資 料

再処理施設から放出された長寿命核分裂生成物量の推定[†]

館盛勝一

財団法人 日本分析センター
263-0002 千葉県千葉市稲毛区山王町 295-3

2005 年 2 月 7 日 受理

Key Words: fuel reprocessing facility, long-lived fission products, discharge, La Hague, Sellafield, carbon-14, krypton-85, strontium-90, technetium-99, iodine-129, caesium-137, spent fuel, burn up, Tokai-plant

1. 序 論

大気圏内核実験とチェルノブイリ事故によるグローバルフォールアウトの影響は、年と共に減少し、現在の環境放射能のレベルは極めて低いものとなっている¹⁾。一方、世界的には、空気中のラドン濃度や、再処理施設からの定常的な放射能放出量が注目されている。前者については、我が国の民家を対象とした水準調査が全国的に行われている¹⁾。また、後者については、主として英仏の再処理施設を対象に総合的な評価が実施されている²⁾。²²²Rn は地球系に広く薄く存在するウランの系列核種であって、その発生源を断つことは不可能であろう。一方、再処理施設から環境に放出される核分裂生成物（以後、FP という）及びアクチノイドは、人間の管理下に置くことができる。そこで、これまでに再処理施設から「管理放出された」放射性核種の量を正確に把握することは、環境影響評価の基本であり、将来の再処理施設の操業に伴う放出による環境影響を検討・評価する上でも有

意義であると考えた。

本論では、長寿命の FP 核種及び ¹⁴C を対象とした。また、再処理施設としては、大型で実績のある英国 Sellafield の施設、フランス La Hague の施設を選んだ。これらの再処理施設では、以前は軍事用 Pu 生産を目的とした再処理が行われており、放出された FP 核種について、軍事目的と商用との区別を明確にすることはほぼ不可能である。放射能の放出データも、軍事目的の操業時（1950～1960 年代）のものは貧弱である。そのため、ここで取り扱うデータも 1970 年以降のものが多く、以下の事実から、放出量の全体像は把握できると考える。

- 1) 発電用に消費されたアクチノイドの核分裂量（生成した FP 量）は約 7 000 t、軍事用 Pu の生産において核分裂したアクチノイド量は約 400 t である。そのうち前者の約 1/3、後者の全量が再処理操作を経ている。
- 2) 2000 年迄に再処理された発電炉の使用済み燃料（以後、SF という）の量をみると、英国 Sellafield で 43 200 t（再処理量全体の 53%；その内、約 40 000 t が B205, 3 200 t が THORP にて処理）、仏国 La Hague で 27 600 t（同 34%）である。その他では、Marcoule (UP1) で 6 400 t、東海で 1 000 t、米国 600 t などがある。

[†] Estimation of Total Amount of Long-lived Fission Products Discharged from Nuclear Fuel Reprocessing Facilities.

Shoichi TACHIMORI: Japan Chemical Analysis Center, 295-3, Sanno-cho, Inage-ku, Chiba-shi, Chiba Pref. 263-0002, Japan.

図1 La Hague 及び Sellafield の再処理施設における発電炉 SF の再処理記録

その他 2500 t である。発電炉の SF 再処理量の 90% 以上が 1970 年以降に行われたものである。

- 3) ここで取り扱った放出データの一部には 1970 年以前のものもあり^{3), 4)}、そこには、軍用 Pu 生産目的の燃料再処理に伴うものの一部も含まれていると思われる。

二つの施設における年間 SF 再処理量の記録を図 1 に示す²⁾。

ここで用いたデータ(数値)は、以下の二点に基づいている。

- 1) 放射性物質の放出量は放出時の値であり、減衰を考慮した現在の値ではない。
- 2) 放射性物質の量を表示する方法として、放射線とその効果(線量など)に着目する場合には、Bq 単位が用いられる。本稿は、そのような目的はなく、Bq 単位では数値が非常に大きくなることから、主として重量単位(g)を用い、核種の比放射能を示す(表 1) ことにより、Bq への換算も可能とした。

