



クリプトン回収・貯蔵技術開発

林 晋一郎 庄司 久 栗原 孝幸 川島 暢吉
大澤 利之*¹ 大和 晴雄*¹ 会沢 敏弘*¹

東海事業所 再処理センター 処理部
*¹三幸株式会社

Development of Krypton Recovery and Storage Technology

Shin-ichiro HAYASHI Hisashi SHOJI Takayuki KURIHARA Nobuyoshi KAWASHIMA
Toshiyuki OSAWA*¹ Haruo YAMATO*¹ Toshihiro AIZAWA*¹

Reprocessing Operation Division, Tokai Reprocessing Center, Tokai Works
*¹ Sanko Inc.

環境への放出放射エネルギーの低減化技術開発をめざし、東海再処理施設の燃料せん断装置及び燃料溶解槽からのオフガスに含まれる放射性クリプトンを分離・貯蔵するための技術開発を行うために、東海再処理施設に附属して実証規模のクリプトン回収技術開発施設を建設し、コールド試験による各工程のパラメータ変動時の性能確認、ホット試験による放射性ガスの閉じ込め性能等の安全性確認、再処理工程との連動運転によるクリプトン回収率の確認など、種々の試験を行ってきた。その結果、液化蒸留法によるクリプトン回収技術開発として、設計目標値であるクリプトン回収率90%以上を確認するとともに、回収クリプトンの貯蔵技術として、回収したクリプトンを高圧ガスとしてシリンダに貯蔵する高圧シリンダ法による技術を実証した。また、現在、長期間の貯蔵に必要な技術となるイオン注入法による回収クリプトンの固定化技術開発を進めている。

The Krypton-Recovery Development Facility was constructed as a pilot plant which has a practical capacity at Tokai Reprocessing Plant. Various tests such as performance confirmation corresponding to parameter changing of each process by cold test, safety assurance of confinement performance of radioactive gas etc. and confirmation of the krypton recovery rate by connecting run with the reprocessing process were executed in order to develop recovery and storage technology of radioactive krypton from the shearing and dissolution process off-gas aiming to reduce the release of radioactivity to the environment. As a result, it was assured that krypton recovery rate with a cryogenic distillation was beyond the target value of 90% as krypton recovery technology, and storage technology by high pressure cylinder method was established as storage technology of recovered krypton. The immobilization technology of recovered krypton that is necessary for long term storage by ion implantation method is under development.

キーワード

再処理, オフガス, クリプトン, 液化蒸留法, クリプトン回収, クリプトン貯蔵, 高圧シリンダ法, イオン注入法, 固定化

Reprocessing, Off-Gas, Krypton, Cryogenic Distillation Process, Krypton Recovery, Krypton Storage, High Pressure Cylinder Method, Ion Implantation Method, Immobilization



林 晋一郎

化学処理第一課長
クリプトン回収・固定化技術開発、再処理施設溶解工程運転管理に従事



庄司 久

化学処理第一課
クリプトン技術管理チームリーダー、再処理施設当直長補佐、副主任技術員
クリプトン回収技術開発、再処理施設に係る業務に従事



栗原 孝幸

化学処理第一課
クリプトン技術管理チーム所属、技術員
クリプトン回収技術開発施設に係る業務に従事



川島 暢吉

化学処理第一課
クリプトン施設運転チームリーダー、副主任技術員
クリプトン施設の運転、施設管理に係る業務に従事



大澤 利之

化学処理第一課
クリプトン技術管理チーム所属
クリプトン施設の運転、技術開発に係る業務に従事



大和 晴雄

化学処理第一課
クリプトン技術管理チーム所属
クリプトン施設の運転、技術開発に係る業務に従事



会沢 敏弘

化学処理第一課
クリプトン技術管理チーム所属、総括責任者
クリプトン施設の運転、施設管理に係る業務に従事

1. はじめに

1970年頃からの欧米諸国での環境論争を背景に、我が国においても1973年頃から1975年にかけて、環境への放射性物質の放出低減について議論がなされた。その当時の予測では、2000年時点での原子力による発電総量が最も多い見積もりでは全世界で42.6億kWeとなり、発生する使用済み核燃料全量を再処理した場合には大気中に拡散し蓄積していく放射性クリプトンによる地球規模での影響が予想されたことから、放射性クリプトンの増加を防止する技術開発が望まれた。

このため、サイクル機構（当時、動燃事業団）は、上述の国内外の動向を踏まえて、再処理技術開発の当事者としてクリプトン回収に必要な研究開発を推進することとし、放射性クリプトンの放出低減化技術開発を目的に、種々の基礎試験などを行った。これらの結果を基に、クリプトン回収率90%以上を設計目標に1983年にクリプトン回収プロセスとして液化蒸留法を用いた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、技術実証を図ることとした¹⁾²⁾。液化蒸留法は、再処理オフガスを液体窒素により冷却し、クリプトンを液化し、窒素などの他成分を蒸発分離し、クリプトンを回収する方法である。

なお、クリプトンは天然の空気中にも約1ppm存在している希ガスであるが、オフガス中には数十ppm存在し、そのうち約7%が放射性的⁸⁵Krである。

クリプトン施設は2001年度までに、クリプトン回収・貯蔵に関するコールド試験、ホット試験及び開発運転を実施し、クリプトンの分離・精製及びシリンダ貯蔵の技術に関して、プロセス性能評

価及び安全性等の実証を行い所期の目的を達成した。また、クリプトン回収の副産物として回収できるキセノンの精製技術開発にも取り組んだ。

以下に、クリプトン施設の概要、運転実績、プロセス性能・安全設計の評価などについて報告する。

2. 技術開発の経緯

クリプトン回収に関する技術開発では、東海再処理施設の燃料せん断装置及び燃料溶解槽から発生するオフガス（以下「せん断オフガス、溶解オフガス」という）からクリプトンを分離・精製し、貯蔵するまでの一連のクリプトン回収技術開発とともに、ガス状態のクリプトンを長期間固化体状態で安定に貯蔵するためのクリプトン固定化技術開発に取り組んできた。また、クリプトンとともにオフガス中に含まれ、副産物としての利用が見込まれるキセノンガスの精製技術開発にも取り組んできた。これらの技術開発の経緯を表1に示す。

2.1 クリプトン回収技術開発

クリプトンの分離・精製プロセスの選択にあたっては、液化蒸留法、溶媒吸収法（常温及び低温）、低温活性炭吸着法、隔膜法及び熱拡散法の各方法について調査・検討した。その結果、既存の技術で実現可能であり、また、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することとした。

クリプトン施設は基礎試験及び工学試験を経て、施設設計を行った後、1983年に完成した。最初にコールド試験運転（放射性でない天然のクリプトン・キセノンガスを用いた模擬ガス試験）を

表1 クリプトン回収技術に関する開発経緯

技術開発	実施項目	期間(年)	1970	75	80	85	90	95	2000
クリプトン回収	基礎・工学試験	1972～1979	■	■					
	設計・建設	1974～1983		■	■	■			
	コールド試験運転	1983～1987				■			
	ホット試験・開発運転	1988～2001					■	■	■
クリプトン固定化	基礎試験	1977～1988		■	■	■			
	コールド試験	1990～2001					■	■	■
	ホット試験	2002～2001							■
キセノン精製	基礎試験	1988～1990				■			
	コールド試験	1991～1996					■	■	
	R I 試験	1995～2001						■	■

延べ11回実施し、施設の健全性、プロセス特性、操作特性等を確認した。

1988年からは、実際のオフガスを用いたホット試験を実施し、オフガスの受け入れ量を段階的に増やしつつ、放射性ガスの閉じ込め機能など施設の安全性を確認するための試験を実施し、1990年12月に使用前検査合格証を取得した。

1991年3月から本格的に再処理オフガスを受け入れ、2001年までに11回の開発運転を実施した。

2.2 クリプトン貯蔵技術開発

(1) 高圧シリンダ法

クリプトン貯蔵方法選考の過程においても幾つかの方法を検討し、その結果、一般工業界で十分な実績があり実用化できる唯一の方法であった高圧シリンダ法を採用することとした。

(2) イオン注入固定化法

クリプトンを長期間安定に貯蔵するための技術として、イオン注入固定化法等の開発を上記高圧シリンダの開発と並行して進めてきた。

回収クリプトンの固定化技術は未開発の分野であり、1977年からゼオライト封入固定化法³⁾、1983年からイオン注入固定化法⁴⁾についての基礎研究を実施した。1989年には、これらの結果を基に両者の技術を比較評価し、安全性の高いイオン注入固定化法を採用した。

