#### (19) 日本国特許庁(JP)

# (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

### 特許第6106892号

(P6106892)

(45) 発行日 平成29年4月5日 (2017.4.5)

- (24) 登録日 平成29年3月17日 (2017.3.17)
- (51) Int.Cl.
   F I

   G 2 1 F
   9/00
   (2006.01)
   G 2 1 F
   9/00
   N

   G 2 1 G
   1/08
   (2006.01)
   G 2 1 G
   1/08

請求項の数8 (全23頁)

	<b>** FE</b> 0015 57170 (D0015 57170)	
(21) 出願番号	特旗2015-57179(P2015-57179)	((13) 符計惟有 000003078
(22) 出願日	平成27年3月20日 (2015.3.20)	株式会社東芝
(65) 公開番号	特開2016-176812 (P2016-176812A)	東京都港区芝浦一丁目1番1号
(43) 公開日	平成28年10月6日 (2016.10.6)	(73)特許権者 503359821
審査請求日	平成28年8月25日 (2016.8.25)	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
早期審査対象出願		(73)特許権者 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
		(73)特許権者 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)【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<u>セレン(</u> Se)の同位体元素の群を、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<u>中性子(n)</u>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<u>少なくとも</u>長寿命放射性核種であるSe-79を、安定核種であるSe-78に核 変換させる工程と、を含む放射性廃棄物の処理方法であって、

<u>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、</u> <u>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、</u>

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<u>少なくとも安定核種である</u> <u>Se-80から前記Se-79への核変換が抑制される</u>ことを特徴とする放射性廃棄物の 処理方法。

【請求項2】

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<u>パラジウ</u>ム(Pd)の同位体元素の群を、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<u>中性子(n)</u>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<u>少なくとも</u>長寿命放射性核種であるPd - 107を、<u>安定核種であるPd - 106</u> に核変換させる工程と、を含む放射性廃棄物の処理方法であって、

<u>前記中性子(n)の照射エネルギーの値は、 P d - 1 0 7 の(n , 2 n)反応断面積が</u>、 P d - 1 0 8 の(n , 2 n)反応断面積よりも1 0 倍以上大きくなる範囲内に、設定さ

20

れ、

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<u>少なくとも安定核種である</u> <u>Pd-108から前記Pd-107への核変換が抑制される</u>ことを特徴とする放射性廃棄 物の処理方法。

【請求項3】

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<u>ジルコニ</u> ウム(Zr)の同位体元素の群を、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<u>中性子(n)</u>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<u>少なくとも</u>長寿命放射性核種であるZr-93を、安定核種であるZr-92に核 変換させる工程と、を含む放射性廃棄物の処理方法であって、

10

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、 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<u>少なくとも安定核種である</u> Zr-94から前記Zr-93への核変換が抑制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】

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<u>クリプト</u>ン(Kr)の同位体元素の群を、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<u>中性子(n)</u>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<u>少なくとも中寿命</u>放射性核種<u>であるKr-85</u>を、<u>安定核種であるKr-84</u>に核 変換させる工程と、を含む放射性廃棄物の処理方法であって、

20

<u>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、</u> 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、 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少なくとも安定核種である Kr-86から前記Kr-85への核変換が抑制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】

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<u>サマリウ</u>ム(Sm)の同位体元素の群を、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<u>中性子(n)</u>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<u>少なくとも中寿命</u>放射性核種であるSm - 1 5 1 を、安定核種であるSm - 1 5 0 に核変換させる工程と、を含む放射性廃棄物の処理方法であって、

30

<u>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</u> 、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、

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<u>少なくとも安定核種である</u> <u>Sm-152から前記Sm-151への核変換が抑制される</u>ことを特徴とする放射性廃棄 物の処理方法。

【請求項6】

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<u>セシウム</u> <sup>40</sup> (Cs)の同位体元素の群を、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<u>中性子(n)</u>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<u>少なくとも中寿命</u>放射性核種であるCs-137を、短寿命核種であるCs-13 6に核変換させる工程と、を含む放射性廃棄物の処理方法であって、

<u>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</u> 、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応産物の処理方法

<u>される</u>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<u>6</u>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 50 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8】

請求項1から請求項<u>7</u>のいずれか1項に記載の放射性廃棄物の処理方法において、

前記抽出する工程の後、前記核変換させる工程の前に、

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]