2. 長寿命 FP 核種の放出量

2・1 ^{85}Kr

希ガスの ^{85}Kr は、再処理の際に100%放出されと考えられる。したがって ^{85}Kr の放出量は、再処理されたSFの[(燃焼度)×(処理量)]の指標となるが、半減期が約10.8年なので、処理前の冷却期間の影響が大きい。世界の主要な再処理施設から放出された ^{85}Kr について、経年変化を図2に示す⁴⁾。ここで、 ^{85}Kr 生成量と(原子炉内で ^{85}Kr 生成と同時に進行する) ^{238}U (n, γ) $^{239}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{Np} \rightarrow ^{239}\text{Pu}$ 反応によるPu生成量との関係は、 ^{85}Kr 1 kgあたり1 t(軍事用Pu)及び 0.5 ± 0.05 t(民生用Pu)である。La Hague及びSellafield施設における年間SF処理量(t/y)と年間 ^{85}Kr 放出量(kg/y)の関係を図3に示した。これらの結果は、両施設で処理されたSFの特徴を明瞭に示している。すなわち、La Hague施設では、前期のガス炉金属燃料処理時代にも、後期の酸化物燃料処理時代にも、SF処理量の増大に対応した ^{85}Kr 放出量の増大が明確にみられる。特に1990年代に入ってから増大は大きく、酸化物燃料の処理量と燃焼度の増大の影響が見てとれる。一方、Sellafield施設の場合、比較的燃焼度の低いMagnox炉燃料の処理が中心であり、1995年以降にTHORPでの高燃焼度酸化物燃料処理の影響が見られるのみである。図3から、 ^{85}Kr 放出率の概算値は、La Hagueでは約10 kg ^{85}Kr /1 000 t SF、Sellafieldでは約4.0 kg ^{85}Kr /1 000 t SFとなる。

2・2 ^{14}C

再処理施設から放出される ^{14}C (これはFP核種ではなく照射前燃料中に含まれる窒素の放射化による放射化生成核種であるが、重要な長寿命核種である)には気体放出と液体放出があり、その比率は施設により異なるので、ここでは総量を扱った。年間 ^{14}C 放出量(kg/y)の経年変化を図4a)に示す。Sellafield施設からは1970年代に大量の ^{14}C が放出されている。La Hague

施設からの放出量は相対的に少ないが、1990年代に増大が認められる。この不規則に見える放出に何らかの法則性があるのかを調べるため、図4b)に年間SF再処理量(t/y)と ^{14}C 年間放出量(kg/y)の関係、そして図4c)に年間 ^{85}Kr 放出量(kg/y)と年間 ^{14}C 放出量(kg/y)との関係をそれぞれ示した。La Hague施設の場合、 ^{14}C はSFの処理量あるいは燃焼度にはほぼ比例して放出されているが、Sellafield施設では、どちらも相関が見られず、燃焼度の低いSFの処理においても大量の ^{14}C が放出されている。この現象は、 ^{14}C の含有量が比較的大きく、燃焼度の低いMagnox炉SFが処理されたことに起因すると思われる。

2・3 ^{129}I

両施設について、年間 ^{129}I 放出量(kg/y)の経年変化を図5a)、年間SF再処理量(t/y)と年間 ^{129}I 放出量(kg/y)との関係を図5b)に、そして年間 ^{85}Kr 放出量(kg/y)と年間 ^{129}I 放出量(kg/y)との関係を図5c)にそれぞれ示した。 ^{129}I の放出量は、概ね年間のSF処理量に比例しているようである。年間 ^{85}Kr 放出量(kg/y)との関係では、La HagueとSellafield施設に共通する良好な相関がみられる。2000年までに両施設から放出された ^{129}I の合計は4 700 kgとなった。一方、3 500 kg(その内、La Hague施設分は70%)という報告があり、それは、ここで求めた値の約74%に相当する。