同法を用いて、1990年から小型容器によるコールド試験を実施し、連続固定化試験等の成果を基に1996年にはクリプトン施設の一部を改造し、小規模のホット試験設備を設置し、2000年12月から、クリプトン施設で回収したクリプトンを用いて、ホット試験を開始した⁵⁾。

2.3 キセノン精製技術開発

クリプトン回収の副産物として、クリプトン施設に併設されているキセノン(Xe)の液化蒸留設備を用いてキセノンを回収できる。回収キセノンにはわずかながら⁸⁵Krが不純物として混入するが、これを精製して⁸⁵Krを一定レベル以下に除去し、有効利用できればクリプトン回収のコスト低減にもつながる。そこで、1988年からキセノン精製技術開発の基礎試験を進めてきた。

本技術については、RIとしての⁸⁵Krを用いた圧カスイング吸着法(PSA法)によるキセノン精製試験によって、キセノン中のクリプトンの放射能

濃度を $1 \times 10^{-1} \text{Bq/cm}^3$ 以下とする技術に目途をつけた⁶⁾。

3. 施設の概要

3.1 全体工程概要

東海再処理施設の分離精製工場のせん断及び溶解オフガスは、洗浄によるNO_x吸収、ヨウ素除去、フィルタによるろ過後、クリプトン施設に受け入れられる。

クリプトン施設ではまず、クリプトン回収の前処理として、受け入れたオフガス中の微量のヨウ素及び酸素を除去し、続いて水分、炭酸ガス及びキセノンを吸着処理する。その後、オフガス中のクリプトンを分離・精製し、貯蔵シリンダに貯蔵する。また、吸着分離したキセノンは、精留し、貯蔵シリンダに貯蔵する。クリプトン施設のプロセスフロー図及び工程ブロック図をそれぞれ図1及び図2に示す。

3.2 各工程の概要

(1) ヨウ素除去工程

分離精製工場から受け入れたオフガスは、加熱器で約80℃に温度調節し、銀ゼオライトを充てんしたヨウ素吸着器において、ヨウ素を吸着除去する。

(2) 受入・調整工程

ヨウ素を吸着除去したオフガスは、原料ガス圧縮機により原料ガス中間貯槽に受け入れる。ここでせん断オフガスと溶解オフガスの流量の平滑化を行い、次の脱酸素処理工程への供給速度を約130Nm³/h一定になるように調整する。

また、吸着処理工程、クリプトン精留工程などの後段の工程で、クリプトンを含む可能性のある排気については、本工程にリサイクルする。

(3) 脱酸素処理工程

オフガスの主成分は空気であり、その中に核分裂生成物としてクリプトン及びキセノンが含まれ、さらに少量ではあるが、窒素酸化物、メタンなどが含まれている。

オフガス中に酸素が残留しているとクリプトン精留工程において濃縮され、高濃度の⁸⁵Krの放射線場において一部がオゾンに転化し、その濃度が高くなった場合は、オゾン爆発を起こす可能性がある。また、メタンはクリプトンと沸点が近いため、多量に処理ガス中に存在すると回収クリプト

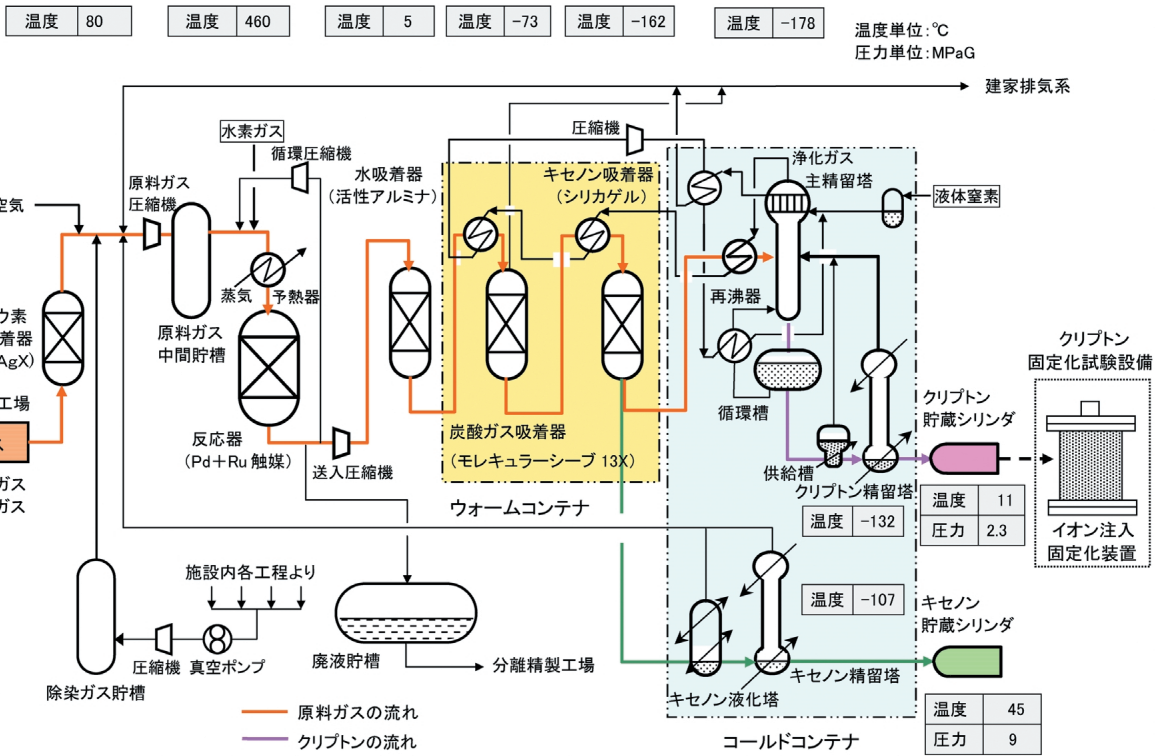


図1 クリプトン回収技術開発施設のプロセスフロー図 (数値は設計値)

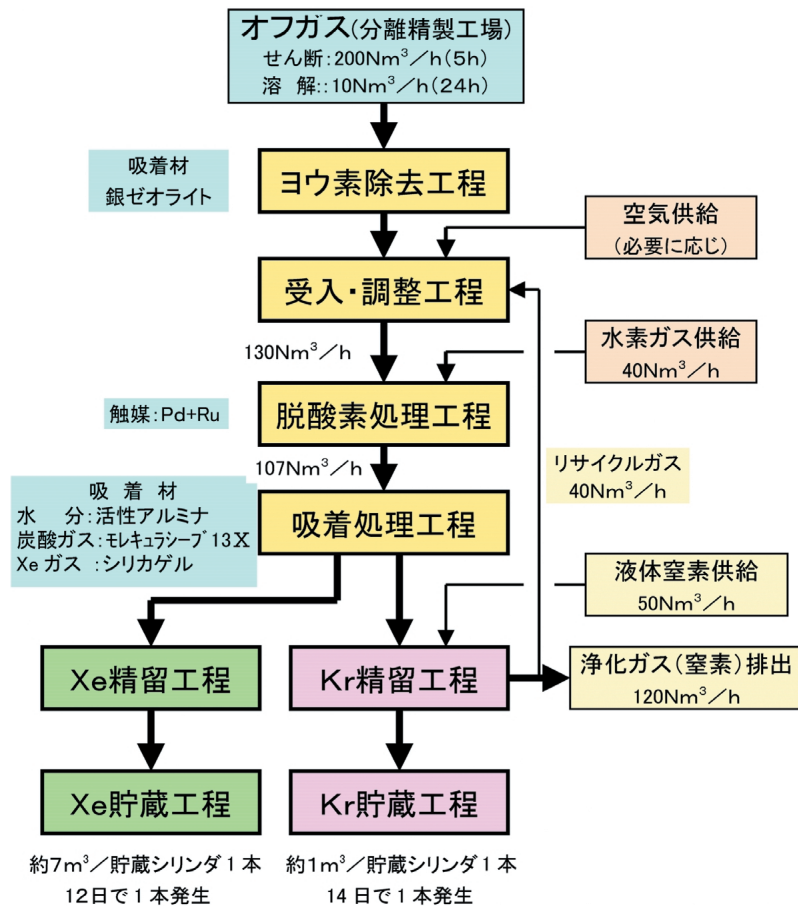


図2 クリプトン回収技術開発施設 工程ブロック図 (工程全体の流量バランス)

