JAEA-Technology 2023-010 DOI:10.11484/jaea-technology-2023-010



放射性クリプトンガスの管理放出

Controlled Release of Radioactive Krypton Gas

渡邉 一樹	木村 典道	岡田 純平	古内 雄太
桒名 英晴	大谷 武久	横田 知 「	中村 芳信

Kazuki WATANABE, Norimichi KIMURA, Jumpei OKADA, Yuta FURUUCHI Hideharu KUWANA, Takehisa OTANI, Satoru YOKOTA and Yoshinobu NAKAMURA

> 核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 再処理廃止措置技術開発センター 施設管理部

Facility Management Department TRP Decommissioning Center Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

June 2023

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際ライセンスの下に提供されています。 本レポートの成果(データを含む)に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の 条件で利用してください。(<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</u>) なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4 電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency. This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en).

Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan

Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2023

放射性クリプトンガスの管理放出

日本原子力研究開発機構

核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 再処理廃止措置技術開発センター 施設管理部

渡邊 一樹、木村 典道*、岡田 純平、古内 雄太、桒名 英晴*、 大谷 武久、横田 知、中村 芳信

(2023年4月4日受理)

クリプトン回収技術開発施設では、昭和 63 年から平成 13 年にかけて東海再処理施設の使用 済燃料の再処理に伴いせん断工程及び溶解工程から発生するオフガスの一部を受入れ、オフガ スからクリプトンガスを分離、精留する回収運転を実施し、所期の技術目標を達成した(クリ プトン精製純度 90%以上、回収率 90%以上)。また、回収しクリプトン貯蔵シリンダに貯蔵し ていた放射性クリプトンガスの一部を用いて、平成 12 年から平成 14 年にかけて小型の試験容 器を使用したイオン注入固定化試験を行い技術の成立性確認を行った。クリプトン貯蔵シリン ダに残った放射性クリプトンガスについては今後使用する計画がないため、主排気筒からの放 出量を管理しながら全量放出する放射性クリプトンガスの管理放出を計画し、令和 4 年 2 月 14 日から 4 月 26 日にかけて実施した。

放射性クリプトンガスの管理放出では、再処理施設保安規定に定められている主排気筒から の最大放出率(3.7×10³ GBq/min)より十分低い 50 GBq/min で管理し、クリプトン貯蔵シリ ンダ内の放射性クリプトンガスの全量放出(約7.1×10⁵ GBq)を完了した。クリプトン貯蔵シ リンダ内の放射性クリプトンガスを放出した後、窒素ガスを用いて放射性クリプトンガスの管 理放出に使用した系統及びメインプロセス(メインプロセスに接続する枝管を含む全系統)の 押出し洗浄を実施した。天候による遅延はあったものの機器の故障等の不具合が生じることな く当初目標とした令和4年4月下旬までに放射性クリプトンガスの管理放出を完了した。

核燃料サイクル工学研究所:〒319-1194 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

* 株式会社 ペスコ

JAEA-Technology 2023-010

Controlled Release of Radioactive Krypton Gas

Kazuki WATANABE, Norimichi KIMURA*, Jumpei OKADA, Yuta FURUUCHI, Hideharu KUWANA*, Takehisa OTANI, Satoru YOKOTA and Yoshinobu NAKAMURA

Facility Management Department,

TRP Decommissioning Center, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories, Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development Japan Atomic Energy Agency Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received April 4, 2023)

The Krypton Recovery Development Facility reached an intended technical target (krypton purity of over 90% and recovery rate of over 90%) by separation and rectification of krypton gas from receiving off-gas produced by the shearing and the dissolution process in the spent fuel reprocessing at the Tokai Reprocessing Plant (TRP) between 1988 and 2001. In addition, the feasibility of the technology was confirmed through immobilization test with ion-implantation in a small test vessel from 2000 to 2002, using a part of recovered krypton gas. As there were no intentions to use the remaining radioactive krypton gas in the krypton storage cylinders, we planned to release this gas by controlling the release amount from the main stack, and conducted it from February 14 to April 26, 2022.

In this work, all the radioactive krypton gas in the cylinders (about 7.1×10^5 GBq) was released at the rate of 50 GBq/min or less lower than the maximum release rate from the main stuck stipulated in safety regulations (3.7×10^3 GBq/min). Then, the equipment used in the controlled release of radioactive krypton gas and the main process (all systems, including branch pipes connected to the main process) were cleaned with nitrogen gas. Although there were delays due to weather, we were able to complete the controlled release of radioactive krypton gas by the end of April 2022, as originally targeted without any problems such as equipment failure.

Keywords: Tokai Reprocessing Plant, Krypton Recovery Development Facility, Krypton Gas, Controlled Release

^{*} PESCO Co., Ltd.