10

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。

【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。

[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 <sup>30</sup> 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。 【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 40 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( , 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,

)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

【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( , n)や中性子捕獲反応(n, )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]

10

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 <sup>20</sup> 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】

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<u>ら放</u>射性核種のみを選択的に<u>安定核種に核変換</u>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】

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、を含む放射性廃棄物の処理方法であって、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。

[0013]

40

30

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<u>ら放</u>射性核種のみを選択 的に安定核種に核変換させる核分裂生成物の処理方法が提供される。

さらに、長寿命放射性核種等から核変換された安定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(Se)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(Se)の遷移を説明 する核図表。

10

40 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 前記放射性核種のうち長寿命放射性核種又は中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。 50

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(Pd)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(Zr)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(Zr) 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(Kr)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(Kr)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(Sm)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(Sm)の遷

【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(Cs)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(Cs)の遷移を 説明する核図表。

【図8】セシウム同位体(Cs)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(Sr)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。

20 【図10】(A)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、(B)(n,2n)反応によるスズ同位体(Sn)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。

移を説明する核図表。

【図12】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。

【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(Pd)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(Sr)の遷移を説明 する核図表。

30 【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(Zr)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(Cs)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(Sn)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(Sm)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。

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

(5)

【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(Pd)の中性子放出

)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やプル 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。

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、さらにこれら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 <sup>10</sup> 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。

【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<sup>5</sup>年)、パラジウムPd-107(6.5×10<sup>6</sup> 年)、ジルコニウムZr-93(1.5×10<sup>6</sup>年)、セシウムCs-135(2.3× 10<sup>6</sup>年)、ヨウ素I-129(1.57×10<sup>7</sup>年)、テクネチウムTc-99(2.1 ×10<sup>5</sup>年)、スズSn-126(2.3×10<sup>5</sup>年)が挙げられる。

このうち、ヨウ素 I - 1 2 9 (1 . 5 7 × 1 0<sup>7</sup>年)及びテクネチウム T c - 9 9 (2 .1 × 1 0<sup>5</sup>年)については、中性子捕獲反応(n , )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 - 1 2 9 及びテクネチウム T c - 9 9 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<sup>10</sup>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-8 5(10.8年)、サマリウムSm-151(90年)<u>等の中寿命放射性核種についても</u> 、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。

【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、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、前記の一 般的な元素分離方法を適用することができる。

[0023]

20

30

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 対し、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。

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】

ー般に、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。

【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。

【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100keV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, )反応といった荷電粒子が放出される反応が起こり、7~8MeV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。

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<u>又は中寿命放射性核種</u>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]

40

20

10

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<sup>5</sup>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。 【 0 0 3 1 】

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 10 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Br81(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-7 7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<sup>6</sup>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 P d 同位体元素群のうち消滅対象は、長寿命放射性核種の P d - 1 0 7 である。 【 0 0 3 4 】

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。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、9 M e Vを超えたところから中性 子を偶数持つPd - 1 0 2 , 1 0 4 , 1 0 6 , 1 0 8 , 1 1 0 の(n, 2 n)反応断面積が 増大し始め、各々はPd - 1 0 1 , 1 0 3 , 1 0 5 , 1 0 7 , 1 0 9 に核変換されてしま う。そして、Pd同位体の(n, 2 n)反応断面積は、1 1 M e V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、16MeVを超えたところから( <sup>50</sup>

20

30

n,3n)反応断面積が増大し始める。

【 0 0 3 5 】

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。

そこで、 P d 同位体元素群のうち長寿命放射性核種である P d - 1 0 7 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、 P d - 1 0 7 の ( n , 2 n ) 反応 断面積が、 P d - 1 0 8 の ( n , 2 n ) 反応断面積よりも 1 0 倍以上大きくなる範囲内、 具体的には 7 M e V ~ 9 . 5 M e V の範囲内に設定されることが望まれる。

【0036】

10

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 - 1 10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。

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 - 10 4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。

20

50

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1.5×10<sup>6</sup>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 Z r 同位体元素群のうち消滅対象は、長寿命放射性核種の Z r - 9 3 である。 【 0 0 3 8 】

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、7MeV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 M e V の近傍から中性子を偶数 <sup>30</sup> 持つ Z r - 9 2 , 9 4 , 9 6 の(n, 2 n)反応断面積が増大し始め、各々は Z r - 9 1 , 9 3 , 9 5 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、15MeVを超えたところから( n,3n)反応断面積が増大し始める。

