(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7691459号
(P7691459)

(45)発行日　令和7年6月11日(2025.6.11)

(24)登録日　令和7年6月3日(2025.6.3)

(51)国際特許分類		FI		
G21F 9/00 (2006.01)		G21F	9/00	N
G21F 9/30 (2006.01)		G21F	9/30	561
G21F 9/02 (2006.01)		G21F	9/02	561A

請求項の数　4　（全53頁）

(21)出願番号　特願2023-131725(P2023-131725)
(22)出願日　令和5年8月12日(2023.8.12)
(65)公開番号　特開2023-168643(P2023-168643A)
(43)公開日　令和5年11月27日(2023.11.27)
審査請求日　令和6年2月20日(2024.2.20)
特許権者において、権利譲渡・実施許諾の用意がある。

(73)特許権者　723000154
植月 利一
神奈川県藤沢市善行２丁目５番地の７
(72)発明者　植月 利一
神奈川県藤沢市善行２丁目５番地の７
審査官　大門 清

最終頁に続く

(54)【発明の名称】　使用済み核燃料の合理的な処理方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

使用済み核燃料から生じる核分裂生成物のうち、燃料取出し直後から発生した気体核種を回収する気体槽と、使用済み核燃料からウラン、プルトニウム及びアクチノイドを回収処理し、残された核分裂生成物を所定の時間経過後、硝酸に可溶な核種を貯蔵する可溶物槽を具備し、可溶物槽中の硝酸に可溶な核種に１回目の冷中性子を照射し、規定の時間貯蔵後、２回目の冷中性子照射直前に、可溶物槽中の放射線崩壊で生じた気体核種を気体槽に回収し、生じた硝酸に難溶あるいは不溶な核種（以後、難溶性核種という）を分離して別の貯蔵槽に回収し、壊変で発生した気体及び難溶性固体核種には冷中性子を照射せず、濾過した硝酸および硝酸に可溶な核種を可溶物槽に還流させ、可溶物槽の核種に２回目の冷中性子を照射して規定時間貯蔵し、以後、可溶物槽に貯蔵された硝酸に可溶な核種のみ冷中性子照射と規定時間貯蔵を複数回繰返し、可溶物槽で冷中性子照射後の貯蔵期間に放射線崩壊で生じた気体核種は気体槽に、生じた難溶性核種は別の貯蔵槽に回収し、気体核種と難溶性核種には冷中性子を照射しない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に記載された気体槽と、使用済み核燃料からウラン、プルトニウム及びアクチノイドを回収処理し、残された核分裂生成物を所定の時間経過後、硝酸に難溶あるいは不溶な核種を分離して貯蔵する難溶物槽を具備し、難溶物槽中の難溶性核種に１回目の冷中性子を照射後、規定濃度の硝酸溶液を難溶物槽に投入し、規定の時間貯蔵後、放射線崩壊で生じた気体核種は気体槽に回収し、生じた硝酸に可溶な核種は硝酸溶液と共に濾過して

別の貯蔵槽へ回収し、難溶物槽の核種に２回目の冷中性子を照射直後に濾過して別の貯蔵槽に回収した硝酸溶液を難溶物槽に還流させ規定の時間貯蔵し、壊変で生じた気体核種は気体槽に、硝酸に可溶な核種は硝酸溶液と共に濾過して別の貯蔵槽へ回収し、以後、難溶物槽中の難溶性核種に冷中性子照射直後（前回の冷中性子照射から規定時間後）に回収した硝酸に可溶な核種を含む硝酸溶液を難溶物槽に還流させ、規定時間貯蔵を複数回繰返し、冷中性子照射後の貯蔵期間に放射線崩壊で生じた気体核種は気体槽に、硝酸に可溶な固体核種は別の貯蔵槽に回収し、気体および可溶性の核種には冷中性子を照射しない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１に記載された気体槽には、請求項１に記載された可溶物槽で発生した気体核種と請求項２に記載された難溶物槽で発生した気体核種を気体槽に回収する装置を具備し、気体槽に規定濃度の硝酸溶液を加え気体槽で気体核種の壊変により発生した固体核種を貯蔵する固体槽と、気体槽中にあるヨウ素と臭素を気化あるいは昇華させ、ヨウ素のみを液化して分離させ回収するヨウ化物槽を具備し、使用済み核燃料取り出しから規定時間経過後、１回目の冷中性子照射直前に可溶物槽と難溶物槽から回収した気体と合わせ、気体槽に存在するヨウ素のみを液化させ分離してヨウ化物槽に回収し、分離したヨウ素だけに熱中性子を１回だけ照射し、以後、可溶物槽及び難溶物槽から回収した気体を含め、気体槽で放射性気体核種の壊変で生じた固体核種を別の貯蔵槽に回収し、気体核種と気体槽で発生した固体核種にも中性子を照射しない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１乃至請求項３に記載の放射性廃棄物の処理を全て実施し所定時間放置後、請求項１の処理方法で生じた可溶物槽の全固体核種に請求項３の処理方法で生じた気体槽で発生した全固体核種を加えた全固体核種と、請求項２に記載の放射性廃棄物の処理を実施しで生じた難溶物槽の全固体核種を別々に脱硝化した後、塩化物に変換し、塩化物の沸点の違いを利用した分留法で元素分離を行い、を別々に脱硝化した後、塩化物に変換し、塩化物の沸点の違いを利用した分留法で元素分離を行い、必要ならガス遠心分離法を用い同位体分離を行い、有用な放射性核種と資源として再利用できる安定核種を回収し、ガラス固化する核種の廃棄量を最小化する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、核分裂生成物による高レベル放射性廃棄物の処理技術に関するものである。

【背景技術】

【０００２】

１００万ｋW級の原子力発電所では、５％濃縮ウラン燃料で毎年約２３トンの核燃料を使用し、使用済み核燃料から発生する核分裂生成物（ＦＰ：Ｆｉｓｓｉｏｎ Ｐｒｏｄｕｃｔｓ）はＵ２３５の比率、燃焼度、運転状況、照射時間などにより核種や発生量は変わるが、一般的に核燃料１トンから発生する核分裂生成物は２～５％と言われている。

【０００３】

これらの核分裂生成物は、ＰＵＲＥＸ（Ｐｌｕｔｏｎｉｕｍ ａｎｄ Ｕｒａｎｉｕｍ Ｒｅｃｏｖｅｒｙ ｂｙ Ｅｘｔｒａｃｔｉｏｎ）法をベースとした使用済み核燃料の再処理によりウラン、プルトニウムなどのアクチノイドを回収後に高レベル放射性廃液（ＨＡＬＷ；Ｈｉｇｈｌｙ Ａｃｔｉｖｅ Ｌｉｑｕｉｄ Ｗａｓｔｅ）となる。（アクチノイド除去については特許文献１などがある）

【０００４】

この高レベル放射性廃液は濃縮して容積を減らしガラスに溶け込ませ、ステンレス製の容器（キャニスター）に固化され（ガラス固化体）、 このガラス固化体は、内部の放射性物質の崩壊により高温度を保つため、中間保管場所で３０～５０年間ほど貯蔵し放射性物質が減り温度が低下してから、このガラス固化体は最終的に地下３００メートル以深の安定した地層中に処分（地層処分）される。

【０００５】
　このような処理法ではガラス固化体が増加し、保管場所の確保、ガラス固化体の管理などが問題で、特に保管場所の確保は喫緊の課題である。そこで、高レベル廃棄物中の元素や放射性核種を半減期、元素の化学的性質、利用目的等に応じてグループ化し、長寿命の核種は、中性子照射などにより核反応を起こさせ、短寿命または非放射性の核種に変換させる（核変換技術）、さらに有用な元素や核種の利用を図る（高レベル廃棄物の資源化）という方法が検討されている。（非特許文献１など）
【０００６】
　核変換技術においては、長寿命核分裂生成物に中性子、荷電粒子ビーム、陽電子などを照射して核種変換させる報告例はあるが、これらは、特定した放射性核種のみを対象にしたもので、高レベル放射性廃棄物全体に係るものでない。（特許文献２、３、４）
【０００７】
　使用済み核燃料の再処理工場で扱う硝酸溶解液、または工程で発生する放射性プロセス廃液から白金族元素、テクネチウム、テルル及びセレンを高回収率で選択的に分離回収する方法が提案されているが、これらは再利用のための回収に係るもので、ガラス固化体に係るものではない。（特許文献５）
【０００８】
　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に、加速器により生成した高エネルギーの中性子を照射して非弾性散乱を生じさせ、（ｎ，２ｎ）反応あるいは（ｎ，３ｎ）反応により、質量数（中性子数）を１あるいは２少なくする核種変換を行うもので、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異なることを利用し、質量数の異なる核種の反応断面積が１０倍以上異なる中性子エネルギー帯を選択し、この選択したエネルギー帯の中性子を照射して、変換対象の長寿命核種の質量数を減らし、短寿命核種あるいは安定核種に変換させる放射性廃棄物の処理方法であって、同位体分離を伴わずに抽出する技術が開示されている。（特許文献６）
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００９】
【文献】特開２００２－２４３８９０号公報　使用済核燃料から全アクチノイドを分離貯蔵する方法
【文献】特開２０１７－１９８６２２号公報　中性子による長寿命核分裂生成物の処理方法　国立大学法人京都大学
【文献】特開２０１８－０４４８５１号公報　長寿命核分裂生成物の核種変換短寿命化処理システム及び長寿命核分裂生成物の核種変換短寿命化処理方法　学校法人中部大学
【文献】特願２０１６－５４４６２９号公報　長寿命核分裂生成物の処理方法　一般財団法人高度情報科学技術研究機構　他
【文献】特願平１１－０２６９９５号公報　白金族元素、テクネチウム、テルル及びセレンの分離回収方法　核燃料サイクル開発機構　他
【文献】特開２０１６－１７６８１２号公報　放射性廃棄物の処理方法、東芝
【非特許文献】
【００１０】
【文献】原子力百科事典ＡＴＯＭＩＣＡ「高レベル廃棄物の群分離と資源化」（０７－０２－０１－０１）概要、日本原子力研究開発機構（ＪＡＥＡ）　尚、発明の概要以降で参考とした文献、引用したデータ元について末尾に記載した。
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【００１１】
　しかし、前記の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異なることを利用し、選択した高エネルギー帯の中性子を照射して変換対象の長寿命核種の質量数を減ら

し、短寿命核種あるいは安定核種に変換させる放射性廃棄物の処理方法において、反応断面積が１０倍以上異なる高エネルギー帯の中性子を照射するが、変換されたくない核種の反応断面積は１０分の１以下ではあるが、（ｎ，２ｎ）反応が生じ、放射性核種が残存することが考えられ、放射性核種と安定核種の完全な分離は実現困難である。また、前記放射性廃棄物の対象とする元素は１０元素で、半減期が$１０^{１０}$年以上の放射性核種についての記述はない。さらに、放射性核種の発生重量あるいは放射能の記述がなく定量的な記述がない。

【００１２】

本発明は、原子力発電所で発生した使用済み核燃料からＰＵＲＥＸ法などの再処理によりウラン、プルトニウムなどのアクチノイドを取り除いた後に残された高レベル放射性廃液に含まれる核種と廃液に含まれない残渣などに含まれる核種について、不要な放射性核種を短寿命核種または安定核種に変換し、放射性廃棄物のガラス固化体化する重量を低減し、再利用可能な放射性核種および安定核種を資源として回収する合理的な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】

【００１３】

本発明は、使用済み核燃料から生じるＦＰのうち、取出し直後から発生した気体核種を回収し貯蔵する槽（以後、気体槽という）とウラン、プルトニウムなどアクチノイドの回収処理を経てから規定の時間を経た後、気体核種を除いたＦＰのうち、硝酸に可溶な核種（以後、可溶性核種という）と、硝酸に難溶あるいは不溶な核種（以後、難溶性核種という）に分離して回収する貯蔵槽（以後、貯蔵槽の前者を可溶物槽、後者を難溶物槽という）とを具備し、これらの核種に低エネルギーの冷中性子を照射して中性子捕獲反応により質量数を変化させて核種変換を行う方法で、中性子照射後、規定時間経過後、請求項１乃至５で記述した方法を用い、規定の時間貯蔵し、既定の回数だけ中性子を照射することを特徴とする放射性廃棄物の処理方法を提供する。

【００１４】

該放射性廃棄物の処理方法において、冷却期間を含め規定の$ｔ_{0}$時間経過後、可溶物槽の可溶性核種に１回目の冷中性子を照射し、規定の$ｔ_{1}$時間貯蔵後、放射性崩壊で発生した気体核種は気体槽に移送し、発生した難溶性核種は固液分離装置などを用い別の貯蔵槽（難溶物槽Ａ）に回収する。以後、冷中性子を可溶性核種にＮｉ回照射後、規定の$ｔ_{i}$時間貯蔵後、放射線崩壊で発生した気体核種は気体槽に回収し、発生した難溶性核種は固液分離装置などを用い難溶物槽Ａに回収し、この難溶性核種には冷中性子を照射しないことを特徴とする放射性廃棄物の処理方法である。

【００１５】

該放射性廃棄物の処理方法において、既定の$ｔ_{0}$時間経過後、難溶物槽の難溶性核種に１回目の冷中性子を照射後、規定の濃度の硝酸溶液を投入し、規定の$ｔ_{1}$’時間貯蔵後、発生した気体核種が安定核種であれば排気し、放射性核種であれば気体槽に回収し、発生した可溶性核種は硝酸溶液と共に濾過し別の貯蔵槽（可溶物槽Ｂ）に回収し、２回目の難溶性核種への冷中性子照射後に、可溶物槽Ｂに回収した可溶性核種と硝酸溶液を難溶物槽に還流し、規定の$ｔ_{2}$’時間貯蔵する。以後、冷中性子を難溶性核種にＮｊ回照射するが、Ｎｊ回目の冷中性子照射直前の可溶物槽Ｂにある可溶性核種を硝酸溶液と共にＮｊ回目の冷中性子照射後に難溶物槽に還流し、規定の$ｔ_{j}$時間貯蔵後、放射性崩壊で生じた気体が安定核種であれば排気し、放射性核種であれば気体槽に回収し、可溶性核種は濾過装置などを用い可溶物槽Ｂに回収し、可溶性核種には中性子を照射しないことを特徴とする放射性廃棄物の処理方法である。

【００１６】

該放射性廃棄物の処理方法において、ＦＰのうち気体核種については、規定の$ｔ_{0}$時間経過後、可溶物槽及び難溶物槽で発生した気体核種を回収するが、可溶性核種に冷中性子照射２回目の直前に、可溶物槽から回収した気体と気体槽に存在する気体のうちヨウ素のみ抽出してヨウ化物槽に貯蔵しヨウ素のみに１回の中性子照射を行う。この際、中性子は

熱中性子でも構わない。ヨウ化物槽で発生した気体は気体槽に回収する。尚、難溶物槽で発生する気体が安定核種だけの場合は気体槽に回収しない。以後、気体核種には中性子を照射せず、この貯蔵期間に放射線崩壊で発生した固体核種は別の貯蔵槽（固体槽）に回収し、この固体核種には中性子を照射しないことを特徴とする放射性廃棄物の処理方法である。

【００１７】

可溶物槽および難溶物槽に冷中性子照射を各々Ｎｉ、Ｎｊ回繰り返し、数年程度の一定期間放置後、放射性核種が崩壊し、生じた固体核種は可溶物槽、難溶物槽Ａ、固体槽と、難溶物槽、可溶物槽Ｂに回収され、前３者に回収された核種および硝酸溶液は塩化物槽１（固化装置付き）に、後２者に回収された核種および硝酸溶液は塩化物槽２（固化装置付き）に移送し、夫々加熱して硝酸を追い出すことにより、ほとんどの核種は酸化物となる。

【００１８】

上記の塩化物槽で発生した酸化物を沸点の低い塩化物に変換する。塩化物槽１に存在する塩化物を気化槽に投入して塩化物の沸点の昇順に加熱し、沸点毎に精留塔で気化させ凝縮器で分留し塩化物として取出し、安定核種のみであれば、冷却装置を介して安定核種回収槽に回収し、放射性のみの核種及び放射性核種と安定核種の混在する同位体はガラス固化核種回収槽に回収する。放射性物質として利用できる単一放射性核種は回収し、放射性物質として利用できる放射性核種と資源として再利用可能な安定核種の２核種だけの同位体は、ウラン燃料製造時に使用される質量差を利用したガス遠心分離装置により同位体分離を行い、質量数の小さい軽核種と、質量数の大きい重核種に分離し、それぞれ軽核種回収槽、重核種回収槽に回収する。次に塩化物槽２についても同様に処理する。可溶物槽で発生した核種と難溶物槽で発生した核種を別々に処理することで、安定な核種の回収重量が増加し、ガラス固化する廃棄核種重量を低減できる。

【発明の効果】

【００１９】

本発明により、不要な半減期の長い放射性核種を短寿命核種または安定核種に変換し、高レベル放射性廃棄物のガラス固化体にする核種重量を低減し、再利用可能な放射性核種および安定核種を資源として核種毎にあるいは元素毎に回収する合理的な核分裂生成物の処理方法を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【００２０】

【図１】図１は本発明の実施例を示す概念図である。

【発明を実施するための形態】

【００２１】

以下、本発明の実施形態を図１に基づいて説明する。

本発明は、核種の中性子捕獲断面積が大きくなる低エネルギーの冷中性子を核種に照射し、中性子捕獲反応により中性子を捕獲させ、質量数を変化させて核種変換を行う方法である。冷中性子源装置は中性子源から発生する中性子を極低温の液体水素を減速材として減速し、更に液体ヘリウムで減速して冷中性子に変換し、一定の時間だけ中性子照射を行うためのシャッターを具備する。中性子照射は被照射核種が核種変換されるのに十分な時間だけシャッターを開口する。中性子捕獲断面積の大きな核種は中性子を捕獲して質量数が１増加する。さらに、質量数が１増えた核種の中性子捕獲断面積が大きければ、この核種も中性子を捕獲して質量数が２増加する。

【００２２】

中性子照射により、安定な核種が放射性核種に変換されることがあり、中性子照射回数と、照射後の放置時間により放射性崩壊で生じる核種と重量が変化するので、廃棄する核種重量を減らし、資源として回収できる核種重量を最大にするように、中性子照射回数と放置時間の最適化が必要となる。これに関しては実施例で述べる。

【００２３】

（使用済み核燃料取出しから一定時間放置後の処理）

使用済み核燃料取出しから発生したＦＰのうち気体核種は気体槽に回収し、発生したＦＰのうち気体核種を除いた核種は一定期間冷却してからＰＵＲＥＸ法などの再処理後、残された高レベル放射性廃棄物には硝酸溶液中にある可溶性核種と残渣などの難溶性核種が存在する。

硝酸溶液中で発生したヨウ素の９５％はウラン、プルトニウム回収処理中に気体として回収され、残りはヨウ化銀、ヨウ化パラジウムとして硝酸溶液中に残渣として残るが、ヨウ素酸などの添加により、気体として回収できるので、一定期間（t_0時間）に発生したこれらの気体は気体槽中で発生した核種の重量として扱う。〔参考文献１；末尾に記載〕

なお、炭素は硝酸と反応しCO_2として存在するので、気体槽に貯蔵される核種として扱う。〔参考文献２：末尾に記載〕ただし重量は炭素のみの値を示す。

この可溶性核種と、難溶性核種を夫々可溶物槽と難溶物槽に貯蔵する。硝酸に可溶な核種を含む硝酸溶液はそのまま使用しても、いったん脱硝化して、新たに濃度４～６モル／Ｌの硝酸溶液を加えて、硝酸に可溶な核種を硝酸化物あるいは酸化物としてもよく、この硝酸に可溶な核種を含む硝酸溶液を可溶物槽に回収する。

【００２４】

（可溶物槽）

使用済み核燃料取出しから冷却、再処理後、一定期間（t_0時間）を経て、可溶性核種を回収した可溶物槽中の硝酸溶液中の核種に１回目の冷中性子を照射し、t_1時間貯蔵する。t_1時間経過後、可溶性核種を親核種として放射線崩壊で発生したヘリウム、キセノン、クリプトン、臭素、ヨウ素の気体核種は気体槽に回収するが、常温で液体の臭素、固体のヨウ素を気体として回収するため、必要なら可溶物槽を加熱する。これらの気体は、逆流防止付きバルブを介し真空ポンプなどにより気体槽へ移送する。

放射線崩壊で発生したゲルマニウム、ジルコニウム、パラジウム、インジウム、スズなど浮遊または沈殿した難溶性核種は固液分離装置を介し可溶物槽に付属の難溶物槽Ａに回収し、濾過された可溶性核種は硝酸溶液と共に可溶物槽に還流する。t_1時間経過後、可溶物槽中の核種に２回目の冷中性子を照射しt_2時間貯蔵するが、必要なら可溶物槽を加熱し、この貯蔵期間に放射線崩壊で発生した気体核種を気体槽に回収し、発生した難溶性核種は可溶物槽に付属の難溶物槽Ａに回収し、可溶性核種を含む硝酸溶液を可溶物槽に還流する。以後、冷中性子を可溶性核種にのみＮｉ回照射しt_i時間貯蔵して、放射線崩壊で発生した気体核種を気体槽に、発生した難溶性核種を難溶物槽Ａに回収し、可溶性核種を含む硝酸溶液を可溶物槽に還流するのを繰り返す。貯蔵期間に発生した難溶性核種には冷中性子を照射しない。これにより、壊変で発生した難溶性の安定核種の回収重量が増加する。尚、崩壊時に発生する熱や加熱により、硝酸溶液が蒸発するので、冷中性子照射後に必要量を充足し、液量を一定に保つ。

【００２５】

（難溶物槽）

使用済み核燃料取出しから冷却、再処理後、一定期間（t_0時間）を経て、難溶性核種を回収した難溶物槽中の核種に、１回目の冷中性子を照射後、難溶物槽に規定濃度の硝酸溶液を加えt_1’時間貯蔵する。t_1’時間経過後、難溶性核種を親核種として壊変で発生する気体核種は気体槽に回収するが、臭素、ヨウ素を気体として放出させるため、必要なら難溶物槽を加熱し、逆流防止付きバルブを介し真空ポンプなどにより気体槽へ回収する。また、難溶性核種を親核種として放射性崩壊で発生したホウ素、ガリウム、ヒ素、セレン、銀、カドミウム、テルルなどの可溶性核種を含む硝酸溶液を濾過し難溶物槽に付属の可溶物槽Ｂに回収する。t_1’時間経過後、難溶物槽中の核種に２回目の冷中性子を照射後、前記の可溶性核種を含む硝酸溶液と追加の硝酸溶液を加え難溶物槽に還流してt_2’時間貯蔵する。この貯蔵期間に発生した硝酸に可溶な核種と硝酸溶液を３回目の冷中性子照射直前に濾過し難溶物槽に付属の可溶物槽Ｂに回収し、発生した気体核種は気体槽に回収する。以後、冷中性子を硝酸に可溶な核種に照射せず、難溶性核種にのみ照射するため、N_j回目の冷中性子を難溶性核種に照射後に、前回の冷中性子照射t_{j-1}時間経過後に硝酸に可溶な核種を濾過した硝酸溶液を可溶物槽Ｂから難溶物槽に還流し、t_j時間貯蔵して発

生した可溶性核種を含む硝酸溶液を可溶物槽Ｂから難溶物槽に還流させ、発生した気体核種は気体槽に回収することをN_j回繰り返す。貯蔵期間に発生した可溶性核種と気体核種には冷中性子を照射しない。これにより、壊変で発生した可溶性の安定核種の回収重量が増加する。尚、冷中性子照射後に発生する可溶性核種の重量が照射回数と共に増えるので硝酸溶液も増加する必要がある。

【００２６】

（気体槽）

使用済み核燃料取出しから一定期間（t_0時間）放置後発生した気体核種は、この放置期間に回収した可溶物槽と難溶物槽で発生した気体核種と合わせて、気体槽を加熱し臭素とヨウ素を昇華・気化させ気体槽の上部に設けた冷却装置で、気体槽内の上部にある受け皿を冷却してヨウ素のみを液化させ、ヨウ化物槽に移送しヨウ素に熱中性子を照射し核種変換する。これはヨウ素の中性子捕獲断面積が熱中性子に対しても大きいので、中性子は熱中性子照射でかまわない。熱中性子照射後の放置期間に放射線崩壊で生じた固体核種は気体槽に付属の固体槽に回収し、固体槽で発生した気体核種は気体槽に還流させる。発生した固体核種には中性子を照射しない。また、ヨウ化物槽で発生した気体核種は、気体槽に還流させる。以後、可溶物槽と難溶物槽の冷中性子照射と貯蔵のサイクルに同期して冷中性子照射直前に、両槽で発生した気体を回収し、最後の中性子照射後に放射能と温度低減のため一定期間（t_S時間）放置後に規定濃度の硝酸溶液を投入し、気体槽中で放射性気体の壊変で発生した固体核種を固体槽に回収する。

【００２７】

可溶物槽と難溶物槽に冷中性子照射を各々Ｎｉ、Ｎｊ回繰り返した後、数年程度の一定期間貯蔵後、放射性核種の崩壊で生じた固体核種は可溶物槽、難溶物槽Ａ、固体槽と、難溶物槽、可溶物槽Ｂに回収され、前３者に回収した核種および硝酸溶液は塩化物槽１に、後２者に回収した核種および硝酸溶液は塩化物槽２に移送し、夫々加熱して硝酸を追い出すと、ほとんどの核種は酸化物となる。〔参考文献３；末尾に記載〕

【００２８】

前記の前３者と後２者から発生した酸化物同位体を、沸点の違いを利用して元素分離するが、これらの酸化物の沸点は極めて高温であり、沸点の低い塩化物に変換する。塩化物槽１及び２に移送された酸化物を規定濃度の塩酸溶液あるいは塩素ガス注入により塩化物に変換する。塩酸で塩化物化しない核種には塩素ガスを使用し、炭素を投入すれば、下記の化学式により数時間の加熱処理で塩化物が生成する。

$$2\,[M]\,On + nC + x\,Cl_2 \rightarrow 2\,[M]\,Clx + nCO_2$$

但し、［Ｍ］は金属元素を示し、ホウ素、ゲルマニウム、ジルコニウム、ニオブ、ルビジウム、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、ツリウム、ハフニウムが該当する。〔参考文献４；末尾に記載〕

【００２９】

塩化物槽１に存在する主に可溶物槽で発生した塩化物（実施例では６０核種）を気化槽に投入し、塩化物沸点の昇順に加熱して沸点毎に精留塔で気化させ凝縮器で分留し塩化物として取出し、安定核種および安定な核種のみの同位体であれば冷却装置を介して核種回収槽に回収し、放射性核種および放射性核種のみの同位体あるいは放射性核種と安定核種の混在する同位体はガラス固化核種回収槽に回収する。また、放射性物質として利用できる放射性核種と資源として再利用できる安定核種の２核種からなる同位体は、質量差を利用したガス遠心分離装置により同位体分離を行い、質量数の小さい軽核種と質量数の大きい重核種に分離し、それぞれ軽核種回収槽、重核種回収槽に回収する。

【００３０】

次に塩化物槽２に存在する難溶物槽で発生した塩化物（実施例では３６核種）を気化槽に投入し、前記と同様に、塩化物沸点の昇順に加熱し、沸点毎に精留塔で気化させ凝縮器で分留し塩化物として取出し、安定核種および安定な核種のみの同位体であれば冷却装置を介して核種回収槽に回収し、放射性核種および放射性核種のみの同位体あるいは放射性核種と安定核種の混在する同位体はガラス固化核種回収槽に回収する。詳細は実施例で述

べるが、可溶物槽と難溶物槽で発生した核種を別々に処理するので、ガラス固化する廃棄物重量を低減できる。

【００３１】

気体槽では、臭素とヨウ素が存在するが、いずれも安定核種であり常温で夫々液体と固体として回収できる。沸点が０℃以下の気体核種では、放射性核種の重量は減少し、安定核種の重量は増加し、廃棄する放射性気体の比率が少し低下する。放射性核種のヨウ素１２９は安定なキセノン１３０に核種変換される。

【００３２】

実施例を述べる前に本発明に係る用語の定義などを説明する。原子力発電で使用済みの核燃料から発生したＦＰは放射性崩壊により壊変するが、この核種を原子番号、元素記号、質量数の順に示し、（ ）内に崩壊形式と半減期を示す。崩壊形式が２種類ある場合は分岐比を％で表示する。半減期の単位は、秒：ｓ、分：ｍ、時間：ｈ、日：ｄ、年：ｙで表す。尚、１年は３６５日として計算している。

崩壊形式にはα崩壊、β崩壊、γ崩壊などがあり、α崩壊では原子核からヘリウム原子核（α線）を放出し原子番号が２、質量数が４減った原子に変化する。β崩壊では３種類の崩壊があり、原子核の中性子から１個の電子を放出して１個の中性子が陽子に変換され原子番号が１増加する（以下、β崩壊とする）崩壊と、原子核の陽子が１個の陽電子を放出して中性子に変換され原子番号が１減るｅｃβ＋崩壊（以下、ε崩壊とする）と、核外の電子が原子核に１個捕獲され１個の陽子が中性子に変換され原子番号が1減る（以下、ｅｃ崩壊とする）崩壊がある。いずれも電子（β線）が放出される。さらに、β崩壊がほぼ同時におこる二重β崩壊があり、この崩壊では２個の中性子が陽子になるので、原子番号が２増加する（以下、２β崩壊とする）。いずれの崩壊でも質量数は変化しない。また、γ崩壊では励起された原子核が基底状態に遷移する際、余剰なエネルギーをγ線として放射する崩壊で、原子番号と質量数は変化しない。崩壊で生じた励起状態にある娘核種がγ線を放出して基底状態に壊変する核異性体転移（以下、ＩＴ崩壊とする）では原子番号、質量数とも変化しない。質量数にｍがつく核種は核異性体である。ここで崩壊形式、分岐比、半減期はＩＡＥＡのデータを使用した。〔データ引用元１；末尾に記載〕

崩壊の順序は核エネルギー準位の高い核種から低い核種へと変化する。このエネルギー準位はＩＡＥＡ ＮＤＳのＭａｓｓ Ｃｈａｉｎ Ｃｈａｒｔ ｏｆ Ｎｕｃｌｉｄｅｓのデータに元づいている。

【００３３】

ある核種が放射性崩壊で、その重量が１／２になるまでの時間を半減期τといい、崩壊定数λとの関係はτ＝ｌｎ（２）／λ〔ｌｎ（２）は２の自然対数〕である。核種１ｇ当りの放射能は比放射能S_Rとよばれ、アボガドロ定数をN_A、質量数をＺとすれば$S_R=\lambda\times N_A/Z$であり、単位はＢｑ／ｇである。

放射能の低減度合いは０．１Ｂｑ到達時間$T_{0.1}$で表し、比放射能S_Rの放射性核種のｔ秒後の重量をｍとすれば$T_{0.1}=1/\lambda\times\{\ln(10)+\ln(S_R\times m)\}+t$で表せる。

【００３４】

ほとんどの核種の中性子捕獲断面積σｎは中性子の速度に反比例するので、冷中性子（ここでは液体ヘリウムの沸点－２６８．９℃）の捕獲断面積σｎ（０．３５３ｍｅＶ）は日本原子力研究開発機構核データ研究グループのＪＥＮＤＬ－５〔データ引用元２；末尾に記載〕の熱中性子（２０℃）のσｎ（０．０２５３ｅＶ）の値を元に計算で求めた。σｎ（０．３５３ｍｅＶ）の値はσｎ（０．０２５３ｅＶ）の値の８．４７倍である。なお、捕獲断面積が中性子の速度に反比例しない核種は熱中性子の値以上としてある。

【００３５】

核種の中性子捕獲確率σｐは中性子捕獲断面積σｎと核断面積σとの比で表され、核種の質量数をＺとすると、原子半径は$R=1.25\times Z^{1/3}$〔ｆｍ〕で与えられ、核断面積$\sigma=\pi R^2$は計算で求めた。〔日本原子力研究開発機構：原子又は原子核の表示、個数密度、核半径、単位系 （０３－０６－０１－０３）〕

中性子被照射核種のσｐが1以上であれば中性子を1個捕獲して核種変換されその重量は０ｇとなり、質量数が1増えた核種の重量は中性子を捕獲した核種の重量になる。さらに捕獲した核種のσｐが１以上であれば、質量数は２増えた核種に変換され、この核種の重量は、これらの核種の重量の和となる。σｐが１以下であれば被照射核種の重量は（１－σｐ）倍となり、核種変換された核種の重量がσｐ倍に核種変換するとした。

【００３６】

ある放射性核種Ａ（崩壊定数λ_A）が崩壊し、次々に生成された娘核種Ｂ（同λ_B）、Ｃ（同λ_C）、Ｄ（同λ_D）が放射性核種で、娘核種Ｅが安定核種とすると、任意の時刻ｔにおける放射性核種の重量をそれぞれN_A、N_B、N_C、N_D、N_Eとすると、これらの重量には次の連立微分方程式が成り立つ。

