改質された HA 微小球又は鉄が含浸されたヘルシェライトを含む。いくつかの実施例において、アンチモン同位体を分離するための媒体（即ち、アンチモン特定媒体）は、CTMA により改質された HA 微小球又は鉄が含浸されたヘルシェライトを含む。いくつかの実施例において、アメリカシウム同位体を分離するための媒体（即ち、アメリカシウム特定媒体）は、HA 微小球を含む。液体廃棄物から分離するためのその他の ISM は、ニッケル、コバルト、鉛、鉄、アンチモン、ヨウ素、セレン、アメリカシウム、水銀、フッ素、プルトニウム、及びウランを分離するための媒体を含む。本発明によって包含される ISM は、Ni - 63、Co - 58、Co - 60、Fe - 55、Sb - 125、I - 129、Se - 79、Am - 241、及び Pu - 239 を含むがこれらに限定されない同位体を標的にするための媒体を含む。本発明のいくつかの実施例において使用されるその他の媒体は、カルシウムイオンの少なくとも一部が、多くの場合ストロンチウム、スズ、又は銀のようなイオンであるその他のカチオンにより置換されている改質型ヒドロキシアパタイトを含む。本発明の

20

30

40

50

いくつかの実施例において使用されるその他の媒体は、ゼオライトが1つ又は複数のアニオン性又はカチオン性界面活性剤により改質されているSMZを含む。本発明のいくつかの実施例において使用されるその他の媒体は、鉄又は銀が含浸されたガラス系微小球を含む。本発明のいくつかの実施例において使用されるその他の媒体は、銀含浸ゼオライトを含む。本発明のいくつかの実施例において使用されるその他の媒体は、銀改質酸化ジルコニウム、銀改質酸化マンガン、及び鉄改質ケイ酸アルミニウムを含む。一般にヘルシェライト、銀含浸ヘルシェライト、鉄含浸ヘルシェライト、KCCFにより改質されたヘルシェライト、CTMAにより改質されたヘルシェライト、HA微小球、CTMAにより改質されたHA微小球、及びKCCFにより改質されたHA微小球を含む多数の媒体が、1つ又は複数の特定の放射性同位体を液体廃棄物から分離するために使用される。ここで示されている媒体は、実例であり、ISMに基づく同位体分離システム及びプロセスで使用される材料の網羅的なリストを構成するものではない。いくつかのカラムは2つ以上の媒体の組合せを含む。

10

【0019】

本発明の多くの実施例において、ISMカラムは、多孔質の微小球、特にガラス系微小球の形態のISMを備える。図2Aは、例えばストロンチウムを分離するために使用されるHA改質ガラス系微小球の電子顕微鏡画像の写真である。図2Bは、1つのタイプの多孔質のガラス系微小球が調製される1つのプロセスを示す。このプロセスのいくつかの実施例は、ナトリウム、カルシウム、及びホウ素を含む混合物から作られているガラスビーズ210から始まる。ガラスビーズ210は、塩基性pHを有するリン酸カリウム溶液（又は類似のリン酸塩溶液）と混合され215、多くの実施例において、この溶液は水酸化カリウム又は別の水酸化物源も含む。ナトリウム、カルシウム及びホウ素イオンがガラスから、ガラスビーズ210の表面を起点として遊離されると、リン酸イオン及び水酸化物イオンはビーズ上に留まっているカルシウムと反応して、ビーズの未反応のガラス芯221を取り巻く非結晶質のリン酸カルシウムの層223を形成する。リン酸イオン及び水酸化物イオンがガラス芯221に作用し続けると、未反応の芯は収縮し231、非結晶質のリン酸カルシウムの層233は成長する。同時に、ガラス芯上の反応の部位から最も離れた非結晶質のリン酸カルシウムは、溶液から引き出された水酸化物イオンと協同して安定化し、ヒドロキシアパタイト(HA)層235の中に入り始める。HA層は、ガラス芯が収縮し続ける241と成長し続け245、反応して非結晶質のリン酸カルシウム243を形成する。このプロセスの結末は、HAから実質的に構成された多孔質の微小球250である。本発明の多くの実施例において、ISMカラムは、ヘルシェライト又は改質されたヘルシェライト材料を備える。図2Cは、ヘルシェライト材料の電子顕微鏡画像の写真である。