目 次

1. はじめに	1
1.1 クリプトン回収技術開発施設	1
1.2 放射性クリプトンガスの管理放出	1
2. 放射性クリプトンガスの管理放出の方針	2
3. 放射性クリプトンガスの管理放出に係る作業概要	3
3.1 設備点検	3
3.2 作業訓練	3
3.3 放射性クリプトンガスの管理放出の方法	3
3.4 放射性クリプトンガスの管理放出の終了判断	4
4. 放射性クリプトンガスの管理放出の作業実績	5
4.1 作業期間	5
4.2 放出実績	5
4.3 モニタリングポストにおける空間線量率の測定結果	5
4.4 クリプトン貯蔵シリンダの表面線量率の測定結果	6
5. 放射性クリプトンガスの管理放出に係る評価	7
5.1 放射性クリプトンガスの放出量の計画値と実績値の差	7
5.2 クリプトン貯蔵シリンダの表面線量率に係る検証	7
5.2.1 QAD-CGGP2R の計算条件	8
5.2.2 QAD-CGGP2R の計算結果	8
5.2.3 測定結果との比較	8
5.2.4 クリプトン貯蔵シリンダの表面線量率の変化	8
6. 放射性クリプトンガスの管理放出終了に伴う対応	9
6.1 高圧ガス製造施設の廃止	9
6.2 高圧ガス製造設備の廃止に伴う管理	9
6.3 Kr-85 の放出管理目標値	9
7. まとめ	10
謝辞	11
参考文献	11
付録 放射性クリプトンガスの管理放出に至る経緯	28

Contents

1. Introduction1
1.1 Krypton recovery development facility1
1.2 Controlled release of radioactive krypton gas1
2. Policy for controlled release of radioactive krypton gas2
3. Outline of work related to controlled release of radioactive krypton gas3
3.1 Inspection3
3.2 Training3
3.3 Methods of controlled release3
3.4 Decision to terminate controlled release of radioactive krypton gas4
4. Work performed on controlled release of radioactive krypton gas5
4.1 Work period5
4.2 Release results5
4.3 Results of air dose rate measurement at monitoring posts5
4.4 Results of surface dose rate measurement for krypton storage cylinders6
5. Assessment for controlled release of radioactive krypton gas7
5.1 Difference between planned and actual amount of radioactive krypton gas released 7
5.2 Verification of surface dose rates for krypton storage cylinders7
5.2.1 Calculation conditions for QAD-CGGP2R8
5.2.2 Calculation results for QAD-CGGP2R8
5.2.3 Comparison with measured results8
5.2.4 Variation of surface dose rate of krypton storage cylinder8
6. Correspondence following the end of controlled release of radioactive krypton gas9
6.1 Abolition of high-pressure gas production facilities9
6.2 Management of abolishing of high-pressure gas production facilities9
6.3 Release control target values for Kr-859
7. Conclusion
Acknowledgements11
References
Appendix28

1. はじめに

1.1 クリプトン回収技術開発施設

東海再処理施設のクリプトン回収技術開発施設(以下「クリプトン施設」という。)は、使用 済燃料の再処理に伴い放出される放射性クリプトンガスの低減化技術開発を目的とした施設で あり、昭和58年に建設された。クリプトン施設では、これまでに東海再処理施設の再処理に伴 いせん断工程及び溶解工程から発生するオフガスの一部を受入れ、オフガスからクリプトンガ スを分離・精留し、クリプトン貯蔵シリンダに貯蔵するまでの一連のクリプトンガスの回収技 術開発とともに、放射性クリプトンガスを長期間安定して貯蔵するためのクリプトン固定化技 術開発に取り組んできた^{1),2)}。クリプトンガスの回収技術開発では、米国で放射性クリプトン ガスの回収実績のある液化蒸留法を採用し、固定化技術開発では、ゼオライト封入固定化法³⁾ とイオン注入固定化法について基礎研究を実施し両技術の比較評価結果より、固定化操作及び 貯蔵時の安全性が高いイオン注入固定化法を採用した⁴⁾。Fig.1 にクリプトン施設のプロセス フロー図を示す。

1.2 放射性クリプトンガスの管理放出

放射性クリプトンガスの回収技術開発は約 20 年の試験運転により所期の技術目標であるク リプトン精製純度 90%以上及びクリプトン回収率 90%以上を達成した¹⁾ため、平成 13 年に終 了した。また、放射性クリプトンガスの固定化技術開発は平成 12 年から平成 14 年にかけて、 これまで回収した放射性クリプトンガスを用いた小型の試験容器でのホット試験を行い、実験 室規模での技術の成立性を確認した⁵⁾。

回収した放射性クリプトンガスは圧縮ガスとしてクリプトン貯蔵シリンダに貯蔵し、その一 部をイオン注入固定化試験に使用してきたが、上記の通り放射性クリプトンガスの回収、貯蔵、 固定化に係る一連の技術の成立性を確認したことから、クリプトン貯蔵シリンダに残った放射 性クリプトンガスを使用する計画はない。そのため、貯蔵中におけるクリプトン貯蔵シリンダ の破損等による放射性クリプトンガスの計画外放出のリスクを低減するために、放出量を管理 して行う放射性クリプトンガスの管理放出(以下「クリプトン管理放出」という。)を計画し、 廃止措置計画の認可申請で申請を行い(平成 29 年 6 月申請、平成 30 年 2 月一部補正)、平成 30 年 6 月に認可を受けた⁶。