2・4 ^{99}Tc

年間 ^{99}Tc 放出量(kg/y)の経年変化を図6a)、年間SF再処理量(t/y)と年間 ^{99}Tc 放出量(kg/y)との関係を図6b)に、そして年間 ^{85}Kr 放出量(kg/y)と年間 ^{99}Tc 放出量(kg/y)との関係を図6c)にそれぞれ示した。Sellafield施設において(^{129}I でも見られたが)、1990年代に ^{99}Tc の放出量に著しい増加傾向が見られる。これは、それ以前のB205施設におけるMagnox炉SFの再処理で生じた中レベル廃液(^{99}Tc

表1 La Hague 及び Sellafield 再処理施設から環境に放出された主要核種の全量: kg

		La Hague (全処理量 27,600 t)		Sellafield (全処理量 43,200 t)		合 計	
核 種	比放射能 Bq/g	特 徴	全放出量	特 徴	全放出量	重 量	放射能(Bq)
^{14}C	1.65×10^{11}	処理量比例	1.8	不規則変化	2.3	4.1	6.8×10^{14}
^{85}Kr	1.45×10^{13}	処理量比例	200	処理量比例	110	310	4.5×10^{18}
^{99}Tc	6.24×10^8	不規則変化	~10 *	不規則変化	~2,000	2,000	1.2×10^{15}
^{90}Sr	5.10×10^{12}	不規則変化	~0.2	不規則変化	~1.3	1.5	7.7×10^{15}
^{129}I	6.53×10^6	処理量比例	3,300	不規則変化	1,400	4,700	3.1×10^{13}
^{137}Cs	3.21×10^{12}	不規則変化	~0.3	不規則変化	~13	13	4.3×10^{16}

* 参照できるデータが非常に少ないので、この概算値も信頼性が小さい。

図2 世界の再処理施設における ^{85}Kr 放出量の経年変化

図3 La Hague 及び Sellafield の再処理施設における単位 SF 処理量あたりの ^{85}Kr 放出量 ($\text{kg } ^{85}\text{Kr}/1000 \text{ t SF}$)

を大量に含む) が一時貯蔵され、後になって計画的に (SF 処理量と関係なく) 放出されたことによる。1995 年には放出量が 300 kg/y にも達した結果、北欧諸国、規制当局、BNFL 間で

様々な論争が行われた。最終的に Tetra phenylphosphonium bromide による還元・沈殿法 (TPP プロセス) を適用することにより、厳しい放出量規制値: 10 TBq/y ($=16 \text{ kg/y}$) の実現が可能となった⁵⁾。一方, THORP 施設の再処理工程には, ^{99}Tc を高レベル廃液に導く技術が採用されているので, 放出量は $1 \sim 2 \text{ kg/y}$ にすぎない。La Hague 施設からの ^{99}Tc 放出量については, データが不足しているにもかかわらず, 放出量が少ないと言えよう。その理由は, THORP と同様の方式が採られているためと考えられる。

2.5 ^{90}Sr , ^{137}Cs

図 7 a), b) に ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の放出量 (kg/y) の経年変化を示す。両核種とも溶液中に溶け, 主工程を含む数回の分離, 除去工程を経て除去されなかった分だけが放出されるため, 年間 SF

図4 欧州再処理施設における ^{14}C 放出量 ($\text{kg } ^{14}\text{C/y}$) の経年変化と, 単位 SF 処理量あたりの ^{14}C 放出量 ($\text{kg } ^{14}\text{C}/1000 \text{ t SF}$), 及び ^{85}Kr 放出率 ($\text{kg } ^{85}\text{Kr/y}$) と ^{14}C 放出量との相関

図5 欧州再処理施設における ^{129}I 放出量 ($\text{kg } ^{129}\text{I}/\text{y}$) の経年変化と、単位SF処理量あたりの ^{129}I 放出量 ($\text{kg } ^{129}\text{I}/1000 \text{ t SF}$)、及び ^{85}Kr 放出率 ($\text{kg } ^{85}\text{Kr}/\text{y}$) と ^{129}I 放出量との相関