【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 <sup>40</sup> 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7.2MeV~8.7MeV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 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N b-95(半減期35.0日)に核崩壊し、さらに安定核であるMo95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。

(9)

【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<u>5</u>(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。

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<sup>5</sup>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-85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2.29x 10 10<sup>5</sup>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、7.5 MeV 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,2 n)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。

さらに中性子の照射エネルギーを大きくしていくと、9.8 M e V を超えたところから 中性子を偶数持つK r - 86、K r - 84及びK r - 82の(n,2n)反応断面積が増大 し始め、各々はK r - 85、K r - 83及びK r - 81に核変換されてしまう。そして、 このK r 同位体の(n,2n)反応断面積は、14 M e V 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、18.5 M e V を超えたところか

20

30

40

【0043】

ら(n,3n)反応断面積が増大し始める。

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。

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<u>6</u>(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。

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-148,1 49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 - 1 5 1 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 - 1 4 6 (半減期1.03 × 1 0<sup>8</sup>年)及びSm - 1 4 7 (半減期1.06×10<sup>11</sup>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 - 1 5 1 及びSm - 1 4 9 の(n,2 n)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 - 1 5 0 及びSm - 1 4 8 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、8MeVを超えたところから中性 50

子を偶数持つSm - 1 4 8、Sm - 1 5 0、Sm - 1 5 2 及びSm - 1 5 4 の(n,2n) 反応断面積が増大し始め、各々はSm - 1 4 7、Sm - 1 4 9、Sm - 1 5 1 及びSm -1 5 3 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、1 1 Me V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、14.3MeV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 - 1 5 1 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 - 1 5 1 の(n, 2 n)反応 断面積がSm - 1 5 2 の(n, 2 n)反応断面積よりも1 0 倍以上大きくなる範囲内、具 体的には5 . 8 M e V ~ 8 . 3 M e V 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-147,1 48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。

20

10

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 <sup>-</sup>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<sup>6</sup>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。

30

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C s-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、7MeVの近 傍からCsの(n,2n)反応断面積が増大し始め、Cs-133,134,135,13 <sup>40</sup> 7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、11MeV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、16MeVを超えたところから( n,3n)反応断面積が増大し始める。

【 0 0 5 0 】

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( <sup>+</sup>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 50

る。 C s - 1 3 5 は (n, 2 n) 反応で核変換し、中寿命放射性核種の C s - 1 3 4 (半減 期2.07年)となり、このCs-134は核崩壊( 「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( <sup>-</sup>崩壊)して安定核 種である Ba-136となる。

[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,xn)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。

10 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。

[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。 [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)。

30 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(S2 3) 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-1 32を、単離することができる。

[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-13 40 7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 EN D)。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]

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。

20

【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、6.8 MeV の近傍からSr-89の(n,2n)反応断面積が増大し始め、続いて8.2 MeVの近傍 からSr-90の(n,2n)反応断面積が増大し始める。

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 <sup>10</sup> 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。

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 <sup>+</sup>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 <sup>20</sup> 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1×10<sup>5</sup>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。

[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、6.8 Me Vの近傍からSn - 119の(n, 2 n)反応断面積が増大し始め、続いて8.2 Me Vの 近傍からSn - 126の(n, 2 n)反応断面積が増大し始める。

【 0 0 6 1 】

図<u>10</u>(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-<u>126</u>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。

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。

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。

30

[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<sup>-</sup> 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<sup>+</sup>と負ミューオン μ<sup>-</sup>とがあるが、本発明が対象にするのは負ミューオンμ<sup>-</sup>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<sup>-</sup>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<sup>-</sup>と結びついて中性子に変換され、ニュートリノ 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 <sup>10</sup> 性子nを放出する原子核反応を起こす。