【００３７】

【数１】

$$\frac{dN_A}{dt} = -\lambda_A N_A \quad \cdots\cdots (1)$$

$$\frac{dN_B}{dt} = -\lambda_B N_B + \lambda_A N_A \quad \cdots\cdots (2)$$

$$\frac{dN_C}{dt} = -\lambda_C N_C + \lambda_B N_B \quad \cdots\cdots (3)$$

$$\frac{dN_D}{dt} = -\lambda_D N_D + \lambda_C N_C \quad \cdots\cdots (4)$$

$$\frac{dN_E}{dt} = -\lambda_E N_E + \lambda_D N_D \quad \cdots\cdots (5)$$

【００３８】

ｔ＝０で放射性核種Ａの初期重量をN_0とすれば、式（１）の両辺にｅｘｐ（－λ_A×ｔ）をかけてｔで積分すれば、式（６）が求められる。放射性核種Ｂ、Ｃ、Ｄ及び安定核種Ｅの初期重量は０であり、式（２）に式（６）を代入し微分方程式を解くと式（７）が求められ、以下同様にして式（３）～式（５）を解くと式（８）～式（１０）が得られ、任意の時刻ｔにおける核種重量N_A（ｔ）、N_B（ｔ）、N_C（ｔ）、N_D（ｔ）、N_E（ｔ）は、［数２］に示した式（６）～式（１０）で求められる。

【００３９】

【数２】

$$N_A(t) = N_0 \times exp(-\lambda_A t) \quad \cdots\cdots (6)$$

$$N_B(t) = \lambda_A \cdot N_0 \times \{exp(-\lambda_A t) - exp(-\lambda_B t)\}/(\lambda_B - \lambda_A) \quad \cdots\cdots (7)$$

$$N_C(t) = \lambda_A \cdot \lambda_B \cdot N_0 \times \left\{ \frac{exp(-\lambda_A t)}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} + \frac{exp(-\lambda_B t)}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} + \frac{exp(-\lambda_C t)}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} \right\} \quad \cdots\cdots (8)$$

$$N_D(t) = \lambda_A \cdot \lambda_B \cdot \lambda_C \cdot N_0 \times \left\{ \frac{exp(-\lambda_A t)}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)(\lambda_D - \lambda_A)} + \frac{exp(-\lambda_B t)}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)(\lambda_D - \lambda_B)} + \frac{exp(-\lambda_C t)}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)(\lambda_D - \lambda_C)} + \frac{exp(-\lambda_D t)}{(\lambda_A - \lambda_D)(\lambda_B - \lambda_D)(\lambda_C - \lambda_D)} \right\} \quad \cdots\cdots (9)$$

$$N_E(t) = \lambda_A \cdot \lambda_B \cdot \lambda_C \cdot \lambda_D \cdot N_0 \times \left\{ \frac{exp(-\lambda_A t)}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)(\lambda_D - \lambda_A)(\lambda_E - \lambda_A)} + \frac{exp(-\lambda_B t)}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)(\lambda_D - \lambda_B)(\lambda_E - \lambda_B)} + \frac{exp(-\lambda_C t)}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)(\lambda_D - \lambda_C)(\lambda_E - \lambda_C)} + \frac{exp(-\lambda_D t)}{(\lambda_A - \lambda_D)(\lambda_B - \lambda_D)(\lambda_C - \lambda_D)(\lambda_E - \lambda_D)} + \frac{exp(-\lambda_E t)}{(\lambda_A - \lambda_E)(\lambda_B - \lambda_E)(\lambda_C - \lambda_E)(\lambda_D - \lambda_E)} \right\} \quad \cdots\cdots (10)$$

【００４０】

核燃料取出しから発生した気体と、冷却期間を含めＰＵＲＥＸ法などによりウラン、プルトニウムなどのアクチノイドを回収後、一定時間経過後、可溶性核種と難溶性核種を回収した可溶物槽と難溶物槽に分けて核種重量の変化を計算する。計算にはマイクロソフト社の表計算ソフトＥｘｃｅｌワークシートの計算機能を使用した。以後、断わりが無い場合は中性子照射とは冷中性子照射を指し、中性子捕獲とは冷中性子捕獲を指す。

【００４１】
表１Ａは核種に中性子を照射したときの核種重量の変化を求めた計算例を示す。縦方向にＡ列３行から同一の質量数毎に昇順で原子番号順に核種を記載し、質量数ｚは昇順にｚ１、ｚ２、ｚ３、・・・、原子記号と質量数をＡｚ、Ｂｚ、Ｃｚ、・・・で表す。尚、この表では原子番号は表示していない。また、質量数にｍがつく核種は核異性体を表す。
横方向にＡ列は核種、Ｂ列は崩壊形式、Ｃ列は半減期τ、Ｄ列は崩壊定数λ、Ｅ列は中性子捕獲確率σｐ（中性子捕獲断面積σｎと核断面積σとの比）を表示する。但し、半減期は記載せず。σｐの値は中性子エネルギーが可溶物槽と難溶物槽の固体核種は０．３５３ｍｅＶの値を示し、気体槽の気体核種は０．０２５３ｅＶの値を示すが、本表では表示の通りで実際の数値を表示していない。Ｆ列には燃料取出しｔ$_0$時間（日）後の核種重量を記載し、Ｇ列には１回目の中性子照射による核種変換の状況を示し、σｐが１以上の核種には＋１ｎと記載、さらに変換された核種が中性子を捕獲して質量数が１増えた核種のσｐが１以上であれば、この核種には＋１ｎ、質量数が１少ない変換された元の核種には＋２ｎと表記する。σｐが非記載の核種のセルは⇒を表記し、中性子を照射しない核種（可溶物槽では壊変で生じた難溶性核種と気体核種、難溶物槽では壊変で生じた可溶性核種と気体核種、気体槽では２回目の中性子照射のヨウ素を除く気体核種と壊変で生じた可溶性核種）のセルにも⇒を表記する。また中性子を捕獲して変換された核種は＜＞で示し、＜＞内に核種変換前の核種（元素記号と質量数）に＋１ｎ、＋２ｎ、・・・と表記する。Ｈ列には中性子照射後の累積重量を示し、中性子照射で中性子を捕獲して変換された核種は０ｇで空欄となる。Ｉ列１行目に秒単位で表したｔ$_1$時間を記入する。中性子照射１回目のｔ$_1$時間後の重量をそれぞれＩ～Ｋ列に、その合計をＬ列に表示する。以下、質量数を増やして計算する。Ｆ、Ｈ、Ｌ、Ｎ列最下行のセルに該列の核種重量の合計値をΣＮｔ０、ΣＮｔ０＊、ΣＮｔ１、ΣＮｔ１＊と表示してあるが、これらの合計値が等しいことで質量保存の法則が成立し、計算式の正しさを確認できる。
Ｌ列の核種重量の合計及びＨ、Ｎ列の累積重量は１×１０$^{－４０}$（以下、１Ｅ－４０と表記）ｇ以下であれば原則として０ｇと表示する。
Ｍ列には２回目の中性子照射による核種変換の状況を示し、Ｇ列と同じである。但し、可溶物槽と気体槽ではσｐ＞１のヨウ素はＧ列とは異なり、＋１ｎあるいは＋２ｎとなり、このほかのヨウ素のセルには⇒と表記する。Ｎ列は２回目の中性子照射後の累積重量を示し、中性子照射で中性子を捕獲して変換された核種は空欄となる。
表１Ａには記載していないが、Ｏ列１行目に秒単位で表した２回目の貯蔵時間ｔ$_2$時間を記入し、以下、Ｉ～Ｋ列と同様にＯ～Ｑ列に中性子照射ｔ$_2$時間後の核種重量を表示させ、その合計をＲ列に表示させる。さらに質量数を増やして計算する。計算対象の核種の質量数、原子番号は具体例で述べる。
ここでは可溶物槽と気体槽の核種重量変化を求める場合ににについて記述しているが、難溶物槽の核種重量変化を求める場合は、ｔ$_1$をｔ$_1$’、t$_2$をｔ$_2$’に置き換える。
以下に中性子照射後の親核種（崩壊形式，崩壊定数）が放射性崩壊して娘核種に壊変するときこれらの核種のｔ$_1$時間経過後の核種重量を求める方法を説明する。なお、表ではｔ$_1$を半角文字でｔ１と表示してある。
【００４２】

【表１Ａ】

表1A　核種重量推移の計算例(1)

	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N
1									t1					
2	核種	崩壊形式	半減期	崩壊定数	σp	t0日後重量	1回目N照射	累積重量	t1時間後重量 (1)	(2)	(3)	重量小計	2回目N照射	累積重量
3	Az1m	IT		λaz1m		Naz1m	⇒	Naz1m	式(11)			Naz1mt1	⇒	Naz1mt1
4	Az1	β		λaz1		Naz1	⇒	Naz1	式(12)	式(16)		Naz1t1	⇒	Naz1t1
5	Bz1	β		λbz1	≫1	Nbz1	+2n		式(13)	式(17)		Nbz1t1	+2n	
6	Cz1m	IT		λcz1m		Ncz1m	⇒	Ncz1m	式(14)	式(18)	式(20)	Ncz1mt1	⇒	Ncz1mt1
7	Cz1	安定			≫1	Ncz1	+1n		式(15)	式(19)	式(21)	Ncz1t1	+1n	
8	Bz2	β		λbz2	0.8	Nbz2	+1n	0.2×(Naz1+Nbz2)	式(22)			Nbz2t1	+1n	0.2*(Naz1t1 + Nbz2t1)
9	Cz2	β		λcz2		Ncz2	〈Cz1+1n〉	Ncz1+Ncz2	式(23)	式(25)		Ncz2t1	〈Cz1+1n〉	Ncz1t1+Ncz2t1
10	Dz2	安定			≫1	Ndz2	+1n		式(24)	式(26)	式(28)	Ndz2t1	+1n	
11	Ez2	ec		λez2		Nez2	⇒	Nez2		式(51)	式(27)	Nez2t1	⇒	Nez2t1
12	Bz3	β		λbz3		Nbz3	〈Bz1+2n,Bz2+1n〉	Nbz3+0.8*(Naz1+Nbz2)	式(29)			Nbz3t1	〈Bz1+2n,Bz2+1n〉	Nbz3t1+0.8*(Naz1t1+Nbz2t1)
13	Cz3	β		λcz3	≫1	Ncz3	+1n		式(30)			Ncz3t1	+1n	
14	Dz3	β		λdz3		Ndz3	〈Dz2+1n〉	Ndz2+Ndz3	式(31)	式(33)		Ndz3t1	〈Dz2+1n〉	Ndz2t1+Ndz3t1
15	Ez3	安定			≫1	Nez3	+1n		式(32)	式(34)		Nez3t1	+1n	
16	Cz4m	IT		λcz4m		Ncz4m	〈Cz3+1n〉	Ncz3+Ncz4m	式(35)			Ncz4mt1	〈Cz3+1n〉	Ncz3t1+Ncz4mt1
17	Cz4	β		λcz4	≫1	Ncz4	+1n		式(36)			Ncz4t1	+1n	
18	Dz4	安定				Ndz4	⇒	Ndz4	式(37)	式(39)		Ndz4t1	⇒	Ndz4t1
19	Ez4	ε		λez4		Nez4	〈Ez3+1n〉	Nez3+Nez4		式(38)		Nez4t1	〈Ez3+1n〉	Nez3t1 + Nez4t1
20	Cz5	β		λcz5		Ncz5	〈Cz4+1n〉	Ncz4+Ncz5	式(40)			Ncz5t1	〈Cz4+1n〉	Ncz4t1 + Ncz5t1
21	Dz5	β		λdz5	≫1	Ndz5	+1n		式(41)			Ndz5t1	+1n	
22	Ez5m	IT		λez5m		Nez5m	⇒	Nez5m		式(43)		Nez5mt1	⇒	Nez5mt1
23	Ez5	安定			≫1	Nez5	+1n		式(42)	式(44)		Nez5t1	+1n	
24	Dz6	β		λdz6		Ndz6	〈Dz5+1n〉	Ndz5+ Ndz6	式(45)			Ndz6t1	〈Dz5+1n〉	Ndz5t1 + Ndz6t1
25	Ez6	β		λez6		Nez6	〈Ez5+1n〉	Nez5 + Nez6	式(46)	式(48)		Nez6t1	〈Ez5+1n〉	Nez5t1 + Nez6t1
26	Fz6	安定				Nfz6	⇒	Nfz6	式(47)	式(49)		Nfz6t1	⇒	Nfz6t1
27	Gz6	α		λgz6		Ngz6	→Ez2	Ngz6		式(50)		Ngz6t1	→Ez2	Ngz6t1
.	.					.		.				.		.
				合計		ΣNt0		ΣNt0'				ΣNt1		ΣNt1'

A～Glは元素記号、z1, z2, z3, ･･･1は質量数、mは核異性体、半減期は割愛
σpは中性子捕獲確率(中性子捕獲断面積σnと核断面積σとの比)を示す。

【００４３】

質量数ｚ１の放射性核種Ａｚ１ｍを親核種（ｍは核異性体を表す）として、Ａｚ１ｍ（ＩＴ，λａｚ１ｍ）→Ａｚ１（β，λａｚ１）→Ｂｚ１（β，λｂｚ１）→Ｃｚ１ｍ（ＩＴ，λｃｚ１ｍ）→Ｃｚ１（安定）に壊変するとき、１回目の中性子照射ｔ$_1$時間後の核種Ａｚ１ｍ、Ａｚ１、Ｂｚ１、Ｃｚ１ｍと Ｃｚ１の重量は［数２］で示した式（６）～式（１０）を以下の様に書替え、初期重量Ｎ$_0$を核種Ａｚ１ｍの累積重量Ｎａｚ１ｍに、ｔをｔ１に書替える。但し、＊は乗算を表し、λｃｚ１＝０である。またＮの添え字（数字）は壊変の順序を示し同一の核種が別の壊変で出現した場合に違う壊変反応であることを示している。例えばＢｚ１は式（１３）と式（１７）で出現している。

【００４４】

【数３】

$$N1az1m(t1) = Naz1m * exp(-\lambda az1m * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (11)$$

$$N2az1(t1) = Naz1m * \lambda az1m * \{exp(-\lambda az1m * t1) - exp(-\lambda az1 * t1)\}/(\lambda az1 - \lambda az1m) \quad \cdots\cdots\cdots (12)$$

$$N3bz1(t1) = Naz1m * \lambda az1m * \lambda az1 * \{exp(-\lambda az1 * t1)/(\lambda az1m - \lambda az1)(\lambda bz1 - \lambda az1) - exp(-\lambda az1m * t1)/(\lambda az1 - \lambda az1m)/(\lambda bz1 - \lambda az1m) - exp(-\lambda bz1 * t1)/(\lambda az1m - \lambda bz1)/(\lambda az1 - \lambda bz1)\} \quad \cdots\cdots\cdots (13)$$

$$N4cz1m(t1) = Naz1m * \lambda az1m * \lambda az1 * \lambda bz1 * \{exp(-\lambda az1m * t1)/(\lambda az1 - \lambda az1m)/(\lambda bz1 - \lambda az1m)/(\lambda cz1m - \lambda az1m) - exp(-\lambda az1 * t1)/(\lambda az1m - \lambda az1)/(\lambda bz1 - \lambda az1)/(\lambda cz1m - \lambda az1) - exp(-\lambda bz1 * t1)/(\lambda az1m - \lambda bz1)/(\lambda az1 - \lambda bz1)/(\lambda cz1m - \lambda bz1) - exp(-\lambda cz1m * t1)/(\lambda az1m - \lambda cz1m)/(\lambda az1 - \lambda cz1m)/(\lambda bz1 - \lambda cz1m)\} \quad \cdots\cdots (14)$$

$$N5cz1(t1) = Naz1m * \lambda az1m * \lambda az1 * \lambda bz1 * \lambda cz1m * \{exp(-\lambda az1m * t1)/(\lambda az1 - \lambda az1m)/(\lambda bz1 - \lambda az1m)/(\lambda cz1m - \lambda az1m)/(\lambda cz1 - \lambda az1m) - exp(-\lambda az1 * t1)/(\lambda az1m - \lambda az1)/(\lambda bz1 - \lambda az1)/(\lambda cz1m - \lambda az1)/(\lambda cz1 - \lambda az1) - exp(-\lambda bz1 * t1)/(\lambda az1m - \lambda bz1)/(\lambda az1 - \lambda bz1)/(\lambda cz1m - \lambda bz1)/(\lambda cz1 - \lambda bz1) - exp(-\lambda cz1m * t1)/(\lambda az1m - \lambda cz1m)/(\lambda az1 - \lambda cz1m)/(\lambda bz1 - \lambda cz1m)/(\lambda cz1 - \lambda cz1m)\} \quad \cdots\cdots\cdots (15)$$

【００４５】

式（１１）～式（１５）の右辺の各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎａｚ１ｍをセル名「Ｈ３」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えたこれらの右辺を夫々Ｉ列３～７行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果がこれらのセルに表示される。書込みしたワークシート中のセルの内容の一例を「 」内に示すと、セルＩ３には式（１１）の右辺「＝Ｈ３＊ｅｘｐ（－＄Ｄ３＊Ｉ＄１）」、セルＩ４には式（１２）の右辺「＝Ｈ３＊＄Ｄ３＊｛ｅｘｐ（－＄Ｄ３＊Ｉ＄１）－ｅｘｐ（－＄Ｄ４＊Ｉ＄１）｝／（＄Ｄ４－＄Ｄ３）」と半角文字で書き込まれている。但し、＄は絶対参照を示す。

【００４６】

同様に放射性核種Ａｚ１がＡｚ１（β，λａｚ１）→Ｂｚ１（β，λｂｚ１）→Ｃｚ１ｍ（ＩＴ，λｃｚ１ｍ）→Ｃｚ（安定）に壊変するとき、t_1時間後の核種Ａｚ１，Ｂｚ１，Ｃｚ１ｍと Ｃｚ１の重量は、［数２］で示した式（６）～式（９）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ａｚ１の累積重量Ｎａｚ１、ｔをｔ１に書替える。

【００４７】

【数４】

$$N1az1(t1) = Naz1 * exp(-\lambda az1 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (16)$$

$$N2bz1(t1) = Naz1 * \lambda az1 * \{exp(-\lambda az1 * t1) - exp(-\lambda bz1 * t1)\}/(\lambda bz1 - \lambda az1) \quad \cdots (17)$$

$$N3cz1m(t1) = Naz1 * \lambda az1 * \lambda bz1 * \{exp(-\lambda az1 * t1)/(\lambda bz1 - \lambda az1)/(\lambda cz1m - \lambda az1) - exp(-\lambda bz1 * t1)/(\lambda az1 - \lambda bz1)/(\lambda cz1m - \lambda bz1) - exp(-\lambda cz1m * t1)/(\lambda az1 - \lambda cz1m)/(\lambda bz1 - \lambda cz1m)\} \quad \cdots\cdots\cdots (18)$$

$$N4cz1(t1) = Naz1 * \lambda az1 * \lambda bz1 * \lambda cz1m * \{exp(-\lambda az1 * t1)/(\lambda bz1 - \lambda az1)/(\lambda cz1m - \lambda az1)/(\lambda cz1 - \lambda az1) - exp(-\lambda bz1 * t1)/(\lambda az1 - \lambda bz1)/(\lambda cz1m - \lambda bz1)/(\lambda cz1 - \lambda bz1) - exp(-\lambda cz1m * t1)/(\lambda az1 - \lambda cz1m)/(\lambda bz1 - \lambda cz1m)/(\lambda cz1 - \lambda cz1m) - exp(-\lambda cz1 * t1)/(\lambda az1 - \lambda cz1)/(\lambda cz1m - \lambda cz1)/(\lambda bz1 - \lambda cz1)\} \quad \cdots\cdots (19)$$

【００４８】

式（１６）～式（１９）の右辺の各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎａｚ１をセル名「Ｈ４」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えたこれらの右辺を夫々J列４～７行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果がこれらのセルに表示される。書込みしたワークシート中のセルの内容の一例を「 」内に示すと、セルＪ４には式（１６）の右辺「＝Ｈ４＊ｅｘｐ（－＄Ｄ４＊Ｉ＄１）」、セルＪ７には式（１７）の右辺「＝Ｈ４＊＄Ｄ４＊｛ｅｘｐ（－＄Ｄ４＊Ｉ＄１）－ｅｘｐ（－＄Ｄ５＊Ｉ＄１）｝／（＄Ｄ５－＄Ｄ４）」と半角文字で書き込まれている。

放射性核種Ｂｚ１（σｐ＞１）は中性子照射により中性子を捕獲して核種Ｂｚ２に変換され、照射直後の累積重量（Ｈ５セル）は０ｇとなるが、t_1時間後に核種Ａｚ１ｍと核種Ａｚ１の壊変で核種Ｂｚ１が発生する。これらの重量は式（１３）のＮ３ｂｚ１（ｔ１）と式（１７）のＮ２ｂｚ１（ｔ１）の右辺であり、式中の各核種の崩壊定数λをＤ列（λ

）の該当する行のセル名に、初期重量を夫々の核種の累積重量のセル名「Ｈ３」と「Ｈ４」に、ｔをｔ１と書かれたセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えた両右辺を夫々Ｉ５セルとＪ５セルに書込めば、t_1時間後の核種Ｂｚ１の重量の計算結果がこれらのセルに表示される。

【００４９】

放射性核種Ｃｚ１ｍがＣｚ１ｍ（ＩＴ，λｃｚ１ｍ）→Ｃｚ１（安定）に壊変するとき、t_1時間後の核種Ｃｚ１ｍとＣｚ１の重量は、［数２］で示した式（６）、式（７）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ｃｚ１ｍの累積重量Ｎｃｚ１ｍ、ｔをｔ１に書替える。

【００５０】

【数５】

$$N1cz1m(t1) = Ncz1m_0 * exp(-\lambda cz1m * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (20)$$

$$N2cz1(t1) = Ncz1m_0 * \lambda cz1m * \{exp(-\lambda cz1m * t1) - exp(-\lambda cz1 * t1)\}/(\lambda cz1 - \lambda cz1m)$$
$$= Ncz1m_0 * \{1 - exp(-\lambda cz1m * t1)\} \quad \cdots\cdots\cdots (21)$$

【００５１】

式（２０）～式（２１）の右辺の各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎｃｚ１ｍをセル名「Ｈ６」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えた両式の右辺を夫々Ｋ列６～７行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果がこれらのセルに表示される。

安定核種Ｃｚ１（σｐ＞１）は中性子照射で中性子を捕獲して核種Ｃｚ２に変換され照射直後の累積重量（Ｈ７セル）は０ｇとなるが、t_1時間後に核種Ａｚ１ｍの壊変で式（１５）のＮ５ｃｚ１（ｔ１）、核種Ａｚ１の壊変で式（１９）のＮ４ｃｚ１（ｔ１）、及び核種Ｃｚ１ｍの壊変で式（２１）のＮ２ｃｚ１（ｔ１）が生じる。これらの式の右辺の各核種の崩壊定数をＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量を各核種の累積重量のセル名「Ｈ３」、「Ｈ４」、「Ｈ６」に、ｔをｔ１のセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えたこれらの右辺をＩ７、Ｊ７、Ｋ７セルに書込めば、t_1時間後に生じた核種Ｃｚ１ｍの重量の計算結果が該セルに表示される。

Ｌ列には、核種Ａｚ１ｍ、Ａｚ１、Ｂｚ１、Ｃｚ１ｍ、Ｃｚ１のt_1時間後の核種重量Ｎａｚ１ｍｔ１、Ｎａｚ１ｔ１、Ｎｂｚ１ｔ１、Ｎｃｚ１ｍｔ１、Ｎｃｚ１ｔ１がＩ～Ｋ列の同じ行のセルの和で求められる。

Ｎａｚ１ｍｔ１＝Ｎ１ａｚ１ｍ（ｔ１）、
Ｎａｚ１ｔ１＝Ｎ２ａｚ１ｍ（ｔ１）＋Ｎ１ａｚ１（ｔ１）、
Ｎｂｚ１ｔ１＝Ｎ３ｂｚ１（ｔ１）＋Ｎ２ｂｚ１（ｔ１）、
Ｎｃｚ１ｍｔ１＝Ｎ４ｃｚ１ｍ（ｔ１）＋Ｎ３ｃｚ１ｍ（ｔ１）＋Ｎ１ｃｚ１ｍ（ｔ１）、
Ｎｃｚ１ｔ１＝Ｎ５ｃｚ１（ｔ１）＋Ｎ４ｃｚ１（ｔ１）＋Ｎ２ｃｚ１（ｔ１）である。

ワークシート中のセルの内容の一例を「 」内に示すと、セルＬ４には「＝Ｉ４＋Ｊ４」が半角文字で書き込まれている。

【００５２】

質量数が１増えた放射性核種Ｂｚ２〔σｐ＝０．８〕の重量は核種Ｂｚ１〔σｐ＞１〕の中性子捕獲で核種変換されＮｂｚ１だけ増加するが、中性子照射で核種Ｂｚ１の重量の２０％は核種変換されないので、照射直後の累積重量はＮｂｚ２’＝０．２×（Ｎｂｚ１＋Ｎｂｚ２）となる。核種Ｂｚ２がＢｚ２（β，λｂｚ２）→Ｃｚ２（β，λｃｚ２）→Ｄｚ２（安定）に壊変するとき、t_1時間後の核種Ｂｚ２、Ｃｚ２、Ｄｚ２の重量は、［数２］で示した式（６）～式（８）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ｂｚ２の累積重量Ｎｂｚ２’、ｔをｔ１に書替える。但し、λｄｚ２＝０である。

【００５３】

【数６】

$$N1bz2(t1) = Nbz2' * exp(-\lambda bz2 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (22)$$

$$N2cz2(t1) = Nbz2' * \lambda bz2 * \{exp(-\lambda bz2 * t1) - exp(-\lambda cz2 * t1)\}/(\lambda cz2 - \lambda bz2) \quad \cdots (23)$$

$$N3dz2(t1) = Nbz2' * \lambda bz2 * \lambda cz2 * [exp(-\lambda bz2 * t1)/(\lambda cz2 - \lambda bz2)/(\lambda dz2 - \lambda bz2) - exp(-\lambda cz2 * t1)/(\lambda bz2 - \lambda cz2)/(\lambda dz2 - \lambda cz2) - exp(-\lambda dz2 * t1)/(\lambda bz2 - \lambda dz2)/(\lambda cz2 - \lambda dz2)] \quad \cdots\cdots\cdots (24)$$

【００５４】

式（２２）～式（２４）の右辺の各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎｂｚ２’をセル名「Ｈ８」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えたこれらの右辺を夫々Ｉ列８～１０行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果がこれらのセルに表示される。書込みしたワークシート中のセルの内容の一例を「 」内に示すと、セルＩ８には「＝０．２＊（Ｆ５＋Ｆ８）＊ｅｘｐ（－＄Ｄ８＊Ｉ＄１）」、セルＩ９には「＝０．２＊（Ｆ５＋Ｆ８）＊Ｆ８＊｛（ｅｘｐ（－＄Ｄ８＊Ｉ＄１）－ｅｘｐ（－＄Ｄ９＊Ｉ＄１）｝／（＄Ｄ９－＄Ｄ８）」が半角文字で書き込まれている。

放射性核種Ｃｚ２の重量は中性子照射により核種Ｃｚ１（σｐ＞1）の中性子捕獲で核種変換されＮｃｚ１だけ増し、照射後の累積重量はＮｃｚ２’＝Ｎｃｚ１＋Ｎｃｚ２となる。核種Ｃｚ２がＣｚ２（β，λｃｚ２）→Ｄｚ２（安定）に壊変するとき、t_1時間後の核種Ｃｚ２とＤｚ２の重量は、［数２］で示した式（１）、式（２）を以下の様に書換え、初期重量N_0を核種Ｃｚ２の累積重量Ｎｃｚ２’、ｔをｔ１に書替える。

【００５５】

【数７】

$$N1cz2(t1) = Ncz2' * exp(-\lambda cz2 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (25)$$

$$N2dz2(t1) = Ncz2' * \lambda cz2 * \{exp(-\lambda cz2 * t1) - exp(-\lambda dz2 * t1)\}/(\lambda dz2 - \lambda cz2) = Ncz2' * \{1 - exp(-\lambda cz2 * t1)\} \quad \cdots\cdots\cdots (26)$$

【００５６】

式（２５）、式（２６）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎｃｚ２’をセル名「Ｈ９」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えた両右辺を夫々Ｊ列９～１０行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果がＪ列９～１０行セルに表示される。

安定核種Ｄｚ２（σｐ＞１）は中性子照射によりＤｚ３に核種変換され累積重量（Ｈ１０セル）は０ｇであるが、t_1時間後に核種Ｂｚ２とＣｚ２のβ崩壊で核種Ｄｚ２が生じる。式（２４）のＮ３ｄｚ１（ｔ１）と式（２６）のＮ２ｄｚ１（ｔ１）の右辺で各核種の崩壊定数λを該当する行のＤ列（λ）のセル名に、両式の初期重量を該当する核種の累積重量のセル名「Ｈ８」と「Ｈ９」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えた両右辺を夫々Ｉ１０、Ｊ１０セルに書込めば、t_1時間後の壊変で生じた核種Ｄｚ２の重量の計算結果が該セルに表示される。なお、核種Ｅｚ２のｅｃ崩壊で生じた核種Ｄｚ２の重量については、式（２８）の右辺で各核種の崩壊定数をＤ列（λ）の該当する行の各セル名に、初期重量N_0を核種Ｅｚ２の累積重量Ｎｅｚ２のセル名「Ｈ１１」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えた右辺をＫ１０セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果が該セルに表示される。

放射性核種Ｅｚ２がｅｃ崩壊で原子番号が１少ない安定核種Ｄｚ２に、Ｅｚ２（ｅｃ，λｅｚ１）→Ｄｚ２（安定）に壊変するとき、t_1時間後の核種Ｅｚ２とＤｚ２の重量は、［数２］で示した式（６）、式（７）を以下の様に書換え、初期重量N_0を核種Ｅｚ２の累積重量Ｎｅｚ２、ｔをｔ１に書替える。

【００５７】

【数８】

$$N2ez2(t1) = Nez2 * exp(-\lambda ez2 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (27)$$

$$N1dz2(t1) = Nez2 * \lambda ez2 * \{exp(-\lambda ez2 * t1) - exp(-\lambda dz2 * t1)\}/(\lambda dz2 - \lambda ez2) = Nez2 * \{1 - exp(-\lambda ez2 * t1)\} \quad \cdots\cdots\cdots (28)$$

【００５８】
式（２７）～式（２８）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎｅｚ２をセル名「Ｈ１１」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えた両右辺を夫々Ｋ列１１～１０行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果が該セルに表示される。
Ｌ列には核種Ｂｚ２、Ｃｚ２、Ｄｚ２、Ｅｚ２のt_1時間後の重量Ｎｂｚ２ｔ１、Ｎｃｚ２ｔ１、Ｎｄｚ２ｔ１、Ｎｅｚ２ｔ１はＩ～Ｋ列の同じ行のセルの和で求められる。
Ｎｂｚ２ｔ１＝Ｎ１ｂｚ２（ｔ１）、
Ｎｃｚ２ｔ１＝Ｎ２ｃｚ２（ｔ１）＋Ｎ１ｃｚ２（ｔ１）、
Ｎｄｚ２ｔ１＝Ｎ３ｄｚ２（ｔ１）＋Ｎ２ｄｚ２（ｔ１）＋Ｎ２ｅｚ２（ｔ１）、
Ｎｅｚ２ｔ１＝Ｎ１ｅｚ２（ｔ１）＋Ｎ２ｇｚ６（ｔ１）である。
尚、Ｎ２ｇｚ６（ｔ１）は後述するように核種Ｇｚ６のα崩壊で生じたものである。
【００５９】
質量数が２増えた放射性核種Ｂｚ３（σｐは非記載）の重量は、１回目の中性子照射により、同位体のＢｚ１（σｐ＞１）とＢｚ２（σｐ＝０．８）の中性子捕獲で、Ｎｂｚ３’＝Ｎｂｚ３＋０．８×（Ｎｂｚ１＋Ｎｂｚ２）となる。核種Ｂｚ３がＢｚ３（β，λｂｚ３）→Ｃｚ３（β，λｃｚ３）→Ｄｚ３（β，λｄｚ３）→Ｅｚ３（安定）に壊変するとき、t_1時間後の核種Ｂｚ３、Ｃｚ３、Ｄｚ３とＥｚ３の重量は、［数２］で示した式（６）～式（９）を以下の様に書換え、初期重量N_0を核種Ｂｚ３の累積重量Ｎｂｚ３’、ｔをｔ１に書替える。但し、λｅｚ３＝０である。
【００６０】
【数９】

$$N1bz3(t1) = Nbz3' * exp(-\lambda bz3 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (29)$$

$$N2cz3(t1) = Nbz3' * \lambda bz3 * \{exp(-\lambda bz3 * t1) - exp(-\lambda cz3 * t1)\} / (\lambda cz3 - \lambda bz3) \quad \cdots\cdots\cdots (30)$$

$$N3dz3(t1) = Nbz3' * \lambda bz3 * \lambda cz3 * \{exp(-\lambda bz3 * t1)/(\lambda cz3 - \lambda bz3)/(\lambda dz3 - \lambda bz3) - exp(-\lambda cz3 * t1)/(\lambda bz3 - \lambda cz3)/(\lambda dz3 - \lambda cz3) - exp(-\lambda dz3 * t1)/(\lambda bz3 - \lambda dz3)/(\lambda cz3 - \lambda dz3)\} \quad \cdots\cdots\cdots (31)$$

$$N4ez3(t1) = Nbz3' * \lambda bz3 * \lambda cz3 * \lambda dz3 * \{exp(-\lambda bz3 * t1)/(\lambda cz3 - \lambda bz3)/(\lambda dz3 - \lambda bz3)/(\lambda ez3 - \lambda bz3) - exp(-\lambda cz3 * t1)/(\lambda bz3 - \lambda cz3)/(\lambda dz3 - \lambda cz3)/(\lambda ez3 - \lambda cz3) - exp(-\lambda dz3 * t1)/(\lambda bz3 - \lambda dz3)/(\lambda cz3 - \lambda dz3)/(\lambda ez3 - \lambda dz3) - exp(-\lambda ez3 * t1)/(\lambda bz3 - \lambda ez3)/(\lambda cz3 - \lambda ez3)/(\lambda dz3 - \lambda ez3)\} \quad \cdots\cdots\cdots (32)$$