本稿では、令和4年2月14日から4月26日にかけて実施したクリプトン管理放出の実績について報告する。

2. 放射性クリプトンガスの管理放出の方針

クリプトン管理放出を実施するにあたり、再処理施設の運転時における放射性クリプトンガスの放出量(1年間の最大放出量: 8.9×10^7 GBq)に基づく実効線量(β + γ)約5.1 μ Sv/年より、1回あたりのクリプトン管理放出に伴う実効線量(β + γ)を約0.06 μ Sv と評価した*1。

クリプトン管理放出に伴う実効線量(約0.06 µSv/管理放出)は、一般公衆の線量限度1mSv/ 年、原子力発電所周辺の線量目標値0.05 mSv/年よりも十分小さいものの、事故時の環境への 影響を抑えるため、以下の基本方針に基づき実施した。

*1:現行の再処理施設事業指定申請書の条件で算出

- ・クリプトン貯蔵シリンダに貯蔵している放射性クリプトンガスを窒素ガスにより希釈・加 圧し、プロセス排気として既存のルートを経由して主排気筒から大気へ放出する。
- ・上記放出後にクリプトン貯蔵シリンダ及び配管に残存する放射性クリプトンガスは、窒素 ガスを供給することにより希釈洗浄し、上記同様に主排気筒から大気へ放出する。
- ・放出に当たっては、主排気筒において放射性物質濃度を測定監視し、再処理施設保安規定の値(1年間の放出管理目標値: 2.0×10⁶ GBq)を超えないように管理する。
- ・放出作業は、事故等の影響を極力抑えるために、時間当たりの放出量をできるだけ低くする(5 m³/h、50 GBq/min)。
- ・周辺のモニタリングポスト指示値に異常な上昇が見られた場合、作業を中断する。
- ・主排気筒モニタ等の保守点検及び 10 分間の平均風速が 1 m/s 以下の場合は、クリプトン 管理放出は行わない。
- ・降雨時には、自然放射性物質が地上に降り環境監視モニタの指示値が上昇することから、 クリプトン管理放出での影響が確認できないため、クリプトン管理放出は行わない。

3. 放射性クリプトンガスの管理放出に係る作業概要

3.1 設備点検

通常の点検*2の他、クリプトン管理放出に関連する機器・配管等(機器類:約390基、配管類:約260系統、計装機器:約70系統)について、点検要領書を作成し追加点検を実施した。 追加点検では、長期間停止していた回転機器のグリスアップや計器校正等を行うとともに、全ての機器が健全な状態にあることを確認した。

*2:高圧ガス定期自主検査、施設定期自主検査、供用期間中の検査等

3.2 作業訓練

クリプトン管理放出作業に従事する作業員を対象に、運転要領書等を用いた座学教育及び各 機器(真空ポンプ、圧縮機等)の基本的な操作訓練を実施した。また、窒素ガスを用いた除染 ガス貯槽の加圧、放出に関わる一連の操作について、令和3年9月に総合訓練を終了し、それ 以降、放出作業を安全かつ確実に実施するため、窒素ガスを用いた模擬操作訓練を毎月繰り返 し実施し作業員の技能向上を図った。

3.3 放射性クリプトンガスの管理放出の方法

クリプトン施設における放射性クリプトンガスの放出については、これまでにも高圧ガス保 安法に基づく貯槽の開放検査等での実績があり、クリプトン管理放出の一連の操作に関する機 器・装置等は整備されており、新たな設備の改造等はない。

クリプトン管理放出は、4本のクリプトン貯蔵シリンダに貯蔵している放射性クリプトンガ スを1本ずつ除染ガス貯槽に送り、窒素ガスにより希釈・加圧した後、放出流量をコントロー ルし、放射線モニタを監視しながら実施した(Fig.2参照)。以下に具体的な手順を示す。

- ①クリプトン貯蔵シリンダ内の放射性クリプトンガスを全量、真空引きした除染ガス貯槽へ送る。
- ②空になったクリプトン貯蔵シリンダに希釈洗浄用の窒素ガスを供給したのち、放射性クリ プトンガスを含む窒素ガスを除染ガス貯槽に送る(各シリンダ7回*3実施)。

③除染ガス貯槽内の放射性クリプトンガスを希釈し、昇圧するため窒素ガスを供給する(約 1.0 MPa*4まで)。

④放射線モニタ(プロセスモニタ C、中間排気モニタ、主排気筒のガスモニタ)及び風速条件(1 m/s 以下の場合は中断)を監視しながら、流量をコントロールし、除染ガス貯槽内のクリプトンガスを主排気筒から放出する(50 GBq/min^{*5})。

