

(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2016-176812
(P2016-176812A)

(43) 公開日 平成28年10月6日(2016.10.6)

(51) Int.Cl.

G21F 9/00 (2006.01)
G21G 1/08 (2006.01)
G21G 1/10 (2006.01)

F 1

G21F 9/00
G21G 1/08
G21G 1/10

テーマコード (参考)

N

審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 23 頁)

(21) 出願番号

特願2015-57179 (P2015-57179)

(22) 出願日

平成27年3月20日 (2015.3.20)

(71) 出願人 000003078

株式会社東芝

東京都港区芝浦一丁目1番1号

(71) 出願人 503359821

国立研究開発法人理化学研究所

埼玉県和光市広沢2番1号

(71) 出願人 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

(71) 出願人 503360115

国立研究開発法人科学技術振興機構

埼玉県川口市本町四丁目1番8号

(74) 代理人 110001380

特許業務法人東京国際特許事務所

最終頁に続く

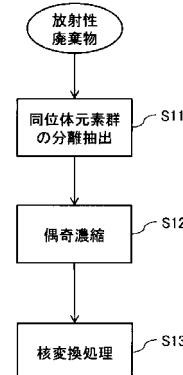
(54) 【発明の名称】放射性廃棄物の処理方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】核分裂生成物の中から長寿命放射性核種のみを選択的に消滅させる核分裂生成物の処理方法を提供する。

【解決手段】放射性廃棄物から核分裂生成物のうち放射性核種を含み原子番号が共通する同位体元素の群を同位体分離を伴わずに抽出する工程S11と、加速器により生成した高エネルギー粒子を前記同位体元素の群に照射して前記放射性核種のうち長寿命放射性核種を半減期の短い短寿命放射性核種又は資源として再利用可能な安定核種に核変換させる工程S13とを含む。

【選択図】図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

放射性廃棄物から、核分裂生成物のうち放射性核種を含み原子番号が共通する同位体元素の群を、同位体分離を伴わずに抽出する工程と、

加速器により生成した高エネルギー粒子を前記同位体元素の群に照射して、前記放射性核種のうち長寿命放射性核種を、半減期の短い短寿命放射性核種又は資源として再利用可能な安定核種に核変換させる工程と、を含むことを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記高エネルギー粒子は中性子 (n) であって、

前記同位体元素の中性子分離エネルギーの偶奇性に基づいて前記長寿命放射性核種が選択的に前記核変換されるように前記中性子の照射エネルギーが設定されることを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。

【請求項 3】

請求項 2 に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記同位体元素の群はセレン (Se) であって、

前記中性子 (n) の照射エネルギーの値は、Se - 79 の (n, 2n) 反応断面積が、Se - 80 の (n, 2n) 反応断面積よりも 10 倍以上大きくなる範囲内に、設定されることを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。

【請求項 4】

請求項 2 に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記同位体元素の群はパラジウム (Pd) であって、

前記中性子 (n) の照射エネルギーの値は、Pd - 107 の (n, 2n) 反応断面積が、Pd - 108 の (n, 2n) 反応断面積よりも 10 倍以上大きくなる範囲内に、設定されることを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。

【請求項 5】

請求項 2 に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記同位体元素の群はジルコニウム (Zr) であって、

前記中性子 (n) の照射エネルギーの値は、Zr - 93 の (n, 2n) 反応断面積が、Zr - 94 の (n, 2n) 反応断面積よりも 10 倍以上大きくなる範囲内に、設定されることを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。

【請求項 6】

請求項 2 に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記同位体元素の群はクリプトン (Kr) であって、

前記中性子 (n) の照射エネルギーの値は、Kr - 85 の (n, 2n) 反応断面積が、Kr - 86 の (n, 2n) 反応断面積よりも 10 倍以上大きくなる範囲内に、設定されることを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。

【請求項 7】

請求項 2 に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記同位体元素の群はサマリウム (Sm) であって、

前記中性子 (n) の照射エネルギーの値は、Sm - 151 の (n, 2n) 反応断面積が、Sm - 152 の (n, 2n) 反応断面積よりも 10 倍以上大きくなる範囲内に、設定されることを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。

【請求項 8】

請求項 1 に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記高エネルギー粒子は中性子 (n) であり前記同位体元素の群はセシウム (Cs) であって、

前記中性子 (n) の照射エネルギーの値は、Cs - 137 の (n, 2n) 反応断面積が、Cs - 137 の (n, 3n) 反応断面積よりも 100 倍以上大きくなる範囲内に、設定されることを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。

10

20

30

40

50

【請求項 9】

請求項 8 に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記中性子を照射させた後の前記同位体元素の群は、所定期間放置させた後に、再び前記中性子 (n) が、照射されることを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。

【請求項 10】

請求項 1 に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記高エネルギー粒子はミューオン (μ^-) であり前記同位体元素の群はセレン (Se)、パラジウム (Pd)、ストロンチウム (Sr)、ジルコニウム (Zr)、セシウム (Cs)、スズ (Sn)、サマリウム (Sm) から選択されるいづれか一つであって、

前記同位体元素に前記ミューオン (μ^-) を捕獲させて原子番号の一つ小さな核種への核変換を経由させることを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。 10

【請求項 11】

請求項 1 から請求項 10 のいづれか 1 項に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記分離抽出の工程後、前記核変換の工程前に、

濃縮効果の偶奇性に基づいて、前記同位体元素の群を、中性子数が奇数の同位体群及び中性子数が偶数の同位体群のいづれか一方に濃縮する工程を含むことを特徴とする放射性廃棄物の処理方法。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、核分裂生成物を含む高レベル放射性廃棄物の処理技術に関する。 20

【背景技術】**【0002】**

原子力発電所を保有する電力事業者は、大量の使用済核燃料を保管しており、これらの安全・有効な処理方法を確立することが喫緊の課題となっている。

そこで、使用済核燃料から、核分裂性の U - 235 や Pu を抽出し、非核分裂性の U - 238 に 3 - 5 % 程度混ぜて、新しい燃料を再生する核燃料サイクルが検討されている。

【0003】

100 万キロワット級の原子力発電所からは、毎年約 20 トンの使用済核燃料が発生する。3 % 濃縮ウラン燃料 (U - 235 : 3 %, U - 238 : 97 %) の使用済核燃料には、U - 235 が 1 %、U - 238 が 95 %、Pu が 1 %、その他生成物が 3 % 含まれている。そしてこの生成物は、マイナーアクチノイド (MA)、白金族、短寿命核分裂生成物 (SLFP)、長寿命核分裂生成物 (LLFP) に分類される。 30

【0004】

なお、これら生成物は、中性子を吸収する性質が高く、その増加に伴い核分裂の連鎖反応の進行を妨げる要因である。

このために、これら生成物は、使用済核燃料の再処理に伴って不可避的に発生する高レベル廃液 (HALW; Highly Active Liquid Waste) 及びこの高レベル廃液を処分できる形態にしたガラス固化体に、多く含まれている。

この高レベル廃液 (HALW) をそのままガラス固化体にして処分するとなると、発熱する高レベル放射性廃棄物を、大量に数万年管理する必要にせまられ、負担増となる。実際に、このガラス固化体は、既に保有されており、長期間の管理が求められている。 40

【0005】

そこで、高レベル廃液 (HALW) の処分、及び既に保有されているガラス固化体の管理に伴う負担軽減を目的として、含まれる核種を半減期や化学的性質に応じたグループに分離し、グループ毎にそれぞれの性質に応じた処分法を選択することが検討されている。これにより、高レベル放射性廃棄物の保管期間を短縮し、さらに保管スペースを節約することができる。

【0006】

そして、高レベル廃液 (HALW) 及びガラス固化体から分離されたグループのうち長

寿命核分裂生成物（LLFP）を含むグループに対しては、核変換技術を適用し、短寿命放射性核種又は安定核種に核変換する技術が検討されている。

具体的には、長寿命核分裂生成物（LLFP）に、ガンマ線を照射して中性子を放出させる光核反応（ γ, n ）や中性子を照射してガンマ線を放出させる中性子捕獲反応（ n, γ ）を適用し、より半減期の短い同位体に核変換する技術が開示されている（例えば、特許文献1，2）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献1】特開平5-119178号公報

10

【特許文献2】特表2002-519678号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

しかし、上述の光核反応（ γ, n ）や中性子捕獲反応（ n, γ ）では、反応断面積の核種依存性が大きいために、効率的な核変換を達成できる長寿命放射性核種が限定的である。

そこで、エネルギーの高いビームを直接的に、又はそのビームから生成した二次ビームを間接的に、長寿命放射性核種に照射して、核変換させることが考えられる。

【0009】

20

ところで、上述のグループ分離は、元素分離を基本とするものであり、同位体分離を伴うものではない。

したがって長寿命核分裂生成物（LLFP）を分離してグループ化しても、長寿命放射性核種だけでなく短寿命放射性核種及び安定核種の同位体が混在している場合がある。

【0010】

このために、長寿命核分裂生成物（LLFP）を含むグループに対し、高エネルギービームを無考慮に照射して核変換処理を実施すると、長寿命放射性核種が短寿命放射性核種又は安定核種に変換されるばかりでなく、逆に短寿命放射性核種又は安定核種が長寿命放射性核種に核変換してしまうことが懸念される。

そこで、同位体分離により長寿命放射性核種のみを抽出して核変換処理することも考えられるが、現状における同位体分離処理の生産性の低さから現実的ではない。

また、そのような同位体分離処理は、実用レベルで適用可能な元素が限られているため、長寿命核分裂生成物（LLFP）の無害化もしくは有用元素として再利用する用途への適用に、限界があった。

【0011】

30

本発明はこのような事情を考慮してなされたもので、同位体分離が不要であり、核分裂生成物の中から長寿命放射性核種のみを選択的に消滅させる核分裂生成物の処理方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0012】

40

放射性廃棄物の処理方法において、放射性廃棄物から核分裂生成物のうち放射性核種を含み原子番号が共通する同位体元素の群を同位体分離を伴わずに抽出する工程と、加速器により生成した高エネルギー粒子を前記同位体元素の群に照射して前記放射性核種のうち長寿命放射性核種を半減期の短い短寿命放射性核種又は資源として再利用可能な安定核種に核変換させる工程と、を含むことを特徴とする。