【0064】

( $\mu^{-}$ , )反応 :  $\mu^{-}$  + X(Z,A) Y((Z - 1),A) + (1) ( $\mu^{-}$ ,n )反応 : Y((Z - 1),(A)) n + Y((Z - 1),(A - 1)) (2) ( $\mu^{-}$ ,2n )反応 : Y((Z - 1),(A)) 2n + Y((Z - 1),(A - 2)) (3) ( $\mu^{-}$ ,3n )反応 : Y((Z - 1),(A)) 3n + Y((Z - 1),(A - 3)) (4) ( $\mu^{-}$ ,4n )反応 : Y((Z - 1),(A)) 4n + Y((Z - 1),(A - 4)) (5) 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 - 1 2 7 では、(μ<sup>-</sup>, )反応、(μ<sup>-</sup>, n )反応、( μ<sup>-</sup>, 2 n )反応、(μ<sup>-</sup>, 3 n )反応、(μ<sup>-</sup>, 4 n )反応、(μ<sup>-</sup>, 5 n )反応の発 生比率は、それぞれ 8 %、5 2 %、1 8 %、1 4 %、5 %、2 . 5 % であることが判って いる。

[0066]

[0067]

(ミューオンビーム発生装置)

同位体元素の群に(μ<sup>-</sup>,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 照射して負パイオンを生成させる。そして、この生成した負パイオン(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。

30

50

20

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<sup>5</sup>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<sup>-</sup>を照射した際、Se-79に着目すると、<sup>79</sup>S 40 e(μ<sup>-</sup>, )<sup>79</sup>As、<sup>79</sup>Se(μ<sup>-</sup>,n )<sup>78</sup>As、<sup>79</sup>Se(μ<sup>-</sup>,2n )<sup>77</sup>As、<sup>79</sup>Se (μ<sup>-</sup>,3n )<sup>76</sup>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( <sup>-</sup>崩壊)して、それぞれSe-76、Se-77、 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。

(14)

このように、Se同位体元素群にミューオンμ<sup>-</sup>を照射した場合、変換核種が 「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。

【 0 0 7 0 】

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「崩壊によりSe-7 7に逆戻りし、As-76は「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「崩壊によるSe-74(安定核種)及び<sup>+</sup>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S e-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<sup>6</sup>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 P d 同位体元素群にミューオン μ<sup>-</sup>を照射した際、 P d - 1 0 7 に着目すると、<sup>107</sup> P d (μ<sup>-</sup>, )<sup>107</sup> R h、<sup>107</sup> P d (μ<sup>-</sup>,n )<sup>106</sup> R h、<sup>107</sup> P d (μ<sup>-</sup>,2n )<sup>105</sup> R h、 <sup>107</sup> P d (μ<sup>-</sup>,3n )<sup>104</sup> R h、の核変換反応が起きる。

生成した R h - 1 0 4、 R h - 1 0 5、 R h - 1 0 6、 R h - 1 0 7 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(「崩壊)して、それぞれ P d - 1 0 4、 P d - 1 0 5、 P d - 1 0 6、 P d - 1 0 7 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 P d - 1 0 2 , 1 0 4 , 1 0 5 , 1 0 6 , 1 0 8 , 1 1 0 のうち P d - 1 0 8 , 1 1 0 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 P d - 1 0 7 になる。

このように、 Pd 同位体元素群にミューオン μ<sup>-</sup>を照射した場合、変換核種が 「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。

【 0 0 7 4 】

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 「崩壊により 4 Pd-105に逆戻りし、Rh-104は 「崩壊によりPd-104(安定核種)及び <sup>+</sup>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 崩壊によるPd-102(安定核種)及び <sup>+</sup>崩壊によるRu-10 2(安定核種)になる。

Pd-107のRh変換核種の一部からPd-107への逆戻りは避けられないが、P d-105のRh変換核種から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。 10

20

30

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<sup>-</sup>を照射した際、Sr - 90に着目すると、<sup>90</sup>Sr(μ<sup>-</sup>, )<sup>90</sup>Rb、<sup>90</sup>Sr(μ<sup>-</sup>, n)<sup>89</sup>Rb、<sup>90</sup>Sr(μ<sup>-</sup>, 2n)<sup>88</sup>Rb、<sup>90</sup>Sr (μ<sup>-</sup>, 3n)<sup>87</sup>Rb、の核変換反応が起きる。

生成した R b - 8 7 は準安定核種であり、 R b - 8 8、 R b - 8 9、 R b - 9 0 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( 「崩壊)して、それぞれ S r -8 8、 S r - 8 9、 S r - 9 0 になる。 S r - 8 9 はさらに 「崩壊して安定核種である Y - 8 9 となる。