⑤除染ガス貯槽の圧力がゼロ付近になるまで放出を行う。

*3:過去のクリプトン貯蔵シリンダ内洗浄の経験から、入セルレベル(1.0 µSv/h 以下)まで 線量を低減させるため5回以上実施。

- *4:窒素により十分に希釈するため(約400倍程度)。
- *5:通常の操作範囲で実施可能な設備構成上の下限値。流量計の指示値が目盛(3~12 m³/h) の半分の位置になるよう流量を設定(5~6 m³/h)。(流量計の指示値が小流量になると流 量が安定せず放出率を管理できなくなるため。)
- 3.4 放射性クリプトンガスの管理放出の終了判断

上記①~⑤の操作によりクリプトン貯蔵シリンダで貯蔵していた放射性クリプトンガスを全 量放出した後、クリプトン管理放出で使用した系統及びクリプトン施設のメインプロセス(メ インプロセスに接続する枝管を含む全9系統)の押出し洗浄を行い、プロセスモニタCの指示 値がバックグラウンド(BG)となることをもってクリプトン管理放出の終了とした(Fig.3 参 照)。 4. 放射性クリプトンガスの管理放出の作業実績

4.1 作業期間

クリプトン管理放出は、令和4年2月14日から4月26日にかけて実施した。当該管理放出 は1日最大10時間行い、その後、プロセスモニタCの指示値がバックグラウンド(BG)にな るまで放出系統の窒素ガスによる押出し洗浄を行った。以下に各クリプトン貯蔵シリンダの放 出期間及び窒素による系統の押出し洗浄の期間を示す(Table 1参照)。

① クリプトン貯蔵シリンダ1本目:2月14日から3月2日(作業日数:15日)

- ② クリプトン貯蔵シリンダ2本目:3月3日から3月23日(作業日数:13日)
- ③ クリプトン貯蔵シリンダ3本目:3月24日から4月10日(作業日数:13日)
- ④ クリプトン貯蔵シリンダ4本目:4月11日から4月12日(作業日数:2日)
- ⑤ 系統の押出し洗浄:4月13日から4月26日(作業日数:11日)

(うち、管理放出に使用した系統の洗浄を4月13日から4月18日(クリプトン貯蔵シリン ダ:6回、除染ガス貯槽:20回)、メインプロセス等の洗浄を4月19日から4月26日に 実施)

当初、クリプトン管理放出は最短期間約 1.5 ヶ月として計画していたものの、風速低下で約 24 時間、降雨により約 42 時間、その他点検整備等で約 12 時間の遅れが生じたため(Fig.4 参照)、当初の計画を見直し休日対応を行うことにより、令和 4 年 5 月からの主排気筒モニタ点 検、高圧ガスの点検前に貯蔵していた放射性クリプトンガスの全量放出を完了することができた (Table 1 参照)。

4.2 放出実績

クリプトン管理放出中における放射性クリプトンガスの放出量は、常時、主排気筒のガスモニタにより測定しており、作業期間中における放射性クリプトンガスの放出量の合計値は、約 7.1×10⁵ GBq^{注)}であった。これは、クリプトン管理放出の計画値(約 7.9×10⁵ GBq^{*6})に対して約 90%の放出割合となった(Table 2 及び Fig.5 参照)。

- *6: 令和4年1月31日時点の貯蔵量
- 注) 放射線管理第2課からの日々の報告値の合計(端数処理により、四半期ごとの外部報告値とは異なる。)
- 4.3 モニタリングポストにおける空間線量率の測定結果

核燃料サイクル工学研究所の敷地内にはモニタリングポストが設置されており、敷地内のガ ンマ線の空間線量率を測定している。クリプトン管理放出においては、モニタリングポストの 指示値に有意な変動が生じているかを常時確認しながら作業を実施した。その結果、クリプト ン管理放出時におけるモニタリングポストの指示値は、自然界における空間線量率の変動の範 囲内であった(Fig.6 参照)。なお、降雨の場合クリプトン貯蔵シリンダからの放射性クリプト ンガスの放出を行っていないため、クリプトン管理放出期間中(令和4年2月から4月)にお ける月毎のモニタリングポストの最大値は、全て降雨により地上に降った自然放射性物質(ラ ドン等)の影響である。

4.4 クリプトン貯蔵シリンダの表面線量率の測定結果

クリプトン貯蔵シリンダ内の放射性クリプトンガスの放出及び系統の押出し洗浄を行った後、 クリプトン管理放出に使用した機器・設備(クリプトン貯蔵シリンダを含む。)の表面線量率を 測定した(令和4年4月15日から5月11日)。その結果、クリプトン管理放出で使用した全 ての機器・配管(圧縮機、真空ポンプ、除染ガス貯槽、クリプトン貯蔵シリンダ、通気配管等) の表面線量率は1.0 µSv/hを下回っていた。 5. 放射性クリプトンガスの管理放出に係る評価

5.1 放射性クリプトンガスの放出量の計画値と実績値の差

クリプトン施設に回収貯蔵した放射性クリプトンガスの放射能量は、分離精製工場から受入 れた放射能量(プロセスモニタAで測定し評価した量)から、クリプトン施設から放出した放 射能量(中間排気モニタで測定し評価した量)を差引いて求めている。また、クリプトン貯蔵 シリンダ毎の放射能量は、クリプトン施設に回収貯蔵した放射能量をクリプトン貯蔵シリンダ に充填したクリプトン量(質量分析計の測定値より算出した量)ごとに按分し、Kr-85の半減 期(約10.8年)補正を行い算出している。なお、イオン注入固定化試験で使用・放出した分、 再回収運転で放出した分をその時点の放射能量から除いている(中間排気モニタで評価、Fig.7 参照)。