【００６１】
式（２９）～式（３２）の右辺で各核種の崩壊定数λを該当する行のＤ列（λ）のセル名に、初期重量Ｎｂｚ３’をセル名「Ｈ１２」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えたこれらの右辺を夫々Ｉ列１２～１５行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果がこれらのセルに表示される。書込みしたワークシート中のセルの内容の一例を「 」内に示すと、セルＩ１２は「＝｛Ｆ１２＋０．８＊（Ｆ５＋Ｆ８）｝＊ｅｘｐ（－＄Ｄ１２＊Ｉ＄１）」が半角文字で書き込まれている。
放射性核種Ｃｚ３（σｐ＞１）は中性子捕獲でＣｚ４ｍに核種変換され累積重量（Ｈ１３セル）は０であるが、t_1時間後に核種Ｂｚ２のβ崩壊でＣｚ２を生じる。式（３０）Ｎ２ｃｚ３（ｔ１）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎｂｚ３’をセル名「Ｈ１２」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えた式をＩ１３セルに書込めば、t_1時間後の核種Ｃｚ２の重量の計算結果が該セルに表示される。
【００６２】
放射性核種Ｄｚ３の重量は同位体の核種Ｄｚ２（σｐ＞１）の中性子捕獲によりＮｄｚ２だけ増加し、累積重量はＮｄｚ３’＝Ｎｄｚ２＋Ｎｄｚ３となる。核種Ｄｚ３がＤｚ３（β，λｄｚ３）→Ｅｚ３（安定）に壊変するとき、t_1時間後の核種Ｄｚ３とＥｚ３の重量は［数２］で示した式（１）、式（２）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ｄｚ３の累積重量Ｎｄｚ３’、ｔをｔ１に書替える。

【００６３】
【数１０】

$$N1dz3(t1) = Ndz3' * exp(-\lambda dz3 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (33)$$

$$N2ez3(t1) = Ndz3' * \lambda dz3 * \{exp(-\lambda dz3 * t1) - exp(-\lambda ez3 * t1)\}/(\lambda ez3 - \lambda dz3)$$
$$= Ndz3' * \{1 - exp(-\lambda dz3 * t1)\} \quad \cdots\cdots\cdots (34)$$

【００６４】
式（３３）～式（３４）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎｄｚ３’をセル名「Ｈ１４」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えたこれらの右辺を夫々Ｊ列１４～１５行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果が該セルに表示される。
安定核種Ｅｚ３（σｐ＞１）は中性子捕獲によりＥｚ４に核種変換され、累積重量（Ｈ１５セル）は０ｇとなるが、t_1時間後、核種Ｂｚ３とＤｚ３の壊変で核種Ｅｚ３が生じる。式（３２）Ｎ４ｅｚ３の右辺と式（３４）Ｎ２ｅｚ３の右辺で、各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量を夫々の累積重量を示すセル名「Ｈ１２」と「Ｈ１４」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えた両式を夫々Ｉ１５とＪ１５セルに書込めば、t_1時間後の核種Ｅｚ２の重量の計算結果が該セルに表示される。
Ｌ列には核種Ｂｚ３、Ｃｚ３、Ｄｚ３、Ｅｚ３のt_1時間後の核種重量Ｎｂｚ３ｔ１、Ｎｃｚ３ｔ１、Ｎｄｚ３ｔ１、Ｎｅｚ３ｔ１が、Ｉ～Ｋ列の同じ行のセルの和で求められる。
Ｎｂｚ３ｔ１＝Ｎ１ｂｚ３（ｔ１）、
Ｎｃｚ３ｔ１＝Ｎ２ｃｚ３（ｔ１）、
Ｎｄｚ３ｔ１＝Ｎ３ｄｚ３（ｔ１）＋Ｎ１ｄｚ３（ｔ１）、
Ｎｅｚ３ｔ１＝Ｎ４ｅｚ３（ｔ１）＋Ｎ２ｅｚ３（ｔ１）である。
【００６５】
質量数が３増えた放射性核種Ｃｚ４ｍの重量は核種Ｃｚ３（σｐ＞１）の中性子捕獲でＮｃｚ３だけ増加し累積重量はＮｃｚ４ｍ’＝Ｎｃｚ３＋Ｎｃｚ４ｍとなる。核種Ｃｚ４ｍがＣｚ４ｍ（ＩＴ，λｃｚ４ｍ）→Ｃｚ４（β，λｃｚ４）→Ｄｚ４（安定）に壊変するとき、t_1時間後の核種Ｃｚ４ｍ、Ｃｚ４、Ｄｚ４の重量は［数２］で示した式（６）～式（８）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ｃｚ４ｍの累積重量Ｎｃｚ４ｍ’、ｔをｔ１に書替える。但し、λｄｚ４＝０である。
【００６６】
【数１１】

$$N1cz4m(t1) = Ncz4m' * exp(-\lambda cz4m * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (35)$$

$$N2cz4(t1) = Ncz4m' * \lambda cz4m * \{exp(-\lambda cz4m * t1) - exp(-\lambda cz4 * t1)\}$$
$$/(\lambda cz4 - \lambda cz4m) \quad \cdots\cdots\cdots (36)$$

$$N3dz4(t1) = Ncz4m' * \lambda cz4m * \lambda cz4 * \{exp(-\lambda cz4 * t1)/(\lambda cz4m - \lambda cz4)/(\lambda dz4 - \lambda cz4)$$
$$- exp(-\lambda cz4m * t1)/(\lambda cz4 - \lambda cz4m)/(\lambda dz4 - \lambda cz4m)$$
$$- exp(-\lambda dz4 * t1)/(\lambda cz4m - \lambda dz4)/(\lambda cz4 - \lambda dz4)\} \quad \cdots\cdots\cdots (37)$$

【００６７】
式（３５）～式（３７）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎｃｚ４ｍ’をセル名「Ｈ１６」に、ｔをｔ１のセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えたこれらの右辺を夫々I列１６～１８行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果が該セルに表示される。書込みしたワークシート中のセルの内容の一例を「 」内に示すと、セルＩ１６は「＝（Ｆ１３＋Ｆ１６）＊ｅｘｐ（－＄Ｄ１６＊Ｉ＄１）」が半角文字で書き込まれている。
放射性核種Ｃｚ４（σｐ＞１）は中性子を捕獲してＣｚ５に核種変換されＨ１７セル（累積重量）は０となるが、t_1時間後は放射性核種Ｃｚ４ｍのＩＴ崩壊で核種Ｃｚ４を生じる。核種Ｃｚ４ｍの式（３６）Ｎ２ｃｚ４（ｔ１）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列

（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎｃｚ４ｍ’をセル名「Ｈ１６」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えた式をＩ１７セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果が該セルに表示される。

【００６８】

安定核種Ｄｚ４より核エネルギー準位が高い放射性核種Ｅｚ４のε（β+）崩壊で原子番号が1少ない安定核種Ｄｚ４に壊変する。核種Ｅｚ４の重量は、同位体Ｅｚ３（σｐ＞１）の中性子捕獲によりＮｅｚ３だけ増加し、累積重量はＮｅｚ４’＝Ｎｅｚ３＋Ｎｅｚ４となる。核種Ｅｚ４がＥｚ４（ε，λｅｚ４）→Ｄｚ４（安定）に壊変するとき、t_1時間後の核種Ｄｚ３とＥｚ３の重量は［数２］で示した式（１）、式（２）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ｅｚ４の累積重量Ｎｅｚ４’、ｔをｔ１に書替える。

【００６９】

【数１２】

$$N1ez4(t1) = Nez4' * exp(-\lambda ez4 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (38)$$

$$N2dz4(t1) = Nez4' * \lambda ez4 * \{exp(-\lambda ez4 * t1) - exp(-\lambda dz4 * t1)\}/(\lambda dz4 - \lambda ez4)$$
$$= Nez4' * \{1 - exp(-\lambda ez4 * t1)\} \quad \cdots\cdots\cdots (39)$$

【００７０】

式（３８）、式（３９）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎｅｚ４’をセル名「Ｈ１９」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えた両式を夫々J列１９～１８行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果が該セルに表示される。

Ｌ列には、核種Ｃｚ４ｍ、Ｃｚ４、Ｄｚ４、Ｅｚ４のt_1時間後の核種重量Ｎｃｚ４ｍｔ１、Ｎｃｚ４ｔ１、Ｎｄｚ４ｔ１、Ｎｅｚ４ｔ１が、Ｉ～Ｋ列の同じ行のセルの和で求められる。

Ｎｃｚ４ｍｔ１＝Ｎ１ｃｚ４ｍ（ｔ１）、
Ｎｃｚ４ｔ１＝Ｎ２ｃｚ４（ｔ１）、
Ｎｄｚ４ｔ１＝Ｎ３ｄｚ４（ｔ１）＋Ｎ２ｄｚ４（ｔ１）、
Ｎｅｚ４ｔ１＝Ｎ１ｅｚ４（ｔ１）である。

【００７１】

質量数が４増えた放射性核種Ｃｚ５の重量は同位体Ｃｚ４（σｐ＞１）の中性子捕獲によりＮｃｚ４だけ増加し、累積重量はＮｃｚ５’＝Ｎｃｚ４＋Ｎｃｚ５となる。核種Ｄｚ５がβ崩壊するとき、核種Ｅｚ５ｍの核エネルギー準位が核種Ｄｚ５より高いと、Ｄｚ５はＥｚ５ｍに壊変されず、Ｅｚ５に壊変する。Ｃｚ５（β，λｃｚ５）→Ｄｚ５（β，λｄｚ５）→Ｅｚ５（安定）と壊変するとき、t_1時間後の核種Ｃｚ５、Ｄｚ５、Ｅｚ５の重量は［数２］で示した式（６）～式（８）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ｃｚ５の累積重量Ｎｃｚ５’、ｔをｔ１に書替える。但し、λｅｚ５＝０である。

【００７２】

【数１３】

$$N1cz5(t1) = Ncz5' * exp(-\lambda cz5 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (40)$$

$$N2dz5(t1) = Ncz5' * \lambda cz5 * \{exp(-\lambda cz5 * t1) - exp(-\lambda dz5 * t1)\}$$
$$/(\lambda dz5 - \lambda cz5) \quad \cdots\cdots\cdots (41)$$

$$N3ez5(t1) = Ncz5' * \lambda cz5 * \lambda dz5 * \{exp(-\lambda cz5 * t1)/(\lambda dz5 - \lambda cz5)/(\lambda ez5 - \lambda cz5)$$
$$- exp(-\lambda dz5 * t1)/(\lambda cz5 - \lambda dz5)/(\lambda ez5 - \lambda dz5)$$
$$- exp(-\lambda ez5 * t1)/(\lambda cz5 - \lambda ez5)/(\lambda dz5 - \lambda ez5)\} \quad \cdots\cdots\cdots (42)$$

【００７３】

式（４０）～式（４２）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、初期重量Ｎｃｚ５’をセル名「Ｈ２０」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて書替えたこれらの右辺を夫々Ｉ列２０～２１行と２３行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果が該セルに表示される。書込みしたワークシート中のセルの内容の一例を「 」内に示すと、セルＩ２０は「＝（Ｆ１７＋Ｆ２０）＊ｅｘｐ（－＄Ｄ２０＊Ｉ＄１）」が半角文字で書き込まれている。

放射性核種Ｄｚ５（σｐ＞１）は中性子を捕獲してＤｚ６に核種変換され、累積重量（Ｈ２１セル）は０となるが、ｔ$_1$時間後、放射性核種Ｃｚ５のβ崩壊で核種Ｄｚ５が生じる。式（４１）Ｎ２ｄｚ５の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に書替え、初期重量Ｎｃｚ５’をセル名「Ｈ２０」、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号と共にこの右辺をＩ２１セルに書込めば、ｔ$_1$時間後の核種Ｄｚ５の重量の計算結果が該セルに表示される。

放射性核種Ｅｚ５ｍがＥｚ５ｍ（ＩＴ、λｅｚ５ｍ）→Ｅｚ５（安定）に壊変するとき、ｔ$_1$時間後の核種Ｅｚ５ｍとＥｚ５の重量は［数２］で示した式（６）、式（７）を以下の様に書替え、初期重量Ｎ$_0$を核種Ｅｚ５ｍの累積重量Ｎｅｚ５ｍ、ｔをｔ１に書替える。

【００７４】

【数１４】

$$N1ez5m(t1) = Nez5m * exp(-\lambda ez5m * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (43)$$

$$N2ez5(t1) = Nez5m * \lambda ez5m * \{exp(-\lambda ez5m * t1) - exp(-\lambda ez5 * t1)\}/(\lambda ez5 - \lambda ez5m)$$
$$= Nez5m * \{1 - exp(-\lambda ez5m * t1)\} \quad \cdots\cdots\cdots (44)$$

【００７５】

式（４３）、式（４４）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、累積重量Ｎｅｚ５ｍをセル名「Ｈ２２」、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて両右辺を夫々J列２２～２３行セルに書込めば、ｔ$_1$時間後の該当核種の重量の計算結果がJ列２２～２３行セルに表示される。

安定核種Ｅｚ５（σｐ＞１）は同位体のＥｚ６に核種変換され累積重量（Ｈ２３セル）は０ｇとなるが、ｔ$_1$時間後に核種Ｃｚ５とＥｚ５ｍを親核種として崩壊によりＥｚ５が生じる。式（４２）Ｎ３ｅｚ５（ｔ１）の右辺、式（４４）Ｎ２ｅｚ５（ｔ１）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に書替え、それぞれの累積重量をセル名「Ｈ２０」と「Ｈ２２」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて両右辺を夫々Ｉ２３セルとＪ２３セルに書込めば、ｔ$_1$時間後の核種Ｅｚ５の重量の計算結果が該セルに表示される。

Ｌ列には、核種Ｃｚ５、Ｄｚ５、Ｅｚ５ｍ、Ｅｚ５のｔ$_1$時間後の核種重量Ｎｃｚ５ｔ１、Ｎｄｚ５ｔ１、Ｎｅｚ５ｍｔ１、Ｎｅｚ５ｔ１が、Ｉ～Ｋ列の同じ行のセルの和で求められる。

Ｎｃｚ５ｔ１＝Ｎ１ｃｚ５（ｔ１）、
Ｎｄｚ５ｔ１＝Ｎ２ｄｚ５（ｔ１）、
Ｎｅｚ５ｍｔ１＝Ｎ１ｅｚ５ｍ（ｔ１）、
Ｎｅｚ５ｔ１＝Ｎ３ｅｚ５（ｔ１）＋Ｎ２ｅｚ５（ｔ１）である。

【００７６】

質量数が５増えた放射性核種Ｄｚ６の重量は、同位体Ｄｚ５（σｐ＞１）の中性子捕獲によりＮｄｚ５だけ増加し、中性子照射直後の累積重量はＮｄｚ６’＝Ｎｄｚ５＋Ｎｄｚ６となる。核種Ｄｚ６がＤｚ６（β，λｄｚ６）→Ｅｚ６（β，λｅｚ６）→Ｆｚ６（安定）に壊変するとき、ｔ$_1$時間後の核種Ｄｚ６、Ｅｚ６、Ｆｚ６の重量は［数２］で示した式（６）～式（８）を以下の様に書換え、初期重量Ｎ$_0$を核種Ｄｚ６の累積重量Ｎｄｚ６’に、ｔをｔ１に書替える。但し、λｆｚ６＝０

【００７７】

【数１５】

$$N1dz6(t1) = Ndz6' * exp(-\lambda dz6 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (45)$$

$$N2ez6(t1) = Ndz6' * \lambda dz6 * \{exp(-\lambda dz6 * t1) - exp(-\lambda ez6 * t1)\}$$
$$/(\lambda ez6 - \lambda dz6) \quad \cdots\cdots\cdots (46)$$

$$N3fz6(t1) = Ndz6' * \lambda dz6 * \lambda ez6 * \{exp(-\lambda dz6 * t1)/(\lambda ez6 - \lambda dz6)/(\lambda fz6 - \lambda dz6)$$
$$- exp(-\lambda ez6 * t1)/(\lambda dz6 - \lambda ez6)/(\lambda fz6 - \lambda ez6)$$
$$- exp(-\lambda fz6 * t1)/(\lambda dz6 - \lambda fz6)/(\lambda ez6 - \lambda fz6)\} \quad \cdots\cdots\cdots (47)$$

【００７８】

式（４５）～式（４７）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、累積重量Ｎｄｚ６’をセル名「Ｈ２４」、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めてこれらの右辺を夫々I列２４～２６行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果がI列２４～２６行セルに表示される。書込みしたワークシート中のセルの内容の一例を示すと、セルＩ２４は「＝（Ｆ２１＋Ｆ２４）＊ｅｘｐ（－＄Ｄ２４＊Ｉ＄１）」が半角文字で書込まれている。

放射性核種Ｅｚ６の重量は、同位体Ｅｚ５（σｐ＞１）の中性子捕獲によりＮｅｚ５だけ増加し、累積重量はＮｅｚ６’＝Ｎｅｚ５＋Ｎｅｚ６となる。核種Ｅｚ６がＥｚ６（β，λｅｚ６）→Ｆｚ６（安定）に壊変するとき、t_1時間後の核種Ｅｚ６とＦｚ６の重量は［数２］で示した式（６）、式（７）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ｄｚ６の累積重量Ｎｄｚ６’に、ｔをｔ１に書替える。但し、λｆｚ６＝０である。

【００７９】

【数１６】

$$N1ez6(t1) = Nez6' * exp(-\lambda ez6 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (48)$$

$$N2fz6(t1) = Nez6' * \lambda ez6 * \{exp(-\lambda ez6 * t1) - exp(-\lambda fz6 * t1)\}/(\lambda fz6 - \lambda ez6)$$
$$= Nez6' * \{1 - exp(-\lambda ez6 * t1)\} \quad \cdots\cdots\cdots (49)$$

【００８０】

式（４８）、式（４９）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、累積重量Ｎｄｚ６’をセル名「Ｈ２４」に、ｔ１をセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めてこれらの右辺を夫々J列２５～２６行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果が該セルに表示される。

安定核種Ｆｚ６のt_1時間後の重量は初期値Ｎｆｚ６に放射性核種Ｄｚ６とＥｚ６のβ崩壊で生じた重量が加わる。式（４７）Ｎ３ｆｚ６（ｔ１）と式（４９）Ｎ２ｆｚ６（ｔ１）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に書替え、等号を含めてこれらの右辺を夫々Ｉ２６、Ｊ２６セルに書込めば、t_1時間後の核種Ｆｚ６の重量の計算結果が該セルに表示される。

放射性核種Ｇｚ６はα崩壊で原子番号が２、質量数が４減り核種Ｅｚ１に壊変するので、核種Ｇｚ６がＧｚ６（α）→Ｅｚ２（安定）と壊変するとき、t_1時間後の核種Ｇｚ６とＥｚ２の重量は［数２］で示した式（６）、式（７）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ｇｚ６の累積重量Ｎｇｚ６に、ｔをｔ１に書替える。

【００８１】

【数１７】

$$N1gz6(t1) = Ngz6 * exp(-\lambda gz6 * t1) \quad \cdots\cdots\cdots (50)$$

$$N2ez2(t1) = Nez6 * \lambda ez2 * \{exp(-\lambda ez6 * t1) - exp(-\lambda ez2 * t1)\}/(\lambda ez2 - \lambda ez6)$$
$$\cdots\cdots\cdots (51)$$

【００８２】

式（５０）、式（５１）の右辺で各核種の崩壊定数λをＤ列（λ）の該当する行のセル名に、累積重量Ｎｇｚ６をセル名「Ｈ２７」、ｔ１のセル名「Ｉ＄１」に書替え、等号を含めて両右辺を夫々J列２７と１１行セルに書込めば、t_1時間後の該当核種の重量の計算結果が該セルに表示される。

Ｌ列には、核種Ｄｚ６、Ｅｚ６、Ｆｚ６、Ｇｚ６のt_1時間後の重量Ｎｄｚ６ｔ１、Ｎｅｚ６ｔ１、Ｎｆｚ６ｔ１、Ｎｇｚ６ｔ１がＩ～Ｋ列の同じ行のセルの和で求められる。

Ｎｄｚ６ｔ１＝Ｎ１ｄｚ６（ｔ１）、

Ｎｅｚ６ｔ１＝Ｎ２ｅｚ６（ｔ１）＋Ｎ１ｅｚ６（ｔ１）、

Ｎｆｚ６ｔ１＝Ｎｆｚ６＋Ｎ３ｆｚ６（ｔ１）＋Ｎ２ｆｚ６（ｔ１）、

Ｎｇｚ６ｔ１＝Ｎ１ｇｚ６（ｔ１）である。

【００８３】

中性子照射２回目のt_2時間貯蔵後の核種重量を求めるには、表１Ａに示していないが

、秒単位で表したｔ２をＯ列１行セルに記入し、中性子照射１回目の累積重量とｔ$_1$時間後の核種の重量と合計重量を表示しているＨ列～Ｌ列（Ｈ３～Ｌ２７セル）の数式をコピーし、そのままＮ列～Ｒ列（Ｎ３～Ｒ２７セル）に貼り付ける。数式でｔ１をｔ２（数式ではＩ１をＯ１）に書替え、数式中の崩壊定数λのＤ列のセルは固定アドレス（絶対参照）とし、重量に関するセルは相対参照アドレスとする。式（１１）～式（５１）において、ｔ１がｔ２に、初期重量に相当するＨ列の累積重量がＮ列の累積重量に変更されただけである。貼り付けされた移動後のセルは自動的に変更され、例えばＩ３セルの数式「＝Ｈ３＊ｅｘｐ（－＄Ｄ３＊Ｉ＄１）」は「＝Ｎ３＊ｅｘｐ（－＄Ｄ３＊Ｏ＄１）」と半角文字で書き込まれている。なお＄は絶対参照を意味する。ｔ$_2$時間後の核種重量の計算結果はＯ列～Ｑ列の該当セルに表示される。Ｒ列には、Ａ列に記載された全核種のｔ$_2$時間後の核種重量が、Ｏ～Ｑ列の同じ行のセルの和で求められる。

【００８４】

表１Ｂに中性子照射Ｎｉ回目と照射後の一定期間ｔ$_s$時間放置後の核種の重量変化を求めた計算例を示す。この表は中性子照射Ｎｉ回の例を示し、列名（ＡＡ～ＡＮ）は仮称で実際の表では異なる。ＡＦ１セルに秒単位で表したｔ$_i$時間を記入し、ＡＣ列に表示された中性子照射Ｎｉ回目直前の核種の合計重量をＥ列のσｐの値を考慮して、ＡＤ列に表示された中性子照射条件でＡＥ列の各セルにコピーする。⇒は同一行でＡＣ列のセルの重量をそのままＡＥ列のセルにコピーすることを示す。σｐが１以上の核種のＡＥ列の累積重量は０ｇで、σｐが１以下の場合はこの中性子捕獲確率を考慮した累積重量となる。また、σｐが非記載の核種で＜＞で表示されたセルは、質量数の小さい同じ元素の中性子捕獲により核種変換されて増加した重量が加算される（例えばＡＥ９、ＡＥ１４セルなど）。中性子照射Ｎｉ回目のｔ$_i$時間後の核種重量を求めるには、表１Ａの中性子照射１回目のＩ列～Ｋ列の各セルに書込んだ書替え後の式（１１）～式（５１）を、そのままＡＦ列～ＡＨ列の各セルにコピーし、数式中の変数の初期重量Ｎ$_0$をＡＥ列の累積重量該当セル名、ｔをセル名「ＡＦ＄１」に書替えれば、ｔ$_i$時間後の核種重量の計算結果がＡＦ～ＡＨ列の該当セルに表示される。例えば、Ｉ列３～７行セルに表示された式（１１）～式（１５）とＡＦ列３～７行セルに表示された式（１１）～式（１５）の違いは変数ｔがｔ１からｔｉへ、初期重量Ｎ$_0$がＮａｚ１ｍからＮａｚ１ｍｔｉ－１に変更されただけである。ＡＩ列には全核種のｔ$_i$時間後の核種重量が、ＡＦ～ＡＨ列の同じ行のセルの和で求められる。但し、σｐが非記載の安定核種は、ＡＥ列の累積重量が加算される。例を挙げると１８行と２６行の安定核種Ｄｚ４とＦｚ６は、前者はＡＦ１８とＡＧ１８の和にＡＥ１８が、後者はＡＦ２６とＡＧ２６の和にＡＥ２６が加算される。この表では可溶物槽と気体槽の核種重量変化を求める場合を述べているが、難溶物槽の核種重量変化を求める場合はｔ$_i$をｔ$_i$’、 t_sをｔ$_s$’、ＮｉをＮｊに置き換える。

【００８５】

【表１Ｂ】

表1Ｂ　核種重量推移の計算例(2)

	AA	AB	AC	AD	AE	AF	AG	AH	AI	AJ	AK	AL	AM	AN
1						ti				ts				
2	核種	崩壊形式	Ni-1回目重量小計	Ni回目照射	累積重量	ti時間後重量			重量小計	ts時間後重量				重量小計
3	Az1 m	IT	Naz1 mti-1	⇒	Naz1 mti-1	式(11)			Naz1 mti	式(11)				Naz1 mts
4	Az1	β	Naz1 ti-1	⇒	Naz1 ti-1	式(12)	式(16)		Naz1 ti	式(12)	式(16)			Naz1 ts
5	Bz1	β	Nbz1 ti-1	+2n		式(13)	式(17)		Nbz1 ti	式(13)	式(17)			Nbz1 ts
6	Cz1 m	IT	Naz1 mti-1	⇒	Naz1 mti-1	式(14)	式(18)	式(20)	Naz1 mti	式(14)	式(18)	式(20)	式(52)	Naz1 mts
7	Cz1	安定	Naz1 ti-1	+1n		式(15)	式(19)	式(21)	Naz1 ti	式(15)	式(19)	式(21)	式(53)	Naz1 ts
8	Bz2	β	Nbz2 ti-1	+1n	0.2*(Nbz1 ti-1＋Nbz1 ti-1)	式(22)			Nbz2 ti	式(22)			式(54)	Nbz2 ts
9	Cz2	β	Naz2 ti-1	<Cz1+1>	Naz1 ti-1＋Naz2 ti-1	式(23)	式(25)		Naz2 ti	式(23)	式(25)			Naz2 ts
10	Dz2	安定	Nbz2 ti-1	+1n		式(24)	式(26)	式(28)	Nbz2 ti	式(24)	式(26)	式(28)		Nbz2 ts
11	Ez2	ec	Naz2 ti-1	⇒	Naz2 ti-1		式(51)	式(27)	Naz2 ti		式(51)	式(27)		Naz2 ts
12	Bz3	β	Nbz3 ti-1	<Bz1+2>,Bz2+1>	Nbz3 ti-1＋0.8*(Nbz1 ti-1＋Nbz2 ti-1)	式(29)			Nbz3 ti	式(29)				Nbz3 ts
13	Cz3	β	Naz3 ti-1	+1n		式(30)			Naz3 ti	式(30)			式(55)	Naz3 ts
14	Dz3	β	Ndz3 ti-1	<Dz2+1>	Ndz2 ti-1＋Ndz3 ti-1	式(31)	式(33)		Ndz3 ti	式(31)	式(33)		式(56)	Ndz3 ts
15	Ez3	安定	Nez3 ti-1	+1n		式(32)	式(34)		Nez3 ti	式(32)	式(34)		式(57)	Nez3 ts
16	Cz4m	IT	Naz4 mti-1	<Cz3+1>	Naz4 mti-1	式(35)			Naz4 mti	式(35)				Naz4 mts
17	Cz4	β	Naz4 ti-1	+1n		式(36)			Naz4 ti	式(36)			式(58)	Naz4 ts
18	Dz4	安定	Ndz4 ti-1	⇒	Ndz4 ti-1	式(37)	式(39)		Ndz4 ti	式(37)	式(39)		式(59)	Ndz4 ts
19	Ez4	ε	Nez4 ti-1	<Ez3+1>	Nez3 ti-1＋Nez4 ti-1		式(38)		Nez4 ti		式(38)			Nez4 ts
20	Cz5	β	Naz5 ti-1	<Cz4+1>	Naz4 ti-1＋Naz5 ti-1	式(40)			Naz5 ti	式(40)				Naz5 ts
21	Dz5	β	Ndz5 ti-1	+1n		式(41)			Ndz5 ti	式(41)			式(60)	Ndz5 ts
22	Ez5m	IT	Nez5 mti-1	⇒	Naz5 mti-1		式(43)		Naz5 mti		式(43)			Naz5 mts
23	Ez5	安定	Nez5 ti-1	+1n		式(42)	式(44)		Nez5 ti	式(42)	式(44)		式(61)	Naz5 ts
24	Dz6	β	Ndz6 ti-1	<Dz5+1>	Ndz5 ti-1＋Ndz6 ti-1	式(45)			Ndz6 ti	式(45)				Ndz6 ts
25	Ez6	β	Nez6 ti-1	<Ez5+1>	Naz5 ti-1＋Naz6 ti-1	式(46)	式(48)		Naz6 ti	式(46)	式(48)			Naz6 ts
26	Fz6	安定	Nfz6 ti-1	⇒	Nfz6 ti-1	式(47)	式(49)		Nfz6 ti	式(47)	式(49)			Nfz6 ts
27	Gz6	α	Ngz6 ti-1	−Ez1	Ngz6 ti-1		式(50)		Ngz6 ti		式(50)			Ngz6 ts
.	.		.		.				.					.
	合計		∑Nti-1		∑Nti'				∑Nti					∑Nts

A～Gは元素記号，z1，z2，z3，…は質量数，　ti時間後は赤中性子を照射せず，その後ts時間放置後の列AJ～AMの核種重量の初期値はAB列の値となる。
最下行には、中性子照射前後の重量及び累積重量列とts時間放置後の全核種の合計を表示してある。列名は仮の名称で、N回数により[AA]～[AN]は異なる。

【００８６】

中性子照射Ｎｉ回目のｔ$_i$時間後に放射性核種の崩壊エネルギーによる貯蔵物の温度と放射能を低減するためｔ$_s$時間放置する。ｔ$_s$時間放置後の核種重量を求めるには、ＡＪ１セルに秒単位で表したｔ$_s$時間を記入し、表１Ａの中性子照射１回目のＩ～Ｋ列の各セルに書込んだ書替え後の式（１１）～式（５１）のコピーしたセルをＡＪ～ＡＬ列の各セルに移動し、数式中の初期重量Ｎ$_0$をＡＩ列（重量小計）の該当セル名、ｔ１をセル名「ＡＪ＄１」に書替えれば、ｔ$_s$時間後の核種重量の計算結果がＡＪ～ＡＬ列の該当セルに表示される。Ｉ列３～７行セルに表示された式（１１）～式（１５）とＡＪ列３～７行セルに表示された式（１１）～式（１５）の違いは、列名と変数ｔ１がｔｓ、累積重量Ｎａｚ１ｍがＮａｚ１ｍｔｉに変更されただけである。ＡＮ列に核種のｔ$_s$時間後の重量が、ＡＪ～ＡＬ列の同じ行のセルの和で求められる。但し、安定核種はＡＥ列の累積重量も加算され、Ｃｚ１、Ｄｚ２、Ｅｚ３、Ｄｚ４、Ｅｚ５、Ｆｚ６が該当する。また中性子を照射しないので、ＡＥ列の累積重量が０ｇとなる核種は、この核種を親核種として娘核種への崩壊系列が未記載のため、この系列の遂次方程式が必要となる。

５行目の核種Ｂｚ１がＢｚ１（β，λｂｚ１）→Ｃｚ１ｍ（ＩＴ，λｃｚ１ｍ）→Ｃｚ（安定）に壊変するときｔｓ時間後のこれらの核種重量はＡＭ列を設け、ＡＭ列５～７行セルに［数２］で示した式（６）～式（８）を以下の様に書替え、初期重量Ｎ$_0$を核種Ｂｚ１の重量小計Ｎｂｚ１ｔｉに、ｔをｔｓに書替える。但し、λｃｚ１＝０である。