10

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 20 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Z r-93(半減期1.5×10<sup>6</sup>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<sup>-</sup>を照射した際、Zr - 9 3 に着目すると、<sup>93</sup>Z r(μ<sup>-</sup>, )<sup>93</sup>Y、<sup>93</sup>Zr(μ<sup>-</sup>,n )<sup>92</sup>Y、<sup>93</sup>Zr(μ<sup>-</sup>,2n )<sup>91</sup>Y、<sup>93</sup>Zr(μ<sup>-</sup>,3 n )<sup>90</sup>Y、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( 崩壊)して、それぞれ Z r - 90、 Z r - 91、 Z r - 9

2、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<sup>-</sup>を照射した場合、変換核種が 「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。

 $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 8 & 0 \end{bmatrix}$ 

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 40 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 「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 <sup>+</sup>崩 壊によるSr-88(安定核種)になる。

Zr-93のY変換核種の一部からZr-93への逆戻りは避けられないが、Zr-9 1のAs変換核種から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。

50

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<sup>6</sup>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。

【 0 0 8 2 】

このCs同位体元素群にミューオンμ<sup>-</sup>を照射した際、Cs - 137に着目すると、<sup>137</sup> Cs(μ<sup>-</sup>,)<sup>137</sup>Xe、<sup>137</sup>Cs(μ<sup>-</sup>,n)<sup>136</sup>Xe、<sup>137</sup>Cs(μ<sup>-</sup>,2n)<sup>135</sup>Xe、 <sup>137</sup>Cs(μ<sup>-</sup>,3n)<sup>134</sup>Xe、の核変換反応が起きる。また、Cs - 135に着目する と、<sup>135</sup>Cs(μ<sup>-</sup>,)<sup>135</sup>Xe、<sup>135</sup>Cs(μ<sup>-</sup>,n)<sup>134</sup>Xe、<sup>135</sup>Cs(μ<sup>-</sup>,2n)<sup>13</sup> <sup>3</sup>Xe、<sup>135</sup>Cs(μ<sup>-</sup>,3n)<sup>132</sup>Xe、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、短期間のうちに核崩壊( <sup>-</sup>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。

【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 20 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1×10<sup>5</sup>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 S n 同位体元素群にミューオンμ<sup>-</sup>を照射した際、 S n - 1 2 6 に着目すると、<sup>126</sup> S n (μ<sup>-</sup>, )<sup>126</sup> I n、<sup>126</sup> S n (μ<sup>-</sup>, n )<sup>125</sup> I n、<sup>126</sup> S n (μ<sup>-</sup>, 2n )<sup>124</sup> I n、 <sup>126</sup> S n (μ<sup>-</sup>, 3n )<sup>123</sup> I n、の核変換反応が起きる。

生成した In - 1 2 3 , 1 2 4 , 1 2 5 , 1 2 6 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( <sup>-</sup>崩壊)して、それぞれ Sn - 1 2 3 , 1 2 4 , 1 2 5 , 1 2 6 になる。

30

40

10

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-112,114,115,116,117,118,119,120,1 22,124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。

【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-147,1 48,149、長寿命放射性核種であるSm-146(半減期1×10<sup>8</sup>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。

【 0 0 8 6 】

このSm同位体元素群にミューオンμ<sup>-</sup>を照射した際、Sm - 1 5 1 に着目すると、<sup>151</sup> Sm(μ<sup>-</sup>, )<sup>151</sup>Pm、<sup>151</sup>Sm(μ<sup>-</sup>,n )<sup>150</sup>Pm、<sup>126</sup>Sm(μ<sup>-</sup>,2n )<sup>149</sup>Pm、 <sup>126</sup>Sm(μ<sup>-</sup>,3n )<sup>148</sup>Pm、の核変換反応が起きる。

生成した Pm - 1 4 8 , 1 4 9 , 1 5 0 , 1 5 1 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( <sup>-</sup>崩壊)して、それぞれ Sm - 1 4 8 , 1 4 9 , 1 5 0 , 1 5 1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 50

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。

このように、Sm同位体元素群にミューオンu゙を照射した場合、変換核種が 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]

10 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、S m - 1 4 9 の P m 変換核種から S m - 1 5 1 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。

