資 料

東海再処理施設における排水中の超ウラン核種等に関する調査

河野 恭彦^{*1}, 檜山 佳典^{*1}, 中野 政尚^{*1}, 武石 稔^{*1}

(2009 年 3 月 18 日受理)

(2009 年 5 月 7 日再受理)

Survey of Transuranium Nuclides in Low Level Liquid Effluents from the Tokai Reprocessing Plant

Takahiko KONO,^{*1} Yoshinori HIYAMA,^{*1} Masanao NAKANO^{*1} and Minoru TAKEISHI^{*1}

We surveyed the concentration levels of Transuranium (TRU) nuclides in the effluent discharged from the Tokai Reprocessing Plant (TRP) from 1998 to 2003 for Light Water Reactor (LWR) Fuel Reprocessing. The survey was performed for upcoming the effluent monitoring in Fast Breeder Reactor (FBR) Fuel Reprocessing. It was confirmed that the TRU nuclides concentration discharged from the TRP was $1/150 \sim 1/10^6$ much lower than the concentration limits authorized in governmental notification. Then, we compared the normalized discharge amounts by the unit of generated energy from the TRP with those from the foreign reprocessing plants. As a result, the TRP has reduced the amounts of discharged nuclides, by the order of $1/100 \sim 1/10^7$ compared with foreign ones. This survey provided the important and basic data in order to compare the effluent of TRU nuclides in FBR and the present nuclear fuel cycles.

KEY WORDS: Transuranium (TRU) Nuclide, Minor Actinide (MA), Radiochemical Analysis, low level liquid effluents, Fast Breeder Reactor (FBR) cycle, Normalized Discharge Amount, Reprocessing, ORIGEN, Radioactivity Ratio.

I 緒 言

東海再処理施設は、使用済核燃料中に含まれるウラン (U) 及びプルトニウム (Pu) を新たな燃料として有効利用するために、ピューレックス法によって、U 及び Pu を抽出する施設である。ピューレックス法とは使用済核燃料を硝酸で溶解後、TBP (トリブチルリン酸) — ドデカンを用いた溶媒抽出等を行い、核燃料物質と核分裂生成物を分離する方法である。この過程で生じる液体廃棄物のうち、高・中レベル廃液は施設内に貯蔵されるが、中レベル廃液を処理した凝縮液や、放射線防護衣等の洗濯や機器等の除染などの雑廃液等の低レベル廃液を処理した後の廃液は、液体廃棄物として海洋に放出され

る。このときの放出量は、当研究所の再処理施設保安規定に定められる放出基準値を超えないように管理されている。また施設周辺の住民の線量当量は、年間約 0.022 mSv と評価されている。この評価結果は、再処理事業指定申請書に基づいて評価された気体・液体廃棄物の環境放出の合計で年間約 0.018 mSv、さらにスカイシャイン γ 線を加えたものであり、公衆の線量限度 1 mSv に比べて十分に低い。

海洋放出される液体廃棄物のモニタリング (以下、「排水モニタリング」と記す) では、主な核種 (^3H , ^{90}Sr , ^{129}I , ^{137}Cs 等) の他, Pu (α) (^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ の和) の α 線放出核種についても測定が行われている。ただし, Pu 以外の α 線放出核種は、その濃度レベルが低いので、核種毎ではなく、 α 線放出核種の全放射能量 (全 α 放射能) として測定、管理がなされている。

しかし、ウラン資源の有効な利用を進めるためには高速増殖炉サイクルが必要である¹⁾。高速増殖炉サイクルにおいては、混合酸化物燃料を高燃焼度で利用すること

^{*1} (独) 日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所; 茨城県那珂郡東海村村松 4-33 (〒 319-1194)
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories, Japan Atomic Energy Agency; 4-33 Muramatsu Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1194, Japan.

から、これまで東海再処理施設で処理してきた低濃縮ウラン燃料処理時に比べて、使用済燃料中にマイナーアクチニド (MA; Minor Actinide) 核種を含めた TRU 核種の含有量が多くなる。このため、排水放出管理上、MA 核種を含めた TRU 核種のモニタリングは極めて重要になると考えられる。また、これらの核種は実効線量係数が大きく、環境へ多量に放出された場合には、公衆の線量評価上においても重要となる。よって、排水中のこれらの核種の濃度、放出量を把握することが必要となってくる。

そこで今回の調査では、高速増殖炉燃料再処理時の放出管理に向けた前段階として、軽水炉燃料再処理時における排水中 TRU 核種等の濃度確認を行うために、下記の 1～3 を行った。