ンの純度が低下する。

そのため、脱酸素処理工程においてオフガスに水素を添加し、触媒（酸化アルミナベースのパラジウム+ルテニウム）上で高温で反応を起こさせ、酸素及び窒素酸化物、メタンなどの炭化水素を除去する。

図3に酸素除去用反応器廻りの系統図を示す。処理の流れとしては、原料ガス中間貯槽から供給されたオフガスは予熱器で約160℃まで昇温した後、水素を添加し、反応器に入る。反応器では酸素と水素が結合して水となり、反応熱により約460℃まで温度が上昇する。反応器で酸素などを除去したガスは冷却した後、循環圧縮機によって予熱器入口へリサイクルしながら、一定量の約107Nm³/hのガスを次の吸着処理工程へ送る。反応器で生じた水は廃液貯槽へ送る。

本工程では可燃性ガスの水素を取り扱うことから、水素爆発を防止するため、次の安全対策を講じている。

水素 酸素 窒素3成分系においては、酸素濃度が5%以下であれば、常温では水素濃度のいかににかかわらず爆発は起こらず、A60では水素濃度が約70%以下では爆発は起こらない。

この安全な濃度範囲に基づいて、反応器入口の酸素濃度は脱酸素処理されたガスを循環させ約2%に希釈調節する。水素の供給量は、反応器出

口で0.5%とし、酸素が残らないように調節する。

また、酸素及び水素濃度の変動に対する設備の対策として、各濃度が上昇する場合には警報を発生し、さらに濃度が上昇する場合には、循環圧縮機を自動的に停止するとともに、当該工程への酸素及び水素の供給を停止する機能を設けている。

(4) 吸着処理工程

オフガス中に含まれる水分、炭酸ガス、キセノンが低温の精留工程に入ると、凍結して、配管、熱交換器等が閉塞するため、吸着処理工程の各吸着器により水分等の各成分を除去する。各吸着器は2基ずつあり交互に吸着・再生を行う。水吸着器、炭酸ガス吸着器及びキセノン吸着器の概要を図4に示す。

脱酸素処理工程を出たオフガスは送入圧縮機で本工程に導入した後、冷却器、デミスタを経て、吸着材として活性アルミナを充てんした水吸着器により水分を吸着する。デミスタで分離した水分は廃液貯槽へ送る。

水吸着器は約14時間サイクルで吸着・脱着を交互に行う。

水分の脱着については、水吸着器出口のガスの一部をリサイクルし、加熱器で約260℃に加熱した後、吸着材として活性アルミナとモレキュラーシーブ4Aを充てんした水吸着器を通すことにより脱着する。脱着した水分を含むガスは、冷却器で約50℃

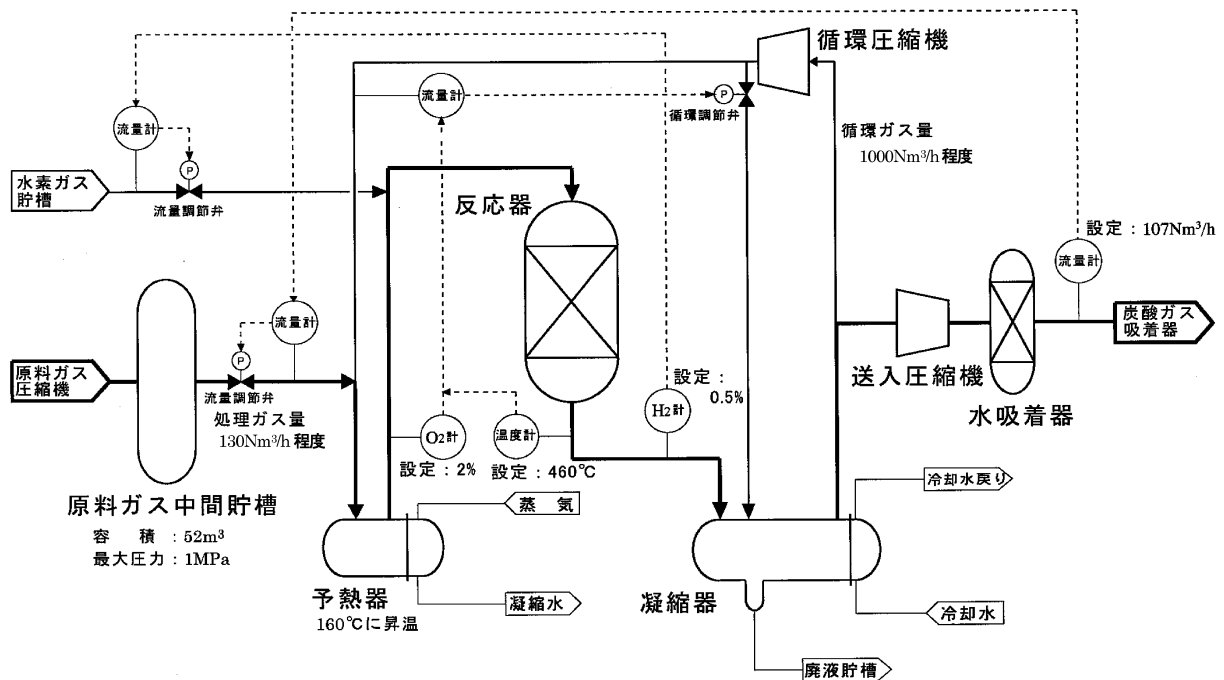


図3 反応器廻り系統図

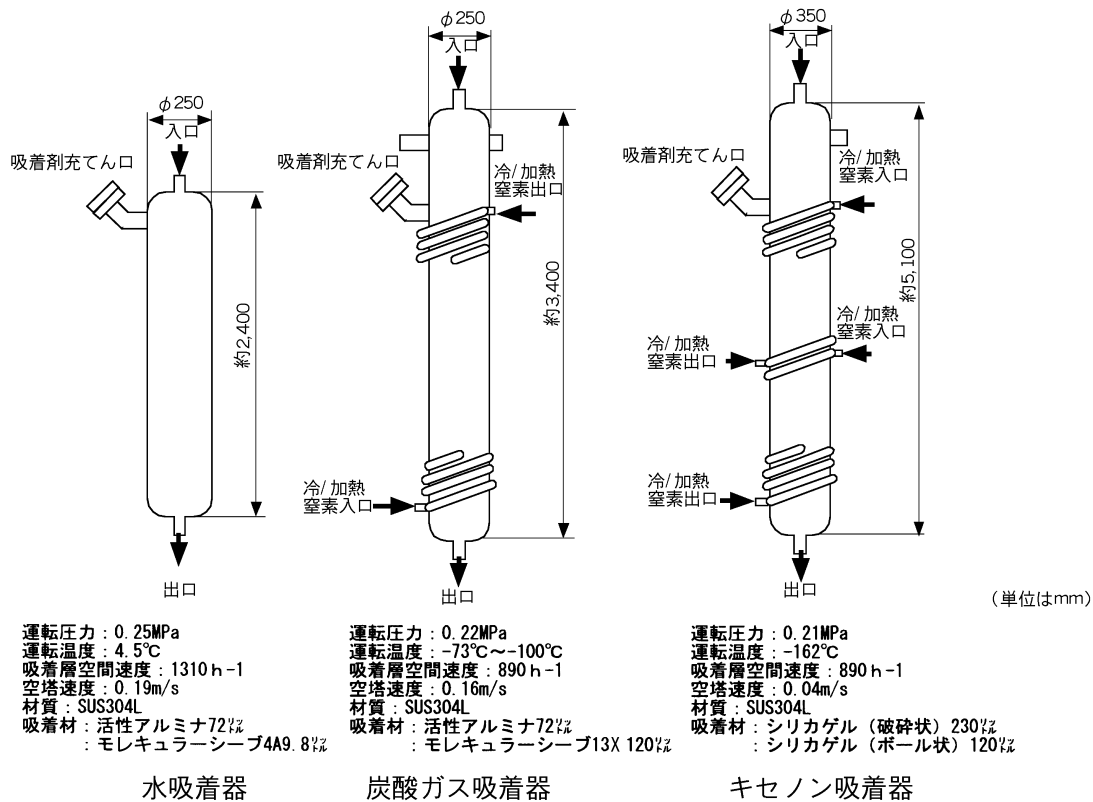


図4 クリプトン施設の吸着器の概要

で冷却した後、送入圧縮機の入口へ戻す。

水吸着器を出たガスは熱交換器で約 - 70 ~ - 100 まで冷却した後、吸着材としてモレキュラーシーブ13Xを充てんした炭酸ガス吸着器により、炭酸ガスを吸着する。