20

30

【0020】

図3A、図3B、及び図3Cは、本発明によるISMカラムの1つの実施例を示す。図3Aは、カラム収容器310（図示された実施例においては円筒であるが他の形状も可能である）の透視図を提示し、これは注入管路320及び排出管路325に接続されている。図3Bは、ISMカラムを真上から見た図を提示し、図3Cに示されている断面図が捉えられる線を示す。図3Cの断面図に示されているように、カラム管はビーズ形態のISM330で大部分満たされており、多くの実施例において、ISM330は、上記のようなガラス系微小球又は類似の材料を含む。浸漬管340が、カラム収容器310の頂部からカラムの内部を通してカラム収容器310の底近くまで延びている。分配環345が、浸漬管340の下端に接続されている。放射性同位体を含有する液体廃棄物質がカラムに注入管路320を通して入るとき（図3Cの矢印によって示されている方向に移動する）、液体は浸漬管340を下って移動し分配環345中に入る。分配環345は液体をカラムの幅全体にわたって分散させ、液体はISM330で満たされている空間に入る。液体が、注入管路320及び浸漬管340を通してカラム中にポンプ移送又は別法で強制導入されると、液体は、ISM空間を通過して上昇し、多孔質ISM330のそば及び中を通過せざるを得ない。液体がISM330の近く及び中を通過するとき、媒体は、液体が搬送

40

50

する特定の放射性同位体を引き付け、保持して、これらの同位体を液体から分離する。ISM330を強制通過した液体は、カラム収容器310の頂部の排出管路325を通過してカラムから出る。

【0021】

液体がカラム内のISM330を通過し続けるとき、ISM330は、放射性同位体を分離し、保持し続ける。最終的に、分離された放射性同位体が媒体上の利用できる保持部位の殆んど全てを満たすようになると、ISM330は、更なる流入液体廃棄物質から放射性同位体の効果的な濾過又は分離を止める。この時点で液体廃棄物質のカラムへの添加は終わり、分離された放射性同位体を今では担持するISM330は、最終貯蔵又は処置の準備として更なる処理を受ける。いくつかの実施例において、分離された放射性同位体を含むISMビーズは、カラム収容器310から取り除かれ、その後の処理のための貯蔵収容器に搬送される。いくつかの実施例において、分離された放射性同位体を含むISMビーズは、カラム収容器310から取り除かれ、ガラス固化のためのるつぼ又は溶融炉に搬送される。いくつかの実施例において、分離された放射性同位体を含むISMビーズは、カラム収容器310中に留まり、分離された放射性同位体を含むISM330のガラス固化がカラム収容器310内で起こる。

10

【0022】

ガラス固化がカラム収容器310内で起こるこれらの実施例においては、カラム収容器310は、ガラス固化するつぼとして、及び最終廃棄物用の長期貯蔵容器として作用するように構成されたキャニスタを一般に含む。場合によっては、キャニスタは、ステンレス鋼又は同等の材料の外層、絶縁体の中間層、及びグラファイト又は類似の材料の内層（又はライナー層）を備えることにより、放射性同位体を含むISM330の熱分解、溶融、及びガラス固化のためのるつぼとして作用する。いくつかの実施例において、グラファイトの内層は、ISM330の誘導加熱のためのサセプタとしての機能を果たす。これらの実施例のいくつかにおいて、ISM330は、ガラス固化プロセスの開始を補足又は助長する材料と混合される。放射性同位体を含むISM330の熱分解、溶融、及びガラス固化は一般に、誘導加熱又はマイクロ波加熱によって達成されるが、熱分解、溶融、及びガラス固化のためのその他の方法もまた本発明に適合する。いくつかの実施例において、ISM及び放射性同位体のガラス固化は、本発明と同じ発明者による米国特許出願第12/985,862号に記載されているものと類似のプロセスによって行なわれる。多くの実施例において、浸漬管340及び分配環345は、ISM330と一緒に熱分解、溶融、及びガラス固化に耐えうるセラミック又は多孔質のグラファイト材料、或いは類似の材料から作られており、これらの実施例において、浸漬管340及び分配環345は、ガラス固化された最終廃棄物中に包み込まれた状態になる。いくつかの実施例において、浸漬管340及び分配環345は、ISM330と一緒にガラス固化を受けることになる材料から作られており、したがって、浸漬管340及び分配環345は、ガラス固化された同じ最終廃棄物の一部となる。他の実施例においては、浸漬管340及び分配環345はカラム収容器310から、ガラス固化プロセスが始まる前に取り除かれる。