【発明の効果】

【0013】

本発明により、同位体分離が不要であり、核分裂生成物の中から長寿命放射性核種のみを選択的に消滅させる核分裂生成物の処理方法が提供される。

さらに、長寿命放射性核種を資源として再利用することができる放射性廃棄物の処理方

50

法が提供される。

【図面の簡単な説明】

【0014】

【図1】本発明に係る放射性廃棄物の処理方法の実施形態を説明する工程表。

【図2】(A)中性子の照射エネルギーに対するセレン同位体(S_e)の中性子放出反応断面積を示すグラフ、(B)(n, 2n)反応によるセレン同位体(S_e)の遷移を説明する核図表。

【図3】(A)中性子の照射エネルギーに対するパラジウム同位体(P_d)の中性子放出反応断面積を示すグラフ、(B)(n, 2n)反応によるパラジウム同位体(P_d)の遷移を説明する核図表。

【図4】(A)中性子の照射エネルギーに対するジルコニウム同位体(Z_r)の中性子放出反応断面積を示すグラフ、(B)(n, 2n)反応によるジルコニウム同位体(Z_r)の遷移を説明する核図表。

【図5】(A)中性子の照射エネルギーに対するクリプトン同位体(K_r)の中性子放出反応断面積を示すグラフ、(B)(n, 2n)反応によるクリプトン同位体(K_r)の遷移を説明する核図表。

【図6】(A)中性子の照射エネルギーに対するサマリウム同位体(S_m)の中性子放出反応断面積を示すグラフ、(B)(n, 2n)反応によるサマリウム同位体(S_m)の遷移を説明する核図表。

【図7】(A)中性子の照射エネルギーに対するセシウム同位体(C_s)の中性子放出反応断面積を示すグラフ、(B)(n, 2n)反応によるセシウム同位体(C_s)の遷移を説明する核図表。

【図8】セシウム同位体(C_s)の処理工程を説明するフローチャート。

【図9】(A)中性子の照射エネルギーに対するストロンチウム同位体(S_r)の中性子放出反応断面積を示すグラフ、(B)(n, 2n)反応によるストロンチウム同位体(S_r)の遷移を説明する核図表。

【図10】(A)中性子の照射エネルギーに対するスズ同位体(S_n)の中性子放出反応断面積を示すグラフ、(B)(n, 2n)反応によるスズ同位体(S_n)の遷移を説明する核図表。

【図11】ミューオン原子核捕獲反応の説明図。

【図12】ミューオン原子核捕獲反応によるセレン同位体(S_e)の遷移を説明する核図表。

【図13】ミューオン原子核捕獲反応によるパラジウム同位体(P_d)の遷移を説明する核図表。

【図14】ミューオン原子核捕獲反応によるストロンチウム同位体(S_r)の遷移を説明する核図表。

【図15】ミューオン原子核捕獲反応によるジルコニウム同位体(Z_r)の遷移を説明する核図表。

【図16】ミューオン原子核捕獲反応によるセシウム同位体(C_s)の遷移を説明する核図表。

【図17】ミューオン原子核捕獲反応によるスズ同位体(S_n)の遷移を説明する核図表。

【図18】ミューオン原子核捕獲反応によるサマリウム同位体(S_m)の遷移を説明する核図表。

【発明を実施するための形態】

【0015】

以下、本発明の実施形態を添付図面に基づいて説明する。

図1に示すように、実施形態に係る放射性廃棄物の処理方法は、放射性廃棄物から核分裂生成物のうち放射性核種を含み原子番号が共通する同位体元素の群を分離抽出する工程(S11)と、加速器により生成した高エネルギー粒子を前記同位体元素の群に照射して

10

20

30

40

50

前記放射性核種のうち長寿命放射性核種を半減期の短い短寿命放射性核種又は安定核種に核変換させる工程（S13）と、を含んでいる。

さらに、分離抽出の工程（S11）の後、核変換の工程（S13）前に、濃縮効果の偶奇性に基づいて、前記同位体元素の群を、中性子数が奇数の同位体群及び中性子数が偶数の同位体群のいずれか一方に濃縮する工程（S12）を含んでいる。

【0016】

本実施形態で適用対象となる放射性廃棄物は、核分裂生成物（FP : Fission Products）を含むものを想定している。この核分裂生成物（FP）とは、ウランU-235やブルトニウムPu-239等の核分裂性核種が核分裂して、二つ以上に分離した核種を指す。

ウランU-235の核分裂生成物（FP）の元素の種類は、ニッケル（原子番号28）からジスプロシウム（原子番号66）までの約40種類である。10

そして、ウランU-235の核分裂生成物（FP）の質量数に対する収率分布は、72から160の範囲にわたり、質量数90及び140付近に極大値をもつダブルピーク形状をなしている。

【0017】

このように核分裂生成物（FP）は、同位体を区別すると数百種類にわたり、さらには安定核種と放射性核種とに分類され、このうち放射性核種は原子核崩壊により、より安定な核種に変化する。

原子核崩壊の半減期の短い放射性核種（短寿命放射性核種）は、短時間に多量の放射線を放つが、時間経過とともに放射能が急速に減衰するため、所定期間の保管により無害化することができる。20

【0018】

一方で、半減期の長い放射性核種（長寿命放射性核種）は、放射線量が少ないが減衰速度が遅いために、大量に所持している場合は半永久的な管理が必要になる。

このために、長寿命放射性核種を、短寿命放射性核種又は安定核種に核変換することができれば、放射性廃棄物の管理負担を軽減することができる。

【0019】

核分裂生成物（FP）に含まれる主要な長寿命放射性核種（カッコ内は半減期）としては、セレンSe-79（ 2.95×10^5 年）、パラジウムPd-107（ 6.5×10^6 年）、ジルコニウムZr-93（ 1.5×10^6 年）、セシウムCs-135（ 2.3×10^6 年）、ヨウ素I-129（ 1.57×10^7 年）、テクネチウムTc-99（ 2.1×10^5 年）、スズSn-126（ 2.3×10^5 年）が挙げられる。30

このうち、ヨウ素I-129（ 1.57×10^7 年）及びテクネチウムTc-99（ 2.1×10^5 年）については、中性子捕獲反応（n, γ）で効率的に短寿命化させる報告例がある。このため、本実施形態においてヨウ素I-129及びテクネチウムTc-99を検討から外しているが、本発明を適用することもできる。

【0020】

なお、本実施形態において、半減期が 10^{10} 年以上の放射性核種は、準安定核種とみなし、処理対象から外している。

また、上述した長寿命放射性核種以外であっても、半減期が10年を超える主要な核分裂生成物（FP）であるストロンチウムSr-90（28.8年）、クリプトンKr-85（10.8年）、サマリウムSm-151（90年）については、さらなる短寿命化をめざし処理対象に含めて検討を行った。40

【0021】

図1の分離抽出工程（S11）では、複数の核種が混在している放射性廃棄物から、着目した長寿命放射性核種を含む同位体元素の群を分離抽出する工程である。つまり、注目する長寿命放射性核種と同じ原子番号（陽子数）Zを有し、質量数（陽子数+中性子数）Aの異なる元素の群が抽出される。

【0022】

このような同位体元素群の分離抽出方法は、一般的な元素分離方法を適用することができます

き、例えば、電解法、溶媒抽出法、イオン交換法、沈殿法、および乾式法もしくは、これらの組合せが挙げられる。また、ガラス固化体が対象の場合、分離抽出の前工程でガラス固化体の溶解もしくは分解が必要であるが、一般的な溶解／分解法が適用でき、例えば、アルカリ融解法、溶融塩法（電解還元、化学還元）、高温融解法、ハロゲン化法、酸溶解法、アルカリ溶解法が挙げられる。ガラス固化体が溶解もしくは分解した後は、前記的一般的な元素分離方法を適用することができる。

【0023】

図1の偶奇濃縮工程（S12）は、分離抽出工程（S11）を経た後の同位体元素群に對し、濃縮効果の偶奇性に基づいて、中性子数が奇数の同位体群及び中性子数が偶数の同位体群のいずれか一方に濃縮する処理を実施する工程である。10

この偶奇濃縮工程（S12）を経ることにより、後段の核変換処理工程（S13）が効率化する。このため、この偶奇濃縮工程（S12）は、必須の工程ではなく、トータルコストを勘案し、実施しない場合もある。

【0024】

一般に、同位体分離は、同位体の蒸気圧等、微少な物性差、質量差を利用して行われる。ところで、原子スペクトル線の振動数が同位体によってわずかにずれ、奇数核と偶数核においてそれぞれ光の偏光に対する光学遷移の選択則が異なるという、アイソトープシフト現象が知られている。

この現象を利用して、（S11）で分離抽出した同位体元素群を、（S12）で中性子数が奇数の同位体群及び中性子数が偶数の同位体群のいずれか一方に濃縮させることができる。20

【0025】

このような、偶奇濃縮工程（S12）として、左右円偏光レーザーによる電子励起過程における遷移選択則が、陽子数が偶数の場合、核スピン0である偶々核と偶奇核で異なるという性質の利用が考えられる。

具体的には、偏光を制御したレーザーを照射して、奇数核種のみをイオン化させることができる。なお、偶奇濃縮工程（S12）に適用される方法に特に限定はない。

【0026】

図1の核変換処理工程（S13）について、以下、照射する高エネルギー粒子の種類、及び分離抽出された同位体元素群の種類毎に分けて説明する。30

【0027】

（二次中性子放出反応；（n，xn）反応（x=2））

最初に、同位体元素群に照射する高エネルギー粒子が、中性子（n）である場合について説明する。中性子は、原子核の電荷によるクーロン力を受けないので、原子核に入射して原子核反応を起こさせやすい。

一般に、小さいエネルギーの中性子が原子核に入射する場合、入射前後の運動エネルギーの和が保存される弾性散乱（(n,n)反応）が支配的である、しかし、中性子のエネルギーが大きくなり数100 keVを超えると、入射前後の運動エネルギーの和が保存されない非弾性散乱が生じ始める。

【0028】

そして、中性子のエネルギーが、MeV以上となると（n,p）反応や（n,γ）反応といった荷電粒子が放出される反応が起こり、7~8 MeVから（n,2n）反応が起こり2次中性子を放出するようになる。そして、さらに中性子のエネルギーが大きくなると（n,3n）反応が起きる。40