炭酸ガス吸着器出口のガスは、熱交換器で約 - 165 まで冷却した後、吸着材としてシリカゲルを充てんしたキセノン吸着器に入り、キセノンを吸着する。

炭酸ガス吸着器及びキセノン吸着器は4日サイクルで吸着・再生を交互に行う。

炭酸ガスの脱着時には、脱着初期のガス中にはクリプトンが比較的多く含まれているため、このガスは原料ガス圧縮機入口に戻す。その後、約260 の加熱窒素をジャケットに通し、吸着床を約180 まで昇温し脱着を行う。脱着した炭酸ガスは窒素をキャリアガスとして流量約5 Nm³/hに調整し、⁸⁵Krをモニタした後、建家排気系へ送る。

キセノンの脱着時には、やはり脱着初期のガス中にはクリプトンが比較的多く含まれているため、このガスは原料ガス圧縮機入口に戻す。その後、炭酸ガスと同様に約260 の加熱窒素をジャケットに通し、吸着床を約180 まで昇温すること

によって脱着を行う。脱着されたキセノンは約5 Nm³/hの窒素をキャリアガスとして用い、キセノン精留工程のキセノン液化塔へ送る。

なお、炭酸ガス吸着及びキセノン吸着にかかわる機器等のうち低温による吸着、高温による脱着を行う機器、配管類は、ウォームコンテナ（直径約4 m、高さ約9 m）内に設置し、断熱している。

(5) クリプトン精留工程

図5にクリプトン精留系の工程概要図を示す。

吸着処理工程出口の窒素を主成分としたクリプトンを含むガスは、ダストフィルタを経て熱交換器で約 - 180 まで冷却した後、主精留塔に入る。主精留塔でオフガス中のクリプトンを分離・精製する。主精留塔は塔頂のコンデンサ部とステンレス製充てん剤を充てんしたカラム部より構成されている。

主精留塔では、コンデンサ部を液体窒素で冷却しクリプトンを液化して、主精留塔の下部の循環槽に回収する。循環槽の液は再沸器に送り加温し、再び主精留塔へ供給する。この精留操作によってオフガス中のクリプトンは循環槽中に蓄積する。主精留塔塔頂部から排気されるガスは、クリプトンが除去されており、低温であるためクリプトン

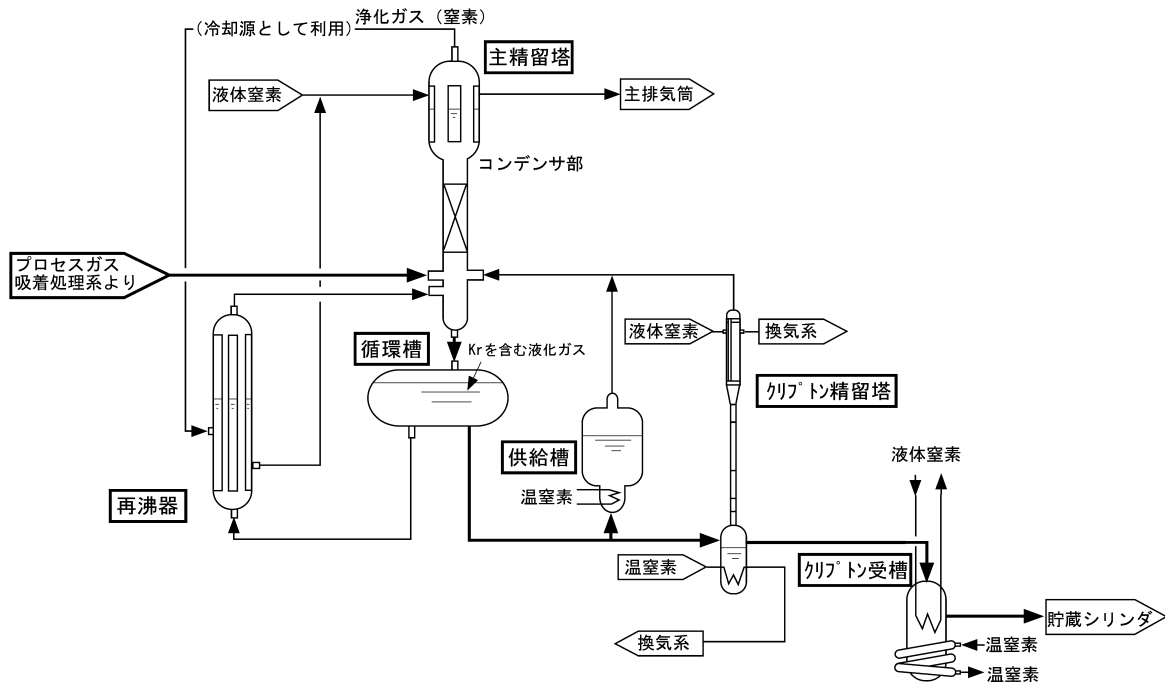


図5 クリプトン精留系の工程概要図

精留系及び吸着処理工程の熱交換器の冷媒として有効に利用した後、セル換気系へ送り大気へ放出する。

循環槽でクリプトン濃度を1%程度まで増加した液は、供給槽に送り、一部の窒素を蒸発させてクリプトン濃度を約10%まで増加する。この際に供給槽上部から抜き出したガスは主精留塔に戻す。

次に供給槽の液はクリプトン精留塔へ送り、最終的に精製する。クリプトン精留塔はステンレス製充てん材を用いた充てん塔で、リボイラ及びカラム並びにコンデンサが一体となった構造である。クリプトン精留塔の構造を図6に示す。精製は圧力0.25MPaGで行い、クリプトンは塔底のリボイラ内で濃縮する。窒素等の低沸点成分は塔頂から調節弁を経て抜き出し、主精留塔へリサイクルする。

クリプトン受槽で液中のクリプトン濃度は90%以上となり、残りの成分はアルゴンが10%以下、窒素が1%以下となる。

クリプトン精留工程の機器類は万一の放射性ガスの漏えい防止及び断熱のため、コールドコンテナ(直径約4m 高さ約10m)内に設置し保冷している。

(6) クリプトン貯蔵工程

クリプトン精留工程で回収された液体のクリプトンは、クリプトン受槽に送った後、一定量となった段階で温窒素を用いて加温しガス化して、クリ

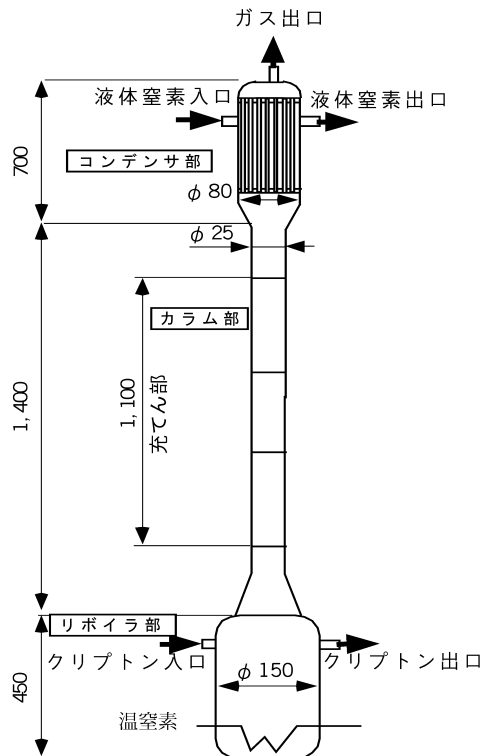


図6 クリプトン精留塔の構造図

プトン貯蔵シリンダに充てんする。同シリンダは容量約48リットルのステンレス製容器で、最高充てん圧力は2.3MPaGであり、シリンダ1本当たりクリプトンガス約1m³(基準燃料約10tを処理し

た際に発生する量)を貯蔵することができる。回収クリプトンは高濃度の放射性ガスであり、高圧のガスとなることから、気密性を考え、圧縮機を用いた充てん方式は採用していない。

クリプトンをシリンダに充てんする際、クリプトンガスの圧力及び温度は常時監視しており、圧力が設定値以上となった場合又は、温度が設定値以下となった場合は、シリンダ入口の弁を自動的に閉止し充てんを停止するシステムを設けており、シリンダへの過充てんを防止している。クリプトン受槽は100%近い濃度のクリプトンを液体状態で保持するため、冷却源の喪失などに備え、圧力上昇した場合には自動的に回収槽への弁を開くシステムとし、さらに安全弁を設け、二重の圧力上昇防止対策を講じている。