【００８７】

【数１８】

$$N1bz1(ts) = Nbz1ti * exp(-\lambda bz1 * ts) \quad \cdots\cdots\cdots (52)$$

$$N2cz1m(ts) = Nbz1ti * \lambda bz1 * \{exp(-\lambda bz1 * ts) - exp(-\lambda cz1m * ts)\}/(\lambda cz1m - \lambda bz1) \quad \cdots\cdots\cdots (53)$$

$$\begin{aligned} N3cz1(ts) = {} & Nbz1ti * \lambda bz1 * \lambda cz1m * \{exp(-\lambda bz1 * ts)/(\lambda cz1m - \lambda bz1)/(\lambda cz1 - \lambda bz1) \\ & - exp(-\lambda cz1m * ts)/(\lambda bz1 - \lambda cz1m)/(\lambda cz1 - \lambda cz1m) \\ & - exp(-\lambda cz1 * ts)/(\lambda bz1 - \lambda cz1)/(\lambda cz1m - \lambda cz1)\} \end{aligned} \quad \cdots\cdots\cdots (54)$$

【００８８】

式（５２）～式（５４）の右辺で各核種の崩壊定数λを該当する行のＤ列（λ）のセル名に、重量小計Ｎｂｚ１ｔｉのセル名「ＡＩ５」に、ｔｓをセル名「ＡＪ＄１」に書替え、等号を含めてこれらの右辺を夫々ＡＭ列５～７行セルに書込めば、t_s時間後の該当核種の重量の計算結果がＡＭ列５～７行セルに表示される。

１３行目の放射性核種Ｃｚ３がＣｚ３（β，λｃｚ３）→Ｄｚ３（β，λｄｚ３）→Ｅｚ３（安定）に壊変するとき、t_s時間後のこれらの核種重量を求めるには、ＡＭ列１３～１５行セルに［数２］で示した式（６）～式（８）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ｃｚ３の重量小計Ｎｃｚ３ｔｉに、ｔをｔｓに書替える。但し、λｅｚ３＝０

【００８９】

【数１９】

$$N1cz3(ts) = Ncz3ti * exp(-\lambda cz3 * ts) \quad \cdots\cdots\cdots (55)$$

$$N2dz3(ts) = Ncz3ti * \lambda cz3 * \{exp(-\lambda cz3 * ts) - exp(-\lambda dz3 * ts)\}/(\lambda dz3 - \lambda cz3) \quad \cdots\cdots\cdots (56)$$

$$\begin{aligned} N3ez3(ts) = {} & Ncz3ti * \lambda cz3 * \lambda dz3 * \{exp(-\lambda cz3 * ts)/(\lambda dz3 - \lambda cz3)/(\lambda ez3 - \lambda cz3) \\ & - exp(-\lambda dz3 * ts)/(\lambda cz3 - \lambda dz3)/(\lambda ez3 - \lambda dz3) \\ & - exp(-\lambda ez3 * ts)/(\lambda cz3 - \lambda ez3)/(\lambda dz3 - \lambda ez3)\} \end{aligned} \quad \cdots\cdots\cdots (57)$$

【００９０】

式（５５）～式（５７）の右辺で各核種の崩壊定数λを該当する行のＤ列λのセル名に、重量小計Ｎｃｚ３ｔｉのセル名「ＡＩ１３」セルに、ｔｓをセル名「ＡＪ＄１」に書替え、等号を含めてこれらの式を夫々ＡＭ列１３～１５行セルに書込めば、t_s時間後の該当核種の重量の計算結果がＡＭ列１３～１５行セルに表示される。

同様に１７行目の放射性核種Ｃｚ４（β，λｄｚ４）→Ｅｚ４（安定）に壊変するとき、t_s時間後のこれらの核種重量を求めるには、ＡＭ列１７～１８行セルに［数２］で示した式（６）、式（７）を以下の様に書替え初期重量N_0を核種Ｃｚ４の重量小計Ｎｃｚ４ｔｉに、ｔをｔｓに書替える。但し、λｄｚ４＝０である。

【００９１】

【数２０】

$$N1cz4(ts) = Ncz4ti * exp(-\lambda cz4 * ts) \quad \cdots\cdots\cdots (58)$$

$$\begin{aligned} N2dz4(ts) &= Ncz4ti * \lambda cz4 * \{exp(-\lambda cz4 * ts) - exp(-\lambda dz4 * ts)\}/(\lambda dz4 - \lambda cz4) \\ &= Ncz4ti * \{1 - exp(-\lambda cz4 * ts)\} \end{aligned} \quad \cdots\cdots\cdots (59)$$

【００９２】

式（５８）、式（５９）の右辺で各核種の崩壊定数λを該当する行のＤ列（λ）のセル名に、重量小計Ｎｃｚ４ｔｉのセル名「ＡＩ１７」セルに、ｔｓをセル名「ＡＪ＄１」に書替え、等号を含めて両式を夫々ＡＭ列１７、１８行セルに書込めば、t_s時間後の該当核種の重量の計算結果がＡＭ列１７、１８行セルに表示される。

同様に２１行目の放射性核種Ｄｚ５（β，λｄｚ５）→Ｅｚ５（安定）では、t_s時間後のこれらの核種重量を求めるには、ＡＭ列２１と２３行セルに［数２］で示した式（６）、式（７）を以下の様に書替え、初期重量N_0を核種Ｄｚ５の重量小計Ｎｄｚ５ｔｉに、ｔをｔｓに書替える。但し、λｅｚ５＝０

【００９３】

【数２１】

$$N1dz5(ts) = Ndz5ti * exp(-\lambda dz5 * ts) \quad \cdots\cdots\cdots (60)$$

$$N2ez5(ts) = Ndz5ti * \lambda dz5 * \{exp(-\lambda dz5 * ts) - exp(-\lambda ez5 * ts)\}/(\lambda ez5 - \lambda dz5)$$
$$= Ndz5ti * \{1 - exp(-\lambda dz5 * ts)\} \quad \cdots\cdots\cdots (61)$$

【００９４】

式（６０）、式（６１）の右辺で各核種の崩壊定数λを該当する行のＤ列（λ）のセル名に、重量小計Ｎｄｚ５ｔｉのセル名「ＡＩ２１」に、ｔをｔｓのセル名「ＡＪ＄１」に書替え、等号を含めて両式を夫々ＡＭ２１と２３セルに書込めば、t_s時間後の該当核種の重量の計算結果がＡＭ列２１と２３行セルに表示される。

表１ＢのＡＣ、ＡＥ、ＡＩ、ＡＮ列の最下行のセルには、これらの列の核種重量の合計をΣＮｔｉ－１、ΣＮｔｉ＊、ΣＮｔｉ、ΣＮｔｓと表示するが、表１ＡのΣＮｔ０、ΣＮｔ０＊、ΣＮｔ１、ΣＮｔ１＊を含め、これらの数値が全て等しいことを確認すれば、質量保存則に元づき、計算式の正しさを反映するものである。

【実施例】

【００９５】

本発明に係る実施例として、東京電力福島第一原子力発電所の原子炉２号機の使用済み核燃料で発生したＦＰ８７９種の重量推移のデータを使用した。〔データ引用元３；末尾に記載〕なお、上記データには非記載の１４核種と中性子照射で新たに発生する１８核種を計算対象に追加している。使用済み核燃料取出しから一定期間t_0時間は数十日から数十年間であり、本実施例では１８０日とする。可溶物槽、難溶物槽、気体槽では、使用済み核燃料取出し１８０日後の重量が１Ｅ－４０ｇ以上の核種を同一質量数毎に、原子番号順に核種、崩壊形式、半減期τ、崩壊定数λ、中性子捕獲確率σｐ、１８０日後の重量を該当セルに、下記する貯蔵期間を該当セルに書込み、中性子照射回数に相当する分だけ核種重量を表示するために列を増やし、本発明を適用した場合の核種重量の経時変化を表１Ａ、表１Ｂを元にＥｘｃｅｌワークシートを作成した。ワークシートをＡ４用紙の表にすると１２０枚以上になるので割愛し、各槽毎の核種について計算した結果を表記する。半減期の単位は秒：ｓ、分：ｍ、時間：ｈ、日：ｄ、年：ｙで表す。

中性子捕獲確率σｐは中性子捕獲断面積σｎと核断面積σとの比で表され、中性子捕獲断面積σｎ（０．３５３ｍｅＶ）は日本原子力研究開発機構　核データ研究グループのＪＥＮＤＬ－５のσｎ（０．０２５３ｅＶ）を元に計算で求めた。なお、σｎが中性子の速度に反比例しない核種は熱中性子の値以上としてある。核種のσｐが１以上であれば中性子を捕獲して核種変換され、その重量は０ｇとなり、質量数が増えた核種は中性子を捕獲した核種の重量となる。さらに捕獲した核種のσｐが１以上であれば、質量数は２増えた核種に変換され、変換された核種のσｐが１以上であれば、さらに中性子を捕獲して核種変換され質量数は３増える。一例を挙げると、バリウム同位体の０．３５３ｍｅＶのσｐは、Ｂａ１３２が５３．７、Ｂａ１３３ｍが１８．１、Ｂａ１３３が１８．１、Ｂａ１３４が９．８９、Ｂａ１３５が３８であり、それぞれ４～１個の中性子を捕獲して５６Ｂａ１３６ｍに核種変換される。

本発明では、発生した高レベル放射性廃棄物を硝酸に可溶な可溶物と難溶・不溶な難溶物とに分離貯蔵し、前者では壊変で発生した安定な難溶物には中性子を照射せず、後者では壊変で発生した安定な可溶物には中性子を照射しないので、安定な核種の回収量が槽分離をしない場合より大幅に増加する。また、高レベル放射性廃棄物のガラス固化体にする重量を最小にするため、中性子照射回数を３～１６回と、その後の貯蔵期間を３日～１年をパラメータとして計算した結果、照射間隔を３０日とした。照射回数は槽毎により異なる。

【００９６】

（可溶物槽中の核種）

表１Ａ、表１Ｂを可溶物槽中の核種に適用する場合は、難溶性核種と気体核種のｔ０日後の重量（Ｆ列）は０ｇであり、中性子照射後に可溶性核種の壊変で生じた難溶性核種と気体核種には中性子を照射しないので、これらの核種の該当する行のＧ、Ｍ、・・ＡＤ、

・・・列のセルには⇒を表示し、中性子照射後の累積重量は照射前の合計重量となる。但し、中性子照射２回目のみσｐが1以上のヨウ素は除外する。同一質量数で可溶性核種を含まない崩壊系列の場合は初期重量が０ｇなので、この質量数の核種は表から除外する（例えば３２Ｇｅ７３ｍ～３２Ｇｅ７５、４０Ｚｒ９３～４６Ｐｄ１０７と５０Ｓｎ１１８～５１Ｓｂ１２２）。計算対象は２Ｈｅ４から７２Ｈｆ１７８までで、先頭の核種は中性子照射で可溶性核種３Ｌｉ６が中性子捕獲により３Ｌｉ８（β，０．８４ｓ）→４Ｂｅ８（α，８．２×１０$^{-17}$ｓ）→２Ｈｅ４（安定）と壊変して気体２Ｈｅ４が生じ、末尾の核種はＪＡＥＡデータに記載された可溶性の安定核種７０Ｙｂ１７２が、非記載の同位体７０Ｙｂ１７３～１７６のσｐが１以上のため、１回目の中性子照射で核種変換されて生じた放射性核種７０Ｙｂ１７７（β，１．９１ｈ）のβ崩壊でσｐが１以上の可溶性核種７１Ｌｕ１７７（β／ＩＴ，１６０．４ｄ）を生じ、該核種が２回目の照射で核種変換されて生じた７１Ｌｕ１７８ｍ（β，２３．１ｍ）のβ崩壊で難溶性の核種７２Ｈｆ１７８ｍ（ＩＴ，２３．１ｍ）→７２Ｈｆ１７８（安定）を生じることによる。質量数が１７２以上の核種は中性子照射により新たに発生した核種である。可溶物槽で発生した気体核種と難溶性核種の重量は可溶物槽の表中に記載している。

【００９７】

可溶物槽の可溶性核種にのみ中性子をＮｉ回照射し、t_i時間貯蔵後、発生した気体核種を気体槽に回収し、発生した難溶性核種は固液分離装置などで難溶物槽Ａに回収するのをＮｉ回繰り返し、可溶性核種以外には中性子を照射しない。本実施例では照射回数Ｎｉを９回とし、貯蔵期間t_iは、t_1～t_8は３０日、t_9は３１０日（核燃料取出しから通算して２年に相当）とし、t_sは４年とする。

可溶物槽にはＰＵＲＥＸ法などの再処理後の硝酸溶液中に含まれる可溶性核種を溶液ごと使用しても、いったん脱硝して新たに濃度４モル／Ｌの硝酸溶液約３００Ｌを加えて、硝酸に可溶な核種を硝酸化物あるいは酸化物としてもよく、この硝酸に可溶な核種を含む硝酸溶液を可溶物槽に回収する。なお、放射性崩壊による発熱で溶液温度が上昇するが、ヨウ素を液相から気相にするため必要なら加熱するため、硝酸溶液が蒸発するので、濃度４モル／Ｌの硝酸溶液は中性子照射後に約３００Ｌに保つ必要がある。

表１Ａ、表１Ｂを元に可溶物槽の可溶性核種にのみ中性子を前述の条件で照射した時、壊変で変化した核種重量の変化をＥｘｃｅｌワークシートで計算した。可溶物槽の可溶性核種は２３７種（放射性核種が１６０種、安定核種が７７種）、核燃料取出し１８０日後の重量は可溶性核種が１０９７．３ｋｇ（放射性核種が３９７．０ｋｇ、安定核種が７００．３ｋｇ）である。これらの重量は全て核種単体の重量である。

【００９８】

可溶物槽の放射性核種について、使用済み核燃料取出し１８０日後の重量と、未対策で６年間放置した場合と、本発明を適用（可溶性核種にのみ中性子を前述の条件で照射）した場合の６年後の重量〔単位ｇ〕と放射能〔単位Ｂｑ〕について計算した結果を表２Ａ－１に示す。未対策放置６年後の放射性固体核種１６０種で重量３７１．５ｋｇは、対策により核種数１５種で重量２４．１ｋｇ（可溶性核種が１４種で２４．１ｋｇ、難溶性核種が１種で３．４×１０$^{-37}$ｇ、気体核種は無し）に減少する。これらの重量は全て核種単体の重量であり、酸化物、硝酸化物等の化合物の重量ではない。対策により放射能は可溶性核種は２６８．９ＰＢｑ（Ｐはペタ）に、難溶性核種は増加しているが１ｚＢｑ（ｚはゼプト）以下である。

非記載の放射性の可溶性核種１５０種のうち１０５核種は半減期が１０日以下と短く対策６年後には略０ｇとなり、半減期が５０日以上の長い可溶性核種３５種のσｐは１以上で、中性子照射で核種変換され重量は７．６７Ｅ－５０ｇとなる。これは、９回目の中性子照射で捕獲されず残存した重量７．６９Ｅ－５０ｇの６６Ｄｙ１６６のβ崩壊で生じた６７Ｄｙ１６６ｍ（β，１２００ｙ）が６年後に７．６７Ｅ－５０ｇ残存することによる。核燃料取り出し１８０日後に存在した３９７．０ｋｇの可溶性の放射性核種重量は対策により、６年後に２４．１ｋｇに減少する。

【００９９】

【表２Ａ－１】

表2A-1　可溶物槽の放射性核種重量と放射能

	放射性核種	核種数	重量[g]			放射能[Bq]	
			180日後	放置6年後	対策6年後	放置6年後	対策6年後
可溶物槽	可溶性固体	14	2.191E+05	2.219E+05	2.405E+04	3.763E+17	2.689E+17
	難溶性固体	1	0	4.623E-49	3.370E-37	1.363E-33	9.934E-22
	気体	0	0	0	0	0	0
	合計	15	2.191E+05	2.219E+05	2.405E+04	3.763E+17	2.689E+17
非記載	可溶性固体	146	1.780E+05	1.496E+05	7.668E-50	5.448E+17	5.092E-39
	難溶性固体	81	0	0	0	0	0
	気体	31	0	0	0	0	0
	合計	258	1.780E+05	1.496E+05	8.425E-45	5.448E+17	5.829E-29
合計	可溶性固体	160	3.970E+05	3.715E+05	2.405E+04	9.211E+17	2.689E+17
	難溶性固体	82	0	4.623E-49	3.370E-37	1.3627E-33	9.934E-22
	気体	31	0	0	0	0	0
	合計	273	3.970E+05	3.715E+05	2.405E+04	9.211E+17	2.689E+17

【０１００】

可溶物槽の放射性核種で対策後に重量が１Ｅ－４０ｇ以上の核種について、未対策で６年間放置した場合と本発明を適用した場合の重量と放射能の変化について計算した結果を表２Ａ－２に示す。表では可溶物槽で生じた放射性核種の崩壊形式と半減期、中性子捕獲確率σｐ（０．３５３ｍｅＶ）、核種重量〔単位ｇ〕と放射能〔単位Ｂｑ〕を示す。なお、重量は核種単体の重量であり、酸化物、硝酸化物等の化合物の重量ではない。

【０１０１】

【表２Ａ－２】

表2A-2　可溶物槽の放射性核種重量、放射能の変化

放射性核種	崩壊形式	τ半減期	σp	重量[g]			放射能[Bq]	
				180日後	放置6年後	対策6年後	放置6年後	対策6年後
可溶性核種								
38Sr90	β	28.79y	0.089	3.688E+04	3.229E+04	2.390E+04	1.649E+17	1.220E+17
39Y90	β	64h	27.9	9.386E+00	8.219E+00	6.084E+00	1.654E+17	1.224E+17
39Y91	β	58.51d	11.9	3.558E+02	1.590E-08	2.071E-06	1.442E+07	1.878E+09
48Cd116	2β:?%	3.3E+19y	0.543	3.217E+02	3.217E+02	1.615E+01	1.112E-03	5.581E-05
55Cs134	β/ec 注1)	2.0652y	926.0	4.898E+03	7.713E+02	1.598E-24	3.687E+16	5.251E-11
55Cs135	β	2.3E+6y	56.2	2.679E+04	2.679E+04	4.963E-20	1.141E+12	2.091E-12
58Ce141	β	32.511d	184.8	7.623E+01	1.783E-17	1.686E-28	1.878E-02	1.779E-13
58Ce142	2β	5E+16y	6.09	7.524E+04	7.524E+04	2.795E-12	1.402E+02	5.188E-15
60Nd144	α	2.29E+15y	22.8	7.217E+04	8.474E+04	1.468E-15	3.400E+03	2.944E-17
62Sm151	β	90y	9.22E+04	9.100E+02	8.717E+02	5.404E-04	6.465E+14	5.261E+09
63Eu154	β/ε 注2)	8.601y	812.E+03	1.003E+03	9.432E+02	2.042E-03	9.424E+15	2.040E+10
63Eu155	β	4.753y	2.26E+04	4.077E+02	1.828E+02	2.494E+00	3.283E+15	4.478E+13
71Lu177m	β/IT 注3)	160.44d	2.26E+03	※		1.175E+02	0	1.398E+16
71Lu177	β	6.647d	4.82E+03	※		1.087E+00	0	4.461E+15
難溶性核種								
50Sn117m	IT	14.00d	13.56	0	4.623E-49	3.370E-37	1.363E-33	9.934E-22
気体核種	放射性気体核種の発生重量は中性子照射物回目以降は無視できる							

σp(0.353meV):JENDL-5(0.0253eV)データから計算　　※:JAEAデータ非記載

単一崩壊の100%は非記載、分岐比は%　注1) 55Cs134:β:99.9997/ec:3E-6

注2) 63Eu154:β:99.982/ε:0.018　注3) 71Lu177m:β:78.6/IT:21.4

【０１０２】

可溶物槽で生じる放射性の可溶性核種で、放射能が０．１Ｂｑ以下となるのは４８Ｃｄ１１６、５５Ｃｓ１３４／１３５、５８Ｃｅ１４１／１４２、６０Ｎｄ１４４の６種で、対策により放射能が低下した核種は、３８Ｓｒ９０、３９Ｙ９０、４８Ｃｄ１１６、５５Ｃｓ１３４／１３５、５８Ｃｅ１４１／１４２、６０Ｎｄ１４４、６２Ｓｍ１５１、６３Ｅｕ１５４／１５５の１１種であり、放射能が増加した核種は３９Ｙ９１、７１Ｌｕ１７７ｍ／１７７の３種である。

対策で放射能（重量）が減少した１１核種のうち、３８Ｓｒ９０と４８Ｃｄ１１６はσｐが夫々０．０９と０．５４で親核種は無く、両者の半減期は長く中性子照射で一部は核種変換されずに残るが重量は照射回数と共に減少し、未対策放置６年後より減少する。残りの９核種３９Ｙ９０、５５Ｃｓ１３４／１３５、５８Ｃｅ１４１／１４２、６０Ｎｄ１４４、６２Ｓｍ１５１、６３Ｅｕ１５４／１５５はσｐが１より大きく８回の中性子照射で核種変換され重量は０ｇとなるが、これらの核種は９回目の中性子照射で核種変換されて生じた放射性親核種３８Ｓｒ９０（β）、５５Ｃｓ１３４ｍ（ＩＴ）／Ｃｓ１３５ｍ（ＩＴ）、５６Ｂａ１４１（β）、５７Ｌａ１４２（β）、５９Ｐｒ１４４ｍ（ＩＴ）→Ｐｒ１４４（β）、６０Ｎｄ１５１（β）→６１Ｐｍ１５１（β）、６３Ｅｕ１５４ｍ（ＩＴ）／６２Ｓｍ１５５（β）のＩＴ、β崩壊で生じ、それぞれ未対策放置６年後の重量より少ない。尚、３９Ｙ９０は半減期の長い親核種３８Ｓｒ９０のβ崩壊が消滅するまで残存する。

対策で放射能（重量）が増加した３核種３９Ｙ９１、７１Ｌｕ１７７ｍ／１７７は、σｐが１より大きく８回目の中性子照射で核種変換され重量は０ｇとなるが、この３種は９

回目の中性子照射で核種変換された放射性の親核種３８Ｓｒ９１（β）／３９Ｙ９１ｍ（ＩＴ）、７０Ｙｂ１７７ｍ（ＩＴ）→Ｙｂ１７７（β）のＩＴ、β崩壊で生じ、それぞれ未対策放置６年後の重量より多い。なお、７１Ｌｕ１７７ｍ／１７７は、７０Ｙｂ１７２／１７３の中性子捕獲で生じた親核種７１Ｙｂ１７７が７１Ｙｂ１７７ｍ（ＩＴ）→Ｙｂ１７７（β）→７１Ｌｕ１７７ｍ（β／ＩＴ）→７１Ｌｕ１７７（β）→７２Ｈｆ１７７（安定）と壊変して新しく発生した核種である。

可溶物槽で生じる放射性の難溶性核種は５０Ｓｎ１１７ｍで、親核種はσｐが０の４８Ｃｄ１１７ｍ（β）であり、壊変で生じた娘核種の重量は増加しているが、０．１Ｂｑ到達時間は３．４年である。５０Ｓｎ１１７ｍは難溶物槽では発生しない。

可溶物槽で生じる放射性の気体核種は３５Ｂｒ８３と３６Ｋｒ８３ｍ、５３Ｉ１３２／１３３、５４Ｘｅ１３３ｍ／１３３の６種である。これらの核種は以下の３通りの壊変で生じ、３４Ｓｅ８３ｍ（β，７０ｓ）→３５Ｂｒ８３（β，２．３７ｈ）→３６Ｋｒ８３ｍ（ＩＴ，１．８３ｈ）→Ｋｒ８３（安定）、５２Ｔｅ１３２（β，３．２ｄ）→５３Ｉ１３２（β，２．３ｈ）→５４Ｘｅ１３２（安定）、５２Ｔｅ１３３ｍ（β／ＩＴ，５５．４ｍ）→Ｔｅ１３３（β，１２．５ｍ）→５３Ｉ１３３（β，２０．８ｈ）→５４Ｘｅ１３３ｍ（ＩＴ，２．１９ｄ）→Ｘｅ１３３（β，５．２５ｄ）→５５Ｃｓ１３３（安定）であり、この６種の放射性気体は中性子照射回数と共に漸次減少し、照射７回目以降に生じる放射性気体核種の各々の放射能は０．１Ｂｑ以下で無視できる。

【０１０３】

可溶物槽の安定核種で１８０日後の重量と、未対策放置６年後と本発明を適用した場合の重量変化を計算した結果を表２Ｂ－１に示す。未対策放置６年後の安定核種１３８種；重量８１０．４ｋｇ（可溶性核種が７７種；７０８．０ｋｇ、難溶性核種が４４種；１０２．３ｋｇ、気体核種が１７種；０ｇ）は、対策により核種数は４４種（可溶性核種が２６種、難溶性核種が１１種、気体核種が７種）に減少し、重量は１０７２．２ｋｇ（可溶性核種が４３１．９ｋｇ、難溶性核種が６３４．２ｋｇ、気体核種が６．１ｋｇ）に増加する。但し、これらの核種の重量は全て核種単体の重量である。なお、可溶物槽で発生する難溶性核種１１種は難溶物槽では発生しないので未対策放置６年後の重量を記載し、気体の放置６年後の７核種の重量は気体槽に記載した。

非記載の可溶性で安定な５１核種は全てσｐが１以上で、９回目の冷中性子照射により安定核種５１種の合計核種重量は２．１Ｅ－５２ｇとなるが、これは９回目の冷中性子照射後にσｐが０．９１の親核種６６Ｄｙ１６６が中性子を捕獲できずに７．７Ｅ－５０ｇ残存し、Ｄｙ１６６（β，３．４ｄ）→６７Ｈｏ１６６ｍ（β，１２００ｙ）→６８Ｅｒ１６６（安定）と壊変し、６年後に６８Ｅｒ１６６が２．１Ｅ－５２ｇ残存することによる。安定核種の中性子照射で核種変換されて放射性核種が生じた場合でも、その崩壊過程で生じた娘核種で半減期の長い放射性核種があっても、該核種のσｐが１より大きければ、次の中性子照射で、半減期が短い放射性核種あるいは安定な核種に核種変換される。

【０１０４】

【表２Ｂ－１】

表2B-1　可溶物槽の安定核種重量

	安定核種	核種数	重量[g]		
			180日後	放置6年後	対策6年後
可溶物槽	可溶性固体	26	4.134E+05	4.200E+05	4.319E+05
	難溶性固体	11	0	1.023E+05	6.342E+05
	気体	7	0	0	6.057E+03
	合計	44	4.134E+05	5.223E+05	1.072E+06
非記載	可溶性固体	51	4.483E+05	2.881E+05	2.145E-52
	難溶性固体	33	0	0	0
	気体	10	0	0	0
	合計	94	4.483E+05	2.881E+05	2.145E-52
合計	可溶性固体	77	8.617E+05	7.080E+05	4.319E+05
	難溶性固体	44	0	1.023E+05	6.342E+05
	気体	17	0	0	6.057E+03
	合計	138	8.617E+05	8.104E+05	1.072E+06

可溶物槽で発生する気体の放置6年後の重量は気体槽に含めた。
可溶物槽で発生する難溶性安定固体の放置6年後の重量を含めた。
難溶物槽のみで発生する可溶性安定固体の放置6年後の重量は除く

【０１０５】

可溶物槽の安定核種で、対策後の重量が１Ｅ－４０ｇ以上の可溶性核種２６種と、中性

子照射で発生した難溶性核種１１種と気体核種７種について、中性子捕獲確率σｐ、核燃料取出し１８０日後と６年後の未対策放置後と対策後の核種重量〔単位ｇ〕を表２Ｂ－２に示す。重量は核種単体の値を示す。

可溶性の安定核種でσｐ（値を［］内に示す）が１以下の種は３種で、３０Ｚｎ７０［０．９３］と３４Ｓｅ８２［０．４］は中性子照射で核種変換されずに一部が残存し、前者は照射２回目以降に親核種が発生せず、後者は親核種が無いため、両者は９回の中性子照射で一部が中性子捕獲で核種変換され、その重量は漸次減少し未対策放置６年後より減少する。３８Ｓｒ８８［０．０５］は中性子照射で核種変換されずに残存する重量が多く、照射１、２回目で３７Ｒｂ８６／８７の核種変換で生じた親核種３７Ｒｂ８８（β，１７．８ｍ）のβ崩壊で生じた重量が加わり、その後も中性子照射で核種変換されず残り、その重量は漸次減少するが未対策放置６年後より多くなる。

残りの可溶性安定核種２３種は全てσｐが１以上で８回目の中性子照射で核種変換され重量は０ｇとなり、９回目の照射でσｐが０か１以下の放射性の親核種に核種変換され、その後の壊変で生じた安定な可溶性核種の重量は未対策放置６年後と比べ大小が生じる。

対策で重量が減少するのは３１Ｇａ７１、５５Ｃｓ１３３、５６Ｂａ１３４～１３８、５８Ｃｅ１４０、５９Ｐｒ１４１、６０Ｎｄ１４２／１４５、６２Ｓｍ１５２／１５４、６３Ｅｕ１５１、６４Ｇｄ１５４／１５５の１６種で、重量が増加するのは６４Ｇｄ１５８、６６Ｄｙ１６１／１６２、６７Ｈｏ１６５、６８Ｅｒ１６７、７０Ｙｂ１７２／１７３の７種で、７０Ｙｂ１７３は中性子照射により、新たに増えた核種である。質量数が１５５以上の安定核種の重量は対策により顕著に多くなる。

可溶物槽で発生する難溶性核種には中性子を照射しないので親核種となる可溶性の放射性核種のσｐの値が影響する。３２Ｇｅ７２の親核種は３０Ｚｎ７２（β）［０．０９５］で、中性子照射で核種変換されずに残った親核種のβ崩壊で生じた３２Ｇｅ７２は未対策放置６年後の重量より減少する。４０Ｚｒ９０の親核種は３８Ｓｒ９０［０．０９］と３９Ｙ９０ｍ［０］で、毎回の中性子照射で核種変換されずに残存し３８Ｓｒ９０（β）→３９Ｙ９０（β）→４０Ｚｒ９０（安定）の壊変で生じた重量に、２回まで中性子照射でＹ８９［１１．１］の核種変換で生じた３９Ｙ９０ｍ（ＩＴ／β）→Ｙ９０（β）→４０Ｚｒ９０の壊変で生じた重量が加わり、未対策放置６年後より増加する。残りの安定な難溶性核種９種は放射性の親核種のσｐが０であり、中性子照射２回目で親核種が０ｇとなる３種、３１Ｇａ７０を親核種とする３２Ｇｅ７０の重量は未対策放置６年後より多くなり、４７Ａｇ１０８／１１０を親核種とする４６Ｐｄ１０８／１１０の重量は未対策放置６年後より少なくなる。他の６種は、中性子照射９回まで親核種が発生する３２Ｇｅ７３と４０Ｚｒ９１／９２は未対策放置６年後の重量より減少し、５０Ｓｎ１１７は未対策放置６年後の重量より増加し、７２Ｈｆ１７７／１７８は中性子照射により新たに発生した核種である。

可溶物槽で発生する安定気体は７種で、２Ｈｅ４は中性子照射で新たに発生した核種で気体槽では発生せず可溶物槽のみで発生する。これは３Ｌｉ６／７の中性子捕獲で核種変換された３Ｌｉ８（β，０．８４ｓ）を親核種として４Ｂｅ８（α，＜１ｆｓ）のα崩壊で２Ｈｅ４（安定）が生じることによる。５４Ｘｅ１３２の親核種５２Ｔｅ１３２（β）［０．９３］は中性子照射により核種変換され重量は減少し、５３Ｉ１３２（β，２．３ｈ）→５４Ｘｅ１３２（安定）のβ崩壊で生じる重量が加わるが未対策放置６年後の重量より減少する。残り５種３５Ｂｒ７９／８１、３６Ｋｒ８３／８６、５４Ｘｅ１３４は、親核種のσｐは０で、夫々の親核種３４Ｓｅ７９ｍ（ＩＴ／β）、Ｓｅ８１ｍ（ＩＴ／β）、Ｓｅ８３ｍ（β）、３７Ｒｂ８６ｍ（ＩＴ）→Ｒｂ８６（β／ｅｃ）、５５Ｃｓ１３４ｍ（ＩＴ）→Ｃｓ１３４（β／ε）の壊変で生じ、３５Ｂｒ８１を除く４核種は未対策放置６年後の重量より減少する。

