

# 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」

2003年11月

核燃料サイクル開発機構  
研究開発課題評価委員会  
(廃棄物処理処分課題評価委員会)

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課  
電話：029-282-1122（代表）  
ファックス：029-282-7980  
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2003

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」

核燃料サイクル開発機構  
研究開発課題評価委員会  
(廃棄物処理処分課題評価委員会)

要 旨

核燃料サイクル開発機構(以下、「サイクル機構」という。)は、「国の研究開発評価に関する大綱的指針」(平成13年11月28日内閣総理大臣決定)及び「文部科学省における研究及び開発に関する評価指針」(平成14年6月20日文部科学大臣決定)、並びにサイクル機構の「研究開発外部評価規程」(平成10年10月1日制定)等に基づき、「再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発」に関する中間評価を研究開発課題評価委員会(廃棄物処理処分課題評価委員会)に諮問した。

これを受けて、廃棄物処理処分課題評価委員会は、本委員会によって定めた評価方法に従い、サイクル機構から提出された課題説明資料、補足説明資料及び委員会における議論に基づき、本課題の評価を行った。

本報告書は、その評価結果をサイクル機構の関係資料とともに取りまとめたものである。

## 目 次

1. 概要 .....	1
2. 廃棄物処理処分課題評価委員会の構成 .....	1
3. 審議経過 .....	2
4. 評価方法 .....	2
5. 評価結果（答申書） .....	5

### 参考資料（核燃料サイクル開発機構）

参考資料 1 研究開発課題の中間評価について（諮問）

参考資料 2 評価結果に対する措置

参考資料 3 課題評価委員会の評価意見に対する

サイクル機構の見解（補足説明資料）

参考資料 4 再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発

（課題説明資料）

[研究開発課題説明資料(本文)]

[研究開発課題補足説明資料（質問に対する回答）]

[用語の説明]

参考資料 5 再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発

（OHP資料）

## 1. 概要

核燃料サイクル開発機構(以下、「サイクル機構」という。)は、「国の研究開発評価に関する大綱的指針」(平成13年11月28日内閣総理大臣決定)及び「文部科学省における研究及び開発に関する評価指針」(平成14年6月20日文部科学大臣決定)、並びにサイクル機構の「研究開発外部評価規程」(平成10年10月1日制定)等に基づき、「再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発」に関する中間評価を研究開発課題評価委員会(廃棄物処理処分課題評価委員会)に諮問した。

これを受けて、廃棄物処理処分課題評価委員会は、本委員会によって定めた評価方法に従い、サイクル機構から提出された課題説明資料、補足説明資料及び委員会における議論に基づき、本課題の評価を行った。

本報告書は、その評価結果をサイクル機構の関係資料とともに取りまとめたものである。

## 2. 廃棄物処理処分課題評価委員会の構成

本委員会は、平成11年1月に設置され、関連分野の専門家を中心として、社会科学の専門家、ジャーナリスト、ユーザーなど、幅広い分野の委員から構成されている。

委員長	石樽 顯吉	埼玉工業大学先端科学研究所長・教授、東京大学名誉教授
委員	阿部 昌義	日本原子力研究所バックエンド技術部長
	植弘 崇嗣	国立環境研究所計測技術研究室長
	河西 基	電力中央研究所我孫子研究所高レベル廃棄物処分研究プロジェクトリーダー
	北山 一美	原子力発電環境整備機構技術部長
	小佐古敏荘	東京大学原子力研究総合センター助教授
	佐藤 正知	北海道大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻教授
	鈴木 潤	未来工学研究所R&D戦略研究グループリーダー
	千木良雅弘	京都大学防災研究所教授
	土田 昭司	関西大学社会学部教授
	増田 博武	中部電力(株)原子力管理部企画グループ課長
	松田美夜子	富士常葉大学環境防災学部助教授 生活環境評論家(廃棄物問題とリサイクル)

### 3. 審議経過

- (1) 第1回目の委員会開催：平成15年3月31日
  - ・評価方法の決定
  - ・課題内容の説明・検討
- (2) 第2回目の委員会開催：平成15年6月17日
  - ・補足説明、質問への回答
  - ・評価内容の検討
- (3) 評価結果(答申書)のまとめ  
上記の審議結果に基づき、委員長が評価結果をまとめ、各委員の了承を得て答申書とした。
- (4) 答申：平成15年8月18日

### 4. 評価方法

以下の評価作業手順及び評価項目に従い、評価を行った。

#### (1) 評価作業手順

##### 1) 第1回目の課題評価委員会における審議

- ① 評価方法を定める。
- ② サイクル機構から課題説明資料により課題内容の説明を受け、内容を把握・検討する。なお、欠席した委員に対しては、別途、対応させる。

##### 2) 各委員の評価作業

- ① 各委員は、評価に際し、課題について追加質問がある場合には、質問事項を書面で事務局に提出する。
- ② 事務局は、第1回目の委員会での質問及び委員からの追加質問に対するサイクル機構の回答を委員に送付する。
- ③ 各委員は、課題説明資料、委員会における説明及び質問に対する回答を基に、評価項目に従って評価を行い、評価意見を書面で事務局に提出する。
- ④ 事務局は、委員から提出のあった評価意見を整理して、次回の課題評価委員会の検討資料を作成する。

##### 3) 第2回目の課題評価委員会における審議

- ・各委員が行った評価意見、サイクル機構の課題説明資料及び補足説明、委員会における討論に基づき、課題評価委員会としての評価を行う。

##### 4) 評価結果(答申書)のまとめ及び答申

- ・委員長は、上記の審議結果に基づき、委員会としての評価結果をまとめ、理事長に答申する。なお、答申書には、次項に示す各評価項目及び総合評価について、委員会としての評価結果を記述する。

##### 5) その他

- ・評価をよりの確なものとし、また評価に対する被評価者の理解を深めるため、課題評価委員会には研究実施責任者及び担当者を出席させ、議論に参加させるものとする。

## (2) 評価項目

評価項目及び評価の視点（○印）は次のとおりとする。

### 1) 研究開発の目的・意義

- 目的・意義は明確かつ的確か。
- 重要性、緊急性が高いか。  
(長期的に見て重要性が高いものか、将来に備えて今から対応しておくべき課題か、という視点を含む。)
- 社会的・経済的ニーズ、民間ニーズはあるか。
- 国の計画・方針との整合性
- サイクル機構が実施すべき課題か。
- 関連技術動向が的確に把握されているか。

### 2) 研究開発目標

- 目標の設定・水準は適切か。
- 目的・意義達成のために十分な目標設定となっているか。
- ブレークスルーすべき点が明確か。
- 状況に応じて適切に見直しが行われているか。
- 関連技術動向が的確に反映されているか。

### 3) 研究開発計画

- 研究開発項目の設定・内容、スケジュール、項目相互間の関連性等は具体的で妥当なものか。
- 資金計画（予算の規模・配分）は妥当であるか。
- 計画見直しの機動性（状況に応じて計画の見直しを適切に行っているか。）
- 使用する施設・設備は適切か。
- 関連技術動向が的確に反映されているか。
- 研究開発内容は独創性、創造性に富んだものになっているか。
- 実用化への道筋が適切に考えられているか。

### 4) 研究開発実施体制

- 組織、人員・人材の配置、研究開発グループ間の連携、委員会の活用、運営等は妥当なものか。
- 他機関との協力・連携（国際協力を含む）は適切か。

### 5) 研究開発成果

#### ①得られた成果の内容

- 達成された具体的な成果について、水準、質、意義、当該分野への寄与の程度等の評価
- 計画と比較した達成度（要因分析を含む）
- 費用対効果（投入した費用に見合った成果が得られているか。）

#### ②実用化との関係

- 実用化への技術的見通し
- 実用化のために必要な技術開発課題は何か。

③得られた成果の普及、公開

- 技術移転を含む成果の普及・活用は期待できるか。
- 波及効果は期待できるか。
- 成果発表、特許出願・取得等の実績
- 広報は積極的、効果的に行われているか。

6) 今後の展開

- 今後の展開、進め方等に関するコメント

7) その他（上記項目に当てはめ難い評価意見）

8) 総合評価

- 上記各項目の評価を踏まえた総合的な判断

(3) 評価基準

各評価項目について評価を行い、進捗状況の妥当性や、目的・目標、進め方などの見直しの必要性等を総合的に判断する。



5. 評価結果（答申書）

平成15年8月18日

核燃料サイクル開発機構

理事長 都甲 泰正 殿

研究開発課題評価委員会

（廃棄物処理処分課題評価委員会）

委員長 石樽 顯吉

研究開発課題の評価結果について（答申）

当委員会に諮問[14 サイクル機構（企）110]のあった下記の研究開発課題の中間評価について、その評価結果を別紙のとおり答申します。

記

研究開発課題「再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発」

以上

## 廃棄物処理処分課題評価委員会報告書

## 「再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発」の

## 評価結果 (中間評価)

核燃料サイクル開発機構（以下、「サイクル機構」という。）では、再処理施設からの放出放射能の低減化技術開発の一環として、大気中に放出される放射性クリプトンの回収技術及び回収後の長期貯蔵のための固定化技術開発を 1970 年代から実施してきた。クリプトン回収・固定化技術は、開発当初の社会情勢に比べると技術確立の緊急性は低くなっているが、将来における原子力の利用増大に伴う燃料再処理量の増加に従い、クリプトンの放出が環境に無視できない場合の対応に備えたものである。

クリプトン回収技術においては、サイクル機構の東海再処理施設にクリプトン回収技術開発施設を付設し、液化蒸留法による技術開発を行った。約 20 年の試験運転で所期の技術目標を達成することにより回収技術を確立し、2001 年度に回収試験運転を終了している。回収したクリプトンは、一部を固定化技術開発で使用するとともに、残りをシリンダーで貯蔵している。

クリプトン固定化技術においては、イオン注入法を採用し回収したクリプトンの一部を小型の試験容器に固定化して、技術の成立性までを確認している。

今後 5 年間の計画として、クリプトン回収技術開発については、新たな技術開発は行わず、技術の集大成を図る。また、クリプトン固定化技術開発については、実用化の評価が可能な固定化容器に対する拡張技術の開発をコールド試験で行うとともに、すでにシリンダーに貯蔵しているクリプトンを用いたホット試験でその性能確認を行う。さらに、固定化した試験体を用いて長期貯蔵性能の確認を行うことにしている。

今回は、これまで実施してきた技術開発の成果及び今後の計画についての中間評価を行った。

評価結果は、以下のとおりである。

### 1. 研究開発の目的・意義

クリプトンの回収技術は、1970 年代において将来の再処理施設からの放出放射能が危惧され、1972 年の原子力長計にもその必要性が示されていたことから、開始当時の研究開発の目的と意義は明確であったと理解する。しかし、1970 年代に予測した原子力発電規模の増加予測から変化を生じ、技術開発の緊急性が高いとは言い難い状況となった。ただし、再処理施設からの放出放射能による環境負荷の低減を目指した技術開発は重要である。したがって、本課題は、実用化を検討・判断するための基礎データを提供することに意義があり、現時点では、将来に備えた基盤的な技術開発と捉えるべきである。この視点から、その当時国内唯一の再処理施設保有者であるサイクル機構が実施してきたことは適切であり、また、関連技術動向の把握も適切に行われていると考える。

この技術が、原子力をはじめとする関連技術にどのように役立つ可能性があるかという

視点からも所要の検討結果を得ておくことが重要である。また、クリプトン回収・固定化に関する費用対効果、安全性、経済性及び信頼性の観点から、クリプトンの排気筒放出との比較評価も目的として追加すべきである。

## 2. 研究開発目標

今後の固定化技術の開発として、既存の固定化試験設備での対応可能な範囲で、コスト的に有利と想定される拡張型容器を用いてスケールアップを図るための研究開発を目標とすることは妥当である。

開発に着手してから30年を経ており、その間、ALAPからALARAへの被ばく防護の概念の移行、原子力需要の鈍化等、様々な状況変化があったと考えられる。その中で、環境負荷低減のための研究開発に努めてきたことは評価するが、一方、実用化という視点で目的と目標につき背景や周辺動向等に適切に配慮しつつ、計画を柔軟に進めていくことが重要である。

## 3. 研究開発計画

研究開発項目の設定、内容、スケジュール等の関連については、概ね具体的に示されており妥当と考える。これまで30年以上を費やしたクリプトン回収・固定化の技術開発の締めくくりとして、回収技術に関する情報の集約と、固定化技術開発のスケールアップにより、実用化検討に役立つものに仕上げるべきものとする。

なお、今後の固定化技術の開発においては、スケールアップ因子の把握による実用化の評価であれば、コールド試験のみでもある程度の評価は可能であるが、拡張型容器でのホット試験により、費用対効果を評価するうえでの貴重なデータが得られ、また、現在シリンダーに貯蔵しているクリプトンの固定化ができ、安定した状態での貯蔵かつ貯蔵コスト面の合理化が図れると判断される。以上のことから、実用化の評価に適切に反映するためのデータを採取することを前提にホットでの拡張型容器を用いた固定化試験を行うことが妥当と判断した。

固定化技術の開発では、クリプトンが固化体にどのような状態でトラップされているかを把握し、また、数値モデルを用いた放出率の評価には、トラップガスの移行に関する拡散過程やバブルの形成・消滅過程等の体系的な検討が必要であり、長期貯蔵の安全確保に関してこのような過程解明に関する研究もある程度必要である。

## 4. 研究開発実施体制

研究開発要員は5名とされているが、残された今後5年間で技術の確立と集大成を行う上ではやや厳しいという印象を受けるので、他の研究グループとの連携や外部機関との協力関係などを有効に活用することを考えていくべきである。

## 5. 研究開発成果

### ①得られた成果の内容

これまでのクリプトン回収技術に関する開発成果の水準、質等は概ね良好であり、計画で設定した目標を達成しているものとする。本技術開発においては、クリプトンの分離回収の必要性及び合理性を判断する技術的データを提供できるようにする必要がある。

気体の放射性核種を安全に放出することも廃棄物処分の有力な一選択肢であり、分離回収して貯蔵することのコスト評価、これに伴う低温でのクリプトンや水素ガスの取扱い、一時的なシリンダーによるクリプトン貯蔵などに伴うリスクの評価、施設の解体費用、関連廃棄物の処分費用などを総合的に判定した上で選択肢を決定することになる。これらに対して、関連したデータの収集と評価が必要であり、この点に関しては必ずしも未だ十分な成果が得られていない状況といえ、今後5年間の中で詰めておく必要がある。

## ②実用化との関係

将来における実用化という観点では、放射線影響とコストとのバランスとなる費用対効果の評価が重要であり、今後のクリプトン固定化技術に関する拡張型試験結果をもとに、実用化のコスト評価が行えるようにしておく必要がある。

## ③得られた成果の普及、公開

本技術開発成果は、種々のガス処理への応用として展開できる可能性がある。他分野へどのように展開させることができるか、十分な検討評価を行う必要がある。技術移転を含む成果の普及・活用、波及効果は期待できると思われるが、ユーザー側の興味を如何に引き出すかが課題である。費用対効果など実用化にあたって、いろいろな角度からの論点も踏まえて具体的な技術移転先をにらんだ成果のまとめ、公表、広報のあり方を今後さらに充実させて行くべきと考える。

成果発表に関しては、一定のレベルに達していると思われる。今後、学会誌等への投稿・寄稿も積極的に進めて欲しい。また、社内技術資料や安全研究成果は、より積極的な公開を図ることができるように、技術情報を集大成することを期待する。

## 6. 今後の展開

今後の展開としては、5年間で技術開発を終了させるとのことから、クリプトンの回収・固定化に関する費用対効果の評価を実施する必要がある。また、技術の取りまとめにあたっては、ユーザーからの要望を適切に把握し、必要なデータを充分提供できるよう配慮すべきである。さらに、開発終了後における技術の蓄積と移転をどのように図っていくかを今後の開発の中で示していく必要があると考える。

併せて、サイクル機構の責任において、使命の終了した施設の早期の廃止措置や処分法（施設のみならず、シリンダーや固定化容器の保管法／処分法を含む）の検討も行うべきであると考えられる。

## 7. 総合評価

本課題は、一般公衆の被ばく低減につながる再処理施設からの放射能の環境放出低減を目指した重要な技術開発であり、再処理施設を有するサイクル機構が実施すべき課題としてこれまでのクリプトン回収技術及び固定化技術の成果は、評価できる。なお、開始当初と現段階では状況が変わっており、実用化技術レベルまでの成果を出す緊急性は低く、将来に備えた基盤的な技術開発といえる。

本課題の実施にあたっては、実用化を検討するうえでの費用対効果を含めたバックデータを得ておくことが重要である。固定化技術のスケールアップ因子の把握による実用化の

評価のためであればコールド試験のみでもある程度の評価は可能であると思われるが、拡張型容器でのホット試験により費用対効果の評価するうえでの貴重なデータが得られること、さらに現在シリンダーに貯蔵しているクリプトンの固定化ができ、貯蔵コストの面で合理化が図れると判断されることから、実用化の評価に適切に反映するためのデータを採取することを前提にホットでの拡張型容器を用いた固定化試験を行うことが適当と判断する。

また、今後の固定化技術開発の拡張型試験データの他に、クリプトン以外の環境に影響を与えるものへの応用検討やクリプトン固化体の安定性評価のためのデータ採取などの必要事項を整理し、とりまとめておく必要がある。なお、今後の試験にあたっては、計画に示しているようコスト削減に配慮しつつ実施し、5年間で集大成を図られたい。

以上

## 評 価 意 見

### 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」 (中間評価)

#### 1. 研究開発の目的・意義

(1) 1970年代には確かに環境論争があり、原子力長計にもその必要性が示され、研究開発の目的と意義は明確であったと理解する。その後商業用再処理施設の建設が進められ、また将来の原子力利用の増加についても楽観的見通しが持てなくなるなど状況の変化は大きい。現時点で目的・意義は明確でなく、緊急性も高いとは認められない。官民の役割分担の点からも、今後の技術開発と実用化については、ユーザーである民の自由な判断と選択にゆだねるべきである。

(2) 目的及び意義は明確であり、環境負荷の低減を目指したものとして重要性は高いと考える。しかし、回収・固定化の技術開発を開始した1970年代と比較して原子力需要の増加予測が変化している現状等から、長期的視点に立ったとしても、緊急性が高いとは必ずしも言い難い。また、回収技術については既にパイロットプラント規模で目処が立っていることから、改めてコメントする必要はないものと考え、ALARAの原則との関係を考えて、社会的・経済的ニーズ、民間ニーズ等の視点から、目的・意義の的確性が十分であるとは必ずしも言い難い側面が残されている。

ただ、このような環境負荷低減を目指した技術は重要であり、有効に活用される時期がいずれ到来することも考えられ、この視点からは、国内唯一の再処理施設保有者であるサイクル機構が実施することは適切であり、また、関連技術動向の把握も適切に行われていると考える。

(3) 目的・意義に関しては明確になっていると考えられる。ただし、本技術開発の反映先が「クリプトンの回収・固定化の一連の技術評価」へとなっているが、(本文p3)技術的な達成目標を具体的に明示すべきと思われる。

重要性、緊急性に関しては、これまでの技術蓄積を踏まえて将来に備え技術的な確立をしておくことが重要と考える。ただし、後段の今後の展開のところで、国際的には必要性は薄れてきているという認識の中での必要性を述べているため、重要性・緊急性という面での意味合いが分かりにくくなっている。前段の課題設定の背景・目的のところなどでも基本的なスタンスを明確に述べた方が良いと思われる。

将来に備えるという意味で社会的・経済的ニーズはあると思われる。国の方針にも整合していると考え、最近の方針との関係が良く分からない面もある。

このような、将来に備えた技術開発はサイクル機構にふさわしい課題である。技術開発動向に関しては、最近では海外等での機関での検討や研究協力等がほとんどないのかあまり述べられていない。

(4) 1972年の原子力長計に照らし合わせると本課題の開始時における目的・意義は理解できるものの、現時点においては、本技術の緊急性は低く、今後とも開発を進める意義があるのかを明確にする必要がある。

(5) サイクル機構での研究開発は、少し先を睨んで、新しいものを探っていくスタンス

が重要であり、本技術開発では回収のみではなく固定化まで考えたことは適切と考える。

本技術開発のスタート時は、国の計画・方針との整合が図られていたものと思われるが、世界的に見ても状況が変わり、現段階でクリプトン回収に係る技術開発を実施しているところは見当たらない。その要因には費用対効果があるものと思われる。とはいえ、環境問題の面もあり、将来において必要になってくる可能性も有り得る。

したがって、本課題は、長期を睨んだ技術開発であるといえ、近年での実用化に向けた開発という考え方ではなく、将来に備えた基盤的な技術開発と捉えるべきであろう。

(6) 目的・意義は、明確で的確である。

Kr-85 は大気からの被曝の主要な核種で、重要性が高い。近い将来に向けて技術面で今から対応しておくべき課題である。

経済的なニーズ、民間ニーズは特になくはないと思われる。その一方で、この件を放置すると、企業倫理・技術者倫理の面から問題があり、取り組んでおかなければならない課題である。サイクル機構が実施すべき課題である。

この技術が、原子力をはじめとする関連技術にどのように役立つ可能性があるかという視点からも一応の検討結果を得ておく必要がある。

(7) 70年代に放射能低減化の方針に基づいて本課題が開始された意義は十分に理解できる。しかし、その重要度と緊急性については、現時点では疑問を感じざるを得ない。

(8) 目的・意義は明確だと思う。本研究・開発は、30年続いてきた研究に実用化の目処をたてて一区切りつけようとする研究で、現在の状況では、緊急性はないと思うが、重要性は高いと思う。

(9) 目的・意義は明確であるが、諸外国においてクリプトンの回収が実際に行われていないことを考えれば重要度と緊急性が高いとは認めがたい。したがって、現時点で直接的な社会的・経済的・民間ニーズがあるとは言い難い。しかしながら、これまで長年にわたってサイクル機構において研究開発が行われてきており、その長年の成果を意味のあるものとして後世に残すという目的は認められる。また、日本が先端的に研究開発している課題であるという意義はあるといえる。

(10) これまでに蓄積してきた回収・固定化技術の集大成の観点から研究開発の目的・意義は適切。

なお、Kr回収・固定化に関する費用対効果の評価、安全性、経済性、信頼性の観点から排気筒放出との比較も目的として追加すべきではないか。

(11) 妥当である。

## 2. 研究開発目標

(1) 分離技術における分離目標値を90%とすることの根拠は明確でない。どこまで分離回収するかは、ALARAをうたうならば被曝評価にもとづく、cost effectivenessで決められるものではないか。その意味でコスト評価の詳しい議論がなされていないのは不合理。

固定化技術として、イオン注入法を選定したことは妥当と判断する。

(2) 固定化技術開発の目標は、目的を達成し得る設定であると考えられる。

これまでの開発過程で確認された技術的課題に対しては、適宜、開発内容の見直しを図られていると考えられる。しかし、本技術開発に着手してから30年間を経ており、その間、ALAPの概念からALARAの概念への移行、原子力需要の鈍化等、様々な状況

変化があったと考えられるが、それらの状況変化をどのように捉え、開発の目的・意義（開発の方向性）を含めて、目標の見直しをどのように図ってきたのかについては明確でない。例えば、ALARA の原則に関しては、原子力安全委員会決定の「発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に関する指針」においては、ALARA の考え方に立った線量目標値として「 $50 \mu\text{Sv}/\text{y}$ 」を設定しているが、これと比較したとき、本技術開発では、放出量をどこまで低減し、一般公衆の被ばく線量をどこまで低減することが ALARA の達成と判断しているのか、分かりにくい。シーズ的研究開発であっても、本研究開発はプロジェクト開発に直接関連する課題であり、目的と目標の関係を、それらの背景や周辺動向等に適切に配慮して論理的に整理し、明確に関係づけることが重要であると考える。

(3) 本文においては、3. 研究開発の目的→4. 研究開発課題の設定→5. これまでの研究開発成果→6. 今後の研究開発計画の流れで記述されており、目的・課題設定が既往研究成果の前に記述されているため、今後の研究開発計画の中で記述されている研究開発意義や開発課題との関係でどのようなブレークスルーがなされたのか分かりにくい。

国内外の状況に照らして、今後の研究開発計画に関しては、今後5年間で一応の技術の確立を図り開発を終了させるとしており適切な見直しがなされたものとする。

関連技術動向については、上記1. (3) の最後のコメントと同じ。

(4) 1. で現時点でも意義があるとされた場合、その意義に即した目標であるのか？(1. では現時点で意義が小さいとしているため) 特に拡張型容器にて行う目標はなにか？

(5) クリプトン回収率が90%以上の目標設定は妥当であると思われる。

また、目的・意義達成のための目標設定としては、おおむね妥当であると思われる。

(6) 委員からの追加質問に対する回答A 2-5に示されているような、「中断した場合のデータ散逸のおそれ」をもって計画継続の理由とすることは、明らかな誤りである。中断する場合にも、最終的に終了する場合にも、データのとりまとめと保全は最重要課題である。

(7) 私は、クリプトン回収・固定化技術開発に関連する分野の専門家ではないので積極的なコメントは控えたいが、担当者からの説明を聞く限り、研究開発の具体的な目標と解決すべき問題点、ならびにそのために要する費用や時間の見積もりは、これまでの長年の研究開発の実績と経験から導かれたものであり、適切な見通しに立っているという印象を持っている。

(8) 既存の固定化試験設備の対応可能な範囲で、コスト的に有利と想定される拡張型容器を用いてスケールアップを図ることを研究開発目標とすることは妥当。

(9) 妥当である。

### 3. 研究開発計画

(1) 1970年代の技術開発のニーズはともかくとしても、その後原子力の状況変化に対応して、計画を見なおすチャンスがあったのではないかと。海外において全てこの関連の技術開発から撤退をしている事実を見ても、早期に計画の再検討をすべきであった。

(2) 今後5カ年の固定化技術開発に関する内容、スケジュール等は、具体的で妥当と考える。関連技術の動向についても的確に反映されている。これまで30年以上を費やし



た技術開発の締めくくりとして、回収技術情報の集約と、固定化技術開発のスケールアップにより、確実に実用化に役立つものに仕上げたい。

(3) 研究開発項目の設定、内容、スケジュール、項目等の関連については、概ね具体的に示されており妥当と考える。

資金的には、5年間の固定化技術を確立し、実用化の目処をつけるまでを期待するためにやや厳しい感じも受けるが、適切な資金・実施計画を詳細につめ、今後必要に応じて柔軟かつ機動的な見直しことが望まれる。

基本的には既存設備を適切に使用することとしており妥当と考えるが、小型容器の3～4倍の拡張容器で固定化技術実用化の確認のためのスケールアップ試験として十分であるかどうかについてはもう少し詳細な説明があると良い。

上述のことも併せて、実用化への道すじとしては、実用化の概念とともにもう少し具体的なイメージを示していただくように今後検討していただきたい。

研究開発内容には、関連特許もいくつか取得しており独創性も保持されていると考える。

(4) 固定化技術開発では、基盤技術としてもう少し踏み込み、将来、円筒・イオン注入が最適か判断する材料として、どういう状態でトラップされているかを把握しておくことも必要ではなからうか。

(5) TG/DTA でクリプトン放出特性について検討されている。また、ガス放出や、400℃、1万時間の組織写真が示されている。これらのデータは貴重であり、必要なものである。その一方で、モデルを用いた放出率の評価にはガスの移行に関する拡散過程やバブル形成・崩壊過程等の体系的な検討が合わせてなされた上での評価になっている必要がある。ある程度の長期貯蔵の安全確保に関してこのような過程解明に関する研究は必要で、この点は課題として残ると考えるが如何でしょうか。

(6) 個別の課題に関するミクロな視点からは、それぞれの計画に基づく着実なデータ蓄積や運転の実績があげられており、評価できるものと考えられる。しかしながら、全体としてみると、早期実用化の必要性が低くなった段階で、回収施設における実証運転の規模・回数の見直しや、固定化施設におけるホット試験の見直しなどを抜本的に実施する必要があったのではないか？

委員からの追加質問に対するA3-1において「適切に見直してきた」旨の回答が出されているが、試験期間を長くとることがなぜ適切に見直しといえるのか、理解できない。

(7) コスト面から実用化に適するのかどうかは、判断できないが、他の面では本研究開発計画は、実用化に向けて妥当に設定されていると思う。

(8) 今後、2年間のコールド試験を経て3年間のホット試験が計画されているが、ホット試験実施にあたっては、コールド試験の結果及び費用対効果を評価する必要があるのではないか。

(9) 妥当である。

#### 4. 研究開発実施体制

(1) この技術のユーザーとの協力・連携は行われてきたとのことではあるが、それが適切に行われたものであるかどうかは判断できない。

(2) 本研究開発は、「東海事業所再処理センター処理部化学処理第1課(5名)」単独で実施しているようであるが、開発内容の妥当性をより向上させるためには、学会発表や論文投稿のみでは十分とは言えず、社内の関連部署との有機的・組織的な連携と、社外専門家を含む技術検討委員会の設置等により、技術的内容や開発の進め方、途中で得られる成果等のチェック&レビューを受けながら進める体制が望ましいと考えられる。

国際協力に関しては、当該課題に対する主要国の取組の現状から、連携が困難であると思われるが、他機関、特に日本原燃との協力・連携については、情報の公開レベルに止まることなく、積極的に働きかける工夫をしてほしい。

(3) 研究開発要員は5名ということであるが、残された5年という期間で技術的な確立とまとめまで成し遂げる上ではやや厳しいという印象を受けるので、他の研究 Gr との連携や外部機関との協力関係などを有効に活用することを考えていくべきと考える。

(4) 体制は妥当なものと判断するが、固定化技術に対しては、材料物性の専門家との意見交換を行いつつ進めるべきと考える。そのことによって、より固定化効率のよいものが生まれる可能性もあろう。

(5) 5年後の研究終了の後、これまでの成果が十分に次につなげるよう取りまとめをしっかりと行うこと。

## 5. 研究開発成果

### ①得られた成果の内容

(1) 本技術開発においては、Kr を分離回収することが真に必要なかどうか、また合理的であるかどうかを判断する技術的データを提供する事が必要である。

気体の放射性核種を安全に放出することも廃棄物処分の有力な一選択肢である。これに対して、分離回収貯蔵することの cost effectiveness、これに伴う低温での Kr の取扱い、H<sub>2</sub> ガスの取扱い、一時的シリンダー貯蔵などに伴うリスクの評価、施設の解体費用、関連廃棄物の処分費用などを総合的に判定した上で選択肢を決定することになるが、関連したデータの収集と評価が必要であり、この点に関しては必ずしも十分な成果が得られていない。

(2) これまでの回収技術の開発成果の水準、質等は概ね良好であり、計画で設定した目標を達成しているものとする。

(3) これまでに得られた成果については、概ね具体的な記述がなされており内容的に適切と考える。ただし、当初計画に対しての達成度や費用対効果に関しては、必ずしも詳細な記述がないので判断は難しい。

(4) これまで実施してきたクリプトン回収技術及び固定化技術の成果は、予定どおり達成できているものとする。

(5) 回収技術について、また、固化処理技術も課題はあるものの、おおむね目標達成と評価したい。

(6) 30年の長期間にわたる長期の研究ではあるが、研究成果は着実に上げられてきていると思う。期間が長期にわたったのは、原子力エネルギー需要の伸びが鈍化したためのものであり、やむをえない面があるものと思う。

(7) クリプトン回収技術については、延べ1000日以上の運転により所定の回収目標を達成と評価。

固定化技術については、放射性クリプトンの固定化実績を重ね技術の成立性が確認できたものとする。

(8) 5年後の研究終了までに一層の努力を望む。

## ②実用化との関係

(1) 回収技術は、実用化の可能なレベルに達していると考えられる。今後の課題としては、実機採用に際しての設備投資、維持管理等に要する費用と、放出量低減については一般公衆の被ばく低減の効果に関する評価を実施し、全体としてより魅力のある技術にすることが必要と思われる。

(2) 小型容器を3～4倍拡張した容器での試験を中心にコールド試験・ホット試験により実用化の技術見通しをつけるまでの総合化をいかにするかをもう少し具体的に提示することが望ましい。特に、回収技術～固定化技術の総合化→実用化目標の概念設計とその評価を踏まえ、いかに実用化の青写真を示すかが課題として必要ではないかと考える。

(3) 将来における実用化という点では、放射線影響とコストとのバランスとなる費用対効果が重要であり、今後のクリプトン固定化技術の拡張型試験結果をもとに、外挿して実用化のコスト評価ができるなら進める必要が認められる。

(4) 5年後の研究終了までに一層の努力を望む。

## ③得られた成果の普及、公開

(1) 技術移転を含む成果の普及・活用、波及効果の期待はできると思われるが、相手方の興味を如何に引き出すかが課題であろう。

成果発表に関しては、一定のレベルに達していると思われる。ただし、口頭発表件数は比較的多いが、学会誌等への投稿・寄稿も積極的に進めて欲しい。また、社内技術資料(32件)及び平成13年度以降社内テーマの位置づけとした安全研究成果は、より積極的な公開を図るように、技術情報を集大成することを期待する。

(2) 実用化の目処が得られた段階では、基本的に技術の活用は十分に期待できると考えられるが、費用対効果など実用化にあたってのいろいろな角度からの論点も踏まえて具体的な技術移転先をにらんだ成果のまとめ、公表、広報のあり方を今後さらに充実させて行っていただきたい。

(3) 本技術開発成果は、種々のガス処理への応用として展開できる可能性があり、この点を明確な目標とするのなら価値ある技術開発とも思われる。これをどのように他分野へ展開させることができるか事前に十分な検討評価しておく必要がある。

(4) クリプトンの回収・固定化に対する需要がない現時点では、本研究開発によって得られる成果が波及するか否かは判断できないが、その需要が増加すれば、当然波及効果をもってくると思う。

(5) 成果発表、特許出願・取得等は、今後より積極的に行われなければならない。

クリプトン回収・固定化技術についての広報が、積極的・効果的に行われているとはまったく言えない。それは、使用済み核燃料処理に伴うクリプトン回収・固定化について何らかの知識を持っている市民はほとんど皆無であろうと思われるからである。使用済み核燃料処理に関して一般市民からの理解を得る作業の一環にクリプトン回収・固定

化技術についての広報もより積極的に含められるべきであるとする。

(6) 5年後の研究終了までに、今までの成果をきちんと整理し、実績を取りまとめることを望む。

## 6. 今後の展開

- (1) 本技術開発の継続はこれまでの技術開発の取りまとめと総括に限定すべきである。その中で5①(1)で述べた経済性評価、リスク評価等とそれに必要なデータの収集を行ない、これが達成されれば5年を待たず終了することも考えるべきではないか。技術の取りまとめにあたっては、ユーザーからの要望を適切に把握し、ユーザーが選択肢の決定をする際に必要なデータを充分提供できるよう配慮すべきである。
- (2) 前述したように、①背景や周辺動向、状況の変化等に適切に配慮した目的と目標の関係の整理、②本技術開発の締めくくりとして確実に実用化に役立つ仕上げ、③社内関連部署との連携や技術的検討の場の設定による効果的な体制の充実、④関係機関との積極的な連携と実用化の面で魅力ある技術の確立、等に適切に配慮して進めて欲しい。
- (3) より具体的な実用化への道筋を示し、かつ開発終了後における技術の蓄積と移転をどのように図っていくかを今後の展開の中で示していただきたい。
- (4) 今回の課題は、クリプトンに着目して進めているが、環境にインパクトを与えるものに対し、本技術の応用が可能かを調査・整理しておくことも必要ではなからうか。
- (5) 使命の終了した施設が遊休化し、いたずらに維持管理コストが掛かることをさけるために、早期の廃止措置や最終処分法（施設のみならず、シリンダや固定化容器の保管法/処分法を含む）の検討をも行うべきであるとする。
- (6) 技術開発成果として、技術情報の提供とともに、クリプトン回収・固定化に関する費用対効果の評価を実施することを望む。
- (7) クリプトンの研究は5年後に終了し、施設も閉鎖されるとのこと。これまでの研究成果が他の研究へ十分に反映されることを望む。