ここで、（n,2n）反応とは、原子核に一個の中性子が入射すると、この原子核から中性子が二個放出される反応であり、（n,3n）反応とは、原子核に一個の中性子が入射すると、この原子核から中性子が三個放出される反応である。

【0029】

ところで、原子核に入射した一次中性子が二次中性子を分離放出させるエネルギーの大きさは、中性子数の偶奇性に依存した傾向を示す。一般に陽子が偶数個の原子核では、奇

数個の中性子を有する原子核から一つの中性子を取る方が、偶数個の場合よりも、小さなエネルギーですむ。

以下、中性子の照射エネルギーを適切に設定することにより、同位体元素の中性子分離エネルギーの偶奇性に基づき、長寿命放射性核種を選択的に短寿命放射性核種又は安定核種に核変換できることを、処理対象となる同位体元素群の種類毎に説明する。

【0030】

図2(A)は、中性子の照射エネルギーに対するセレン同位体(Se)の中性子放出反応断面積を示すグラフを示している。図2(B)は、臭素Br、セレンSe、ヒ素Asの主要な同位体元素群を示す核図表である。

Se同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるSe-74, 76, 77, 78, 80, 82及び長寿命放射性核種であるSe-79(半減期 2.95×10^5 年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

このSe同位体元素群のうち消滅対象は、長寿命放射性核種のSe-79である。

【0031】

図2(A)に示すように、中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、7MeVを超えたところから中性子を奇数持つSe-77及びSe-79の($n, 2n$)反応断面積が増大し始め、各々は中性子を一つ減らしてSe-76及びSe-78にそれぞれ核変換される。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、10MeVを超えたところから中性子を偶数持つSe-76、Se-78及びSe-80の($n, 2n$)反応断面積が増大し始め、各々はSe-75、Se-77及びSe-79に核変換されてしまう。そして、このSe同位体の($n, 2n$)反応断面積は、14MeVを超えたあたりで一定値となる。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、18MeVを超えたところから($n, 3n$)反応断面積が増大し始める。

【0032】

図2(B)に示されるSe同位体元素群の核変換のなかで不都合な副次的な($n, 2n$)反応は、安定核種のSe-80が長寿命放射性核種のSe-79に核変換されることである。なお、安定核種のSe-82が短寿命放射性核種のSe-81に核変換されることは、このSe-81が短期間でBr-81(安定核種)に核崩壊するために許容される。

そこで、Se同位体元素群のうち長寿命放射性核種であるSe-79のみを、選択的に消滅させるために、中性子の照射エネルギーの値は、Se-79の($n, 2n$)反応断面積がSe-80の($n, 2n$)反応断面積よりも10倍以上大きくなる範囲内、具体的には7.5MeV~10.3MeVの範囲内に設定されることが望まれる。

なお、この範囲に中性子の照射エネルギーが設定された場合、安定核種であるSe-77も($n, 2n$)反応するが、安定核種のSe-76に核変換されるので問題ない。

【0033】

図3(A)は、中性子の照射エネルギーに対するパラジウム同位体(Pd)の中性子放出反応断面積を示すグラフを示している。図3(B)は、銀Ag、パラジウムPd、ロジウムRhの主要な同位体元素群を示す核図表である。

Pd同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるPd-102, 104, 105, 106, 108, 110及び長寿命放射性核種であるPd-107(半減期 6.5×10^6 年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

このPd同位体元素群のうち消滅対象は、長寿命放射性核種のPd-107である。

【0034】

図3(A)に示すように、中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、7MeVの近傍から中性子を奇数持つPd-105及びPd-107の($n, 2n$)反応断面積が増大し始め、各々は中性子を一つ減らしてPd-104及びPd-106にそれぞれ核変換される。

10

20

30

40

50

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、9 MeVを超えたところから中性子を偶数持つ Pd - 102, 104, 106, 108, 110 の(n, 2n)反応断面積が増大し始め、各々は Pd - 101, 103, 105, 107, 109 に核変換されてしまう。そして、Pd 同位体の(n, 2n)反応断面積は、11 MeVを超えたあたりで一定値となる。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、16 MeVを超えたところから(n, 3n)反応断面積が増大し始める。

【0035】

図3(B)に示される Pd 同位体元素群の核変換のなかで不都合な副次的な(n, 2n)反応は、安定核種の Pd - 108 が長寿命放射性核種の Pd - 107 に核変換されることである。10

そこで、Pd 同位体元素群のうち長寿命放射性核種である Pd - 107 のみを、選択的に消滅させるために、中性子の照射エネルギーの値は、Pd - 107 の(n, 2n)反応断面積が、Pd - 108 の(n, 2n)反応断面積よりも 10 倍以上大きくなる範囲内、具体的には 7 MeV ~ 9.5 MeV の範囲内に設定されることが望まれる。

【0036】

なお、この範囲に中性子の照射エネルギーが設定された場合、安定核種である Pd - 110 が(n, 2n)反応により短寿命放射性核種である Pd - 109(半減期 13.7 時間)に核変換されてしまう。しかしこのことは、この Pd - 109 が、さらに安定核である Ag 109 に核崩壊するために許容される。20

また、安定核種である Pd - 105 も(n, 2n)反応するが、安定核種の Pd - 104 に核変換されるので問題ない。

【0037】

図4(A)は、中性子の照射エネルギーに対するジルコニウム同位体(Zr)の中性子放出反応断面積を示すグラフを示している。図4(B)は、モリブデン Mo、ニオブNb、ジルコニウム Zr の主要な同位体元素群を示す核図表である。

Zr 同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種である Zr - 90, 91, 92, 94, 96 及び長寿命放射性核種である Zr - 93(半減期 1.5 × 10⁶ 年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。30

この Zr 同位体元素群のうち消滅対象は、長寿命放射性核種の Zr - 93 である。

【0038】

図4(A)に示すように、中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、7 MeV の近傍から中性子を奇数持つ Zr - 91, 93, 95 の(n, 2n)反応断面積が増大し始め、各々は中性子を一つ減らして Zr - 90, 92, 94 にそれぞれ核変換される。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、8 MeV の近傍から中性子を偶数持つ Zr - 92, 94, 96 の(n, 2n)反応断面積が増大し始め、各々は Zr - 91, 93, 95 に核変換されてしまう。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、15 MeV を超えたところから(n, 3n)反応断面積が増大し始める。40

【0039】

図4(B)に示される Zr 同位体元素群の核変換のなかで不都合な副次的な(n, 2n)反応は、安定核種の Zr - 94 が長寿命放射性核種の Zr - 93 に核変換されることである。

そこで、Zr 同位体元素群のうち長寿命放射性核種である Zr - 93 のみを、選択的に消滅させるために、中性子の照射エネルギーの値は、Zr - 93 の(n, 2n)反応断面積が、Zr - 94 の(n, 2n)反応断面積よりも 10 倍以上大きくなる範囲内、具体的には 7.2 MeV ~ 8.7 MeV の範囲内に設定されることが望まれる。

【0040】

なお、この範囲に中性子の照射エネルギーが設定された場合、安定核種である Zr - 9

10

20

30

40

50

6が、(n, 2n)反応により短寿命放射性核種であるZr-95(半減期64.0日)に核変換されてしまう。しかし、このことは、Zr-95が、短寿命放射性核種であるNb-95(半減期35.0日)に核崩壊し、さらに安定核であるMo-95に核崩壊するために許容される。

また、安定核種であるZr-91も(n, 2n)反応するが、安定核種のZr-90に核変換されるので問題ない。

【0041】

図5(A)は、中性子の照射エネルギーに対するクリプトン同位体(Kr)の中性子放出反応断面積を示すグラフを示している。図2(B)は、ルビジウム(Rb)、クリプトンKr、臭素Brの主要な同位体元素群を示す核図表である。
10

Kr同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるKr-78, 80, 82, 83, 84, 86、長寿命放射性核種であるKr-81(半減期 2.3×10^5 年)及び中寿命放射性核種であるKr-85(半減期10.8年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

このKr同位体元素群のうち消滅対象は、中寿命放射性核種のKr-79である。

なお、放射性廃棄物に含まれるKr同位体元素群のうちKr-81(半減期 2.29×10^5 年)は、存在量が微量であるために、検討から外す。

【0042】

図5(A)に示すように、中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、7.5MeVを超えたところから中性子を奇数持つKr-85及びKr-83の(n, 2n)反応断面積が増大し始め、各々は中性子を一つ減らしてKr-84及びKr-82にそれぞれ核変換される。
20

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、9.8MeVを超えたところから中性子を偶数持つKr-86、Kr-84及びKr-82の(n, 2n)反応断面積が増大し始め、各々はKr-85、Kr-83及びKr-81に核変換されてしまう。そして、このKr同位体の(n, 2n)反応断面積は、14MeVを超えたあたりで一定値となる。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、18.5MeVを超えたところから(n, 3n)反応断面積が増大し始める。

【0043】

図5(B)に示されるKr同位体元素群の核変換のなかで不都合な副次的な(n, 2n)反応は、安定核種のKr-86が中寿命放射性核種のKr-85に核変換されることである。
30

そこで、Kr同位体元素群のうち中寿命放射性核種であるKr-85のみを、選択的に消滅させるために、中性子の照射エネルギーの値は、Kr-85の(n, 2n)反応断面積がKr-86の(n, 2n)反応断面積よりも10倍以上大きくなる範囲内、具体的には7.5MeV~10MeVの範囲内に設定されることが望まれる。

なお、この範囲に中性子の照射エネルギーが設定された場合、安定核種であるKr-83も(n, 2n)反応するが、安定核種のKr-82に核変換されるので問題ない。

【0044】

図6(A)は、中性子の照射エネルギーに対するサマリウム同位体(Sm)の中性子放出反応断面積を示すグラフを示している。図2(B)は、ユーロピウム(Eu)、サマリウムSm、プロメチウム(Pm)の主要な同位体元素群を示す核図表である。
40

Sm同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるSm-150, 152, 154、準安定核種であるSm-148, 149及び中寿命放射性核種であるSm-151(半減期90年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