図6 欧州再処理施設における ^{99}Tc 放出量 ($\text{kg } ^{99}\text{Tc}/\text{y}$) の経年変化と、単位SF処理量あたりの ^{99}Tc 放出量 ($\text{kg } ^{99}\text{Tc}/1000 \text{ t SF}$)、及び ^{85}Kr 放出率 ($\text{kg } ^{85}\text{Kr}/\text{y}$) と ^{99}Tc 放出量との相関

図7 欧州再処理施設における ^{90}Sr と ^{137}Cs の放出量 (kg/t) の経年変化

再処理量や年間 ^{85}Kr 放出量との間に単純な比例性は現れない。特徴的なのは、両施設とも最近20年間に劇的な放出低減を達成していることである。

以上のデータから、2000年迄にLa Hague及びSellafield再処理施設から環境に放出された主要核種の総量を推測し、表1に示した。

ところで、東海再処理施設では1977年～2002年に約1000tのSFが処理された。その間の ^{14}C 、 ^{85}Kr 、 ^{129}I 年間放出量データを図8に示した⁶⁾。この図から以下の点がわかった。

- 1) ^{14}C 及び ^{85}Kr の放出率はSFの年間再処理量にほぼ比例し、 ^{14}C と ^{85}Kr の放出率については、La Hague施設における酸化物燃料処理時の放出率とほぼ等しい。

- 2) ^{129}I の放出率はLa Hague, Sellafield両施設の放出率よりも数桁低く、規則性も認められない。
- 3) 東海施設におけるその他のFP (^{99}Tc , ^{90}Sr , ^{137}Cs)の放出率は、検出限界以下というデータが多く、それらは対象外としたが、La Hague, Sellafield両施設の放出率より数桁は低い。

次に、2007年度から本格稼動する我が国最初の大型商用施設「六ヶ所再処理施設」の推定年間放出放射エネルギーについて、La Hague施設における放出実績と比較した。

- 1) ^3H 、 ^{14}C 、 ^{85}Kr の年間放出量(それぞれ $2.0 \times 10^{16}\text{Bq}$ 、 $5.2 \times 10^{13}\text{Bq}$ 、 $3.3 \times 10^{17}\text{Bq}$)は、SF処理量を基準として比較すると、

図8 東海再処理施設における ^{14}C 、 ^{85}Kr 及び ^{129}I の放出量、及びそれらの ^{85}Kr 放出量との相関

La Hague 施設の3倍以上大きい。この主な理由は、六ヶ所施設における処理対象SFの燃焼度が大きいことが挙げられる。

- 2) この燃焼度効果を補正した場合、 ^{14}C の放出量（全て気体放出）は約4倍大きい。これは、 ^{14}C が放射化生成核種であり、La Hague 施設が実績の放出量であるのに対して、六ヶ所施設では照射前燃料中の窒素含有量について、安全側（過大評価側）の値を仮定して算定した推定値であるためと考えられる。
- 3) ^{99}Tc と ^{129}I の放出量は非常に少なく、燃焼度を基準にして比較すると、 ^{129}I の場合、La Hague 施設の2～3%にすぎない。これは六ヶ所施設における最新の放出低減技術に負う。
- 4) ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の年間放出量($3.4 \times 10^{10}\text{ Bq}$, $4.8 \times$

10^{10} Bq) についても、同様に極めて低い。

長寿命FPと ^{14}C の環境への放出量、及びそれらの他の放出源、生成源からの寄与量を、表2に示した。

3. む す び

ここで紹介した再処理施設は、複数の再処理工場から構成されており(La Hague:UP-2, UP-3及びSellafield:B205, THORP), それらは全てピューレックス工程を基本としている。しかし、そこからのFPの放出状況は、処理燃料の特性と各工場の詳細な設計仕様に依存して、多様に変化している。このように、再処理施設からのFP放出は、人間の管理下で進められる行為である。一方、地球環境では、その誕生以来様々な核反応、核種壊変が継続しているが、それ自体に含まれるウランの壊変系列、 ^{238}U の自