## 7. その他（上記項目に当てはめ難い評価意見）

- (1) 本課題のように、時代背景とともに重要度や緊急度が変化してしまったものに対し、現在配分されている資源が、サイクル機構全体の中でどの程度の比重を占めるものなのかが、提示された資料からは判断できない。予算の均衡・縮小を前提とする環境下で資源配分の妥当性を判断するためには、個別課題間の優先度の高低を評価するべきではないか？
- (2) クリプトンを回収・固定化した後に100年程度管理する必要があるとのことであるが、その管理体制をどのようにするか、その実現性も含めて概念的でも良いから考えておく必要があると思う。

## 8. 総合評価

- (1) 本プロジェクトが開始された当時には放出低減化技術としての国の方針もあり、研究開発の意義はあったと判断するが、その後30年の歳月の間に原子力を取りまく状況は大きく変化し、今日ではその研究開発を継続する目的・意義も明確でない。

今後は、これまでに投入してきた研究資源が全くの無駄とならないよう、また将来の

状況変化により、この技術へのニーズを生じたとき、これを活用できるよう、その成果の取りまとめと cost effectiveness の評価の基礎となるデータの整理など最小限の作業のみに限定して継続することとし、本研究開発を可及的速やかに停止することが妥当と判断する。

また、その際ユーザーのニーズを充分把握して作業を進めることが重要である。

(2) 一般公衆の被ばく低減につながる放射能の環境放出低減を目指した重要な技術開発であり、再処理工場を有するサイクル機構が実施すべき課題である。これまで 30 年間の技術開発の締めくくりとして、計画した目標を着実に達成するとともに、実用化に役立つ成果となるように進めて欲しい。

(3) これまでに培ってきた貴重な技術開発を踏まえて、我が国としての再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術を集大成し、実用化への見通しを確立しておくことは意義深く、上記のコメントなどの評価意見にも配慮しつつ、適切に進めていくことが妥当であると判断します。

(4) 本研究開発は、開始当初と現段階では状況が変わっており、実用化技術レベルまでの成果を出す緊急性はなく、将来に備えた基盤的な技術開発といえる。

これまでのクリプトン回収技術及び固定化技術の成果は、評価できる。

基盤的技術としての水準で実施しておくべきことは、将来において実用化を検討するうえでの費用対効果を含めたバックデータを得ておくことが重要であり、これまでの成果に加え、今後の固定化技術開発の拡張型試験データの他に、クリプトン以外の環境にインパクトを与えるものへの応用検討や固化体の安定性のためのデータ採取などの必要事項を整理し、とりまとめておく必要がある。

(5) 本課題を継続して実施することに関し、その重要性・緊急性が高いとは認められない。原子力長計において 2010 年頃に行うとされている「次期再処理工場の検討」のためには、現在までに得られているデータでかなりの情報提供が可能であるし、スケールアップ因子の把握のためであればコールド試験のみでもある程度の評価は可能ではないか。

しかしながら、2008 年度まで本計画を継続して完成させるために必要と見込まれている費用や人員が比較的少ないことから、他の課題とのバランスで余力があるのであれば最後まで完遂するという選択肢もあり得るであろう。

(6) 本研究開発には緊急性はないものの、長く続いてきた研究開発に一区切りつけ、また、時代の変化に即応できる態勢にしておくために、着実に実施することが望ましいと考える。

(7) 使用済み核燃料の処理に際して大気中に放出される量のクリプトンが周辺住民をはじめとする人々の健康に悪い影響を及ぼすおそれが無視できる程度のものなのであるとすれば、クリプトン回収・固定化技術の開発は、自然科学的には意義のないものといわざるを得ないであろう。

ただし、一般住民とのリスク・コミュニケーションに際しては、使用済み核燃料の処理に伴って発生する「液体のゴミ」、「固体のゴミ」と共に「気体のゴミ」も確実に回収・固定化する技術が開発されている事実は意義のあるものであると考えられる。すなわち、たとえほとんど無害であると評価される物質が含まれるとしても、すべての「ゴミ」を適切に回収・固定化して処理をする方針（姿勢）を社会に示すことは、社会からの信頼

を得るために必要なことであると考えられる。

(8) これまでの蓄積してきた回収・固定化技術の集大成という観点からは、当面2年間のコールド試験の実施は適当と考えるが、この試験結果および費用対効果の評価を踏まえて、ホット試験の実施に関する評価を受けることが望ましい。

(9) 5年後に研究が終了することは、今の原子力政策の状況ではやむを得ないことと判断する。

以上

# 参 考 資 料

核燃料サイクル開発機構

## 参考資料目次

- 参考資料 1 研究開発課題の中間評価について（諮問）
- 参考資料 2 評価結果に対する措置
- 参考資料 3 課題評価委員会の評価意見に対するサイクル機構の見解
- 参考資料 4 再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発（課題説明資料）  
[研究開発課題説明資料(本文)]  
[補足説明資料（質問に対する回答）]  
[用語の説明]
- 参考資料 5 再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発（OHP資料）



## 参 考 資 料 1

研究開発課題の中間評価について（諮問）

14 サイクル機構(企)110  
平成15年2月26日

研究開発課題評価委員会  
(廃棄物処理処分課題評価委員会)

委員長 石樽 顯吉 殿

核燃料サイクル開発機構  
理事長 都甲 泰正

研究開発課題の中間評価について（諮問）

研究開発外部評価規程第7条第1項に基づき、次の事項について諮問致します。

・ 諮問事項

「再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発」  
に関する中間評価

以上

## 参 考 資 料 2

### 評価結果に対する措置

**廃棄物処理処分課題評価委員会**  
**「再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発」の**  
**評価結果（中間評価）に対する措置**

平成 15 年 10 月 16 日  
核燃料サイクル開発機構

核燃料サイクル開発機構では、再処理施設からの放出放射能の低減化技術開発の一環として、大気中に放出される放射性クリプトンの回収技術及び回収後の長期貯蔵のための固定化技術開発を 1970 年代から実施してきました。クリプトンの回収技術については、液化蒸留法による実証プラントの性能を確認し、2001 年度に回収試験運転を終了しています。また、クリプトンの固定化技術については、小型の試験容器を用いてイオン注入法で技術の成立性までを確認しております。今後 5 年間程度で、クリプトンの回収技術の集大成を図るとともに、クリプトンの固定化技術として、拡張型の固定化容器によるコールド試験及びホット試験で拡張型容器の性能確認を行う計画です。

本課題に係わるこれまでの成果や今後の進め方については、課題評価委員会において概ね妥当という評価をいただきましたので、この方針に従い目標の完遂を目指して、技術開発を進めていくこととします。本評価結果において頂戴したご指摘、ご意見については拝承して今後の技術開発に反映し、具体的に以下の措置をとることとします。

**1. 研究開発の目的・意義**

(1) 「クリプトン回収・固定化に関する費用対効果、安全性、経済性及び信頼性の観点から、クリプトンの排気筒放出との比較評価も目的として追加すべきである」との指摘に対し、

クリプトン回収・固定化に関する排気筒放出との比較評価は、本課題の目的の一つとして今後の開発成果のまとめの中で実施する検討課題と捉えており、これまでの回収技術開発の結果及び今後の固定化技術開発の結果をもとに安全性、経済性及び信頼性について評価し、排気筒から放出した場合との比較を行う考えです。特に、固定化費用（コスト）については、これまで開発してきた小型容器の 3 倍～4 倍程度の拡張型容器の試験結果を反映し評価する考えです。また、放出低減化の費用対効果の考え方については、ICRP 及び IAEA などや各国の考え方などを調査し、それらに基づきケーススタディを行い評価してまいります。

## 2. 研究開発目標

(1) 「環境負荷低減のための研究開発に努めてきたことは評価するが、一方、実用化という視点で目的と目標につき背景や周辺動向等に適切に配慮しつつ、計画を柔軟に進めていくことが重要である」との指摘に対し、

現状における世界の再処理規模及び計画からクリプトン回収の実用化の緊急性は薄れているものの、クリプトンの放出低減化技術については、将来的には有効な技術であり、これまでの開発成果を確実に将来に残すために技術を集大成しておくことが重要と認識し、今後の開発に取り組むこととしております。クリプトンは周辺環境及び地球全体への影響が考えられる核種であり、周辺動向、環境問題の動向等に留意し、柔軟に開発を進めてまいります。

## 3. 研究開発計画

(1) 「これまで30年以上を費やしたクリプトン回収・固定化の技術開発の締めくくりとして、回収技術に関する情報の集約と、固定化技術開発のスケールアップにより、実用化検討に役立つものに仕上げるべきものとする」との指摘に対し、

クリプトン回収・固定化技術について、回収技術開発はプラント規模での開発を終了しており、実用性を評価するために残された課題は、固定化容器のスケールアップ技術であり、コールド試験によるスケールアップ因子の評価及びホット試験による拡張型容器の性能確認を行う計画です。これらの成果を踏まえ、実用化規模のクリプトン回収・固定化プロセスの経済性などのデータをまとめ、将来、実用化に係わる検討がなされた場合に、確実に技術情報が提供できるよう技術を集大成してまいります。

(2) 「固定化技術の開発では、クリプトンが固化体にどのような状態でトラップされているかを把握し、また、数値モデルを用いた放出率の評価には、トラップガスの移行に関する拡散過程やバブルの形成・消滅過程等の体系的な検討が必要であり、長期貯蔵の安全確保に関してこのような過程解明に関する研究もある程度必要である」との指摘に対し、

固化体中のクリプトンの挙動については、これまでのコールド試験で実施した固化体評価試験において、温度と放出率の関係、固化体の結晶変化とバブルサイズとの関係などを明らかにし、長期間の放出率を評価しており、今後は、ホット固化体による安定性の確認を行っていく計画です。また、拡張型容器の開発にあたっては、固化体の形成条件と固化体の組成、結晶構造などへの影響を評価し、固化体中の挙動、放出過程をより体系的に整理してまいります。これらの固化体特性の解明は、固化体中のクリプトンの含有率の向上など技術改良につながる可能性もありデータを積み重ねるとともに、試

験結果については、物性の専門家の評価を加え、より確実に固化体特性を説明してまいります。

#### 4. 研究開発実施体制

(1) 「研究開発要員は5名とされているが、残された今後5年間で技術の確立と集大成を行う上ではやや厳しいという印象を受けるので、他の研究グループとの連携や外部機関との協力関係などを有効に活用することを考えていくべきである」との指摘に対し、

今後の技術開発における固定化容器のスケールアップについては、放電プラズマ評価や構造体の温度評価などが重要なテーマとなり、また、技術の集大成の観点からは、クリプトンの放出低減化に関する費用対効果の評価も重要なテーマとなると考えております。これらのテーマに効率的に取り組むためには、機構内外の専門家との連携を図るとともに、容器製作に関しては、製作メーカーとの連携を図っていく考えです。特に、二法人統合により、社内での専門家からの知見が有効に反映できるものと考えています。

#### 5. 研究開発成果

##### ①得られた成果の内容

(1) 「分離回収して貯蔵することのコスト評価、これに伴う低温でのクリプトンや水素ガスの取扱い、一時的なシリンダによるクリプトン貯蔵などに伴うリスクの評価、施設の解体費用、関連廃棄物の処分費用などを総合的に判定した上で選択肢を決定することになる。これらに対して、関連したデータの収集と評価が必要であり、この点に関しては必ずしも未だ十分な成果が得られていない状況といえ、今後5年間で詰めておく必要がある」との指摘に対し、

クリプトンの回収プロセスに係る低温、水素使用、高圧貯蔵など一連の技術についてはプラント規模での試験を終えており、これまでのデータの整理しリスク評価を進めてまいります。施設建設、運転コストについては、プラント規模の運転実績から得られた結果に基づき評価できると考えています。また、解体費用、廃棄物の処分などは関連情報を参考にしていく考えです。これらの技術情報のまとめ及び評価にあたっては、ユーザー側のニーズをつかみ、要求に応じた情報の提供が行えるようにしてまいります。

##### ②実用化との関係

(1) 「将来における実用化という観点では、放射線影響とコストとのバランスとなる費用対効果の評価が重要であり、今後のクリプトン固定化技術に関する拡張型試験結果をもとに、実用化のコスト評価が行えるようにしておく必要がある」との指摘に対し、

固定化技術開発は、小型容器の技術を基に3~4倍程度の拡張型容器の開発によりスケールアップに関する技術を確立し、実用機ベースの設計が可能になると考えています。このため、今後実施する拡張型試験結果から実用化コストを評価するとともに、回収プラントの運転実績からクリプトン回収・固定化の一連のコストを明らかにし、クリプトンの放出低減化の費用対効果の評価に反映してまいります。

### ③得られた成果の普及、公開

(1)「本技術開発成果は、種々のガス処理への応用として展開できる可能性がある。他分野へどのように展開させることができるか、十分な検討評価を行う必要がある。技術移転を含む成果の普及・活用、波及効果は期待できると思われるが、ユーザー側の興味を如何に引き出すかが課題である」との指摘に対し、

クリプトンの回収プロセスについては、再処理オフガス処理技術として、クリプトンの回収以外にも、ヨウ素や炭酸ガス(C-14)の吸着除去への応用や、オフガスに含まれる有用元素であるキセノンガスの分離・回収への応用の可能性が考えられ、固定化技術については、他の放射性ガスの安定固化への応用が考えられます。固定化技術については、イオン注入法を用いた新しい技術であり、一般技術分野での応用を調査するとともに、技術成果については積極的に公開し、ユーザー側の興味を引き出すように努め、技術の普及活用に反映してまいります。

(2)「費用対効果など実用化にあたって、いろいろな角度からの論点も踏まえて具体的な技術移転先をにらんだ成果のまとめ、公表、広報のあり方を今後さらに充実させて行くべきと考える」との指摘に対し、

今後の開発では固定化試験の実施とともに、将来の技術反映に備えこれまでの試験結果、運転データなどの技術情報の集大成も重要な課題と捉えており、国内外の再処理施設の動向及びニーズを掴み、開発成果を公開情報としてとりまとめることに努めてまいります。

## 6. 今後の展開

(1)「技術の取りまとめにあたっては、ユーザーからの要望を適切に把握し、必要なデータを充分提供できるよう配慮すべきである」との指摘に対し、

再処理の放出低減化技術として必要なデータの提供及び他分野における関連する技術の利用といった2つの観点から、ユーザーニーズを調査し、開発した成果が少しでも多く提供できるように技術を取りまとめてまいります。

(2)「開発終了後における技術の蓄積と移転をどのように図っていくかを今後の開発の中で示していく必要があると考える」との指摘に対し、

技術の集大成においては、これまでのプラント規模の開発実績と今後実施する固定化技術の拡張型容器によるスケールアップに関する試験結果をもとに、クリプトン回収・固定化の実用規模での経済性が評価できるデータをまとめておくことが重要と認識しています。技術の蓄積と移転に関しては、今後の国内外の動向を踏まえつつ、技術移転側のニーズとの整合を図りながら進めてまいります。

(3)「使命の終了した施設の早期の廃止措置や処分法（施設のみならず、シリンダや固定化容器の保管法／処分法を含む）の検討も行うべきであると考え」との指摘に対し、

クリプトン回収技術に関する運転は終了し、逐次設備の休止措置等を行い、施設管理の合理化を既に進めています。シリンダ内のホットガスは、今後、固定化試験ですべて使用する計画であり、シリンダは他設備とともに廃止していく予定です。クリプトンを固定化した容器は、セル内のエリアに保管し、長期貯蔵性能を評価するとともに、固化体は評価の過程で処分していく予定です。このように順次施設の管理範囲の縮小を図り、施設の維持管理費用を最小限としてまいります。

なお、施設の廃止措置については、再処理施設全体の長期的課題であり、今後検討をしてまいります。



## 参 考 資 料 3

課題評価委員会の評価意見に対する

サイクル機構の見解

(補足説明資料)

**中間評価課題：「再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発」**

**課題評価委員会委員の評価意見に対する  
サイクル機構の見解  
(補足説明資料)**

**平成15年6月**

**核燃料サイクル開発機構**

評価意見	サイクル機構の見解
<p><b>評価項目： 1. 研究開発の目的・意義</b></p>	
<p>(1) 1970年代には確かに環境論争があり、原子力長計にもその必要性が示され、研究開発の目的と意義は明確であったと理解する。その後商業用再処理施設の建設が進められ、また将来の原子力利用の増加についても楽観的見通しが持てなくなるなど状況の変化は大きい。現時点で目的・意義は明確でなく、緊急性も高いとは認められない。官民の役割分担の点からも、今後の技術開発と実用化については、ユーザーである民の自由な判断と選択にゆだねるべきである。</p>	<p>拝承します 今回提示した計画は、実用性を評価する上で必要な技術課題への取り組みと認識しており、その段階までが、これまで開発を進めてきたサイクル機構の役割であると考えています。</p>
<p>(2) 目的及び意義は明確であり、環境負荷の低減を目指したものとして重要性は高いと考える。しかし、回収・固定化の技術開発を開始した 1970 年代と比較して原子力需要の増加予測が変化している現状等から、長期的視点に立ったとしても、緊急性が高いとは必ずしも言い難い。また、回収技術については既にパイロットプラント規模で目処が立っていることから、改めてコメントする必要はないものと考え、ALARA の原則との関係を考えて、社会的・経済的ニーズ、民間ニーズ等の視点から、目的・意義の的確性が十分であるとは必ずしも言い難い側面が残されている。</p> <p>ただ、このような環境負荷低減を目指した技術は重要であり、有効に活用される時期がいずれ到来することも考えられ、この視点からは、国内唯一の再処理施設保有者であるサイクル機構が実施することは適切であり、また、関連技術動向の把握も適切に行われていると考える。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(3) 目的・意義に関しては明確になっていると考えられる。ただし、本技術開発の反映先が‘クリプトンの回収・固定化の一連の技術評価’へとなっているが、(本文p3)技術的な達成目標を具体的に明示すべきと思われる。</p> <p>重要性、緊急性に関しては、これまでの技術蓄積を踏まえて将来に備え技術的な確立をしておくことが重要と考える。ただし、後段の今後の展開のところで、国際的には必要性は薄れてきているという認識の中での必要性を述べているため、重要性・緊急性という面での意味合いが分かりにくくなっている。前段の課題設定の背景・目的のところなどでも基本的なスタンスを明確に述べた方が良いと思われる。</p> <p>将来に備えるという意味で社会的・経済的ニーズはあると思われる。国の方針にも整合していると考え、最近での方針との関係が良く分からない面もある。</p> <p>このような、将来に備えた技術開発はサイクル機構にふさわしい課題である。技術開発動向に関しては、最近では海外等での機関での検討や研究協力等がほとんどないのか</p>	<p>拝承します。</p> <p>技術を集大成する中で、技術目標に対する成果、開発背景として国の方針、サイクル機構のスタンスなど、また、海外の開発状況の変化を整理しておく考えです。</p> <p>なお、プラント規模での海外の開発については、ドイツが 350t/年規模の再処理プラントの建設にあたって、Kr 回収の開発施設の建設を計画した例があります。(その後、再処理プラント自体の建設が中止された。)</p>

評価意見	サイクル機構の見解
あまり述べられていない。	
(4) 1972年の原子力長計に照らし合わせると本課題の開始時における目的・意義は理解できるものの、現時点においては、本技術の緊急性は低く、今後とも開発を進める意義があるのかを明確にする必要がある。	現時点で実用化に向けて大規模に開発を進める必要はなくなっており、回収プラントの開発運転は既に終了させ、固定化技術の開発課題に絞って、今後5年間開発を継続し、開発全体を終了する考えです。
(5) サイクル機構での研究開発は、少し先を睨んで、新しいものを探っていくスタンスが重要であり、本技術開発では回収のみではなく固定化まで考えたことは適当と考える。 本技術開発のスタート時は、国の計画・方針との整合が図られていたものと思われるが、世界的に見ても状況が変わり、現段階でクリプトン回収に係る技術開発を実施しているところは見当たらない。その要因には費用対効果があるものと思われる。とはいえ、環境問題の面もあり、将来において必要になってくる可能性も有り得る。 したがって、本課題は、長期を睨んだ技術開発であるといえ、近年での実用化に向けた開発という考え方ではなく、将来に備えた基盤的な技術開発と捉えるべきであろう。	拝承します。
(6) 目的・意義は、明確で的確である。 Kr-85 は大気からの被曝の主要な核種で、重要性が高い。近い将来に向けて技術面で今から対応しておくべき課題である。 経済的なニーズ、民間ニーズは特にないと思われる。その一方で、この件を放置すると、企業倫理・技術者倫理の面から問題があり、取り組んでおかなければならない課題である。サイクル機構が実施すべき課題である。 この技術が、原子力をはじめとする関連技術にどのように役立つ可能性があるかという視点からも一応の検討結果を得ておく必要がある。	拝承します。  クリプトン施設では、クリプトンの他にヨウ素及び炭酸ガス(C-14)を吸着除去するプロセスがあり、オフガス系にこれらの核種が移行するプロセスにおいては、総合的なオフガス処理プロセスへの展開が考えられます。固定化技術は、プラズマを利用した気相処理技術であり、ヨウ素及び炭酸ガス(C-14)などの新しい固定化技術として応用範囲が広がることも考えられます。さらには、有効利用の観点から、Xe 及び RI としての Kr-85 の利用も考えられます。 これら関連技術についても、まとめを行っていく考えです。
(7) 70年代に放出放射能低減化の方針に基づいて本課題が開始された意義は十分に理解できる。しかし、その重要度と緊急性については、現時点では疑問を感じざるを得ない。	固定化容器のスケールアップ技術は固定化技術の基盤となるもので実用性を評価するには不可欠な技術課題と考えており、技術をまとめ将来に残す観点から重要と考えています。

評価意見	サイクル機構の見解
(8) 目的・意義は明確だと思う。本研究・開発は、30年続いてきた研究に実用化の目処をたてて一区切りつけようとする研究で、現在の状況では、緊急性はないと思うが、重要性は高いと思う。	<p>拝承します。</p> <p>拡張型容器の開発でこれまで進めてきた技術開発の区切りができるものと考えています。</p>
(9) 目的・意義は明確であるが、諸外国においてクリプトンの回収が実際上行われていないことを考えれば重要性と緊急性が高いとは認めがたい。したがって、現時点で直接的な社会的・経済的・民間ニーズがあるとは言い難い。しかしながら、これまで長年にわたってサイクル機構において研究開発が行われてきており、その長年の成果を意味のあるものとして後世に残すという目的は認められる。また、日本が先端的に研究開発している課題であるという意義はあるといえる。	<p>拝承します。</p> <p>世界に先駆けてパイロットプラント規模で開発を進めてきた技術であり、確実に成果を残すよう技術を集大成します。</p>
<p>(10) これまでに蓄積してきた回収・固定化技術の集大成の観点から研究開発の目的・意義は適切。</p> <p>なお、Kr 回収・固定化に関する費用対効果の評価、安全性、経済性、信頼性の観点から排気筒放出との比較も目的として追加すべきではないか。</p>	<p>拝承します。</p> <p>放出低減化技術を評価する手法として、ご指摘の費用対効果を評価することが考えられ、今後5年間の開発のまとめの中で検討する項目であると考えています。</p> <p>評価の考え方については、ICRP 及び IAEA などや各国の考え方などを調査するとともに、費用(コスト)については、拡張型容器による試験結果を基に評価する考えです。</p>
(11) 妥当である。	<p>拝承します。</p>

評価意見	サイクル機構の見解
評価項目:2. 研究開発目標	
<p>(1)分離技術における分離目標値を90%とすることの根拠は明確でない。どこまで分離回収するかは、ALARAをうたうならば被ばく評価にもとづく、費用対効果で決められるものではないか。その意味でコスト評価の詳しい議論がなされていないのは不合理。固定化技術として、イオン注入法を選定したことは妥当と判断する。</p>	<p>拝承します 被ばく低減効果とコストのバランスなどの費用対効果の評価については、評価可能なデータ提供ができるよう、まとめを行っていく考えです。</p>
<p>(2)固定化技術開発の目標は、目的を達成し得る設定であると考えられる。これまでの開発過程で確認された技術的課題に対しては、適宜、開発内容の見直しが行われていると考えられる。しかし、本技術開発に着手してから30年間を経ており、その間、ALAPの概念からALARAの概念への移行、原子力需要の鈍化等、様々な状況変化があったと考えられるが、それらの状況変化をどのように捉え、開発の目的・意義(開発の方向性)を含めて、目標の見直しをどのように図ってきたのかについては明確でない。例えば、ALARAの原則に関しては、原子力安全委員会決定の「発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に関する指針」においては、ALARAの考え方に立った線量目標値として「<math>50\mu\text{Sv/y}</math>」を設定しているが、これと比較したとき、本技術開発では、放出量をどこまで低減し、一般公衆の被ばく線量をどこまで低減することがALARAの達成と判断しているのか、分かりにくい。シーズ的研究開発であっても、本研究開発はプロジェクト開発に直接関連する課題であり、目的と目標の関係を、それらの背景や周辺動向等に適切に配慮して論理的に整理し、明確に関係づけることが重要であると考えられる。</p>	<p>拝承します。 クリプトンの放出を抑制した場合の被ばく線量低減の効果とそれに対する費用の評価については、評価手法などを調査した上で、ケーススタディを行っていく考えです。</p>
<p>(3)本文においては、3. 研究開発の目的→4. 研究開発課題の設定→5. これまでの研究開発成果→6. 今後の研究開発計画の流れで記述されており、目的・課題設定が既往研究成果の前に記述されているため、今後の研究開発計画の中で記述されている研究開発意義や開発課題との関係でどのようなブレークスルーがなされたのか分かりにくい。国内外の状況に照らして、今後の研究開発計画に関しては、今後5年間で一応の技術の確立を図り開発を終了させるとしており適切な見直しが行われたものとする。関連技術動向については、上記1.(3)の最後のコメントと同じ。</p>	<p>拝承します。 なお、課題設定と開発意義や開発課題との関係については、今後のまとめにおいてより明確となるようにしてまいります。</p>
<p>(4)1. で現時点でも意義があるとされた場合、その意義に即した目標であるのか？(1. で現時点で意義が小さいとしているため)特に拡張型容器にて行う目標はなにか？</p>	<p>小型容器は、注入速度及び注入量が小さくこのままの規模で実用化した場合には、系列数や発生基数が多くなるため経済的ではなく、容器の大型化が必要となります。イオン注入固定化の基本となるプラズマの形成は、形状因子の影響が強く、大型化した場合の注入性能に及ぼす影響をつかむことが技術的に大きなポイント</p>

評価意見	サイクル機構の見解
	と考えています。拡張型容器の規模は、クリプトン回収施設規模に対応できる規模を開発の目標としており、この小型容器の3～4倍のスケールアップ技術をベースに、どの程度までのさらなる拡張が可能かを、把握できると考えています。
(5) クリプトン回収率が90%以上の目標設定は妥当であると思われる。 また、目的・意義達成のための目標設定としては、おおむね妥当であると思われる。	拝承します。
(6) 委員からの追加質問に対する回答A2-5に示されているような、「中断した場合のデータ散逸のおそれ」をもって計画継続の理由とすることは、明らかな誤りである。中断する場合にも、最終的に終了する場合にも、データのとりまとめと保全は最重要課題である。	拝承します。 ご指摘の点はその通りであり、中断する場合でも最終的に終了する場合でもデータのとりまとめと保全は最重要と認識しています。なお、回答の趣旨は、技術的ノウハウを有している人員が確保できる時に、継続して開発を実施することが、これまでの技術データを最も効率的に活かせるということを説明したものです。
(7) 私は、クリプトン回収・固定化技術開発に関連する分野の専門家ではないので積極的なコメントは控えたいが、担当者からの説明を聞く限り、研究開発の具体的な目標と解決すべき問題点、ならびにそのために要する費用や時間の見積もりは、これまでの長年の研究開発の実績と経験から導かれたものであり、適切な見通しに立っているという印象を持っている。	拝承します。
(8) 既存の固定化試験設備の対応可能な範囲で、コスト的に有利と想定される拡張型容器を用いてスケールアップを図ることを研究開発目標とすることは妥当。	拝承します。 なお、固定化試験設備は、拡張型容器による試験を想定し設計されており、新たに設備を付加する必要はなく、また、拡張型容器3基までの貯蔵スペースを有しています。
(9) 妥当である。	拝承します。

評価意見	サイクル機構の見解
<p>評価項目:3. 研究開発計画</p>	
<p>(1)1970年代の技術開発のニーズはともかくとしても、その後原子力の状況変化に対応して、計画を見なおすチャンスがあったのではないか。海外において全てこの関連の技術開発から撤退をしている事実を見ても、早期に計画の再検討をすべきであった。</p>	<p>拝承します。 放出放射能低減化への取り組みは、国によっても違いがあり、サイクル機構では、海洋放出について積極的な低減化を行うとともに、大気へ放出されるクリプトンについても、技術開発に着手し、技術に目処をつけるために、これまで開発を進めてきました。</p>
<p>(2)今後5か年の固定化技術開発に関する内容、スケジュール等は、具体的で妥当と考える。関連技術の動向についても的確に反映されている。これまで30年以上を費やした技術開発の締めくくりとして、回収技術情報の集約と、固定化技術開発のスケールアップにより、確実に実用化に役立つものに仕上げたい。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(3)研究開発項目の設定、内容、スケジュール、項目等の関連については、概ね具体的に示されており妥当と考える。 資金的には、5年間の固定化技術確立し、実用化の目処をつけるまでを期待するためにやや厳しい感じも受けるが、適切な資金・実施計画を詳細につめ、今後必要に応じて柔軟かつ機動的な見直しことが望まれる。 基本的には既存設備を適切に使用することとしており妥当と考えるが、小型容器の3～4倍の拡張容器で固定化技術実用化の確認のためのスケールアップ試験として十分であるかどうかについてはもう少し詳細な説明があると良い。 上述のことも併せて、実用化への道すじとしては、実用化の概念とともにもう少し具体的なイメージを示していただくように今後検討していただきたい。 研究開発内容には、関連特許もいくつか取得しており独創性も保持されていると考える。</p>	<p>拝承します。  スケールアップ試験では、容器の形状のパラメータ試験(長さ方向3倍程度、径方向2倍程度)を実施する計画であり、プラズマ形成などの重要なポイントは評価できると考えています。 拡張型容器の性能を確認し、固定化プラントの概念を明らかにしていく考えです。</p>
<p>(4)固定化技術開発では、基盤技術としてもう少し踏み込み、将来、円筒・イオン注入が最適か判断する材料として、どういう状態でトラップされているかを把握しておくことも必要ではなからうか。</p>	<p>拝承します 技術改良につながる固化体の閉じ込めメカニズムなどの基盤技術については、今後とも調査を進めていく考えです。</p>



評価意見	サイクル機構の見解
<p>(5) TG/DTA でクリプトン放出特性について検討されている。また、ガス放出や、400℃、1万時間の組織写真が示されている。これらのデータは貴重であり、必要なものである。その一方で、モデルを用いた放出率の評価にはガスの移行に関する拡散過程やバブル形成・崩壊過程等の体系的な検討が合わせてなされた上での評価になっている必要がある。ある程度の長期貯蔵の安全確保に関してこのような過程解明に関する研究は必要で、この点は課題として残ると考えるが如何でしょうか。</p>	<p>拝承します。</p> <p>固化体中のクリプトンの放出過程については、X線回折などの他のデータも取得し放出と結晶変化の関係などを明らかにしております。(質問 Q-①-6 参照)</p> <p>長期貯蔵には、放出過程のより詳細な解析が重要と考えており、大型化による膜形成条件と固化体特性の関連、ホット固化体の特性を加えた評価を継続することとしています。</p>
<p>(6) 個別の課題に関するマイクロな視点からは、それぞれの計画に基づく着実なデータ蓄積や運転の実績があげられており、評価できるものと考えられる。</p> <p>しかしながら、全体としてみると、早期実用化の必要性が低くなった段階で、回収施設における実証運転の規模・回数の見直しや、固定化施設におけるホット試験の見直しなどを抜本的に実施する必要があったのではないかと。</p> <p>委員からの追加質問に対するA3-1において「適切に見直してきた」旨の回答が出されているが、試験期間を長くとることがなぜ適切な見直しといえるのか、理解できない。</p>	<p>拝承します。</p> <p>なお、本技術開発を進めるにあたっては、原子力需要の変化や貯蔵シリンダ検査の新たな技術的課題が発生しました。これらを踏まえて、多量のクリプトンを貯蔵する運転は行わず、コールド試験期間を長く設けプラントの改良や、貯蔵技術としては固定化貯蔵の技術確立を目指すなどの見直しを行ってきました。その結果、効率的な改良工事が行えたことや必要最小限の放射性ガスの貯蔵となったことなどの見直しは行ってきたものと考えています。</p>
<p>(7) コスト面から実用化に適するかどうかは、判断できないが、他の面では本研究開発計画は、実用化に向けて妥当に設定されていると思う。</p>	<p>拝承します。</p> <p>コスト面については、今後5年間の固定化技術をベースに、より詳細な評価を行う考えです。</p>
<p>(8) 今後、2年間のコールド試験を経て3年間のホット試験が計画されているが、ホット試験実施にあたっては、コールド試験の結果及び費用対効果进行评估する必要があるのではないか。</p>	<p>ホット試験容器はコールド試験の結果を反映し設計・製作することになります。ホット試験では、ホットガス注入により安全性を含めた容器性能を確認するとともに、現在保有しているクリプトンガスを全量固定化することで、試験後の貯蔵管理コストが軽減できることとなります。よって、ホット試験までが技術開発にも実際の施設管理上からも重要として計画しています。</p> <p>クリプトン放出低減化技術全体に対する大きな意味での費用対効果については、拡張型容器の技術を確認した上で、ケーススタディを行なうことを考えています。</p>
<p>(9) 妥当である。</p>	<p>拝承します。</p>

評価意見	サイクル機構の見解
(1)この技術のユーザーとの協力・連携は行われてきたとのことではあるが、それが適切に行われたものであるかどうかは判断できない。	<p>拝承します。</p> <p>今後とも、ユーザーとの情報交換、協力・連携に努めていきたいと考えています。</p>
<p>(2)本研究開発は、「東海事業所再処理センター処理部化学処理第1課(5名)」単独で実施しているようであるが、開発内容の妥当性をより向上させるためには、学会発表や論文投稿のみでは十分とは言えず、社内の関連部署との有機的・組織的な連携と、社外専門家を含む技術検討委員会の設置等により、技術的内容や開発の進め方、途中で得られる成果等のチェック&amp;レビューを受けながら進める体制が望ましいと考えられる。</p> <p>国際協力に関しては、当該課題に対する主要国の取組の現状から、連携が困難であると思われるが、他機関、特に日本原燃との協力・連携については、情報の公開レベルに止まることなく、積極的に働きかける工夫をしてほしい。</p>	<p>拝承します。</p> <p>独自の開発の弊害が生じないように、客観性を高めること、ニーズを把握することなどに努めたいと考えています。</p>
(3)研究開発要員は5名ということであるが、残された5年という期間で技術的な確立とまとめまで成し遂げる上ではやや厳しいという印象を受けるので、他の研究Grとの連携や外部機関との協力関係などを有効に活用することを考えていくべきと考える。	<p>拝承します。</p> <p>固定化技術に関してはプラズマ、固化体の物性、放出低減化に関する費用対効果の評価などについて、機構内外の専門家との連携を図りたいと考えています。また、容器製作に関してはメーカーと連携することで、効率的に開発を進めたいと考えています。</p>
(4)体制は妥当なもの判断するが、固定化技術に対しては、材料物性の専門家との意見交換を行いつつ進めるべきと考える。そのことによって、より固定化効率のよいものが生まれる可能性もあろう。	<p>拝承します。</p>
(5)5年後の研究終了の後、これまでの成果が十分に次につなげるよう取りまとめをしっかり行うこと。	<p>拝承します。</p>