1. 供試量を可能な限り増やし、検出限界値を下げることで、通常の放出モニタリングで Pu (α) として合算している ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ を別々に取り扱い、また全 α 放射能として一括管理している ^{237}Np 及び ^{241}Am といった TRU 核種の濃度レベルを調査する。さらに ^{99}Tc は、比較の実効線量係数が大きく、また半減期も長いので、環境への影響が懸念されることから、TRU 核種と合わせて調査する。
2. 取得した東海再処理施設の上記核種の放出量を、使用済燃料が発電した電力量で規格化することによって、海外再処理施設と放出量を比較する。
3. 東海再処理施設の実測値の妥当性を確認するために、燃焼計算コードによる燃料中の放射能比と、再処理施設内における除染係数から、排水中の放射能比を算出し、実測値と比較する。

軽水炉燃料再処理時の排水中濃度把握は、混合酸化物燃料再処理時の濃度を解釈する上での参考資料になると考えられる。また今回の調査で、必要となる TRU 核種等の検出限界値が明確になり、合理的に TRU 核種等の供試量を設定することが出来る。

II 分析・解析方法

1. 調査期間及び調査対象核種

今回の調査対象核種は、 ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{237}Np , ^{99}Tc の 4 元素 7 核種である。ただし ^{239}Pu と ^{240}Pu は、 α 線スペクトロメトリーでは α 線のエネルギーが近接しており分離できないため、合算した値 (まとめて $^{239,240}\text{Pu}$ と記す) として求めた。

調査期間は 1998 年 4 月～2004 年 3 月の 6 年間である。今回の調査期間において、前半の 1998 年 4 月～2000 年

3 月の 2 年間は、計画停止のため、再処理施設の処理運転は行われなかった。その後、2000 年 4 月～2004 年 3 月の 4 年間は、再処理施設の運転が行われている。

2. 合成試料作製方法

東海再処理施設から排水を海洋放出する際、放出前に排水を一旦タンクに貯留する。タンク内の排水を均一に攪拌し、当研究所放射線管理部で実施している排水の放出判定分析により放出基準値を下回っていることを確認した後、貯留タンクから海中放出管を通して、排水を沖合 3.7 km の海洋に放出している (パッチ放出)。

調査対象核種を分析するにあたり、各核種の供試量は分析の処理が可能な量を考慮に入れて、各核種の分析法の検出下限値と予測される排水中放射能濃度から求めた。予測される排水中放射能濃度は、これまで試験的に実施した TRU 核種を分析・測定してきた値を参考にした。その結果、 ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ は 120 ml, ^{241}Pu は 80 ml, ^{241}Am は 200 ml, ^{237}Np は 10,000 ml, ^{99}Tc は 8,000 ml の供試量が必要である。

上記の供試量を得るために、複数のパッチから少しずつ排水を集めた。これは、合成試料と呼ばれる。 ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , ^{241}Am は月毎, ^{237}Np , ^{99}Tc は四半期毎に、各パッチの放出排水量に応じた合成試料をそれぞれ以下の方法で作製した。

当該月、あるいは当該四半期におけるパッチ k の放出水量を V_k (m^3), 核種 i の供試量を W_i (ml) とすると、パッチ試料 k からの核種 i の分取量 $B_{i,k}$ (ml) は、

$$B_{i,k} = \frac{V_k}{\sum_k V_k} \times W_i \quad (1)$$

つまり、

$$W_i = \sum_k B_{i,k} \quad (2)$$

となる。

3. 分析手法

排水中 Pu の分析法は、「核燃料サイクル工学研究所標準分析作業法 放出管理編 (以下、標準作業分析法)」²⁾ 及び Y. UEZU et al. (2000)³⁾ に従った。しかし、Am, Np の分析法は標準作業分析法に記載されていないため、文部科学省「放射能測定法シリーズ」(以下、測定法シリーズ)⁴⁾ を参考に、排水試料に適した分析法に改良した。上記の測定法シリーズは環境試料を対象とした分析法である。環境試料はマトリックスや夾雑物が多いが、今回の調査で取扱う排水試料は蒸発処理等を経たものであり、不純物がほとんど含まれていないため、環境試料で行う分析ほど他元素の除去を行う必要がない。そこで当

研究所では、今回の調査で用いる排水試料が環境試料ほどの前処理は必要ないことから、測定法シリーズの前処理の工程を短縮して、Am, Np の排水分析を行った。なお、Tc に関しては M. TAKEISHI et al. (2005)⁵⁾ に従い、分析を行った。それぞれの核種の分析法は以下の通りである。