【０１０６】

【表２Ｂ－２】

表2B-2 可溶物槽の安定核種重量の変化

安定核種	σp	重量(g)			安定核種	σp	重量(g)		
		180日後	放置6年後	対策6年後			180日後	放置6年後	対策6年後
可溶性核種σp(0.0253eV)									
30Zn70	0.95	1.056E-06	1.056E-06	9.020E-14	60Nd145	208.9	4.600E+04	4.600E+04	4.478E-08
31Ga71	42.3	7.412E-02	7.412E-02	1.217E-12	62Sm152	1245.8	7.419E+03	7.419E+03	1.180E-07
34Se82	0.404	2.259E+03	2.259E+03	2.270E+01	62Sm154	5.04	2.089E+03	2.089E+03	1.758E-02
38Sr88	0.051	2.408E+04	2.408E+04	3.271E+04	63Eu151	5.7E+04	5.174E+00	4.349E+01	2.054E-05
55Cs133	21.51	7.717E+04	7.717E+04	6.452E-28	64Gd154	51.05	1.092E+02	5.289E+02	9.764E-04
56Ba134	9.69	4.117E+03	8.249E+03	4.495E-24	64Gd155	3.6E+05	3.490E+01	2.589E+02	2.621E+00
56Ba135	38.0	1.932E+01	1.937E+01	7.173E-26	64Gd158	1.30	8.861E+02	8.861E+02	2.589E+04
56Ba136	4.44	1.045E+03	1.045E+03	1.376E-21	66Dy161	3496.5	1.912E+01	1.912E+01	7.657E+04
56Ba137	2.84	4.620E+03	1.398E+04	1.241E-17	66Dy162	1124.7	1.603E+01	1.603E+01	4.819E+02
56Ba138	2.61	8.449E+04	8.449E+04	4.429E-16	67Ho165	37.09	5.204E+00	5.204E+00	1.452E+04
58Ce140	3.65	8.420E+04	8.420E+04	8.875E-31	68Er167	366.1	6.579E-02	6.579E-02	1.083E+05
59Pr141	7.31	7.365E+04	7.373E+04	4.107E-12	70Yb172	7.32	4.277E-07	4.277E-07	6.183E+04
60Nd142	11.85	1.061E+03	1.061E+03	1.740E-36	70Yb173	86.1	※		1.105E+05
難溶性核種σp(0.0253eV)									
32Ge70	31.0	0	1.239E-07	1.821E-07	46Pd108	61.1	0	7.783E+03	8.930E-15
32Ge72	8.83	0	4.671E-01	1.499E-31	46Pd110	1.69	0	2.381E+03	1.028E-09
32Ge73	145.1	0	1.315E+00	7.666E-02	50Sn117	7.79	0	3.002E-02	9.743E+03
40Zr90	0.094	0	6.974E+03	3.536E+04	72Hf177	2034.6	※		2.617E+05
40Zr91	11.2	0	4.117E+04	9.823E+03	72Hf178	458.0	※		2.800E+05
40Zr92	1.07	0	4.573E+04	1.763E+04					
気体核種σp(0.0253eV)									
2He4		※		2.920E-32	36Kr86	3.14m	0	1.496E+04	3.058E-01
35Br79	12.2	0	3.087E-03	4.985E-05	54Xe132	0.350	0	6.894E+04	2.227E+03
35Br81	2.56	0	1.409E+03	1.586E+03	54Xe134	0.206	0	9.875E+04	8.472E-03
36Kr83	216.6	0	3.034E+09	2.290E+09					

σp(0.0353meV):JENDL-5(0.0253eV)データから計算　　※:JAEAデータ非記載

【０１０７】

６年以降に安定核種で重量が増加する核種があり、〔〕内に示した半減期の長い放射性親核種の壊変によるもので、可溶性核種では６２Ｓｍ１５４と６４Ｇｄ１５４〔６３Ｅｕ１５４ｍ／１５４〕、Ｇｄ１５５〔Ｅｕ１５５〕、難溶性核種では４０Ｚｒ９０〔３８Ｓｒ９０〕、４０Ｚｒ９１〔３９Ｙ９１〕、５０Ｓｎ１１７〔Ｓｎ１１７ｍ〕、７２Ｈｆ１７７〔７１Ｌｕ１７７ｍ/１７７〕が該当する。これらの親核種の可溶性の放射性核種はガラス固化するが、難溶性で安定核種の親核種となる放射性の可溶性核種ストロンチウム３８Ｓｒ９０とルテチウム７１Ｌｕ１７７は再利用放射性核種として回収する。（後述）

【０１０８】

（難溶物槽中の核種）

表１Ａ、１Ｂを難溶物槽中の核種に適用する場合には、可溶性核種と気体核種のt_0日後の重量（Ｆ列）は０ｇであり、中性子照射後に難溶性核種の放射性崩壊で発生した可溶性核種と気体核種には中性子を照射しないので、これらの核種の該当する行のＧ、Ｍ、・・、ＡＤ、・・・のセルには⇒を表示し、中性子照射後の累積重量は照射直前の合計重量となる。貯蔵時間t_jはt_1’、t_2’、・・・とする。同一質量数で可溶性核種と気体核種だけの崩壊系列の場合は初期重量が０ｇなので、この質量数の核種は表から除外する（３４Ｓｅ７８～３９Ｙ９０と５４Ｘｅ１２７以降）。計算対象の核種は４Ｂｅ９から５４Ｘｅ１２８までで、難溶性核種５１Ｓｂ１２８のβ崩壊で生じた可溶性核種５２Ｔｅ１２８が、２β崩壊で安定な気体核種５４Ｘｅ１２８を生じることによる。難溶物槽で発生した気体核種及び可溶性核種の重量は難溶物槽の表中に示す。

【０１０９】

難溶物槽の難溶性核種にのみＮｊ回の中性子を照射し、中性子照射後、難溶物槽に規定濃度の硝酸溶液（本実施例では４モル／Ｌ）を加えt_j時間貯蔵後、発生した可溶性核種を濾過装置などで可溶物槽Ｂに回収し、次の中性子照射後に可溶物槽Ｂの可溶性核種と硝酸溶液を難溶物槽に還流させるのをＮｊ回繰り返す。

本実施例では照射回数Ｎｊを難溶物槽のガラス固化体重量を最小にする１３回とし、貯蔵期間t_jは、t_1～t_{12}は３０日、t_{13}は１９０日（核燃料取出しから通算で２年に相当）とし、t_s’は４年とする。なお、発生した可溶性核種を溶かすのに必要な濃度４モル／Ｌの硝酸溶液は中性子照射毎に５Ｌ、３０Ｌ、７０Ｌ、７５Ｌ、・・・と増加し、最大で約１００Ｌである。

表１Ａ、表１Ｂを元に難溶物槽の難溶性核種にのみ中性子を前述の条件で照射した時、壊変で変化した核種重量の変化をＥｘｃｅｌワークシートで計算した。難溶物槽の難溶性固体は１３３種（放射性核種が８６種、安定核種が４７種）、核燃料取出し１８０日後の

重量は難溶性核種が７６３．４ｋｇ（放射性核種が２３５．９ｋｇ、安定核種が５２７．４ｋｇ）である。これらの重量は全て核種単体の重量である。

【０１１０】

難溶物槽の難溶性核種について、使用済み核燃料取出し１８０日後の重量と、未対策で６年間放置した場合と、本発明を適用（可溶性核種にのみ中性子を前述の条件で照射）した場合の６年後の重量〔単位ｇ〕と放射能〔単位Ｂｑ〕の計算結果を表３Ａ－１に示す。

未対策放置６年後の難溶性の放射性固体核種数９０種で重量２３４．０ｋｇ（可溶物槽で発生しない可溶性で放射性核種４種の未対策６年後の重量６．１６ｋｇを含む）は、対策により核種数１２種で重量３１．３ｋｇ（可溶性核種が４種で５８．３ｇ、難溶性核種が８種で３１．２ｋｇ、気体核種は無し）に減少する。これらの重量は全て核種単体の重量であり、酸化物、硝酸化物等の化合物の重量ではない。対策により放射能は可用性核種が２．３６ＴＢｑ（Ｔはテラ）、難溶性核種が０．１５ＴＢｑに減少する。

非記載の放射性難溶性核種は７８種で、そのうち半減期が５０日以上の長い難溶性核種１５種は全てσｐが１以上であり、４０Ｚｒ９３／９５、４１Ｎｂ９２、４２Ｍｏ１００、４３Ｔｃ９８、４４Ｒｕ１０６、４５Ｒｈ１０２、５０Ｓｎ１１９ｍ／１２１ｍ／１２３の１０種は親核種が無く、４１Ｎｂ９３ｍ／９５は親核種が難溶性の放射性核種４０Ｚｒ９３／Ｚｒ９５でσｐが１より大きいので、これら１２核種は１回目の中性子照射で核種変換され０ｇとなる。親核種のσｐが０であるが半減期の長い娘核種４１Ｎｂ９４、４３Ｔｃ９９、４９Ｉｎ１１５の３種は、２回目の中性子照射により核種変換で親核種は発生せず、娘核種の重量は０ｇとなる。

半減期の短い４５Ｒｈ１０６と５０Ｓｎ１２１の２種は、これらの親核種が半減期の長い４４Ｒｕ１０６（β，３７１．８ｄ）と５０Ｓｎ１２１ｍ（ＩＴ／β，４３．９ｙ）であるが、σｐは夫々１．１２と８．５２で１回目の中性子照射で親核種は核種変換され０ｇとなり、その娘核種の重量は０ｇとなる。

残りの６１種は半減期が短く６年後には重量は０ｇとなり、核燃料取り出し１８０日後に存在した１６８．８ｋｇの難溶性の放射性核種は対策により０ｇとなる。

難溶物槽で放射性の難溶物を親核種として発生するする気体は安定な５３Ｉ１２７だけで、放射性気体の発生は無い。同一質量数Ｚの崩壊系列で難溶性核種の壊変で生じる娘核種は可溶性核種だけで気体核種は直接発生しない。親核種が難溶性核種で気体核種が発生する崩壊系列は２種類あり、３２Ｇｅ→３３Ａｓ→３４Ｓｅ→３５Ｂｒ→３６Ｋｒと、４９Ｉｎ→５０Ｓｎ→５１Ｓｂ→５２Ｔｅ→５３Ｉ→５４Ｘｅで、放射性核種には核異性体を含む場合があり、質量数は前者が７９～８８で、後者は１２７～１３４である。前者はＧｅ７９～８８の半減期が３０秒以下で核燃料取り出し１８０日後には存在せず、気体の臭素、クリプトンは発生しない。後者では中性子照射により５１Ｓｎ１２７ｍと５２Ｓｂ１２８が発生するが１２７系列では壊変が５３Ｉ１２７（安定）で終わり、１２８系列では５２Ｔｅ１２８（２β，７．７Ｅ＋２４ｙ）→５４Ｘｅ１２８（安定）で壊変が終わり放射性の気体は発生しない。また質量数が１２９以上は難溶性核種の発生が無く、この崩壊系列で気体核種が発生するのは質量数が１２７と１２８の場合しかない。

【０１１１】

【表３Ａ－１】

表3A−1　難溶物槽の放射性核種重量と放射能

	放射性核種	核種数	重量[g]			放射能[Bq]	
			180日後	放置6年後	対策6年後	放置6年後	対策6年後
難溶物槽	可溶性固体	4	0	6.161E+03	5.828E+01	1.364E+15	2.357E+12
	難溶性固体	8	6.708E+04	6.538E+04	3.122E+04	3.681E+15	1.476E+11
	気体	0	0	0	0	0	0
	合計	12	6.708E+04	7.154E+04	3.128E+04	5.045E+15	2.505E+12
非記載	可溶性固体	160	0	0	0	0	0
	難溶性固体	78	1.688E+05	1.625E+05	0	2.985E+16	0
	気体	30	0	0	0	0	0
	合計	268	1.688E+05	1.625E+05	0	2.985E+16	2.046E−45
	可溶性固体	164	0	6.161E+03	5.828E+01	1.364E+15	2.357E+12
	難溶性固体	86	2.359E+05	2.279E+05	3.122E+04	3.353E+16	1.476E+11
	気体	30	0	0	0	0	0
合計	合計	280	2.359E+05	2.340E+05	3.128E+04	3.489E+16	2.505E+12

【０１１２】

難溶物槽の放射性核種で対策後に重量が１Ｅ－４０ｇ以上の核種について、未対策で６年間放置した場合と本発明を適用した場合の重量と放射能の変化について計算した結果を表３Ａ－２に示す。表では難溶物槽で生じた放射性核種の崩壊形式と半減期、中性子捕獲確率σｐ（０．３５３ｍｅＶ）、核種重量〔単位ｇ〕と放射能〔単位Ｂｑ〕を示す。なお、重量は核種単体の重量であり、酸化物、硝酸化物等の化合物の重量ではない。

【０１１３】

【表３Ａ－２】

表3A-2 難溶物槽の放射性核種重量の変化

放射性核種	崩壊形式	τ半減期	σp	重量[g]			放射能[Bq]	
				180日後	放置6年後	対策6年後	放置6年後	対策6年後
難溶性核種								
4Be10	β	1.51E+6y	3.72E-03	8.559E-03	8.559E-03	9.836E-03	7.499E+06	8.618E+06
40Zr96	2β	3.9E+19y	0.183	5.335E+04	5.335E+04	2.347E+04	1.885E-01	8.292E-02
46Pd107	β	6.5E+6y	83.94	1.193E+04	1.193E+04	7.758E+03	2.270E+11	1.476E+11
50Sn126	β	2.3E+5y	0.62	1.414E+03	1.282E-02	4.872E-03	6.456E+11	2.224E+06
51Sb124	β	60.2d	120.8	1.538E-01	2.397E-16	3.150E-17	8.687E+03	2.036E-02
51Sb125	β 注1)	2.75856y	9.20	3.825E+02	9.588E+01	3.007E-13	3.678E+15	1.154E+01
51Sb126m	β/IT 注2)	19.15m		5.149E-07	2.031E-12	7.718E-13	1.484E+12	2.224E+06
51Sb126	β	12.35d	18.3	8.596E-05	6.602E-10	2.509E-10	2.097E+11	7.785E+05
可溶性核種								
52Te125m	IT	57.4d	9.24	0	2.027E+00	1.424E-10	1.364E+15	9.585E+04
52Te127m	IT/β 注3)	106.1d	20.9	0	3.335E-05	3.336E-03	1.186E+10	1.186E+12
52Te127	β	9.35h	5.62	0	1.168E-07	1.200E-05	1.140E+10	1.171E+12
52Te128	2β	7.7E+24y	1.26	0	6.159E+03	5.828E+01	8.267E-08	7.823E-10
気体核種	放射性気体は発生せず							

σp(0.353meV):JENDL-5(0.0253eV)データから計算

単一崩壊の100%は非記載、分岐比は%　　注1）51Sb125;β→Te125;65/125m:35

注2）52Te127m;β:86/IT;14　注3）52Te127m;IT:97.6/β:2.4

【０１１４】

難溶物槽で生じる放射性の難溶性核種で、対策６年後に放射能が０．１Ｂｑ以下となるのは４０Ｚｒ９６と５１Ｓｂ１２４の２種で、放射能が０．１Ｂｑ以上となるのは４Ｂｅ１０、４６Ｐｄ１０７、５０Ｓｎ１２６、５１Ｓｂ１２５／１２６ｍ／１２６の６種である。対策で放射能が低下した核種は４０Ｚｒ９６、４６Ｐｄ１０７、５０Ｓｎ１２６、５１Ｓｂ１２４／１２５／１２６ｍ／１２６の７種で、放射能が増加した核種は４Ｂｅ１０である。

対策で放射能（重量）が減少した７核種では、４０Ｚｒ９６と５０Ｓｎ１２６はσｐが０．１８３と０．６２で親核種は無く、両者の半減期は長く中性子照射で一部は核種変換されずに残り重量は照射回数と共に減少する。４６Ｐｄ１０７、５１Ｓｂ１２４とＳｂ１２５はσｐが１より大きく１３回の中性子照射で核種変換され重量は０ｇとなり、１３回目の中性子照射で核種変換された放射性親核種４４Ｒｕ１０７（β）、５１Ｓｂ１２４ｍ（ＩＴ／β）と５０Ｓｎ１２５ｍ（β）の壊変で生じるが、夫々放置６年後の重量より少ない。また、５１Ｓｂ１２６ｍ／１２６は親核種５１Ｓｎ１２６（β）のσｐが０．６２で半減期が長いので、１３回の中性子照射で核種変換されずに残存し、親核種のβ崩壊が消滅するまで残存するが、それぞれ放置６年後の重量より少ない。

対策で重量が増加した核種は１種で、σｐが極めて小さい４Ｂｅ１０の親核種は無く、１３回の中性子照射でσｐが０．３３８の安定な４Ｂｅ９が核種変換されて生じた放射性の核種４Ｂｅ１０（β）の重量は放置６年後の重量より微増する。

難溶物槽で６年後に残存する放射性の可溶性核種はテルルだけで、５２Ｔｅ１２５ｍとＴｅ１２８およびＴｅ１２７ｍ／１２７の４種で、前２者の親核種はσｐが０の５０Ｓｎ１２５ｍ（β）と５１Ｓｂ１２８（β）であり、１３回の中性子照射で核種変換された親核種のβ崩壊で生じ、重量は照射回数と共に漸次減少する。６年後には難溶物槽に親核種と分離されるので５２Ｔｅ１２５ｍの０．１Ｂｑ到達時間は３．１年で、安定なＴｅ１２５に壊変する。また、５２Ｔｅ１２８は長寿命の核種で対策により未対策放置６年後の重量より減少する。後２者の親核種はσｐが０の５０Ｓｎ１２７ｍで、１３回の中性子照射でσｐが０．６２で長寿命の５０Ｓｎ１２６の核種変換で生じた５０Ｓｎ１２７ｍ（β，４．１３ｍ）が５１Ｓｂ１２７（β，３．８５ｄ）→５２Ｔｅ１２７ｍ（ＩＴ／β，１０６．１ｄ）→Ｔｅ１２７（β，９．３５ｈ）→５３Ｉ１２７（安定）と壊変し約１９年後に安定な気体Ｉ１２７に変化する。なお、テルルは可溶物槽では発生しない。

難溶物槽で生じる放射性気体核種は無い。

【０１１５】

難溶物槽の安定核種で１８０日後の重量と、未対策で６年間放置した場合と本発明を適用した場合の重量変化を計算した結果を表３Ｂ－１に示す。未対策６年放置後の安定固体核種９５種；重量４４４．０ｋｇ（可溶性核種が３１種；７．５７ｋｇ、難溶性核種が４７種；４３６．４ｋｇ、気体核種が１７種；０ｇ）は、対策により核種数は２４種（可溶性核種が１２種、難溶性核種が１１種、気体核種が１種）に減少し、重量は７３２．１ｋｇ（可溶性核種が７１８．１ｋｇ、難溶性核種が１２．６ｋｇ、気体核種が１．４１ｋｇ）に増加する。但し、これらの核種の重量は全て核種単体の重量である。

非記載の難溶性安定核種３６核種は全てσｐが１以上で、中性子照射により核種変換されて重量は０ｇとなり、核種変換された親核種となる放射性核種が長寿命でもσｐが１より大きい難溶性核種となり、中性子照射により核種変換され０ｇとなる。例を挙げると、安定な４９Ｉｎ１１３は１回目の中性子照射で核種変換され、４９Ｉｎ１１５ｍ（ＩＴ／β，４．５ｈ）→Ｉｎ１１５（β，４．４Ｅ＋１４ｙ）→５０Ｓｎ１１５（安定）と壊変し、σｐが１より大きいＩｎ１１５は２回目の中性子照射でＩｎ１１６ｍに核種変換され０ｇとなり、４９Ｉｎ１１６ｍ（β，５４．３ｍ）→５０Ｓｎ１１６（安定）と壊変しＩｎ１１３は０ｇとなり、安定な５０Ｓｎ１１６の重量が増えるが、該核種もσｐが０．９で中性子照射の照射回数と共に重量は減少する。また、安定な４６Ｐｄ１０８は中性子照射で核種変換され４６Ｐｄ１０８＋１ｎ→Ｐｄ１０９ｍ（ＩＴ，４．７ｍ）→Ｐｄ１０９（β，１３．６ｈ）→４７Ａｇ１０９ｍ（ＩＴ，３９．８ｓ）→Ａｇ１０９（安定）と壊変し、Ｐｄ１０８は０ｇとなり安定な可溶性核種の４７Ａｇ１０９が増加する。

【０１１６】

【表３Ｂ－１】

表3B-1　難溶物槽の安定核種重量の変化

	安定核種	核種数	重量[g]		
			180日後	放置6年後	対策6年後
難溶物槽	可溶性固体	12	0	7.566E+03	7.181E+05
	難溶性固体	11	2.125E+05	2.171E+05	1.258E+04
	気体	1	0	0	1.408E+03
	合計	24	2.125E+05	2.247E+05	7.321E+05
非記載	可溶性固体	19	0	0	0
	難溶性固体	36	3.149E+05	2.193E+05	0
	気体	16	0	0	0
	合計	71	3.149E+05	2.193E+05	0
合計	可溶性固体	31	0	7.566E+03	7.181E+05
	難溶性固体	47	5.274E+05	4.364E+05	1.258E+04
	気体	17	0	0	1.408E+03
	合計	95	5.274E+05	4.440E+05	7.321E+05

難溶物槽で発生する気体の放置6年後の重量は気体槽に含めた。

【０１１７】

対策後の重量が１Ｅ－４０ｇ以上の安定な難溶性核種１１種と、中性子照射で発生した安定な可溶性核種１２種と気体核種１種について中性子捕獲確率σｐ（０．３５３ｍｅＶ）、燃料取出し１８０日後と、未対策放置６年後と対策後の核種重量〔単位ｇ〕を表３Ｂ－２に示す。

難溶性の安定核種は１１種全てが対策６年後の重量は未対策放置６年後の重量より減少している。σｐが１以下の核種は７種（σｐの値を［］内に示す。）で、そのうち４種、４Ｂｅ９［０．３４］、４０Ｚｒ９０［０．０９］、Ｚｒ９４［０．４２］、５０Ｓｎ１２４［０．９４］は親核種が無いので中性子照射回数と共に重量は漸次減少する。他の３種５０Ｓｎ１１４［０．９２］／Ｓｎ１１６［０．９１］／Ｓｎ１２２［０．９８］は、中性子照射で核種変換されずに一部が残存し、中性子照射２回目以降、それぞれの親核種４９Ｉｎ１１４（β／ε）、４９Ｉｎ１１６ｍ（β）、５１Ｓｂ１２２ｍ（ＩＴ）→Ｓｂ１２２（β／ε）は発生しないので娘核種の重量は０ｇとなり、１３回目の中性子照射で一部が中性子捕獲で核種変換され、残された娘核種の重量は減少し未対策放置６年後より少ない。残り４種４２Ｍｏ９７／９８と４４Ｒｕ１０１および５１Ｓｂ１２３はσｐが１以上で、中性子照射１３回で核種変換され０ｇとなるが、親核種４０Ｚｒ９７（β）／９８（β）と４２Ｍｏ１０１（β）および５０Ｓｎ１２３ｍ（β）のβ崩壊で発生する娘核

種の重量は未対策放置６年後より少なくなる。

難溶物槽で発生する１２種の可溶性核種には中性子を照射しない。このうち４種、３１Ｇａ７１、３３Ａｓ７５、３４Ｓｅ７７、４８Ｃｄ１１４は、それぞれの親核種３２Ｇｅ７１ｍ（ＩＴ）→Ｇｅ７１（ｅｃ）、３２Ｇｅ７５ｍ（ＩＴ）、３２Ｇｅ７７ｍ（β／ＩＴ）、４９Ｉｎ１１４ｍ（ＩＴ／ε）のσｐは０で、中性子照射による親核種の発生が３回までで、発生する娘核種の重量は未対策放置６年後より少ない。５２Ｔｅ１２５は１３回の中性子照射で毎回核種変換で生じた親核種５０Ｓｎ１２５ｍ（β）の崩壊で発生するが照射回数と共に重量は漸次減少し、未対策放置６年後より少ない。残りの７種、５Ｂ１０，４７Ａｇ１０７／１０９、４８Ｃｄ１１１、５２Ｔｅ１２２／１２４／１２６は、それぞれの親核種４Ｂｅ１０（β）、４４Ｒｕ１０７（β）、４６Ｐｄ１０９ｍ（ＩＴ）、４６Ｐｄ１１１ｍ（ＩＴ／β）、５１Ｓｂ１２２ｍ（ＩＴ）／１２４ｍ（ＩＴ／β）／１２６ｍ（β／ＩＴ）のσｐが０で、１３回の中性子照射で発生した親核種のβ、ＩＴ崩壊で生じ、これらの娘核種の重量は未対策放置６年後の重量より多くなる。

難溶物槽で発生する安定気体核種は５３Ｉ１２７の１．４１ｋｇだけで、中性子捕獲で核種変換された５０Ｓｎ１２７ｍ（β）を親核種として５１Ｓｂ１２７（β，３．８５ｄ）→５２Ｔｅ１２７ｍ（ＩＴ／β，１０６．１ｄ）→５２Ｔｅ１２７（β，９．３５ｈ）→５３Ｉ１２７（安定）と壊変することによる。放射線量モニターで安全を確認後、放出できる。尚、対策６年以降に難溶物槽に付属の可溶槽Ｂで生じる放射性のテルルが５２Ｔｅ１２７ｍ（ＩＴ／β，１０６．１ｄ）→Ｔｅ１２７（β，９．３５ｈ）→５３Ｉ１２７（安定）と壊変しＩ１２７が２０℃で０．６３ｍＬ（３．３５ｍｇ）発生するので、テルルのガラス固化の際、銀を加えヨウ化銀として固化する。

対策６年以後に安定核種で重量が増加する核種があるが〔〕内に示した半減期の長い放射性親核種の崩壊によるもので、難溶性核種では無く、可溶性核種では５Ｂ１０〔４Ｂｅ１０〕、４７Ａｇ１０７〔４６Ｐｄ１０７〕、５２Ｔｅ１２４〔５１Ｓｂ１２４ｍ〕、５２Ｔｅ１２５〔５１Ｓｂ１２５〕が該当する。これらの親核種の難溶性の放射性核種はガラス固化する。但し、σｐが大きい４６Ｐｄ１０７は、後述するが６年後の核種分離で単独で存在するので熱中性子照射により核種変換し、４６Ｐｄ１０９ｍ（ＩＴ，３．１ｓ）→Ｐｄ１０９（β,１３．５９ｈ）→４７Ａｇ１０９ｍ（ＩＴ，３９．８ｓ）→Ａｇ１０９（安定）の壊変で４１．２日以降に安定なＡｇ１０９に変換して回収できる。

【０１１８】

【表３Ｂ－２】

表3B-2 難溶物槽の安定核種重量の変化

安定核種	σp	重量[g]			安定核種	σp	重量[g]		
		180日後	放置6年後	対策6年後			180日後	放置6年後	対策6年後
難溶性核種 σp(0.353meV)									
4Be9	0.338	1.283E-03	1.283E-03	5.971E-06	50Sn114	0.919	4.042E-02	4.061E-02	2.611E-16
40Zr90	0.094	2.388E+03	6.974E+03	6.618E+02	50Sn116	0.907	1.341E+02	1.341E+02	5.569E-11
40Zr94	0.419	5.145E+04	5.145E+04	2.685E+02	50Sn122	0.978	3.338E+02	3.338E+02	1.565E-11
42Mo97	20.3	5.268E+04	5.268E+04	4.263E+03	50Sn124	0.941	5.576E+02	5.576E+02	5.871E-14
42Mo98	1.07	5.409E+04	5.409E+04	9.934E+02	51Sb123	29.2	3.213E+02	3.229E+02	6.958E-10
44Ru101	42.3	5.057E+04	5.057E+04	6.390E+03					
可溶性核種 σp(0.353meV)									
5B10	α16.84k	0	2.357E-06	2.477E-06	48Cd111	53.3	0	1.241E+03	2.381E+03
31Ga71	42.3	0	7.412E-02	1.088E-07	48Cd114	2.50	0	7.465E+02	1.614E-11
33As75	40.3	0	1.310E+01	5.455E+00	52Te122	28.1	0	1.483E+01	2.572E+02
34Se77	390.8	0	7.242E+01	3.241E+01	52Te124	47.1	0	1.052E+01	9.397E+02
47Ag107	288.0	0	9.733E-03	9.807E-03	52Te125	8.91	0	5.618E+02	1.143E+01
47Ag109	6821	0	4.879E+03	7.125E+05	52Te126	3.02	0	2.606E+01	1.942E+03
気体核種 σp(0.0253eV)									
53I127	5.16	0	2.625E+03	1.408E+03					

σp(0.353meV)：JENDL-5(0.0253eV)データから計算
α;(n,α)反応で5B10の(n,γ)反応は18.56

【０１１９】

（気体槽中の核種）

表１Ａ、表１Ｂを気体槽中の核種に適用する場合には、可溶性核種と難溶性核種のｔ$_0$日後の重量（Ｆ列）は０ｇであり、気体核種の放射性崩壊で発生した固体核種と気体核種には中性子を照射しないので、これらの核種に該当する行のＧ列とＭ列のセルには⇒を表示し、中性子照射後の累積重量は照射直前の重量となる。気体槽では可溶物槽及び難溶物

槽で発生した気体核種を冷中性子照射直前に回収する。核燃料取出しから一定期間（t_0時間）放置後に存在する気体槽から液化分離したヨウ化物槽中のヨウ素のみに１回だけ熱中性子を照射するのでσｐが１以上のヨウ素核種に該当するＧ列セルには＋ｎが表示され、核種変換で質量数が増えたσｐが無記載のヨウ素核種に該当するＧ列セルには核種変換前の質量数の核種と捕獲中性子数が＜ ＞内に表示される。尚、ヨウ素には熱中性子を照射するので気体核種のσｐは中性子エネルギー０．０２５３ｅＶの値を用いる。

σｐが１以上のヨウ素５３Ｉ１２７（安定）、Ｉ１２８（β／ＩＴ，２５ｍ）、Ｉ１２９（β，１．５７Ｅ＋７ｙ）は、中性子照射で夫々中性子３～１個を捕獲してＩ１３０ｍ（ＩＴ／β，８．８４ｍ）となり、Ｉ１３０（β，１２．４ｈ）とＩ１３１（β，８．０３ｄ）は夫々中性子２、１個を捕獲してＩ１３２（β，２．３０ｈ）に核種変換される。同一質量数で可溶性核種と難溶性核種だけの場合は、初期重量が０ｇなので、この質量数の核種は表から除外する（２９Ｃｕ６６～３４Ｓｅ７８、３７Ｒｂ８７～５２Ｔｅ１２６と５４Ｘｅ１３７以降の核種）。計算対象の核種は１Ｈ３から５４Ｘｅ１３７までである。

【０１２０】

気体槽では、使用済み核燃料取出しから一定期間（t_0時間）放置後、可溶物槽と難溶物槽から回収した気体核種を含め、気体槽を加熱し臭素、ヨウ素を昇華・気化させ、冷却装置で気体槽上部のヨウ素受け皿を臭素の沸点以上の温度に冷却しヨウ素のみを液化して取出し、ヨウ化物槽に移送しヨウ素だけに熱中性子を照射し核種変換させる。なお、本実施例では、t_0は１８０日である。

熱中性子最終回照射後の放置期間t_sは使用済み核燃料取り出しから１８０日を含め６年である。

表１Ａ、表１Ｂを元に気体槽のヨウ素のみに中性子を前述の条件で照射した後、壊変で変化した核種重量の変化をＥｘｃｅｌワークシートで計算した。可溶物槽と難溶物槽で発生した気体核種の重量は、気体槽に含めていない。

気体槽には４７核種（放射性核種が３０種、安定核種が１７種）、核燃料取出し１８０日後の重量は３８５．４ｋｇ（放射性核種が１５８．１ｋｇ、安定核種が２２７．３ｋｇ）である。これらの重量は全て気体核種のみの重量である。

【０１２１】

気体槽の放射性核種について、使用済み核燃料取出し１８０日後の重量と、未対策で６年間放置した場合と、本発明を適用（ヨウ素のみ中性子を前述の条件で照射）した場合の６年後の重量〔単位ｇ〕と放射能〔単位Ｂｑ〕の変化を計算した結果を表４Ａ－１に示す。未対策放置６年後の放射性気体核種３２種で重量１５７．５ｋｇは、対策により核種数８種で重量１４６．０ｋｇに減少する。これらの重量は全て核種単体の重量である。対策により放射能は変わらず２２．１ＰＢｑ（Ｐはペタ）である。

非記載の放射性気体核種は２４種、未対策放置６年後に１１４．８ｋｇあるが、対策により核種の重量は６．５６×10^{-55}ｇとなる。これは、５４Ｘｅ１３１ｍの０．６９５ｍｇがＸｅ１３１ｍ（ＩＴ，１１．８ｄ）→Ｘｅ１３１（安定）と壊変し、６年後に５４Ｘｅ１３１ｍが６．５６Ｅ－５５ｇ残存することによる。