クリプトン管理放出の計画値は回収・貯蔵した時からの計算値であり、クリプトン管理放出 の放出量(実績値)は、主排気筒から放出された量(主排気筒のガスモニタで測定し評価した 量)である。クリプトン管理放出時における主排気筒のガスモニタ*7、中間排気モニタ*7で測定 した放出量を Fig.8 に示す。

クリプトン管理放出における計画値(約7.9×10⁵ GBq)と実際の放出量(約7.1×10⁵ GBq) とでは、1割程度の差が生じた。この差は、上記の通り評価に用いた計器が異なるとともに、 それぞれの計器誤差が10~20%程度あることから主に計器誤差*8により生じたものと考えら れる。計画値と実績値の差は計器誤差の範囲内であるため、クリプトン管理放出における計画 値は妥当であり、クリプトン施設に貯蔵していた放射性クリプトンガスは全量放出されたと言 える。また、各クリプトン貯蔵シリンダの計画値と実績値を見るとばらつきが生じている。こ れは、計画値の算出に用いた質量分析計の誤差(約±10%)による影響と考えられ、計画値と 実績値の差は質量分析計の誤差の範囲内である(Table 2 参照)。

なお、クリプトン管理放出の開始前にプロセスモニタAで測定した分離精製工場から受入れた放射能量は 9.3×10⁶ GBq、中間排気モニタで測定したクリプトン施設から放出した放射能量は 2.2×10⁶ GBq である(Table 3 参照)。

今回、クリプトン管理放出の計画値と実績値の算出に用いた計器が異なるため、検出下限値、 計器誤差等の違いを考慮する必要があり、適切な評価を行うのが難しい。そのため、今後同様 の評価を行う際は、算出に用いる計器を同一にすることでより適切な評価を行えると考える。

- *7:中間排気モニタの検出下限値:約 9.1×10⁻² GBq/h、主排気筒のガスモニタの検出下限 値:約 1.0 GBq/h
- *8:中間排気モニタ及び風量計の計器誤差:約24%、主排気筒のガスモニタ及び風量計の計 器誤差:約14%、プロセスモニタAの計器誤差:約19%以上
- 5.2 クリプトン貯蔵シリンダの表面線量率に係る検証

クリプトン管理放出に伴うクリプトン貯蔵シリンダの表面線量率の変化について計算機プロ グラム「QAD-CGGP2R」の計算結果とクリプトン管理放出後の測定結果を用いて検証した。

5.2.1 QAD-CGGP2Rの計算条件

クリプトン施設の 4 つのクリプトン貯蔵シリンダ (V109~V112) について、クリプトン 管理放出時点(令和 3 年 12 月 31 日)の表面線量率を QAD-CGGP2R により求める。計算 条件を以下に示す。また、計算モデルを Fig.9 に示す。

- ・対象核種は Kr-85 (y線エネルギー: 0.514 MeV、y線放出割合: 0.434%) とした。
- ・Kr-85の*B*線はクリプトン貯蔵シリンダで遮へいされていると仮定する。
- ・表面線量率の計算点はクリプトン貯蔵シリンダの側面部(計算点 1)、端部(計算点 2) とした。また、遠隔サーベイメータで測定した箇所(クリプトン貯蔵シリンダ中心から 水平方向 150 cm、高さ 100 cm の位置(計算点 3))についても比較のために計算した。

5.2.2 QAD-CGGP2Rの計算結果

各クリプトン貯蔵シリンダの計算結果を Table 4 に示す。V109、V111 及び V112 の表面 線量率は約 700~800 mSv/h であり、放射能量が少ない V110 については、約 100 mSv/h と なった。

5.2.3 測定結果との比較

クリプトン貯蔵シリンダがあるクリプトン貯蔵セル(R003A)内の線量率は、遠隔サーベ イメータにより定期的に測定している(Fig.10及び Table 5)。測定の結果、令和3年3月時 点のセル内の線量率は約14 mSv/hで、QAD-CGGP2Rでの計算結果(計算点③:約14~17 mSv/h)と同等であることを確認した。

5.2.4 クリプトン貯蔵シリンダの表面線量率の変化

クリプトン管理放出に伴うクリプトン貯蔵シリンダの表面線量率の変化について QAD-CGGP2R の計算値とクリプトン管理放出後の測定値を用いて検証した結果、クリプトン放出 による放射能量の減少によりクリプトン貯蔵シリンダの表面線量率は最大約 835 mSv/h(評 価値)から 1.0 μSv/h 未満(測定値)まで低減したことを確認した。 6. 放射性クリプトンガスの管理放出終了に伴う対応