評価意見	サイクル機構の見解
評価項目:5. 研究成果①得られた成果の内容	
<p>(1)本技術開発においては、Kr を分離回収することが真に必要なかどうか、また合理的であるかどうかを判断する技術的データを提供する必要である。</p> <p>気体の放射性核種を安全に放出することも廃棄物処分の有力な一選択肢である。これに対して、分離回収貯蔵することの費用対効果、これに伴う低温での Kr の取扱い、H<sub>2</sub> ガスの取扱い、一時的シリンダー貯蔵などに伴うリスクの評価、施設の解体費用、関連廃棄物の処分費用などを総合的に判定した上で選択肢を決定することになるが、関連したデータの収集と評価が必要であり、この点に関しては必ずしも十分な成果が得られていない。</p>	<p>拝承します</p> <p>民間ニーズをつかみ、パイロットプラント規模で得られた技術データを集大成し、要求に応じて技術情報を提供していきたいと考えています。</p>
<p>(2)これまでの回収技術の開発成果の水準、質等は概ね良好であり、計画で設定した目標を達成しているものとする。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(3)これまでに得られた成果については、概ね具体的な記述がなされており内容的に適切と考える。ただし、当初計画に対しての達成度や費用対効果に関しては、必ずしも詳細な記述がないので判断は難しい。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(4)これまで実施してきたクリプトン回収技術及び固定化技術の成果は、予定どおり達成できているものと判断する。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(5)回収技術について、また、固化処理技術も課題はあるものの、おおむね目標達成と評価したい。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(6)30年の長期間にわたる長期の研究ではあるが、研究成果は着実に上げられてきていると思う。期間が長期にわたったのは、原子力エネルギー需要の伸びが鈍化したためのものであり、やむをえない面があるものと思う。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(7)クリプトン回収技術については、延べ1000日以上運転により所定の回収目標を達成と評価。</p> <p>固定化技術については、放射性クリプトンの固定化実績を重ね技術の成立性が確認できたものとする。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(8)5年後の研究終了までに一層の努力を望む。</p>	<p>拝承します。</p>

評価意見	サイクル機構の見解
<p>評価項目:5. 研究成果②実用化との関係</p> <p>(1)回収技術は、実用化の可能なレベルに達していると考えられる。今後の課題としては、実機採用に際しての設備投資、維持管理等に要する費用と、放出量低減ひいては一般公衆の被ばく低減の効果に関する評価を実施し、全体としてより魅力のある技術にすることが必要と思われる。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(2)小型容器を3～4倍拡張した容器での試験を中心にコールド試験・ホット試験により実用化の技術見通しをつけるまでの総合化をいかにするかをもう少し具体的に提示することが望ましい。特に、回収技術～固定化技術の総合化→実用化目標の概念設計とその評価を踏まえ、いかに実用化の青写真を示すかが課題として必要ではないかと考える。</p>	<p>拝承します。</p> <p>拡張型容器の開発結果を踏まえて、固定化の実用化プラントの概念が構築できるものと考えています。それをもとに、これまでの回収技術とあわせて一連の技術のコスト評価を行う考えです。</p>
<p>(3)将来における実用化という点では、放射線影響とコストとのバランスとなる費用対効果が重要であり、今後のクリプトン固定化技術の拡張型試験結果をもとに、外挿して実用化のコスト評価ができるなら進める必要が認められる。</p>	<p>拝承します。</p> <p>固定化のコスト低減には容器の大型化が大きく寄与すると考えています。拡張型容器の開発に取り組むことで、実用時の容器の大型化が技術的にどの程度可能かを把握できると考えており、これらの知見をコスト試算の前提となる固定化プラントの基本設計に反映できると考えています。</p>
<p>(4)5年後の研究終了までに一層の努力を望む。</p>	<p>拝承します。</p>

評価意見	サイクル機構の見解
<p>評価項目:5. 研究成果③得られた成果の普及、公開</p>	
<p>(1)技術移転を含む成果の普及・活用、波及効果の期待はできると思われるが、相手方の興味を如何に引き出すかが課題であろう。          成果発表に関しては、一定のレベルに達していると思われる。ただし、口頭発表件数は比較的多いが、学会誌等への投稿・寄稿も積極的に進めて欲しい。また、社内技術資料(32件)及び平成13年度以降社内テーマの位置づけとした安全研究成果は、より積極的な公開を図るように、技術情報を集大成することを期待する。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(2)実用化の目処が得られた段階では、基本的に技術の活用は十分に期待できると考えられるが、費用対効果など実用化にあたってのいろいろな角度からの論点も踏まえて具体的な技術移転先をにらんだ成果のまとめ、公表、広報のあり方を今後さらに充実させて行っていただきたい。</p>	<p>拝承します。          将来の技術反映に備え、運転データなど各種データベース、運転実績を踏まえた運転要領書等の運転技術を図書として整理、集大成し、利用可能なようにしておくことが重要と考えています。</p>
<p>(3)本技術開発成果は、種々のガス処理への応用として展開できる可能性があり、この点を明確な目標とするのなら価値ある技術開発とも思われる。これをどのように他分野へ展開させることができるか事前に十分な検討評価しておく必要がある。</p>	<p>拝承します。          本技術は、ヨウ素及び炭酸ガス(C-14)の回収及び固定化への応用の展開が考えられます。また、有用元素の利用の観点では、Xe及びRI(Kr-85)が考えられます。これらを総合的に検討し、組み合わせることにより、効果的なものになると考えており、これらの考えをまとめてまいります。</p>
<p>(4)クリプトンの回収・固定化に対する需要がない現時点では、本研究開発によって得られる成果が波及するか否かは判断できないが、その需要が増加すれば、当然波及効果をもってくると思う。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(5)成果発表、特許出願・取得等は、今後より積極的に行われなければならない。クリプトン回収・固定化技術についての広報が、積極的・効果的に行われているとはまったく言えない。それは、使用済み核燃料処理に伴うクリプトン回収・固定化について何らかの知識を持っている市民はほとんど皆無であろうと思われるからである。使用済み核燃料処理に関して一般市民からの理解を得る作業の一環にクリプトン回収・固定化技術についての広報もより積極的に含められるべきであると考えます。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(6)5年後の研究終了までに、今までの成果をきちんと整理し、実績を取りまとめることを望む。</p>	<p>拝承します。</p>

評価意見	サイクル機構の見解
評価項目:6. 今後の展開	
<p>(1)本技術開発の継続はこれまでの技術開発の取りまとめと総括に限定すべきである。その中で5①(1)で述べた経済性評価、リスク評価等とそれに必要なデータの収集を行ない、これが達成されれば5年を待たず終了することも考えるべきではないか。技術の取りまとめにあたっては、ユーザーからの要望を適切に把握し、ユーザーが選択肢の決定をする際に必要なデータを充分提供できるよう配慮すべきである。</p>	<p>拝承します。          拡張型容器の開発データなどの効率的に取得に努め、早期に開発を終え技術を集大成していく考えです。技術の取りまとめにあたっては、ユーザーニーズを把握し、選択可能なようにデータの提供が行なえるよう留意いたします。</p>
<p>(2)前述したように、①背景や周辺動向、状況の変化等に適切に配慮した目的と目標の関係の整理、②本技術開発の締めくくりとして確実に実用化に役立つ仕上げ、③社内関連部署との連携や技術的検討の場の設定による効果的な体制の充実、④関係機関との積極的な連携と実用化の面で魅力ある技術の確立、等に適切に配慮して進めて欲しい。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(3)より具体的な実用化への道筋を示し、かつ開発終了後における技術の蓄積と移転をどのように図っていくかを今後の展開の中で示していただきたい。</p>	<p>拝承します。          固定化技術の拡張型容器の試験でスケールアップに関する技術を基に、再処理規模に合わせた(東海パイロットプラント規模、商用プラント規模)固定化プラントの概念を明らかにできると考えます。これにより、クリプトンの回収、固定化、長期貯蔵のコストを評価する考えです。これをまとめ将来の技術移転に備えておく考えです。</p>
<p>(4)今回の課題は、クリプトンに着目して進めているが、環境にインパクトを与えるものに対し、本技術の応用が可能かを調査・整理しておくことも必要ではなからうか。</p>	<p>拝承します。          気体廃棄物である炭酸ガス(C-14)やヨウ素の回収、固定化などに応用が可能か検討し整理していきたいと考えています。</p>
<p>(5)使命の終了した施設が遊休化し、いたずらに維持管理コストが掛かることをさけるために、早期の廃止措置や最終処分法(施設のみならず、シリンダや固定化容器の保管法/処分法を含む)の検討をも行うべきであると考えます。</p>	<p>拝承します。          クリプトン回収技術に関する運転は終了し、逐次設備の休止措置等を行い、合理化を既に進めています。固定化ホット試験後は、ホットガス封入固化体のみの管理となり、施設の維持管理費用を大幅に低減する計画です。固化体については、長期貯蔵性能を評価するため、一定期間毎に内部のガスを放出し固化体の評価の過程で処分していく予定です。          このように管理コストを最小限とする努力を今後とも進めてまいります</p>

評価意見	サイクル機構の見解
(6)使用済み核燃料処理事業の進展に連動した研究開発が望まれる。	拝承します。
(7)技術開発成果として、技術情報の提供とともに、クリプトン回収・固定化に関する費用対効果の評価を実施することを望む。	拝承します。
(8)クリプトンの研究は5年後に終了し、施設も閉鎖されるとのこと。これまでの研究成果が他の研究へ十分に反映されることを望む。	<p>拝承します。</p> <p>クリプトン回収技術において、低温プロセス、高圧及び液化ガス取扱技術、固定化の新技術などについて、貴重な成果が得られたと考えています。</p>

評価項目:7. その他

(1)本課題のように、時代背景とともに重要度や緊急度が変化してしまったものに対し、現在配分されている資源が、サイクル機構全体の中でどの程度の比重を占めるものなのか、提示された資料からは判断できない。予算の均衡・縮小を前提とする環境下で資源配分の妥当性を判断するためには、個別課題間の優先度の高低を評価するべきではないか？	<p>拝承します。</p> <p>情勢の変化、将来に向けた確実な開発成果の集大成の必要性、地元からの放出低減化技術への取り組みの要請などを考慮し、サイクル機構の中長期事業計画で位置づけられた開発を必要最小限の投資で実施することを認識して計画したものと考えています。</p>
(2)クリプトンを回収・固定化した後に100年程度管理する必要があるとのことであるが、その管理体制をどのようにするか、その実現性も含めて概念的でも良いから考えておく必要があると思う。	<p>拝承します。</p> <p>固定化プラントの概念を構築する時に、管理体制の概念についても検討します。</p>

評価意見	サイクル機構の見解
<p>評価項目:8. 総合評価</p> <p>(1)本プロジェクトが開始された当時には放出低減化技術としての国の方針もあり、研究開発の意義はあったと判断するが、その後 30 年の歳月の間に原子力を取りまく状況は大きく変化し、今日ではその研究開発を継続する目的・意義も明確でない。</p> <p>今後は、これまでに投入してきた研究資源が全くの無駄とならないよう、また将来の状況変化により、この技術へのニーズを生じたとき、これを活用できるよう、その成果の取りまとめと費用対効果の評価の基礎となるデータの整理など最小限の作業のみに限定して継続することとし、本研究開発を可及的速やかに停止することが妥当と判断する。</p> <p>また、その際ユーザーのニーズを充分把握して作業を進めることが重要である。</p>	<p>拝承します。</p> <p>クリプトンの放出低減化は現在の世界の再処理規模では実用化は遠のいていると認識しており、これまでの開発成果の取りまとめに重点をおいているところです。費用対効果の評価には、固定化の拡張型容器の試験データが必要と考えており、速やかにデータを収集し開発を終了することを考えております。</p>
<p>(2)一般公衆の被ばく低減につながる放射能の環境放出低減を目指した重要な技術開発であり、再処理工場を有するサイクル機構が実施すべき課題である。これまで 30 年間の技術開発の締めくくりとして、計画した目標を着実に達成するとともに、実用化に役立つ成果となるように進めて欲しい。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(3)これまでに培ってきた貴重な技術開発を踏まえて、我が国としての再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術を集大成し、実用化への見通しを確立しておくことは意義深く、上記のコメントなどの評価意見にも配慮しつつ、適切に進めていくことが妥当であると判断します。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(4)本研究開発は、開始当初と現段階では状況が変わっており、実用化技術レベルまでの成果を出す緊急性はなく、将来に備えた基盤的な技術開発といえる。</p> <p>これまでのクリプトン回収技術及び固定化技術の成果は、評価できる。</p> <p>基盤的技術としての水準で実施しておくべきことは、将来において実用化を検討するうえでの費用対効果を含めたバックデータを得ておくことが重要であり、これまでの成果に加え、今後の固定化技術開発の拡張型試験データの他に、クリプトン以外の環境にインパクトを与えるものへの応用検討や固化体の安定性のためのデータ採取などの必要事項を整理し、とりまとめておく必要がある。</p>	<p>拝承します。</p>



評価意見	サイクル機構の見解
<p>(5)本課題を継続して実施することに関し、その重要性・緊急性が高いとは認められない。原子力長計において 2010 年頃に行うとされている「次期再処理工場の検討」のためには、現在までに得られているデータでかなりの情報提供が可能であるし、スケールアップ因子の把握のためであればコールド試験のみでもある程度の評価は可能ではないか。</p> <p>しかしながら、2008 年度まで本計画を継続して完成させるために必要と見込まれている費用や人員が比較的少ないことから、他の課題とのバランスで余力があるのであれば最後まで完遂するという選択肢もあり得るであろう。</p>	<p>拝承します。</p> <p>コールド試験でもある程度の評価は可能ですが、実ガスでの性能の最終確認はサイクル機構でしかできない貴重なデータとなると考えています。また、長期的な貯蔵管理費の低減のために現在保有しているガスの固定化は必要と考えており、ホット試験までを実施する計画です。</p>
<p>(6)本研究開発には緊急性はないものの、長く続いてきた研究開発に一区切りつけ、また、時代の変化に即応できる態勢にしておくために、着実に実施することが望ましいと考える。</p>	<p>拝承します。</p>
<p>(7)使用済み核燃料の処理に際して大気中に放出される量のクリプトンが周辺住民をはじめとする人々の健康に悪い影響を及ぼすおそれが無視できる程度のものなのであるとすれば、クリプトン回収・固定化技術の開発は、自然科学的には意義のないものといわざるを得ないであろう。</p> <p>ただし、一般住民とのリスク・コミュニケーションに際しては、使用済み核燃料の処理に伴って発生する「液体のゴミ」、「固体のゴミ」と共に「気体のゴミ」も確実に回収・固定化する技術が開発されている事実は意義のあるものであると考えられる。すなわち、たとえほとんど無害であると評価される物質が含まれるとしても、すべての「ゴミ」を適切に回収・固定化して処理をする方針（姿勢）を社会に示すことは、社会からの信頼を得るために必要なことであると考えられる。</p>	<p>拝承します。</p> <p>本技術開発は、社会の信頼を得るためのものと考えており、確実に技術の集大成を図ってまいります。</p>
<p>(8)これまでの蓄積してきた回収・固定化技術の集大成という観点からは、当面2年間のコールド試験の実施は適当と考えるが、この試験結果および費用対効果の評価を踏まえて、ホット試験の実施に関する評価を受けることが望ましい。</p>	<p>ホット試験は、注入性能及び固化体特性の技術的評価とともに、シリンダ内のガスが固定化することで、その後の管理経費が削減されることから必要と考えています。</p> <p>費用対効果の評価については、技術の集大成の一環として取り組むことを考えています。</p>
<p>(9)5 年後に研究が終了することは、今の原子力政策の状況ではやむを得ないことと判断する。</p>	<p>拝承します。</p> <p>将来の選択肢として開発成果が有効に活用可能なように技術が継承されるよう5年間でまとめを行いたいと考えています。</p>

## 参 考 資 料 4

再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発  
(課題説明資料)

廃棄物処理処分課題評価委員会資料

再処理施設における  
クリプトン回収・固定化技術開発  
(中間評価)

平成 15 年 3 月

核燃料サイクル開発機構

## 目 次

1. はじめに	1
2. 背景及び評価を受ける範囲	1
2.1 課題設定の背景	1
2.2 評価を受ける範囲	2
3. 研究開発の目的	2
4. 研究開発課題の設定	3
4.1 クリプトン回収技術開発	3
4.2 クリプトン固定化技術開発	3
5. これまでの研究開発成果	3
5.1 クリプトン回収技術開発の成果	3
5.2 クリプトン固定化技術開発の成果	5
6. 今後の研究開発計画	7
6.1 研究開発の意義	7
6.2 開発課題	8
6.3 開発スケジュール	9
7. 研究開発実施体制	10
7.1 機構内の体制	10
7.2 機構外との連携	11
8. 研究開発費及び要員	11
9. 成果の普及及び公開	11
9.1 成果の普及	11
9.2 公開	12
10. 今後の展開	12

## 1. はじめに

サイクル機構では、1970年代から再処理施設の放出放射能低減化技術開発の一環として、大気中に放出される放射性クリプトンの回収技術及び回収後の長期貯蔵技術として固定化技術開発を実施してきた。

回収技術については、東海再処理施設に付設する試験施設のクリプトン回収技術開発施設で技術開発を行い、約20年の試験運転実績により回収技術を実証し、所期の技術目標を達成した。

固定化技術については、小型の試験容器を用いた放射性クリプトンの連続固定化を達成し、技術の成立性を確認して一定の技術レベルに達した段階にある。

これらの技術の進展を踏まえて、クリプトン回収・固定化技術についてサイクル機構は中長期事業計画（下記参照）において2001年度までの成果及びそれ以降の計画を示す方針としており、これまでの技術開発の成果及び今後の技術開発計画について研究開発課題評価（中間評価）を受ける。

使用済燃料の再処理の過程で分離される放射性クリプトンの回収・固定化技術開発については、2001年度迄の成果を見極めた上で、その後の技術の実証等の計画を示していく。

## 2. 背景及び評価を受ける範囲

### 2.1 課題設定の背景

1970年頃から欧米諸国では、将来の原子力施設の急増に対処するため、放射性物質の環境放出低減化が議論されてきた。放射性物質を環境に放出する場合には、実行可能な限りこれを低減させなければならないとする国際放射線防護委員会(ICRP)の勧告を受けて、原子力委員会は昭和47年(1972年)の長期計画の中において、原子力施設の設置に伴い発生する放射性物質は可能な限り封じ込めることとし、放射性クリプトンの捕捉技術の開発研究の必要性を明示した。これを受けて、サイクル機構(当時動燃事業団)では再処理技術開発の当事者として、将来の再処理施設から大気中に排出される放

放射性クリプトンの環境への影響を抑えるため、クリプトン回収に必要な研究開発を推進することとした。

東海再処理施設における放射性クリプトンの影響については、最大処理時(使用済燃料210 t U/年処理)の放出量に基づき評価されており、実効線量の評価値は $5.1\mu\text{Sv}/\text{年}$ である。この値は、一般公衆の線量限度である $1\text{mSv}/\text{年}$ と比較して十分小さい値である。しかしながら、大気に放出される主要核種の中では、 $^{85}\text{Kr}$ は評価上最も寄与する核種であり、将来、原子力需要が増加した場合に大気中の濃度が上昇し地球規模で拡散することから、放出低減化技術開発に取り組んできた。

技術開発の目標としてクリプトン放射エネルギーの回収率を90%以上とし、1983年に東海再処理施設に付設する試験施設として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)を建設した。再処理オフガスからのクリプトンの分離・精製プロセスには液化蒸留法を、また回収されたクリプトンの貯蔵にはシリンダ貯蔵法を採用した。

一方、長期間の安定貯蔵には、ガス状のクリプトンの固定化が必要と考え、金属中等に封入する固定化技術開発に取り組んできた。(資料-1)

## 2.2 評価を受ける範囲

- クリプトン回収・固定化技術開発の成果
- 今後5年間のクリプトン固定化技術の試験計画

## 3. 研究開発の目的

クリプトン回収・固定化技術は、放射性核種の環境への放出を抑えるための技術開発の一環として取り組んできたものである。これまでの技術開発で、クリプトン回収についてはパイロットプラント規模での技術に目処をつけているが、回収したクリプトンの貯蔵に必要な固定化技術は実用段階に至っていない。そのため、今後は固定化技術の確立に向けて実用性の評価が可能な固定化容器の拡張技

術（スケールアップ）に取り組み、クリプトンの回収・固定化の一連の技術評価に反映する。

#### 4. 研究開発課題の設定

##### 4.1 クリプトン回収技術開発

回収技術開発については、液化蒸留法を用いて再処理オフガスから放射性クリプトンを回収する運転により、再処理オフガスからのクリプトン回収率 90%以上及び回収したクリプトン精製純度 90%以上、という所期の技術目標を達成しているため、施設運転による開発は終了し技術情報の集大成を図る。

##### 4.2 クリプトン固定化技術開発

固定化技術については、小型容器を用いた放射性クリプトンの固定化による技術の成立性は確認したものの、回収技術との組合せを考慮すると、固定化容器が小さく実用段階に至っていないためスケールアップを図る。このため、容器形状とスケールアップ因子との関係を明らかにし容器の拡張技術を確立するとともに、小型容器の3～4倍程度の容器（以下、拡張型容器）による放射性クリプトンの固定化により技術を確認する。

拡張型容器開発の目標は、クリプトンの固定化量約 1.2m<sup>3</sup>（使用済燃料約 10tU 処理相当）、注入速度 0.03m<sup>3</sup>/日（0.35tU/日処理相当）の性能とする。

#### 5. これまでの研究開発成果

##### 5.1 クリプトン回収技術開発の成果（資料-2）

クリプトンの分離・精製プロセスの選定にあたっては、液化蒸留法、溶媒吸収法、低温活性炭吸着法、隔膜法及び熱拡散法等について調査・検討し、既存の技術で実現可能であり、当時既に放射性同位元素捕集用として米国で放射性クリプトンの回収実績のあった液化蒸留法を採用した。

クリプトン施設は、分離精製工場の洗浄塔等で処理されたせん断工程及び溶解工程のオフガスを試験ガスとして受け入れ回収試験を行う。オフガスは空気成分に核分裂生成物 (FP) ガスのクリプトン

(Kr)及びキセノン(Xe)を含んでおり、前処理工程において、微量ヨウ素、酸素、水分、炭酸ガス、キセノンを順次除去する。その後、クリプトン精留工程で沸点の差を利用し、約-180℃の低温条件下で液化し、不活性な窒素、アルゴン等と分離しクリプトンを90%以上に精製する。貯蔵時には再びガス状態に戻しシリンダに貯蔵する。(資料-3)

1983年からコールド試験により、施設の健全性、プロセス特性、操作特性等を確認した。コールド試験結果から必要な改造を行い、1988年には分離精製工場からオフガスを受け入れるホット試験を開始した。1990年12月に使用前検査合格証を取得後、本格的にオフガスの受け入れを行い、これまでに11回の開発運転を実施した。この間、せん断オフガス108バッチ、溶解オフガス155バッチを処理し、せん断及び溶解工程の運転との連動性についても問題のないことを確認した。運転、設備保守、原子炉等規制法及び高压ガス保安法に基づく施設の検査においても、技術基準、放射線管理等の安全性に問題のないことを確認した。また、オフガスからのクリプトンの分離性能(クリプトン回収率90%以上及び回収クリプトン精製純度90%以上等)と施設の各工程の性能が設計値を満たしていることを確認した。(資料-4)

運転時の窒素、水素ガス等の主要なユーティリティ費用は約2000万円/月が必要であり、これらの実績から年間200日稼動を想定した場合、保守費、人件費を含めた操業費は約5億円/年と評価するなどコストデータを蓄積した。なお、建設費は1978年当時で約50億円であった。

以上の成果を総合すると、クリプトン回収技術についてはパイロットプラント規模の運転実績から回収性能を確認しており所期の技術目標を達成したと考えている。

次に、クリプトン回収時に副次的に回収されるキセノンは有用元素であるため、クリプトン回収する場合にキセノンの売却によるコスト低減の観点で、キセノン精製技術開発に取り組んだ。RI( $^{85}\text{Kr}$ )を用いた試験を実施し、PSA(圧力スイング吸着法)による吸着塔



3段のプロセスで、キセノン中の $^{85}\text{Kr}$ 濃度を $4 \times 10^5 \text{Bq/cm}^3$ (クリプトン施設の回収キセノン中の $\text{Kr}$ 濃度設計値)から目標とした $0.1 \text{Bq/cm}^3$ 以下に下げられる技術的見通しを得た。

回収したクリプトンの貯蔵技術としては、クリプトン施設建設時に実証された唯一の方法としてシリンダ貯蔵技術を採用した。内容積約 $0.048 \text{m}^3$ のステンレス製容器(SUS316L)のシリンダに $2.3 \text{MPaG}$ の圧力で貯蔵するもので、1本のシリンダに使用済燃料約 $10 \text{tU}$ 処理時発生するクリプトンを貯蔵することができる。コールド試験で精留後のクリプトンを用いてシリンダの充てん機能に問題ないことを確認し、1988年からホット試験で回収されたクリプトン最大貯蔵量約 $5 \text{m}^3$ をシリンダ(最大圧力約 $2.3 \text{MPaG}$ )に貯蔵しており、漏えいなどの問題なく貯蔵を継続している。

しかしながら、高圧ガス保安法に基づく保安検査のために、一度シリンダに貯蔵したクリプトンを別の貯蔵セルのシリンダへ移し替えるという管理上の対応が必要となり、その場合、シリンダは製作後3年間経過すると充てんの際に再検査を行う必要がある。配管に接続されたシリンダの再検査には多額の費用が必要なことから、クリプトンを貯蔵する技術としては、作業効率的にもコスト的にも実用化技術としては成立しない状況となった。(資料-5)

## 5.2 クリプトン固定化技術開発の成果(資料-6)

固定化技術については、長期安定貯蔵の観点で、クリプトン施設建設当時から基礎的な技術開発を進めてきた。シリンダ貯蔵が事実上適用できないことから、回収したクリプトンの貯蔵技術として、固定化技術の確立が必要不可欠となった。

クリプトンの固定化技術としては、イオン注入法及びゼオライト封入法があり、両法について基礎試験を実施し、比較評価を行った。その結果、ゼオライト封入法は高温高圧で操作し、操作が複雑等の潜在的な危険性が大きいことから、実用化への有望な技術として、プロセスが簡素かつ負圧プロセスで安全性の高いイオン注入法を採用した。イオン注入法については、海外の機関でも注目しており、

他の貯蔵法と比較してその優位性が報告されている。

イオン注入法による固定化技術は、グロー放電でクリプトンをイオン化し、ターゲット電極（スパッタ電極）とサブストレイト電極（イオン注入電極）に電氣的に加速して衝突させるもので、電極電圧の差による電極表面での作用の違いを利用してクリプトンを含む金属層を連続的に作る技術である。ターゲット電極は、クリプトンを閉じ込める金属原子の供給源となり、サブストレイト電極上に、クリプトンを含む金属層が形成されていく。（資料-7）

イオン注入法については、海外の研究機関でも研究されており多少の方式の違いがあるが、サイクル機構は、放電の安定性が良いこと、固化体中のクリプトンの含有量が高いことを重視し、定常印加方式でアモルファス合金を形成する方式を採用した。基礎試験での固定化性能を比較すると、本方式は注入効率が低い（低電力消費）ことで優位性を持っているといえる。

イオン注入法によるクリプトン固定化技術は 1983 年から小型容器によるコールド試験を実施した。原理の確認を行い、電極材料の選定、最適注入条件、固化体特性等を把握し、容器構造、制御システムなどに改良を加えた。

1994 年には、それまでの成果を総合して連続注入により、 $0.3\text{m}^3$  のクリプトンの固定化を達成した。

クリプトンを固定化した固化体は、Ni-Y のアモルファス合金であり、内部にクリプトンを物理的に封入している。固化体中のクリプトンの割合は約 10wt% であり、約  $700^\circ\text{C}$  で急激に再放出される。長期間の保持特性については、 $100$ 、 $200^\circ\text{C}$  で 100 年間貯蔵した場合のクリプトンの放出率は試験結果から各々 0.006%、0.03% と評価しており、長期貯蔵可能なことを確認した。（資料-8）

次に放射性クリプトンによる固定化性能への影響を確認するため、クリプトン施設の一部を改造して、試験設備を設置することとし、設置変更、設工認等を経て、1996 年度に小規模のホット試験設備を完成された。ホット試験は 2000 年 12 月より開始し、2001 年度末には 5 基の小型容器による回収クリプトンの注入試験を終了した。（資料-9）

ホット試験の最初の試験では、放射性クリプトンの漏えいがないことを確認するため、回収クリプトンを5倍の天然クリプトンで希釈したガスを用いて、貯蔵シリンダからの減圧機能、固定化容器へ供給するガスの圧力制御機能の確認、連続試験による一連の操作性確認を行い、機器及び系統全体において高い気密性が維持されることを確認した。ホット希釈ガスでこれらの安全性を確認し連続注入を達成したことから、回収クリプトンを用いて連続試験を実施した。連続試験は2回実施し、いずれも目標とした回収クリプトン約0.3m<sup>3</sup>を所定時間で固定化して性能及び安全性に問題のないこと確認し、小型容器による放射性クリプトンの注入試験を終了した。(資料-10)

イオン注入技術の開発実績について、海外の研究と比較してみると、他の機関は1980年代で研究開発を終了しているが、サイクル機構での放射性クリプトンの固定化実績が最も高い。

以上のことから、クリプトン固定化技術は小型容器(処理速度0.1tU/日、固定化量3tU燃料処理相当)を用いたコールド及びホット試験により技術の成立性を確認し、一定の技術レベルに到達したと考えられる。一方、現在の固定化容器の処理速度の観点から、多数の容器の同時運転(東海再処理規模で10基程度)が必要であり、固定化容量の観点から年間の容器の基数が多数(東海再処理規模で70基程度)必要となることから、実用化のためには、小型容器を拡張し大型化することが必要である。

## 6. 今後の研究開発計画

### 6.1 研究開発の意義

#### (1) 拡張型容器開発の意義

固定化技術を実用レベルとするためには、最低でも小型容器の処理速度及び固定化量の3~4倍程度の固定化が可能な拡張型容器が必要と考えている。この拡張型容器は東海再処理施設(210tU/年規模)に適用すると2~3系列、年間20基で対応可能な規模となる。商用規模にはさらにスケールアップを図るか系

列数を増やすことで対応可能と考えられる。容器の拡張は基本的に電極の面積の増加を図ることであり、拡張する方向と注入性能に影響していると考えられるスケールアップ因子(プラズマ密度、熱除去効果)との関係を明らかにすることが重要である。これらの関係を解明することにより、固定化規模にあわせた容器設計が可能となる。(資料-11、12)

## (2) コスト的意義

拡張型容器と小型容器による固定化設備及び貯蔵設備のコストを比較するとスケール効果により容器スケールが3～4倍になっても容器の製造コストは2倍程度に抑えられることや、系列数の減少、貯蔵基数の減少などから実用化段階での固定化貯蔵コストは、小型容器より約2分の1に低減することが可能と考えられる。

開発コストについては、クリプトン施設に設置されている固定化試験設備は、小型容器の4倍までの固定化容器に対応可能で、放射性クリプトンを貯蔵シリンダ内に有しており、新たな回収運転の必要はなく効率的に技術開発を行うことが可能である。また、蓄積された技術を活用するには、継続的に開発することが効率的であり最も開発期間が短縮できると考えている。

## 6.2 開発課題

固定化技術の拡張型容器の開発に関して、以下の技術的な開発課題がある。(資料-13)

- グロー放電プラズマの安定形成
- 熱除去効率の向上
- 絶縁材へのスパッタ原子の付着防止
- アーク放電の発生頻度低減

### (1) グロー放電プラズマの安定形成

イオン注入法ではグロー放電での非平衡プラズマの安定性が最も性能に関係する。このプラズマの密度分布形成の要因となる容

器高さ、径方向、電極間距離の最適化を図り、スケールアップ因子を把握することが必要である。このため、電極の形状(高さ、径方向)を拡張した容器の注入性能の確認試験を行う。また、流体モデルを用いたプラズマ解析コード等によるプラズマ密度分布の評価を行う。

#### (2) 熱除去効率の向上

グロー放電に伴う発熱で電極の温度上昇による固定化膜中のクリプトンの再放出等の影響を防止するため、各電極は水冷している。拡張型容器においては供給電力、電極厚みが増加するため、冷却構造の改良が必要である。このため、ターゲット電極内部の冷却管径拡張による熱除去効率の向上試験を行う。また、熱流体解析コード等による冷却水量、構造等形状の評価を行う。

#### (3) 絶縁材へのスパッタ原子の付着防止

各電極間の電気絶縁体はスパッタ原子の付着による電極の短絡を防止するため、保護カバーを設置している。拡張型容器ではスパッタ量の増加、構造変化を伴うため、この保護カバー構造の最適化を図る必要がある。このため、電極間の電気絶縁体の保護カバーの構造の改良を行い、長期注入試験による付着量、絶縁性能の確認を行う。

#### (4) アーク放電の発生頻度低減

アーク放電(局所的なイオン密度偏在による電流集中現象)の発生は固定化膜の剥がれによる短絡等につながる。電極面積が増大する拡張型容器ではアーク放電の発生が増加する。アーク放電は運転初期の膜付着性あるいはアーク放電発生後の自動復帰制御のパラメータ設定(アーク放電を遮断するための電源停止後の再投入のタイミング、ガス供給流量の調整等)に起因する。アーク放電の発生を抑制する構造等の把握、発生後のグロー放電への復帰方法を改良する必要がある。このため、特性試験において電極構造とアーク放電の発生頻度の把握、初期膜の付着方法の検討、自動復帰時の電圧、圧力の制御方法の検討を行う。

### 6.3 開発スケジュール(資料-14)

## (1) コールド試験

### ① 拡張型容器の開発試験

各課題に対して各種容器による注入試験を実施し連続注入可能な拡張型容器を開発する。

### ② スケールアップ因子の検討

注入試験結果と合わせて、プラズマ解析、熱流動解析により、容器形状（高さ、径、電極間距離）とスケールアップ因子との関係を把握し注入性能への影響を明らかにする。

## (2) ホット試験

### ① ホット設備での特性試験

拡張型容器の注入試験に備え、ガス流量、電圧・電流、冷却水量の増加に伴う電源や装置等の機能確認、制御プログラムを確立するための特性試験を実施する。

### ② 拡張型容器を用いた連続運転による性能確認

コールド試験で開発した容器構造を基にホット用の拡張型容器を設計・製作し、連続運転による性能を確認する。これは回収クリプトン中には数%の $^{85}\text{Kr}$ が存在し、崩壊による $\beta$ 線の電子とその崩壊生成物であるアルカリ金属のルビジウム(Rb)のグロー放電への影響が考えられるためであり、コールドガス注入時との比較評価を行う。