(1) ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Pu 分析

分析フローを Fig. 1 に示す。供試料 200 ml に分析回収率補正用トレーサーとして ^{242}Pu を約 0.1 Bq 添加後、蒸発乾固し、硝酸、過塩素酸で有機物分解を行った。次に硝酸系の陰イオン交換樹脂 (DOWEX1×8 [100–200 mesh]) に Pu を吸着させ、U 等の他元素を取り除いてから、ヨウ化水素酸で Pu を四価から三価に還元し、樹脂から溶離した。溶離液を蒸発乾固し、塩酸で加熱溶解して放冷後、メスフラスコに移し、蒸留水で 20 ml に定容した。その溶液を 3 : 2 に分け、 ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ は 12

Fig. 1 Analytical flow of Pu (α) and ^{241}Pu in effluents.

ml, 軟 β 線を放出する ^{241}Pu は 8 ml に供して、以下の分析を行った。

前者は、溶液を蒸発乾固し、硫酸で加熱溶解、放冷後、pH を調整し、電着セルに少量の水を用いて移した。あらかじめ 0.1 mol/L 硝酸で洗浄した直径 24.5 mm のステンレス製の電着板をセットした直流電着装置を用いて、DC 0.8 A で 2 時間通電し、Pu を電着した。さらに、電着セルを電着装置から取り外す前にアンモニア水を 2 ~ 3 滴加え、1 分間通電した。電着板を赤外線ヒーターに焼き付けて放冷後、シリコン半導体検出器に接続した α 線波高分析装置 (Si 半導体検出器 有感面積 450 mm² 検出器系, EG & G ORTEC) で 68,000 ~ 80,000 秒測定した。測定で得られた ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ それぞれの計数率を Si 半導体検出器の計数効率、供試量 120 ml で除して、 ^{238}Pu と $^{239,240}\text{Pu}$ の放射能濃度を求めた。

後者は、20 ml ガラスバイアルにホールピペットで 8 ml

Fig. 2 Analytical flow of ^{241}Am in effluents.

分取し、アクアゾルⅡを12 ml加えた後、ガラスバイアルを湯浴で加温し、良く攪拌して均一にさせた。ガラスバイアル試料を液体シンチレーションカウンタ (Wallac 1414) にセットし、試料中の化学発光が収まるまで約2時間置いた後、 ^{241}Pu の β 線を30,000秒測定した。

検出限界値は、 ^{238}Pu 及び $^{239,240}\text{Pu}$ が約 $3.7 \times 10^{-5} \text{ Bq/cm}^3$ 、 ^{241}Pu が約 $6.0 \times 10^{-4} \text{ Bq/cm}^3$ である。

(2) ^{241}Am 分析

分析フローを Fig. 2 に示す。供試料200 mlに分析回収率補正用トレーサーとして ^{243}Am を約0.1 Bq添加後、鉄担体20 mg加え、煮沸させた。そこへ水酸化鉄(Ⅱ)沈殿が生じるまでアンモニア水を加え、沈殿が生じた後、加温熟成させ、No. 5Aろ紙でろ過した。沈殿物を硝酸で溶解させた。放冷後、硝酸系の陰イオン交換樹脂(DOWEX 1×8 [100–200 mesh])に通液し、Th, PuからAmを分離した。分離した溶液は、蒸発乾固後、塩酸で加熱溶解させた。放冷後、塩酸系の陰イオン交換樹脂(DOWEX 1×8 [100–200 mesh])によりFe, Uを樹脂に吸着させ、Amを分離した。蒸発乾固後、濃硝酸を加

え加熱溶解、濃縮し、メタノールを加え、アルコール系の陰イオン交換樹脂(DOWEX 1×4 [100–200 mesh])で、まずAmを樹脂に吸着させつつ、溶液中の希土類元素とチオシアン酸イオン(陰イオン交換の試薬で使用)を取り除いてから、Amを溶離した。Am溶離液を蒸発乾固させ、硫酸で加熱溶解し、pH調整後、前述したPu分析と同様に電着した。電着後、シリコン半導体検出器を用いた α 線スペクトロメリーにより、 ^{241}Am を測定した。測定時間は68,000～80,000秒、検出限界値は約 $1.0 \times 10^{-5} \text{ Bq/cm}^3$ である。

(3) ^{237}Np 分析

分析フローを Fig. 3 に示す。供試料10,000 mlに硝酸、鉄担体20 mgを加え、サンドバス上で1,000 mlまで濃縮させた。分析回収率補正用トレーサーとして、 ^{243}Am からミルキングした ^{239}Np を約200 Bq添加し、過酸化水素水を加え、加熱煮沸させた。そこへ水酸化鉄(Ⅱ)沈殿が生じるまでアンモニア水を加え、沈殿が生じた後、加温熟成させ、メンブレンフィルター(孔径 $3.0 \mu\text{m}$, 直径49 mm Millipore)でろ過した。沈殿物を温塩酸で

Fig. 3 Analytical flow of ^{237}Np in effluents.