このSm同位体元素群のうち消滅対象は、中寿命放射性核種のSm-151である。

なお、放射性廃棄物に含まれるSm同位体元素群のうちSm-146(半減期 1.03×10^8 年)及びSm-147(半減期 1.06×10^{11} 年)は、存在量が微量であるために、検討から外す。

【0045】

図6(A)に示すように、中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、5.8 MeVを超えたところから中性子を奇数持つSm-151及びSm-149の($n, 2n$)反応断面積が増大し始め、各々は中性子を一つ減らしてSm-150及びSm-148にそれぞれ核変換される。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、8 MeVを超えたところから中性子を偶数持つSm-148、Sm-150、Sm-152及びSm-154の($n, 2n$)反応断面積が増大し始め、各々はSm-147、Sm-149、Sm-151及びSm-153に核変換されてしまう。そして、このSm同位体の($n, 2n$)反応断面積は、11 MeVを超えたあたりで一定値となる。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、14.3 MeVを超えたところから($n, 3n$)反応断面積が増大し始める。

【0046】

図6(B)に示されるSm同位体元素群の核変換のなかで不都合な副次的な($n, 2n$)反応は、安定核種のSm-152が中寿命放射性核種のSm-151に核変換されることである。

そこで、Sm同位体元素群のうち中寿命放射性核種であるSm-151のみを、選択的に消滅させるために、中性子の照射エネルギーの値は、Sm-151の($n, 2n$)反応断面積がSm-152の($n, 2n$)反応断面積よりも10倍以上大きくなる範囲内、具体的には5.8 MeV~8.3 MeVの範囲内に設定されることが望まれる。

【0047】

なお、この範囲に中性子の照射エネルギーが設定された場合、準安定核種であるSm-148, 149も($n, 2n$)反応するが、それぞれ同じ準安定核種のSm-147, 148に核変換されるので問題ない。

同様に、安定核種であるSm-150も($n, 2n$)反応するが、準安定核種のSm-148に核変換されるので問題ない。

同様に、安定核種であるSm-154も($n, 2n$)反応するが、短寿命放射性核種であるSm-153に核変換されたのち短期間で安定核種のEu-153に崩壊するので問題ない。

【0048】

図7(A)は、中性子の照射エネルギーに対するセシウム同位体(Cs)の中性子放出反応断面積を示すグラフを示している。図7(B)は、バリウムBa、セシウムCs、キセノンXeの主要な同位体元素群を示す核図表である。

Cs同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるCs-133、中寿命放射性核種であるCs-134(半減期2.07年)、長寿命放射性核種であるCs-135(半減期 2.3×10^6 年)及び中寿命放射性核種であるCs-137(半減期30.07年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

このCs同位体元素群のうち消滅対象は、長寿命放射性核種であるCs-135及び中寿命放射性核種であるCs-137である。

Csが、これまで説明したSe, Pd, Zrと異なる点は、長寿命放射性核種であるCs-135の中性子数が偶数個であるため、この長寿命放射性核種を($n, 2n$)反応させるのに必要なエネルギーが、中性子数が奇数個の同位体核種よりも、大きい点にある。

【0049】

図7(A)に示すように、中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、7 MeVの近傍からCsの($n, 2n$)反応断面積が増大し始め、Cs-133, 134, 135, 137の各々は、中性子を一つ減らしてCs-132, 133, 134, 136にそれぞれ核変換される。そして、Csの($n, 2n$)反応断面積は、11 MeVを超えたあたりで一定値となる。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、16 MeVを超えたところから(

10

20

30

40

50

$n, 3n$) 反応断面積が増大し始める。

【0050】

図7(B)に示すように、Cs-133は($n, 2n$)反応で核変換し、短寿命放射性核種のCs-132(半減期6.48日)となり、このCs-132は核崩壊(β^+ 崩壊)して安定核種であるXe-132となる。

そして、Cs-134は($n, 2n$)反応で核変換して安定核種であるCs-133となる。Cs-135は($n, 2n$)反応で核変換し、中寿命放射性核種のCs-134(半減期2.07年)となり、このCs-134は核崩壊(β^- 崩壊)して安定核種であるBa-134となる。Cs-137は($n, 2n$)反応で核変換し、短寿命放射性核種のCs-136(半減期13.2日)となり、このCs-136は核崩壊(β^- 崩壊)して安定核種であるBa-136となる。10

【0051】

Cs同位体元素群の核変換のなかで不都合な副次的な($n, \alpha n$)反応は、中寿命放射性核種のCs-137が($n, 3n$)反応して長寿命放射性核種のCs-135に核変換されることである。

そこで、Cs同位体元素群のうち長寿命放射性核種であるCs-135又は中寿命放射性核種であるCs-137を、選択的に消滅させるために、中性子の照射エネルギーの値は、Cs-137の($n, 2n$)反応断面積が、Cs-137の($n, 3n$)反応断面積よりも100倍以上大きくなる範囲内、具体的には8.5MeV~16.2MeVの範囲内に設定されることが望まれる。20

【0052】

なお、この範囲に中性子の照射エネルギーが設定された場合、Cs-137から($n, 2n$)反応により核変換されたCs-136は、さらに中性子が照射されると($n, 2n$)反応して長寿命放射性核種のCs-135に核変換されてしまうことが懸念される。

【0053】

そこで、Cs同位体元素群の処理について図8に示すようなフローを検討する。

放射性廃棄物を所定期間放置して含まれている短寿命放射性核種を原子核崩壊させる(S21)。その後、放射性廃棄物からCs同位体元素群を分離抽出し(S22)、中性子を照射して($n, 2n$)反応を起こさせる(S23)。

この(S23)の工程において、Cs-137から核変換されたCs-136が、さらに核変換して長寿命放射性核種のCs-135が生成される場合がある。30

【0054】

そこで、再び所定期間放置により、Cs-136等の短寿命放射性核種を、原子核崩壊により消滅させる(S24)。そして、この原子核崩壊により生成した、Cs以外の元素の安定同位体が、抽出される(S25)。

このCs以外の元素の安定同位体の抽出工程(S25)は、次の中性子照射工程(S23)で、不都合な副次反応を排除する目的の他に、有用な同位体元素を取得する目的もある。

例えば、Cs-133から、Cs-132を介し、複数の安定同位体の中からXe-132を、単離することができる。40

【0055】

Cs-137が存在している限り、($n, 2n$)反応により核変換されたCs-136の一定割合が、長寿命放射性核種であるCs-135に核変換されてしまうことは避けられない(S26 Yes)。

そこで、(S23)~(S26 Yes)のフローを繰り返すことにより、Cs-137を消滅させ、さらに長寿命放射性核種であるCs-135も消滅させることが可能になる(S26 No)。これにより、Cs同位体元素群の無害化が達成される(S27 END)。また、このフローの繰り返しにより、Cs-135が、Cs-133を経て有用元素であるXe-132に核変換されて抽出される。

【0056】

10

20

30

40

50

図9(A)は、中性子の照射エネルギーに対するストロンチウム同位体(Sr)の中性子放出反応断面積を示すグラフを示している。図9(B)は、イットリウムY、ストロンチウムSr、ルビジウムRbの主要な同位体元素群を示す核図表である。

Sr同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるSr-84, 86, 87, 88、中寿命放射性核種であるSr-90(半減期28.8年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

【0057】

図9(A)に示すように、中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、6.8MeVの近傍からSr-89の(n, 2n)反応断面積が増大し始め、続いて8.2MeVの近傍からSr-90の(n, 2n)反応断面積が増大し始める。10

これによりSr-89, 90の各々は、中性子を一つ減らしてSr-88, 89にそれぞれ核変換される。Sr-90から核変換したSr-89も、さらに(n, 2n)反応を起こしてSr-88(安定核種)になる。

【0058】

図9(B)に示すように、Sr-90以外のSr同位体元素は、いずれも安定核種又は短寿命放射性核種である。このために、Sr同位体元素群の全体に(n, 2n)反応させても、新たな長寿命及び中寿命の放射性核種を生成させることはない。

このために、Sr-90の消滅は、偶奇濃縮工程(S12)を経ることや、中性子照射エネルギーに偶奇選択性を利用する必要がない。

Sr同位体元素群のうち中寿命放射性核種であるSr-90を、消滅させるために、中性子の照射エネルギーの値は、具体的には8.2MeV以上に設定されればよい。20

なお、12MeV以上照射してSr-86(安定核種)がSr-85(半減期64.8日)に核変換しても、このSr-85は⁺崩壊してRb-85(安定核種)になるので問題はない。

【0059】

図10(A)は、中性子の照射エネルギーに対するスズ同位体(Sn)の中性子放出反応断面積を示すグラフを示している。図10(B)は、テルルTe、アンチモンSb、スズSnの主要な同位体元素群を示す核図表である。

Sn同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるSn-112, 114, 115, 116, 117, 118, 119, 120, 122, 124、長寿命放射性核種であるSn-126(半減期1×10⁵年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。30

【0060】

図10(A)に示すように、中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、6.8MeVの近傍からSn-119の(n, 2n)反応断面積が増大し始め、続いて8.2MeVの近傍からSn-126の(n, 2n)反応断面積が増大し始める。

【0061】

図9(B)に示すように、Sn-126以外のSn同位体元素は、いずれも安定核種又は短命放射性核種である。このために、Sn同位体元素群の全体に(n, 2n)反応させても、新たな長寿命及び中寿命の放射性核種を生成させることはない。

このために、Sn-90の消滅は、偶奇濃縮工程(S12)を経ることや、中性子照射エネルギーに偶奇選択性を利用する必要がない。

Sn同位体元素群のうち長寿命放射性核種であるSn-126を、消滅させるために、中性子の照射エネルギーの値は、具体的には8.2MeV以上に設定されればよい。40

なお、8.2MeV以上照射してSnの(安定核種)が核変換しても、さらに⁻崩壊又は⁺崩壊してその他の元素の安定核種になるので問題はない。

【0062】

(中性子ビーム発生装置)

同位体元素の群に(n, 2n)反応を生じさせる中性子ビームは、加速器を利用して発生させた二次生成ビームが適用される。

10

20

40

50

この加速器において、陽子を、目的とする中性子エネルギーより若干高いエネルギーまで加速して、標的に照射し中性子を発生させる。あるいはこの加速器において、重陽子を、目的とする中性子エネルギーの2倍程度の全エネルギーをもつまで加速して、標的に照射し中性子を発生させる。