放射性ヨウ素８種では、使用済み核燃料取り出し１８０日後、重量が１Ｅ－４０ｇ以上存在する核種は５３Ｉ１２９／１３１／１３２の３種で、５３Ｉ１２９（β，１５７０万年）[σｐ２４．２]の１１．４８ｋｇは、取り出し１８０日後、１回目の熱中性子照射により核種変換され重量は０ｇとなり、核種変換で生じた５３Ｉ１３０ｍ（ＩＴ／β，８．８４ｍ）は中性子照射の３７．５日後にＩ１３０（β，１２．４ｈ）→５４Ｘｅ１３０（安定）と壊変し、安定な５４Ｘｅ１３０の１１．４８ｋｇに核種変換される。Ｉ１３１（β，８．０３ｄ）[σｐ６３．２]の９３μｇは中性子照射で核種変換され重量は０ｇとなり、５３Ｉ１３２（β，２．３ｈ）[σｐ０]の０．１ｆｇはＩ１３１の中性子捕獲で生じた９３μｇが加わり、照射の４．６日後に５４Ｘｅ１３２（安定）となる。これ以外の５種、５３Ｉ１２８／１３０／１３０ｍ／１３３／１３４は半減期が短く１８０日以内に消滅する。

残りの上記以外の放射性気体１６種は半減期が１０日以下の短い核種で、中性子を照射

しないので放射線崩壊により安定な核種に壊変され、全１６核種の重量は０ｇとなる。

ヨウ素を除く気体核種に中性子を照射しない理由は、多量に存在する５４Ｘｅ１３６（２β，２．２Ｅ＋２１ｙ）[σｐ０．１]の熱中性子照射により１０％が核種変換され、５４Ｘｅ１３７（β，３．８ｍ）→５５Ｃｓ１３７（β，３０．１ｙ）→５６Ｂａ１３７ｍ（ＩＴ，２．６ｍ）→５６Ｂａ１３７（安定）の壊変が生じ、この壊変過程で長寿命の放射性核種５５Ｃｓ１３７が多量に発生することによる。

可溶物槽から回収した放射性気体核種は３５Ｂｒ８３、３６Ｋｒ８３ｍ、５３Ｉ１３２／１３２ｍ／１３３、５４Ｘｅ１３３ｍ／１３３の７種で、これらの核種は中性子照射により核種変換された放射性の可溶性核種の次の３通りの壊変で生じ、３４Ｓｅ８３ｍ（β）→３５Ｂｒ８３（β）→３６Ｋｒ８３ｍ（ＩＴ）→３６Ｋｒ８３（安定）、５２Ｔｅ１３２（β）→５３Ｉ１３２ｍ（ＩＴ／β）→Ｉ１３２（β）→５４Ｘｅ１３２（安定）、５２Ｔｅ１３３ｍ（ＩＴ／β）→５２Ｔｅ１３３（β）→５３Ｉ１３３（β）→５４Ｘｅ１３３ｍ（ＩＴ）→５４Ｘｅ１３３（β）→５５Ｃｓ１３３（安定）であり、発生する放射性気体核種の重量は中性子照射回数と共に漸次減少し、対策２年以内には０．１Ｂｑ以下となる。

難溶物槽では、放射性気体核種は発生しない。

難溶物槽から回収された放射性気体核種は無いが、原子力発電の運転状況、照射時間などで使用済み核燃料のＦＰの発生状況が異なる場合あるいはＭＯＸ燃料等を使用した場合に放射性気体が発生するときは気体槽に回収し実施例で示した処置をとる。

【０１２２】

【表４Ａ－１】

表4A-1 気体槽の放射性核種重量と放射能

	放射性核種	核種数	重量[g]			放射能[Bq]	
			180日後	放置6年後	対策6年後	放置6年後	対策6年後
気体槽	可溶性固体	0	0	0	0	0	0
	難溶性固体	0	0	0	0	0	0
	気体	8	1.466E+05	1.460E+05	1.460E+05	2.206E+16	2.206E+16
	合計	8	1.466E+05	1.460E+05	1.460E+05	2.206E+16	2.206E+16
非記載	可溶性固体	164	0	0	0	0	0
	難溶性固体	86	0	0	0	0	0
	気体	24	1.148E+04	1.148E+04	6.558E-55	7.500E+10	2.042E-39
	合計	274	1.148E+04	1.148E+04	6.558E-55	9.573E+17	2.042E-39
合計	可溶性固体	164	0	0	0	0	0
	難溶性固体	86	0	0	0	0	0
	気体	32	1.581E+05	1.575E+05	1.460E+05	2.206E+16	2.206E+16
	合計	282	1.581E+05	7.644E+05	1.460E+05	9.794E+17	2.206E+16
可溶物槽	放射性気体	7	0	0	0	0	0
難溶物槽	放射性気体	0	0	0	0	0	0

【０１２３】

気体槽の放射性核種で対策後に重量が１Ｅ－４０ｇ以上の核種について、未対策で６年間放置した場合と本発明を適用した場合の重量と放射能の変化について計算した結果を表４Ａ－２に示す。表では難溶物槽で生じた放射性核種の崩壊形式と半減期、中性子捕獲確率σｐ（０．０２５３ｅＶ）、核種重量〔単位ｇ〕と放射能〔単位Ｂｑ〕を示す。なお、重量は核種単体の重量である。

【０１２４】

【表４Ａ－２】

表4A-2 気体槽で生じる放射性核種重量の変化

放射性核種	崩壊形式	τ 半減期	σp	重量[g]			放射能[Bq]	
				180日後	放置6年後	対策6年後	放置6年後	対策6年後
気体核種								
1H3	β	12.32y		3.396E+00	2.493E+00	2.491E+00	8.924E+14	8.918E+14
6C14	β	5700Y	1.081E-06	1.730E-03	1.729E-03	1.729E-03	2.867E+08	2.867E+08
36Kr81	ec	229000y	9.75	2.195E-04	2.195E-04	2.195E-04	1.565E+05	1.565E+05
36Kr85	β	10.739y	1.75	2.084E+03	1.460E+03	1.460E+03	2.117E+16	2.117E+16
54Xe127	ec	36.346d	3.84	7.868E-07	1.823E-23	1.771E-23	1.907E-08	1.263E-14
54Xe129m	IT	8.88d	1.44	1.502E-09	1.303E-77	6.73E-32	5.491E-62	2.837E-16
54Xe131m	IT	11.84d	0.877	6.954E-04	7.754E-55	1.381E-20	2.414E-39	4.301E-05
54Xe136	2β：?%	2.165E+21y	0.100	1.445E+05	1.445E+05	1.445E+05	6.494E-03	6.484E-03
可溶性核種	気体槽では放射性の可溶性核種は発生せず							
難溶性核種	気体槽では放射性の難溶性核種は発生せず							

σp: JENDL-5(0.0253eV)データ

単一崩壊の100%は非記載，分岐比は%

可溶物槽で発生する放射性気体核種は中性子照射6回目以降は無視できる。

難溶物槽では放射性気体核種は発生しない。

【０１２５】

気体槽で生じる放射性の気体８核種は対策６年後の重量と放射能は未対策放置６年後とほぼ同等である。対策６年後に放射能が０．１Ｂｑ以下の核種は５４Ｘｅ１２７／１２９ｍ／１３１ｍ／１３６の４種で、０．１Ｂｑ以上の核種は１Ｈ３、６Ｃ１４、３６Ｋｒ８１／８５の４種である。なお、６Ｃ１４は酸化物の気体として存在する。σｐの小さい５４Ｘｅ１３６（２β，２．１６５Ｅ＋２１ｙ）は対策の効果はないが、その放射能は６．５ｍＢｑと小さく、天然存在比８．８６％の核種である。

気体槽で発生する放射性固体核種は無い。

【０１２６】

気体槽の安定核種について、１８０日後の重量と、未対策で６年間放置した場合と本発明を適用した場合の重量変化を計算した結果を表４Ｂ－１に示す。未対策放置６年後の安定気体核種の１７種；重量２２７．３ｋｇは、対策により核種数が１８種；重量２４８．０ｋｇ（可溶性核種が２種；重量１．７４ｋｇ、難溶性核種は無し、気体核種が１６種；２４６．２ｋｇ）に増加している。安定な気体核種の重量に関しては若干増加している。但し、これらの核種の重量は全て核種単体の重量である。

気体槽で発生する安定な可溶性核種は３７Ｒｂ８５の６２３．３ｇと５５Ｃｓ１３３の３８．６ｎｇであるが、気体槽付属の固体槽に可溶物槽から回収した気体５３Ｉ１３３、５４Ｘｅ１３３等の壊変で生じたＣｓ１３３の１．１１５ｋｇが加わる。なお、気体槽では安定な難溶性核種は発生しない。

非記載の安定気体核種１種は２Ｈｅ４で、気体槽では発生せず、可溶物槽で中性子照射１回目のみ発生するので、ここには記載しない。

【０１２７】

【表４Ｂ－１】

表4B-1　気体槽の安定核種重量の変化

	安定核種	核種数	重量(g) 180日後	重量(g) 放置6年後	重量(g) 対策6年後
気体槽	可溶性固体	2	0	8.690E+04	1.738E+03
	難溶性固体	0	0	0	0
	気体	16	2.273E+05	2.273E+05	2.462E+05
	合計	18	2.273E+05	3.142E+05	2.480E+05
非記載	可溶性固体	75	0	0	0
	難溶性固体	47	0	0	0
	気体	1	0	0	0
	合計	123	0	0	0
合計	可溶性固体	77	0	8.690E+04	1.738E+03
	難溶性固体	47	0	0	0
	気体	17	2.273E+05	2.273E+05	2.462E+05
	合計	141	2.273E+05	3.142E+05	2.480E+05
	非記載の気体は2He4				
可溶物槽から	安定気体	7	0	0	6.057E+03
	2He4, 35Br79/81, 36Kr83/86, 54Xe132/134				
難溶物槽から	安定気体	1	0	0	1.408E+03

53I127

・気体槽の可溶性固体(対策6年後)重量623.3gに可溶物槽から回収した気体の崩壊で発生した55Cs133の1.115kgを含む

・気体槽の気体(対策6年後)重量238.8kgに難溶物槽から回収した気体53I127の1.408kgと可溶物槽から回収した6.057kgを含む

【０１２８】

対策後の重量が１Ｅ－４０ｇ以上の安定気体核種１６種と、中性子照射で発生した可溶性安定核種２種について、中性子捕獲確率σｐ（気体は０．０２５３ｅＶ、固体は０．３５３ｍｅＶ）、核燃料取出し１８０日後と、未対策放置６年後と対策後の核種重量〔単位ｇ〕を表４Ｂ－２に示す。

【０１２９】

【表４Ｂ－２】

表4B-2 気体槽の安定核種重量の変化

安定核種	σp *	重量[g]			安定核種	σp *	重量[g]		
		180日後	放置6年後	対策6年後			180日後	放置6年後	対策6年後
気体核種									
2He3	P:52.2k	9.526E-02	9.988E-01	1.000E+00	53I127	5.16	2.613E+03	2.625E+03	7.868E-07
7N14	P:6.77	1.038E-07	1.262E-06	1.262E-06	54Xe128	4.17	1.116E+02	1.116E+02	1.116E+02
35Br79	12.2	1.026E-03	3.087E-03	1.026E-03	54Xe129	17.56	8.309E-01	8.337E-01	8.309E-01
35Br81	2.56	1.409E+03	1.409E+03	1.409E+03	54Xe130	3.8	3.613E+02	3.613E+02	1.445E+04
36Kr80	12.6	5.464E-03	5.464E-03	5.464E-03	54Xe131	78.7	2.949E+04	2.949E+04	2.949E+04
36Kr82	20.6	3.029E+01	3.029E+01	3.029E+01	54Xe132	0.35	6.894E+04	6.894E+04	6.894E+04
36Kr83	216.6	3.034E+03	3.034E+03	3.034E+03	54Xe134	0.21	9.875E+04	9.875E+04	9.875E+04
36Kr84	0.12	7.565E+03	7.565E+03	7.565E+03					
36Kr86	3.1E-03	1.496E+04	1.496E+04	1.496E+04					
可溶性核種 気体槽で発生する可溶性安定核種37Rb85、55Cs133は可溶物槽では発生せず									
37Rb85	4.28	0	9.723E-03	6.233E+02	55Cs133	2131	0	7.717E+04	3.860E-08
難溶性核種 安定難溶性核種は発生せず									

＊JENDL-5データ 気体はσp(0.0253eV)、固体はσp(0.353meV)

P:(n, P)反応、(n,γ)反応のσpは2He3:5.29E-4、7N14:0.263

・対策6年後に可溶物槽から回収した安定気体の重量[g] ・対策6年後に難溶物槽から回収した安定気体の重量[g]

2He4	2.920E-02	36Kr83	2.230E+03	53I127	1.408E+03
35Br79	4.985E-05	54Xe132	2.227E+03		
35Br81	1.598E+03	54Xe134	6.562E-03		

・気体槽付属の固体槽は可溶物槽から回収した気体53I133/54Xe133(m)の崩壊で55Cs133の1.115kgが発生

【０１３０】

ヨウ素にのみ熱中性子を照射した対策により、安定気体核種で未対策放置６年後の重量より増加したのは２種５４Ｘｅ１３０と２Ｈｅ３で、前者はσｐの大きい５３Ｉ１２７（安定）２．６ｋｇと５３Ｉ１２９（β，１．５７Ｅ＋７ｙ）１１．５ｋｇが核種変換されて生じた５３Ｉ１３０ｍ（ＩＴ／β，８．８４ｍ）→Ｉ１３０（β，１２．３６ｈ）→５４Ｘｅ１３０（安定）の壊変で１４．１ｋｇ増加したことにより、後者は放射性核種１Ｈ３のβ崩壊で微増する。

安定な気体核種７Ｎ１４、３５Ｂｒ８１、３６Ｋｒ８０／８２／８３／８４／８６、５４Ｘｅ１２８／１３１／１３２／１３４の１１種は、熱中性子を照射しないので、使用済み核燃料取出しから６年後まで、その合計重量は２２４．３ｋｇで変化しない。

残り３種３５Ｂｒ７９，５３Ｉ１２７、５４Ｘｅ１２９は未対策放置６年後の重量より減少している。３５Ｂｒ７９はσｐが大きい親核種３４Ｓｅ７９（β,３．３Ｅ＋５ｙ）が可溶物槽で冷中性子を照射されて壊変され娘核種３５Ｂｒ７９が生じないことにより、５３Ｉ１２７は中性子照射で核種変換され、親核種が微量な５４Ｘｅ１２７（ｅｃ）となり、５４Ｘｅ１２９は、親核種５３Ｉ１２９が中性子照射で核種変換され、親核種が微量な５４Ｘｅ１２９ｍとなることによる。

６年以後に安定核種で重量の増加する気体核種があるが〔〕内に示した半減期の長い放射性気体親核種の崩壊によるもので、２Ｈｅ３〔１Ｈ３〕、７Ｎ１４〔６Ｃ１４〕、３５Ｂｒ８１〔３６Ｋｒ８１〕が該当する。

気体槽で生じる安定な可溶性核種の重量は、３７Ｒｂ８５の６２３．３ｇと５５Ｃｓ１３３の３８．６ｎｇで、放射性気体のβ崩壊で発生し、親核種は前者が半減期の長い３６Ｋｒ８５（β，１０．７４ｙ）で、後者は５４Ｘｅ１３３（β，５．２５ｄ）であり、これらは気体槽に付属の固体槽に回収され、前者は６年以後も重量が増加する。また、気体槽では安定な難溶性核種は発生しない。なお、可溶物槽から回収した気体５３Ｉ１３３と５４Ｘｅ１３３（ｍ）の崩壊で５５Ｃｓ１３３の１．１１５ｋｇが生じる。

可溶物槽から移送された安定な気体核種７種は、２Ｈｅ４、３５Ｂｒ７９／８１、３６Ｋｒ８３／８６、５４Ｘｅ１３２／１３４で、重量は６．０６ｋｇである。対策６年後以降重量は増加しない。

難溶物槽に付属の可溶物槽Ｂに残存する５２Ｔｅ１２７ｍ／１２７の壊変で発生した安定な気体５３Ｉ１２７は６年後も増加するが、これは難溶物槽で処置した通りである。

【０１３１】

使用済み核燃料取出し１８０日後、可溶物槽の可溶性核種に３０日間隔で冷中性子を９回繰り返し照射し、発生した難溶性核種と気体核種には冷中性子を照射しない。同様に難溶物槽の難溶性核種に３０日間隔で冷中性子照射を１３回繰り返し、発生した可溶性核種と気体核種には冷中性子を照射しない、気体槽では燃料取り出し１８０日後にヨウ素だけに熱中性子を１回だけ照射する対策を講じた場合、各槽で使用済み核燃料取り出し６年後に残存する放射性核種で０．１Ｂｑ到達時間（〔〕内は未対策→対策後を示す）が１０年

以上の核種と、放射能が０．１Ｂｑ以下の長寿命の核種について纏める。
可溶物槽の可溶性核種は、３８Ｓｒ９０〔１７４８年→１７３６年〕、３９Ｙ９０〔１７４８年→１７３６年〕／９１〔１０年→１５年〕、６２Ｓｍ１５１〔４７６６年→２９２６年〕、６３Ｅｕ１５４〔４８６年→３２９年〕／１５５〔２０２年→２３７年〕、７１Ｌｕ１７７ｍ〔※→３１．３年〕／１７７〔※→２０．６年〕の８種と、長寿命の４８Ｃｄ１１６（１．１垓年→５５．８μＢｑ）、５８Ｃｅ１４２（５２．３京年→５．２ｆＢｑ）、６０Ｎｄ１４４（３．３６京年→０．０３ｆＢｑ）の３種であり、難溶性１核種の５０Ｓｎ１１７ｍの０．１Ｂｑ到達時間は３．４年である。
難溶物槽の難溶性核種は、４Ｂｅ１０〔３９５０万年→３９８０万年〕、４６Ｐｄ１０７〔２．７億年→２．６億年〕、５０Ｓｎ１２６〔９７９万年→５６１万年〕、５１Ｓｂ１２５〔１５８年→２５年〕／１２６ｍ〔９７９万年→５６１万年〕／１２６〔９７９万年→５６１万年〕の６種と、長寿命の４０Ｚｒ９６〔３５６７京年→８２．９ｍＢｑ〕であり、可溶性核種は５２Ｔｅ１２７ｍ〔１７年→１９年〕／１２７〔１７年→１９年〕の２種と長寿命の５２Ｔｅ１２８（８３ｎＢｑ→０．７８ｎＢｑ）である。
気体槽の気体核種は、１Ｈ３〔６５９年→６５８年〕、６Ｃ１４〔１８万年→同年〕、３６Ｋｒ８１〔４７１万年→同年〕／８５〔６２８年→同年〕の４種と、長寿命の５４Ｘｅ１３６（６．５ｍＢｑ→同Ｂｑ）であり、放射性の可溶性および難溶性の核種は発生しない。これらの可溶性核種８種と難溶性核種６種、気体核種５種には、本発明の効果は限定的であるが、長寿命の可溶性核種３種と難溶性核種１種は未対策放置６年後の重量より激減しており対策の効果は顕著である。
【０１３２】
本発明では、発生した高レベル放射性廃棄物を硝酸に可溶な可溶物と難溶・不溶な難溶物とに分離貯蔵し、前者では壊変で発生した安定な難溶物には中性子を照射せず、後者では壊変で発生した安定な可溶物には中性子を照射しないので、安定な核種の回収量が槽分離をしない場合より大幅に増加する。また、高レベル放射性廃棄物のガラス固化体にする重量を最小にするため、中性子照射回数とその後の貯蔵期間をパラメータとして核種変換された親核種の放射線崩壊で発生する娘核種を低減し、安定な核種重量を増加させるため、中性子照射間隔を３日～１年と変えて計算した結果、３０日に設定している。中性子照射回数は、可溶物槽では中性子照射回数を増やすと放射性核種５５Ｃｓ１３４／１３５の放射能は照射８回で２．３５μＢｑ／１８．９ｎＢｑ、照射９回では０．２６ｎＢｑ／２．１ｐＢｑに減少し、放射性核種７１Ｌｕ１７７ｍ／１７７の放射能は照射８回で７．９ＰＢｑ／１．７ＰＢｑ、照射９回で３８．２ＰＢｑ／８．１ＰＢｑと増加するが、後者は再利用可能な核種なので実施例では９回に設定した。
難溶物槽ではσｐが０．１８の４０Ｚｒ９６（２β，３．９Ｅ＋１９ｙ）が未対策６年後の重量は５３．４ｋｇあり、１２回の中性子照射で２８．５ｋｇ、放射能も０．１Ｂｑ強に低減するが、１３回の照射では該核種の重量は２３．５ｋｇ、放射能は８３ｍＢｑに低減でき、本実施例では照射回数を１３回とした。
これまでは対策により各槽で６年後に核種重量が１Ｅ－４０ｇ以上残存する核種について記述したが、未対策放置６年後に存在する核種に対して、本発明の実施による効果を評価するため、０．１Ｂｑ到達時間が１０年以上の放射性核種および放射能が０．１Ｂｑ以下であるが長寿命の放射性核種について槽毎に表５－１、５－２に纏めた。
表では、放射性核種、崩壊形式、半減期、中性子捕獲確率、未対策放置６年後と対策により各槽毎に発生した６年後の重量〔単位ｇ〕、未対策放置６年後と対策６年後の放射能〔単位Ｂｑ〕と０．１Ｂｑ到達時間を示す。
【０１３３】
〔表５.１〕～〔表５.２〕

表5-1 高レベル放射性固体核種の放射能低減効果

核種	崩壊形式	半減期	σp	6年後重量[g]				6年後放射能[Bq]		0.1Bq到達時間	
				未対策	可溶物槽	難溶物槽	気体槽	＊対策後	未対策	対策後	未対策	対策後
34Se79	β	3.27E+5y	468.6	3.509E+02	0	0	0	0	1.797E+11	0	1331.2万年	240日
37Rb87	β	4.97E+10y	1.05	1.682E+04	0	0	0	0	5.146E+07	0	1.438兆年	180日
40Zr93	β	1.61E+6y	5.80	4.868E+04	0	0	0	0	4.293E+12	0	7291万年	180日
40Zr95	β (Nb95m:0.09%)	64.032d	8.28	2.122E-07	0	0	0	0	1.685E+08	0	11.4年	180日
41Nb92	ε	3.47E+7y	14.6	2.463E-08	0	0	0	0	1.021E-01	0	97.57万年	180日
41Nb93m	IT	1612y	15.1	1.145E-01	0	0	0	0	1.010E+12	0	7291万年	180日
41Nb94	β	20300y	124.4	5.395E-02	0	0	0	0	3.741E+08	0	64.56万年	210日
41Nb95	β	34.991d	58.0	2.548E-07	0	0	0	0	3.701E+08	0	11.4年	180日
42Mo100	2β	7.3E+18y	1.55	6.088E+04	0	0	0	0	1.105E+00	0	2530京年	180日
43Tc98	β	4200000y	961	3.170E-01	0	0	0	0	1.019E+07	0	1.117億年	180日
43Tc99	β	211100y	191.6	5.269E+04	0	0	0	0	3.335E+13	0	1018万年	210日
44Ru106	β	371.8d	1.12	1.224E+02	0	0	0	0	1.500E+16	0	641年	180日
45Rh102	ε:78/β:22	207.3d	1331	2.057E-05	0	0	0	0	4.697E+08	0	261年	180日
45Rh106	β	30.07s		1.130E-04	0	0	0	0	1.480E+16	0	641年	1800日
47Ag108	ε:2.85/β:97.15	2.382m		3.105E-13	0	0	0	0	8.392E+06	0	12907.5年	180日
47Ag109m	ε:91.3/IT:8.7	39y	133.2	3.314E-04	0	0	0	0	9.268E+07	0	1445.05年	180日
47Ag109m	IT	39.79s		5.193E-11	0	0	0	0	4.985E+09	0	51年	1.40年
47Ag110	β:99.7/ε:0.3	24.56s		1.290E-09	0	0	0	0	1.988E+11	0	38.2年	180.0日
47Ag110m	β:98.67/IT:1.33	249.83d	615.9	8.322E-02	0	0	0	0	1.462E+13	0	38.2年	180日
48Cd109	ec	461.9d	5293.0	5.244E-06	0	0	0	0	5.029E+09	0	51年	180日
48Cd113	β	8.04E+15y	1.48E+05	7.105E+00	0	0	0	0	1.035E-01	0	4081兆年	180日
48Cd113m	β:99.86/IT:0.14	14.1y	17.32	5.369E+00	0	0	0	0	4.458E+13	0	692.1年	180日
49In115	β	4.41E+14y	1466.6	1.117E+02	0	0	0	0	2.914E+01	0	3600兆年	210日
50Sn119m	IT	293.1d	9.23	3.007E-03	0	0	0	0	4.163E+11	0	39.7年	180日
50Sn121	β	27.03h	8.52	1.044E-04	0	0	0	0	3.699E+12	0	2014年	180日
50Sn121m	IT:77.6/β:22.4	43.9y	8.52	2.409E+00	0	0	0	0	5.984E+12	0	2014年	180日
50Sn123	β	129.2d	209	3.406E-05	0	0	0	0	1.035E+10	0	19.0年	180日
50Sn126	β	2.3E+5y	0.62	1.414E+03	0	4.872E-03	0	4.872E-03	6.456E+11	2.224E+06	978.7万年	561.4万年
51Sb126	β	12.35d	18.3	6.758E-05	0	2.509E-10	0	2.509E-10	2.097E+11	7.785E+05	978.7万年	561.4万年
51Sb126m	β:86/IT:14	19.15m		5.148E-07	0	7.718E-13	0	7.718E-13	1.484E+12	2.224E+06	978.7万年	561.4万年

崩壊の100核非記載、分岐比は％ σp(0.253meV):JENDL-5(0.0253eV)データから計算 ＊各槽の合計

40Zr、41Nb、42Mo、43Tc、44Ru、45Rh、49In、50Sn、51Sbは難溶性核種

表5-2　高レベル放射性固体核種の放射能低減効果

核種	崩壊形式	半減期	σp	6年後重量(g)					6年後放射能[Bq]		0.1Bq到達時間	
				未対策	可溶物槽	難溶物槽	気体槽	＊対策後	未対策	対策後	未対策	対策後
52Te123	ec	9.2E+16y	2916.9	1.482E-01		0		0	1.733E-04	0	(0.165mBq)	180日
52Te123m	IT	119.24d	22.7	6.225E-08		0		0	2.049E+07	0	15.0年	180日
52Te125m	IT	57.4d	9.2	2.027E+00		0	1.424E-10	0	1.364E+15	9.585E+04	157.8年	# 91.1年
52Te128	2β	7.7E+24y	1.26	6.159E+03		0	5.828E+01	0	5.826E+06	7.823E-10	(82.7nBq)	(0.782nBq)
52Te130	2β	7.9E+20y	1.25	2.405E+04		0		0	3.066E+03	0	(3.08mBq)	180日
55Cs134	β:99.9997/ec:3E-6	2.0652y	926.0	7.713E+02	1.491E-21	0	1.491E-21	0	3.887E+16	7.126E-06	1265年	390日
55Cs135	β	2.3E+6y	56.2	2.679E+04	6.413E-17	0	6.413E-17	0	1.141E+12	2.733E-09	9976万年	390日
55Cs137	β:Ba137:53/m:94.7	30.08y	1.75	6.921E+04		0		0	2.222E+17	0	1839年	180日
56Ba133	ec	10.551y	18.06	4.131E-03		0		0	3.894E+10	0	412.2年	180日
56Ba137m	IT	2.552m		1.058E-02		0		0	2.104E+17	0	1839年	420日
57La138	ε:65.5/β:345	1.03E+11y	368.6	9.240E-01		0		0	8.600E+02	0	1.346億年	180日
58Ce139	ε	137.63d	9.49	1.397E-06		0		0	3.526E+06	0	18.0年	180日
58Ce144	β(Pr144:985/m1.5)	284.91d	6.28	9.502E+01		0		0	1.116E+16	0	50.2年	180日
59Pr144	β	17.28m		4.002E-03		0		0	1.116E+16	0	50.2年	420.3日
59Pr144m	IT:99.93/β:0.07	7.2m		2.519E-05		0		0	1.690E+14	0	50.2年	420.1日
60Nd150	2β	9.1E+18y	6.35	1.122E+04		0		0	1.067E-01	0	108.7京年	180日
61Pm146	ec:66/β:34	5.53y	5.23E+04	1.168E-01		0		0	1.913E+12	0	250年	180日
61Pm147	β	2.6234y	1088.4	2.613E+03		0		0	8.963E+16	0	162.3年	180日
62Sm146	α	6.8E+7y	2.37	2.270E-01		0		0	3.024E+05	0	14.425億年	180日
62Sm147	α	1.06E+11y	353.1	1.675E+04		0		0	1.422E+07	0	2.729兆年	180日
62Sm148	α	7E+15y	14.7	8.518E+03		0		0	1.088E+02	0	7.045万年	180日
63Eu150	ε	36.9y	650.6	1.998E-05		0		0	4.775E+07	0	1070年	180日
63Eu152	ε:72.1/β:27.9	13.517y	7206.0	1.027E+00		0		0	6.614E+12	0	626.6年	180日
64Gd152	α	1.08E+14y	445.1	1.729E+00		0		0	1.393E+00	0	400.6兆年	180日
64Gd153	ec	240.4d	1.34E+05	1.102E-03		0		0	1.446E+11	0	32.6年	180日
65Tb160	β	72.3d	2051.6	1.816E-09		0		0	7.581E+05	0	105年	180日
67Ho166m	β	1200y	1.60E+04	4.988E-02		0		0	3.306E+09	0	41941年	180日
69Tm170	β:99.87/ec:013	128.6d	5182	5.023E-10		0		0	1.109E+05	0	131年	180日
69Tm171	β	1.92y	55.4	6.193E-07		0		0	2.485E+07	0	59.6年	180日

単一崩壊の100%は非記載、分岐比は％　σp(0.353meV):JENDL-5(0.0253eV)データから計算　（）内は0.1Bq到達時間が求められない核種の放射能値

52Te125m(24.9年)は難溶物槽で発生し6年後には親核種OS m1 25/51Sb125と分離されるので約31年後に安定な52Te125に壊変する

【０１３４】

未対策で０．１Ｂｑ到達時間が１０年以上で半減期が５０日以上の長い４６核種と、半減期は短いが親核種の半減期が長い娘核種１０種は、中性子照射による対策で、６年後には５３Ｔｅ１２５ｍ〔９．１年〕を除く５３核種の放射能は０Ｂｑとなる。

半減期が長い放射性の可溶性核種は３４Ｓｅ７９、３７Ｒｂ８７、４７Ａｇ１０８ｍ／１１０ｍ、４８Ｃｄ１０９／１１３ｍ／１１３、５２Ｔｅ１２３ｍ／１２５、５５Ｃｓ１３４／１３５／１３７、５６Ｂａ１３３、５７Ｌａ１３８、５８Ｃｅ１３９／１４４、６０Ｎｄ１５０、６１Ｐｍ１４６／１４７、６２Ｓｍ１４６／１４７／１４８、６３Ｅｕ１５０／１５２、６４Ｇｄ１５２／１５３、６５Ｔｂ１６０、６７Ｈｏ１６６ｍ、６９Ｔｍ１７０／１７１の３０種で、半減期が短く親核種の半減期が長い娘核種は４７Ａｇ１０８／１０９ｍ／１１０、５６Ｂａ１３７ｍ、５９Ｐｒ１４４ｍ／１４４の６種であり、０．１Ｂｑ以下ではあるが長寿命の放射性核種３種Ｔｅ１２３／１２８／１３０は使用済み核燃料取り出し１８０日後にはほぼ０ｇとなり放射能は無視できる。

半減期が長い放射性の難溶性核種は４０Ｚｒ９３／９５、４１Ｎｂ９２／９３ｍ／９４／９５、４２Ｍｏ１００、４３Ｔｃ９８／９９、４４Ｒｕ１０６、４５Ｒｈ１０２、４９Ｉｎ１１５、５０Ｓｎ１１９ｍ／１２１ｍ／１２３／１２６の１６種で、半減期が短く親核種の半減期が長い娘核種は４５Ｒｈ１０６、５０Ｓｎ１２１、５１Ｓｂ１２６ｍ／１２６の４種である。未対策で半減期が長くσｐが０．６２の５０Ｓｎ１２６と、これを親核種とする半減期の短い５１Ｓｂ１２６ｍ／１２６の３種は親核種５０Ｓｎ１２６の未対策放置６年後の重量１．４１ｋｇは対策により４．８７ｍｇに減少し、０．１Ｂｑ到達時間は９７９万年から低減するが５６１万年と長い。