Fig. 4 Analytical flow of ^{99}Tc in effluents.

Table 1 Annual averaged radionuclides concentration in the TRP's effluents from 1998 to 2003

Fiscal year	Discharged amounts(m ³)	Annual averaged concentration(Bq/cm ³)					
		²³⁸ Pu	^{239, 240} Pu	²⁴¹ Pu	²⁴¹ Am	²³⁷ Np	⁹⁹ Tc
1998	11,150	$3.0 \times 10^{-5} \pm 4.1 \times 10^{-6}$	$1.3 \times 10^{-5} \pm 2.7 \times 10^{-6}$	$5.2 \times 10^{-4} \pm 1.2 \times 10^{-4}$	$1.3 \times 10^{-5} \pm 1.9 \times 10^{-6}$	$5.4 \times 10^{-8} \pm 1.3 \times 10^{-8}$	$1.2 \times 10^{-6} \pm 1.8 \times 10^{-7}$
1999	14,409	$3.1 \times 10^{-5} \pm 3.6 \times 10^{-6}$	$1.2 \times 10^{-5} \pm 2.3 \times 10^{-6}$	$5.5 \times 10^{-4} \pm 1.1 \times 10^{-4}$	$1.1 \times 10^{-5} \pm 1.9 \times 10^{-6}$	$8.3 \times 10^{-8} \pm 1.3 \times 10^{-8}$	$8.3 \times 10^{-6} \pm 2.6 \times 10^{-7}$
2000	28,986	$6.6 \times 10^{-5} \pm 7.0 \times 10^{-6}$	$2.8 \times 10^{-5} \pm 4.4 \times 10^{-6}$	$1.3 \times 10^{-3} \pm 1.3 \times 10^{-4}$	$2.1 \times 10^{-5} \pm 2.8 \times 10^{-6}$	$3.8 \times 10^{-8} \pm 9.7 \times 10^{-9}$	$2.1 \times 10^{-5} \pm 3.6 \times 10^{-7}$
2001	38,785	$7.7 \times 10^{-5} \pm 6.2 \times 10^{-6}$	$3.4 \times 10^{-5} \pm 4.9 \times 10^{-6}$	$1.5 \times 10^{-3} \pm 1.2 \times 10^{-4}$	$1.3 \times 10^{-5} \pm 2.4 \times 10^{-6}$	$3.1 \times 10^{-8} \pm 1.0 \times 10^{-8}$	$1.4 \times 10^{-5} \pm 3.2 \times 10^{-7}$
2002	28,819	$1.2 \times 10^{-4} \pm 8.4 \times 10^{-6}$	$5.6 \times 10^{-5} \pm 6.7 \times 10^{-6}$	$2.5 \times 10^{-3} \pm 1.4 \times 10^{-4}$	$2.3 \times 10^{-5} \pm 2.8 \times 10^{-6}$	$6.2 \times 10^{-8} \pm 1.1 \times 10^{-8}$	$9.0 \times 10^{-6} \pm 2.2 \times 10^{-7}$
2003	27,547	$1.3 \times 10^{-4} \pm 7.6 \times 10^{-6}$	$6.5 \times 10^{-5} \pm 5.1 \times 10^{-6}$	$3.1 \times 10^{-3} \pm 1.5 \times 10^{-4}$	$1.7 \times 10^{-5} \pm 2.1 \times 10^{-6}$	$4.4 \times 10^{-8} \pm 1.2 \times 10^{-8}$	$5.8 \times 10^{-6} \pm 2.1 \times 10^{-7}$
Concentration Limit ⁽⁶⁾		4.0×10^{-3}	$8.0 \times 10^{-3}(*2)$	2.0×10^{-1}	5.0×10^{-3}	9.0×10^{-3}	1.0×10^0

(*1) Error was calculated from standard deviation of monthly or quarterly averaged concentration.

(*2) The concentration limit of ^{239, 240}Pu is sum of those of ²³⁹Pu and ²⁴⁰Pu.