クリプトン貯蔵シリンダは⁸⁵Krの崩壊熱により温度が上昇するが、換気が停止して温度及び圧力が上昇した場合でも、同シリンダは十分な耐圧を有している。

(7) キセノン精留工程

図7にキセノン精留工程の系統図を示す。

キセノン吸着器で脱着したキセノンは $5\text{ Nm}^3/\text{h}$ の窒素ガスでパージされ、本工程に入る。脱着したキセノンガス中には微量のクリプトンが含まれており、キセノン液化塔とキセノン精留塔の2段階で他の成分と分離される。

まず、キセノン液化塔では、ジャケットを液体

窒素で冷却し、キセノンを固体とする。その後、下部ジャケットに温室素を供給し加温することによって窒素を気化し取り除く。次に上部・中部・下部ジャケットに順に温室素を供給して固体のキセノンを液化し、液化したキセノンはキセノン精留塔へ送る。

キセノン精留塔はステンレス製充てん剤を用いた充てん塔で、リボイラ及びカラム並びにコンデンサが一体となっている。また、精留後の精製キセノンをキセノン貯蔵シリンダに充てんする際、カラムとリボイラを切り離すため、カラム下部に仕切弁を取り付けている。キセノン精留塔の構造を図8に示す。精製は圧力 0.15 MPaG で行い、クリプトンなどの低沸点成分は塔頂から調節弁を経て抜き出し、受入・調整工程へリサイクルさせる。キセノン精留工程の機器類は、クリプトン精留工程と同様にコールドコンテナ内に設置し保冷している。

(8) キセノン貯蔵工程

キセノン精留塔でクリプトンを分離除去したキセノン液はヒータによってガス化した後、キセノン圧縮機にてキセノン貯蔵シリンダに充てんする。シリンダは容量約48リットルのステンレス製容器で、最高充てん圧力が 8.8 MPaG であり、シリンダ1本当たりキセノンガス約 7 m^3 (基準燃料約8tを処理した際に発生する量)を貯蔵することができる。

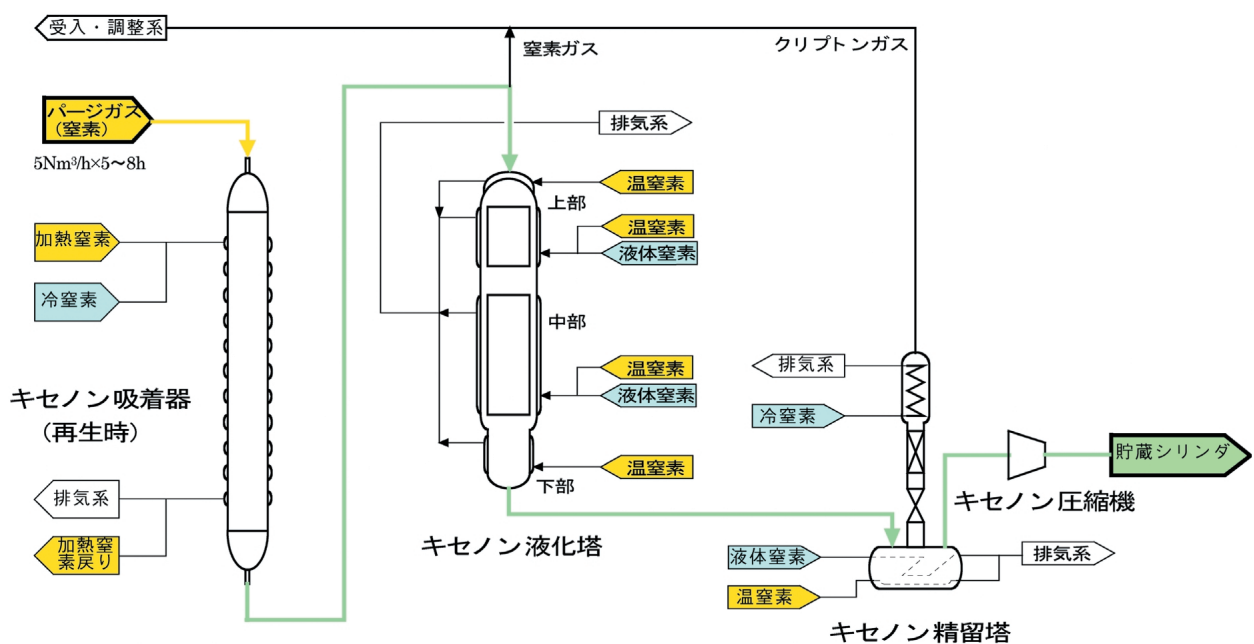


図7 キセノン精留系の工程概要図

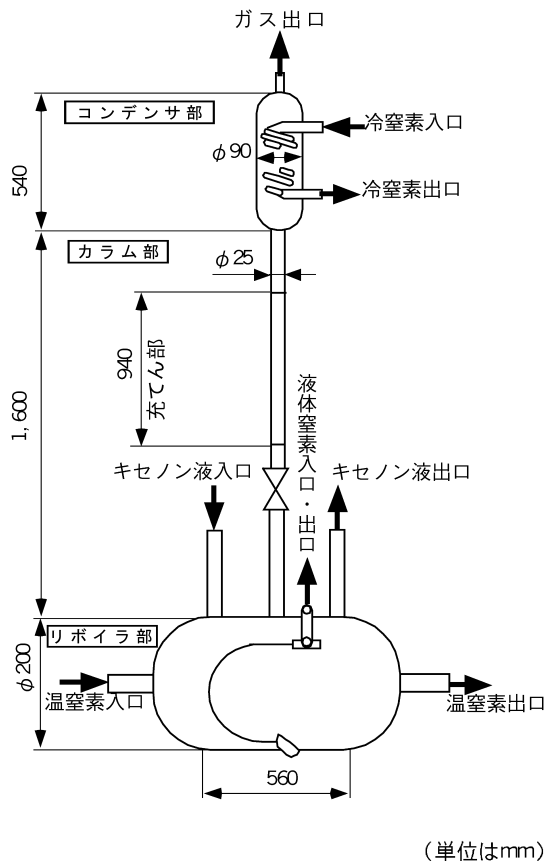


図8 キセノン精留塔の構造図

3.3 運転手順

クリプトン施設の運転手順を表2に示す。クリプトン施設は、液化ガスを取り扱う低温プラントであることから、系統内の水分を十分に追い出す必要があり、運転の最初に窒素ガスによるプラント内のパージを行う。また、この操作と並行して、

表2 クリプトン施設の運転手順

起動操作 (10日)	プラント内窒素パージ
	吸着器再生
	低温部(後工程)冷却
	反応器(前工程)昇温
	空気運転(前後工程の連結)
定常運転	除染回収ガスの処理運転
	オフガスの回収運転
停止操作 (20日)	クリプトンフラッシュアウト
	反応器停止
	低温部停止
	工程内除染回収
	工程内加温パージ

水吸着器、炭酸ガス吸着器及びキセノン吸着器の再生を行う。

次の操作として、プラントを前後の2つの工程に分け、運転の立ち上げを行う。まず、低温となる吸着工程及び精留工程を窒素ガスによる循環運転とした後、冷媒の液体窒素により徐々にプラントを冷却しつつ、精留塔を気液平衡状態へと調整していく。この操作の後半から並行して、脱酸素処理工程の運転を立ち上げるため、受入・調整工程から空気を取り入れながら、反応器に水素ガスの供給を開始し、酸素と水素の反応を徐々に進め、所定の温度まで反応器を昇温する。

前後工程の温度、圧力が安定した後、両工程の連結操作を行い空気運転状態とする。精留塔では、窒素100%の状態から空気中のアルゴンが蓄積され精留塔がバランスし、運転状態が整うこととなる。これら一連の起動操作には、10日間程度が必要となる。

クリプトンの処理運転は、まず、前回の運転停止時にシリンダに回収されず工程内に残存したクリプトンが窒素で希釈された状態で貯槽に回収されていることから、このガスの処理を行う。処理は1日程度で終了する。その後は、分離精製工場のせん断及び溶解工程の処理スケジュールにあわせて両系統のオフガスを受け入れ、クリプトンの回収運転を実施する。