この標的の構造を工夫して、発生する中性子の強度およびプロファイル(収束の度合い)をコントロールすることにより、ビーム様の中性子束が出力される。

【0063】

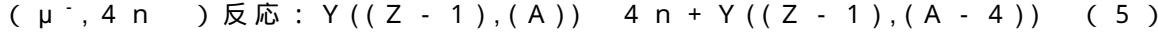
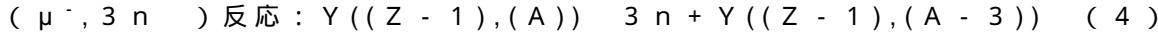
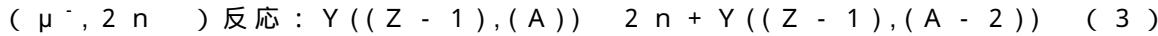
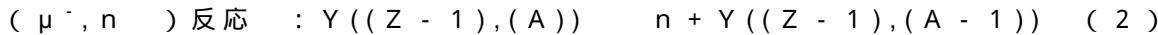
(ミューオン原子核捕獲反応)

次に図11に基づいて、同位体元素群に照射する高エネルギー粒子が、ミューオン μ^- である場合について説明する。なお、ミューオンには、正ミューオン μ^+ と負ミューオン μ^- とがあるが、本発明が対象にするのは負ミューオン μ^- であるので、以降におけるミューオンの記載は全て負ミューオンを指すこととする。

元素Xの原子核にミューオン μ^- が捕獲されると、原子核を構成する陽子のうち一つがミューオン μ^- と結びついて中性子に変換され、ニュートリノ ν を放出する(反応式(1))。そして、陽子数の一つ少ない(Z-1)原子核の元素Yに核変換される。

反応式(2)~(5)に示すように、この元素Yは励起状態を示し、単数又は複数の中性子nを放出する原子核反応を起こす。

【0064】



これら反応式(1)~(5)を図11に示すように記号化して各々1~5のように示す。
。

【0065】

ミューオン原子核捕獲反応は、元素Xに依存した所定の比率で、複数の反応が同時に発生する。実験例として、ヨウ素I-127では、(μ^- , ---)反応、(μ^- , n)反応、(μ^- , 2n)反応、(μ^- , 3n)反応、(μ^- , 4n)反応、(μ^- , 5n)反応の発生比率は、それぞれ8%、52%、18%、14%、5%、2.5%であることが判っている。

【0066】

(ミューオンビーム発生装置)

同位体元素の群に(μ^- , xn)反応を生じさせるミューオンビームは、次のようにして得られる。すなわち、800MeV程度のエネルギーの陽子ビームを炭素等の標的に照射して負バイオノンを生成させる。そして、この生成した負バイオノン(寿命: 2.6ナノ秒)を崩壊させることにより、負ミューオンビームが得られる。

【0067】

図12は、ミューオン原子核捕獲反応によるセレン同位体(Se)の遷移を説明する核図表である。

Se同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるSe-74, 76, 77, 78, 80, 82及び長寿命放射性核種であるSe-79(半減期 2.95×10^5 年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

【0068】

このSe同位体元素群にミューオン μ^- を照射した際、Se-79に着目すると、 ^{79}Se (μ^- , ---) ^{79}As 、 ^{79}Se (μ^- , n) ^{78}As 、 ^{79}Se (μ^- , 2n) ^{77}As 、 ^{79}Se (μ^- , 3n) ^{76}As 、の核変換反応が起きる。

生成したAs-76、As-77、As-78、As-79は、短寿命放射性核種であるために、短期間のうちに核崩壊(β崩壊)して、それぞれSe-76、Se-77、

10

20

30

40

50

Se - 78、Se - 79になる。

つまり、長寿命放射性核種であるSe - 79は、ミューオン原子核捕獲反応による変換核種の一部がSe - 79に逆戻りするが、その他はSe安定核種になる。

【0069】

残りのSe - 74, 76, 77, 78, 80, 82のうちSe - 80, 82についても、ミューオン照射による変換核種の一部が、長寿命放射性核種であるSe - 79になる。

このように、Se同位体元素群にミューオン μ^- を照射した場合、変換核種が β^- 崩壊して逆戻りするために、一回の照射でSe - 79を消滅させることはできないが減少させることはできる。

【0070】

そこで、偶奇濃縮工程(図1; S12)を経由させて、Se同位体元素の群のうち中性子数が奇数であるSe - 77, 79を濃縮することを検討する。

Se - 77(安定核種)からの変換核種のうち、As - 77は β^- 崩壊によりSe - 77に逆戻りし、As - 76は β^- 崩壊によりSe - 76(安定核種)となり、As - 75は安定核種として存在し、As - 74は β^- 崩壊によるSe - 74(安定核種)及び β^+ 崩壊によるGe - 74(安定核種)になる。

Se - 79のAs変換核種の一部からSe - 79への逆戻りは避けられないが、Se - 77のAs変換核種からSe - 79への逆戻りは無いために、一回のミューオン照射でSe - 79を効率的に減少させることができる。

【0071】

図13は、ミューオン原子核捕獲反応によるパラジウム同位体(Pd)の遷移を説明する核図表である。

Pd同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるPd - 102, 104, 105, 106, 108, 110及び長寿命放射性核種であるPd - 107(半減期 6.5×10^6 年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

【0072】

このPd同位体元素群にミューオン μ^- を照射した際、Pd - 107に着目すると、 $^{107}\text{Pd}(\mu^-, \gamma)^{107}\text{Rh}$ 、 $^{107}\text{Pd}(\mu^-, n)^{106}\text{Rh}$ 、 $^{107}\text{Pd}(\mu^-, 2n)^{105}\text{Rh}$ 、 $^{107}\text{Pd}(\mu^-, 3n)^{104}\text{Rh}$ 、の核変換反応が起きる。

生成したRh - 104、Rh - 105、Rh - 106、Rh - 107は、短寿命放射性核種であるために、短期間のうちに核崩壊(β^- 崩壊)して、それぞれPd - 104、Pd - 105、Pd - 106、Pd - 107になる。

つまり、長寿命放射性核種であるPd - 107は、ミューオン原子核捕獲反応による変換核種の一部がPd - 107に逆戻りするが、その他はPd安定核種になる。

【0073】

残りのPd - 102, 104, 105, 106, 108, 110のうちPd - 108, 110についても、ミューオン照射による変換核種の一部が、長寿命放射性核種であるPd - 107になる。

このように、Pd同位体元素群にミューオン μ^- を照射した場合、変換核種が β^- 崩壊して逆戻りするために、一回の照射でPd - 107を消滅させることはできないが減少させることはできる。

【0074】

そこで、偶奇濃縮工程(図1; S12)を経由させて、Pd同位体元素の群のうち中性子数が奇数であるPd - 105, 107を濃縮することを検討する。

Pd - 105(安定核種)から核変換した核種のうち、Rh - 105は β^- 崩壊によりPd - 105に逆戻りし、Rh - 104は β^- 崩壊によりPd - 104(安定核種)及び β^+ 崩壊によるRu - 104(安定核種)となり、Rh - 103は安定核種として存在し、Rh - 102は β^- 崩壊によるPd - 102(安定核種)及び β^+ 崩壊によるRu - 102(安定核種)になる。

10

20

30

40

50

Pd - 107 の Rh 变換核種の一部から Pd - 107 への逆戻りは避けられないが、Pd - 105 の Rh 变換核種から Pd - 107 への逆戻りは無いために、一回のミューオン照射で Pd - 107 を効率的に減少させることができる。

【0075】

図14は、ミューオン原子核捕獲反応によるストロンチウム同位体(Sr)の遷移を説明する核図表である。

Sr同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるSr-84, 86, 87, 88、中寿命放射性核種であるSr-90(半減期28.8年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

【0076】

このSr同位体元素群にミューオンμ⁻を照射した際、Sr-90に着目すると、⁹⁰Sr(μ⁻,)⁹⁰Rb、⁹⁰Sr(μ⁻, n)⁸⁹Rb、⁹⁰Sr(μ⁻, 2n)⁸⁸Rb、⁹⁰Sr(μ⁻, 3n)⁸⁷Rb、の核変換反応が起きる。

生成したRb-87は準安定核種であり、Rb-88、Rb-89、Rb-90は、短寿命放射性核種であるために、短期間のうちに核崩壊(β崩壊)して、それぞれSr-88、Sr-89、Sr-90になる。Sr-89はさらにβ崩壊して安定核種であるY-89となる。

つまり、中寿命放射性核種であるSr-90は、ミューオン原子核捕獲反応による変換核種の一部がSr-90に逆戻りするが、その他はSr安定核種、Y安定核種又はRb準安定核種になる。

残りのSr-84, 86, 87, 88についても、ミューオン照射により、最終的には安定核種又は準安定核種になる。

【0077】

図15は、ミューオン原子核捕獲反応によるジルコニウム同位体(Zr)の遷移を説明する核図表である。

Zr同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種であるZr-90, 91, 92, 94, 96及び長寿命放射性核種であるZr-93(半減期1.5×10⁶年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

【0078】

このZr同位体元素群にミューオンμ⁻を照射した際、Zr-93に着目すると、⁹³Zr(μ⁻,)⁹³Y、⁹³Zr(μ⁻, n)⁹²Y、⁹³Zr(μ⁻, 2n)⁹¹Y、⁹³Zr(μ⁻, 3n)⁹⁰Y、の核変換反応が起きる。

生成したY-90、Y-91、Y-92、Y-93は、短寿命放射性核種であるために、短期間のうちに核崩壊(β崩壊)して、それぞれZr-90、Zr-91、Zr-92、Zr-93になる。

つまり、長寿命放射性核種であるZr-93は、ミューオン原子核捕獲反応による変換核種の一部がZr-93に逆戻りするが、その他はZr安定核種になる。

【0079】

残りのZr-90, 91, 92, 94, 96のうちZr-94, 96についても、ミューオン照射による変換核種の一部が、長寿命放射性核種であるZr-93になる。

このように、Zr同位体元素群にミューオンμ⁻を照射した場合、変換核種がβ崩壊して逆戻りするために、一回の照射でZr-93を消滅させることはできないが減少させることはできる。