また、Sm-147(準安定核)の変換核種Pm-147は、 <sup>-</sup>崩壊してSm-14 7 に逆戻りし、その他の変換核種 Pm - 1 4 4 *,* 1 4 5 *,* 1 4 6 は、 <sup>+</sup>崩壊して N d 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放射性核種のみを選択的に安定核種に核変換させることが可能 となる。

20

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、長寿命放射性核種等 から核変換された安定核種を資源として再利用することができる。

[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】





Se (	Z = 34)		N = 42		N = 44		N = 46		
	Br 75	Br 76	Br 77	Br 78	Br 79	Br80	Br81	Br82	Br83
	96. 7m	16. 2h	57. 0h	6.46m	∞	17.68m	<u>م</u>	35. 3h	2. 40h
	Se74	Se75	Se76	Se77	€ Se78	Se79	Se80	Se81	Se82
	~	120d	∞	00	œ	3E5y	∞	18. <b>4</b> 5m	( <u>∞</u> )
	As73	As74	As75	As76	As77	As78	As79	As80	As81
	80. 3d	17. 8d	∞	1. 08d	38. 8h	90. 7m	9. 01m	15. 2s	33. 3s
		N = 41		N = 43		N = 45		N = 47	









Zr (Z = 40)			N = 50		N = 52 N = 54				
Mo89	Mo90	Mo91	Mo92	Mo93	Mo94	Mo95	Mo96	Mo97	Mo98
2. 04m	5. 67h	15.5m	∞	4. 0E3y	∞	7	œ	∞	~
Nb88	Nb89	Nb90	Nb91	Nb92	Nb93	Nb94	Nb95	Nb96	Nb97
14. 55m	2. 03h	14. 6h	680y	3. 47E7y	∞	2. 03E4y	35. 0d	23. <b>4</b> h	1. 20h
Zr87	Zr88	Zr89	Zr90	Zr91	Zr92	Zr93	Zr94	Zr95	Zr96
1. 68h	83. 4d	78. <b>4</b> h	∞	00	∞	1. 5E6y	∞	64. Od	œ
				N = 51		N = 53		N = 55	





Kr (Z	= 36)		N = 44	Ļ	N = 46	i	N = 48		N = 50	
Rb78	Rb79	Rb80	Rb81	Rb82	Rb83	Rb84	Rb85	Rb86	Rb87	Rb88
17.7m	22. 9m	34s	4. 58h	1. 27m	86. 2d	32. 8m	∞	18. 6d	5E10y	17. 8m
Kr 77	Kr 78	Kr79	Kr80	Kr81	Kr82	Kr83	Kr84	Kr85	Kr86	Kr87
74. 4m	∞	35. Om	∞	2. 3E5y	∞	œ	∞	10. 8y	∞	76. 3m
Br76	Br77	Br78	Br79	Br80	Br81	Br82	Br83	Br84	Br85	Br86
16. 2h	57. 0h	6. 46m	∞	17. 7m	∞	35. 3h	2. 4h	31. 8m	2. 90m	55.1s
	•		•	N = 45		N = 47		N = 49	•	•

Sm (	Z = 62)		N = 85	;	N = 87		N = 89		N = 91	
Eu145	Eu146	Eu147	Eu148	Eu149	Eu150	Eu151	Eu152	Eu153	Eu154	Eu155
5. 93d	4. 59d	24. 1d	54. 5d	93. 1d	36. 9y	∞	13. 5d	_∞ 	8. 59y	4. 76y
				<b>←</b>	·	+			À ←	·\
Sm144	Sm145	Sm146	Sm147	Sm148	Sm149	Sm150	Sm151	Sm152	Sm153	Sm154
∞	340d	1E8y	1E11y	7E15y	2E15y	∞	90y	∞	46. 3h	∞
Pm143	Pm144	Pm145	Pm146	Pm147	Pm148	Pm149	Pm150	Pm151	Pm152	Pm153
265d	363d	17. 7y	5. 53y	2. 62y	5. 37d	53. 1h	2. 68h	28. 4h	4. 12m	5. 4m
		•		N = 86		N = 88	•	N = 90	•	



(	в	)