20

30

【0023】

図4は、別個のさまざまな放射性同位体を異なるカラム中に除去するために、液体廃棄物質が複数のISMカラム401、402、403を通過する本発明の1つの実施例を示す。図3Cにおけるように、各ISMカラムは、カラム収容器、浸漬管、分配環、注入管路、排出管路、及びビーズ形態のISMを備える。図示された実施例において、液体廃棄物は、第1のカラム401に注入管路421及び第1の浸漬管441を通して入る。液体は第1の浸漬管441及び第1の分配環446から第1のISM431中に入り、第1のISM431は、説明のためにこの実例においては、液体中のセシウム同位体を捕捉するために選択される、KCCFにより改質されたヘルシェライトを含む。第1のカラム401から液体は第2の管路422を通して移動して第2のカラム401中に入り、液体は、第2の浸漬管442及び分配環447を通過して第2のISM432中に入る。説明のために、この第2のカラム402中の媒体は、ストロンチウム同位体及びその他のアクチニ

40

50

ドを液体から分離するために選択されるHA微小球を含む。液体は、第2のカラム402から第3の管路423を通して出てきて第3のカラム403中に入り、液体は、第3の浸漬管443及び分配環448を通過して第3のISM433中に入る。説明のために、この第3のカラム403中の媒体は、テクネチウム同位体を液体から分離するために選択される、CTMAにより改質されたヘルシェライトと界面活性剤改質ゼオライトとの混合物を含む。セシウム、ストロンチウム、及びテクネチウム同位体を今や実質的に含まない液体が、第3のカラム403から排出管路425を通して出てくる。このようにして、それぞれのカラム401、402、403は、放射性同位体のさまざまな組を分離及び捕捉し、それぞれのカラムは、放射性同位体のその特定の組に対する要件に従った廃棄に進む。いくつかの実施例において、液体から低次分類同位体を分離するいくつかのカラムは、液体から高次分類の同位体を分離する他のカラムより、廃棄物分類の低次レベルが与えられよう。図示された実施例におけるISMカラムの順序（セシウム、ストロンチウム、テクネチウム）は1つの事例に過ぎず、さまざまなカラムの順序付けが可能であることが理解されよう。さまざまな特定の同位体を分離するように構成されたさまざまなタイプのカラムが可能であり、本発明によって包含されることも理解されよう。さまざまな媒体が図4のために事例として与えられたもの以外にも可能であることが更に理解されよう。

10

20

30

40

50

【0024】

図5は、本発明によるISMカラムが、別の廃棄物処理システムのオフガスから放射性同位体を分離するために採用される本発明の別の実施例を示す。図示された実施例において、溶融炉480は、固体放射性廃棄物又は固体放射性廃棄物と液体放射性廃棄物とのスラリー混合物（「流入廃棄物」）を注入管路475から受け取る。（ジュール溶融炉、マイクロ波に基づく溶融炉、誘導加熱するつぼなどを含む多種多様の溶融炉が、この設備に適合することが理解されよう。）この流入廃棄物は、廃棄物が溶融状態Aに達するように流入廃棄物を熱分解するために加熱される。熱分解し、溶融した廃棄物は、次いで冷却（又は放冷）されて、高密度の、固化した、多くの場合ガラス固化した最終固体廃棄物Bとなる。流入廃棄物の熱分解の間、廃棄物Aが溶融状態である期間の間、及びガラス固化プロセスの間、廃棄物は、放射性同位体を搬送するガス及び蒸気Cを放出している。放射性同位体を搬送するこれらのガス及び蒸気は、溶融炉排出管路485を通過して溶融炉480から出て、凝縮器495に入り、ここで放射性同位体を搬送するガス及び蒸気は放射性同位体を搬送する液体に転化される。放射性同位体を搬送する液体は、カラム注入管路520を通して移動してISMカラム501中に入り、ここで放射性同位体を搬送する液体は、浸漬管540、分配環545、及びISM530を通過し、ここで特定の放射性同位体は媒体によって分離及び保持される。液体は次いで、カラム排出管路525を通過してISMカラム501から出る。この実施例において、ISMカラムは、元の流入廃棄物の安定化において保持されず、安定化されていない放射性同位体を分離し、単離する。