## (3) ホット固化体のクリプトン保持特性の評価

ホット固化体中の $^{85}\text{Kr}$ の崩壊熱及びRbの影響が考えられるため、既に回収クリプトンを封入した小型容器(連続注入した3基)を用いてホット固化体の長期貯蔵性能を確認する。試験は定期的に容器内のガスをサンプリングして再放出量を測定するとともに温度変化等の固化体貯蔵データを取得する。

## 7. 研究開発実施体制

### 7.1 機構内の体制

現在、クリプトン回収・固定化技術開発は、クリプトン施設を有

する東海事業所 再処理センター 処理部 化学処理第 1 課において実施しており、引き続きクリプトン施設を使用することから、継続して本体制で実施する。

## 7.2 機構外との連携

特になし。

## 8. 研究開発費及び要員

これまでの研究開発では、クリプトン施設の建設費に約 50 億円、運転費を含む開発費用は年間 4～5 億であった。固定化技術開発には、ホット試験設備に約 10 億円、研究開発費としては年間 0.4～0.6 億円でコールド試験及びホットガス注入試験を行っており、研究開発の要員は 5 名であった。

今後の拡張型容器の開発については、人員及び予算の平準化などを考慮すると、コールド試験に 2.5 年程度、ホット試験は容器設計、設工認及び製作期間を含めて 2.5 年程度が必要であり、5 年で技術開発を終了する計画である。この間に必要な予算は 5 年間の合計で約 4 億円(年平均約 0.8 億円)、固定化技術開発の要員については、これまでと同じく 5 名が必要である。

クリプトン施設の設備管理については、平成 14 年度には従来約 4 億円の予算を 3 億円としているが、今後も固定化試験に必要な最小限の設備維持管理方法を検討し、2 億円程度となるよう順次具体化を図り予算削減に努める。固定化試験終了後は回収クリプトンの固定化により、シリンダ貯蔵に伴う現在の施設管理費用は早期に削減可能となる。

## 9. 成果の普及及び公開

### 9.1 成果の普及

#### (1) 期待される成果及び反映先

固定化技術の開発により、回収技術開発成果とともにクリプトンの放出低減化技術としての適用可能性について評価が可能となり、これらの技術開発成果は将来の原子力発電及び再処

理の増加に伴う放出低減化検討に反映する。具体的には、原子力長計における 2010 年頃から開始される六ヶ所再処理工場に続く再処理工場の検討及び将来の高速増殖炉サイクル技術の検討に際し、再処理の要素技術として情報を提供できる。

## (2) 特許

現在までに所有した特許は 8 件でサイクル機構単独で保有しているもの 5 件、メーカーと共同で保有しているものは 3 件である。

## 9.2 公開

現在までの成果の公開状況について示す。

- 国内学会発表 19 件
- 国際学会関係等発表 5 件
- 学会投稿・寄稿等 3 件
- 社内技術資料 32 件

(外部機関委託 19 件、サイクル機構作成資料 13 件)

- サイクル技報(動燃技報) 4 件
- 安全研究 S49 年度～H12 年度まで国のテーマとして実施  
H13 年度以降は社内テーマとして実施中

## 10. 今後の展開

クリプトン回収・固定化の技術開発は、将来の原子力需要の増加の備えとして 1970 年代から実施してきたものである。この間、早急な技術確立の必要性は低下したものの、着実に開発を進めてきた。その結果、回収技術については、パイロットプラント規模の試験施設により技術を確認し、固定化技術については、小規模ながら放射性クリプトンを固定化するレベルまで到達している。一方、放出低減化技術は、ICRP の ALARA(As Low As Reasonably Achievable)の考えに基づくもので、その技術は合理性が求められる。開発計画は、実用時のコストを大幅に軽減できる固定化容器の拡張技術に取り組むものであり、開発にあたっては試験に必要な



な回収クリプトンを有する既存施設及び設備において実施するもので効率的な開発が可能である。

再処理施設から放出される放射性クリプトンについては、現在の世界の再処理規模では局所的にも地球規模的にも影響はない。これは、本技術開発を始めた 1970 年代における 2000 年頃の原子力発電量の予測に対して実際には約 10 分の 1 程度となっているからである。しかし、世界の原子力エネルギー需要の将来予想については不確実で急激に伸びることも考えられる。サイクル機構は、エネルギーの安定確保のために本格的なプルトニウムリサイクルに向けた技術開発を担う機関であり、放出放射能の低減化に注目し必要な技術開発を進めることは重要な役割と考えている。大気中のクリプトン濃度は僅かではあるが現状でも上昇しており、環境問題は今後も一段と重視されると考えられ、放出低減化の努力は、原子力利用の理解に役立つものと考えている。

クリプトン放出低減化は、回収技術と貯蔵技術である固定化技術のトータルの技術として成り立つもので、残されている固定化技術の実用性向上に不可欠な課題の解決のために、小規模試験を 5 年間継続し技術を集大成するものである。

将来クリプトンの放出が無視できない程度に原子力発電及び再処理が増加した場合の備えとして、合理的な技術の提案が可能となるよう技術レベルを上げ、クリプトン放出低減化の選択肢を準備しておくことは意義のあることと考えている。

## ☆クリプトン低減化技術開発の経緯

- 1970年代の世界的な環境論争を背景に、原子力長計（1972年）において、「環境に悪影響を与えないように捕捉困難な核種Kr-85の研究開発の必要性」を明示。
- サイクル機構は、再処理技術開発の当事者であり、国の機関として将来の原子力利用の増加に備えるために、クリプトン放出低減化技術開発に取り組むこととした。
- クリプトン回収は液化蒸留法を採用し、東海再処理施設にパイロットプラント規模の試験施設『クリプトン回収技術開発施設』を建設し開発を実施。
- 貯蔵技術は、シリンダ貯蔵技術を適用し、長期間の貯蔵には、ガス状のクリプトンを固定化することが必要と考え、金属中等へ封入する固定化技術（イオン注入固定化法）の開発に取り組む。

## ☆クリプトン回収・固定化技術に係る開発経緯

技術開発	実施項目	期間	1970	75	80	85	90	95	2000
Kr回収	基礎・工学試験	1972～1979	■						
	設計・建設	1974～1983		■					
	コールド試験	1983～1987				■			
	ホット試験・開発運転	1988～2001					■		
Kr固定化	基礎試験	1977～1988		■					
	コールド試験	1990～2001					■		
	ホット試験	2000～2001							■

### ○回収技術

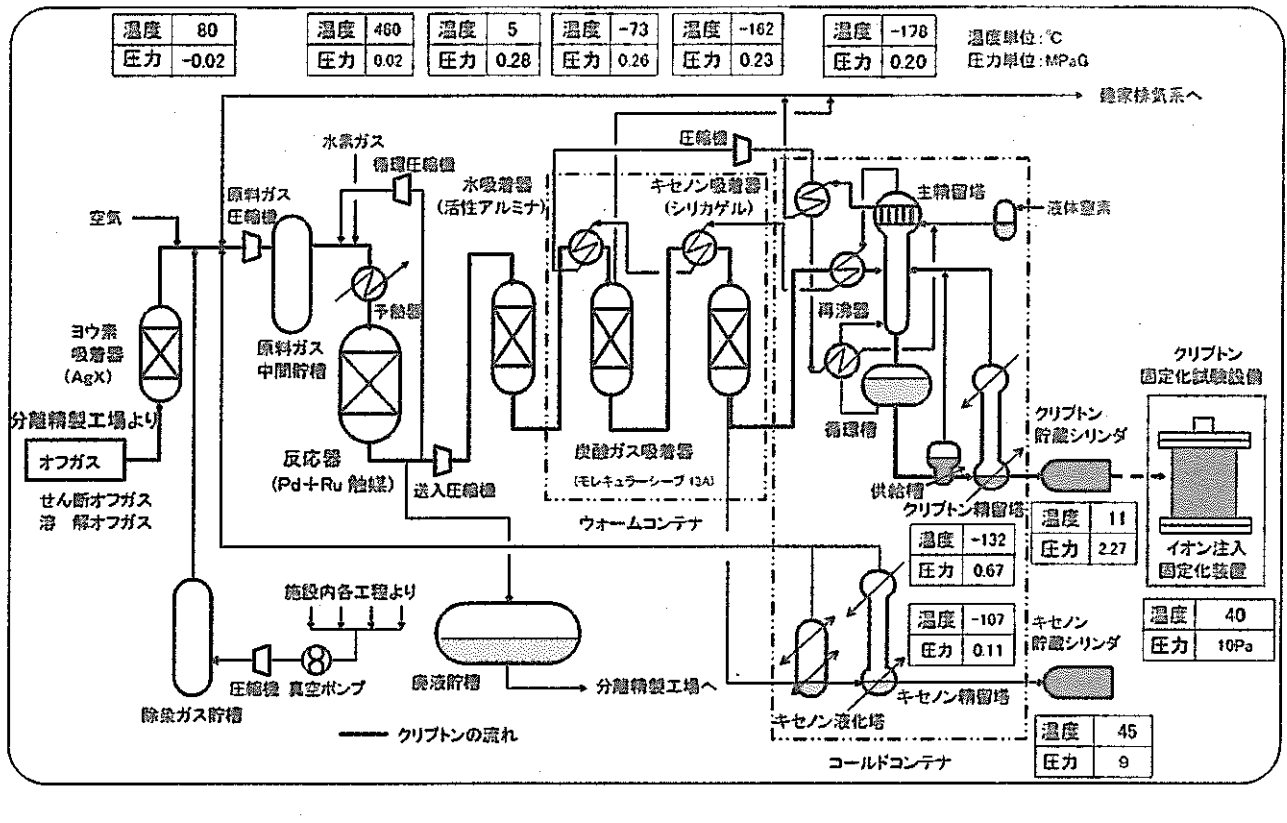
約20年の試験運転、開発運転実績により、回収技術を確立

### ○固定化技術

小型容器を用いたホット試験で、技術の成立性確認

開発経緯、開発状況をまとめ、  
今後のクリプトン回収・固定化技術開発計画について検討

## ☆クリプトン回収技術開発施設の工程概要 液化蒸留法による回収



## ☆クリプトン施設の運転実績

運転	期間	回数	実施内容
コールド試験運転	1983~1987	11回	<ul style="list-style-type: none"> <li>各工程毎の性能確認、定常時・変動時のプロセス特性の操作特性の把握</li> <li>運転要領の決定、プロセスの改造・改良</li> </ul>
ホット試験運転	1988~1990	5回	<ul style="list-style-type: none"> <li>せん断、溶解ガスを各 19 Bq (計 <math>7.15 \times 10^{16}</math> Bq) 受入れて放射性ガスの閉じ込め性能など安全性の確認</li> <li>分離精製工場との連動運転、操作性の確認</li> <li>使用前検査受検、合格証の取得</li> </ul>
開発運転	1991~2001	11回	<ul style="list-style-type: none"> <li>せん断ガスを 89 Bq、溶解ガスを 136 Bq (計 <math>8.58 \times 10^{16}</math> Bq) 受入れて、安定・安全運転の実証</li> <li>精留塔除染係数の測定など核種挙動の把握</li> <li>実ガス処理による Kr 回収の実証、副産物の Xe 回収の実証</li> <li>運転条件の最適化検討、運転の自動化と合理化、設備の改造・改良、運転・保守・コストデータの蓄積</li> </ul>

## ☆放射性クリプトンガスの回収実績

運転名	回数	運転期間	受入n°子数		受入量 ※1	リサイクル供給量 ※2	供給量	放出量	回収量 ※3	回収率
			COG	DOG						
	[回]	[日]	[Bq]	[Bq]	[Bq]	[Bq]	[Bq]	[Bq]	[%]	
試験運転	5	283	19	19	$7.15 \times 10^{14}$	$5.25 \times 10^{14}$	$1.24 \times 10^{15}$	$1.46 \times 10^{13}$	$1.23 \times 10^{15}$	97.1 ~ 99.7
開発運転	11	734	89	136	$8.58 \times 10^{15}$	$1.98 \times 10^{16}$	$2.84 \times 10^{15}$	$2.39 \times 10^{14}$	$2.82 \times 10^{16}$	97.5 ~ 99.9
合計	16	1017	108	155	$9.30 \times 10^{15}$	$2.03 \times 10^{16}$				

※1 分離精製工場からの<sup>85</sup>Krの受入量  
 ※2 クリプトン施設に回収し保有している<sup>85</sup>Krをリサイクル  
 ※3 回収量は供給放射能から放出放射能を引いた値

## ☆高圧シリンダ貯蔵法による貯蔵実績

### ○問題点（高圧ガス保安法対応）

- ✓ **配管類保安検査**：セル内の配管類に対して定期的  
に検査が必要。セル内立入には回収クリプトンの  
シリンダ間の移し換えが必要
- ✓ **シリンダ容器再検査**：容器は3年間有効であるが、  
3年を超えて新たに充填する場合は再検査が必要。  
事実上、シリンダの持ち出しは困難であり、シリ  
ンダの新規製作・溶接接続工事が必要



大量のガスを貯蔵するには非効率的であり、**実用化困難**

## ☆固定化技術開発の位置付け

### ○Kr施設建設当時（1980年頃）

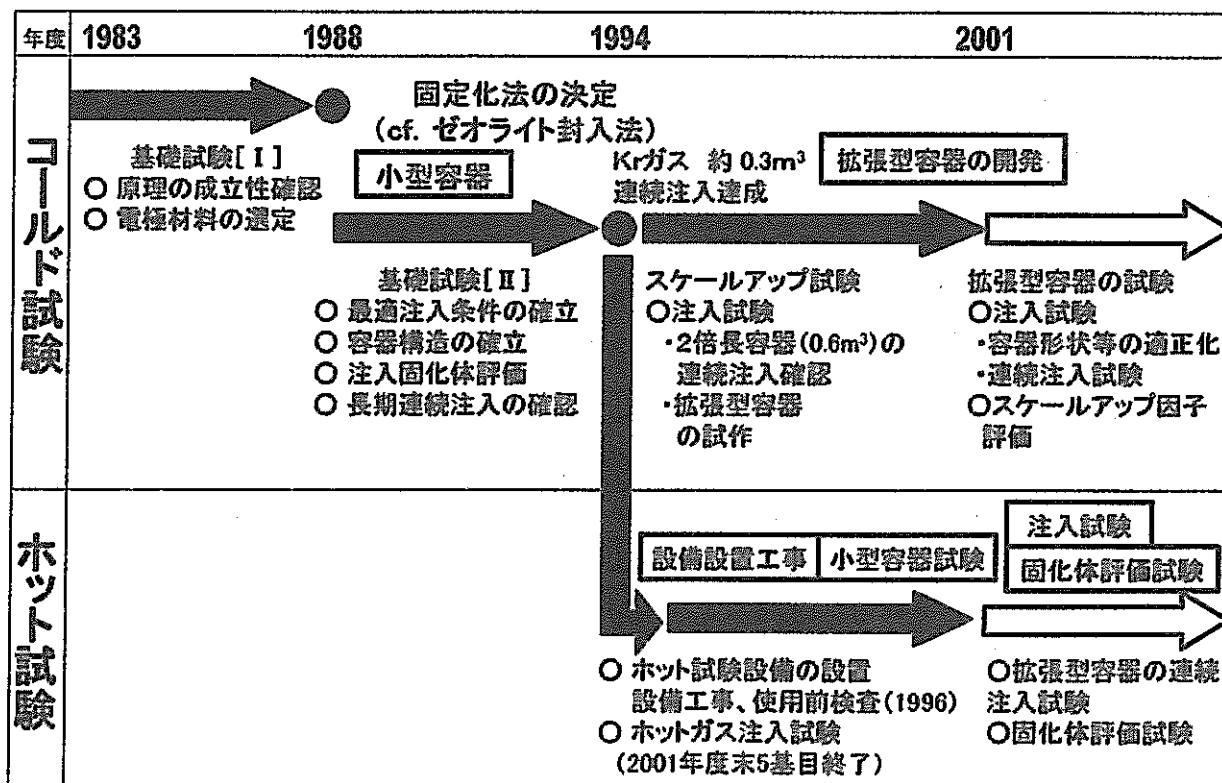
Kr貯蔵するための実用技術の唯一の方法として高圧シリンダ貯蔵法を採用し、長期的には安定化が必要として固定化技術開発に取り組む。

シリンダ貯蔵は高圧ガス検査のため、貯蔵Krのシリンダ間の移し替えが必要となり、再充てんにはシリンダの定期的な再検査を行う必要が生じ、合理性が著しく低下。

### ○現状

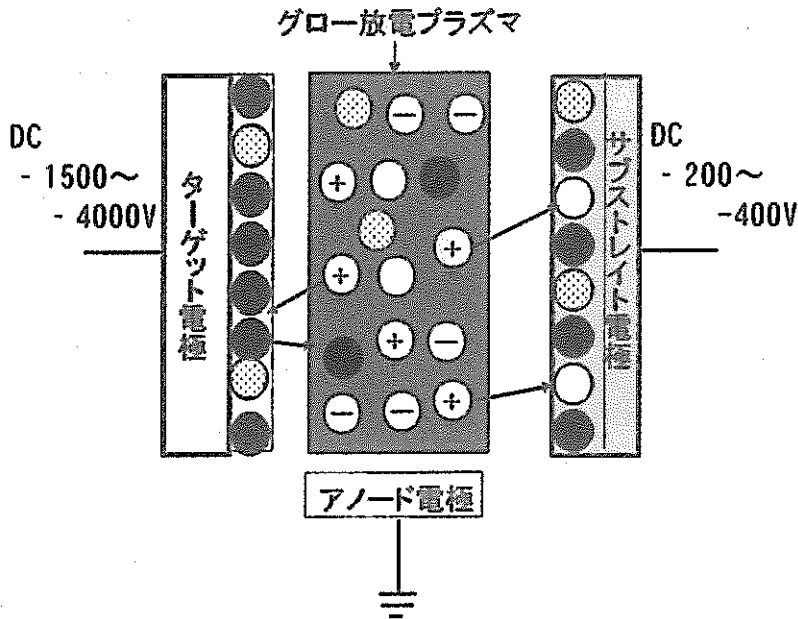
Kr回収を実用化するにはシリンダ貯蔵は非効率的であり、従来長期貯蔵技術開発として取り組んできた固定化技術を確立することが必要不可欠となった。

## ☆クリプトン固定化(イオン注入法)技術開発経緯



# ☆イオン注入固定化の注入原理

● Ni   ● Y   ○ Kr   ⊕ Kr<sup>+</sup>   ⊖ e<sup>-</sup>

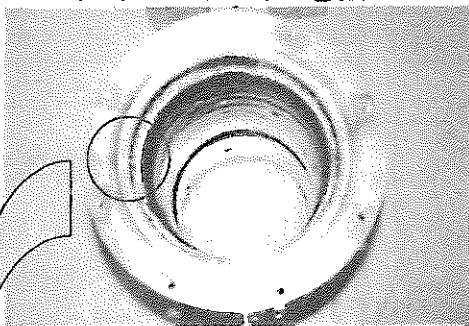


**(グロー放電プラズマ)**  
 ①真空中に近い状態 (~10Pa) 程度でKrを供給する。  
 ②電圧を加えるとグロー放電が発生し、Krの一部は+イオンと電子に分かれるプラズマを形成する。  
 ③両電極表面に近いKrイオンは各々のマイナス電極に向かう  
 ④電子はアノード電極に収集される

**(ターゲット電極)**  
 ①グロー放電で発生したKrイオンが電界加速され電極表面に衝突する  
 ②電極金属原子 (ニッケル、イットリウム) は運動エネルギーを受け取り、電極表面から弾き出 (スパッタ) される。  
 ③Krイオンは電子を受け取り中性原子に戻りグロー領域で再びイオンとなる。

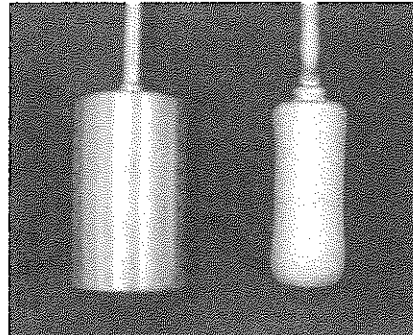
**(サブストレイト電極)**  
 ①ターゲット電極でスパッタされたニッケル、イットリウム原子が飛来し、電極表面でアモルファス合金を形成する。  
 ②グロー放電で発生したKrイオンが電界加速 (弱) し、表面に到達する。  
 ③ニッケル-イットリウムの新たな合金層にKrが取り込まれKrを含む合金層が形成される。なお、Krイオンは電子を受け取り原子状態で固定化される

## < サブストレイト電極 >



電極表面にクリプトンを封入した固化体が形成

## < ターゲット電極 >



電極がスパッタにより消耗

## < イオン注入後の各電極の状況 >



サブストレイト電極上に形成したクリプトン固化体

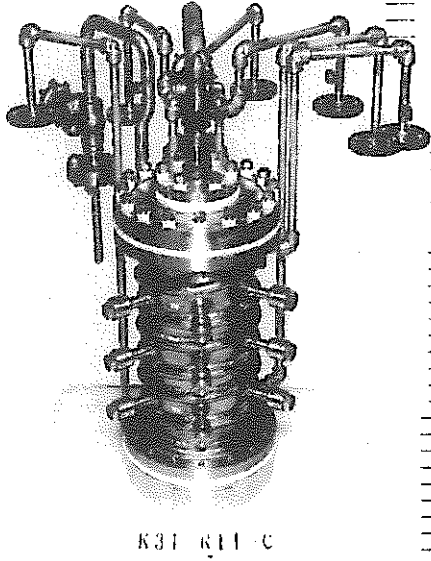
クリプトン固化体中のクリプトン注入密度及び組成

Kr 注入密度		組 成			
重量 当り	29.8 Ncc/g	元素	Kr	Ni	Y
体積 当り	207 Ncc/cm <sup>3</sup>	重量%	10.8	76.3	12.9
比重	6.93	Atom%	8.6	82.2	9.2

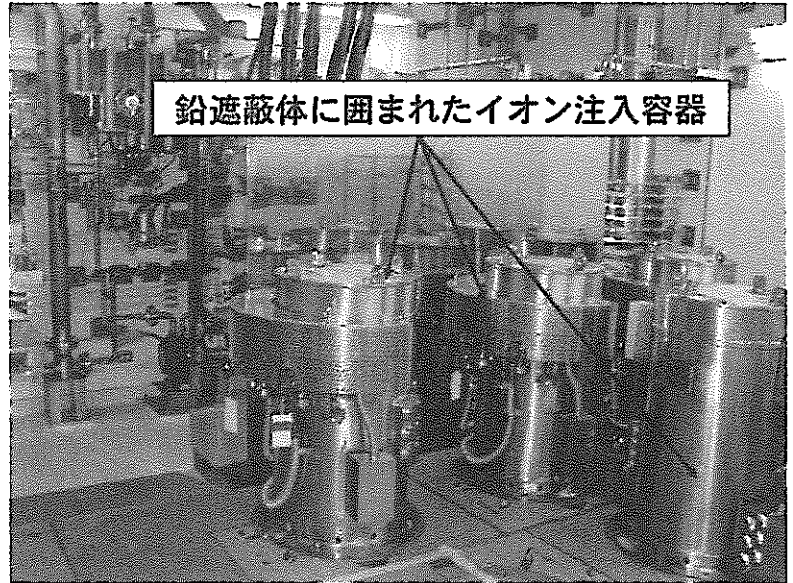
固化体の結晶構造はアモルファス(非晶質)

# ☆クリプトン固化体及び組成 (コールド試験結果)

## ☆ホット試験設備



イオン注入容器



鉛遮蔽体に囲まれたイオン注入容器

➤2000～2002年に小型容器5基によるホット試験を実施

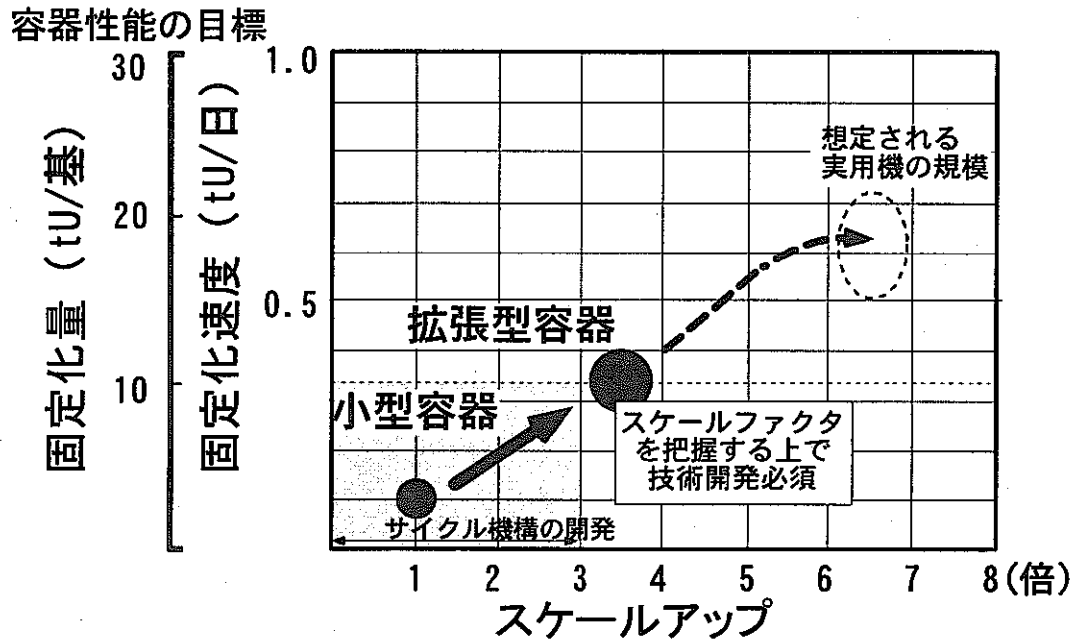
## ☆固定化ホット試験結果

試験	内容
特性試験	<ul style="list-style-type: none"> <li>電圧値の最適化</li> <li>連続運転処理を確認 (約 3000 GBqを固定化)</li> <li>コールド試験との比較を行い、同等の性能であることを確認</li> </ul>
長期連続試験1 (希釈ガス)	回収Krガスを約5倍の天然Krガスで希釈したガスを用いて連続注入運転を達成 注入量 : 約 0.30 m <sup>3</sup> (約 3.4 × 10 <sup>4</sup> GBq) 運転時間 : 約 1,300 時間
長期連続試験2 (回収Krガス)	回収したKrガスで連続注入運転を達成 注入量 : 約 0.27 m <sup>3</sup> (約 1.5 × 10 <sup>5</sup> GBq) 運転時間 : 約 1,100 時間
長期連続試験3 (回収Krガス)	長期連続試験2より放射能濃度の濃い回収Krガスを用いた長期連続試験 注入量 : 約 0.28 m <sup>3</sup> (約 2.9 × 10 <sup>5</sup> GBq) 運転時間 : 約 1,100 時間

設備概要: 小型容器6基、拡張型容器3基の貯蔵が可能

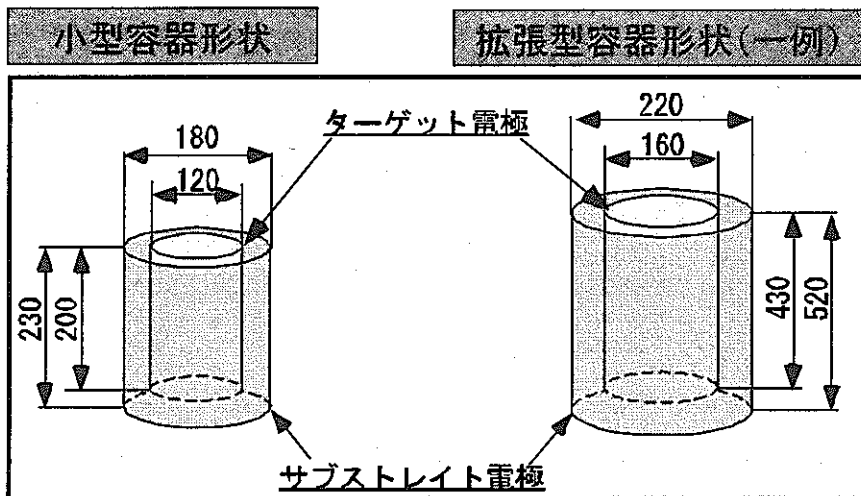
## ☆拡張型容器の位置付け

容器注入性能（注入速度、注入量）とスケールアップ因子（プラズマ密度、熱除去効果）との関係を明らかにすることで、自由度のある容器設計を可能とする。



拡張型容器は東海再処理規模には適用可能である。商用規模にはさらに2倍程度のスケールアップを図るか系列数を増やすことで対応可能

## ☆拡張型容器の目標性能



	項目	小型容器	拡張型容器
目標性能	Kr注入速度	8L/日(0.1tU/日相当)	30L/日(0.35tU/日相当)
	Kr処理量	0.3m <sup>3</sup> (3tU相当)	1.2m <sup>3</sup> (10tU相当)
形状	容器容積	約6L	約20L
	電極面積	ターゲット : 750cm <sup>2</sup> サブストレイト: 1300cm <sup>2</sup>	ターゲット : 2200cm <sup>2</sup> サブストレイト: 3600cm <sup>2</sup>

## ☆拡張型容器の開発課題

項目	開発課題	実施内容
グロー放電プラズマの安定形成	イオン注入法ではKrイオンを発生させるグロー放電のプラズマ安定性が最も性能に関係する。プラズマ形状形成の要因となる容器高さ、径、電極間距離の最適化を図り、スケールアップ因子を把握し、形状の最適化を図ることが必要である。	(1) 電極の形状(高さ、径方向)を拡張した容器の注入性能の確認試験 (2) 流体モデルを用いたプラズマ解析コード等によるプラズマ密度の評価
熱除去効率の向上	グロー放電に伴う発熱で電極の温度上昇による固定化膜中のクリプトン再放出等の影響を防止するため、各電極は水冷している。拡張型容器では電力の増加、電極厚みの増加のため冷却構造の改良が必要である。	(1) ターゲット電極内部の冷却管拡張による熱除去効率の向上の試験 (2) 熱流体解析コード等による冷却水量、構造等形状の評価
絶縁材へのスパッタ防止	各電極間の電気絶縁体はスパッタ原子の付着による電極の短絡を防止するため、保護カバーを設置している。拡張型容器ではスパッタ量の増加、構造変化を伴うため、スパッタ原子の付着を防止する保護カバー構造の最適化を図る必要がある。	(1) 電極間の電気絶縁体の保護カバーの構造の改良 (2) 長期注入試験による付着量、絶縁性能の確認
アーク放電の発生頻度低減	アーク放電の発生は固定化膜の剥がれによる短絡等につながる。電極面積が増大する拡張型容器ではアーク放電が増加する。アーク放電の発生を抑制する構造等の把握、発生後の復帰の制御方法を改良する必要がある。	(1) 特性試験による電極構造とアーク放電の発生頻度の把握 (2) 初期膜付着方法の検討 (3) 自動復帰時の電圧、圧力の制御方法の検討

## ☆固定化技術の開発スケジュール

開発項目	2004年度	2005年度	2006年度	2007年度	2008年度
	H16年度	H17年度	H18年度	H19年度	H20年度
1. コールド試験 (1) 拡張型容器の開発試験  (2) スケールアップ因子の把握	コールド注入試験				
	ソフト解析				
2. ホット試験 (1) 拡張型容器適用のための特性試験 (2) 拡張型容器を用いた連続運転による性能確認  (3) ホット固化体のクリプトン保持特性の評価	特性試験				
	設計・許認可		製作		
	注入試験			注入試験	
小型容器2基、小型加温型容器1基を使用					

・人員は各年度ともに5名を予定



中間評価課題：「再処理施設における  
クリプトン回収・固定化技術開発」

## 用語説明

## (用語説明)五十音順

### 〈あ行〉

#### アーク放電

低圧条件下で高電圧を印加したときの放電現象の1つで、局所的に電流集中現象が起きて、電極に大きな電流が流れる放電現象である。イオン注入固定化においてアーク放電が発生すると、電源を遮断し、再度グロー放電を発生させる必要がある。

#### 圧カスイング吸着法 (PSA)

PSA (Pressure Swing Adsorption) 法といい、吸着法の一つで、圧力を上昇させて吸着させ、圧力を下降させて脱着させるもので、圧力操作条件を変えることにより目的成分を精製する方法である。

#### アノード電極

直流電圧を印加して放電を行う場合の正極であり、接地して電子を収集する電極である。イオン注入法では固定化容器の上部及び下部に配置されている。

#### アモルファス合金

合金の構造で結晶構造を持たないで非晶質構造を示すものをいい、X線回折等では定位置にピークがなくブロードなスペクトルを示す。イオン注入固定化では、サブストレイト電極上にアモルファス合金が形成され、クリプトンがその中に封入される。

#### 液化蒸留法

空気の分離の技術であり、沸点の差を利用して目的とするガスを冷却して液化し、不純物ガスと分離して、高純度のガスとして精製する方法である。

#### オフガス

再処理施設のせん断・溶解工程から発生するガスの総称である。クリプトンは不活性なガスであり、すべてオフガスに移行し、排気塔より大気に放出される。

### 〈か行〉

#### 回収クリプトン

オフガスから不純物を除去し、液化蒸留法によりクリプトン精製純度を90%以上としたクリプトンで、貯蔵シリンダに回収されているガスのことをいう。

#### 核分裂生成物ガス

使用済燃料中に含まれる核分裂によって生成した揮発性核種である。主な揮発性核種はヨウ素(I)、クリプトン (Kr)、トリチウム(T)、キセノン(Xe)である。キセノンは放射性核種の半減期が最大数日程度で減衰する。

#### キセノン

キセノンは原子記号 Xe、原子番号 54、原子量 131.29 の希ガスである。安定同位体としては Xe-133 等 9 種類ある。空気中に 0.1ppm 程度存在する有用な希ガスで照明等に利用されている。使用済燃料中の核分裂生成物ガスの1つで、クリプトンの約 10 倍発生する。クリプトン施設では吸着剤のシリカゲルで除去される。

## クリプトン

クリプトンは原子記号 Kr、原子番号 36、原子量 83.80 の希ガスである。安定同位体としては Kr-84 等 6 種類ある。空気中に 1ppm 程度存在する希ガスで、照明等に利用されている。使用済燃料中の核分裂生成物ガスの 1 つで、放射性同位体 Kr-85 が約 6% 含まれている。Kr-85 は半減期 10.76 年で崩壊し、アルカリ金属のルビジウムとなる。

## グロー放電

低気圧のガスが存在する空間内に数百ボルト以上の電圧を印加すると、ガス分子の一部が電離し、イオン化して空間内で陽極に向かって電子の流れが発生するとともに、陰極に向かってイオンの流れが発生し、これが継続する現象のことである。

## 国際放射線防護委員会(ICRP)

国際放射線防護委員会(ICRP :International Commission on Radiological Protection)は、専門家の立場から放射線防護に関する勧告を行う国際組織である。国際原子力機関(IAEA)の安全基準、世界各国の放射線障害防止に関する法令の基礎となっている。

## 固定化膜

ターゲット電極からスパッタされて飛来したニッケルとイットリウムの原子がサブストレイト電極上でクリプトンを封入しつつ、形成する合金薄膜のことである。

## 〈さ行〉

### サブストレイト電極

イオン注入法における負の電極の 1 つで、イオン注入容器の中央部の電極を取り囲むように中空の円筒形状の電極である。直流電圧で -200~-400V を印加し、同電極付近のクリプトンイオンを電氣的に弱く引き寄せる。

## 実効線量

国際放射線防護委員会(ICRP)が 1990 年に勧告した確率的な影響が起きる確率を表現した線量概念である。臓器・組織の吸収線量を基にして、放射線種、組織荷重係数を考慮して算出している。