溶解後、溶液を分液ロートに入れ、イソプロピルエーテルとの溶媒抽出により、溶液中の鉄を取り除いた。次にトリ-n-オクチルアミン (TOA) との溶媒抽出、そして硝酸と2テノイルトリフルオロアセトン (TTA) キシレンの溶媒抽出により、溶液中のUを分離させた。その後、酢酸系の陰イオン交換樹脂 (DOWEX 1×8 [100-200 mesh]) により、まず溶液中に残るUを分離してから、Npを溶離させた。溶離液を蒸発乾固させ、硫酸で加熱溶解後、pH調整し、前述したPu分析と同様に電着した。電着後、シリコン半導体検出器を用いたα線スペクトロメトリーにより、²³⁷Npを測定した。測定時間は600,000秒、検出限界値は約 5.0×10^{-8} Bq/cm³である。なお、分析回収率はGe半導体検出器 (高純度Ge半導体検出器, EG & G ORTEC) で²³⁹Npのピークを定量して求めた。

(4) ⁹⁹Tc分析

分析フローを Fig. 4 に示す。供試料 8,000 ml に分析回収率補正用トレーサーとして ^{95m}Tc を約 0.1 Bq 添加し、塩酸、硫酸鉄・七水和物、塩化鉄 (II) を加え、沈殿が生じるまでアンモニア水を良く攪拌させながら加えた。(ここで水溶液中の Tc は、Tc (VII) から Tc (II) に還元され、水酸化鉄 (II) に共沈される。) 加温熟成後、沈殿物をメンブレンフィルター (孔径 0.45 μm, 直径 90 mm Millipore) でろ過した後、沈殿物を硫酸で洗浄し、過酸化カリウムを加え、加熱溶解させた。放冷後、① 200 ml 分液ロートに移し、TBP 15 ml, フッ化水素 2 ml を加え、3 分間振とうし、10 分間放置後、水相を取り除いた。②硫酸 25 ml, フッ化水素酸 0.5 ml を加え、振とうさせ、5 分間放置後、水相を取り除いた (②の操作を 2 ~ 3 回繰り返す)。③キシレン 45 ml, 水酸化ナトリウム溶液 (約 8 重量%) 15 ml を加え、3 分間振とうさせ、

10 分間静置後、水相を別の 200 ml 分液ロートに移し、濃硫酸 1 ml, 硫酸 84 ml 加え、再び①~③の抽出操作を繰り返した。2 回目抽出作業が終了後、逆抽出液 (水相) を電着セルに移し、少量の蒸留水を加え、電着装置にセットした (DC 0.3 A で 2 時間通電)。電着セルを電着装置から取り外す前にアンモニア水 2 ~ 3 滴加え、1 分間通電した。赤外線ヒーターに焼き付けて放冷後、2π ガスフローカウンタ (LBC 480, ALOKA) で ⁹⁹Tc を測定した。測定時間は、54,000 秒、検出限界値は約 1.0×10^{-6} Bq/cm³ である。なお、分析回収率は Ge 半導体検出器で ^{95m}Tc のピークを定量して求めた。

4. 年度放出放射能及び年度平均濃度算出方法

年度間の放出放射能量は、排水試料の分析結果に当該試料の放出水量を乗じて算出した。また、年度平均濃度は、上記で求めた年度間放出放射能量を年度間の放出水量で除して算出した。年度放出放射能量及び年度平均濃度算出方法の詳細な算出方法は、下記の通りである。

ある月あるいはある四半期の合成試料中の核種 i の濃度を C_i (Bq/cm³)、j 月あるいは第 j 四半期の放出水量を V_j (cm³) とすると、核種 i の年度放出放射能 A_i (Bq) は、式 (3) により求められる。

$$A_i = \sum_j (C_i \times V_j) \quad (3)$$

また年度平均濃度 D_i (Bq/cm³) は式 (4) により求められる。

$$D_i = \frac{A_i}{\sum_j V_j} \quad (4)$$

III 結果及び考察

1. 年度平均放射能濃度及び放出放射能

東海再処理施設における 1998 ~ 2003 年度の各核種の

Fig. 5 Discharge amount of radionuclides from the TRP and the energy generated by the reprocessed fuels.

年平均放射能濃度を告示別表の排水中濃度限度(第6欄)⁶⁾と合わせて, Table 1に示す。Table 1では, 主に統計変動による計数不確かさ(標準偏差)の3倍を誤差として示している。各核種の年平均放射能濃度は次の通りであった。

$$^{238}\text{Pu} : 3.0 \times 10^{-5} \sim 1.3 \times 10^{-4} \text{ (Bq/cm}^3\text{)}$$

$$^{239, 240}\text{Pu} : 1.2 \times 10^{-5} \sim 6.5 \times 10^{-5} \text{ (Bq/cm}^3\text{)}$$

$$^{241}\text{Pu} : 5.2 \times 10^{-4} \sim 3.1 \times 10^{-3} \text{ (Bq/cm}^3\text{)}$$

$$^{241}\text{Am} : 1.1 \times 10^{-5} \sim 2.3 \times 10^{-5} \text{ (Bq/cm}^3\text{)}$$

$$^{237}\text{Np} : 3.1 \times 10^{-8} \sim 8.3 \times 10^{-8} \text{ (Bq/cm}^3\text{)}$$

$$^{99}\text{Tc} : 1.2 \times 10^{-6} \sim 2.1 \times 10^{-5} \text{ (Bq/cm}^3\text{)}$$