【0025】

図6は、本発明によるISMカラムの代替の実施例を示す。いくつかの既に図示された実施例（例えば、図3C、図4、及び図5など）においては、液体廃棄物はカラムに浸漬管を通して入り、カラム収容器の底近くの点に進んだ後、ISMを上方に通過してカラム収容器の頂部近くの排出管路に向う。図6に示されている実施例においては、放射性同位体を搬送する液体はカラム601に、カラム収容器610の頂部の注入管路620を通して入る。放射性同位体を含む液体は次いで、ISM630を通してしたり落ちてカラム収容器610の底に向う。カラム収容器610の底近くで、液体は、カラム収容器610の頂部の排出管路625に接続している浸漬管641によって押し上げられる又は吸い上げられる。図示された実施例は、カラム収容器610の頂部近くに同様に位置している安全排出口627を更に備える。

【0026】

本発明は、図示された実施例に限定されない。いくつかの代替の実施例において、ISMは、液体廃棄物保持タンクに添加され、攪拌又は別法で液体中に混合され、ISMが特

定の放射性同位体を液体から分離した後、放射性同位体を含むISMは、液体から取り除かれる（例えば、遠心分離、濾過、又は電気凝固法によって）。当業者であれば、本発明が、放射性同位体の核廃棄物からの分離及び単離と関連するイオン特定媒体のいくつかのその他の潜在的な使用を包含することが理解されよう。

【0027】

本発明のいくつかの実施例において、ガラス系微小球又は類似の材料は、1つにはガラス固化プロセスを促進するので、媒体として使用される。1つの特定のガラス固化用途において、リン酸鉄ガラス形成材料が、ウラン及び酸化ウランをガラス固化及び安定化するために有用である。実験テストにおいて、ガラス形成材料（「ガラス形成剤」）の混合物は、およそ20重量%の酸化鉄、52重量%の五酸化リン、及び23%の酸化ナトリウムであるブレンドを含んでいた。リン酸鉄ガラス形成剤は、ウラン対ガラス比がおよそ1：9の劣化ウラン・ペレットと混合した。混合する前に劣化ウラン・ペレットは硝酸中で洗浄し、すすぎ、プレ酸化を防ぐために真空包装した。ウランとリン酸鉄ガラス形成剤との混合物をグラファイトのつぼ中で、500で30分間、次いで700で30分間、次いで900で30分間、最後におよそ1063で30分間加熱した。500及び700でウランは酸化し、より高い温度で、酸化ウラン及びリン酸鉄ガラス形成剤は、ガラス固化を受け、実質的に均一なガラス・ウラン生成物を形成した。走査電子顕微鏡観察及びX線エネルギー分散吸収（EDAX）により、ガラス固化プロセスは、非金属非酸化型のウラン同位体がガラス基質全体にわたって均一に溶解して分布している最終廃棄物を産生したことが確認された。