【0080】

そこで、偶奇濃縮工程(図1; S12)を経由させて、Zr同位体元素の群のうち中性子数が奇数であるZr-91, 93を濃縮することを検討する。

Zr-91(安定核種)からの変換核種のうち、Y-90, 91はβ崩壊によりZr-90, 91(安定核種)となり、Y-89は安定核種として存在し、Y-88はβ崩壊によるSr-88(安定核種)になる。

10

20

30

40

50

Zr - 93 の Y 变換核種の一部から Zr - 93 への逆戻りは避けられないが、Zr - 91 の As 变換核種から Zr - 93 への逆戻りは無いために、一回のミューオン照射で Zr - 93 を効率的に減少させることができる。

【0081】

図16は、ミューオン原子核捕獲反応によるセシウム同位体(Cs)の遷移を説明する核図表である。

Cs 同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種である Cs - 133、中寿命放射性核種である Cs - 134(半減期 2.07 年)、長寿命放射性核種である Cs - 135(半減期 2.3 × 10⁶ 年)及び中寿命放射性核種である Cs - 137(半減期 30.07 年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。
10

【0082】

この Cs 同位体元素群にミューオン μ⁻を照射した際、Cs - 137 に着目すると、¹³⁷Cs(μ⁻,)¹³⁷Xe、¹³⁷Cs(μ⁻, n)¹³⁶Xe、¹³⁷Cs(μ⁻, 2n)¹³⁵Xe、¹³⁷Cs(μ⁻, 3n)¹³⁴Xe、の核変換反応が起きる。また、Cs - 135 に着目すると、¹³⁵Cs(μ⁻,)¹³⁵Xe、¹³⁵Cs(μ⁻, n)¹³⁴Xe、¹³⁵Cs(μ⁻, 2n)¹³³Xe、¹³⁵Cs(μ⁻, 3n)¹³²Xe、の核変換反応が起きる。

生成した Xe - 137、Xe - 135 は、短寿命放射性核種であるために、短時間のうちに核崩壊(崩壊)して、それぞれ Cs - 137、Cs - 135 になる。

つまり、長寿命放射性核種である Cs - 137、135 は、ミューオン原子核捕獲反応による変換核種の一部が Cs - 137、135 に逆戻りするが、その他は最終的には安定核種になる。
20

【0083】

図17は、ミューオン原子核捕獲反応によるスズ同位体(Sn)の遷移を説明する核図表である。

Sn 同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種である Sn - 112, 114, 115, 116, 117, 118, 119, 120, 122, 124、長寿命放射性核種である Sn - 126(半減期 1 × 10⁵ 年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。

【0084】

この Sn 同位体元素群にミューオン μ⁻を照射した際、Sn - 126 に着目すると、¹²⁶Sn(μ⁻,)¹²⁶In、¹²⁶Sn(μ⁻, n)¹²⁵In、¹²⁶Sn(μ⁻, 2n)¹²⁴In、¹²⁶Sn(μ⁻, 3n)¹²³In、の核変換反応が起きる。
30

生成した In - 123, 124, 125, 126 は、短寿命放射性核種であるために、短時間のうちに核崩壊(崩壊)して、それぞれ Sn - 123, 124, 125, 126 になる。

つまり、長寿命放射性核種である Sn - 126 は、ミューオン原子核捕獲反応による変換核種の一部が Sn - 126 に逆戻りするが、その他は最終的には安定核種になる。

残りの Sn - 112, 114, 115, 116, 117, 118, 119, 120, 122, 124 についても、ミューオン照射により、最終的には安定核種になる。
40

【0085】

図18は、ミューオン原子核捕獲反応によるサマリウム同位体(Sm)の遷移を説明する核図表である。

Sm 同位体元素群は、一定期間の放置及び分離抽出工程(図1; S11)の過程において、安定核種である Sm - 150, 152, 154、準安定核種である Sm - 147, 148, 149、長寿命放射性核種である Sm - 146(半減期 1 × 10⁸ 年)及び中寿命放射性核種である Sm - 151(半減期 90 年)のみが残存し、その他の同位体は核崩壊によりほぼ消滅している。
40

【0086】

この Sm 同位体元素群にミューオン μ⁻を照射した際、Sm - 151 に着目すると、¹⁵¹

50

$\text{Sm}(\mu^-, \gamma)^{151}\text{Pm}$ 、 $\text{Sm}(\mu^-, n)^{150}\text{Pm}$ 、 $\text{Sm}(\mu^-, 2n)^{149}\text{Pm}$ 、
 $\text{Sm}(\mu^-, 3n)^{148}\text{Pm}$ 、の核変換反応が起きる。

生成した Pm-148 , 149 , 150 , 151 は、短寿命放射性核種であるために、
 短期間のうちに核崩壊（ β^- 崩壊）して、それぞれ Sm-148 , 149 , 150 , 151 になる。

つまり、長寿命放射性核種である Sm-151 は、ミューオン原子核捕獲反応による変換核種の一部が Sm-151 に逆戻りするが、その他は最終的には安定核種になる。

【0087】

残りの Sm-146 , 147 , 148 , 149 , 150 , 152 , 154 のうち Sm-150 , 152 についても、ミューオン照射による変換核種の一部が、中寿命放射性核種である Sm-151 になる。10

このように、 Sm 同位体元素群にミューオン μ^- を照射した場合、変換核種が β^- 崩壊して逆戻りするために、一回の照射で Sm-151 を消滅させることはできないが減少させることはできる。

【0088】

そこで、偶奇濃縮工程（図1；S12）を経由させて、 Sm 同位体元素の群のうち中性子数が奇数である Sm-151 , 149 , 147 を濃縮することを検討する。

Sm-151 の Pm 変換核種の一部から Sm-151 への逆戻りは避けられないが、 Sm-149 の Pm 変換核種から Sm-151 への逆戻りは無いために、一回のミューオン照射で Sm-151 を効率的に減少させることができる。20

また、 Sm-147 （準安定核）の変換核種 Pm-147 は、 β^- 崩壊して Sm-147 に逆戻りし、他の変換核種 Pm-144 , 145 , 146 は、 β^+ 崩壊して Nd の安定核種又は準安定核種に変換される。

【0089】

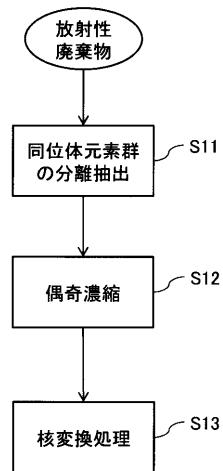
以上述べた少なくともひとつの実施形態の放射性廃棄物の処理方法によれば、同位体元素の群を分離抽出したうえで高エネルギー粒子を前記同位体元素の群に照射することにより、核分裂生成物の中から長寿命放射性核種のみを選択的に消滅させることが可能となる。

この放射性廃棄物の処理方法によれば、同位体分離が不要であり、長寿命放射性核種を資源として再利用することができる。30

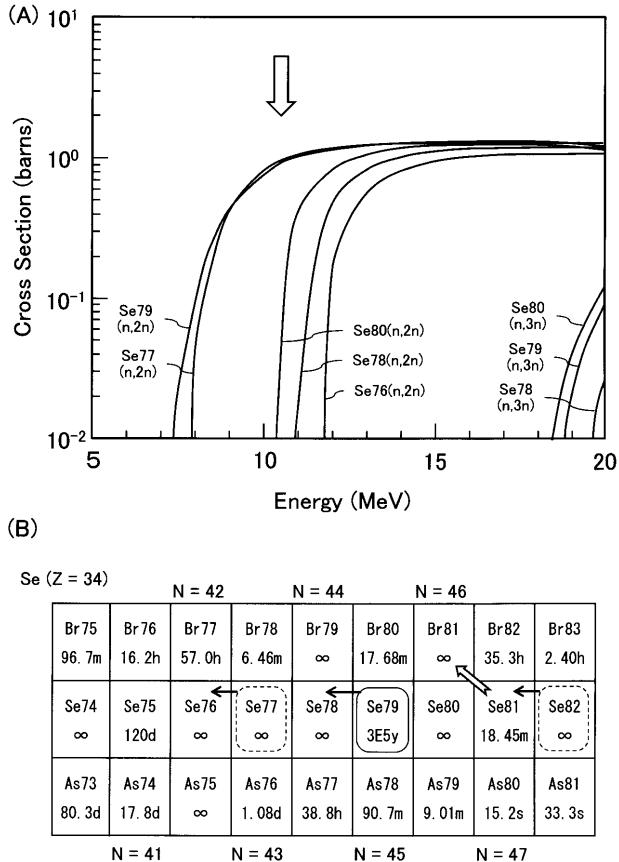
【0090】

本発明のいくつかの実施形態を説明したが、これらの実施形態は、例として提示したものであり、発明の範囲を限定することは意図していない。これら実施形態は、その他の様々な形態で実施されることが可能であり、発明の要旨を逸脱しない範囲で、種々の省略、置き換え、変更、組み合わせを行うことができる。これら実施形態やその変形は、発明の範囲や要旨に含まれると同様に、特許請求の範囲に記載された発明とその均等の範囲に含まれるものである。