## 使用前検査

原子炉等規制法に基づく「再処理施設」等原子力施設に対する規制体系の一環としての検査であり、施設の工事及び性能についての国の検査のことである。

## シリンダ

クリプトン施設で回収したクリプトンを貯蔵する SUS316 製の容器である。内容量は一般ガスボンベと同じ 0.048m<sup>3</sup>(48L)で、この容器の中に最大圧力 2.3MPa でクリプトンを貯蔵する。

## スケールアップ

小さな装置内で起こる物理的、化学的な挙動を調べて、その挙動を変えないで大きな装置を製作することをいう。イオン注入法では、小型容器の3~4倍程度の拡張型容器を製作するための容器拡張のことをいう。

## スパッタ

ガスをイオン化し、電界加速してターゲット(金属)に衝突させて原子を弾き出すことをいう。イオン注入固定化では、ターゲット電極(Ni-Y)に数千ボルトの負電圧を印加し、クリプトンイオンを衝突させ、スパッタさせる。スパッタされた原子をスパッタ原子という。

## ゼオライト法

クリプトンを固定化する方法の1つで、ゼオライトの結晶上の空洞に高温高圧のクリプトンを活性化拡散効果により封入すると同時に、含まれる水分による高温高圧下の水熱反応により結晶構造を非晶質化し、ゼオライトの開口を塞ぐことにより、クリプトンを安定に閉じ込め、固定化する方法である。

## 絶縁材

電氣的に短絡させないように各電極間に設置したセラミック等の材料のことである。イオン注入固定化ではターゲット電極(T)、サブストレイト電極(S)、アノード電極(A)の3電極を用いており、T-A、S-A間にセラミックの絶縁材を設置している。

## 線量限度

国際放射線防護委員会(ICRP)が、放射線防護の目的として、人の安全を確保し、個人の確定的影響の発生防止、確率的影響の発生を制限するための放射線防護体系の基本原則の一つとして、個人が超えて被ばくしてはならない放射線の量として勧告しているものをいう。職業人に対して5年間の平均が20mSv/年、一般公衆の被ばくに対して、1mSv/年を勧告している。

## 〈た行〉

### ターゲット電極

イオン注入固定化における負の電極の1つであり、イオン注入容器の中央部に円筒形状で設置し、ニッケルとイットリウムで構成された電極である。直流電圧-1500~-4000Vが印加され、クリプトンイオンが加速されて同電極に衝突する。

### 注入効率

消費電力当たりのKr注入量で、単位はcc/kWhである。クリプトンの注入速度をターゲット電極とサブストレイト電極の消費電力の和で除して求める。クリプトンの注入性能を評価する1つの目安となる。

### 注入速度

クリプトンを固定化する速度で、単位はcc/min(またはL/日)である。クリプトンの注入性能を評価する1つの目安となる。

## 東海基準燃料

東海再処理施設で再処理する場合の使用済燃料の仕様である。仕様としては軽水炉原子炉使用済燃料で平均燃焼度 28000MWD/tU、冷却期間 180 日である。この仕様を基に ORIGEN コードでクリプトン発生量及び Kr-85 割合等を求めている。

## 透過型電子顕微鏡 (TEM)

Transmission Electron Microscope の略で、電子顕微鏡の一種である。TEM は電子線が試料内部を透過するため、試料内部の格子欠陥（転位、積層欠陥、双晶など）を直接観察でき、また、回折パターンを解析することにより、原子配列の周期性や結晶の向き（方位）を知ることができる。イオン注入固定化では、合金中の線状の結晶相と平面状の相とが観測され、電子線回折(SAED)やエネルギー分散型 X 線分析と組合せることにより、前者はニッケル等の結晶相、後者は斑点状であり、X 線光電子分光分析(ESCA)により、この中に Kr が単原子として封入されていることがわかっている。

## 〈な行〉

### 熱除去効率

イオン注入固定化では、グロー放電による電極の発熱を伴うため、ターゲット電極、サブストレイト電極、アノード電極は水冷しており、これらの電極の熱除去の程度を表わすものである。

## 熱流体解析コード

流体力学の計算にコンピュータ解析技術を組み込んだソフトプログラムである。解析対象に対して流体力学等が適用され、熱伝達、蒸発、沸騰、機械的な動きを伴う流れ等を計算できる。

## 〈は行〉

### 非平衡プラズマ

放電などにおいて、イオン温度  $T_g$  と電子温度  $T_e$  とが等しくない状態のプラズマのことをいう。一般に、グロー放電のような非平衡プラズマでは  $T_e/T_g$  は 10~100 であり、熱平衡が存在しないので、電子が分子の結合の励起を起こすに十分なエネルギーを持ち、ガス温度は装置温度に近い低温プラズマを得ることが可能である。一方、アーク放電等の平衡プラズマでは  $T_e = T_g$  である。

## プラズマ解析コード

プラズマ解析コードは、イオン注入法においてプラズマを流体とみなした流体モデルを適用した解析コードで固定化計算用に作成したものである。この解析コードは流体としてのガスの速度分布をマックスウェル分布と仮定し、粒子密度連続式、電子エネルギー方程式及びポアソン方程式を連立し、これらを離散化することによって、電子やイオンの密度分布等の解析を行えるように構成されている。

## プラズマ密度分布

プラズマ解析コードにより、固定化容器中のクリプトンイオン密度と電子密度の分布を計算で求めたものである。これらの密度分布が均質となることをプラズマ安定の目安としている。

## 〈ら行〉

### ルビジウム

放射性クリプトン(Kr-85)のベータ壊変により、生成する元素である。生成したルビジウムはアルカリ金属で安定同位体である。

## 〈アルファベット〉

### ALAP

国際放射線防護委員会が昭和 33 年勧告で示した放射線防護の基本的考え方を示す概念であり、“as law as practicable”の略語で、“すべての放射能被曝線量を実行可能な限り低く保つ”という原則。内容をより明確に表わすため、昭和 48 年勧告では、ALARA(As low as reasonably achievable)と表現されている。

### ALARA

国際放射線防護委員会(ICRP)が 1977 年勧告で示した放射線防護の基本的考え方を示す概念であり、“as low as reasonably achievable”の略語である。放射線防護の最適化として「すべての被ばくは社会的、経済的要因を考慮に入れながら合理的に達成可能な限り低く抑えるべきである」という基本精神に則り被ばく線量を制限することを意味している。

### ICRP

国際放射線防護委員会(ICRP :International Commission on Radiological Protection)の項参照。

### DTA

DTAはDerivative thermal analysisの略で、示差熱分析のことである。試料とアルミナ等基準物質に熱を加えた時に生じる、温度差を温度の関数(発熱または吸熱)として測定する。イオン注入固定化では、合金の結晶化が起きる700℃付近の温度で発熱が発生している。

### TG-MASS 測定

TGはThermogravimetryの略で熱重量分析であり、MASSはMass Spectrometryの略で質量分析のことである。TG-MASS測定とはTG装置にMASS装置を直結して、加熱した時の重量変化と同時に、加熱時に試料から発生する気体の質量数ごとの濃度変化を温度の関数として追跡する手法である。

中間評価課題：

「再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発」

課題評価委員会からの質問に対する回答

(補足説明資料)

平成15年6月

核燃料サイクル開発機構

## 1. 研究開発の目的・意義

Q1-1

このような技術開発を JNC が行う必要性は何ですか。

【A1-1】

エネルギー需要の増加に備え、ALARA の考えに基づく再処理施設の放出放射能の低減化について合理性のある技術開発を目指して実施しており、再処理量の増加に伴うクリプトン放出の問題が生じる時に、速やかに技術情報の提供が可能ないように備える必要があると考えています。将来に対する備えの研究開発については国の機関である JNC が一定の技術水準まで開発すべきであると考えます。

Q1-2

官民の役割分担をどの様に考えますか。

【A1-2】

クリプトン回収・固定化技術開発のように将来に対する備えとしての研究においては、実用化の基盤となる研究開発までは JNC 等公的機関で実施し、その後の実用化に必要な開発は、事業全体で分担することが適切であると考えています。

クリプトン固定化技術については、注入容器のスケールアップが大きな技術課題で実用化の基礎となると考えており、そこまで開発を行い開発結果を利用可能なようにしておくことが必要と考えます。

Q1-3

この 20 年間に 1 度も評価を受けなかったのですか。

【A1-3】

このような外部評価を受けるようになったのは、サイクル機構として改組されて以降のことですが、本研究開発は昭和 49 年から国の安全研究として取組んできたものであり、5 年毎に国の安全研究専門部会に成果及び計画を示しながら進めてまいりました。



Q1-4

東海事業所再処理工場の今後の操業計画と研究開発目的との関係（現再処理工場でのクリプトン固定実用化を目指すのかなど）を教えてください。

【A1-4】

東海再処理工場は数年間軽水炉使用済燃料およびふげん使用済燃料再処理を年間 40tU/年程度実施し、その後は MOX 燃料、高燃焼度燃料処理の技術開発を行う計画です。

今回示した計画はクリプトン固定化技術の実用性評価の観点で容器のスケールアップ技術に取り組むもので、既に回収したクリプトンで固定化試験を行う計画であり、再処理工場での操業計画とは関連あるものではありません。研究開発は 5 年間で計画しており、クリプトン回収・固定化の技術を集大成し、研究開発を終了する予定です。

Q1-5

期待される他の原子力施設への波及効果を具体的に教えてください。

【A1-5】

本技術は原子力発電の利用状況、将来予想が大きく関係し、再処理施設からのクリプトン放出の影響が懸念される時に反映される技術であり、その場合は全世界の再処理施設で共通の技術となると考えられます。今後、2000年(H12年)の原子力長計に記載されている「六カ所再処理工場に続く再処理工場」の検討を行う際には、その時点での原子力発電の将来予想により、クリプトンの放出低減化の議論がなされることが考えられ、また高速増殖炉の利用が進む時においてもクリプトン回収・固定化技術はその要素技術として検討されると考えています。

Q1-6

クリプトン回収基準はあるのですか。

【A1-6】

米国において、核燃料サイクルの運転による放射線から公衆の被ばくを最小限にするために環境保護庁 EPA(Environmental Protection Agency)は40CFR190の環境基準を策定しました。この基準によれば、1983年より Kr-85 の放出を核燃料サイクルによって生産される年間発電量 50,000Ci(約 2E15 Bq)/Gw-y に制限することになっており、これを発電炉による Kr-85 発生量で考えると約 85%を回収し貯蔵する必要があるというものです。しかし、米国では商業用再処理を中止したので実際上の適用にはなりません。この例の他に、日本を含めた他の国では回収基準はありません。

Q1-7

これらの技術はニーズですか、シーズですか。

【A1-7】

原子力需要の増加に備えた ALARA の考え方に基づいた研究開発であるため、シーズに近いと考えられます。

Q1-8

この研究を急いでやる必要があるのですか。

【A1-8】

本研究開発は、今回提示した固定化の5カ年の開発により、回収技術とともに全体の技術の集大成を行う予定です。現在残されている課題は固定化容器のスケールアップに関するもので、実用性を評価するには不可欠な技術課題と考えています。開発期間が長くなればプラントの維持管理が増加しますし、また、課題を残したまま開発を中断した場合には、施設の再立ち上げ、技術者の養成、回収クリプトンの確

保など様々な問題が生じ、現在計画している開発コストよりも相当多くの費用が必要となります。このようなことから、速やかに継続的に開発を進めることが最も効率的でコストがかからないものと考えており、残された課題に早急に着手し終了させたいと考えています。

Q1-9

技術的な達成目標を具体的に明示すべきと思います。

【A1-9】

今後 5 年間で取り組む固定化技術については拡張型容器の開発を目指しており、その技術的な性能の達成目標は、拡張型容器 1 基でクリプトンの固定化量約 1.2m<sup>3</sup>(使用済燃料約 10tU 処理相当)、処理速度 0.03m<sup>3</sup>/日(0.35tU/日処理相当)という具体的な数値目標を掲げています。

Q1-10

国の最近の方針との関係がよくわからないのですが。

【A1-10】

本研究開発は、放出低減化技術として開発当初から国の安全研究として継続して実施してきたもので、基本的には、原子力利用の需要の増加に備えるための必要な技術として位置付けられてきたもので、一定の水準まで技術を確立しておくとの方針に変わりはないものと考えています。開発の進捗については、安全研究の年次報告や毎年の予算申請において、成果をもとに計画を示してきており、回収技術は所期の目標を達成したため開発コストを最小限とする観点から、固定化技術のみを継続することが妥当と認めていただいています。

Q1-11

1972年当時の原子力長計をベースに本研究開発が開始されているが、その後の原子力長計におけるクリプトンの放出低減化の考え方はどうだったのですか。今後とも開発を進める意義があるのかを明確にする必要があります。

【A1-11】

1972年(S47年)の原子力長計ではクリプトンの研究開発についてはご指摘の通りALAP(as low as practicable)の概念が明確に示されています。1978年(S53年)長計ではICRP Pub. 26のALARAの概念が導入されたことを受けて、「環境に放出される放射性物質をできる限り少なくするために必要な技術の研究開発を推進」となり、1982年(S57年)長計からは「環境への放射能放出低減化」として位置付けられています。従って、クリプトン放出低減化はALARAの考え方に基いたものであり、合理的に達成可能な限り線量を低く抑えられる技術として今後とも開発を進めていく意義はあると考えています。

## 2. 研究開発目標

Q2-1

固定化技術開発において、「小型容器の3～4倍程度の容器(拡張型容器)」とした理由(小型容器の6～7倍となっている想定実用規模と、今回の拡張型容器を3～4倍と設定したこととの関係)を教えてください。

【A2-1】

固定化容器の大きさは、基本的にパイロットプラント規模の回収試験施設に対応する規模を考えています。現在使われているシリンダは1.2m<sup>3</sup>(使用済燃料10tU分)を貯蔵するものであるため、固定化容器もその容量に決定しました。その場合、固定化速度との関係から系列数は2～3系列で適切なものとなるため、3～4倍の規模を目指すことにしました。

商用規模では、系列数を増加させることも一つの方法と考えていま

すが、さらにある程度拡張するほうが系列数を抑えられることから一応の想定を6~7倍と設定しています。これまでの試験結果から、容器の拡張には技術課題が多くあるため、3~4倍のスケールアップ技術をベースにどの程度までの拡張が可能かを把握することが重要と考えています。

Q2-2

拡張型容器開発目標、固定化量  $1.2\text{m}^3$  (10tU処理相当) とは、拡張型容器1体当たりの量ですか。また、この固定化量と注入速度  $0.03\text{ m}^3/\text{日}$  ( $0.35\text{tU}/\text{日}$ 処理相当) の設定理由を教えてください。

【A2-2】

固定化量  $1.2\text{m}^3$  は、拡張型容器1体(基)あたりに固定化するクリプトンの量となります。固定化量の設定は、クリプトン施設のシリンダ1本に貯蔵できる量が  $1.2\text{m}^3$  であり、それを目標としています。注入速度は、固定化量の増加にともない容器が大型化され電極面積が小型容器の3~4倍となることから、注入速度もこれに比例するものと考え、小型容器の3~4倍を目標としました。

Q2-3

長期安定貯蔵とは、どの程度の貯蔵期間を目標としているのでしょうか。

【A2-3】

クリプトンの半減期は10.76年で、一定期間貯蔵し、減衰させて放出されることがシナリオとして考えられています。放射能が減衰する貯蔵期間が10分の1となるのが約35年、100分の1となるのが約70年であり、貯蔵期間は50年から長くとも100年とすることが海外の研究でも示されていることから、この程度の貯蔵期間が妥当と考えています。

Q2-4

研究開発の目的や課題設定には、どのようなブレークスルーがなされたのですか。

【A2-4】

回収技術については、プラント規模での開発であり、技術開発のチェックポイントとしては、施設建設、コールド試験によるプロセス改造、ホット試験による安全性の確認、開発運転による総合的な技術確認というステップを踏んで開発を進め、各ステップ毎に目標を設定し技術確立を図ってきました。

固定化技術については、ニッケル-イットリウム金属の組み合わせによるアモルファス金属への固定化、固定化容器構造及び放電制御方法の適正化による連続注入技術、実ガス注入固定化による安全性及び性能の確認がこれまでの重要な技術的ステップとなっています。

今後は、スケールアップ因子を把握し拡張型容器による性能確認が目標となります。

Q2-5

固定化容器について、小型容器でも実験室レベルというよりはかなり実用性に近いものと考えられます。これを3倍程度の拡張型容器まで実施しておく必要性和今実施するメリットは何ですか。その技術は大型化することにどのように寄与できるのですか。

【A2-5】

拡張型容器の試験実施のメリットとしては OHP7, OHP42 に示すスケールアップ因子の把握による容器の拡張技術の確立、OHP43 による東海再処理施設規模の施設に適用した場合の基数の減少および OHP45 に見られるコストの低減が挙げられます。これらの技術を既存の小型容器とのスケールアップ因子の比較が比較的容易に行えますし、回収クリプトン(Kr-85 数%)も保有しているため、ホット試験による性能確認も可能ですが、もし中断した後に再度開発という場合にはデータの散逸や回収クリプトンのホット試験を行うためにプラント規模の施設が新たに必要となり、開発コストの増大となります。

Q2-6

上記を踏まえると、回収の開発技術が終わったあと、クリプトンの固定化を今後とも進めるインセンティブは何ですか？

【A2-6】

クリプトン回収技術についてはパイロットプラント規模の開発が終了していますが、固定化技術については、初期の目標としての技術の成立性の確認で終了すると、回収技術と連動した固定化技術の提案ができない可能性があります。回収技術は東海再処理施設に適用した場合の技術情報の提供が可能ですが、固定化技術はそれよりスケールの小さい技術となり、設計情報としては回収技術と同レベルの技術情報が必要と考えています。

### 3. 研究開発計画

Q3-1

本技術開発のスタートは1972年の原子力長計によるとありますが、その後30年間にこの技術開発の進め方を見なおす機会は無かったのですか。

【A3-1】

本研究開発は、パイロットプラント規模の技術開発で、しかも世界で初めての施設であり、1972年の長計から11年後の1983年にプラントの建設終了、施設合格証取得後に開始した開発運転が1990年度からであるように開発にはある程度長い期間が必要となりました。この間、原子力需要予測が鈍化し、性急な実用化の必要はなくなったことから、コールド試験及びホット試験期間を長くとり必要な改善をその期間に実施し、貯蔵技術については、シリンダ貯蔵法よりもより安全でかつコスト低減が図れる固定化技術を適用することとするなど適切な見直しを逐次図ってきました。

Q3-2

小型容器の3~4倍の拡張型容器で固定化技術の実用化の確認のために十分ですか。

【A3-2】

小型容器の3~4倍の大きさの設定は、パイロットプラント規模の回収工程（東海再処理施設210tU/年）に対応可能な固定化容器の大きさであり、商用規模であればさらに数倍のスケールアップが望ましいと考えられます。但し、イオン注入による固定化のプラント規模での運転形態は、多数容器での並列運転が想定されているように固定化容器は大型化が難しいとされており、拡張型容器の開発では、スケールアップ因子の把握によりどの程度まで大型化が可能かを見極めることが重要となります。今後取り組む拡張型容器の開発により、スケールアップに関する技術が確認できれば、実用化の際の容器設計に技術を反映することが可能と考えています。

#### 4. 研究開発実施体制

Q4-1

実施体制は「化学処理第1課」のみのようなのですが、他の社内の部門等との連携や、技術委員会（社外専門家を含む）のような組織を用いた技術的妥当性の審議等も考えられますが、なぜこのようなことを考慮していないのでしょうか。技術的内容・開発の方向性等の妥当性に対してどのように客観性・妥当性を確保していくのでしょうか。

【A4-1】

現在の実施体制としては、開発を担当する組織を示していますが、本研究開発は国の安全研究として進めてきましたし、継続する固定化技術についてはその評価を受けることになり、学会発表や論文投稿等成果の公開を通じて、客観性・妥当性を確保していきたいと考えてい



ます。

なお、社内には、再処理センター及び事業所レベルで開発の方向性等について、審議する場が設けられており、これらを通じて評価を行いたいと考えています。

Q4-2

機構外との連携が特にないのは、なぜでしょうか。積極的に働きかける必要はないのでしょうか。

【A4-2】

現在、クリプトンの回収・固定化技術開発を行っている機関が他にないことが主な理由です。技術成果については、これまでも学会発表、論文投稿などを行ってきており、今後もこれらの情報を発信し他機関の有識者との意見交換ができるよう努めていきたいと考えています。特に、今後必要となるプラズマ、固化体物性などの技術課題、クリプトン放出の影響評価、ALARAの考えに基づく合理性の基準などについても社内外の専門家と連携を図っていきたいと考えています。

## 5. 研究開発成果

### ①得られた成果の内容

Q5-①-1

固定化技術において、クリプトンを打ち込まれた製品の品質の安定性（性質のバラ付き）は如何ですか。

【A5-①-1】

代表的な固化体中のクリプトン注入割合としては 10.8wt%を示していますが、他の5個の固化体のクリプトン注入割合は 11.2wt%±1.5wt%です。クリプトン注入割合として安定しており、品質のばらつきは小さいと考えています。

また、クリプトン放出率については、クリプトン放出率の近似曲線を5個の試料から求めており、100℃で近似曲線からのばらつきを示す  $R^2$  値（決定係数、0~1の値をとり、1に近いほど精度がよい）は 0.81、200℃では 0.85 となっており、クリプトン放出率のばらつきも少ない

と考えています。

なお、拡張型容器で形成される固化体の物性についても変化の有無を確認していく計画です。

Q5-①-2

上記に関連して、加熱による放出において、残存量はどうなりますか。

【A5-①-2】

熱重量分析では、1000℃まで固化体を加熱しており、クリプトンは700℃で急激に放出され、950℃付近から重量変化がなく、放出が終わったものと考えられます。また、温度をパラメータとした X 線回折では、400～700℃でアモルファス構造から Ni と Y 結晶、さらには Ni 結晶が現れ、700℃以上ではほとんど変化しないことがわかっています。(図 1 参照) 他の分析から、アモルファス合金構造の中でクリプトンガスは単体として存在することがわかっており、1000℃まで加熱すれば、クリプトンは残存しないものと考えられます。

Q5-①-3

このプロセスにおける 2 次廃棄物の評価を行っていますか。

【A5-①-3】

イオン注入法による固定化プロセスでは固定化した容器をそのまま貯蔵するため、2 次廃棄物は発生しません。注入運転中に発生するアーク放電による排出クリプトンガスもリサイクル可能なシステムとできるため、2 次廃棄物は発生しないと考えています。

Q5-①-4

Q5-①-3 に関連して、スケールアップとの関連はどうですか。

【A5-①-4】

スケールアップにおいても基本的にプロセスは変わらないため、2次廃棄物は発生しないと考えております。

Q5-①-5

研究が5年後に終了しても、研究棟の維持管理に年に1億円もかかるのは大きな予算の使い方だと思います。具体的にはどうなるのですか。

【A5-①-5】

研究終了後も固化体の貯蔵の継続など管理区域としての施設の維持管理が必要となります。本施設はパイロットプラント規模の施設であり、施設を管理する人員及び施設の換気、照明等の最低限度の管理に必要な電力費等ある程度の経費が必要となります。ただし、管理エリアの縮小、管理方法の見直しについて規制側と話し合い、合理化が図れるようにしてまいります。

Q5-①-6

固化体中のクリプトン放出のメカニズムはどのようなものですか。

【A5-①-6】

クリプトンはNi-Yのアモルファス合金中にnm(ナノメータ)オーダーの極微少な集合部を形成して閉じ込められていることがわかっています。温度の上昇に伴い400℃付近ではこの集合部が顕著に大きくなることが観察されています。さらに温度が上昇し700℃付近で急激に再放出が起きており、集合部の成長が放出に関連するものと考えています。また、XRD(X線回折)を用いた結晶構造解析では、400℃まではNiとYの合金の結晶が、400℃を超すとNi結晶が多く現われています。(図1参照)

これらのことから、温度上昇により合金の結晶化が進み、アモルファス相中のクリプトンが排除され微少な集合部が成長していき、最終的には、700℃を超えるとクリプトンが保持ができなくなり、固化体外に再放出されると考えられます。

Q5-①-7

従業員の被ばくはなかったのですか。

【A5-①-7】

20年間運転及びメンテナンスを通じて、有意に検出されるレベル(0.1mSv/3ヶ月)の被ばくはありませんでした。

Q5-①-8

固化体をメカニカルにつぶすとクリプトンが出てこないのですか。

【A5-①-8】

クリプトンはnmオーダーの集合体に封じ込められていると考えられ機械的な破碎では殆ど放出されません。

Q5-①-9

Kr-85のベータ線の反跳は問題とならないのですか。

【A5-①-9】

放射性クリプトン(Kr-85)の割合はクリプトン全体の約6%程度であり、Kr-85のベータ線0.687MeVでクリプトンの反跳エネルギーは約4.4eVで、金属中での影響は殆どないものと考えられます。

但し、固化体の安定性については、現在、ホット試験で作製した実固化体の長期の安定性試験を継続して実施しており、崩壊生成物のRb-85の影響とともに保持特性に影響を与えないかを総合的に評価していく計画です。

また、ベータ線のグロー放電への影響も考えられますが、これまでのホット試験で影響はないことを確認しています。

Q5-①-10

当初計画に対する達成度はどうですか。

【A5-①-10】

回収技術についてはクリプトンの回収率 90%以上というプラントの性能を実際のせん断及び溶解オフガスを用いた実証運転により確認しており、所期の技術目標は達成したと考えています。しかし、貯蔵技術については、当初のシリンダ貯蔵は実用上の課題があり、イオン注入固定化技術による貯蔵技術の実用性に目処をつける必要があり、固定化技術についてはまだ課題を残している状況です。

Q5-①-11

費用対効果に関してはどうですか。

【A5-①-11】

クリプトンの放出低減化を考える場合、回収、固定化貯蔵、長期貯蔵後の処分までの技術の見通しに基づく費用を算出し、それと放出低減化による被ばく低減化の効果とを比較評価する必要があると考えています。技術については、固定化貯蔵の技術的課題を解決した上で費用を算出する必要があると考えており、コスト低減に大きく寄与している拡張型容器の開発に取り組むとともにコスト試算についてもこれらの開発のなかで精度を高めて、費用対効果に反映したいと考えています。また、被ばく低減化の効果についても、その算出方法、ALARA の考えに基づく合理性の基準などに関し、世界的な考え方を調査していく必要があると考えています。

## ②実用化との関係

Q5-②-1

50億円の設備投資をして、毎年5億円の研究費を使い、20年間続けているようですが、なぜこんなに大きな費用がかかるのですか。

【A5-②-1】

クリプトン施設は、東海再処理工場 210 tU/年のプラントに対応するパイロットプラント規模の試験施設であり、延べ床面積約 4200m<sup>2</sup>、遮へいコンクリート壁が約 1mを要し、地上3階、地下1階の施設です。大型プロセス圧縮機5台等多くの機械、機器設備、溶接構造の機器・配管設備の他、独立した施設であるため換気、電気、放射線管理機器など設備の付帯設備として有しており、相応の建設費を必要としたものです。研究開発は施設の運転に基づく実証技術としての評価を実施してきたもので、プラントの運転費用として人件費（運転員20数名）、ガス費、電気費などのユーティリティ費、設備のメンテナンス費等の全ての経費が含まれています。本施設は、世界で初めての放射性ガスの回収施設であり、極低温プロセスで高圧ガスを取り扱うというこれまでの再処理施設にない特徴を有した施設であり、コールド試験、ホット試験を慎重に進めてきたもので、開発期間も長期を必要としました。

Q5-②-2

高燃焼度の場合のPuの燃焼でクリプトンは増えるのですか。

【A5-②-2】

燃焼度の増加に伴い、クリプトン (Kr-85) は比例に近い値で増加します。東海基準燃料をベースに燃焼度を増加させた場合の値は以下のとおりです。(計算コードはORIGEN-2)

燃焼度	:	Kr-85 生成量
28000MWD/t	:	$3.17 \times 10^{14}$ Bq/t
45000MWD/t	:	$4.49 \times 10^{14}$ Bq/t
70000MWD/t	:	$5.78 \times 10^{14}$ Bq/t

なお、FBR燃料でもクリプトンの発生量はあまり違いはありません。

Q5-②-3

回収・固定化技術は他の技術に役に立つのですか。

【A5-②-3】

回収プロセスについては、液化蒸留の前処理として炭酸ガス吸着工程を設ける必要があり、炭酸ガス(C-14)の除去にも応用できるものと考えられます。また、オフガスに多量に含まれているキセノンガスの有効利用も考えられます。

固定化プロセスは、不活性ガスであるクリプトンの特有の技術であり、炭酸ガス(C-14)、放射性ヨウ素のガスの固定化技術として化学反応を組み入れた気相反応プロセスへの研究の展開も考えられます。

Q5-②-4

日本原燃はどのように考えているのですか。

【A5-②-4】

日本原燃は、2002年春の原子力学会において、「再処理施設から放出されるクリプトン回収の意義と方法」の題目で発表を行っております。概要は以下のとおりです。

六ヶ所再処理工場においては、クリプトンは十分な希釈・拡散効果を有する主排気筒からの放出により、クリプトンによる一般公衆の実効線量は約0.0053mSv/年と評価しており、クリプトン放出による人体への影響は考えられない。また、国連機関である世界気象機構等の報告から、クリプトンによる気象影響(雷の多発、温暖化等)は考えられない。

回収技術については、液化蒸留法は水素の使用が必要であり、開発レベルは低いが無機吸着材による吸着法について小規模コールド試験を実施し、クリプトン回収が可能であることを確認した。固定化技術については、イオン注入法は課題が残されており、また、固定化以降の技術は特に検討されておらず、総合的な技術は確立されていない。

クリプトンを回収・固定化するに当たっては、一時的に高濃縮クリプトンガスを施設内に蓄積する必要があること等から、僅かな線量を低減する技術としての妥当性に乏しく、現状においては十分な希釈・

拡散効果を有する主排気筒放出が適切と判断される。

Q5-②-5

固定化システムから貯蔵システムまでの固定化の総合化を如何に考えますか。

【A5-②-5】

イオン注入プロセスは容器の大きさに左右されますが、プロセスは、固定化容器数基をユニット化しそれを数系列として運転することが概念化されています。(図2参照)

貯蔵方式は、注入容器をそのままピット方式で多段積とすることを考えており、貯蔵後は、過熱して大気中に放出する方法が、処分場を必要としないことや金属のリサイクルの面で好ましいと考えられています。

基本的にはこのような総合的な概念がありますが、今後、拡張型容器の開発により、適切な容器の大きさ、形状が把握できることから、固定化システム及び貯蔵システムをより具体化できるものと考えており、これに基づくコスト評価も課題の1つと考えています。

Q5-②-6

ALARA の考え方については、その合理性の評価が難しい課題です。今後5年間の開発を行い固定化の実用性が評価可能になる段階で、クリプトンの放出低減化による被ばく線量低減の効果とコストとの関係性を評価していくことはできませんか。cost-benefit の評価を実際の問題としてとらえ、合理的な判断を行うことは非常に難しいので、その題材とすることも開発成果の反映として考えてはどうですか。

【A5-②-6】

ALARA の考え方については、異論のないところですが、その基準については、明確にはなっていないものと言えます。低減化に必要な費用算出については適用技術が明らかになればその精度を上げることができると考えています。一方、線量低減の効果については、極低線量の取り扱い、線量影響範囲の設定など評価手法そのものを幅広く調査する必要があり、合理的な技術については社会的な要因も係わってくる



ものと考えており、難しい課題と考えられます。

ご提案のとおり、cost-benefit の評価の題材として具体的に取り組むことも一つの開発成果として考えられるため、今後の開発を進める中で、関連する部署とも連携して検討していきたいと考えています。

### ③得られた成果の普及、公開

Q5-③-4

現在の原子力発電の予測では、5年後に技術の目処がついた段階でも、当面はクリプトン回収、固定の技術の反映先は具体的にはないと考えられます。この技術は、他の廃棄物の特定核種の（例えば、C-14 や I-129 等）回収或いは貯蔵技術に反映できるところはないのですか。

【A5-③-4】

気体廃棄物の回収の観点から、クリプトンの回収プロセスでは、放射性ヨウ素及び炭酸ガス（C-14）をそれぞれ吸着除去しており、これらの核種の回収技術に応用できると考えられます。ヨウ素については、乾式の吸着除去が既に一般的ですが、炭酸ガス（C-14）については、回収後の貯蔵技術と組み合わせれば、総合的なオフガス処理プロセスへの発展も考えられます。

固定化技術については、プラズマを利用した気相処理技術であり、炭酸ガス（C-14）、ヨウ素などの新しい固定化技術として応用範囲が広がることも考えられます。

## 6. 今後の展開

Q6-1

5年後にこの研究は終了となるようですが、これまでに積み重ねてきた成果はどこに活かされるのですか。研究者がいなくなると世界で唯一の研究が無駄にならないようにするために、どのような対策を考えていますか。

【A6-1】

本研究開発は、原子力発電及び再処理量の増加に備え、クリプトンの放出を抑える技術を選択肢として整えておくために実施しているもので、成果の反映時期は今後の原子力利用の状況に応じ変化するものと考えています。研究開発については、今後5年間で回収及び固定化の両方の技術に一応の目処がつくと考えており、将来の技術反映に備えて、開発してきた成果については、技術報告書、運転データなど各種データベース、運転実績を踏まえた運転要領書等の運転技術を図書として整理、集大成し、必要となる時に利用可能なようにしておく計画です。

Q6-2

原子力長計にある「2010年頃から開始される六ヶ所再処理工場に続く再処理工場の検討」の位置付けがよくわからないので説明してください。

【A6-2】

2000年(H12年)の原子力長計では2010年頃に「六ヶ所再処理工場に続く再処理工場の検討」を行うとしており、その工場については高燃焼度燃料、軽水炉使用済MOX燃料や高速増殖炉の使用済燃料の再処理等や今後の研究開発等を総合的に勘案することが示されています。この中には、放出放射能の低減化の議論も含まれると考えており、その議論のためには、これまでのクリプトンの回収・固定化技術をまとめおく必要があると考えています。

## 7. その他

Q7-1

フランスはどう考えているのですか。

【A7-1】

1970年代には回収技術の基礎的な試験を実施していた時期もありますが、その後は開発の進展などの情報は特になく、現在では開発は行われていません。クリプトンの放出については、現状では全量放出で問題ないと考えているようで、将来に対する備えとして研究を進めているという情報も特にありません。

Q7-2

キセノンの分離をゼオライトを用いた PSA で行っているようですが、6%の Kr-85 のために 94%の非 RI のクリプトンをイオン注入していることになり、効率的ではありません。同位体濃縮をやってみてはどうですか。

【A7-2】

初期には検討を行ったことはありますが、同位体濃縮には有効な技術がなくコストもかかるとの考えから特にその技術に取り組んでいません。技術の進展により有望となるものが有るかなどは今後も注視していきたいと考えます。

Q7-3

最近の海外の機関等での検討や研究協力等があまり述べられていないと思います。

【A7-3】

アメリカ、ドイツは1980年代で再処理を中止したことに伴い、クリプトン回収・固定化技術の開発を終了し、イギリスは実用レベルでの利用は当面ないことから一定の開発プログラムを終え現在は開発を実

施していません。フランスについては、固定化技術についての研究報告はなく、回収技術についてのみ過去基礎的な試験を実施していた時期もありますが、現在では、クリプトンについては全量放出で問題ないとの認識から、研究は実施していないものと考えられます。