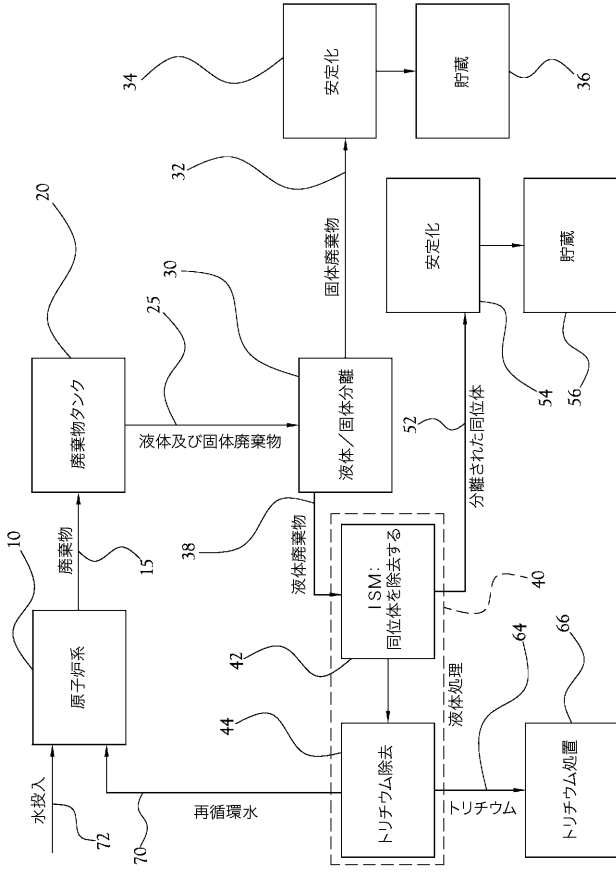
10

20

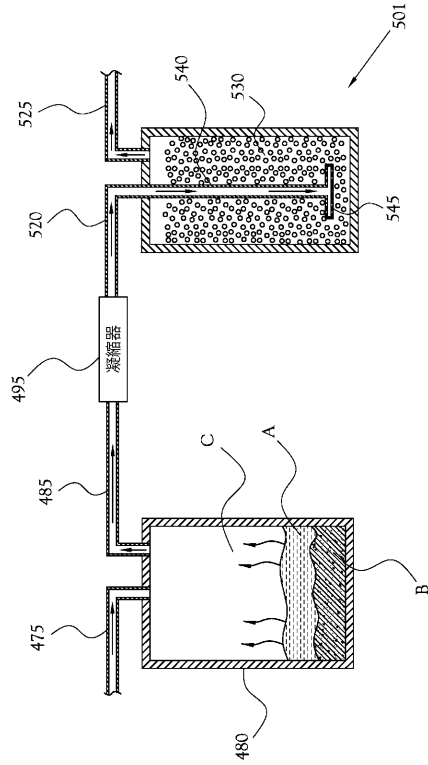
【0028】

本発明は、いくつかの実施例の記述によって例示されており、こうした例示的な実施例が詳細に記述されているが、本出願人は、添付の特許請求の範囲をこのような詳細へと制限又は限定することを決して意図していない。更なる改変が、当業者には容易に想起されよう。それ故、本発明は、より広い態様において、図示及び記述されている具体的な詳細、代表的な装置及び方法、並びに例示的な実例に限定されない。したがって、出願人の全般的な発明概念の精神及び範囲から逸脱することなく、このような詳細からの逸脱をなし得る。