6.1 高圧ガス製造施設の廃止

クリプトン管理放出においてクリプトン施設で貯蔵していた高圧ガス(クリプトンガス)を 全量放出したことにより、今後、クリプトン施設は高圧ガス(クリプトンガス)の製造・貯蔵 をしない施設となった。そのため、茨城県に高圧ガス製造施設の廃止を申請し、令和4年10月 31日受理された。

これにより、クリプトン施設の高圧ガス製造施設のうち、屋外液体窒素供給設備を除き、建 家内全ての設備が高圧ガス保安法の適用から外れ、高圧ガス関連の検査が不要になるとともに、 休止措置として行っていた系統の保圧管理を解除した。なお、液体窒素供給設備は、計装空気 用のバックアップとして使用しているため、計装空気設備の自動切換え機能を追加した後、廃 止する予定である。高圧ガス設備の概要図を Fig.11 に示す。

6.2 高圧ガス製造設備の廃止に伴う管理

平成14年に休止申請を行った後、クリプトン回収工程の一部(原料ガス貯槽、クリプトン精 留塔、キセノン精留塔等)は、茨城県が定める休止系統の保安措置として、窒素ガス(0.05 MPa 程度)充填し、保圧状態で維持管理を行っていた。今回、クリプトン管理放出が完了し、屋外 の液体窒素供給設備を除き高圧ガス設備として維持する必要がなくなり、高圧ガス製造施設の 廃止申請が受理されたことから令和4年11月22日までに系統を保圧管理していた窒素ガスを 脱圧し、保圧管理を解除した。これに伴い、休止系統からの窒素ガスの漏えいリスクがなくな った。

6.3 Kr-85 の放出管理目標値

東海再処理施設の廃止措置段階における放射性廃棄物の放出管理に当たっては、放射性物質 に起因する被ばく線量を低くするための措置を合理的かつ可能な限り講ずる観点から、放出の 基準(廃止措置計画に定める1年間の最大放出量等)を定め、廃止措置の進捗に応じて、適宜、 これを見直すこととしている。事業指定申請書の放出の基準は再処理運転時に合わせた値であ るため、廃止措置段階に合わせた放出の基準を定める必要がある。

一方、放出の基準を定める間の当面の放出管理として、Kr-85 については、各施設が保有する放射能量やこれまでの放出実績等を踏まえ、放出管理目標値を2.0×10⁶ GBq/年と定めた⁶⁾。

今回のクリプトン管理放出によりクリプトン施設のクリプトン貯蔵シリンダに貯蔵していた 放射性クリプトンガスを全量放出したことから、Kr-85の放出管理目標値を今後見直す予定で ある。その際、①クリプトン施設には系内の吸着剤等に吸着する放射性クリプトンガスが残存 しており、設備点検等により放出される可能性があること、②分離精製工場(MP)の溶解槽の 洗浄により放射性クリプトンガスを放出した実績があること、③高放射性固体廃棄物貯蔵庫

(HASWS)及び第二高放射性固体廃棄物貯蔵施設(2HASWS)で貯蔵しているハル缶に放射 性クリプトンガスが含まれていること等を考慮する必要がある。

7. まとめ

クリプトン施設内のクリプトン貯蔵シリンダに貯蔵していた放射性クリプトンガスを令和4 年2月14日から4月26日にかけて放出量を管理しながら大気中へ放出するクリプトン管理 放出を実施した。

クリプトン管理放出においては、事故等の影響を極力抑えるために通常の操作範囲で実施可 能な設備構成上の下限値で放出量を管理し(50 GBq/min)、クリプトン貯蔵シリンダ内の放射 性クリプトンガスを全量放出した。放射性クリプトンガスを放出した後、窒素ガスを用いてク リプトン管理放出で使用した系統及びクリプトン施設のメインプロセス(メインプロセスに接 続する枝管を含む全9系統)の押出し洗浄を実施した。クリプトン管理放出時のモニタリング ポストの指示値に有意な変動は生じておらず、自然界における空間線量率の変動の範囲内であ った。また、クリプトン管理放出終了後にクリプトン管理放出で使用した機器・設備の表面線 量率を測定した結果、全ての機器・配管で 1.0 µSv/h を下回った。

クリプトン管理放出は天候による遅延はあったものの、関係各課の協力のもと機器の故障等 の不具合が生じることなく当初目標とした令和4年4月下旬までに作業を完了することができ た。今後はクリプトン施設の廃止措置を進めるべく、液体窒素供給設備の廃止、クリプトン施 設における機器の解体・撤去等の検討を進めていく。

謝 辞

放射性クリプトンガスの管理放出においては、作業前より助言を頂き、作業中においても放 射線監視に協力して頂いた環境監視課、放射線管理第2課諸氏に深く感謝いたします。