以上のことから、最近の他の機関での検討や研究協力に関する情報はほとんどない状況にあります。

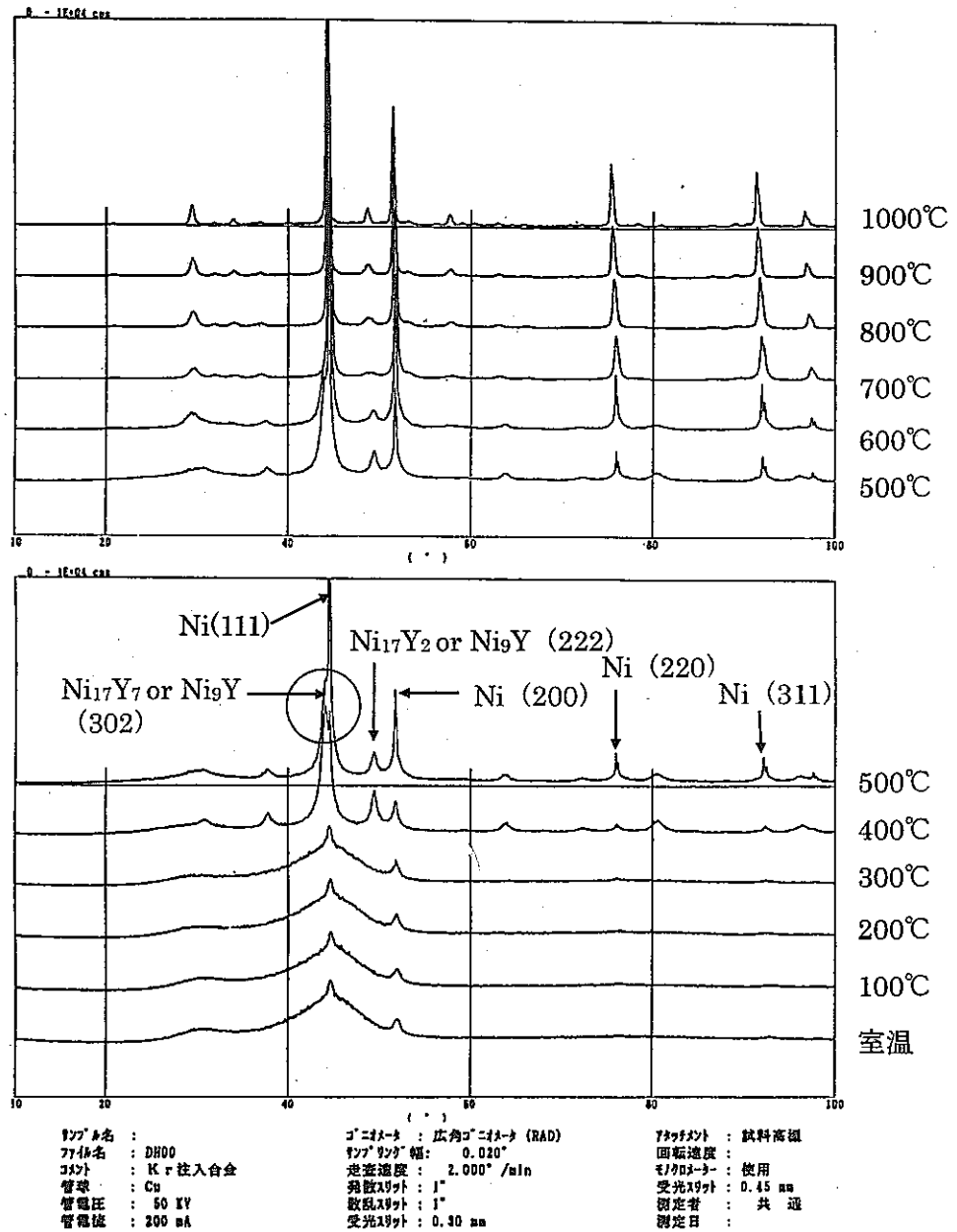
Q7-4

現在貯蔵しているクリプトンの処理方法の違いによる貯蔵管理のケーススタディを行い最適な方法を検討すること。

【A7-4】

別紙にケーススタディ結果を示しました。

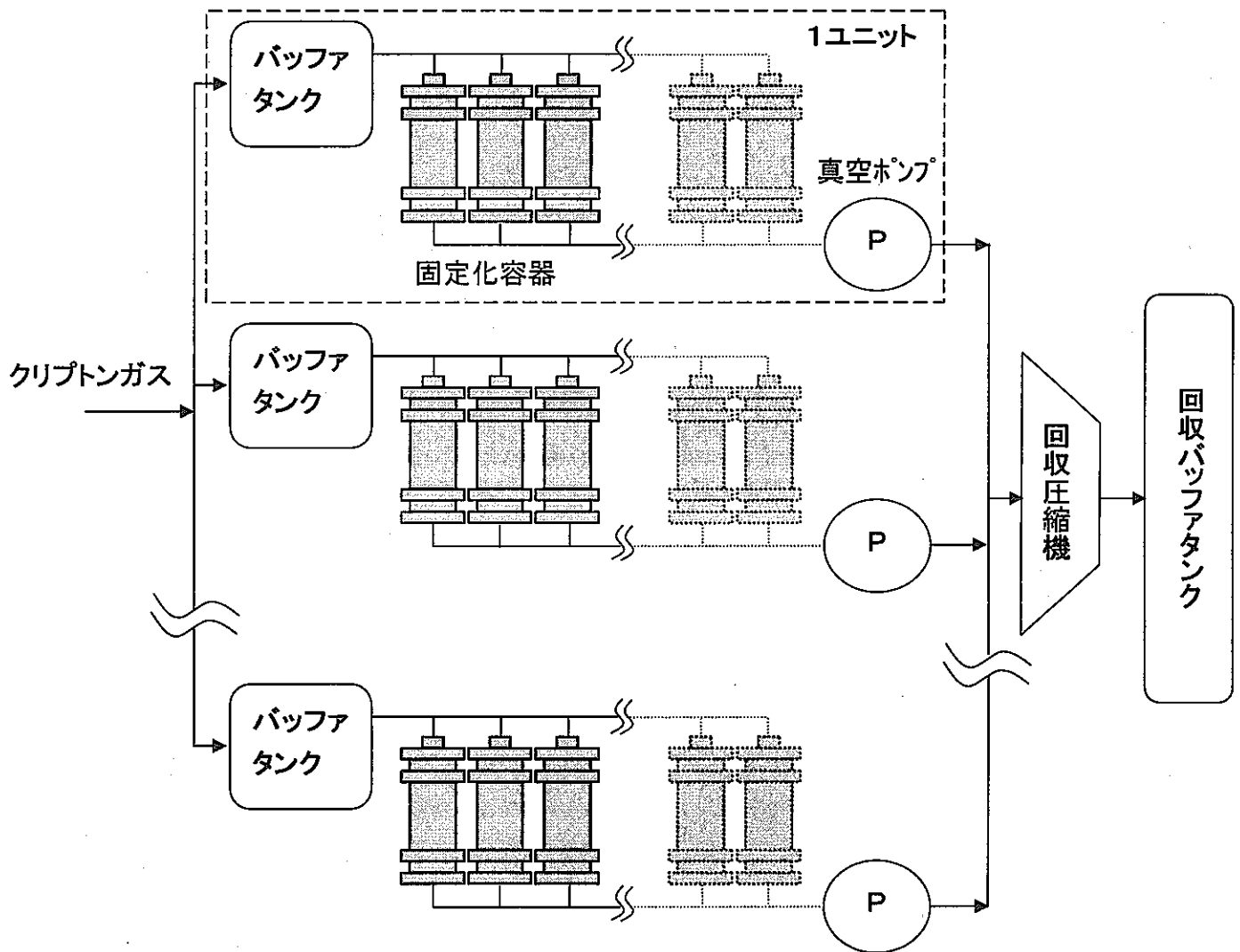
拡張型容器により貯蔵管理を行うことが最も適切と考えられます。



### 高温 X 線回折(XRD)測定結果

- ・ 室温～300°Cまで変化は見られない。
- ・ 400°Cから Ni-Y 合金の回折線が現れる。
- ・ 500～700°Cにかけて徐々に Ni の回折線が支配的となり、Ni-Y 合金の回折線が減少する。
- ・ 700°Cを超えるとほとんど変化しない。

図 1 クリプトン注入合金の各温度における結晶変化



- イオン注入固定化プラントを設置する場合、容器の大きさから複数基によるユニット化と複数系列化が一般的に想定されている。

図2 イオン注入固定化プラントのイメージ

## 課題評価（クリプトン回収・固定化技術開発）の質問対応 「貯蔵クリプトンの処理方法の違いによる貯蔵管理のケーススタディ」

### 1. 概要

クリプトン固定化の拡張型容器のホット試験では、2基の容器を使用し容器性能の確認を行うとともに、これによって貯蔵クリプトン（シリンダ2本分、約2 m<sup>3</sup>、放射エネルギー約2×10<sup>6</sup>GBq）を全量固定化処理する計画で、その後、固定化したクリプトンの貯蔵データの収集と固化体の貯蔵管理を継続していくこととしている。

本計画に基づく貯蔵管理と、その他の処理方法をケーススタディし、各ケースの利点、欠点、コスト等を比較した。

他のシリンダ内貯蔵クリプトンの処理方法としては、以下の3とおりとした。

- 小型容器によりガスを固定化し貯蔵する方法。
- 固定化試験をせず、貯蔵シリンダによる貯蔵を継続する方法。
- 固定化試験をせず、貯蔵クリプトンを放出する方法。

### 2. ケーススタディの結果

ケーススタディ結果を別表に示す。

ケース2の小型容器による貯蔵は、小型容器の製作費、新たな貯蔵エリアの確保が必要で、拡張型容器による貯蔵に比べて不利となる。

ケース3のシリンダによる貯蔵の継続は、設備の管理範囲が広く、また、ガス漏洩への対応が必要で、設備維持費及び人件費が増大する。さらに高圧ガスの検査への対応が必要となり、貯蔵管理費が最も高くなることから長期貯蔵には最も不利となる。

ケース4の貯蔵クリプトンの放出については、設置申請の許認可の課題、放出低減化の努力の要請がある地元との関係から、早急に放出することは困難と考えられる。

以上のことから、拡張型容器の貯蔵が可能なように当初より設計されている現在のホット試験設備において、ケース1のように拡張型容器の性能確認までを実施し、その後、固化体貯蔵による貯蔵管理を実施することが最も適切と考える。

### 3. その他

固化体としたクリプトンについては、継続的に固化体の安定性を評価するため、容器内のガスをサンプルし再放出量の定量的な評価を実施するとともに、長期貯蔵及び処分の評価として、10年程度経過毎に加熱によりガスを放出させ固化体の状態を評価し、最終的には固化体を残さないようにすることを考えている。

別表 貯蔵クリプトンの処理方法の違いによる貯蔵管理のケーススタディ

	貯蔵方法	内容	利点	欠点	貯蔵管理コスト		総合評価
					費用	備考	
ケース1	拡張型容器による固定化貯蔵	拡張型容器(1m <sup>3</sup> /基)2基により、技術実証を行うとともに、シリンダ内のガスを全量固定化する。	<ul style="list-style-type: none"> <li>拡張型容器の技術実証が可能</li> <li>貯蔵ガスが無くなり、貯蔵管理が容易になる。</li> <li>貯蔵の管理エリアが最小限(固定化試験セルのみ)となる。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>拡張型容器が必要</li> </ul>	固定化費 約1億円 維持費 7000万円/年	<ul style="list-style-type: none"> <li>拡張型容器2基の製作費 約1億円</li> <li>人件費5名:4000万円/年</li> <li>設備維持、電力費等3000万円/年</li> </ul>	開発終了後の施設の管理範囲が最小となり、開発費を含めても他より経費が上回るとは考えられない。技術的評価が可能であり、最良の選択と考える。
ケース2	小型容器による固定化貯蔵	小型容器(0.3m <sup>3</sup> /基)7基により、シリンダ内のガスを全量固定化する。	<ul style="list-style-type: none"> <li>貯蔵ガスが無くなり、貯蔵管理が容易になる。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>小型容器が必要</li> <li>現在の貯蔵エリアは残り4基分しかなく、他のセルを改造して貯蔵エリアの確保が必要。</li> <li>管理するエリアが増加し維持費がケース1に比較し多少増加する。</li> </ul>	固定化費 約3億円 維持費 8000万円/年	<ul style="list-style-type: none"> <li>小型容器7基の製作費は 約2億円</li> <li>貯蔵エリアの改造に1億円以上は必要。(既存のキセノン貯蔵セルの改造)</li> <li>人件費5名:4000万円/年</li> <li>設備維持、電力費等4000万円/年程度</li> </ul>	ガス貯蔵でなくなる分、長期の貯蔵管理の負担は軽減できるが、貯蔵エリアの確保のための改造、容器製作費、維持費の面で、拡張型容器より遥かにコスト高となる。技術データも得られないことから、採用する理由はない。
ケース3	シリンダ貯蔵の継続	固定化試験をせず、シリンダ貯蔵を継続する。	将来、固定化技術開発に利用することが可能	<ul style="list-style-type: none"> <li>検査に備え、シリンダ貯蔵セル2セルの管理等管理する範囲が増加する。</li> <li>万一のリークに備え、回収システム(真空ポンプ、圧縮機、貯槽)の管理が必要</li> <li>対応する人員確保が必要</li> </ul>	維持費 1億4000万円/年	<ul style="list-style-type: none"> <li>人件費10名:8000万円/年</li> <li>設備維持、電力費等6000万円/年</li> <li>検査のためにシリンダの設置工事(約3000万円)が必要。(最も頻度が高い場合は3年に1回)</li> </ul>	貯蔵管理のために管理する設備、エリアが最も多く、リークに対する対応のため常駐者が必要であり、最もコスト高となる。検査の際には多額の費用がかかるため、最も好ましくない。
ケース4	貯蔵クリプトンの放出	固定化試験せず、シリンダ内のガスを一旦貯槽に移して、コントロールしながら大気へ放出する。	<ul style="list-style-type: none"> <li>貯蔵管理する固化体が少なく、後の処分の負担が軽減される。(既に固定化した小型容器が5基あるため貯蔵管理の程度はケース1と変わらない)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>設置申請に、シリンダに回収したクリプトンの放出の考えは無く、放出にあたって協議、何等の措置が必要となる。</li> <li>地元(県、村)が容易に受け入れることは難しいと考えられる。</li> </ul>	放出迄 1億4000万円/年 放出後 7000万円/年	<ul style="list-style-type: none"> <li>人件費5名:4000万円/年</li> <li>設備維持、電力費等3000万円/年</li> </ul>	施設閉鎖計画を立て、放出を申請することも考えられるが、地元からは放出低減化の努力の要請に応えるかたちで、開発を進めてきており、拡張型容器のホット試験を止めて放出することの理解は得られないと考えられる。

\*シリンダには回収クリプトンガス約2m<sup>3</sup>(シリンダ2本分)、放射能量として約2×10<sup>6</sup>GBqがある。



## 参 考 資 料 5

再処理施設におけるクリプトン回収・固定化技術開発  
(OHP資料)



廃棄物処理処分課題評価委員会

再処理施設における  
クリプトン回収・固定化技術開発  
(中間評価)

2003年3月

核燃料サイクル開発機構

## ☆研究開発課題評価の位置付け

### 〈開発の進捗状況〉

1970年代から約30年間Krの放出低減化技術開発を実施

- 回収技術開発についてはパイロットプラント規模での技術開発を終了
- 固定化技術開発については小規模であるもののホット試験を終了し、技術の成立性を確認して一定の技術レベルに達した段階

### 〈サイクル機構の中長期事業計画〉

使用済燃料の再処理の過程で分離される放射性Krの回収・固定化技術開発については、2001年度迄の成果を見極めた上で、その後の技術の実証等の計画を示していく。

## ☆クリプトン低減化技術開発の経緯

- 1970年代の世界的な環境論争を背景に、原子力長計（1972年）において、「環境に悪影響を与えないように捕捉困難な核種Kr-85の研究開発の必要性」を明示。
- サイクル機構は、再処理技術開発の当事者であり、国の機関として将来の原子力利用の増加に備えるために、クリプトン放出低減化技術開発に取り組むこととした。
- クリプトン回収は液化蒸留法を採用し、東海再処理施設にパイロットプラント規模の試験施設『クリプトン回収技術開発施設』を建設し開発を実施。
- 貯蔵技術は、シリンダ貯蔵技術を適用し、長期間の貯蔵には、ガス状のクリプトンを固定化することが必要と考え、金属中等へ封入する固定化技術（イオン注入固定化法）の開発に取り組む。

## 課題設定の背景

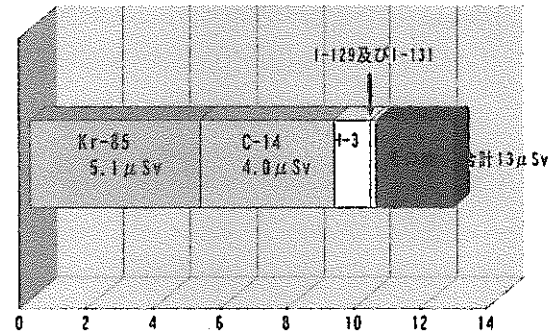
## ☆東海再処理施設における放射性Kr影響評価

東海再処理施設の主要核種（気体）  
の年間放出量

核種	年間放出量 (GBq)
Kr - 85	$8.9 \times 10^7$
H - 3	$5.6 \times 10^5$
C-14	$5.1 \times 10^3$
I-129	1.7
I-131	$1.6 \times 10$
その他	$1.3 \times 10^2$

Kr-85はせん断及び溶解工程の  
オフガスとして、90mの主排気筒  
を通して大気中に放出

最大放出量に基づく実効線量  
評価結果



- ▶ Kr-85の影響は $5.1 \mu\text{Sv}$ で全体の約4割を占める。
- ▶ 気体廃棄物全体でも $13 \mu\text{Sv}$ であり、公衆の年間限度 $1\text{mSv/年}$ の70分の1である。
- ▶ 東海再処理施設のKr-85放出実績に基づく評価は  $0.9 \mu\text{Sv/年}$ 以下で十分に低い値である。

将来の原子力利用の増加に備え、技術開発を実施

## 評価範囲

## 〈評価を受ける範囲〉

- ▶ クリプトン回収・固定化技術開発の成果
  - ◇ クリプトン回収技術の成果
  - ◇ クリプトン固定化技術の成果
- ▶ 今後5年間のクリプトン固定化技術の試験計画  
(本5カ年で開発を終える予定)

## 研究開発の目的

ALARAの考え方に基づき、再処理施設からの放射性核種の環境への放出を抑えるための技術開発として実施  
(状況)

- 回収技術はプラント規模で技術に目処をつけた
- 固定化技術は、実用性の向上が残された課題

- クリプトン固定化技術に残されている課題に取り組み固定化技術を実用性のある技術とする。
- クリプトンの回収・固定化を一連の技術として集大成し、放出低減化の検討が求められた場合の技術評価に反映。

## ☆回収技術開発の課題設定

クリプトン回収プロセス(液化蒸留法)は、低減化の目標のクリプトン回収率90%以上を達成し、クリプトン精製純度90%以上等、設計性能を満足しており、所期の技術目標を達成

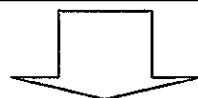


クリプトン施設の開発運転は終了し、

- 技術情報(運転データ・保守データの整理、運転要領書の整備等)の集大成
- 固定化試験に必要な設備及びホット施設の維持管理

## ☆固定化技術開発の課題設定

小型容器を用いたホットガスの固定化による技術の成立性は確認したものの、容器の固定化性能（固定化速度、固定化量）が低く実用レベルにない。



- ▶ 固定化性能に影響する容器形状及びスケールアップ因子を明らかにし容器の拡張技術を確立する。
- ▶ 固定化性能を小型容器の3~4倍とした拡張型容器を製作し放射性クリプトンの固定化により技術を確認する。

## ☆クリプトン回収・固定化技術に係る開発経緯

技術開発	実施項目	期間	1970	75	80	85	90	95	2000
Kr回収	基礎・工学試験	1972~1979	■						
	設計・建設	1974~1983		■					
	コールド試験	1983~1987				■			
	ホット試験・開発運転	1988~2001					■		
Kr固定化	基礎試験	1977~1988		■					
	コールド試験	1990~2001					■		
	ホット試験	2000~2001							■

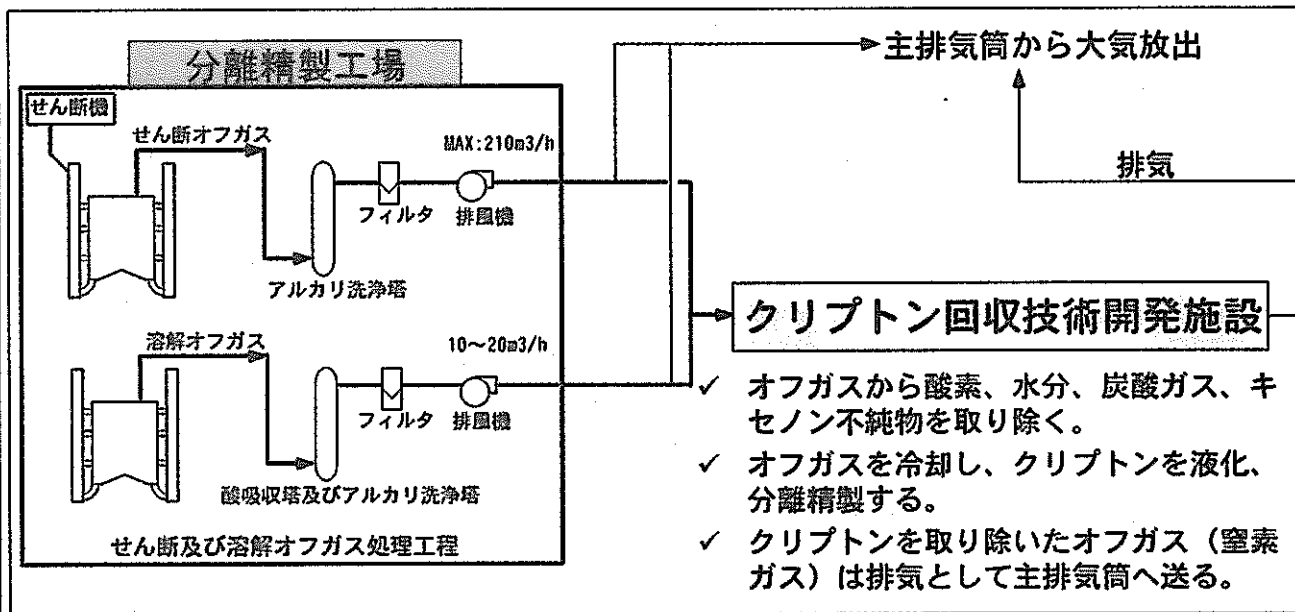
### ○回収技術

約20年の試験運転、開発運転実績により、回収技術を確立

### ○固定化技術

小型容器を用いたホット試験で、技術の成立性確認

### ☆工程概要（再処理工程からのオフガス受け入れ）



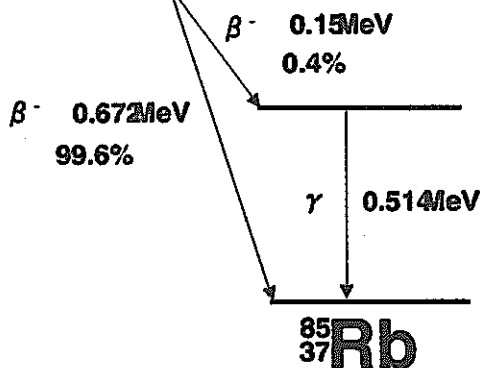
- ✓ オフガスから酸素、水分、炭酸ガス、キセノン不純物を取り除く。
- ✓ オフガスを冷却し、クリプトンを液化、分離精製する。
- ✓ クリプトンを取り除いたオフガス（窒素ガス）は排気として主排気筒へ送る。

- 分離精製工場ではオフガスを洗浄し、主排気筒（90m）から放出する。
- クリプトン施設とオフガス処理工程は配管で接続されており、ルートを切り替え試験ガスを受け入れる。

### ☆オフガス中のKr濃度と関連物性

1. 東海基準燃料中のクリプトン
  - ✓ クリプトン発生量：92NL/tU
  - ✓ クリプトン-85割合：6.4%
  - ✓ 放射能量： $3.2 \times 10^5$ GBq/tU
2. オフガス量
  - ✓ せん断オフガス：200Nm<sup>3</sup>/h、5h/日
  - ✓ 溶解オフガス：10Nm<sup>3</sup>/h、24h/日  
(受け入れ総量：1240Nm<sup>3</sup>/日)
3. オフガス中のクリプトン濃度
  - ✓ クリプトン放射性濃度：52ppm（平均）
  - ✓ 放射能濃度：0.18MBq/cm<sup>3</sup>（平均）

<sup>85</sup><sub>36</sub>Kr [半減期:10.76年]



放射性クリプトン-85が崩壊しルビジウム-85生成

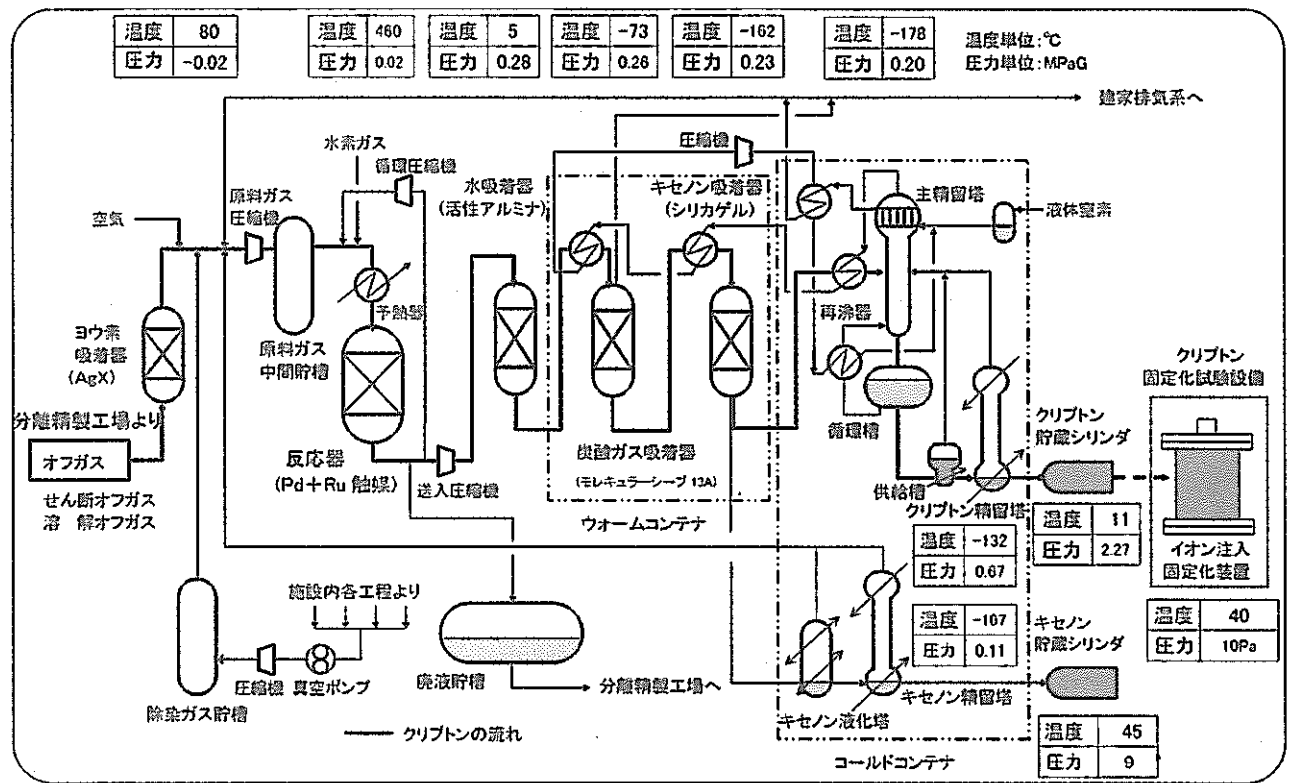
放射性クリプトンの崩壊図

オフガス成分の沸点比較

元素	N <sub>2</sub>	Ar	Kr	O <sub>2</sub>	Xe	CO <sub>2</sub>
沸点 (°C)	-196	-186	-153	-183	-107	-79

クリプトン施設は、沸点の差を利用する液化蒸留法によりクリプトンを分離する

☆クリプトン回収技術開発施設の工程概要 液化蒸留法による回収



☆クリプトン施設の運転実績

運転	期間	回数	実施内容
コールド試験運転	1983 ~ 1987	11回	<ul style="list-style-type: none"> <li>各工程毎の性能確認、定常時・変動時のプロセス特性の操作特性の把握</li> <li>運転要領の決定、プロセスの改造・改良</li> </ul>
ホット試験運転	1988 ~ 1990	5回	<ul style="list-style-type: none"> <li>せん断、溶解オフガスを各 19 バッチ(計 <math>7.15 \times 10^{14}</math> Bq)受入れて放射性ガスの閉じ込め性能など安全性の確認</li> <li>分離精製工場との連動運転、操作性の確認</li> <li>使用前検査受検、合格証の取得</li> </ul>
開発運転	1991 ~ 2001	11回	<ul style="list-style-type: none"> <li>せん断オフガスを 89 バッチ、溶解オフガスを 136 バッチ(計 <math>8.58 \times 10^{15}</math> Bq)受入れて、安定・安全運転の実証</li> <li>精留塔除染係数の測定など核種挙動の把握</li> <li>実ガス処理による Kr 回収の実証、副産物の Xe 回収の実証</li> <li>運転条件の最適化検討、運転の自動化と合理化、設備の改造・改良、運転・保守・コストデータの蓄積</li> </ul>



☆クリプトン施設の不純物除去工程の性能実績

工 程		項 目	設計値	実績値
ヨウ素除去		ヨウ素除染係数	200以上	220以上
脱酸素処理		反応器出口O <sub>2</sub> 濃度	1ppm以下	0.6ppm以下
吸着 処理	H <sub>2</sub> O除去	H <sub>2</sub> O吸着器出口H <sub>2</sub> O濃度	1ppm以下	0.6ppm以下
	CO <sub>2</sub> 除去	CO <sub>2</sub> 吸着器出口CO <sub>2</sub> 濃度	1ppm以下	0.1ppm以下
	Xe除去	Xe吸着器出口Xe濃度	1ppm以下	0.1ppm以下
Kr精留		主精留塔の除染係数	1,000以上	1,000以上
		循環槽の酸素濃度	125ppm以下	50ppm以下
		Kr精留塔の酸素濃度	1.3%以下	50ppm以下
Kr回収		回収Kr純度	90%以上	92%以上
Xe回収		回収Xe純度	95%以上	99%以上

☆放射性クリプトンガスの回収実績

区分	回数	運転 期間	受入パッチ数		受入量 ※1	リサイクル 供給量※2	供給量	放出量	回収量 ※3	回収率
			COG	DOG						
			[パッチ]	[パッチ]						
試験 運転	5	283	19	19	7.15 × 10 <sup>14</sup>	5.25 × 10 <sup>14</sup>	1.24 × 10 <sup>15</sup>	1.46 × 10 <sup>13</sup>	1.23 × 10 <sup>15</sup>	97.1 ~ 99.7
開発 運転	11	734	89	136	8.58 × 10 <sup>15</sup>	1.98 × 10 <sup>16</sup>	2.84 × 10 <sup>16</sup>	2.39 × 10 <sup>14</sup>	2.82 × 10 <sup>16</sup>	97.5 ~ 99.9
合計	16	1017	108	155	9.30 × 10 <sup>15</sup>	2.03 × 10 <sup>16</sup>				

※1 分離精製工場からの<sup>85</sup>Krの受入量

※2 クリプトン施設に回収し保有している<sup>85</sup>Krをリサイクル

※3 回収量は供給放射エネルギーから放出放射エネルギーを引いた値

### ☆クリプトン施設の回収クリプトンの成分

NO	回収ガスの成分				
	Kr (%)	N <sub>2</sub> (%)	Ar (%)	Xe (ppm)	O <sub>2</sub> (ppm)
開発運転4	92.1	5.90	2.03	39.4	19.7
開発運転5	93.4	0.40	6.27	113	22.6
開発運転6	95.0	1.41	3.58	44.6	42.8

### ☆クリプトン施設の主要なユーティリティー使用量

項目	用途	使用量	コスト
液体窒素	精留機器の冷却・ パージ、圧縮機の シール等	280t/月	1100万円/月
水素	反応器に供給し、酸 素・窒素酸化物・炭 化水素を除去	25000Nm <sup>3</sup> /月	400万円/月
電力	圧縮機、換気プロア、 ポンプ等の回転機器 の駆動、ヒータ、照 明等	40万kWh/月	500万円/月
合計	—	—	2000万円/月

注) 1ヶ月間の連続運転時

☆クリプトン施設のコスト評価

	項目	費用（億円）
施設建設費※1	貯蔵庫（3年分）	5
	プロセス	45
	合計	50
年間操業費※2	人件費	2
	メンテナンス費	1.5
	ユーティリティー費	1.7
	合計	5.2

1) 1978年契約実績、建屋総床面積4200m<sup>2</sup>

2) 実績を基に年間200日の稼動を想定し算出

☆クリプトン回収技術開発の成果（まとめ）

- プロセス性能の確認、特性の把握
- 安全性、性能、効率性向上の改造
- 操作方法の改善、運転方法を確立
- 検査、保守方法の改善・確立
- 運転コスト、保全データの蓄積



実用化評価のため技術情報提供が可能な状況  
 ⇒クリプトン回収プロセス(液化蒸留法)は  
 所期の技術目標を達成

### ☆キセノン精製技術開発の目的と意義

＜背景＞

- ▶再処理ウラニウムに大量に含まれ(純分量0.75m<sup>3</sup>/tU)、Kr施設で回収可能
- ▶200tU/年規模の再処理施設では約150m<sup>3</sup>のキセノン量、これは国内使用量の10~15%に匹敵
- ▶キセノンは照明や宇宙産業のイオンエンジン等の需要があり、医療用やプラズマディスプレイ等に潜在需要が見込まれる。
- ▶キセノンは空気中では0.1ppmと低濃度であり、希少価値があり、値段は高価(1000円/L程度)

＜目的＞

これらの一般産業に有効利用できるように、Kr施設で回収したキセノンについて、不純物のクリプトン(約100ppm)をさらに除去する精製技術を開発する。

＜意義＞

キセノン精製技術が確立できるとKr回収が選択された場合、キセノン売却による運転コストの低減化が可能となることと同時に一般産業への大きな寄与が期待できる。

### ☆オフガス中のキセノンガスの回収・有効利用の技術開発の成果

＜キセノン精製の目標＞

✓回収キセノンの放射能濃度を0.1Ba/cm<sub>3</sub>まで下げることを目指す。

＜精製方法の選定＞

- ✓システムがコンパクトで濃度調整を必要とせず、エネルギーコストの低い圧カスイング吸着法(PSA)を選定
- ✓耐放射線性から無機吸着材のゼオライトを選定
- ✓吸着試験によりKrとXeの分離性能のよいキセノン選択型Ca-X型ゼオライトを選定