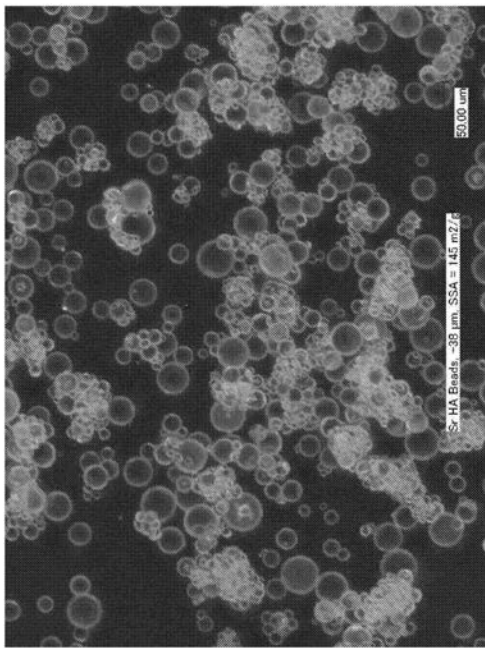
【図1】



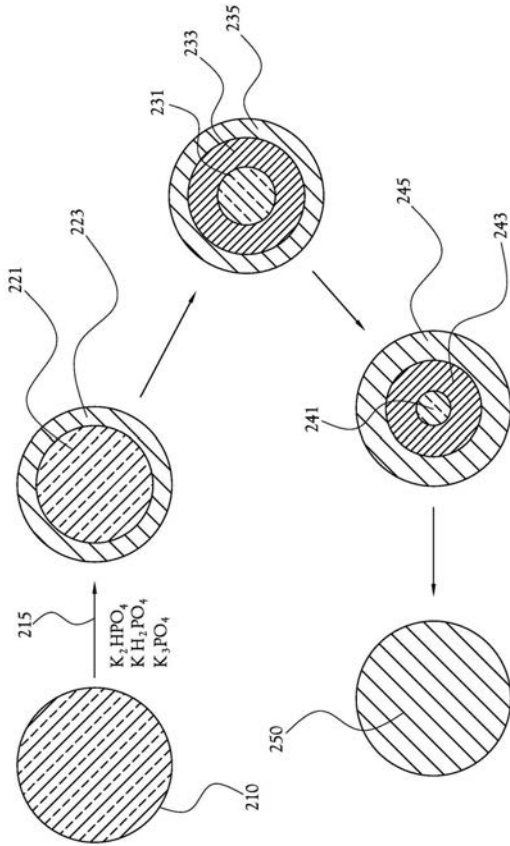
【図5】



【図2A】



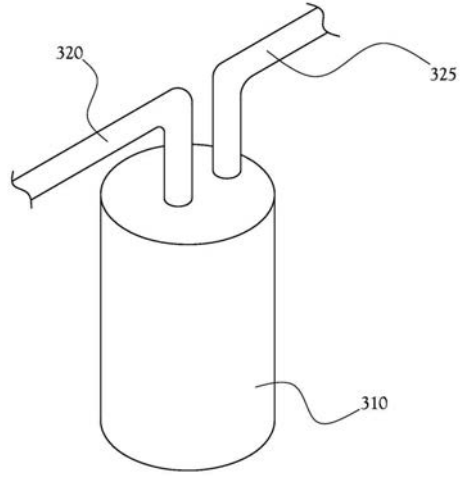
【図2B】



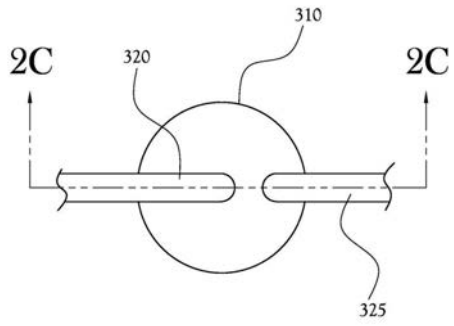
【 図 2 C 】



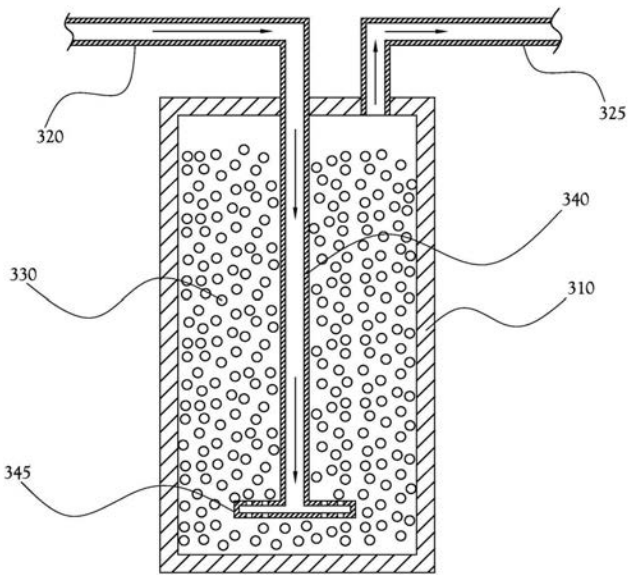
【 図 3 A 】



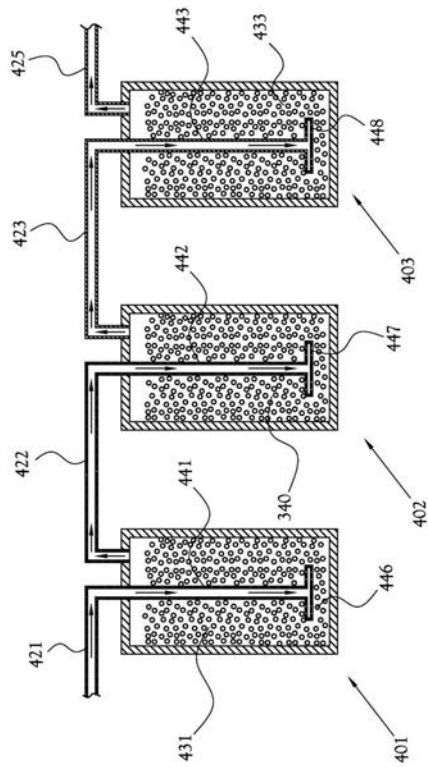
【 図 3 B 】



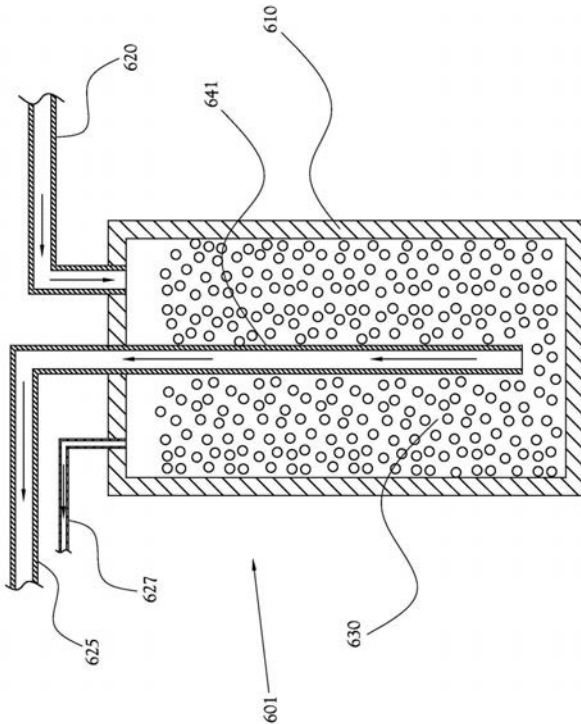
【 図 3 C 】



【 図 4 】



【図 6】



【手続補正書】

【提出日】平成28年4月21日(2016.4.21)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

放射性廃棄物を処理する方法であって、

放射性廃棄物を、放射性同位体を含む液体廃棄物と固体廃棄物とに分離するステップと

、