参考文献

- 林晋一郎, 庄司久, 栗原孝幸, 川島暢吉, 大澤利之, 大和晴雄, 会沢敏弘: "クリプトン回 収・貯蔵技術開発", サイクル機構技報, No.17, 2002, pp.43-61.
- 2) 大谷武久,高橋誠, 圷知幸,木村典道,田中志好: "クリプトンガスのイオン注入固定化試験; 大型容器の電極形状パラメータ試験",日本原子力学会 2011 年秋の大会予稿集, 2011.
- 3) 神戸製鋼所: "回収クリプトンガスのゼオライト封入技術調査 成果報告書", PNC TJ116 81-08, 1981.
- 4) 林晋一郎,神谷茂,中道秀哉,池田諭志,中西芳雄: "イオン注入法によるクリプトン固定 化技術の開発",動燃技報, No. 101, 1997, pp.103-117.
- 5) 核燃料サイクル開発機構: "平成 14 年度研究開発課題評価(中間評価)報告書; 評価課題 「再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発」", JNC TN1440 2003-005, 2003.
- 6) 日本原子力研究開発機構,"国立研究開発法人日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工 学研究所再処理施設に係る廃止措置計画認可申請書(平成 29 年 6 月 30 日)", 2017.



	放出積算量 [GBq]		₩山割△ [0/]	
	計画値	実績値	成山刮石 [%]	
シリンダ1本目 (V111)	2.3×10^{5}	2.0×10^{5}	約 87	
シリンダ2本目 (V109)	2.6×10^{5}	2.2×10^{5}	約 85	
シリンダ 3 本目 (V112)	2.7×10^{5}	2.6×10^{5}	約 96	
シリンダ 4 本目 (V110)	3.6×10^{4}	3.1×10^{4}	約 81	
合計	7.9×10^{5}	7.1×10^{5}	約 90	

Table 2 クリプトン管理放出における放射性クリプトンガスの放出量

Table 3 クリプトン施設に受入れた放射能量及び放出した放射能量

	クリプトン施設に受入れた	クリプトン施設から			
	再処理オフガスの放射能量	放出した放射能量			
	[GBq]	[GBq]			
	(プロセスモニタ A)	(中間排気モニタ)			
回収運転時	約 9.3×10 ⁶	約 2.7×10 ⁵			
イオン注入固定化試験	_	約 2.9×104			
除染ガス貯槽の除染作業	_	約 1.9×10 ⁶			
合計	約 9.3×10 ⁶	約 2.2×10 ⁶			

Table F / / / / / / / / / / / / / / / / / /						
クリプトン貯蔵シリンダ	V109	V110	V111	V112		
保有放射能量[GBq] (令和3年12月時点)	2.6×10^{5}	3.6×10^4	2.3×10^{5}	2.7×10^{5}		
計算点 1[mSv/h]	804	111	711	835		
計算点 2[mSv/h]	777	108	687	807		
計算点 3[mSv/h]	16	2	14	17		

Table 4 クリプトン貯蔵シリンダの計算結果

計算点については、Fig.9参照

		測定結果					
No.	測定日	①ハッチ開口部		②セル(R003A)			
		$[\mu Sv/h]$		[mSv/h]			
		Y	β_Y	Y	β_Y		
1	平成 26 年 11 月 13 日	90	90	20	20		
2	平成 29 年 1 月 20 日	86	86	20	20		
3	平成 29 年 9 月 4 日	77	77	20	20		
4	平成 30 年 9 月 6 日	76	76	14	14		
5	令和3年8月19日	90	90	14	14		

Table 5 クリプトン貯蔵セル内(R003A)線量率測定



排気筒 ▲		放射能量	$2.0 \times 10^{6} GBq$	$8.9 \times 10^7 GBq$	$2.7 \times 10^7 GBq$	$3.0 \times 10^5 GBq$
Ŧ	 ・ 	出管理基準	年間(管理目標値)	年間(最大放出量)	3か月(最大放出量)	1日(最大放出量)
		放口		再処理	保安規定	
		 ₹ /	△ 「 「 「 「 「 「 」 「 」 「 」 「 」 「 」 「 」 」 「 」 「 … 」 」 「 … 」 」 「 … 」 」 … 」 …			
	アリプトン回収技術開発施設 アリプトン アリプトン アンリンダ アンリンダ ア			【合計 (4本)】 放射能量 : 約7.9×10 ⁵ GBq 正十 : 約9 MD ⁵		

Fig.2 クリプトン管理放出に係る工程概要図



- 17 -



Fig.4 クリプトン管理放出に係る作業中断割合



Fig.5 クリプトン管理放出の放出実績(令和4年2月14日から4月26

 $\widehat{\blacksquare}$















Fig.9 QAD 計算モデル (単位: cm)



R003A上面図



【測定方法】

①R101からR003A(開口部表面)の線量率を遠隔γ線用サーベイメータで測定
 ②遠隔γ線用サーベイメータをR101のハッチ開口部からR003Aへ約1.5 m挿入して空間線量率を測定