上記の各年平均濃度は告示別表⁶⁾に示される排水中濃度限度に比べて, 約 $1/150 \sim 1/10^6$ と極めて低いレベルであった。

また, 式(3)によって求めた放出放射能量と, 発電電力量に換算した燃料処理量の年度推移を Fig. 5に示

す。Pu (α), ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{99}Tc は, 2000年度からの再処理施設の運転再開に伴い, 放出放射能の増加傾向が見られた。 ^{237}Np については燃料処理の有無に係らず, Puで見られたほどの増加傾向は認められなかった。一般的に再処理施設で処理される軽水炉使用済燃料には, ^{235}U の核分裂により, 質量数が80~140に渡る多くの核分裂生成物や, 原子炉内の核反応によって ^{238}U から生じた $^{239, 240}\text{Pu}$ などのPu同位体が多く含まれている。また非常に微量ではあるが, 中性子との核反応で生成されたAmやCmなどの核種も含まれている⁷⁾。このことから, 東海再処理施設の運転に伴い, Pu (α), ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{99}Tc の年放出量が上昇していると考えられる。しかし, ^{241}Am (半減期432.2年, α 壊変)の壊変生成核種である ^{237}Np は, その生成半減期が使用済燃料の貯蔵期間及び今回の調査期間に比べ非常に長いことから, 調査期間中ほとんど生成されなかったと考えられる。このことか

Table 2 Normalized discharge amounts of radionuclide from TRP from 1998 to 2003

Fiscal year	Spent fuel reprocessed contents (GWa)	Normalized discharge amounts (GBq/GWa)					
		^{238}Pu	$^{239, 240}\text{Pu}$	^{241}Pu	^{241}Am	^{237}Np	^{99}Tc
1998	0						
1999	0						
2000	0.29	6.6×10^{-3}	2.8×10^{-3}	1.3×10^{-1}	2.1×10^{-3}	3.8×10^{-6}	2.1×10^{-3}
2001	0.68	4.4×10^{-3}	1.9×10^{-3}	8.4×10^{-2}	7.4×10^{-4}	1.8×10^{-6}	8.2×10^{-4}
2002	0.51	6.7×10^{-3}	3.1×10^{-3}	1.4×10^{-1}	1.3×10^{-3}	3.5×10^{-6}	5.1×10^{-4}
2003	0.45	8.2×10^{-3}	4.0×10^{-3}	1.9×10^{-1}	1.1×10^{-3}	2.7×10^{-6}	3.6×10^{-4}

ら調査期間中において、 ^{237}Np の排水中放射能濃度はほとんど変動しなかったと考えられる。

2. 規格化放出量

再処理の過程で発生する放射性廃棄物中の壊変生成物や TRU 核種など放射能は、燃焼度 (GWa/t) やウラン燃料処理量 (t) に依存する。東海再処理施設と海外再処理施設では、それぞれの施設における設計処理量が大きく異なり、例えば、英国 British Nuclear Fuel Ltd (BNFL) のセラフィールド再処理施設では、その設計処理量が東海再処理施設の約 6 倍である⁸⁾。そこで発生した電気エネルギーに換算した燃料処理量⁹⁾ (電力量換算処理量: 単位 GWa) を用いて、海外再処理施設と比較することとし、放出放射エネルギーを電力量換算処理量で除して算出する規格化放出量¹⁰⁾ を算出した。

まず、東海再処理施設における規格化放出量を **Table 2** に示す。次に本規格化放出量と、海外商用再処理施設である BNFL のセラフィールド再処理施設⁸⁾、仏国 Areva NC (前 Cogema) 社のラ・アグ再処理施設^{11,12)} における規格化放出量と比較した。その結果、東海再処理施設における調査対象各核種の規格化放出量は、英仏再処理施設の約 $1/100 \sim 1/10^7$ と極めて低く、放出量の低減化が図られていることを確認した (**Fig. 6**)。この違いは、下記の 1) ~ 2) が理由として考えられる。