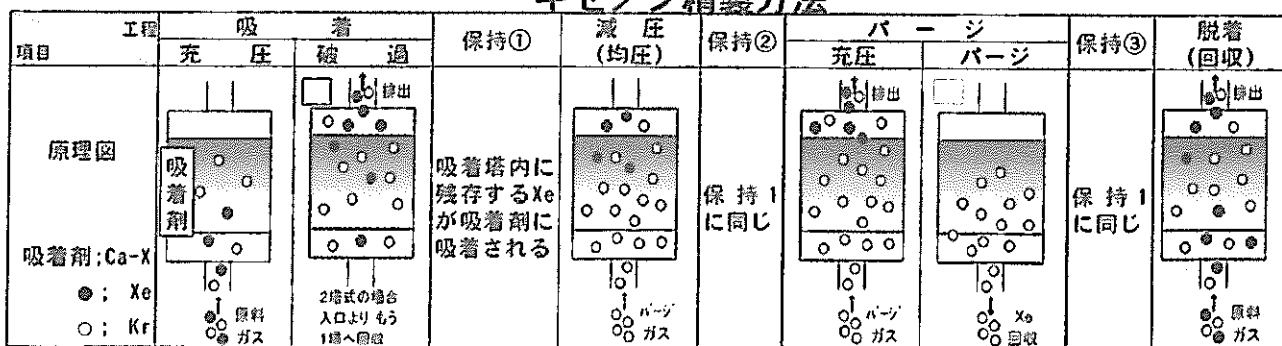
＜RI試験＞

✓Kr-85を用いた吸着試験で精製キセノン中の放射能濃度0.1Ba/cm<sub>3</sub>以下となることを確認

＜Xe精製システム検討＞

✓吸着塔3段によるシステムを設計した。

#### キセノン精製方法



## ☆高圧シリンダ貯蔵法による貯蔵実績

### ○シリンダ仕様

- ✓寸法：φ216.3mm×L1753.4mm（肉厚12.7mm）
- ✓シリンダ容積：0.048m<sup>3</sup>
- ✓材質：SUS316L
- ✓クリプトンガス封入圧力（最大）：2.3MPa
- ✓クリプトンガス封入量：シリンダ1本当たり約1m<sup>3</sup>（燃料10tU処理相当）



### ○実績

- ✓約15年間ホットガス最大約5m<sup>3</sup>を貯蔵中

### ○問題点（高圧ガス保安法対応）

- ✓配管類保安検査：セル内の配管類に対して定期的に検査が必要。セル内立入には回収クリプトンのシリンダ間の移し換えが必要
- ✓シリンダ容器再検査：容器は3年間有効であるが、3年を超えて新たに充填する場合は再検査が必要。事実上、シリンダの持ち出しは困難であり、シリンダの新規製作・溶接接続工事が必要

大量のガスを貯蔵するには非効率的であり、実用化困難

## ☆固定化技術開発の位置付け

### ○Kr施設建設当時（1980年頃）

Kr貯蔵するための実用技術の唯一の方法として高圧シリンダ貯蔵法を採用し、長期的には安定化が必要として固定化技術開発に取り組む。



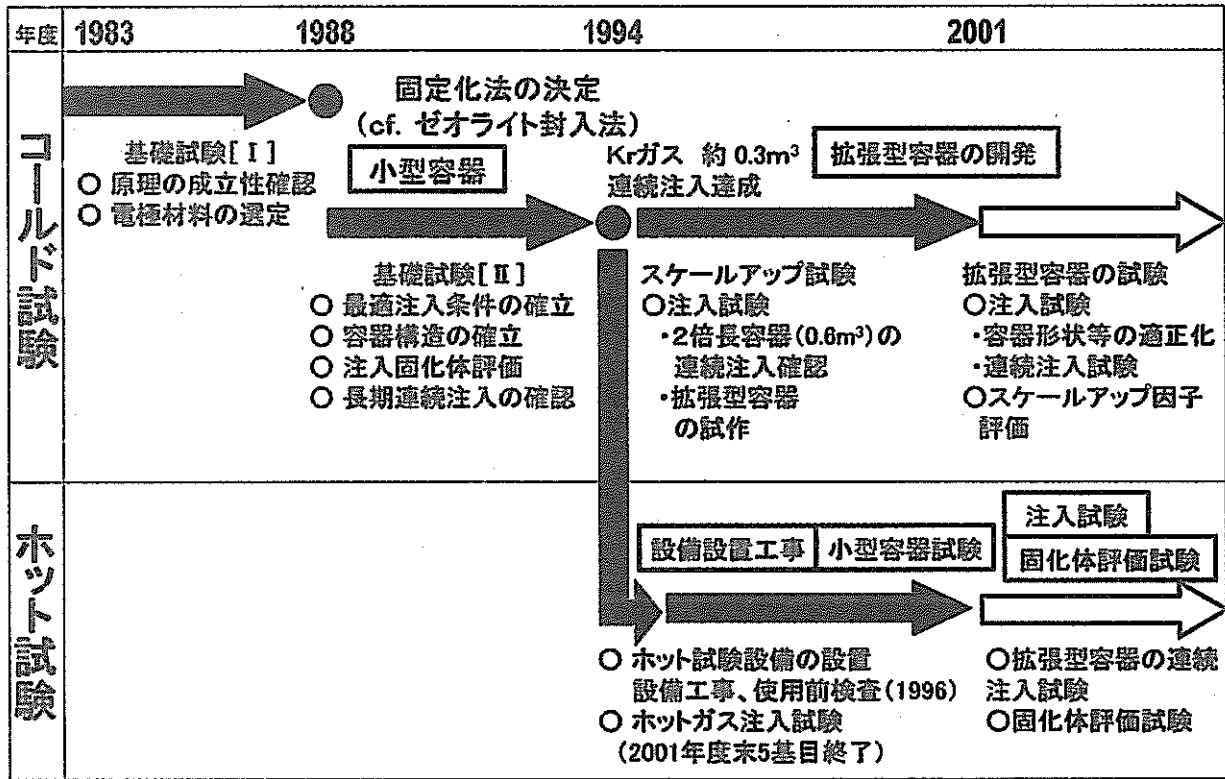
シリンダ貯蔵は高圧ガス検査のため、貯蔵Krのシリンダ間の移し替えが必要となり、再充填にはシリンダの定期的な再検査を行う必要が生じ、合理性が著しく低下。



### ○現 状

Kr回収を実用化するにはシリンダ貯蔵は非効率的であり、従来長期貯蔵技術開発として取り組んできた固定化技術を確立することが必要不可欠となった。

☆クリプトン固定化(イオン注入法)技術開発経緯



☆固定化技術の選択（イオン注入法とゼオライト法の比較）

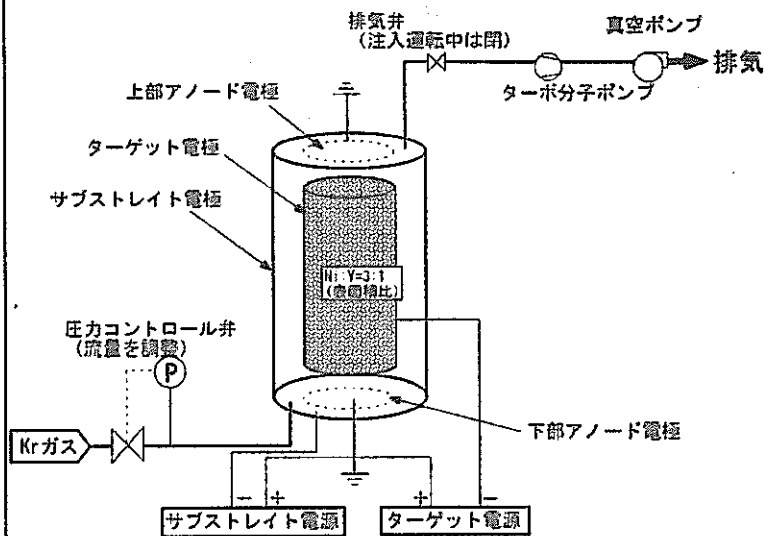
項目	イオン注入法	ゼオライト法との優劣	ゼオライト法
概要	高電圧の電極間でグロー放電によりイオン化されたKrイオンを電界加速し、電極に衝突させ電極金属をスパッタする。スパッタされた金属原子は対向する電極上に付着するが、このときKrイオンは負圧の電極上にトラップされ形成される金属中に固定化する方法。		ゼオライトの結晶上の空洞に高温高圧のKrを活性化拡散効果により封入すると同時に、含まれる水分による高温高圧下の水熱反応により、結晶構造を非晶質化しゼオライトの開口を塞ぐことにより、Krを安定に閉じ込め固定化する方法。
運転操作性	プロセスは簡素であり自動運転技術が確立すれば操作はさらに簡素。処理量に合わせ多系統連続運転が必要で運転制御の信頼性が重要。	△	処理量が大きく運転に余裕がある。操作工程は多い。バッチ処理プロセスで操作性に裕度がある。
保守点検性	装置構成が簡素であり保守・検査が容易。高圧ガス保安法の規制なし。	○	安全装置、耐圧機器の保守管理が煩雑。高圧ガス保安法に基づき検査が必要。
貯蔵	現シリンダ貯蔵法の2倍程度の貯蔵密度となる可能性がある。 注入装置がそのまま貯蔵容器となるが、装置形状が限定される。	○	現シリンダ貯蔵法と同程度の貯蔵密度となる。容器形状がある程度フレキシブル。
安全性	負圧プロセスでインベントリが少なく潜在的な危険が少ない。	◎	高温・高圧(500℃、100MPa)操作でのインベントリが大。 シール機構、リーク時のバックアップ装置等の安全対策が必要。

◎：優位、○：やや優位、△：優位差なし

海外の研究機関によるクリプトン (Kr-85) 貯蔵法の評価

機関	イギリス Harwell	アメリカ PNL	ドイツ KfK
クリプトン貯蔵法	シリンダでの貯蔵 (1) <sup>85</sup> Krガスのままシリンダ貯蔵は望ましくない。 (シリンダ、バルブの破損および腐食による放射性ガスの急激な放出の危険性有り) (2) 貯蔵シリンダは特別設計の建造物中に保管し定期的検査が必要である。(貯蔵コスト増加要因)	(1) シリンダ破損により急激な <sup>85</sup> Krガス放出の危険性が高い。 (2) 100年間にわたり連続的に技術的な監視が必要となり、コスト高となる。	(1) 多量の放射性ガスのインベントリによる危険性が高い。 (2) 急激なガス放出の危険性が高い。 (3) 25年以上の貯蔵実績から多数の要求事項を提案。 ① 100年以上にわたり定期的検査をしない。 ② 崩壊熱除去でシリンダの昇温によるガス圧上昇防止。 ③ 耐食性を要し200℃までの耐熱性がある等
	固定化による貯蔵 1. A型ゼオライト中に固定化する方法 2. ガラス中に固定化する方法 3. イオン注入固定化法 (1) 貯蔵・運搬・廃棄に関し安全性が高い。 (2) 生成物の熱的安定性が良好である。 (3) アクシデントによる <sup>85</sup> Krガスの放出が少ない (4) 耐食性良好 (5) <sup>85</sup> Kr含有廃棄体の管理費低減の可能性ある。	1. ゼオライトまたはモレキュラーシープ中にKrを封入 2. イオン注入固定法 (1) より低圧での動作である。 (2) 事故による <sup>85</sup> Krガス放出は極めて少ない。 (3) 核分裂生成物(娘核種)のRbを包蔵できる。 (4) 熱的に安定なKrガス内蔵の固定が生成できる。	1. ゼオライト封入固定化法 2. シリケート固定化法、ソーダライト固定化法 3. イオン注入固定化法 (1) 大気圧以下および通常の温度で連続的に動作する。 (2) 小さい表面積でコンパクトであるが大容量の <sup>85</sup> Krの固定ができる。 (3) 材料の最適化により熱的・化学的・力学的に安定で照射に対しても安定にできる。
提案	イオン注入固定化法が優位	イオン注入固定化法が優位	イオン注入固定化法が優位

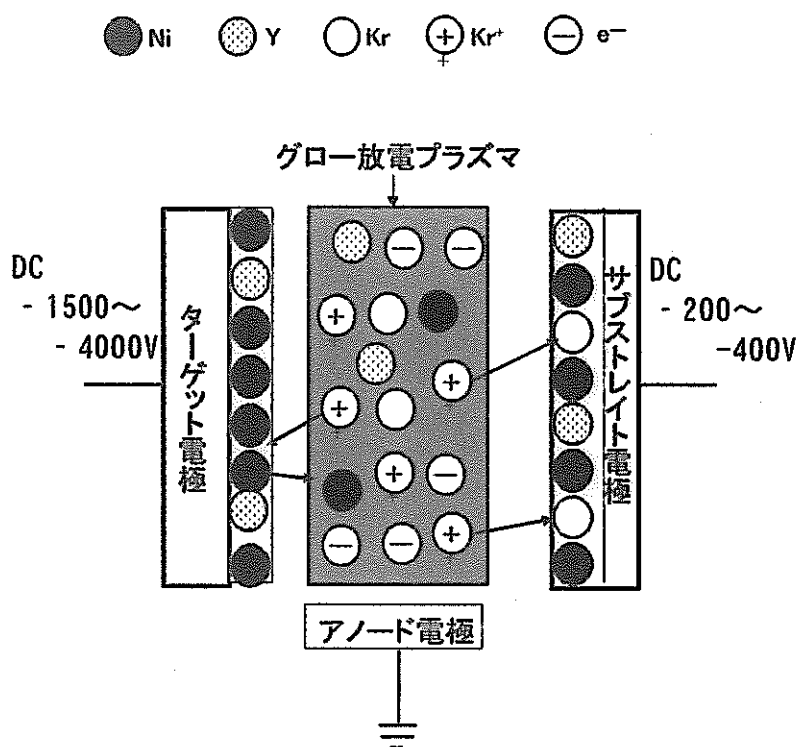
☆イオン注入固定化のシステム構成



- ① 注入容器を真空に排気する
- ② ターゲット/サブストレイト電極に電圧を印加する。
- ③ 容器内に数Pa程度のガスを供給し、放電を発生させる。
- ④ 電圧を調整し注入状態とする。
- ⑤ Krが固定化され容器内のガス圧力が低下すると圧力を一定に保つため、Krガスが自動的に供給される。
- ⑥ 注入速度を上げる場合は、ガス圧力及び電圧を上昇させ調整する。

[システム構成]

### ☆イオン注入固定化の注入原理

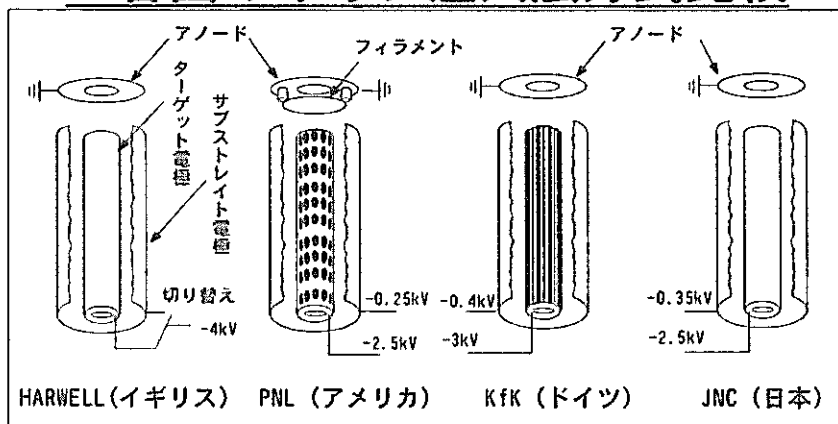


(グロー放電プラズマ)  
 ①真空中に近い状態 (~10Pa) 程度でKrを供給する。  
 ②電圧を加えるとグロー放電が発生し、Krの一部は+イオンと電子に分かれるプラズマを形成する。  
 ③両電極表面に近いKrイオンは各々のマイナス電極に向かう  
 ④電子はアノード電極に収集される

(ターゲット電極)  
 ①グロー放電で発生したKrイオンが電界加速され電極表面に衝突する  
 ②電極金属原子（ニッケル、イットリウム）は運動エネルギーを受け取り、電極表面から弾き出（スパッタ）される。  
 ③Krイオンは電子を受け取り中性原子に戻りグロー領域で再びイオンとなる。

(サブストレイト電極)  
 ①ターゲット電極でスパッタされたニッケル、イットリウム原子が飛来し、電極表面でアモルファス合金を形成する。  
 ②グロー放電で発生したKrイオンが電界加速（弱）し、表面に到達する。  
 ③ニッケル-イットリウムの新たな合金層にKrが取り込まれKrを含む合金層が形成される。なお、Krイオンは電子を受け取り原子状態で固定化される

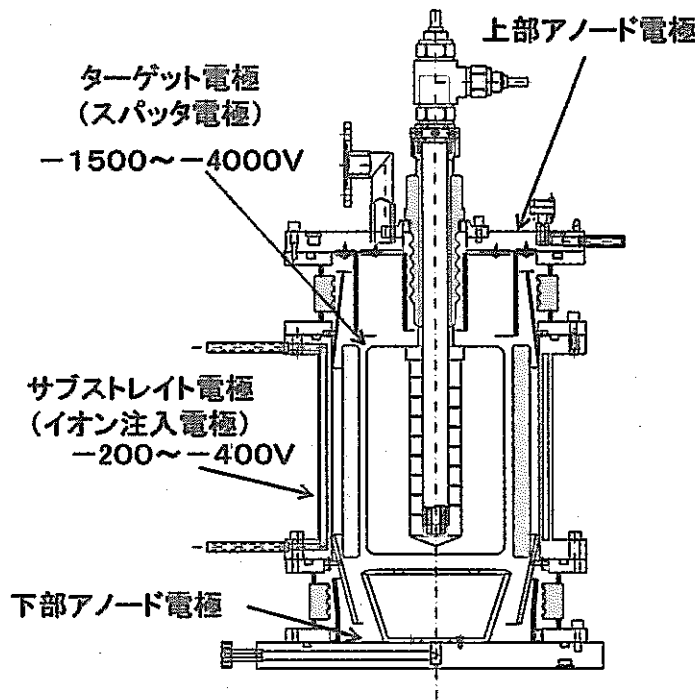
### ☆各国のイオン注入法方式比較



実施機関	HARWELL	PNL	KfK	JNC
方式	自励グロー放電 パルス切替方式	熱陰極グロー放電 定常印加方式	自励グロー放電 定常印加方式	自励グロー放電 定常印加方式
注入金属	結晶 Ni、Cu	アモルファス Cu-Y、Ni-La	アモルファス Cu-Zr (Fe-Zr)	アモルファス Ni-Y
Kr注入速度	低	高	中	中
Kr注入効率	低	高	高	高
拡張性	易	難	やや易	やや易

※注入速度、注入効率はJNCを基準



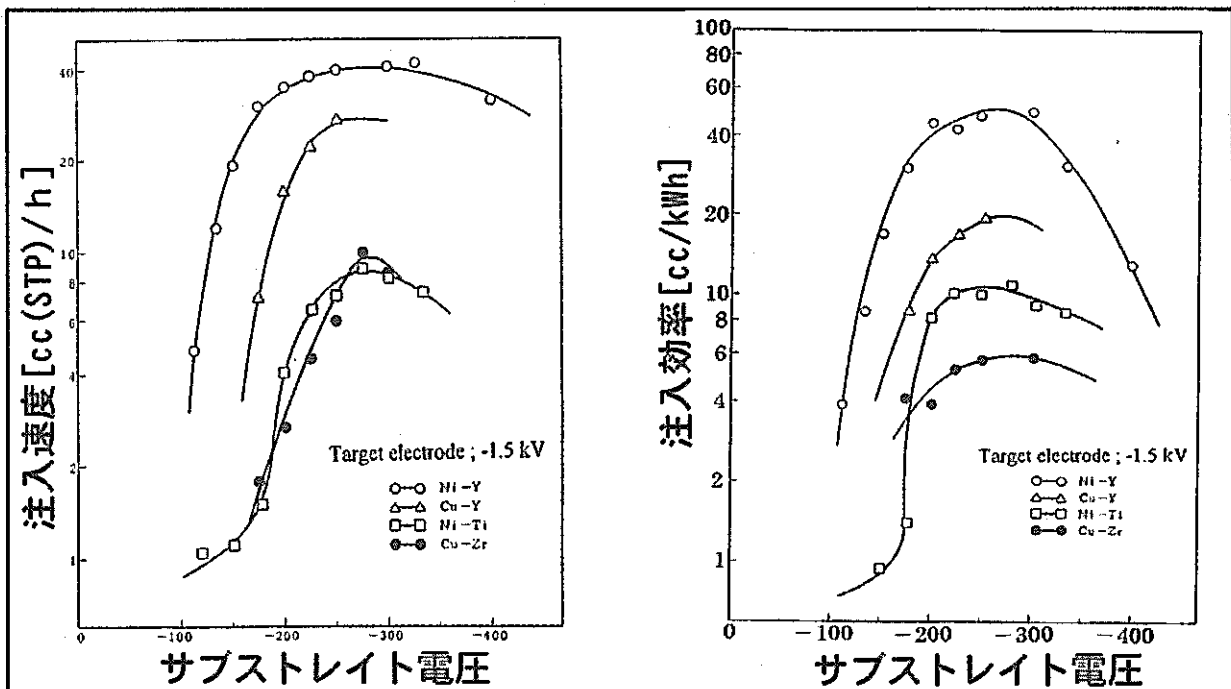


容器形状

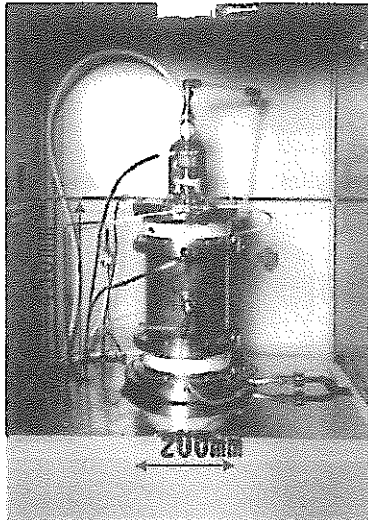
項目		試験容器の仕様
ターゲット電極	形状	120mmφ × 200mmH
	面積	0.0754m <sup>2</sup>
	材質	ニッケル、イットリウム
サブストレイト電極	形状	180mmφ × 230mmH
	面積	0.130m <sup>2</sup>
	材質	SUS304
電極間の距離		30mm

イオン注入容器の構造 (コールド小型容器)

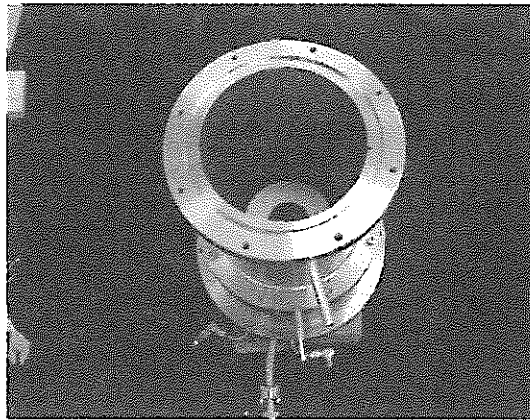
☆ターゲット材料選定 (コールド試験結果)



アモルファス合金を形成しやすく、Krを多く含むことのできる金属元素の組み合わせ4種類を比較した。その結果ターゲット電極材料は、注入効率及び注入速度の高いNi-Y合金とした。

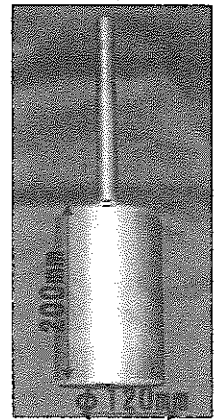


(1)小型容器



材質：SUS304

(2)サブストレイト電極

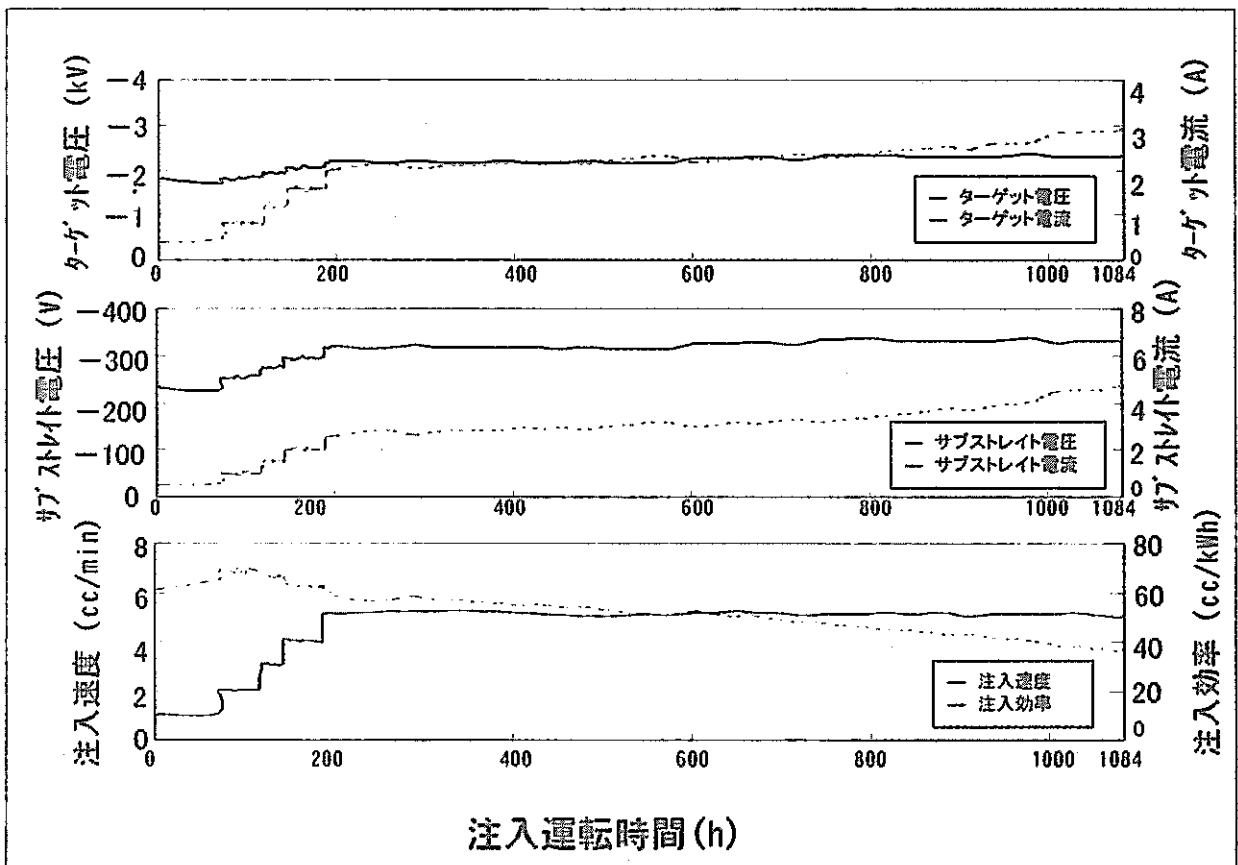


材質：Ni-Y

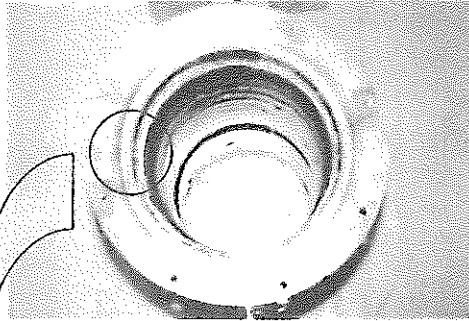
(3)ターゲット電極

☆イオン注入固定化容器（コールド小型容器）

☆小型容器の長期連続運転（コールド試験結果）

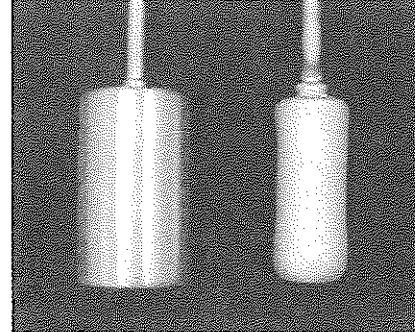


< サブストレイト電極 >



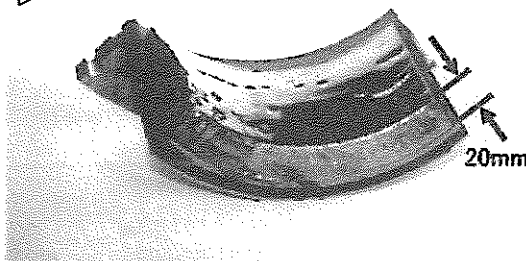
電極表面にクリプトンを封入した固化体が形成

< ターゲット電極 >



電極がスパッタにより消耗

< イオン注入後の各電極の状況 >



サブストレイト電極上に形成したクリプトン固化体

クリプトン固化体中のクリプトン注入密度及び組成

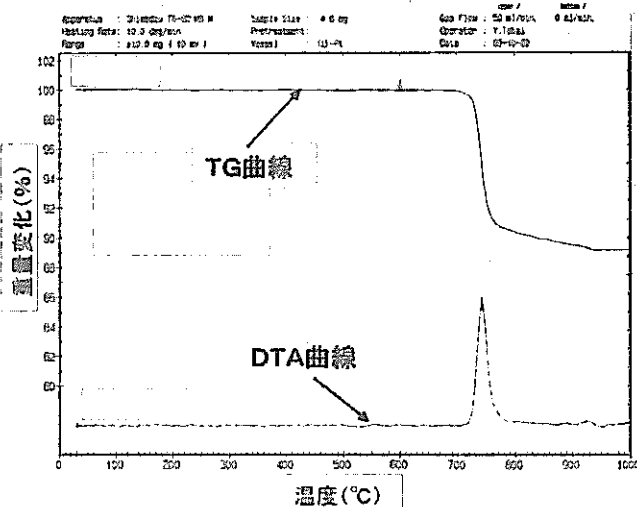
Kr 注入密度		組 成			
重量 当り	29.8 Ncc/g	元素	Kr	Ni	Y
体積 当り	207 Ncc/cm <sup>3</sup>	重量%	10.8	76.3	12.9
比重	6.93	Atom%	8.6	82.2	9.2

固化体の結晶構造はアモルファス(非晶質)

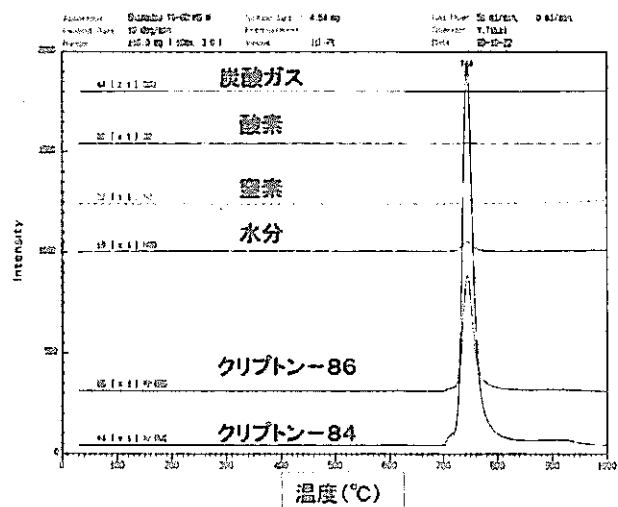
☆クリプトン固化体及び組成 (コールド試験結果)

固定化クリプトンの熱安定性評価[TG-MASS]

ヘリウム雰囲気、温度RT~1000°C、昇温速度10.0°C/minの条件で測定



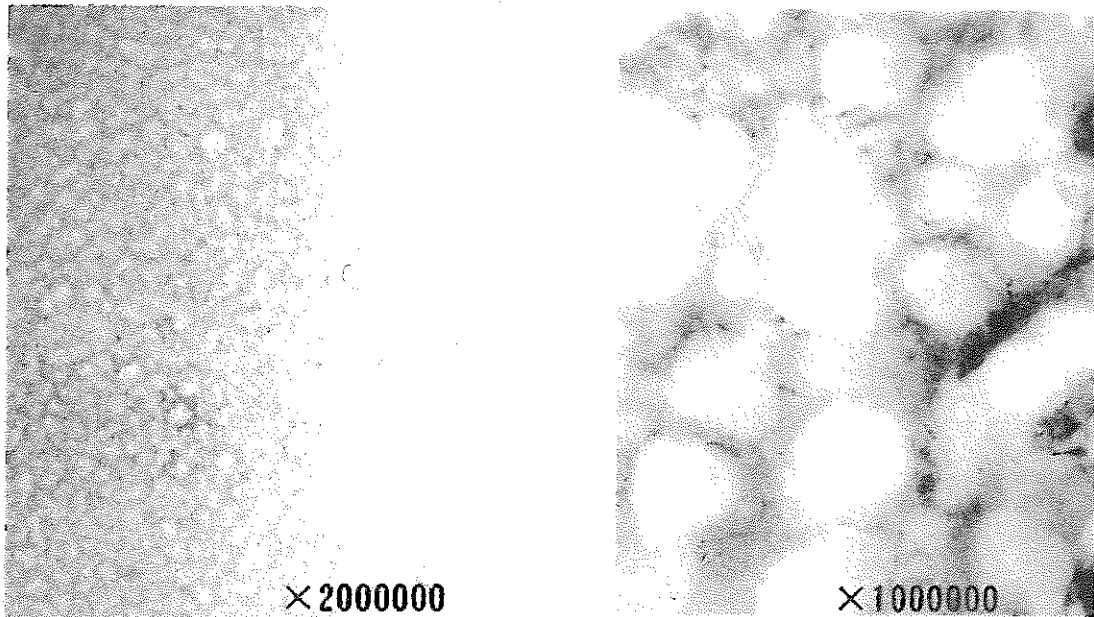
TG測定結果



MASS分析結果

クリプトン注入合金中のクリプトンは、約700°Cで急激に放出される。その重量変化は、約10%である。

☆Ni-Y合金中に固定化されたKrの観察結果  
(透過型電子顕微鏡 (TEM)による観察)

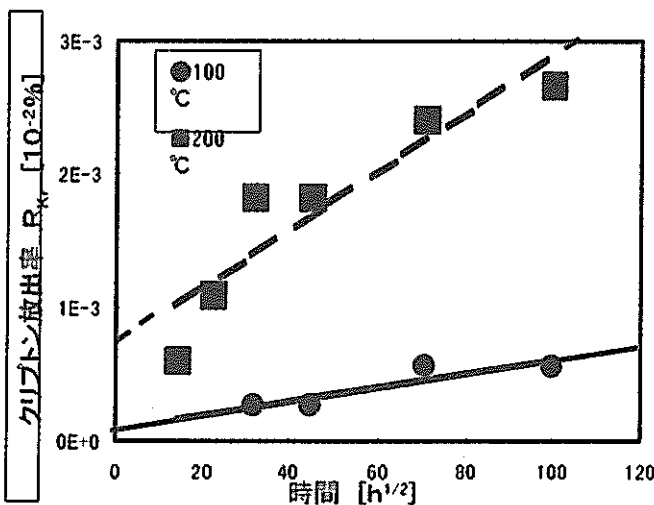


×2000000  
常温における非晶相

×1000000  
400°C、1万時間加熱保持した試料の非晶相

✓Krは数μmの集合部に閉じ込められた状態で固定されている。  
✓加熱によりKr集合部が成長する。

長期貯蔵時の安定性評価  
(100、200°Cで加熱保持し、Krの放出率を測定)