Fig.10 クリプトン貯蔵セル(R003A)内線量率測定に係る概要図





付 録 放射性クリプトンガスの管理放出に至る経緯

1. 放射性クリプトンガスの回収・固定化技術開発の経緯と成果

クリプトンの回収技術開発においては、放射性クリプトンガスの環境への放出量を合理的に 達成可能な限り低減するという ALARA (As Low As Reasonably Achievable)の考えに基づ き、昭和 58 年に「クリプトン回収技術開発施設」を東海再処理施設内に建設した。クリプトン 回収技術開発は、再処理により発生するオフガスからクリプトンを分離・精製し、貯蔵する一 連のクリプトン回収技術の開発とガス状のクリプトンを金属中に閉じ込め、長期間安定貯蔵す るクリプトン固定化技術開発から成る。

クリプトン回収技術の開発では、昭和 58 年からコールド試験による機器の性能検査等を経 て、昭和 63 年からは放射性ガスの閉じ込め機能等を確認するために再処理オフガスを用いた ホット試験運転を実施し、平成2年に使用前検査合格証を受領した。

平成3年から平成13年までに、再処理オフガスを使用した開発運転で、オフガス中に数十 ppm存在するクリプトンを他成分(ヨウ素、酸素、炭酸ガス、キセノン、窒素等)から分離し、 クリプトン精製純度(技術目標値90%に対し約95%)、クリプトン回収率(技術目標値90%に 対し約99%)等を確認し、クリプトン回収技術は所期の技術目標を達成したため、平成13年 10月にクリプトン回収技術開発に関する基本性能確認を終了した。

放射性クリプトンガスを金属中に閉じ込めるクリプトン固定化技術開発では、平成6年から 平成27年までコールド試験を行うとともに、平成12年から平成14年にかけてこれまで回収 した放射性クリプトンガスを用いた小型の試験容器でのホット試験を行い、実験室規模で技術 の成立性を確認した。

2. クリプトン回収技術の課題

クリプトン回収には、「回収」と「貯蔵」に係る技術がある。回収技術に関しては、液化蒸留 法(クリプトンを極低温で液化し、分離回収する方法)で 90%以上の回収率を達成している。

一方、貯蔵技術に関しては、当時一般的であったシリンダ貯蔵技術を採用したため、回収運転で使用し続ける際は高圧ガス保安法に基づくシリンダの定期検査に伴いシリンダ内のクリプトンガスの移し替えが必要となり、作業期間やシリンダ検査費用等が課題となりシリンダによる貯蔵技術は実用化技術としては成立しないことが分かった。

3. クリプトン固定化技術の課題

クリプトン固定化技術については、イオン注入固定化法(金属マトリックス中にクリプトン 原子を電界加速して注入する方法)とゼオライト封入固定化法(ゼオライト結晶の空洞に高温 高圧のクリプトンを封入する方法)との比較評価を行い、固定化操作及び貯蔵時の安全性の面 からイオン注入固定化法を選定し開発を進めてきた。

イオン注入固定化法については、回収した放射性クリプトンガスを用いた実験室規模でのホ ット試験により技術の成立性が確認できた段階であり、回収した放射性クリプトンガスを用い て実施すべき試験は終了している。一方、固定化装置の実用化には装置の大型化が必要である ものの、コールド試験による調査により、スケールアップした場合は安定した放電の維持が難 しく固定化の途中で放電が止まる等の課題があることを確認している。

イオン注入固定化法の実用化には、上記の課題を解決した上で処理性能を大幅に向上させる 必要がある。

4. 放射性クリプトンガスの管理放出について

Kr-85の半減期(約10.8年)を考慮すると、クリプトン貯蔵シリンダに貯蔵中の放射性クリ プトンガスが減衰し、法令に定める管理区域に係る空気中の放射性物質濃度限度3×10 Bq/cm³ を下回るまでには約250年必要となり、この間、施設の維持管理が必要である。

固定化技術については、小型試験容器を用いた実験室規模での技術の成立性を確認したもの の、現在の技術レベルでは放射性クリプトンガス全量(約3000L)を固定化する実用段階に至 っていないことから、固定化技術開発を継続する場合であっても長期間の貯蔵を余儀なくされ る。一方、クリプトン貯蔵シリンダは長期的な貯蔵を想定したものではなく、高圧ガス保安法 で高圧ガス充填後の検査^{*1}は要求されていないものの、長期にわたって貯蔵を継続する場合は、 設備の高経年化を把握し、健全性を維持するためにクリプトン貯蔵シリンダの点検を行う必要 がある。

以上のとおり、貯蔵を継続する、あるいは固定化を進めるにしても、相当長期間の貯蔵を余 儀なくされることになり、今後は設備の高経年化も進み漏えい事故のリスクが徐々に高まる。 また、長期にわたってクリプトン貯蔵シリンダの高経年化を把握し性能を維持管理していくた めには、シリンダの点検のために放射性クリプトンガスの放出が継続することになる。

このため、放射性クリプトンガスの貯蔵に伴うリスクを低減させることを目的に放射性クリ プトンガスを窒素により希釈し、少量ずつ東海再処理施設の主排気筒から放出する放射性クリ プトンガスの管理放出を計画した。

※1: クリプトン貯蔵シリンダの容器検査の有効期間は 5 年、有効期間経過後は再充填時に 再検査が必要 This is a blank page.