放射性同位体を含む前記液体廃棄物を、イオン交換カラムの注入管路を通過させて、略垂直方向に生成された浸漬管を通過して、前記イオン交換カラムの内を通過させるステップ
であって、

前記液体廃棄物は、前記浸漬管に取り付けられ、前記イオン交換カラムの内の略水平方向に吊るされる分配環により、前記イオン交換カラム全体にわたって分散され、前記分配環は前記イオン交換カラムの底端部に向かって下側方向に前記液体廃棄物を案内する複数の分配穴を有し、前記分散された液体廃棄物は、前記液体廃棄物から 1 以上の放射性同位体を補足するために、前記イオン交換カラム内に含まれる媒体を通して押圧されるステップと、

排出管路を通過して、前記イオン交換カラムの外側に、減少した量の前記放射性同位体を含む前記液体廃棄物を押圧するステップと、

前記イオン交換カラムに含まれる前記媒体及び補足された放射性同位体をガラス固化して、ガラスマトリックスにするステップと、

を含む方法。

【請求項 2】

前記イオン交換カラムは、放射性同位体の第 1 の群を補足するための第 1 の媒体を含む第 1 のカラムを備え、

前記第 1 のカラムの前記排出管路から第 2 のカラムの第 2 の注入管路に、前記液体廃棄物を通過させて、浸漬管を通って前記第 2 のカラム内へ通過させるステップと、