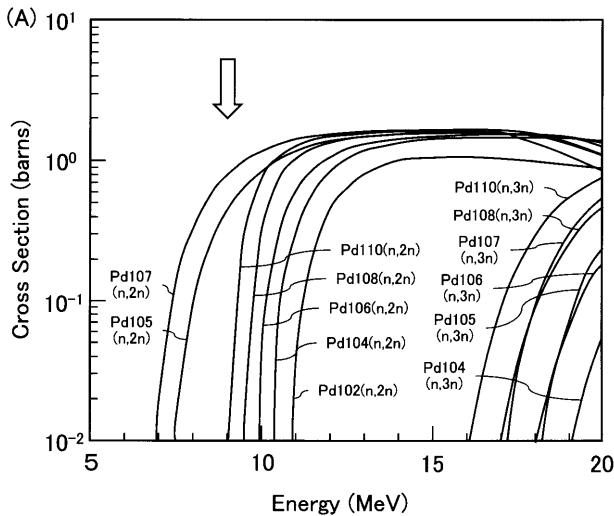
【図1】



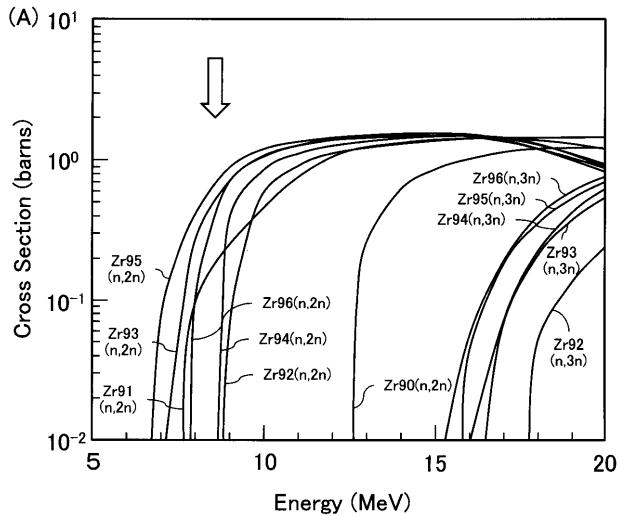
【図2】



【図3】



【図4】



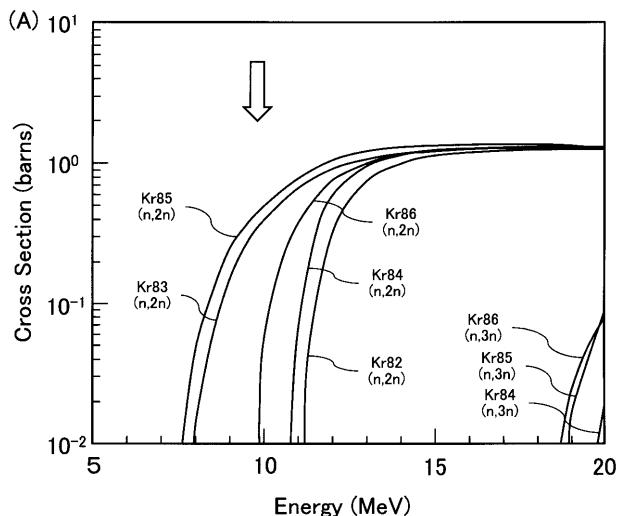
Pd (Z = 46)

		N = 58	N = 60	N = 62	N = 64					
Ag102 12.9m	Ag103 65.7m	Ag104 69.2m	Ag105 41.3m	Ag106 24.0m	Ag107 ∞	Ag108 2.37m	Ag109 ∞	Ag110 24.6s	Ag111 7.45d	Ag112 3.13h
Pd101 8.47h	Pd102 ∞	Pd103 17.0d	Pd104 ∞	Pd105 ∞	Pd106 ∞	Pd107 6.5E6y	Pd108 ∞	Pd109 13.7h	Pd110 ∞	Pd111 23.4m
Rh100 20.8h	Rh101 3.3y	Rh102 207d	Rh103 ∞	Rh104 42.3s	Rh105 35.4h	Rh106 29.8s	Rh107 21.7m	Rh108 6.0m	Rh109 80s	Rh110 3.2s
		N = 59	N = 61	N = 63						

Zr (Z = 40)

		N = 50	N = 52	N = 54					
Mo89 2.04m	Mo90 5.67h	Mo91 15.5m	Mo92 ∞	Mo93 4.0E3y	Mo94 ∞	Mo95 ∞	Mo96 ∞	Mo97 ∞	Mo98 ∞
Nb88 14.55m	Nb89 2.03h	Nb90 14.6h	Nb91 680y	Nb92 3.47E7y	Nb93 ∞	Nb94 2.03E4y	Nb95 35.0d	Nb96 23.4h	Nb97 1.20h
Zr87 1.68h	Zr88 83.4d	Zr89 78.4h	Zr90 ∞	Zr91 ∞	Zr92 ∞	Zr93 1.5E6y	Zr94 ∞	Zr95 64.0d	Zr96 ∞
		N = 51	N = 53	N = 55					

【図5】

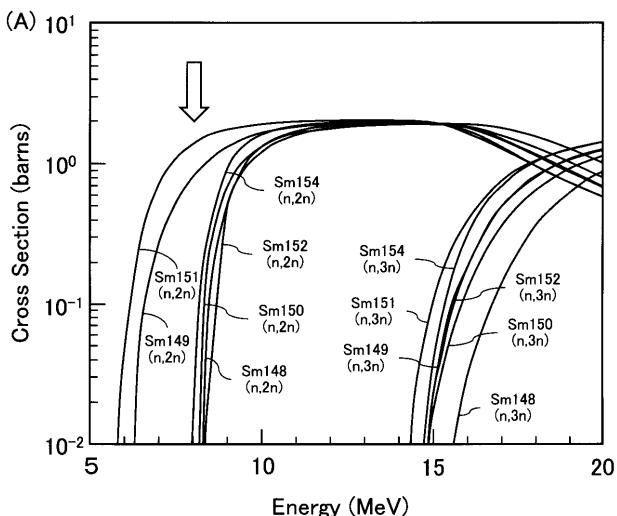


(B)

Kr ($Z = 36$)		$N = 44$	$N = 46$	$N = 48$	$N = 50$
Rb78 17.7m	Rb79 22.9m	Rb80 34s	Rb81 4.58h	Rb82 1.27m	Rb83 86.2d
Kr77 74.4m	Kr78 ∞	Kr79 35.0m	Kr80 ∞	Kr81 2.3E5y	Kr82 ∞
Br76 16.2h	Br77 57.0h	Br78 6.46m	Br79 ∞	Br80 17.7m	Br81 35.3h

$N = 45$ $N = 47$ $N = 49$

【図6】

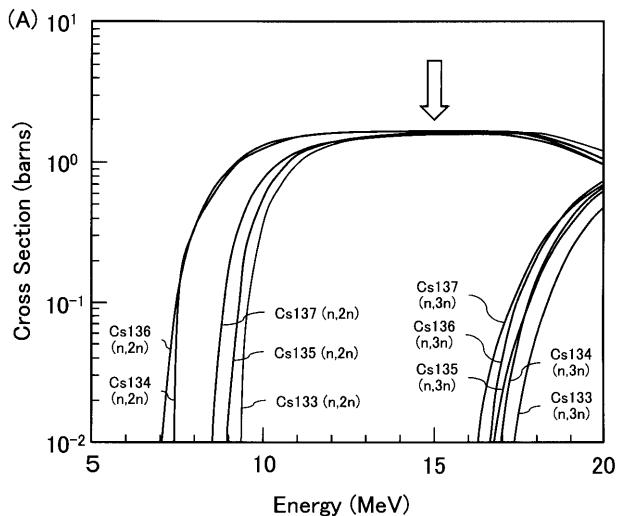


(B)

Sm ($Z = 62$)		$N = 85$	$N = 87$	$N = 89$	$N = 91$
Eu145 5.93d	Eu146 4.59d	Eu147 24.1d	Eu148 54.5d	Eu149 93.1d	Eu150 36.9y
Sm144 ∞	Sm145 340d	Sm146 1E8y	Sm147 1E11y	Sm148 7E15y	Sm149 2E15y
Pm143 265d	Pm144 363d	Pm145 17.7y	Pm146 5.53y	Pm147 2.62y	Pm148 5.37d

$N = 86$ $N = 88$ $N = 90$

【図7】

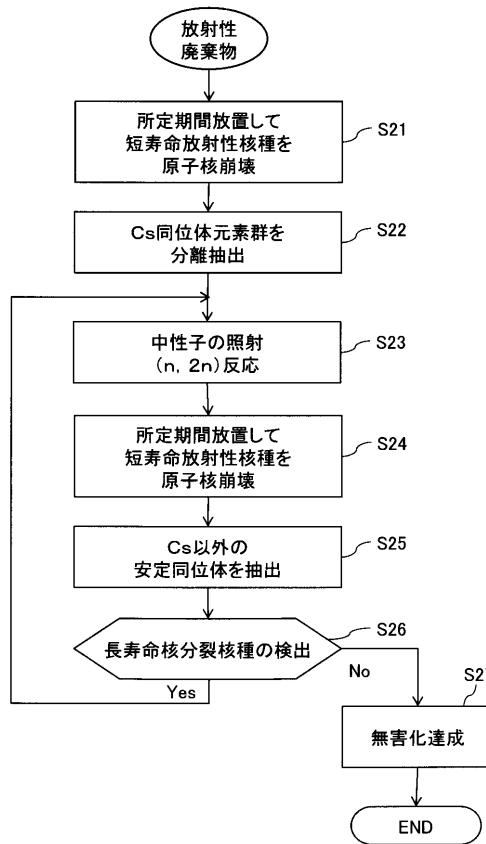


(B)

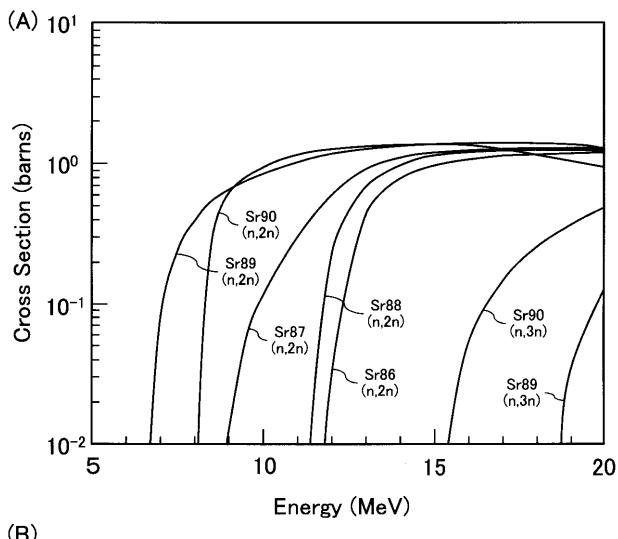
Cs ($Z = 55$)		$N = 78$	$N = 80$	$N = 82$
Ba131 11.5d	Ba132 ∞	Ba133 10.5y	Ba134 ∞	Ba135 ∞
Cs130 29.2m	Cs131 9.69d	Cs132 6.48d	Cs133 ∞	Cs134 2.07y
Xe129 ∞	Xe130 ∞	Xe131 ∞	Xe132 ∞	Xe133 5.24d