表2 環境に放出されたFPの量

	欧州の再処理施設から	その他の放出源、生成源
^{14}C	～4kg	宇宙線との(n, p)反応による: 地球上に 40～75 t 大気圏内核実験により: 1,330kg 原子炉施設からの放出: ～2kg/y
^{85}Kr	～310kg 224kg ¹⁾	*軍事用 Pu 生産から: ～380kg、380kg ²⁾ 大気圏内核実験により: ～8kg
^{90}Sr	～1.5kg 1.1kg ¹⁾	*軍事用 Pu 生産から: < 10kg、> 1,000kg ³⁾ 大気圏内核実験により: 100 ± 20 kg, 120kg ¹⁾ チェルノブイリ事故による放出: 2kg Chelyabinsk-65 廃液貯槽爆発事故での放出: ～0.4kg
^{99}Tc	2,000kg	**地殻中に 約 180 t 存在する。 *軍事用 Pu 生産から: < 7,000kg 大気圏内核実験により: 265 ± 5 kg
^{129}I	～4,700kg 2,260kg ¹⁾	**地殻中に約 1,500 t 存在する。 *軍事用 Pu 生産から: 1,000kg 大気圏内核実験により: 100 ± 20 kg チェルノブイリ事故による放出: < 2kg
^{137}Cs	13kg 12.4kg ¹⁾	*軍事用 Pu 生産から: < 13kg, > 2,000kg ³⁾ 大気圏内核実験により: 370 ± 40 kg, 287kg ¹⁾ チェルノブイリ事故による放出: 27kg

* 軍事用に生産された Pu 量が 300 t の場合

** 地殻中の Pu-239 濃度を $2 \times 10^{-14}\text{g/kg}$ 土、それが ^{238}U の(n, γ)反応によると仮定した時。⁶⁾

¹⁾ UNSCEAR 2000 に記載の 1997 年までのデータ ²⁾ 参考資料 7) 記載の 1992 年のデータ

³⁾ 旧ソ連の再処理施設における廃棄物処理による(参考資料 7) 記載)。

発核分裂と ^{235}U の (n, fission) 反応に起因する FP 等が永続平衡のもとで大量に存在している。

この現象には、我々の制御が働かない。天然の放射性核種（もちろん、その大部分は最終的に安定元素に変化する）は、広く薄く地球システム全体に存在するのに対し、人工 FP は、天然の放射性核種とは環境への導入経路が異なるため、環境中における挙動や、人間への影響に関する研究が数多く行われている。

参 考 資 料

- 1) 平成 15 年度日本分析センター年報, 平成 16 年 11 月 30 日
- 2) Possible Toxic Effects from the Nuclear Reprocessing Plants at Sellafield(UK) and Cap de La Hague(France), European Parliament, EP/IV/A/STOA/2000/17/01(2001)
- 3) Gray, J., Jones, S. R. and Smith, A. D., Discharges to the environment from the Sellafield site, 1951-1992, *J. Radiol. Prot.*, **15**, 99-131 (1995)
- 4) Winger, K., Feichter, J., Kalinowski, M. B., Sarto-

rius, H. and Schlosser, C., A new compilation of the atmospheric ^{85}Kr inventories from 1945 to 2000 and its evaluation in a global transport model, *J. Environ. Radioact.*, **80**, 183-215 (2005)

5) 関連情報源の例；

<http://www.environment-agency.gov.uk/north-west/>

<http://www.environment-agency.gov.uk/your-env/consultations/>

<http://www.defra.gov.uk/environment/radio-activity/discharge/sellafield/>

6) Sources and Effects of Ionizing Radiation ; UNSCEAR 1993 Report (1993), UNSCEAR 2000 Report (2000)

7) Nuclear Wastelands : A Global Guide to Nuclear Weapons Production and Its Health and Environmental Effects, Edited by Makhijani, A., Hu, H., Yih, K., The MIT Press Cambridge, MA (1995)