【０１３５】
使用済み核燃料取出し１８０日後、可溶物槽は３０日間隔で冷中性子照射を９回、難溶物槽は１３回繰り返した後、６年後までに放射性核種の壊変で生じた固体核種は可溶物槽（難溶物槽Ａの難溶性核種と気体槽に付属の固体槽で発生した可溶性核種を含む）、難溶物槽（可溶物槽Ｂの可溶性核種を含む）に回収され、前者の回収した核種および硝酸溶液は塩化物槽１に、後者の回収した核種および硝酸溶液は塩化物槽２に移送し、別々に加熱して硝酸を追い出し、核種を酸化物とする。
これらの発生した酸化物核種を沸点の違いを利用して元素を分離するが、これらの酸化物の沸点は極めて高温であり、省エネルギーの観点から沸点の低い塩化物に変換する。本実施例では６年後に塩化物槽１及び２に移送された酸化物は可溶物槽と気体槽に付属の固体槽及び難溶物槽で生じる核種重量（いずれも酸化物重量ではなく核種単体の重量）で、夫々１０９０．１ｋｇと１．７３８ｋｇ及び７６２．０ｋｇであり、これらを塩化物にするため、塩化物槽１では塩酸で塩化物化されないゲルマニウム、ジルコニウム、パラジウム、ハフニウムの核種重量６２４．４ｋｇを除く４６５．７ｋｇに、塩化物槽２では塩酸で塩化物化されないホウ素、ジルコニウム、ルテニウム、パラジウムの核種重量３８．６ｋｇを除く７２３．４ｋｇに、濃度６モル／Ｌの塩酸溶液を夫々５０Ｌ、４０Ｌを加えて塩化物とし、塩酸では塩化物化されない核種で、塩化物槽１の核種６２４．４ｋｇと塩化物槽２の核種３８．６ｋｇに対し塩素ガス（１気圧、２０℃換算）を夫々１８０m^3、１５m^3注入し塩化物に変換する。塩素ガス使用の場合は適量の炭素を投入する。
対策により、重量が１Ｅ－４０ｇ以上の固体核種は可溶物槽で４８核種、難溶物槽で３５核種、気体槽で２核種存在する。これらの核種を槽毎に塩化物の沸点の昇順に、核種、崩壊形式、半減期、中性子捕獲確率σｐ、塩化物の沸点〔単位℃〕、６年後の未対策放置と対策後の槽別の重量〔単位ｇ〕、未対策と対策後の放射能〔単位Ｂｑ〕、未対策と対策後の０．１Ｂｑ到達時間を表６．１～６．３に纏めた。尚、核種重量は塩化物ではなく核種単体としての重量である。
【０１３６】

【表６－１】

表6-1　対策による廃棄固体核種の重量、放射能の低減　　補正無し

核種	崩壊形式	半減期	σp (0.353meV)	塩化物沸点[℃]	6年後重量[g]					6年後放射能[Bq]		0.1Bq到達時間	
					未対策	可溶物槽	難溶物槽	気体槽	＊対策後	未対策	対策後	未対策	対策後
5B10	安定		＊α;16.84k	12.6	2.357E-08	0	2.477E-08	0	2.477E-08			－日	－日
32Ge70	安定		31.0	86.5	1.239E-07	1.821E-07	0	0	1.821E-07			－日	－日
32Ge72	安定		8.83	86.5	4.671E-01	1.499E-31	0	0	1.499E-31			－日	－日
32Ge73	安定		145.1	86.5	1.315E+00	7.666E-02	0	0	7.666E-02			－日	－日
33As75	安定		40.3	130.2	1.310E+01	0	5.455E+00	0	5.455E+00			－日	－日
34Se77	安定		390.8	SP 196	7.242E+01	0	3.241E+01	0	3.241E+01			－日	－日
34Se82	安定		0.404	SP 196	2.253E+03	2.270E+01	0	0	2.270E+01			－日	－日
31Ga71	安定		42.3	201.3	7.412E-02	1.217E-12	1.038E-07	0	1.038E-07			－日	－日
51Sb124	β	60.2d	120.8	224	1.344E-11	0	3.150E-17	0	3.150E-17	8.687E+03	2.036E-02	8.7年	5.62年
51Sb125	β注1)	2.75856y	9.20	224	9.588E+01	0	3.007E-13	0	3.007E-13	3.678E+15	1.154E+01	157.8年	24.9年
51Sb126	β	12.35d	18.3	224	6.758E-05	0	2.509E-10	0	6.602E-10	2.097E+11	2.049E+06	978.7万年	561.4万年
51Sb126m	β/IT 注2)	19.15m		224	5.149E-07	0	7.718E-13	0	2.031E-12	1.484E+12	5.853E+06	978.7万年	561.4万年
51Sb123	安定		29.2	224	3.229E+02	0	6.958E-10	0	6.958E-10			－日	－日
42Mo97	安定		20.3	268	5.268E+04	0	4.263E+03	0	4.263E+03			－日	－日
42Mo98	安定		1.07	268	5.409E+04	0	9.934E+02	0	9.934E+02			－日	－日
40Zr96	2β	3.9E+19y	0.183	SP 331	5.335E+04	0	2.347E+04	0	2.347E+04	1.885E-01	8.292E-02	3567京年	(82.9mBq)
40Zr90	安定		0.094	SP 331	6.974E+03	3.536E+04	6.618E+02	0	3.602E+04			－日	－日
40Zr91	安定		11.2	SP 331	4.117E+04	9.823E+03	0	0	9.823E+03			－日	－日
40Zr92	安定		1.07	SP 331	4.373E+04	1.763E+04	0	0	1.763E+04			－日	－日
40Zr94	安定		0.419	SP 331	5.145E+04	0	2.695E+02	0	2.695E+02			－日	－日
52Te125m	IT	57.4d	9.24	380	2.027E+00	0	1.424E-10	0	1.424E-10	1.364E+15	9.585E+04	157.8年	# 9.12年
52Te127	β	9.35h	5.62	380	1.168E-07	0	1.200E-05	0	1.200E-05	1.140E+10	1.171E+12	16.9年	18.5年
52Te127m	IT/β注3)	106.1d	20.9	380	3.335E-05	0	3.336E-03	0	3.336E-03	1.186E+10	1.186E+12	16.9年	18.6年
52Te128	2β	7.7E+24y	1.26	380	6.159E+03	0	5.828E+01	0	5.828E+01	8.267E-08	7.823E-10	(82.7nBq)	(0.782nBq)
52Te122	安定		28.1	380	1.483E+01	0	2.572E+02	0	2.572E+02			－日	－日
52Te124	安定		47.1	380	1.052E+01	0	9.397E+02	0	9.397E+02			－日	－日
52Te125	安定		8.91	380	5.618E+02	0	1.143E+01	0	1.143E+01			－日	－日
52Te126	安定		3.02	380	2.606E+01	0	1.942E+03	0	1.942E+03			－日	－日

32Ge, 40Zr, 42Mo, 51Sb, 72Hf は難溶性核種　SP:昇華点　＊5B10;(n,α)16.84k　　＊各槽の合計　( )内は0.1Bq到達時間が求められない核種の放射能値
単一崩壊の100%は非記載、分岐比は%　　# 52Te125mは6年後に難溶物槽から分離され親核種50Sn125m(β)が無くなり3.1年後に0.1Bqとなる。
注1) β→Te125m:35%/Te125:65%　注2)51Sb126m;β;86%/IT;14%　注3)52Te127m;IT:97.6%/β:2.4%

【表６－２】

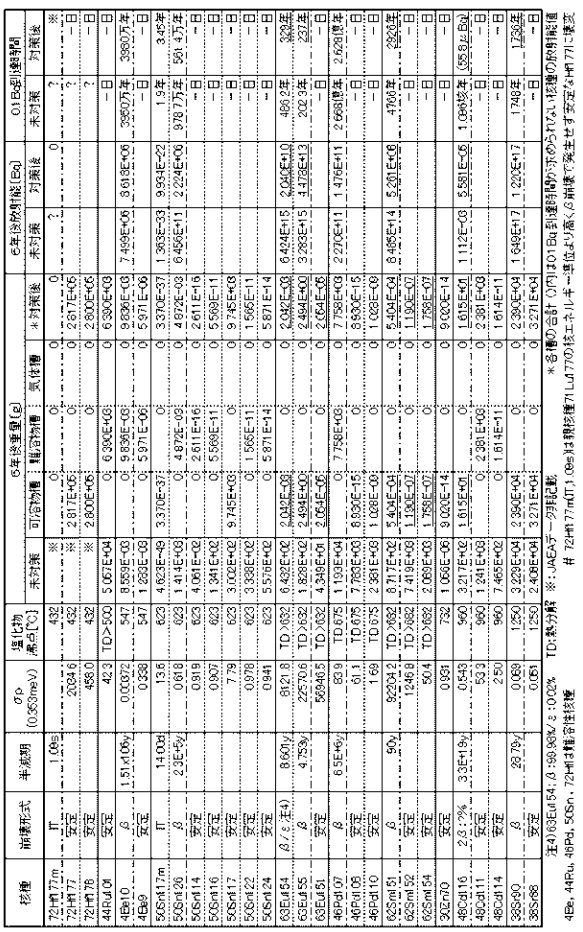


表6-2 対策による廃棄固体核種の重量、放射能の低減

核種	崩壊形式	半減期	σp (0.253meV)	沸(化物)点[℃]	6年後重量(g) 未対策	可溶物質	揮発物質	気体種	*対策後	6年後放射能[Bq] 未対策	対策後	01日6年後時間 未対策	対策後
72Hf177m	IT	1.09s		432	※	0	0	0	0	?	0	?	※
72Hf177	安定		2034.6	432	※	2.817E+05	0	0	2.817E+05			?	－B
72Hf178	安定		458.0	432	※	2.800E+05	0	0	2.800E+05			?	－B
44Ru104	安定		42.3	TD>500	5.067E+04	0	6.390E+03	0	6.390E+03			－B	－B
47Ag110	β	1.51x10^6y	0.00372	547	8.559E-03	0	5.836E-03	0	5.836E-03	7.499E+06	3.618E+06	2950万年	3960万年
47Ag109	安定		0.338	547	1.283E-03	0	5.971E-06	0	5.971E-06			－B	－B
50Sn117m	IT	14.00d	13.6	623	4.623E-09	3.370E-37	0	0	3.370E-37	1.383E-33	9.953E-22	1.9年	3.45年
50Sn126	β	2.3E+5y	0.618	623	1.414E+03	0	4.872E-09	0	4.872E-09	6.456E+11	2.224E+06	978.7万年	501.4万年
50Sn114	安定		0.919	623	4.061E+02	0	2.611E+16	0	2.611E+16			－B	－B
50Sn116	安定		0.907	623	1.341E+02	0	5.569E-11	0	5.569E-11			－B	－B
50Sn117	安定		7.79	623	3.002E+02	0	9.745E+03	0	9.745E+03			－B	－B
50Sn122	安定		0.978	623	3.338E+02	0	1.565E-11	0	1.565E-11			－B	－B
50Sn124	安定		0.941	623	5.516E+02	0	5.871E-14	0	5.871E-14			－B	－B
63Eu154	β / ε (主4)	8.60y	9121.8	TD>632	6.432E+00	0	2.045E-03	0	2.045E-03	6.424E+15	2.045E+10	486.2年	329年
63Eu155	β	4.753y	225706	TD>632	2.894E+00	0	2.894E+00	0	2.894E+00	3.283E+15	1.473E+13	202.9年	237年
63Eu151	安定		569465	TD>632	2.064E+05	0	2.064E+05	0	2.064E+05			－B	－B
46Pd107	β	6.5E+6y	639	TD>675	1.110E+04	0	7.758E+08	0	7.758E+08	2.270E+11	1.476E+11	2.668億年	2.629億年
46Pd105	安定		61.1	TD>675	7.765E+03	0	8.650E-15	0	8.650E-15			－B	－B
46Pd110	安定		1.69	TD>675	2.381E+03	0	1.028E-09	0	1.028E-09			－B	－B
62Sm151	β	90y	82004.2	TD>682	8.217E+02	0	5.404E-04	0	5.404E-04	8.485E+14	5.201E+06	4760年	2926年
62Sm152	安定		1246.8	TD>682	7.419E+03	0	1.190E-07	0	1.190E-07			－B	－B
62Sm154	安定		504	TD>682	2.069E+03	0	1.758E-07	0	1.758E-07			－B	－B
30Zn70	安定		0.931	732	1.066E-06	0	9.020E-14	0	9.020E-14			－B	－B
48Cd116	2β-?%	3.3E+19y	0.543	960	3.217E+02	0	1.615E+01	0	1.615E+01	1.112E+03	5.581E+05	1.09t分年	(558分Bq)
48Cd111	安定		53.3	960	1.241E+03	0	2.381E+03	0	2.381E+03			－B	－B
48Cd114	安定		2.50	960	7.465E+02	0	1.614E-11	0	1.614E-11			－B	－B
38Sr90	β	29.79y	0.069	1250	3.229E+04	0	2.394E+04	0	2.394E+04	1.649E+17	1.220E+17	1748年	1296年
38Sr88	安定		0.081	1250	2.408E+04	0	3.271E+04	0	3.271E+04			－B	－B

注4)63Eu154; β:90.96%/ε:9.02% TD:熱分解 ※:JAEAデータ引用記載 ＊各種のD合計（内引き01Bq到達時間が示すのうち最も長い核種の放射能値

4Be, 44Ru, 46Pd, 50Sn, 72Hf は難溶性核種 # 72Hf177mT1/2 0.86s は親核種71Lu177の核エネルギー準位より高くβ崩壊で発生せず安定な177に遷移

【表６－３】

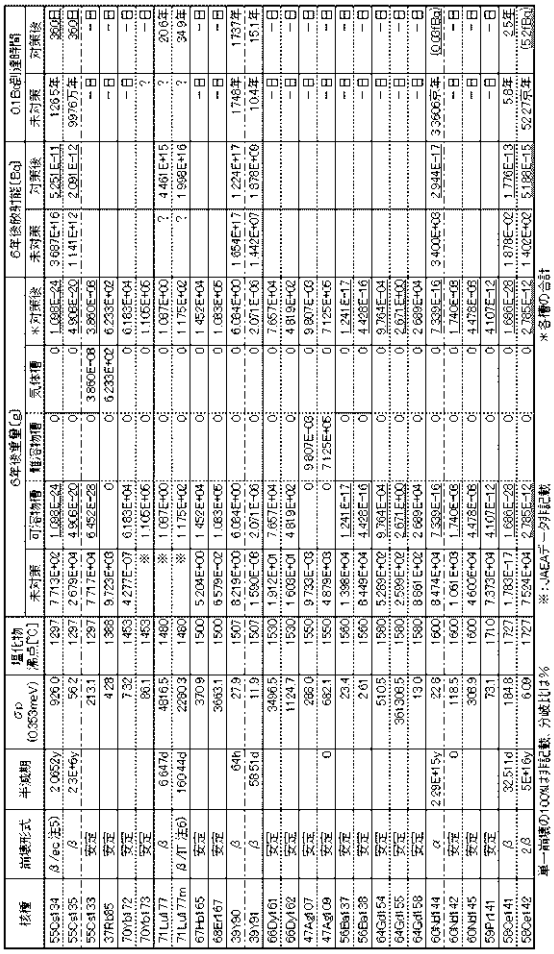


表6-3 対策による廃棄固体核種の重量、放射能の低減

核種	崩壊形式	半減期	SD (0.383meV)	塩化物沸点[℃]	6年後重量(g) 未対策	可溶物槽	難溶物槽	気体槽	＊対策後	6年後放射能(Bq) 未対策	対策後	01自然減衰時間 未対策	対策後
55Cs134	β/ec.(注5)	2.0652y	926.0	1297	7.713E+02	1.086E-24		0	1.086E-24	3.687E+16	5.251E-11	1265年	360日
55Cs135	β	2.3E+6y	56.2	1297	2.678E+04	4.506E-20		0	4.506E-20	1.141E+12	2.091E-12	9976万年	360日
55Cs133	安定		2131	1297	7.717E+04	6.452E-28		0	3.890E-06			-日	-日
37Rb85	安定		428	1368	9.722E+03	0		0	6.233E+02	6.233E+02		-日	-日
70Yb172	安定		7.32	1453	4.277E-07	6.183E+04		0	6.183E+04			-日	-日
70Yb173	安定		861	1453	※	1.105E+06		0	1.105E+06			?	-日
71Lu177	β	6.647d	4816.5	1480	※	1.007E+00		0	1.007E+00	?	4.491E+15	?	20.6年
71Lu177m	β/IT.(注6)	160.44d	2890.3	1480	※	1.175E+02		0	1.175E+02	?	1.966E+16	?	94.9年
67Ho165	安定		3709	1500	5.204E+00	1.452E+04		0	1.452E+04			-日	-日
68Er167	安定		3663.1	1500	6.579E+02	1.083E+06		0	1.083E+06			-日	-日
39Y90	β	64h	27.9	1507	8.219E+00	6.064E+00		0	6.064E+00	1.654E+17	1.224E+17	1748年	1737年
39Y91	β	58.51d	11.9	1507	1.58E-06	2.071E-06		0	2.071E-06	1.442E+07	1.378E+08	104年	151年
66Dy161	安定		3496.5	1530	1.912E+01	7.657E+04		0	7.657E+04			-日	-日
66Dy162	安定		1124.7	1530	1.603E+01	4.819E+02		0	4.819E+02			-日	-日
47Ag107	安定		286.0	1550	9.732E-03	0		0	9.807E-03			-日	-日
47Ag109	安定		682.1	1550	4.879E+03	0		0	7.125E+05			-日	-日
56Ba137	安定		23.4	1560	1.398E+04	1.241E-17		0	1.241E-17			-日	-日
56Ba138	安定		2.61	1560	8.449E+04	4.426E-16		0	4.426E-16			-日	-日
64Gd154	安定		510.5	1580	5.268E+02	9.764E-04		0	9.764E-04			-日	-日
64Gd155	安定		361308.5	1580	2.599E+02	2.671E+00		0	2.671E+00			-日	-日
64Gd158	安定		13.0	1580	8.661E+02	2.668E+04		0	2.668E+04			-日	-日
68Er164	α	2.29E+15y	22.9	1600	8.474E+04	7.338E-16		0	7.338E-16	3.40OE+03	2.944E-17	3.3600万年	10.08Ba
68Er162	安定	0	118.5	1600	1.061E+03	1.740E-08		0	1.740E-08			-日	-日
60Nd145	安定		308.9	1600	4.602E+04	4.478E-06		0	4.478E-06			-日	-日
59Pr141	安定		73.1	1710	7.373E+04	4.107E-12		0	4.107E-12			-日	-日
58Ce141	β	32.511d	184.8	1727	1.783E-17	1.696E-28		0	1.696E-28	1.878E-02	1.778E-13	5.8年	2.5年
58Ce142	2β	5E+16y	6.09	1727	7.524E+04	2.785E-12		0	2.785E-12	1.402E+02	5.188E-15	52.27万年	(5.27Ba)

単一崩壊D100%到記載、分岐比は3%　※：JAEAデータ引記載　＊各槽の合計

注5) 55Cs134：β：99.9597%/ec:3ppm 注6) 71Lu177m：β：78.6%/IT：21.4%

【０１３７】

（塩化物槽１の固体核種）

塩化物槽１に存在する可溶物槽と気体槽で発生した塩化物（実施例では６０核種）を気化槽に投入し、塩化物沸点の昇順に加熱し、沸点毎に精留塔で気化させ凝縮器で塩化物気体として分留し、安定核種あるいは安定同位体は冷却装置を介して核種回収槽に、放射性核種あるいは放射性同位体および放射性核種と安定核種の混在する同位体はガラス固化核種回収槽に回収する。さらに資源として再利用できる放射性核種と安定核種の２種類だけの同位体は、ウラン燃料製造時に使用される質量差を利用したガス遠心分離装置で同位体分離を行い、安定で質量数の小さい軽核種と、放射性で質量数の大きい重核種に分離し、夫々軽核種回収槽、重核種回収槽に回収する。沸点昇順で回収工程を記述すると、冗長になるので回収方法毎に記述する。

【０１３８】

（塩化物槽１の安定核種の回収、気体槽に付属の固体槽を含む）

塩化物槽１を８７℃に加熱して塩化ゲルマニウム（安定同位体３２Ｇｅ７０／７２；７６．７ｍｇ）を、１９６℃に加熱して塩化セレン（３４Ｓｅ８２；２２．７ｇ）を、３３１℃に加熱して塩化ジルコニウム（安定同位体４０Ｚｒ９０～９２；６２．８ｋｇ）を、４３２℃に加熱して塩化ハフニウム（安定同位体Ｈｆ１７７～１７８；５６１．７ｋｇ）を、６２３℃に加熱して塩化スズ（放射性核種５０Ｓｎ１１７ｍ；３．４Ｅ－３７ｇは無視でき、安定核種Ｓｎ１１７；９．７５ｋｇ）を、１３８８℃に加熱して塩化ルビジウム（気体槽の３７Ｒｂ８５；６２３ｇ）、１４５３℃に加熱して塩化イッテルビウム（安定同位体７０Ｙｂ１７２／１７３；１７２．４ｋｇ）を、１５００℃に加熱して塩化ホルミウム（６７Ｈｏ１６５；１４．５ｋｇ）と塩化エルビウム（６８Ｅｒ１６７；１０８．３ｋｇ）を、１５３０℃に加熱して塩化ジスプロシウム（６６Ｄｙ１６１／１６２；７７．

１ｋｇ）を、１５８０℃に加熱して塩化ガドリニウム（６４Ｇｄ１５４／１５５／１５８；２６．９ｋｇ）を気化・分留させ、冷却装置を介して核種回収槽に回収する。回収槽を個別にすればこれらの安定な核種の塩化物が回収できる。

塩化物槽１で、塩化物の沸点が２０１℃のガリウム、６７５℃のパラジウム、７３２℃の亜鉛、１５６０℃のバリウム、１６００℃以上のプロメチウムの重量は、いずれも１μｇ以下で回収は困難である。尚、前述の沸点が同一の１５００℃の塩化エルビウムと塩化ホルミウムは、その融点の違いで分離できる。

【０１３９】

（塩化物槽１のガラス固化核種の回収）

塩化物槽１を６３２℃に加熱して塩化ユウロピウム（放射性同位体６３Ｅｕ１５４／１５５；２．５ｇと安定核種Ｅｕ１５１；２１μｇが混在）を、６８２℃に加熱して塩化サマリウム（放射性核種６２Ｓｍ１５１；０．５ｍｇと安定同位体Ｓｍ１５２／１５４；０．３μｇが混在）を、９６０℃に加熱して塩化カドミウム（放射性核種４６Ｃｄ１１６；１６．２ｇ）を、１４８０℃に加熱して塩化ルテチウム（放射性同位体７１Ｌｕ１７７ｍ／１７７；１１９ｇ）を、１５０７℃に加熱して塩化イットリウム（放射性同位体３９Ｙ９０／９１;６．１ｇ）を気化・分留させ、冷却装置を介してガラス固化核種回収槽に回収する。尚、放射性核種である沸点が１６００℃以上の塩化ネオジム；０．７３ｐｇと塩化セリウム；２．８ｐｇは微量で放射能は夫々０．０３ｆＢｑと５．２ｆＢｑで無視できる。

放射性核種Ｃｄ１１６の放射能は５５．８μＢｑで、地球存在確率７．５％であり、ガラス固化の必要性は無いと考えられる。また塩化ルテチウムは放射性医薬品に利用できるので回収する。

【０１４０】

（塩化物槽１の安定核種と放射性核種を分別して資源回収できる核種）

塩化物槽１を１２５０℃に加熱して塩化ストロンチウム（放射性核種３８Ｓｒ９０；２３．９ｋｇと安定核種Ｓｒ８８；３２．７ｋｇが混在）を気化・分留させた後、冷却装置を介して分留し、質量差を利用したガス遠心分離装置で核種分離を行い、質量数の小さい安定核種と質量数の大きい放射性核種に分離し、それぞれ安定核種は軽核種回収槽に、放射性核種は重核種回収槽に回収できる。

【０１４１】

（塩化物槽２に存在する固体核種）

次に塩化物槽２に存在する塩化物（実施例では３５核種）を気化槽に投入し、前記と同様に、塩化物の沸点の昇順に加熱し、沸点毎に精留塔で気化した塩化物を凝縮器で塩化物気体として取出し、安定核種あるいは安定同位体であれば、冷却装置を介して核種回収槽に回収し、放射性核種あるいは放射性同位体および放射性核種と安定核種の混在する同位体はガラス固化核種回収槽に回収する。可溶物槽で発生した核種と難溶物槽で発生した核種を別々に処理するので、ガラス固化する廃棄核種重量を低減できる。

【０１４２】

（塩化物槽２の安定核種の回収）

塩化物槽２を１３１℃に加熱して塩化ヒ素（３３Ａｓ７５；５．５ｇ）を、１９６℃に加熱して塩化セレン（３４Ｓｅ７７；３２．４ｇ）を、２６８℃に加熱して塩化モリブデン（安定同位体４２Ｍｏ９７／９８；５．２６ｋｇ）を、５００℃に加熱して塩化ルテニウム（安定核種４４Ｒｕ１０１；６．３９ｋｇ）を、９６０℃に加熱して塩化カドミウム（安定同位体４８Ｃｄ１１１／１１４；２．３８ｋｇ）を、１５５０℃に加熱して塩化銀（安定同位体４７Ａｇ１０７／１０９；７１２．５ｋｇ）を気化・分留させ、冷却装置を介して核種回収槽に回収する。塩化ルテニウムは沸点で熱分解するので金属として回収できる。尚、沸点１２．６℃の塩化ホウ素、２０１℃の塩化ガリウムは１μｇ以下の微量で回収困難である。

【０１４３】

（塩化物槽２のガラス固化核種の回収）

塩化物槽２では、３８０℃に加熱して塩化テルル（放射性同位体５２Ｔｅ１２５ｍ／１

２７ｍ／１２７／１２８；５８．３ｇと安定同位体Ｔｅ１２２／１２４／１２５／１２６；３．１５ｋｇが混在）を、５４７℃に加熱して塩化ベリリウム（放射性核種４Ｂｅ１０；９．８ｍｇと安定核種Ｂｅ９；６μｇが混在）を、６２３℃に加熱して塩化スズ（放射性核種５０Ｓｎ１２６；４．９ｍｇと安定同位体Ｓｎ１１４／１１６／１２２；７１ｐｇが混在）を、６７５℃に加熱して塩化パラジウム（放射性核種４６Ｐｄ１０７；７．７６ｋｇ）を、気化・分留させ、冷却装置を介してガラス固体化核種回収槽に回収する。

なお、２２４℃の塩化アンチモン（放射性同位体５１Ｓｂ１２４～１２６／１２６ｍ；０．２５ｎｇと安定同位体Ｓｂ１２３；０．７ｎｇが混在）は微量で回収できず、昇華点が３３１℃のジルコニウムは放射性核種４０Ｚｒ９６（天然存在比２．８％）２３．５ｋｇと安定同位体Ｚｒ９０／９４が９３１ｇ混在するが、その放射能は８２．９ｍＢｑであり、ガラス固化せずに放射性廃棄物として処理できる。また、後述するが４６Ｐｄ１０７のσｐは熱中性子に対しても大きいので、熱中性子照射によりＰｄ１０９ｍ（ＩＴ，４．７ｍ）に核種変換し、安定な４７Ａｇ１０９として回収できる。

【０１４４】

（気体槽と可溶物槽及び難溶物槽で発生した気体核種）

燃料取出し１８０日後、発生した気体核種を元素の沸点順に核種、崩壊形式、半減期、元素の沸点、σｐ（熱中性子エネルギー０．０２５３ｅＶの値）、未対策６年後の放置した場合の重量と槽毎の重量と各槽の合計重量〔単位ｇ〕、未対策６年後と対策後の放射能〔単位Ｂｑ〕、対策後と未対策時の０．１Ｂｑ到達時間を表７に示す。なお、炭素の沸点は酸化物として存在するのでCO_2の沸点とした。

【０１４５】

【表７】

表7 対策による気体核種の重量、放射能の変化

核種	崩壊	半減期	沸点 [℃]	σp (0.0253eV)	6年後重量(g) 未対策	可溶物槽	難溶物槽	気体槽	対策後	6年後放射能(Bq) 未対策	対策後	0.1Bq到達時間 未対策	対策後
2He3	安定		-268.9	p. 52.18k	9.988E-01		0	1.000E+00	1.000E+00			-- 日	-- 日
2He4	安定						0		2.920E-02			-- 日	-- 日
1H3	β	12.32y	-252.8		2.493E+00	0	0	2.491E+00	2.491E+00	3.924E+14	8.918E+14	658.0年	658.0年
6C14	β	5700Y	-78.5	1.08μ	1.729E-03	0	0	1.729E-03	1.729E-03	2.867E+08	2.867E+08	17.91万年	17.91万年
7N14	安定		-195.8	8.677	1.262E-06	0	0	1.262E-06	1.262E-06			-- 日	-- 日
36Kr81	ec	229000y	-153.4	9.75	2.195E-04		0	2.195E-04	2.195E-04	1.566E+06	1.566E+06	471.2万年	471.2万年
36Kr85	β	10.739y		1.75	1.460E+03		0	1.460E+03	1.460E+03	2.117E+16	2.117E+16	624年	624年
36Kr80	安定			12.6	5.464E-03		0	5.464E-03	5.464E-03	5.464E-06		-- 日	-- 日
36Kr82	安定			20.6	3.029E+01		0	3.029E+01	3.029E+01			-- 日	-- 日
36Kr83	安定			216.6	3.094E+03		0	3.094E+03	5.284E+03			-- 日	-- 日
36Kr84	安定			0.12	7.565E+03		0	7.565E+03	7.565E+03			-- 日	-- 日
36Kr86	安定			314m	1.496E+04		0	1.496E+04	1.496E+04			-- 日	-- 日
54Xe127	ec	36.346d	-108.1	3.84	1.823E-23		0	1.771E-23	1.771E-23	1.907E-06	1.853E-06	3.8年	3.77年
54Xe136	2β : 7%	2.165E+21 y		0.100	1.445E+05		0	1.445E+05	1.445E+05	6.494E-03	6.494E-03	(6.49mBq)	(6.49mBq)
54Xe128	安定			4.17	1.116E+02		0	1.116E+02	1.116E+02			-- 日	-- 日
54Xe129	安定			17.6	8.337E-01		0	8.309E-01	8.309E-01			-- 日	-- 日
54Xe130	安定			3.82	3.613E+02		0	1.445E+04	1.445E+04			-- 日	-- 日
54Xe131	安定			78.7	2.949E+04		0	2.949E+04	2.949E+04			-- 日	-- 日
54Xe132	安定			0.350	6.894E+04		0	6.894E+04	7.117E+04			-- 日	-- 日
54Xe134	安定			0.206	9.875E+04		0	9.875E+04	9.875E+04			-- 日	-- 日
35Br79	安定		57.9	12.2	3.067E-03		0	1.026E-03	1.070E-03			-- 日	-- 日
35Br81	安定			2.56	1.408E+03		0	1.408E+03	3.008E+03			-- 日	-- 日
53I129	β	1.57E+7y	182.8	24.2	1.148E+01		0	0	0	7.500E+10	0	61.90億年	1.30日
53I127	安定			5.16	2.625E+03		0	1.406E+03	4.440E-07	1.406E+03		-- 日	-- 日

単一崩壊の0.100kBq非記載、分岐比は3%　　炭素(CO2)の沸点は-78.5℃

σp：ENDL-5データ、p-1n, p反応、(n, γ)反応の値は24eVの0.529m、7N14が0.269

6年後に可溶物槽から回収された53I129, 53I127, 54Xe136, 54Xe132, 54Xe134, 54Xe131, 54Xe129, 54Xe128, 54Xe130, 54Xe126, 54Xe124, 54Xe122, 54Xe123, 54Xe125, 54Xe126, 54Xe128, 54Xe127, 54Xe129, 54Xe130, 54Xe131, 54Xe132, 54Xe134, 54Xe136, 55Cs133, 55Cs134, 55Cs135, 55Cs137, 56Ba138, 56Ba137, 56Ba136, 56Ba135, 56Ba134, 56Ba137m, 56Ba130, 56Ba132, 56Ba131, 56Ba133, 56Ba133m, 56Ba135m, 56Ba138, 56Ba140, 57La139, 57La138, 57La140, 58Ce140, 58Ce142, 58Ce141, 58Ce144, 59Pr141, 59Pr142, 59Pr143, 60Nd142, 60Nd143, 60Nd144, 60Nd145, 60Nd146, 60Nd147, 60Nd148, 60Nd150, 61Pm147, 61Pm148, 61Pm148m, 61Pm149, 61Pm151, 62Sm147, 62Sm148, 62Sm149, 62Sm150, 62Sm151, 62Sm152, 62Sm153, 62Sm154, 63Eu151, 63Eu152, 63Eu153, 63Eu154, 63Eu155, 63Eu156, 64Gd152, 64Gd154, 64Gd155, 64Gd156, 64Gd157, 64Gd158, 64Gd160, 65Tb159, 65Tb160, 66Dy160, 66Dy161, 66Dy162, 66Dy163, 66Dy164, 67Ho165, 67Ho166m, 68Er166, 68Er167, 68Er168, 68Er170, 69Tm169, 69Tm170, 69Tm171, 70Yb170, 70Yb171, 70Yb172, 70Yb173, 70Yb174, 70Yb176, 71Lu175, 71Lu176, 71Lu176m, 71Lu177, 71Lu177m, 72Hf174, 72Hf176, 72Hf177, 72Hf178, 72Hf179, 72Hf180, 73Ta180, 73Ta181, 73Ta182, 74W180, 74W182, 74W183, 74W184, 74W186, 75Re185, 75Re187, 76Os186, 76Os187, 76Os188, 76Os189, 76Os190, 76Os192, 77Ir191, 77Ir192, 77Ir193, 78Pt190, 78Pt192, 78Pt194, 78Pt195, 78Pt196, 78Pt198, 79Au197, 79Au198, 80Hg196, 80Hg198, 80Hg199, 80Hg200, 80Hg201, 80Hg202, 80Hg204, 81Tl203, 81Tl205, 82Pb204, 82Pb206, 82Pb207, 82Pb208, 83Bi209, 90Th232, 91Pa231, 92U233, 92U234, 92U235, 92U236, 92U238, 93Np237, 94Pu238, 94Pu239, 94Pu240, 94Pu241, 94Pu242, 94Pu244, 95Am241, 95Am242m, 95Am243, 96Cm242, 96Cm243, 96Cm244, 96Cm245, 96Cm246, 96Cm247, 96Cm248, 97Bk247, 97Bk249, 98Cf249, 98Cf250, 98Cf251, 98Cf252, 98Cf253, 98Cf254, 99Es253, 99Es254, 99Es254m, 100Fm254, 100Fm255, 100Fm256, 101Md256, 101Md257, 101Md258, 102No259, 103Lr260, 104Rf261, 104Rf262, 104Rf263, 104Rf264, 105Db262, 105Db263, 105Db265, 106Sg263, 106Sg265, 106Sg266, 106Sg267, 107Bh264, 107Bh265, 107Bh266, 107Bh267, 108Hs265, 108Hs266, 108Hs267, 108Hs269, 109Mt266, 109Mt268, 109Mt269, 109Mt270, 110Ds267, 110Ds268, 110Ds269, 110Ds270, 110Ds271, 110Ds272, 111Rg272, 111Rg274, 112Cn277, 113Nh278, 114Fl285, 115Mc288, 116Lv289, 117Ts293, 118Og294 が生まれる。