前記液体廃棄物から放射性同位体の第 2 の異なる群を補足するために、前記第 2 のコラム内に含まれる第 2 の媒体を通して、前記液体廃棄物を押圧するステップと、

減少した量の前記放射性同位体の第 2 の異なる群を含む前記液体廃棄物を前記第 2 のカラムの第 2 の排出管路を通過して外側に押圧するステップと、を更に含む請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記第 2 の排出管路から第 3 のカラムの第 3 の注入管路に前記液体廃棄物を通過させて、浸漬管を通して前記第 3 のカラム内へ通過させるステップと、

前記液体廃棄物から放射性同位体の第 3 の異なる群を補足するために、前記第 3 のコラム内に含まれる第 3 の媒体を通して、前記液体廃棄物を押圧するステップと、

減少した量の前記放射性同位体の第 3 の異なる群を含む前記液体廃棄物を前記第 3 のカラムの第 3 の排出管路を通過して外側に押圧するステップと、を更に含む請求項 2 に記載の方法。

【請求項 4】

前記第 1 の媒体はセシウム放射性同位体を補足するように構成され、前記第 2 の媒体はストロンチウム放射性同位体を補足するように構成され、前記第 3 の媒体はテクネチウム放射性同位体を補足するように構成される、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 5】

前記液体廃棄物を前記イオン交換カラムに通過させた後、前記液体廃棄物を原子炉に再循環させるステップを更に含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 6】

前記 1 以上の放射性同位体が、少なくとも 1 つのセシウム同位体を含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 7】

前記 1 以上の放射性同位体が、少なくとも 1 つのストロンチウム同位体を含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 8】

前記媒体が、ヒドロキシアパタイトを備える、請求項 7 に記載の方法。

【請求項 9】

前記媒体が、ヒドロキシアパタイトを含む、微小球を備える、請求項 7 に記載の方法。

【請求項 10】

前記 1 以上の放射性同位体が、少なくとも 1 つのテクネチウム同位体を含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 11】

前記 1 以上の放射性同位体が、少なくとも 1 つのヨウ素同位体を含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 12】

前記 1 以上の放射性同位体が、ニッケル、コバルト、及び鉛からなる群から選択される少なくとも 1 つの同位体を含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 13】

前記媒体、及び補足された放射性同位体を、前記イオン交換カラムに配置している間に前記ガラスマトリックスにガラス固化するステップを更に含む請求項 1 に記載の方法。

【請求項 14】

前記媒体は、ナトリウム、カルシウム、及びホウ素の混合物から作られるガラスペース

を含み、前記ガラスビーズはリン酸カリウム溶液と混合され、前記ナトリウム、カルシウム、及びホウ素は、前記リン酸カリウム溶液と反応して、ヒドロキシアパタイト層を前記ガラスビーズ上に形成する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 15】

前記浸漬管及び前記分配環は、両方共セラミック材料で形成される、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 16】

前記浸漬管及び前記分配環は、両方共多孔質のグラファイト材料で形成される、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 17】

前記イオン交換カラムはヘルシェライト材料を含む請求項 1 に記載の方法。

【請求項 18】

前記イオン交換カラムは、外側のステンレス鋼層と内側のグラファイト層とを備え、前記イオン交換カラムの前記内側のグラファイト層をサセプタとして使用して誘電加熱される前記媒体を備える前記媒体をガラス固化するステップを含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 19】

前記内側のグラファイト層は、前記媒体を融解するつぼを形成する、請求項 18 に記載の方法。

【請求項 20】

前記イオン交換カラムは、前記外側のステンレス鋼層と前記内側のグラファイト層との間に配置される絶縁体の中間層を更に備える、請求項 18 に記載の方法。

【請求項 21】

前記媒体がガラス固化される際に、前記浸漬管及び前記分配環が前記ガラスマトリックス内に包み込まれるステップを更に含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 22】

前記分配環は前記イオン交換カラムの前記底端部の上側に吊るされる、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 23】

前記注入管路と排出管路は両方共、前記イオン交換カラムの頂端部に配置され、前記分散された液体廃棄物は、前記イオン交換カラムの前記底端部から前記イオン交換カラムの前記頂端部に、前記媒体を通して押圧される、請求項 22 に記載の方法。

【外国語明細書】

2016122006000001.pdf