- 1) 東海再処理施設と海外再処理施設では放射性液体廃棄物の処理方法が異なる。
- 2) 再処理施設の放射性液体廃棄物の放出基準が異なる。

る。

まず 1) について、東海再処理施設は、主に蒸発缶による蒸発処理によって放射性液体廃棄物を処理している¹³⁾ が、海外再処理施設では、主にイオン交換処理、凝集沈殿処理によって処理している。蒸発処理は、蒸発缶に熱を加えて、廃液を気化させるため、トリチウム (^3H) 等の気化する放射性物質以外は効率的に取り除くことが出来る。しかし、凝集沈殿処理は蒸発処理に比べてエネルギーはかからないものの、化学試薬で放射性物質を沈殿させてから、濾過装置で放射性物質を取り除くため、蒸発処理より除染係数 (処理前の核種量を処理後の核種量で除した数値) が小さい。ただし、海外再処理施設も、高・中放射性廃液に蒸発処理を取り入れ、さらなる放出量低減化に努めている^{8,11)}。東海再処理施設は、燃料処理量が少ないことから、結果として東海再処理施設の廃液量が諸外国の再処理施設より相対的に少なく、ほとんどの放射性廃液の蒸発処理が可能であることから、規格化放出量が小さくなったと考えられる。

次に 2) について、東海再処理施設と海外再処理施設の全 α 放射能の放出基準値 (海洋放出) を比較すると、海外再処理施設の方が $10^3 \sim 10^4$ 倍大きい^{8,10,11)}。海外再処理施設は、これらの高い放出基準に基づく合理的な放出管理を行っていることも、規格化放出量が大きく異なっている理由の 1 つと考えられる。

3. 施設運転条件 (情報) に基づく予測値との比較

再処理施設内において、Pu, Am, Np は抽出分離、精製、

Fig.6 Comparison of the normalized discharge amounts among the TRP and the foreign reprocessing plants.

(*) T: TRP, S: Sellafield, L: La Hague.

除染工程を経て、それぞれの化学的性質により分離される。各工程において、核種の分離性能を表す数値である除染係数は既知であるので、計算によって排水中に含まれる核種の濃度レベルを推定することは可能であると考えられる。そこで、今回の調査で定量した排水中 TRU 核種の濃度の妥当性を確認するため、ORIGEN⁽¹⁴⁾ と除染係数によって排水中の核種の放射能を求め、その値を実測値と比較した。なお、ORIGEN とは、米国オークリッジ国立研究所で開発された同位体の生成と消滅を計算するコードである。比較にあたり、工程毎の排水の希釈等の作業に、依存されにくいパラメータである放射能比を用いた。排水中の各核種間の放射能比と、ORIGEN で算出された使用済核燃料中の核種間の放射能比に、工程内の除染係数を乗じて求めた放射能比をそれぞれ求め、2つの値を比較した。なお今回の調査で用いた ORIGEN の主な計算条件は、実際に処理した使用済燃料と同じであり、燃焼度 4,513 ~ 34,056 (MWd/t)、比出力 16.3 ~ 34 (MW/t)、冷却日数 1,551 ~ 10,982 (day) とした。計算値と実測値の比較では使用済燃料の受入れから、低放射性廃液の海洋放出までの除染係数を用いた。その値は Pu: 約 5.3×10^{14} , Am: 約 1.7×10^{15} , Np: 約 3.7×10^{14} であり、 $Am > Pu > Np$ である⁽¹⁵⁾。

今回比較した核種間の放射能比は、 $^{238}Pu/^{239,240}Pu$, $^{241}Pu/^{239,240}Pu$, $^{237}Np/^{239,240}Pu$, $^{241}Am/^{239,240}Pu$ であり、それぞれの値は良く一致した (Fig. 7)。ゆえに今回の調査の分析値は、妥当な結果と考えられる。

なお、比較した核種間の放射能比の実測値及び ORIGEN と除染係数から求めた計算範囲は次の通りである。括弧内の値が ORIGEN の計算範囲を表す。

$$^{238}Pu/^{239,240}Pu : 2.1 \sim 2.6 \quad (1.6 \sim 2.6)$$

$$^{241}Pu/^{239,240}Pu : 41 \sim 52 \quad (38 \sim 110)$$

$$^{237}Np/^{239,240}Pu : 4.2 \times 10^{-4} \sim 5.0 \times 10^{-3} \\ (2.2 \times 10^{-4} \sim 6.1 \times 10^{-4})$$