運転停止操作については、まず、オフガスの供給が終わると精留工程の循環槽に回収されたクリプトンを精留し、シリンダ内に極力回収するフラッシュアウト操作を行う。その後、反応器及び低温部を順次停止する。工程内にはある程度クリプトンが残存しており、大気への放出量を極力抑えるため、残存するクリプトンを除染ガス貯槽に回収する。この操作は、系統内への窒素ガス封入と真空引きを繰り返し、圧縮機により除染ガス貯槽にクリプトンを含む窒素ガスを回収する。

この操作によりほとんどのクリプトンが回収された後は、系統内に加温窒素を供給し、工程内を常温に戻すとともに、運転後のメンテナンスが直接行えるレベルまで工程内を除染する。この段階では、クリプトンがほとんど含まれていないため、使用したガスは排気系に排出する。一連の停止操作には、20日程度が必要となる。

4. 運転実績

クリプトン施設は、1983年9月に試運転を含む建設工事を終了し、コールド試験運転から開発運転まで、各種の試験運転を実施した。表3にクリプトン施設の運転実績を示す。

4.1 コールド試験運転

1983年11月からコールド試験運転として、天然のクリプトン・キセノン等を含むガスを用いて11回の試験を実施した。コールド試験の項目を表4に示す。各試験では各工程ごとのプロセス特性を把握するとともに、クリプトン・キセノンの分離、

精製能力、クリプトンの除染係数などを確認し、各工程の最適運転条件を見いだして、運転要領を決定した。また、総合試験、非定常操作対応試験を実施し、施設全体の性能を確認した。

4.2 ホット試験運転

コールド試験運転の成果を踏まえ、1988年3月からは、分離精製工場のせん断及び溶解オフガスを各2バッチ受け入れて(放射エネルギーで 7.2×10^{13} Bq)試験運転を行い、初めてクリプトンの回収に成功した。その後、2回の試験運転では回収したクリプトンガスを原料ガスとしてリサイクルして

表3 クリプトン施設の運転実績

運 転	期間(年)	回数	実 施 内 容
コールド試験運転	1983~1987	11回	・各工程ごとの性能確認, 定常時, 変動時のプロセス特性の操作特性の把握 ・運転要領の決定, プロセスの改造, 改良
ホット試験運転	1988~1990	5回	・せん断オフガス, 溶解オフガスを各19バッチ(計 7.2×10^{14} Bq)受け入れて放射性ガスの閉じ込め性能など安全性の確認 ・分離精製工場との連動運転, 操作性の確認 ・国の最終使用前検査受検, 合格証の取得
開 発 運 転	1991~2001	11回	・せん断オフガスを89バッチ, 溶解オフガスを136バッチ(計 8.6×10^{15} Bq)受入れて, 安定運転, 安全運転の実証 ・精留塔除染係数の測定など核種挙動の把握 ・実ガス処理によるクリプトン回収の実証, 副産物のキセノンガス回収の実証 ・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・保守データの蓄積

表4 クリプトン施設のコールド試験項目

年度	No.	試 験 運 転 名 称	試 験 項 目
1983 (S58)	1	受入・脱酸素処理工程特性試験	・反応器特性試験 ・酸素濃度変動試験 ・全体リサイクル移行試験(その1)
	2	吸着処理工程特性試験	・吸着器特性試験 ・除染ガス処理試験 ・アンモニア生成試験
1984 (S59)	3	主精留塔廻り特性試験	・主精留塔廻り制御性確認試験(その1) ・主精留塔性能確認試験 ・キセノン吸着器温度自動制御試験
	4	クリプトン精留塔特性試験	・クリプトン精留塔特性試験 ・クリプトン精留塔酸素除去性能確認試験 ・主精留塔廻り制御性確認試験(その2)
	5	キセノン精留塔特性試験	・キセノン液化塔特性試験 ・キセノン精留塔特性試験 ・主精留塔廻り制御性確認試験(その3)
1985 (S60)	6	総合試験(その1)	・総合連続運転試験 ・ヨウ素吸着器温度制御試験 ・全体リサイクル移行試験(その2)
	7	分離精製工場との受入バランス試験(その1)	・せん断系オフガス受入試験 ・溶解系オフガス受入試験
1986 (S61)	8	非定常操作対応試験(その1)	・全体リサイクル移行試験(その3) ・改造工部性能確認試験
	9	非定常操作対応試験(その2)	・反応器機能試験 ・主精留塔機能試験 ・クリプトン精留塔機能試験
1987 (S62)	10	総合試験(その2)	・反応器機能試験 ・主精留塔機能試験 ・クリプトン精留塔機能試験 ・クリプトン貯蔵シリンダ移し替え試験
	11	総合試験(その3)	・原料ガス中間貯槽バイパス運転試験 ・全体リサイクル運転対応訓練

使用した。これら3回の試験運転では、作業区域の線量率確認、閉じ込め性の確認など、放射性ガスを取り扱ううえでの基本的な安全性を確認した。

その後、オフガス受け入れを各12回、22回と増加させた第4回目、第5回目のホット試験運転をそれぞれ実施し、分離精製工場とクリプトン施設間のオフガス受け入れ操作性、放射線量増加時の放射線安全やクリプトン・キセノンの分離、精製、充てん機能等の施設の一連の性能等を確認した。

第4回目までのホット試験運転によって、これら施設の安全性、各工程の性能が基本的に確認されたため、第5回目のホット試験運転では国による最終使用前検査を目的に運転を実施した。その際、受け入れた再処理オフガスはせん断及び溶解オフガス各11バッチ、放射線量は約 3.3×10^{14} Bqで、検査受検項目である放射線管理の性能検査に合格した。

4.3 開発運転

1990年12月に使用前検査合格証を取得し、1993年2月から再処理施設で発生するクリプトンを回収する技術を実証するため、本格的に分離精製工場のオフガスを処理しクリプトンを回収する開発運転を開始した。開発運転は、施設に設計ベースのクリプトン量を供給するために、分離精製工場のオフガスに加えて、必要に応じ一旦回収したクリプトンを再度工程にリサイクルした。開発運転では1キャンペーン約40日から約130日の運転を実施し、2001年までに11回実施した。この間、分離精製工場から受け入れたオフガスは、せん断オフガス89バッチ及び溶解オフガス136バッチとなり、受け入れた放射性クリプトンの合計量は、約 8.6×10^{15} Bqであった。また、リサイクル分を含む工程への放射性クリプトンの供給量の総量は、 2.8×10^{16} Bqであり、供給量に対するクリプトンの回収率が90%以上であることなど施設の性能がほぼ設計どおりであることを確認し開発運転を終了した。

5. 運転結果に基づく施設性能の評価

5.1 各工程の性能評価

運転の結果及び設計性能に対する評価の主なものを各工程ごとに述べる。

(1) ヨウ素除去工程

第3回の開発運転においては、最も多くのオフガスを受け入れたことから（せん断オフガス25

バッチ及び溶解オフガスで60バッチ）、この運転におけるデータを基にヨウ素吸着器の除染係数（DF）を評価した。ヨウ素吸着器では前後のオフガスを連続サンプリングしヨウ素を測定した。その結果、供給されたヨウ素量は約 2.4×10^{16} Bq、ヨウ素吸着器出口のヨウ素量は約 1.1×10^{14} Bqであり、除染係数（DF）は220となり、設計目標の200以上であることを確認した。

(2) 受入・調整工程

本工程では、分離精製工場と接続した際に、せん断及び溶解工程に対して、負圧を維持し大きな変動を与えないことが重要となっている。このため、クリプトン施設側の受入・調整工程の圧縮機の吸込み圧を -25 kPaGに制御し、ヨウ素吸着器入口側での圧力を、 -6 kPaGに制御することとしている。クリプトン施設へのオフガスの受け入れは、せん断オフガスで108回、溶解オフガスで155回に及んだが、分離精製工場側の各オフガス系統にある中間槽における圧力は、 $-5 \sim 0$ kPaGの範囲であり、各オフガス単独での受け入れ時及び両系統の受け入れが重なる場合であっても、負圧維持に影響を与えることなくオフガスの受け入れが可能であることを確認した。

また、本工程は、せん断オフガスと溶解オフガスの流量差を吸収し一定量のオフガスを次工程に送り出す役割があるが、運転を通じてその機能に問題はなく、次工程での酸素と水素の反応に影響を与えることはなかった。なお、実オフガスの流量はせん断オフガスで約 70 Nm³/h、溶解オフガスで 15 Nm³/hであったが、設計流量のせん断オフガス 200 Nm³/h及び溶解オフガス 10 Nm³/hを模擬した試験においても、原料ガス中間貯槽のバッファとしての機能に問題のないことを確認した。