放出率を求める式

$$R_{Kr} = 6.0 \times 10^{-6} t^{1/2} \quad [100^\circ\text{C}]$$

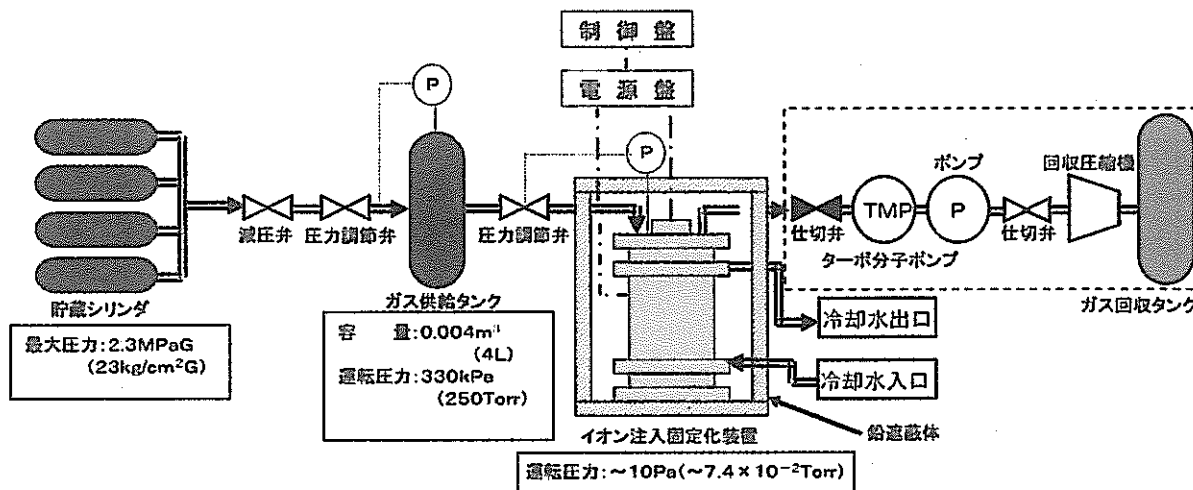
$$R_{Kr} = 2.6 \times 10^{-5} t^{1/2} \quad [200^\circ\text{C}]$$

R<sub>Kr</sub>: 放出率[%], t: 時間[h]

100°Cで100年間貯蔵した場合、放出率は、0.006%  
200°Cでは、0.03%と評価され、長期貯蔵には十分安定である。  
(貯蔵時の崩壊熱による温度上昇は、約100°C)

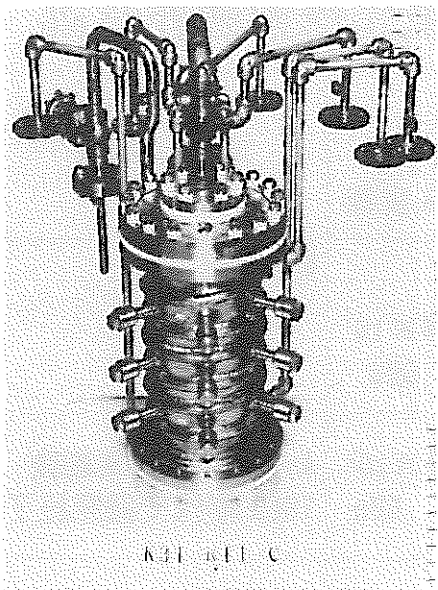
### ☆ホット試験設備概要図

1996年にクリプトン施設の一部を改造し、小規模な試験設備を設置

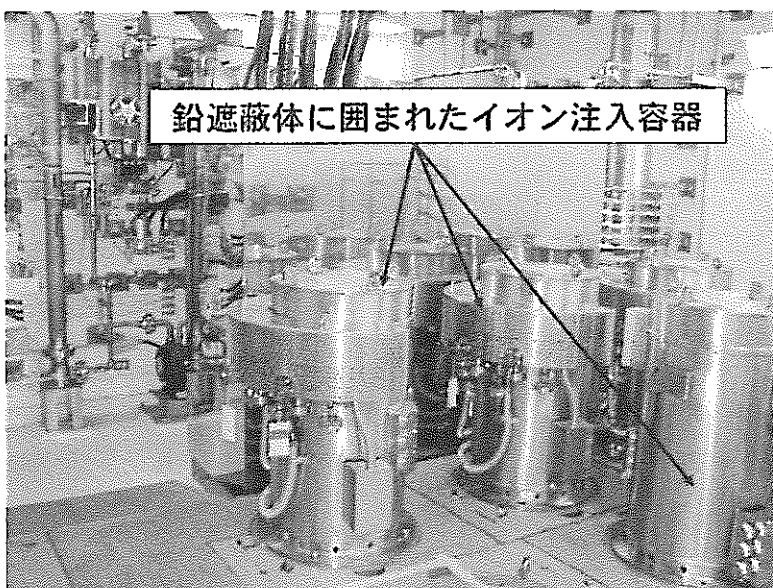


- 回収クリプトン(貯蔵シリンダ最大2.3MPaG)を330kPa程度に減圧する。
- さらに、10Pa程度のイオン注入容器に供給、固定化する。

### ☆ホット試験設備



イオン注入容器



鉛遮蔽体に囲まれたイオン注入容器

➤2000～2002年に小型容器5基によるホット試験を実施

### ☆固定化ホット試験結果

試験	内容
特性試験	<ul style="list-style-type: none"> <li>・電圧値の最適化</li> <li>・連続運転処理を確認（約 3000 GBqを固定化）</li> <li>・コールド試験との比較を行い、同等の性能であることを確認</li> </ul>
長期連続試験1 （希釈ガス）	回収Krガスを約5倍の天然Krガスで希釈したガスを用いて連続注入運転を達成 注入量 : 約 0.30 m <sup>3</sup> (約3.4 × 10 <sup>4</sup> GBq) 運転時間 : 約1,300 時間
長期連続試験2 （回収Krガス）	回収したKrガスで連続注入運転を達成 注入量 : 約 0.27 m <sup>3</sup> (約1.5 × 10 <sup>5</sup> GBq) 運転時間 : 約1,100 時間
長期連続試験3 （回収Krガス）	長期連続試験2より放射能濃度の濃い回収Krガスを用いた長期連続試験 注入量 : 約0.28 m <sup>3</sup> (約2.9 × 10 <sup>5</sup> GBq) 運転時間 : 約1,100 時間

設備概要： 小型容器6基、拡張型容器3基の貯蔵が可能

### ☆世界のクリプトンイオン注入固定化技術開発状況

実施機関	固化金属材料	開発実績			開発の現状
		装置の注入面積	コールド注入実績	ホット注入実績	
JNC （日本）	非晶質 Ni-Y	コールド装置：1300cm <sup>2</sup> （試作：3600cm <sup>2</sup> ） ホット装置：1300cm <sup>2</sup>	約 300 L /1000h	2.9 × 10 <sup>5</sup> GBq	開発中
Harwell （英国）	結晶 Ni, Cu	コールド装置：7850cm <sup>2</sup> ホット装置：1300cm <sup>2</sup>	約 300L /1000h	3.7 × 10 <sup>3</sup> GBq	ホット少量試験実施後 1980年代で開発終了
PNL （米国）	非晶質 Cu-Y Ni-La	コールド装置：500cm <sup>2</sup> ホット装置：500cm <sup>2</sup>	約 10L /24h	5.6 × 10 <sup>3</sup> GBq	実験室規模の試験で 1980年代で開発終了
KfK （ドイツ）	非晶質 Cu-Zr Fe-Zr	コールド装置：410cm <sup>2</sup>	約 110L /700h	なし	再処理中止に伴い 1980年代で開発終了

### ☆固定化技術開発の実績（まとめ）

#### コールド試験

- 約1000時間でKr0.3m<sup>3</sup>（3tU処理に相当）の連続注入を達成
- 注入固化体（Ni:Y:Kr=8:1:1）の物性把握、長期安定性を確認
- スケールアップの基礎的試験

#### ホット試験

- Kr施設を改造し、回収Krガスの固定化試験設備を設置
- 設備の閉じ込め性能などの安全性を確認
- 小型容器による回収Krガスの連続注入固定化（3回）を達成

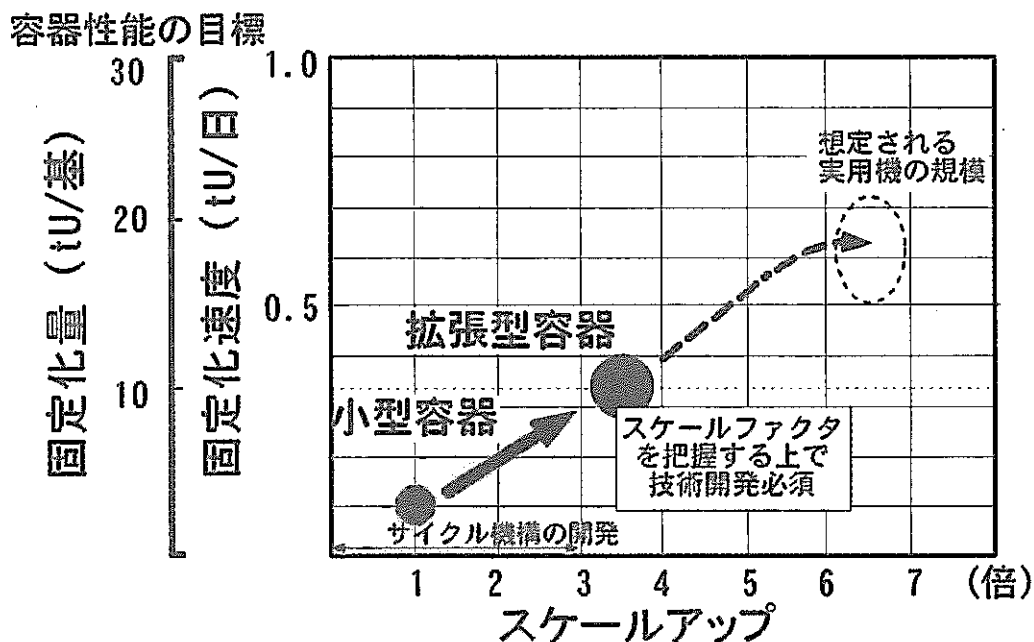
小型容器(処理速度0.1tU/日、固定化量3tU処理に相当)を用いたコールド及びホット試験により、技術の成立性を確認

**課題：スケールアップ因子評価のため、拡張型容器（固定化量10tU処理に相当）による試験の実施**

### 開発意義

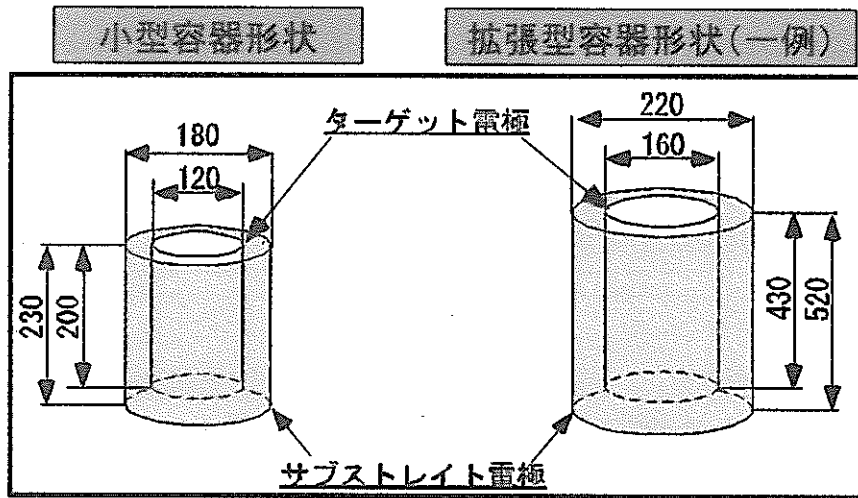
### ☆拡張型容器の位置付け

容器注入性能（注入速度、注入量）とスケールアップ因子（プラズマ密度、熱除去効果）との関係を明らかにすることで、自由度のある容器設計を可能とする。



拡張型容器は東海再処理規模には適用可能である。商用規模にはさらに2倍程度のスケールアップを図るか系列数を増やすことで対応可能

### ☆拡張型容器の目標性能



	項目	小型容器	拡張型容器
目標性能	Kr注入速度	8L/日(0.1tU/日相当)	30L/日(0.35tU/日相当)
	Kr処理量	0.3m <sup>3</sup> (3tU相当)	1.2m <sup>3</sup> (10tU相当)
形状	容器容積	約6L	約20L
	電極面積	ターゲット : 750cm <sup>2</sup> サブストレイト: 1300cm <sup>2</sup>	ターゲット : 2200cm <sup>2</sup> サブストレイト: 3600cm <sup>2</sup>

拡張型容器は東海再処理施設規模に適用した場合、  
2～3系列の運転、年間約20基が必要

### ☆拡張型容器開発のコスト的意義

実用化に対してコスト的に見通しのある  
技術を確立することが重要

○固定化貯蔵コストは、注入容器製作コストが主要であり、  
容器拡張によるコスト削減効果が高い

○拡張型容器(処理速度0.35tU/日、固定化量10tU相当)の  
開発により、固定化・貯蔵コストを約1/2にすることが可能

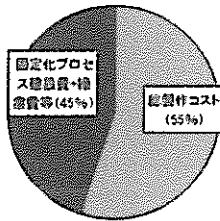
○開発コストは、Kr施設のホットフィールド、蓄積された  
技術を活用し、開発を継続することで最小限に抑制可能



☆固定化容器の大型化によるコスト低減化効果の推定  
(前提条件：プラント30年、貯蔵期間50年)

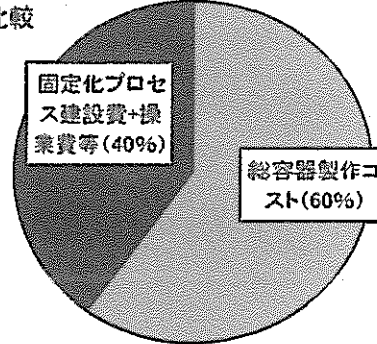
	固定化貯蔵 (拡張型容器)	固定化貯蔵 (小型容器)
貯蔵方式	縦型ピット方式	縦型ピット方式
形 状	φ40cm×90cm	φ30cm×50cm
貯蔵容量	燃料処理10 tU分	燃料処理3 tU分
処理速度	0.35 tU/日	0.1 tU/日
運転形態	3基同時連続運転	10基同時連続運転
年間発生量	600基/30年	2000基/30年
容器製造コスト	1000万円/基	600万円/基
想定総額(億円)	110	200

※200tU/プラント規模に適用した場合の比較



固定化貯蔵：拡張型容器

特徴：容器大型化による容器製作のコスト軽減効果が大



固定化貯蔵：小型容器

特徴：容器本数が多くコスト増大

☆拡張型容器の開発課題

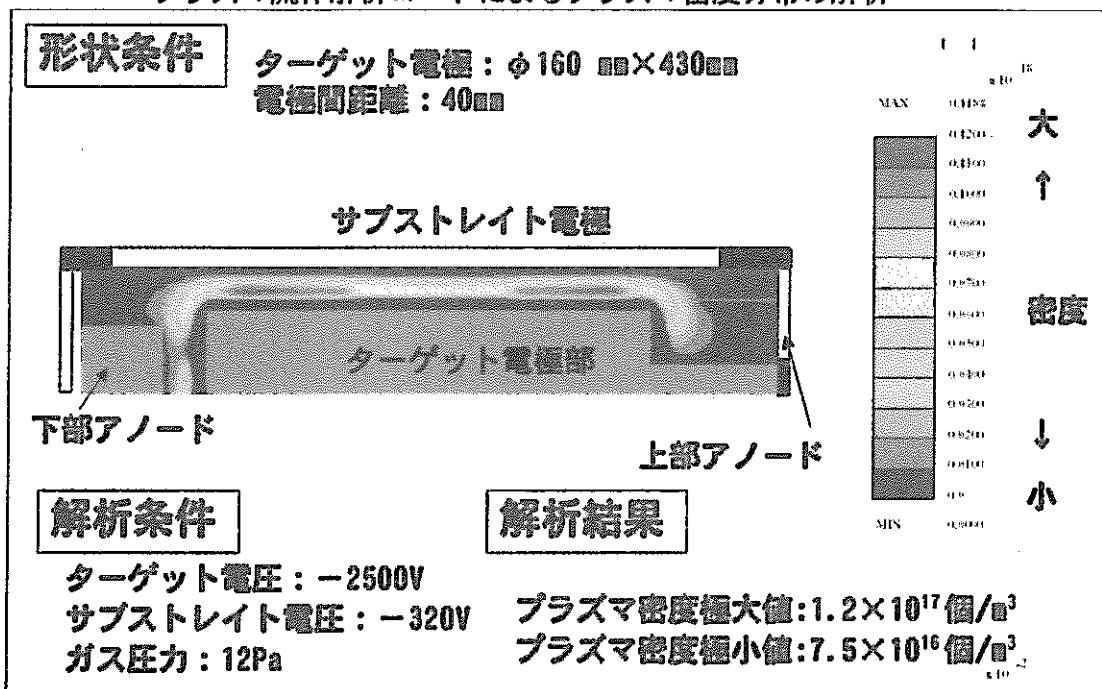
項 目	開 発 課 題
グロー放電プラズマの安定形成	イオン注入法ではKrイオンを発生させるグロー放電のプラズマ安定性が最も性能に関係する。プラズマ形状形成の要因となる容器高さ、径、電極間距離の最適化を図り、スケールアップ因子を把握し、形状の最適化を図ることが必要である。
熱除去効率の向上	グロー放電に伴う発熱で電極の温度上昇による固定化膜中のクリプトン再放出等の影響を防止するため、各電極は水冷している。拡張型容器では電力の増加、電極厚みの増加のため冷却構造の改良が必要である。
絶縁材へのスパッタ防止	各電極間の電気絶縁体はスパッタ原子の付着による電極の短絡を防止するため、保護カバーを設置している。拡張型容器ではスパッタ量の増加、構造変化を伴うため、スパッタ原子の付着を防止する保護カバー構造の最適化を図る必要がある。
アーク放電の発生頻度低減	アーク放電の発生は固定化膜の剥がれによる短絡等につながる。電極面積が増大する拡張型容器ではアーク放電が増加する。アーク放電の発生を抑制する構造等の把握、発生後の復帰の制御方法を改良する必要がある。

### ☆拡張型容器の技術開発に関する実施内容

項目	実施内容
グロー放電プラズマの安定形成	(1)電極の形状(高さ、径方向)を拡張した容器の注入性能の確認試験 (2)流体モデルを用いたプラズマ解析コード等によるプラズマ密度の評価
熱除去効率の向上	(1)ターゲット電極内部の冷却管拡張による熱除去効率の向上の試験 (2)熱流体解析コード等による冷却水量、構造等形状の評価
絶縁材へのスパッタ防止	(1)電極間の電気絶縁体の保護カバーの構造の改良 (2)長期注入試験による付着量、絶縁性能の確認
アーク放電の発生頻度低減	(1)特性試験による電極構造とアーク放電の発生頻度の把握 (2)初期膜付着方法の検討 (3)自動復帰時の電圧、圧力の制御方法の検討

### ☆プラズマ解析による均一なプラズマ形成の検討

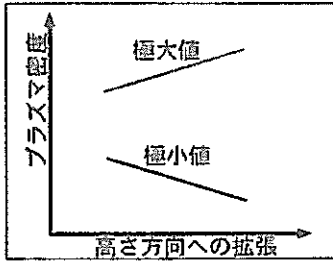
プラズマ流体解析コードによるプラズマ密度分布の解析



- 電極状態、配置を模擬して電極間のプラズマ密度分布を計算
- 注入試験と対応した形状、電圧、注入速度条件でプラズマ解析
- 高注入速度時に均質なプラズマの分布が形成できる形状条件を検討

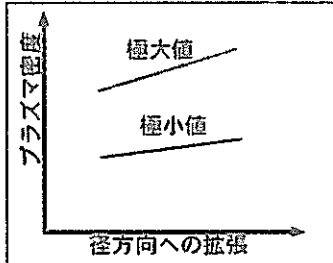
☆容器形状とプラズマ安定形成の条件検討

〈高さ方向への拡張の影響〉



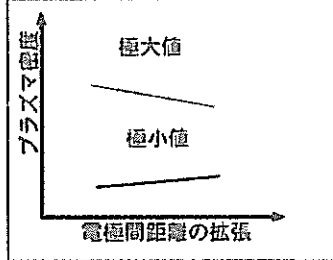
プラズマ密度の極大値は大きくなり極小値は小さくなる。つまりプラズマ密度のバランスが大きく崩れるため、安定性が低下する。

〈径方向への拡張〉



プラズマ密度の極大値及び極小値とも大きくなる傾向となる。高さ方向の拡張に比べて不均一の影響は少ない。

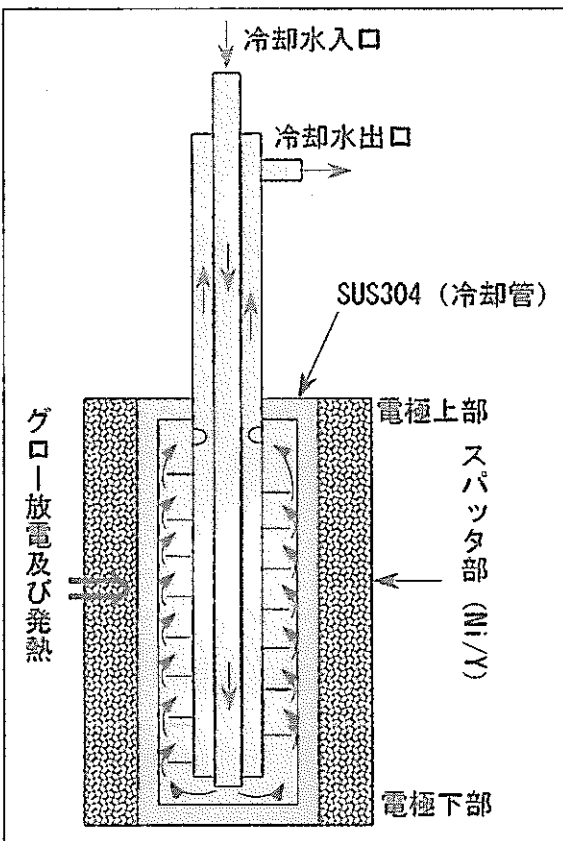
〈ターゲット電極-サブストレイト電極間距離の影響〉



電極間距離の増加に伴いプラズマ容器の極大値は小さくなり安定化は期待出来るが、電力使用量が増加し熱除去の課題が大きくなる。

容器を拡張した場合のプラズマ密度の変化

☆熱除去効率の向上検討 (ターゲット電極の温度検討)

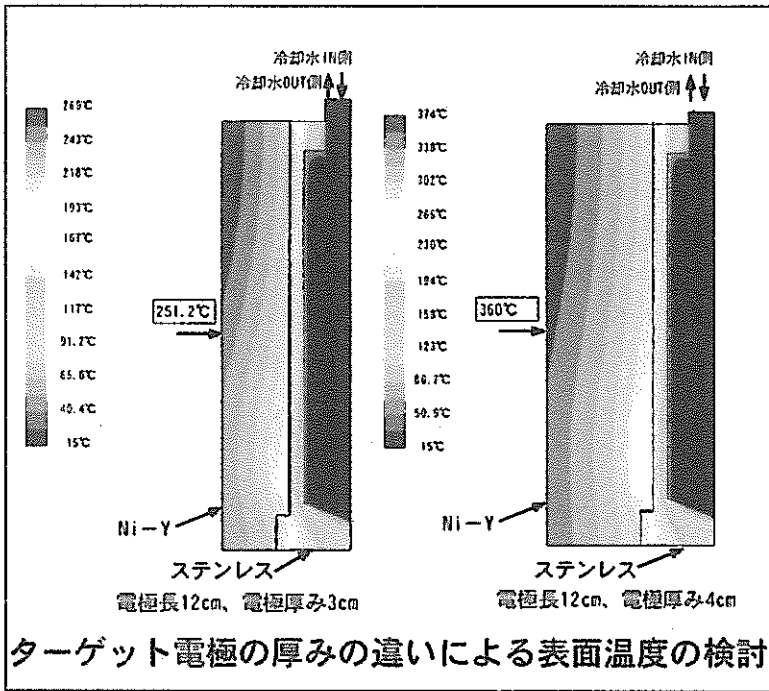


- ①ターゲット電極表面でスパッタ原子の衝突により発熱
- ②スパッタ部内側を冷却水により熱除去
- ③注入量増加のためスパッタ部を厚くすると温度が上昇
- ④表面温度が上昇しすぎると輻射熱によりサブストレイト電極の温度上昇
- ⑤表面温度が上昇しすぎるとサブストレイト面での再放出量が増加し固定化速度が低下

- ①電極の厚みをパラメータに注入試験を行い、注入速度の上限を確認
- ②構造を模擬し熱流体解析コードでターゲット表面温度を計算し、注入速度との関係を明らかにする。

## ☆熱除去効率の向上

熱流体解析コード (FLUENT) を用いたターゲット電極の温度解析



### 入力条件

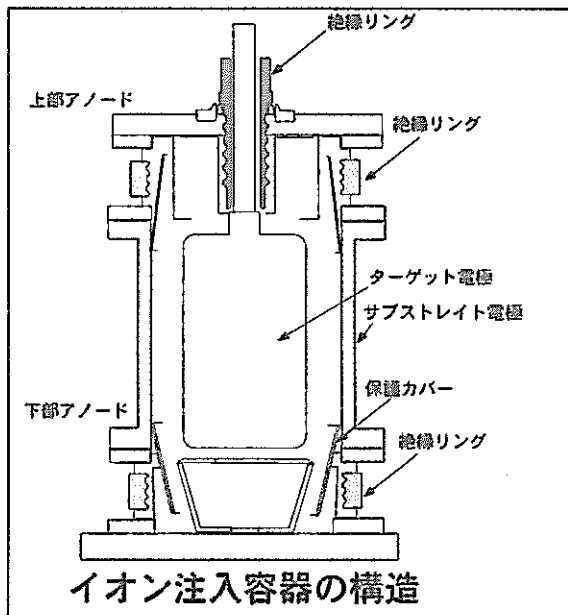
- ✓形状入力 (メッシュ構造)
- ✓物性値  
(電極: Ni-Y、冷却管: SUS)
- ✓冷却水量
- ✓発熱量 (電力消費量)

### パラメータ

- ✓電極厚み、冷却管径
- ✓注入速度を推定した発熱量

✓電極表面温度を計算し上限温度を抑える構造、方法を検討する  
✓注入試験の注入速度の上限との関係を把握し、適性形状を検討する。

## ☆電気絶縁スパッタ防止機能の適正化検討



- ✓イオン注入容器はターゲット電極及びサブストレイト電極の電位を保つために各電極間にセラミック (絶縁リング) を配置
- ✓ターゲット電極からスパッタされたNi/Y原子はサブストレイト電極と同時に絶縁リング方向にも飛来する。
- ✓このため、絶縁リングへのスパッタ原子付着を防止し、電気的絶縁を保つため保護カバーを配置

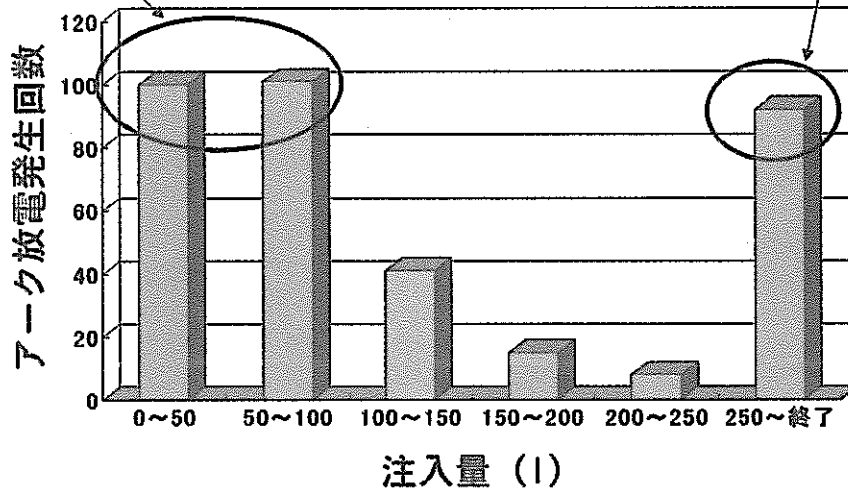
✓拡張型容器では電極形状に合わせた保護カバー構造の最適化を図る必要がある。  
✓保護カバーの構造によってはプラズマの不安定の要因や局所的な温度上昇を招くこともあり、注入試験を繰り返し適正化を図っていく。

## ☆アーク放電の発生頻度の低減

運転初期はスパッタ膜の安定付着に課題があり、サブストレイト電極の表面処理等の改善が必要。

全体を通してアーク放電を抑えることが望ましく、電源回路でのアーク放電の検知・自動復帰方法の改善が必要

運転終了前はターゲット電極の消耗から放電が不安定になるため、電極消耗の検知の改善が必要。



注入量とアーク放電発生の関係

## ☆回収クリプトンによる性能確認(ホット試験)

### 1. 特性試験

ガス流量、冷却水量の増加に伴う電源や装置の機能確認  
電源や装置等の機能確認、制御プログラムを確立する。

### 2. 連続注入試験

回収クリプトンをシリンダから連続供給し固定化する。  
 ✓コールド試験と同等の性能であることを確認(ホットガス特有の崩壊熱、ルビジウムの影響を総合的に確認)  
 ✓拡張型容器2基を製作し注入試験を実施

### 3. 固化体の保持特性評価

✓既に固定化を終えた小型容器内のガスを定期的にサンプリングしクリプトンの再放出量を測定する。  
 ✓温度挙動など貯蔵データの蓄積を図る

### ☆固定化技術開発スケジュール

開発項目	2004年度	2005年度	2006年度	2007年度	2008年度
	H16年度	H17年度	H18年度	H19年度	H20年度
1. コールド試験 (1) 拡張型容器の開発試験  (2) スケールアップ因子の把握	コールド注入試験				
	ソフト解析				
2. ホット試験  (1) 拡張型容器適用のための特性試験 (2) 拡張型容器を用いた連続運転による性能確認  (3) ホット固化体のクリプトン保持特性の評価	特性試験				
	設計・許認可		製作		
				注入試験	
	小型容器2基、小型加温型容器1基を使用				

体制

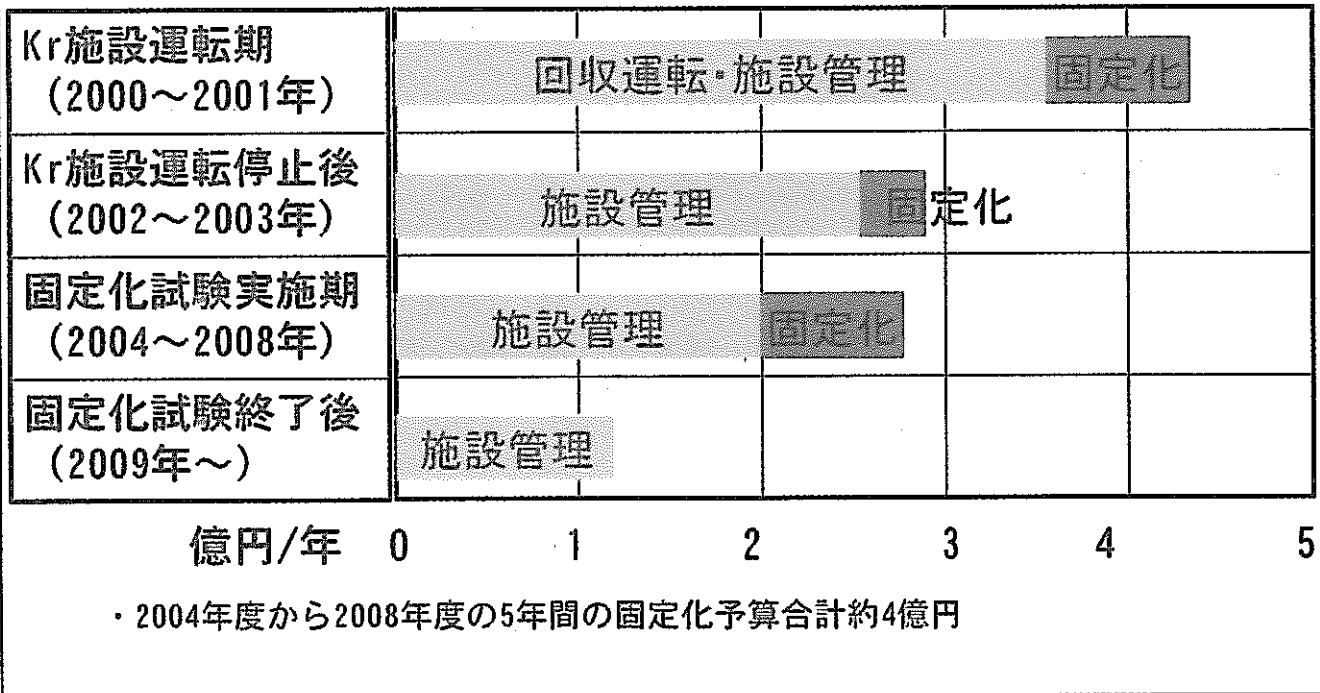
- ・これまでの体制で継続して開発を実施
- ・人員は各年度ともに5名を予定

### クリプトン回収・固定化の開発費

回収技術	施設建設費	約50億	1978年
	開発運転費	約4～5億/年	1983年～
固定化技術	小型容器開発	約0.5億/年	1983年～
	ホット試験設備 (ホット容器5基含む)	約10億	1994年
	拡張型容器開発 (ホット容器2基含む)	約0.8億/年	2004年～ 5カ年

要員: 計画 研究全体管理 : 1名  
 計算機解析 試験評価 : 2名  
 試験実施 設備管理 : 2名

☆クリプトン回収・固定化に係る年度予算の推移



☆商用再処理施設の動向及び開発成果の反映  
(技術情報の提供)

- ・ 将来の原子力発電及び再処理の増加に伴う放出低減化検討に反映する。
- ・ 原子力長計では、2010年頃から開始される六ヶ所再処理工場に続く再処理工場の検討および将来の高速増殖炉サイクル技術の検討に際し、再処理の要素技術として情報を提供できる。

## 成果の普及・公開

### 1. 特許（すべて固定化容器の構造、操作方法）

- サイクル機構単独 5件
- メーカーとの共同 3件

### 2. 成果の公開状況

- 国内学会発表 19件
- 国際学会関係等発表 5件
- 学会投稿・寄稿等 3件
- 社内技術資料 32件

（外部機関委託19件、サイクル機構作成資料13件）

- サイクル技報（動燃技報） 4件
- 安全研究

- ✓ S49年度～H12年度まで国のテーマとして実施
- ✓ H13年度以降は社内研究として実施中

#### ○開発状況

- ✓クリプトンの放出低減化には、固定化技術が必要であり現段階では実用レベルに至っていない。
- ✓原子力エネルギー需要の鈍化で現時点では早急なクリプトン回収の必要はない。

**残された固定化の課題に取り組み、クリプトンの回収と固定化のトータル技術を今後5年間で見直しをつけ技術を集大成する**

#### ○技術開発の在り方

**ALARAの考えに基づき合理性のある技術の確立が必要**

- ✓固定化容器のスケールアップによって、固定化コストを大幅に低減することが可能
- ✓開発に必要な試験設備、回収クリプトンが備わっており、低コストで開発が可能。

#### ○開発意義

- ✓世界的エネルギー需要は急激な変化も考えられ、原子力利用の増大に備える必要
- ✓原子力利用（MOX、高速炉）技術を開発する機関として、放出低減化技術に取り組むことは重要な役割
- ✓大気中のクリプトンは現状でも僅かには上昇しており、環境問題はさらに重要性が増すと考えられ、放出低減化への努力は原子力利用の理解に貢献

**将来の原子力利用社会に備え、クリプトンの放出低減化の選択技を準備する**