【０１４６】

使用済み核燃料取出し１８０日後の気体核種の重量と体積（１気圧／２０℃の値［　］内に示す）は、放射性核種が１５８．１ｋｇ［２７．３m^3］、安定核種が２２７．３ｋ

ｇ［４３．５ｍ^3］で、６年放置後の気体は対策により、放射性核種が１５７．５ｋｇ［２７．１ｍ^3］から１４６．０ｋｇ［２６．０ｍ^3］に減少し、安定核種が２２７．３ｋｇ［４３．５ｍ^3］から２４６．２ｋｇ［４８．８ｍ^3］に増加する。放射性核種５４Ｘｅ１３６の重量［体積］は未対策放置６年後に１４４．５ｋｇ［２５．６ｍ^3］で全放射性核種の９１．７％［体積比９４．５％］を占めるが、対策後の重量は同じであるが放射性核種の９９．０％［同９８．５％］を占め、２番目に多いＩ１２９の重量は１１．５ｋｇ［１．１ｍ^3］は７．３％［同４．１％］を占めるが、対策後には０％となる。

本実施例では、発生した安定な臭素（可溶物槽で発生した３５Ｂｒ７９／８１を含む）３．０ｋｇとヨウ素（難溶物槽で発生した５３Ｉ１２７を含む）１．４ｋｇを常温で夫々液体と固体として回収でき、長寿命の放射性ヨウ素（５３Ｉ１２９）１１．５ｋｇは安定なキセノン（５４Ｘｅ１３０）に核種変換できる。気体槽を常温から沸点の降順に冷却すれば、気体元素別に分離できるが、放射性気体と安定気体が混在するので同位体分離は困難で、冷却エネルギー使用による回収コストにも課題があり、沸点が常温以下の気体核種はほぼ従来通りの廃棄となる。

半減期の長い５核種１Ｈ３、６Ｃ１４、３６Ｋｒ８１／８５、５４Ｘｅ１３６の０．１Ｂｑ到達時間は対策効果が無いが、５３Ｉ１２９は０．１Ｂｑ到達時間を６．２億年から１８０日に短縮でき、安定気体核種は、可溶物槽と難溶物槽から回収した７種が対策により増加している。

非記載の放射性気体で、対策により０．１Ｂｑ到達時間が長くなるのが２種で、５３Ｉ１３０（β，１２．４ｈ）は３０日が２４７．４日に、５３Ｉ１３０ｍ（ＩＴ／β，８．８４ｍ）は８．４時間が２１７．５日になるが、これは可溶物槽から回収した重量が加算されたことによる。対策により短くなるのが２種で、５３Ｉ１３１（β，８．０３ｄ）が１．４年から１８０日に、５３Ｉ１３２（β，２．３ｈ）が２０７．８日から１８４．６日になる。これはヨウ素に1回だけ熱中性子を照射したことによる。半減期の短い１２種の３５Ｂｒ８０（β／ｅｃ，１７．７ｍ）／Ｂｒ８０ｍ（ＩＴ，４．４２ｈ）／Ｂｒ８２ｍ（ＩＴ／β，６．１ｍ）／Ｂｒ８２（β，３５．３ｈ）、３６Ｋｒ７９（ε，３５ｈ）／Ｋｒ８１ｍ（ＩＴ／β，１３ｓ）／Ｋｒ８５ｍ（β／ＩＴ，４．５ｈ）、５３Ｉ１２８（β／ｅｃ，２５ｍ）／Ｉ１３４（β，５２．５ｍ）、５４Ｘｅ１３５（β，９．１ｈ）／Ｘｅ１３５ｍ（ＩＴ，１５．３ｍ）／Ｘｅ１３７（β，３．８ｍ）は使用済み燃料取り出しから１８０日後に、その核種重量は０ｇとなり、放射能も０Ｂｑとなる。残りの７種３５Ｂｒ８３（β，２．４ｈ）、Ｋｒ８３ｍ（ＩＴ，１．８ｈ）、Ｉ１３３（β，２０．８ｈ）、５４Ｘｅ１２９ｍ（ＩＴ，８．８８ｄ）／Ｘｅ１３１ｍ（ＩＴ，１１．８ｄ）／Ｘｅ１３３（β，５．２５ｄ）／Ｘｅ１３３ｍ（ＩＴ，２．１９ｄ）は可溶物槽で発生し回収された重量が加わり、対策の効果は無いが、０．１Ｂｑ到達時間は２年以下である。

【０１４７】

表６．１～表６．３で示した中性子照射による対策後の可溶物槽、難溶物槽、気体槽で発生した高レベル放射性固体核種の重量と放射能および安定な固体核種の重量を計算で求め、各槽で発生した核種を塩化物として、その沸点により元素分離を行い、安定な核種あるいは同位体の場合は回収し、また再利用可能な放射性核種も回収し、放射性の核種あるいは同位体の場合および放射性の核種あるいは同位体と安定な核種あるいは同位体が混在する場合、その合計した放射能が０．１Ｂｑ以下であれば放射性廃棄物として処理し、０．１Ｂｑ以上であればキャニスター（内容量１５０Ｌ、許容重量５５０ｋｇ以下）に収容しガラス固化体にして処理する。対策により回収できる安定固体、放射性固体、廃棄する固体、ガラス固化して廃棄する固体の重量、放射能を回収率、廃棄ガラス固化率で評価した結果を表８．１に示す。

なお、この重量は核種単体の値であり、塩化物の値ではない。

【０１４８】

【表８－１】

表8．1 ガラス固化核種と回収核種

分類	核種数	6年後重量[g]					6年後放射能[Bq]	
		※未対策	可溶物槽	難溶物槽	気体槽	※対策後	未対策	対策後
放射性可溶物	18	2.280E+05	2.405E+04	5.828E+01	0	2.411E+04	3.790E+17	2.690E+17
放射性難溶物	9	6.679E+04	3.370E-37	3.122E+04	0	3.122E+04	3.681E+15	1.476E+11
放射性固体核種	27	2.948E+05	2.405E+04	3.138E+04	0	5.533E+04	3.827E+17	2.690E+17
安定可溶物	38	4.448E+05	4.319E+05	7.181E+05	1.738E+03	1.152E+06		
安定難溶物	21	3.125E+05	6.342E+05	1.258E+04	0	6.468E+05		
安定固体核種	59	7.573E+05	1.066E+06	7.307E+05	1.738E+03	1.798E+06		
固体核種小計	86	1.052E+06	1.090E+06	7.619E+05	1.738E+03	1.854E+06	3.827E+17	2.690E+17
放射性固体比率	31.40%	28.02%	2.21%	4.11%	0%	2.98%		
回収安定個体	42	4.838E+01	1.066E+06	7.266E+05	1.738E+03	1.793E+06		
回収放射性固体#	3	0	2.402E+04	0	0	2.402E+04	0	1.465E+17
回収固体合計	45	4.838E+01	1.090E+06	7.266E+05	1.739E+03	1.817E+06	0	1.465E+17
回収率	52.33%	0.00%	100.00%	95.36%	100.00%	98.09%	0	54.47%
廃棄処理固体※	12	2.310E+03	1.615E+01	2.440E+04	0	2.441E+04	1.112E-03	8.207E-02
同廃棄固体比率	13.95%	0.22%	0.00%	3.20%		1.32%	0.0%	0.0%
廃棄ガラス固化体	29	1.052E+06	8.581E+00	1.097E+04	0	1.099E+04	3.827E+17	1.225E+17
廃棄ガラス固化率	33.72%	100.00%	0.00%	1.44%	0%	0.59%	100.00%	45.53%
非記載								
放射性可溶物	146	1.496E+05	7.668E-50	1.786E-78	0	7.668E-50	5.448E+17	5.092E-39
放射性難溶物	76	1.625E+05	0	0	0	0	2.985E+16	0
放射性固体核種	222	3.121E+05	7.668E-50	1.786E-78	0	7.668E-50	5.746E+17	5.092E-39
安定可溶物	39	2.708E+05	2.145E-52	0	0	2.145E-52		
安定難溶物	26	2.263E+05	0	0	0	0		
安定固体核種	65	4.970E+05	2.145E-52	0	0	2.145E-52		
固体核種小計	287	8.091E+05	7.689E-50	1.786E-78	0	7.689E-50	5.746E+17	5.092E-39
全核種合計								
放射性固体核種	249	6.068E+05	2.405E+04	3.128E+04	0	5.533E+04	9.573E+17	2.690E+17
安定固体核種	124	1.254E+06	1.066E+06	7.307E+05	1.738E+03	1.798E+06		
放射性気体核種	30	1.575E+05	8.425E-45	0	1.460E+05	1.460E+05	2.206E+16	2.206E+16
安定気体核種	17	2.273E+05	6.057E+03	1.408E+03	2.388E+05	2.463E+05		
全核種合計	420	2.246E+06	1.096E+06	7.634E+05	3.865E+05	2.246E+06	9.794E+17	2.310E+17

#回収放射性固体:38Sr90, 71Lu177m ※合種の合計
38Sr90:安定核種38Sr88とガス遠心分離法による同位体分離 1.068E+06
※ 廃棄処理固体:40Zr90/94/96、48Cd116
難溶物槽の40Zr96(2β)23.47kgは地球存在確率が2.8%で放射能が82.9mBqなので放射性廃棄物として処理できる。
可溶物槽の48Cd116(2β)16.2gは地球存在確率が7.49%で放射能が55.8μBqなので放射性廃棄物として処理できる。

【０１４９】

使用済み核燃料取出し１８０日後のＦＰは、固体核種が１８６１ｋｇ（安定核種；１２２８ｋｇ、放射性核種；６３３ｋｇ）、気体核種が３８５．４ｋｇ（安定核種；２２７．３ｋｇ、放射性核種；１５８．１ｋｇ）であり、未対策で６年間放置すると固体核種が１８６１ｋｇ（安定核種；１２５４ｋｇ、放射性核種；６０７ｋｇ）、気体核種が３８４．８ｋｇ（安定核種；２２７．３ｋｇ、放射性核種；１５７。５ｋｇ）となるが、本発明の実施により６年後に固体核種は１８５３．８ｋｇ（安定核種；１７９８．５ｋｇ、放射性核種；５５．３ｋｇ）、気体核種は３９２．３ｋｇ（安定核種；２４６．３ｋｇ、放射性核種；１４６．０ｋｇ）となり、固体重量は９９．６％に減少し、気体重量は１０２％に増加する。固体の安定核種は１４３．４％に増加し、放射性核種は９．１％に減少しており、気体の安定核種は１０８．４％に増加し、放射性核種は９２．７％に減少している。

未対策で核燃料取出し６年放置後の記載の８６核種１０５２ｋｇに沸点の違いを利用して元素分離をした場合に廃棄するガラス固化核種の重量（非記載の重量を除く）は略同じでガラス固化率は略１００％となるが、対策により可溶物槽（気体槽含む）と難溶物槽に存在する固体の核種単体の重量１０９２ｋｇ、７６２ｋｇの合計重量１８５４ｋｇのうちガラス固化体にする核種の単体重量は夫々８．６ｇと１０．９７ｋｇの合計１０．９９ｋｇであり、ガラス固化体で廃棄する重量は０．５９％に低減できる。これを塩化物に換算すると、可溶物槽（気体槽含む）と難溶物槽に存在する固体の重量は１９２２ｋｇと１０２７ｋｇで、それぞれ７６．０％、３４．８％増加し、ガラス固化する廃棄核種の塩化物重量は１４．６ｇと１９．７ｋｇとなり、それぞれ１．７倍、１．８倍に増加するが、合計しても２０ｋｇ以下であり、ガラス固化体として廃棄するキャニスター１本以内である。

尚、可溶物槽で発生するカドミウムの放射性核種４６Ｃｄ１１６（２β，３．３Ｅ＋１９ｙ）１６．２ｇの放射能は５５．８μＢｑで天然存在比が７．４９％であり廃棄ガラス固化体に含めず廃棄処理固体に含めてある。同様に難溶物槽で発生するジルコニウム（放射性核種４０Ｚｒ９６；２３．５ｋｇと安定同位体４０Ｚｒ９０／９４；０．９ｋｇが混在）２４．４ｋｇの放射性核種Ｚｒ９６（２β,３．９Ｅ＋１９ｙ）の放射能は８２．９ｍＢｑであり天然存在比が２．８０％なので、廃棄ガラス固化体に含めず廃棄処理固体に含めてある。

使用済み核燃料から発生するＦＰで未対策放置６年後の廃棄放射性気体核種の放射能は２２．１ＰＢｑであり、対策による増減は無いが、放射性固体核種の放射能９５７．３ＰＢｑは対策により２６９ＰＢｑと減少し、再利用放射性核種の放射能１４６．５ＰＢｑと

廃棄ガラス固化する放射性核種の放射能１２２．５ＰＢｑとなり、放射性廃棄物として処理するのはジルコニウム（放射性核種４０Ｚｒ９６；２３．５ｋｇと安定同位体Ｚｒ９０／９４；９３１ｇが混在）２４．４ｋｇの放射能８３ｍＢｑとカドミウムの放射性核種（４６Ｃｄ１１６）１６．２ｇの放射能５５．８μＢｑのみとなる。

【０１５０】

（可溶物槽と気体槽で再利用できる回収核種とガラス固化体にする核種）

可溶物槽で回収できる可溶性核種の安定塩化物とその重量（核種単体）は、セレン（３４Ｓｅ８２）が２２．７ｇ、ルビジウム（気体槽３７Ｒｂ８５）が６２３．３ｇ、ストロンチウム（３８Ｓｒ８８）が３２．７ｋｇ、ガドリニウム（６４Ｇｄ１５４／１５５／１５８）が２６．９ｋｇ、ジスプロシウム（６６Ｄｙ１６１／１６２）が７７．１ｋｇ、ホルミウム（６７Ｈｏ１６５）が１４．５ｋｇ、エルビウム（６８Ｅｒ１６７）が１０８．３ｋｇ、イッテルビウム（７０Ｙｂ１７２／１７３）が１７２．４ｋｇ、難溶性核種の安定塩化物とその重量（核種単体）はゲルマニウム（３２Ｇｅ７０／７２／７３）が７６．７ｍｇ、ジルコニウム（４０Ｚｒ９０／９１／９２）が６２．８ｋｇ、スズ（５０Ｓｎ１１７）が９．７５ｋｇ、ハフニウム（７２Ｈｆ１７７／１７８）が５６１．６ｋｇで、可溶物槽（気体槽を含む）では合計１０６８ｋｇであり、これらの塩化物を還元して金属として再利用可能である。

回収できる放射性核種とその重量（核種単体）は、ストロンチウム（３８Ｓｒ９０）の２３．９ｋｇとルテチウム（７１Ｌｕ１７７ｍ／１７７）の１１８．６ｇ、合計で２４．０ｋｇであり、３８Ｓｒ９０（β，２８．８ｙ）は無人機械の動力用エネルギー源の原子力電池に利用でき、７１Ｌｕ１７７（β，６．６５ｄ）は神経内分泌腫瘍の放射性核種療法に利用でき、放射性医薬品「一般名：ルテチウムオキソドトレオチド（１７７Ｌｕ）」に使用される。（出典：日本核医学会）

ガラス固化体にする核種とその重量はイットリウム（放射性同位体３９Ｙ９０／９１）が６．０８ｇ、サマリウム（放射性核種６２Ｓｍ１５１；０．５ｍｇと安定同位体６２Ｓｍ１５２／１５４；０／３μｇ）が０．３μｇ、ユウロピウム（放射性同位体６３Ｅｕ１５４／１５５；２．５ｇと安定核種Ｅｕ１５１；２０．５μｇ）が２．５ｇ、合計で８．６ｇである。

ガラス固化せず放射性廃棄物として廃棄するのは放射能が５５．８μＢｑのカドミウム（４８Ｃｄ１１６）の１６．２ｇである。

【０１５１】

（難溶物槽で再利用できる回収同位体とガラス固化体にする核種）

難溶物槽で回収できる可溶性の安定核種の塩化物とその重量（核種単体）は、ヒ素（３３Ａｓ７５）が５．５ｇ、セレン（３４Ｓｅ７７）が３２．４ｇ、銀（４７Ａｇ１０７／１０９）が７１２．５ｋｇ、カドミウム（４８Ｃｄ１１１／１１４）が２．３８ｋｇ、難溶性の安定塩化物とその重量（核種単体）は、モリブデン（４２Ｍｏ９７／９８）が５．２６ｋｇ、ルテニウム（４４Ｒｕ１０１）が６．３９ｋｇで、合計７２６．６ｋｇであり、これらの塩化物を還元して金属として再利用可能である。

回収できる放射性核種は無い。

ガラス固化体にする核種と、その重量（核種単体）はパラジウム（放射性核種４６Ｐｄ１０７）が７．７６ｋｇ、スズ（放射性核種５０Ｓｎ１２６；４．９ｍｇと安定同位体Ｓｎ１１４／１１６／１２２／１２４；７１ｐｇ）が４．９ｍｇ、アンチモン（放射性同位体５１Ｓｂ１２４／１２５／１２６ｍ／１２６；０．２５ｎｇと安定核種Ｓｂ１２３；０．７ｎｇ）が０．９５ｎｇ、テルル（放射性同位体５２Ｔｅ１２５ｍ／１２７／１２７ｍ／１２８；５８．３ｇと安定同位体５２Ｔｅ１２２／１２４／１２５／１２６；３．１５ｋｇ）が３．２１ｋｇで、合計１０．９７ｋｇである。

また、前述した様に、ガラス固化せず放射性廃棄物として廃棄するのは放射能が８３ｍＢｑのジルコニウム（４８Ｃｄ１１６）の２４．４ｋｇである。

なお、ガラス固化体にする４６Ｐｄ１０７のσｐは熱中性子（０．０２５３ｅＶ）に対して９．９と大きいので熱中性子照射により４６Ｐｄ１０９ｍに核種変換すれば、Ｐｄ１

０９ｍ（ＩＴ，３．１ｓ）→Ｐｄ１０９（β，１３．６ｈ）→４７Ａｇ１０９ｍ（ＩＴ，３９．８ｓ）→Ａｇ１０９（安定）と壊変し、照射４１．２日後に放射性核種の放射能が０．１Ｂｑ以下となり、安定な４７Ａｇ１０９の７．７６ｋｇとして回収され、対策後の安定固体回収率は９６．７％から９７．２％に、廃棄ガラス固化比率が０．５９％から０．２％に向上する。

【０１５２】

使用済み核燃料１ｔからガラス固化体（高レベル放射性廃棄物）が約１．２５本作られる。（中国電力ホームページｈｔｔｐｓ：／／ｗｗｗ．ｅｎｅｒｕｇｉａ．ｃｏ．ｊｐ）一般的に１００万ｋＷの原子力発電からウラン２３５の濃度が３．７％（５％）の場合、年間約３１．５ｔ（２２．６ｔ）の使用済み核燃料が出され、これから約１５．８m^3（１１．３m^3）の高レベル放射性廃液を生じ、約３２本（２３本）のガラス固化体が作られるといわれている。（日本原子力研究開発機構　原子力百科事典　ＡＴＯＭＩＣＡ）

福島第一原発の２号機（電気出力７８．４万ｋＷ）の核燃料はＵ２３５濃度が３．７％であり、１年間の発電に必要な核燃料は２４．４ｔであるので、ガラス固化体を求めると前者からは３１本、後者からは２５本となる。核燃料取り出し１８０日後のＦＰで固体核種単体の重量１．８６ｔ（固体核種の塩化物重量を計算で求めると、核種単体重量の１．６２倍ある）は塩化物重量に換算すると３．０ｔとなり．本発明の実施によりガラス固化体にする核種単体の重量を１１．０ｋｇ（塩化物換算で１７．８ｋｇ）と低減でき、ガラス固化体とするキャニスターは前者の計算では０．２９本、後者の計算で０．２４本となる。

さらに、核燃料取り出しから数年以上放置される場合を考慮して、核燃料取出し１０年後の核種について本発明の方法を適用して同様に処理した場合、すなわち核燃料取り出しから１６年間放置された場合と対策１６年後の計算した結果を表８．２に示す。

【０１５３】

【表８－２】

表8.2 ガラス固化核種と回収核種(10年放置後)

分類	核種数	16年後重量(g)					16年後放射能(Bq)	
		※未対策	可溶物槽	難溶物槽	気体槽	＊対策後	未対策	対策後
放射性可溶物	16	2.199E+05	2.096E+04	4.925E+01	0	2.103E+04	2.651E+17	2.245E+17
放射性難溶物	9	6.670E+04	4.540E−41	3.299E+04	0	3.299E+04	2.998E+14	1.541E+11
放射性固体核種	27	2.866E+05	2.096E+04	3.304E+04	0	5.402E+04	2.654E+17	2.245E+17
安定可溶物	38	4.612E+05	4.321E+05	7.208E+05	1.489E+03	1.154E+06		
安定難溶物	21	3.194E+05	6.304E+05	1.567E+04	0	6.461E+05		
安定固体核種	59	7.806E+05	1.002E+06	7.365E+05	1.489E+03	1.800E+06		
固体核種小計	86	1.057E+06	1.093E+06	7.695E+05	1.489E+03	1.854E+06	2.654E+17	2.245E+17
放射性固体比率	31.40%	26.86%	1.94%	4.29%	0%	2.91%		
回収安定個体	42	5.016E+01	1.062E+06	7.303E+05	1.489E+03	1.794E+06		
回収放射性固体＃	3	2.539E+04	2.096E+04	0	0	2.096E+04	0	1.174E+17
回収固体合計	45	2.544E+04	1.083E+06	7.303E+05	1.489E+03	1.815E+06	0	1.174E+17
回収率	52.33%	2.38%	100.00%	94.90%	100.00%	97.88%	0	52.30%
廃棄処理固体	12	2.310E+03	1.614E+01	2.826E+04	0	2.828E+04	1.112E−03	8.800E−02
同廃棄固体比率	13.95%	0.22%	0%	3.67%		1.53%	0.0%	0.0%
廃棄ガラス固化体	28	9.923E+05	7.727E+00	1.097E+04	0	1.097E+04	2.654E+17	1.071E+17
廃棄ガラス固化率	33.72%	92.98%	0.00%	1.43%	0%	0.59%	100.00%	47.70%
非記載								
放射性可溶物	146	1.353E+05	4.865E−81	9.569E−86	0	4.865E−81	3.500E+17	2.118E−65
放射性難溶物	76	1.624E+05	0	0	0	0	8.168E+13	0
放射性固体核種	222	2.977E+05	0	0	0	0	3.500E+17	0
安定可溶物	38	2.708E+05	0	0	0	0		
安定難溶物	26	2.264E+05	0	0	0	0		
安定固体核種	65	4.971E+05	0	0	0	0		
固体核種小計	287	7.948E+05	4.865E−81	9.569E−86	0	4.865E−81	3.500E+17	2.118E−65
全核種合計								
放射性固体核種	249	5.843E+05	2.096E+04	3.304E+04	0	5.402E+04	6.154E+17	2.245E+17
安定固体核種	124	1.278E+06	1.062E+06	7.365E+05	1.489E+03	1.800E+06		
放射性気体核種	30	1.568E+05	0	0	1.453E+05	1.453E+05	2.206E+16	2.206E+16
安定気体核種	17	2.273E+05	6.081E+03	1.408E+03	3.386E+05	2.463E+05		
全核種合計	420	2.246E+06	1.090E+06	7.709E+05	3.856E+05	2.246E+06	6.375E+17	2.466E+17

＊各槽の合計

383r90：安定核種383r88とカス通しから算出による質量核種

※ 高速処理重核：402r90.94r99、48Cd116

難溶物からのZr96の6.59E+04gは、ほぼ対応廃棄物からの93Zrの放射能の87.6mBqからの放射性廃棄物としての扱いが可能である。
気体からの48Cd116の1.489E+03gは、ほぼ対応廃棄物からの113mCdの放射能の83.8MBqからの放射性廃棄物としての扱いができる。

【０１５４】

核種重量について未対策で放置１６年後と放置６年後を比較すると、固体では、放射性核種では９６．３％に減少し、安定核種では１０１．９％と増加し、放射性核種から安定核種への壊変が進み、気体では、放射性核種は９９．６％に減少するが、安定核種は１００％と変化しない。気体の放射性核種は壊変で安定な気体には壊変せず、固体に壊変していると考えられる。対策により、１０年間放置後の使用済み核燃料から回収する安定固体の重量は１８１５ｋｇで殆ど変わらず、回収放射性固体の重量が２０．９６ｋｇで１３％

ほど低下し、廃棄ガラス固化体の重量は１０．９７ｋｇと１７ｇ減少しただけで殆ど変わらず、廃棄処理固体の重量が２８．２８ｋｇで１５．８％増加する。使用済み核燃料を１０年間放置した場合でも、廃棄ガラス固化体化率は使用済み核燃料取り出し１８０日後の対策後の値と略同じであり、本発明の効果はあると考えられる。

【０１５５】

〔参考文献〕および〔データ引用元〕

〔参考文献１〕桜井勉、高橋昭「再処理中のヨウ素の挙動」ＪＡＥＲＩ－Ｒｅｖｉｅｗ９７－００２日本原子力研究所、
ｈｔｔｐｓ：／／ｄｏｉ．ｏｒｇ／１０．１１４８４／ｊａｅｒｉ－ｒｅｖｉｅｗ－９７－００２

〔参考文献２〕特開平０５－０７２３９０号公報　１４ＣＯ２の処理方法　財団法人産業創造研究所

〔参考文献３〕田川博章「硝酸塩の熱分解」横浜国大環境研紀要　１４：ｐ.４１－５７（１９８７）
ｈｔｔｐｓ：／／ｙｎｕ．ｒｅｐｏ．ｎｉｉ．ａｃ．ｊｐ／

〔参考文献４〕木下賢介、倉田正輝「高レベル廃液からの超ウラン元素の分離技術」電力中央研究所レビューＮｏ．３７、ｐ４９－５８
ｈｔｔｐｓ：／／ｃｒｉｅｐｉ．ｄｅｎｋｅｎ．ｏｒ．ｊｐ／ｋｏｈｏ／ｒｅｖｉｅｗ／Ｎｏ３７／ｃｈａｐ－６．ｐｄｆ

〔データ引用元１〕ＩＡＥＡ Ｎｕｃｌｅａｒ Ｓｔｒｕｃｔｕｒｅ ａｎｄ Ｄｅｃａｙ Ｄａｔａ；ＩＡＥＡ Ｎｕｃｌｅａｒ Ｄａｔａ Ｓｅｃｔｉｏｎ，Ｖｉｅｎｎａ Ｉｎｔｅｒｎａｔｉｏｎａｌ Ｃｅｎｔｒｅ，ＰＯ Ｂｏｘ１００ Ａ－１４００ Ｖｉｅｎｎａ，Ａｕｓｔｒｉａ
ｈｔｔｐｓ：／／ｗｗｗ－ｎｄｓ．ｉａｅａ．ｏｒｇ／ｒｅｌｎｓｄ／ｖｃｈａｒｔｈｔｍｌ／ＶＣｈａｒｔＨＴＭＬ．ｈｔｍｌ

〔データ引用元２〕日本原子力研究開発機構　核データ研究グループ　ＪＥＮＤＬ－５
ｈｔｔｐｓ：／／ｗｗｗｎｄｃ．ｊａｅａ．ｇｏ．ｊｐ／ｊｅｎｄｌ

〔データ引用元３〕西原 健司、岩元 大樹、須山 賢也「福島第一原子力発電所の燃料組成評価」ＪＡＥＡ－Ｄａｔａ／Ｃｏｄｅ　２０１２－０１８，日本原子力研究開発機構
ｈｔｔｐｓ：／／ｊｏｐｓｓ．ｊａｅａ．ｇｏ．ｊｐ／ｐｄｆｄａｔａ／ＪＡＥＡ－Ｄａｔａ－Ｃｏｄｅ－２０１２－０１８．ｐｄｆ

【産業上の利用可能性】

【０１５６】

本実施例では、東京電力福島第一発電所の第二号機の使用済み核燃料の取出し１８０日後と、１０年後のＦＰのうち固体核種についてガラス固化する核種重量を計算したが、他の原子力発電所で生じる使用済み核燃料で発生するＦＰの重量が与えられれば、本実施例のワークシートを適用して、ガラス固化する核種重量を求めることができる。さらに、本発明の実施により、原子力発電で発生した使用済み核燃料の高レベル放射性廃棄物のガラス固化体の割合を１％以下に低減できるので高レベル放射性廃棄物貯蔵場の必要面積が減り、保管管理が容易となり、廃棄物貯蔵場所の選択肢を広げ、更に、供給電力に占める原子力発電の比率を高めるための布石となり、地球温暖化の抑止に寄与できると考える。

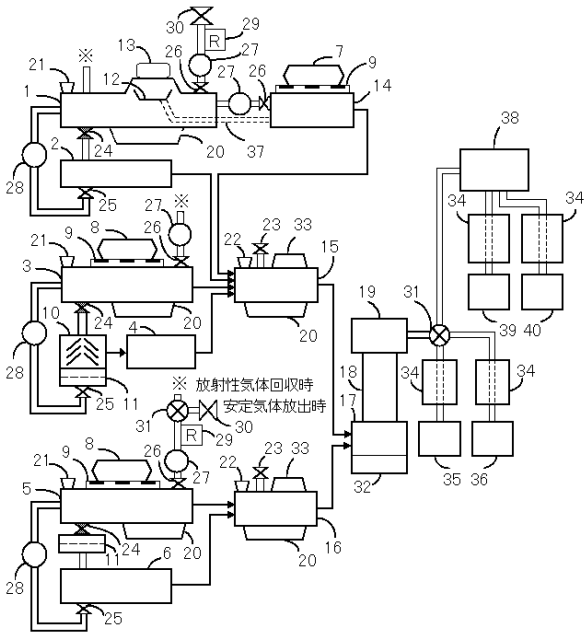
【符号の説明】

【０１５７】

１　気体槽
２　固体槽
３　可溶物槽
４　難溶物槽Ａ
５　難溶物槽
６　可溶物槽Ｂ
７　熱中性子源装置

８　冷中性子源装置
９　中性子照射シャッター
１０　固液分離装置
１１　ろ過装置
１２　液体ヨウ素受け皿
１３　冷却装置
１４　ヨウ化物槽
１５　塩化物槽１（固化装置付き）
１６　塩化物槽２（固化装置付き）
１７　気化装置
１８　精留塔
１９　凝縮器
２０　加熱装置
２１　硝酸溶液注入口
２２　塩酸溶液注入口
２３　塩素ガス注入口
２４　バルブ（液体用）
２５　逆流防止付きバルブ（液体用）
２６　逆流防止付きバルブ（気体用）
２７　真空ポンプ
２８　液体還流ポンプ
２９　放射線量モニター
３０　気体放出バルブ
３１　流路切替えバルブ
３２　温度制御付き加熱装置
３３　硝酸回収装置
３４　冷却装置
３５　安定核種回収槽
３６　ガラス固化核種回収槽
３７　液化ヨウ素取出し管
３８　ガス遠心分離装置
３９　重核種回収槽
４０　軽核種回収槽

【図面】
【図１】



フロントページの続き

(56)参考文献　　特開平１０－０４８３９０（ＪＰ，Ａ）
特開昭５６－１２５６９８（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野　(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｇ２１Ｆ　９／００
Ｇ２１Ｆ　９／３０
Ｇ２１Ｆ　９／０２