(3) 脱酸素処理工程

反応器の入口の酸素濃度は、反応器出口ガス（窒素ガス）の循環により2%に制御している。コールド試験時には、この酸素濃度の変動に対する反応器の性能確認試験を実施した。

また、反応器での除去対象物質である酸素、窒素酸化物及びメタンの供給濃度をパラメータに反応器の性能確認試験を実施した。試験結果を図9に示す。

酸素除去性能については、反応器入口酸素濃度を $1.2 \sim 2.1\%$ に変動させた場合でも、反応器出口酸素濃度は基準値 1 ppm以下に対して、実際の値

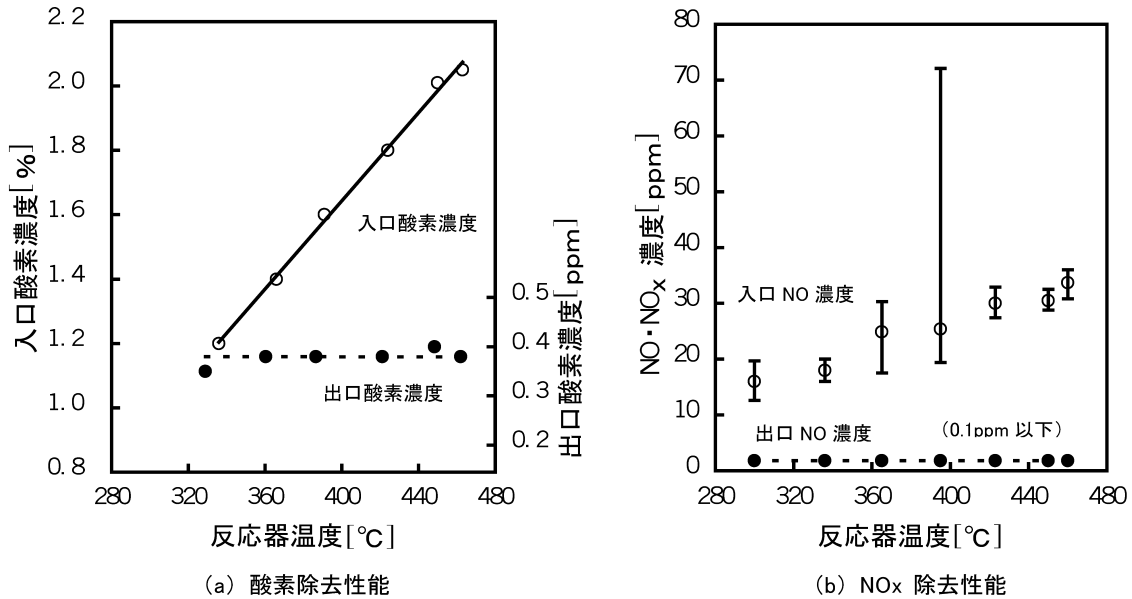


図9 反応器の除去対象成分の除去性能

はいずれも0.6ppm以下であり、所定の性能が保たれることが確認された。

窒素酸化物除去性能については、窒素酸化物(NO_x)濃度は原料ガス中間貯槽出口において1~100ppmに対して、反応器出口において0.1ppm以下となり、基準値の1ppm以下を十分に満足した。

実ガスの処理時においても、酸素、窒素酸化物及びメタンが出口側で基準値を超えることはなく、良好な結果が得られた。なお、ガス中の窒素酸化物の濃度変動は1~100ppmであり、メタンは検出限界(0.1ppm)以下であった。

(4) 吸着処理工程

水吸着器、炭酸ガス吸着器及びキセノン吸着器のいずれの吸着器も2基を一定時間毎に切替しており、いずれの吸着器も出口側で基準値の1ppmを超えるリークがなく、また低温工程での各物質の凍結による機器・配管の閉塞事象が生じることはなかった。なお、切替時間については、コールド試験の結果、キセノン吸着器においてキセノンの破過が設計の6日より1日程度早く始まることが確認されたため、4日で切替を行うこととし、切替のタイミングを合わせている炭酸ガス吸着も4日サイクルで運転することとした。

再生工程における各吸着器の加熱・脱着・洗浄・再冷却などの一連操作はタイマーシーケンスで自動的に作動することが確認できた。炭酸ガス吸着器については、脱着した炭酸ガスを換気系に排出しているが、排出ガスに同伴して放出されるクリ

プトンの量は極微量であり、クリプトンの回収率に影響を与えないことが確認できた。

(5) クリプトン精留工程

1) 主精留塔

a) 主精留塔の処理ガス流量と除染係数(DF)

主精留塔への供給ガス流量と除染係数(DF)の関係について調べた。供給ガス流量を設計値の107Nm³/hを基本に変動させ、主精留塔への供給クリプトン濃度を平均30ppmとして、DFの測定を行った。その結果、塔内圧力が安定し、DFの低下がみられない流量範囲は95~120Nm³/hであることを確認した。さらにこの流量範囲ではDFは約1,000~3,000であり、設計値の1,000を超えた安定した運転が行えることが確認できた。図10(a)に処理ガス流量とDFの関係を示す。

b) 供給ガスのクリプトン濃度と除染係数(DF)

主精留塔へ供給されるクリプトン濃度は、せん断及び溶解の状態などにより変動する。そこで、主精留塔へ供給するガス中のクリプトン濃度を30~4,400ppmまで変化させ、DFを調べた。

その結果、図10(b)に示すように、DFは約2,000~4,600となり、設計値の1,000以上に安定して保たれたことが確認できた。DF値は入口クリプトン濃度が大きくなるにつれて増加する傾向が見られた。また、この範囲の濃度変化であれば、主精留塔から排出されるクリプトンは極微量であり、クリプトン濃度の変動に対する問題はないことが確認できた。

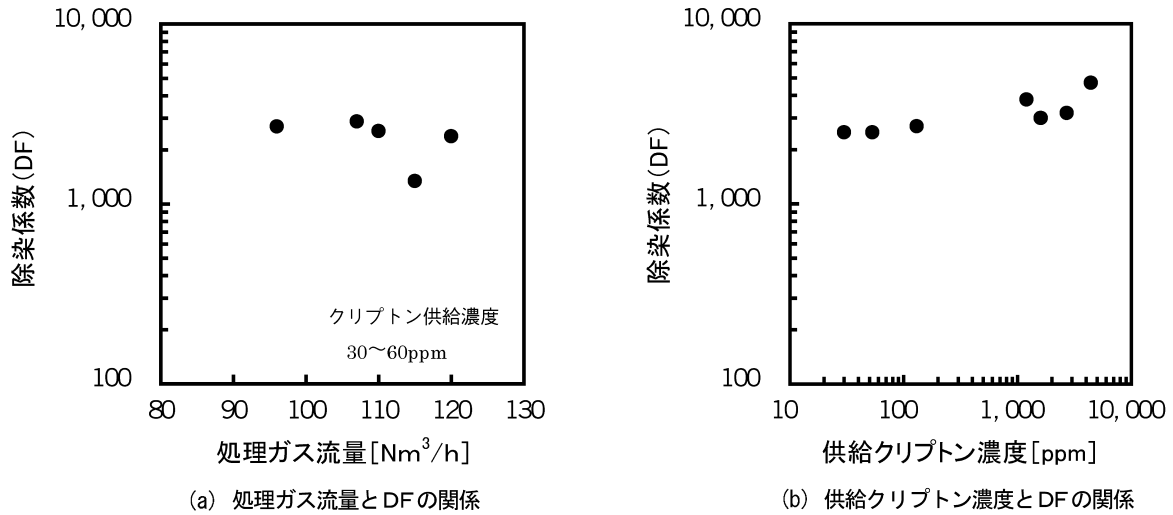


図10 主精留塔の除染係数

その他、主精留塔の制御特性に関しては、主精留塔内圧を一定とし、主精留塔の塔頂部を冷却するコンデンサ部の液体窒素の液面を15~30%の範囲で一定とし、それにバランスさせるように下部のリボイラからの蒸発量を調整することによってDFが高く最も安定した運転が行えることが確認できた。