$$^{241}Am/^{239,240}Pu : 0.86 \sim 4.5 \quad (1.8 \sim 3.2)$$

IV 結 論

東海再処理施設において、軽水炉燃料再処理時の排水中 TRU 核種等の濃度、放出量、放射能比等を求めたところ、以下の結果を得た。

- 1) 東海再処理施設の排水中 MA 核種等を含む TRU 核種の放射能濃度が、告示に定められる濃度基準より約 $1/150 \sim 1/10^6$ と十分低く管理されていることを確認した。
- 2) 東海再処理施設の規格化放出量を、海外再処理施設と比較した結果、東海再処理施設は今回の調査対象核種において、約 $1/100 \sim 1/10^7$ と十分な低減化が図られていることを確認した。
- 3) 今回の調査で得られた各核種の分析結果の妥当性を確認するために、ORIGEN で算出された核種間の放射能比に、工程内の除染係数を乗じて求めた放射能比との比較を行った。比較した $^{238}Pu/^{239,240}Pu$, $^{241}Pu/^{239,240}Pu$, $^{237}Np/^{239,240}Pu$, $^{241}Am/^{239,240}Pu$ は、一致した。したがって、今回の調査の分析結果は妥当であると考えられた。

今回の調査によって、将来の高速増殖炉サイクルを考慮した混合酸化物燃料の再処理に向け、排水放出管理に関する基礎的な比較データを得ることができた。今後さらに再処理施設の TRU 核種の詳細な濃度データを得るために、簡便で迅速な排水中 TRU 核種の分析法の開発に取り組んでいく。

Fig.7 Comparison of the activity ratios by the measurements with those by the ORIGEN calculation
(*1)The range of line in graph shows a error.

参 考 文 献

- 1) 内閣府原子力委員会：原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画（2000）。
- 2) 桜井直行，飛田和則，吉崎裕一，宮河直人，山下朋之，柏崎渉，植頭康裕；動力炉核燃料開発事業団東海事業所標準分析作業法放出管理編，PNC TN8520 93-003（1993）。
- 3) Y. UEZU, N. MIYAGAWA and H. KATAGIRI; Environmental ^{241}Pu Determination Using Alpha/Beta Distinguish Technique with Liquid Scintillation Measurement, IRPA-10, p. 117（2000）。
- 4) 文部科学省：放射能測定法シリーズ，No. 28 環境試料中プルトニウム迅速分析法（2002），No. 30 環境試料中アメリカシウム 241（2004），No. 34 環境試料中ネプツニウム 237 迅速分析法（2008）。
- 5) M. TAKEISHI, Y. HIYAMA, T. MIZUTANI, H. WATANABE and Y. MARUO; Investigation of Analytical Method for Technetium-99 in Liquid Effluent Discharged from Tokai Reprocessing Plant, *Jpn. Nucl. Radiochem. Sci.*, **5** (3), 265-266（2005）。
- 6) 核燃料物質の加工の事業に関する規則等の規定に基づき，線量限度等を定める告示，科学技術庁告示第13号（2000）。
- 7) （社）日本原子力学会：原子力がひらく世紀，p. 212（1998），（株）東京印刷館（東京）。
- 8) BNFL; Discharges and Monitoring of the Environment in the United Kingdom Annual Report 2005, pp. 13-48（2006）。
- 9) UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation); Exposures of the public and workers from various sources of radiation, United Nations, New York（2000）。
- 10) 水谷朋子，宮河直人，武石稔；東海再処理施設における液体廃棄物の放出モニタリングについて，サイクル技報，**28**, 21-25（2005）。
- 11) COGEMA; Inventaire des rejets radioactifs des installations nucleaires volume 1（1999）。
- 12) J. SIMONNET; The minimization of radioactive release from the La Hague Plants, *JAERI-Conf 96-003*, **192**, 180-181（1995）。
- 13) 東海事業所再処理工場処理部化学処理第2課・廃棄物処理課；再処理工程の運転 7.2 放射性液体廃棄物，動燃技報，**55**, 36-40（1985）。
- 14) A. G. CROFF; ORIGEN2-Isotope Generation and Depletion Code, ORNL/TM715（1980）。
- 15) 大森栄一，須藤俊幸，清水武彦，駿河谷直樹，高谷暁和，小山暁，中村博文，横彰，山内孝道；東海再処理施設の安全性確認に係る基本データの確認，JNC TN8410 99-002（1999）。

河野 恭彦（こうの たかひこ）

1982年茨城県ひたちなか市生まれ。2006年（独）日本原子力研究開発機構へ入社。現在核燃料サイクル工学研究所にて，再処理施設等の放出モニタリング，排水中TRU核種及び尿中ウランの迅速分析手法の開発業務に従事。趣味はテニス，ドライブ，ジムに行くこと，スポーツ観戦，スイーツ巡りなど。

E-mail: kono.takahiko@jaea.go.jp