N = 78 N = 80 N = 82 Ba131 Ba132 Ba133 Ba134 Ba135 Ba136 Ba137 Ba138 Ba139 Ba140

		N = 77		N = 79		N = 81		N = 83	
8	∞	∞	∞	5. 24d	8	9.14h	2. 4E21y	3. 82m	14. 1m
Xe129	Xe130	Xe131	Xe132	Xe133	Xe134	Xe135	Xe136	Xe137	Xe138
29. 2m	9. 69d	6. 48d	œ	2. 07y	2. 3E6y	13. 2d	30. 1y	33. 4m	9. 27m
Cs130	Cs131	Cs132	Cs133	Cs134	Cs135	Cs136	Cs137	Cs138	Cs139
11. 5d	×2 %	10. 5y	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	∞	7 7	∞	∞	83. 1m	12. 8đ

【図8】







(;	Z = 38)			N = 48		N = 50		N = 52	
	Y84	Y85	Y86	Y87	Y88	Y89	Y90	Y91	Y92
	4. 6s	2. 68h	14. 7h	79. 8h	107d	<u>م</u>	64. 1h	58. 5d	3. 54
	Sr83	Sr84	Sr85	Sr86	Sr87	Sr88	Sr 89	Sr90	Sr91
	32. <b>4</b> h	∞	64. 8d	∞	∞	∞	50. 5d	28. 8y	9. 63h
	Rb82	Rb83	Rb84	Rb85	Rb86	Rb87	Rb88	Rb89	Rb90
	1. 27m	86. 2d	32. 8d	80	18. 6d	5e10y	17. 8m	15.6m	158s
			N = 47		N = 49		N = 51		

Sn (Z	Sn (Z = 50)			N = 71 N		N = 73		N = 75		
Te119 16. Oh	Te120 ∞	Te121 16. 8d	Te122 ∞	Te123 1E13y	Te124 ∞	Te125	Te126 ∞	Te127 9. 35h	Te128 2E24y	Te129 69.6m
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 ∞	Sn118 ∞	Sn119 ∞	Sn120 ∞	Sn121 27. 1h	Sn122 ∞	Sn123 129d	Sn124 ∞	Sn125 9. 64d	Sn126 1E5y	Sn127 2. 10h
			N = 70		N = 72		N = 74			

### 【図11】

Sr



中性子数(N)

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

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

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

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

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

N = 60

м

#### 【図13】

Pd101

8. 47h

Rh100 Rh101 3. 3y 20. 8h

Ru99

00 œ

Pd (Z = 46) Pd102

 $\infty$ 

Ru100 Ru101

Rh102

207d

œ

N = 58 Pd103 Pd104 Pd105 Pd106 Pd107 Pd108 Pd109 Pd110

17. Od œ

Ru102 Ru103 Ru104 Ru105 Ru106

œ 39. 3d ∞

- 10			-	1		
	$\rightarrow \leftarrow$	NFR	$\wedge \vee$	44	N `	4
Rh103	Rh104	Rh105	Rh106	Rh107	Rh108	Rh109
∞	42. 3s	35. 4h	29. 8s	21.7m	6. Om	80s

6. 5E6

4.44h N = 59 N = 61 N = 63

N = 62

373d

13. 7h

Ru107 Ru108

3.75m 4.55m

N = 64

œ

Pd111

23. 4m

Rh110

3.2s

Ru109

34. 5s

【図14】

Sr (Z = 38)

2 - 36)			N = 48		N = 50		N = 52	
Y84	Y85	Y86	Y87	Y88	Y89	Y90	Y91	Y92
4.6s	2. 68h	14. 7h	79. 8h	107d	,∞ 7	64. 1h	58. 5d	3. 54
Sr83	Sr84	Sr85	Sr86	Sr87	Sr88	Sr89	Sr90	Sr91
32. 4h	∞	64. 8d	8	∞	7 7	50. 5d	28. 8y	9. 63h
Rb82	Rb83	Rb84	Rb85	Rb86	Rb87	Rb88	Rb89	Rb90
1. 27m	86. 2d	32. 8d	00	18. 6d	5e10y	17.8m	15. 6m	158s
		N = 47		N = 49		N = 51		

N = 52

54

Y91

∞ 1.5E6y ∞

¥92

N = 53

Sr89 Sr90 Sr91 Sr92

N = 54

14

64. 1h 58. 5d 3. 54h 10. 2h 18. 7m 10. 3m

Y93

50. 5d 28. 8y 9. 63h 2. 71h 7. 42m 75. 3s 23. 9s

Zr92 Zr93 Zr94 Zr95 Zr96 Zr97

Y94 Y95 Y96

N = 55

Sr93 Sr94

N = 56

64. 0d 4E19y 16. 9h

5.34s

Sr 95

【図15】

Zr87 Zr88 Zr89

1. 68h 83. 4d 78. 4h

N = 50

Zr90

œ 00

Sr 88

8

106d œ

Sr87

œ

U

Zr91

¥90

N = 51

Zr (Z = 40)