$N = 77$ $N = 79$ $N = 81$ $N = 83$

【図8】



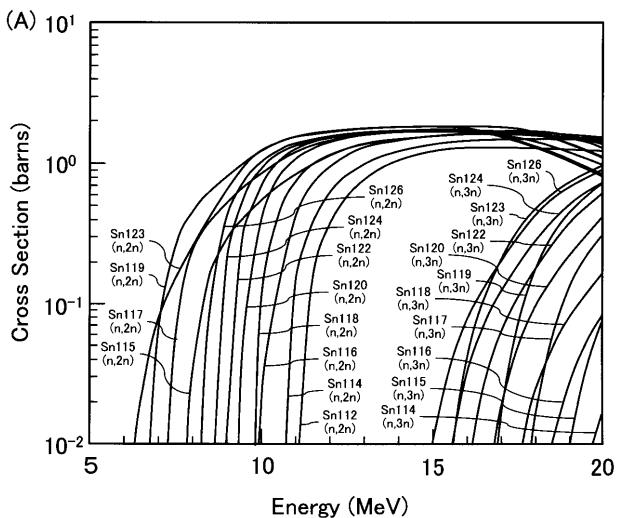
【図9】



(B)

Sr (Z = 38)									
N = 48			N = 50			N = 52			
Y84 4.6s	Y85 2.68h	Y86 14.7h	Y87 79.8h	Y88 107d	Y89 ∞	Y90 64.1h	Y91 58.5d	Y92 3.54	
Sr83 32.4h	Sr84 ∞	Sr85 64.8d	Sr86 ∞	Sr87 ∞	Sr88 ∞	Sr89 50.5d	Sr90 28.8y	Sr91 9.63h	
Rb82 1.27m	Rb83 86.2d	Rb84 32.8d	Rb85 ∞	Rb86 18.6d	Rb87 5e10y	Rb88 17.8m	Rb89 15.6m	Rb90 158s	
N = 47			N = 49			N = 51			

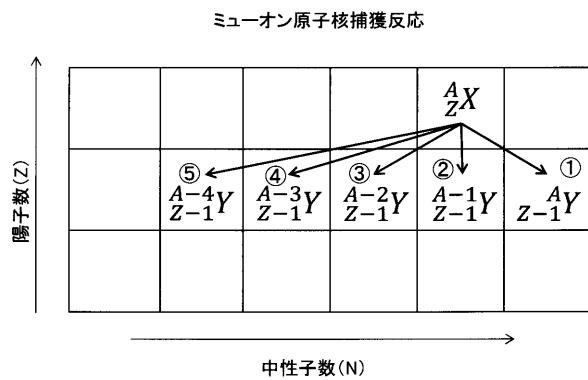
【図10】



(B)

Sn (Z = 50)									
N = 71			N = 73			N = 75			
Te119 16.0h	Te120 ∞	Te121 16.8d	Te122 ∞	Te123 1E13y	Te124 ∞	Te125 ∞	Te126 ∞	Te127 9.35h	Te128 2E24y
Sb118 3.6m	Sb119 38.2h	Sb120 15.9m	Sb121 ∞	Sb122 2.72d	Sb123 ∞	Sb124 60.2d	Sb125 2.76y	Sb126 12.5d	Sb127 3.85d
Sn117 ∞	Sn118 ∞	Sn119 ∞	Sn120 ∞	Sn121 27.1h	Sn122 ∞	Sn123 129d	Sn124 ∞	Sn125 9.64d	Sn126 1E5y
N = 70			N = 72			N = 74			

【図11】



$${}^A_Z X(\mu^-, \nu) {}^{A-1}_{Z-1} Y \quad (1)$$

$${}^A_Z X(\mu^-, n \nu) {}^{A-1}_{Z-1} Y \quad (2)$$

$${}^A_Z X(\mu^-, 2n \nu) {}^{A-2}_{Z-1} Y \quad (3)$$

$${}^A_Z X(\mu^-, 3n \nu) {}^{A-3}_{Z-1} Y \quad (4)$$

$${}^A_Z X(\mu^-, 4n \nu) {}^{A-4}_{Z-1} Y \quad (5)$$

【図12】

Se (Z = 34)									
N = 42			N = 44			N = 46			
Se74 ∞	Se75 120d	Se76 ∞	Se77 ∞	Se78 ∞	Se79 3E5y	Se80 ∞	Se81 18.45m	Se82 ∞	
As73 80.3d	As74 17.8d	As75 ∞	As76 1.08d	As77 38.8h	As78 90.7m	As79 9.01m	As80 15.2s	As81 33.3s	
Ge72 ∞	Ge73 ∞	Ge74 ∞	Ge75 82.8m	Ge76 ∞	Ge77 11.3h	Ge78 88.0m	Ge79 19.0s	Ge80 29.5s	
N = 41			N = 43			N = 45			

【図13】

Pd (Z = 46)									
N = 58			N = 60			N = 62			
Pd101 8.47h	Pd102 ∞	Pd103 17.0d	Pd104 ∞	Pd105 ∞	Pd106 ∞	Pd107 6.5E6y	Pd108 ∞	Pd109 13.7h	Pd110 ∞
Rh100 20.8h	Rh101 3.3y	Rh102 207d	Rh103 ∞	Rh104 42.3s	Rh105 35.4h	Rh106 29.8s	Rh107 21.7m	Rh108 6.0m	Rh110 80s
Ru99 ∞	Ru100 ∞	Ru101 ∞	Ru102 ∞	Ru103 39.3d	Ru104 ∞	Ru105 4.44h	Ru106 373d	Ru107 3.75m	Ru109 4.55m
N = 59			N = 61			N = 63			

【図14】

Sr (Z = 38)		N = 48	N = 50	N = 52
Y84 4. 6s	Y85 2. 68h	Y86 14. 7h	Y87 79. 8h	Y88 107d
Sr83 32. 4h	Sr84 ∞	Sr85 64. 8d	Sr86 ∞	Sr87 ∞
Rb82 1. 27m	Rb83 86. 2d	Rb84 32. 8d	Rb85 ∞	Rb86 18. 6d
				Rb87 5e10y
				Rb88 17. 8m
				Rb89 15. 6m
				Rb90 158s

N = 47 N = 49 N = 51

【図16】

Cs (Z = 55)		N = 78	N = 80	N = 82
Ba131 11. 5d	Ba132 ∞	Ba133 10. 5y	Ba134 ∞	Ba135 ∞
Cs130 29. 2m	Cs131 9. 69d	Cs132 6. 48d	Cs133 ∞	Cs134 2. 07y
				Cs135 2. 3E6y
Xe129 ∞	Xe130 ∞	Xe131 ∞	Xe132 ∞	Xe133 5. 24d
				Xe134 ∞
				Xe135 9. 14h
				Xe136 2. 4E21y
				Xe137 3. 82m
				Xe138 14. 1m

N = 77 N = 79 N = 81 N = 83

【図15】

Zr (Z = 40)		N = 50	N = 52	N = 54	N = 56
Zr87 1. 68h	Zr88 83. 4d	Zr89 78. 4h	Zr90 ∞	Zr91 ∞	Zr92 ∞
Y86 14. 7h	Y87 79. 8h	Y88 106d	Y89 ∞	Y90 64. 1h	Y91 58. 5d
Sr85 64. 8d	Sr86 ∞	Sr87 ∞	Sr88 ∞	Sr89 50. 5d	Sr90 28. 8y
					Sr91 9. 63h
					Sr92 2. 71h
					Sr93 7. 42m
					Sr94 75. 3s
					Sr95 23. 9s

N = 51 N = 53 N = 55

【図17】

Sn (Z = 50)		N = 71	N = 73	N = 75
Te119 16. 0h	Te120 ∞	Te121 16. 8d	Te122 ∞	Te123 1E13y
Sb118 3. 6m	Sb119 38. 2h	Sb120 15. 9m	Sb121 ∞	Sb122 2. 72d
				Sb123 ∞
				Sb124 60. 2d
				Sb125 2. 76y
				Sb126 12. 5d
				Sb127 3. 85d
				Sb128 9. 01h
				Sn117 1E5y
				Sn118 ∞
				Sn119 ∞
				Sn120 27. 1h
				Sn121 ∞
				Sn122 129d
				Sn123 ∞
				Sn124 ∞
				Sn125 9. 64d
				Sn126 1E5y
				Sn127 2. 10h

N = 70 N = 72 N = 74

【図18】

Sm (Z = 62)		N = 85	N = 87	N = 89	N = 91
Sm144 ∞	Sm145 340d	Sm146 1E8y	Sm147 1E11y	Sm148 7E15y	Sm149 2E15y
Pm143 265d	Pm144 363d	Pm145 17. 7y	Pm146 5. 53y	Pm147 2. 62y	Pm148 5. 37d
					Pm149 53. 1h
					Pm150 2. 68h
					Pm151 28. 4h
					Pm152 4. 12m
					Pm153 5. 4m
					Nd142 ∞
					Nd143 ∞
					Nd144 2E15y
					Nd145 ∞
					Nd146 ∞
					Nd147 11. 0d
					Nd148 ∞
					Nd149 1. 73h
					Nd150 ∞
					Nd151 12. 4m
					Nd152 11. 4m

N = 86 N = 88 N = 90

フロントページの続き

(72)発明者 藤田 玲子
埼玉県川口市本町四丁目1番8号 独立行政法人 科学技術振興機構内

(72)発明者 大津 秀暁
埼玉県和光市広沢2番1号 独立行政法人 理化学研究所内

(72)発明者 松崎 祐市郎
埼玉県和光市広沢2番1号 独立行政法人 理化学研究所内

(72)発明者 櫻井 博儀
埼玉県和光市広沢2番1号 独立行政法人 理化学研究所内

(72)発明者 下浦 享
東京都文京区本郷七丁目3番1号 国立大学法人 東京大学内

(72)発明者 水口 浩司
東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社東芝内

(72)発明者 大井川 宏之
茨城県那珂郡東海村松4番地49 独立行政法人 日本原子力研究開発機構内

(72)発明者 小澤 正基
東京都目黒区大岡山二丁目12番1号 国立大学法人 東京工業大学内

(72)発明者 仁井田 浩二
茨城県那珂郡東海村白方白根2-4 一般財団法人 高度情報科学技術研究機構内