Y86 Y87 Y88 Y89

64. 8d

14. 7h 79. 8h

Sr85 Sr86

œ

【図16】

Cs (Z = 55)

Cs (Z = 55)		N = 78		N = 80		N = 82				
Ba131	Ba132	Ba133	Ba134	Ba135	Ba136	Ba137	Ba138	Ba139	Ba140	
11. 5d	∞	10. 5y	∞	∞	~~~~	∞	∞	83. 1m	12. 8d	
Cs130	Cs131	Cs132	Cs133	Cs134	Cs135	Cs136	Cs137	Cs138	Cs139	
29. 2m	9. 69d	6. 48d	۳ ۳	2. 07y	2. 3E6y	13. 2d	30. 1y	33. 4m	9. 27m	
Xe129	Xe130	Xe131	Xe132	Xe133	Xe134	Xe135	Xe136	Xe137	Xe138	
80	œ	∞	∞	5. 24d	œ	9. 14h	2. 4E21 y	3. 82m	14. 1m	
		N = 77 N = 79			N = 81			N = 83		

### 【図17】

Sn (Z = 50)		N = 71		N = 73		N = 75				
Te11	9 Te120	Te121	Te122	Te123	Te124	Te125	Te126	Te127	Te128	Te129
16.0	h ∞	16. 8d	∞	1E13y	∞	7	∞	9. 35h	2E24y	69. Gm
Sb11	8 Sb119	Sb120	Sb121	Sb122	Sb123	Sb124	Sb125	Sb126	Sb127	Sb128
3. 6r	n 38.2h	15. 9m	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	2. 72d	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	60. 2d	2. 76y	12. 5d	3. 85d	9.01h
Sn11	7 Sn118	Sn119	Sn120	Sn121	(Sn122)	Sn123	Sn124	Sn125	Sn126	Sn127
~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	~ ~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	~	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	27. 1h	∞ 	129d	∞ 	9. 64d	1E5y	2. 10h
In11	6 In117	In118	In119	In120	In121	In122	In123	In124	In125	In126
14. 1	s 43.2m	5. Os	2. <b>4</b> m	3. 1s	23. 1s	1. 5s	5. 98s	3. 11s	2. 36s	1.60s

N = 70 N = 72 N = 74

## 【図18】

Sm (Z = 62)			N = 85		N = 87		N = 89		N = 91	
Sm144	Sm145	Sm146	Sm147	Sm148	Sm149	Sm150	Sm151	Sm152	Sm153	Sm154
	340a	TEOY				م	909	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	40. 30	
Pm143	Pm144	Pm145	Pm146	Pm147	Pm148	Pm149	₽ <b>₩</b> Pm150	Pm151	Pm152	Pm153
265d	363d	17. 7y	5. 53y	2. 62y	5. 37d	53. 1h	2. 68h	28. 4h	4. 12m	5. 4m
Nd142	Nd143	Nd144	Nd145	Nd146	Nd147	Nd148	Nd149	Nd150	Nd151	Nd152
∞	∞	2E15y	∞	∞	11. <b>Od</b>	∞	1. 73h	∞	12. <b>4</b> m	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 禎市郎
  - 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

審査官藤原伸二

(56)参考文献 特表2002-519678(JP,A)
特開昭56-125698(JP,A)
藤田 玲子,ImPACTにおける長半減期FP核変換技術開発,[オンライン],2014年
8月20日,p.1-15,[検索日 2016.05.30],URL,http:www.mext.go.jp/b\_menu/shingi/gij
yutu/gijyutu2/070/shiro/\_icsFiles/afieldfile/2014/09/11/1351595\_1.pdf

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G 2 1 F 9 / 0 0 - 9 / 3 6 G 2 1 G 1 / 0 4 - 1 / 1 2 G 2 1 K 5 / 0 8 H 0 5 H 6 / 0 0 J S T P L us / J M E D P L us / J S T 7 5 8 0 (J D r e am I I I)