2) クリプトン精留塔

図11にコールド試験及びホット試験時のクリプトン精留塔の精留特性を示す。

クリプトン精留塔では、数%~10%の濃度となったクリプトンが供給される。精留操作は、ま

ず、塔頂弁を閉じたまま下部を加熱し全還流状態で気液平衡とする。その後、塔頂弁を徐々に開き、高沸点成分を分離しクリプトンを濃縮する。精留が進むにつれ、主成分の窒素が分離されて他成分の濃度が上昇し、次にアルゴンなどが分離される。精留塔の圧力はリボイラの加熱量の調節などにより0.25MPaGに維持し、温度は精留終了時には-130程度に上昇する。1バッチの操作には半日程度の時間を要し液体のクリプトンが数リットル精製される。

精留塔の運転のポイントは、塔内圧力、塔内差

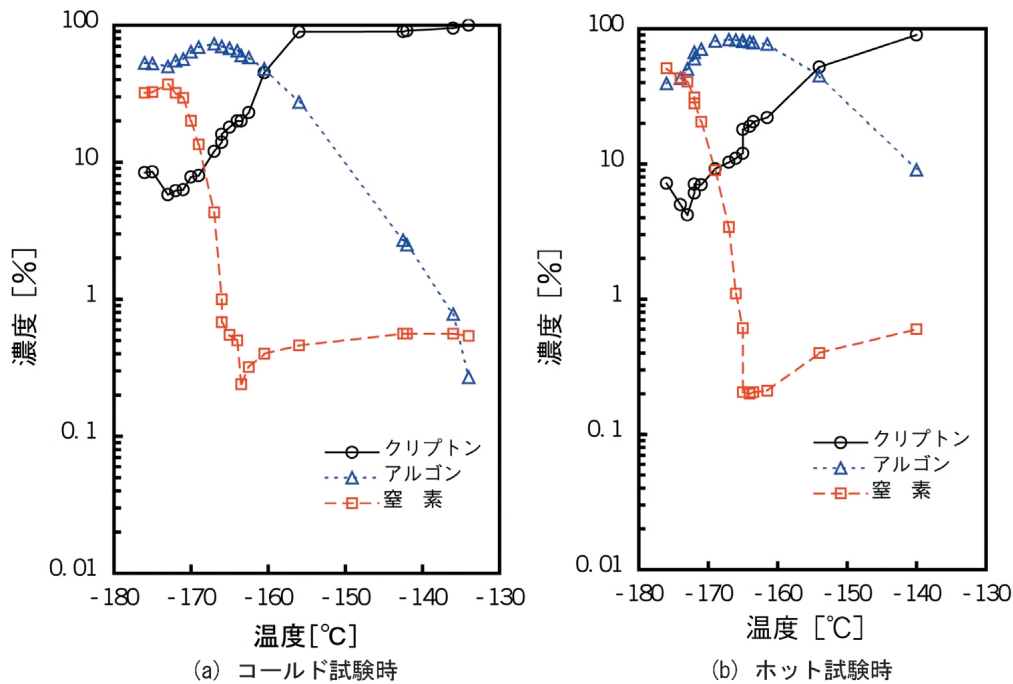


図11 クリプトン精留塔の精留特性

圧を一定に保ち、気液平衡を維持しつつ、低沸点成分を塔頂から留出させることにある。この留出特性についてはコールド試験及びホット試験において大きな差はなく、安定した操作が行えることを確認した。

開発運転で回収・精製したクリプトンの純度は95%以上、含有酸素は約50ppm以下となり、目標仕様の純度90%以上、酸素1.3%以下を十分満足した。

(6) キセノン精留工程

1) キセノン液化塔

キセノン液化塔は、キセノン吸着器に吸着された4日分のキセノンとキャリアガスの窒素を受入れる。キセノンは塔内で凍結させ、窒素を蒸発させ除去した後、キセノンを上部から順に融解した後、キセノン精留塔に送る。この一連の操作は、特に問題となることはなく、99%のキセノン溶液を得ることができた。

なお、この操作は、温度、濃度条件などを整えたうえで、約2日間にわたり順次操作を進める必要があることから、制御用コンピュータを導入し、バルブ切替操作、基本温度上昇パターンに沿った加温を行うとともに、分析などの操作を自動化し、手動操作を大幅に軽減した。

2) キセノン精留塔

キセノン液化塔からキセノン精留塔へ受け入れ

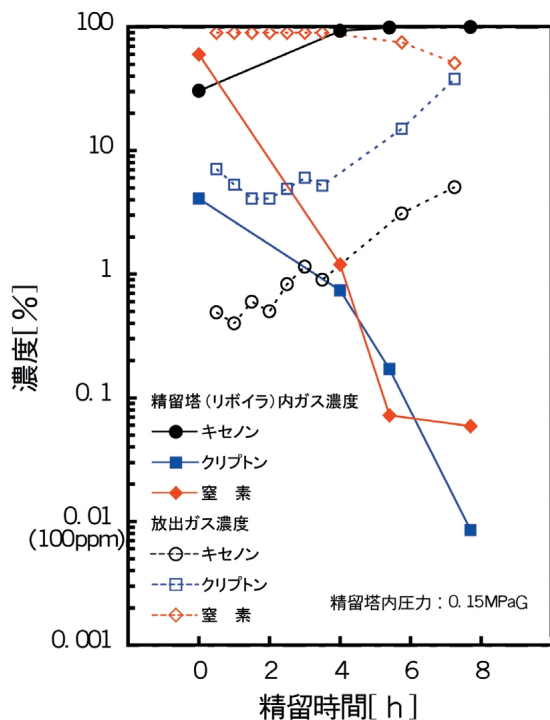


図12 キセノン精留塔の精留特性(コールド試験時)

たキセノンの濃度は、この時点で99%程度となっている。キセノン精留塔では、0.5%程度含まれるクリプトンを目標の100ppm以下となるよう精留操作を行った。コールド試験時に確認した精留特性を図12に示す。精留操作は、塔内の圧力を0.15MPaGに維持し、約8時間を要した。キセノンの沸点と凝固点の差は4と小さく、精留時にわずかな量のクリプトンを抜き出しながら圧力を一定に保つことが難しいため、塔頂の抜出弁に微小口径の抜出弁を併設、精留操作を安定させるなどの改良を加えた。その結果、開発運転では再処理オフガスからクリプトン濃度が設計値の100ppm以下のキセノンを安定して回収できた。

5.2 試験結果のまとめ

これまで述べた各工程の性能評価を踏まえて、クリプトン施設の運転実績の総合的なまとめを以下に示す。また、クリプトン施設の開発運転における工程性能の確認結果のまとめを表5に示す。

(1) 回収率について

ホット運転及び開発運転の処理前後の放射エネルギー測定に基づくクリプトン回収率を表6に示す。

クリプトン施設への放射性クリプトンの総受入量は、約 9.3×10^{15} Bq、施設内でのリサイクル処理を含めた総処理量は約 3.0×10^{16} Bqであり、回収率は99%であった。また、キセノンの回収につい

表5 開発運転における工程性能の確認結果

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	200以上	
脱酸素処理	反応器出口O ₂ 濃度	1 ppm以下	0.6 ppm以下	
吸着処理	H ₂ O除去	H ₂ O吸着器出口H ₂ O濃度	1 ppm以下	0.6 ppm以下
	CO ₂ 除去	CO ₂ 吸着器出口CO ₂ 濃度	1 ppm以下	0.1 ppm以下
	Xe除去	Xe吸着器出口Xe濃度	1 ppm以下	0.1 ppm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	125 ppm以下	50 ppm以下	
	Kr精留塔の酸素濃度	1.3%以下	50 ppm以下	
Kr回収	回収Kr純度	90%以上	95%以上	
Xe回収	回収Xe純度	95%以上	99%以上	

表6 クリプトン施設の放射性クリプトンガスの回収率

運 転 名	運転 期間 (日)	せん断オフガス	溶解オフガス	受け入れ量	除染ガス貯槽 からの供給量 [Bq]	供給量合計 [Bq]	放出量 [Bq]	回収率 (%)
		(バッチ数)	(バッチ数)	[Bq]				
ホット試験運転 1	52	2	2	7.22E+13	-	7.22E+13	2.11E+11	99.7
ホット試験運転 2	65	-	-	-	6.89E+13	6.89E+13	5.00E+11	99.3
ホット試験運転 3	45	-	-	-	6.70E+13	6.70E+13	1.13E+12	98.3
ホット試験運転 4	62	6	6	3.10E+14	5.28E+13	3.63E+14	1.07E+13	97.1
ホット試験運転 5	59	11	11	3.33E+14	3.36E+14	6.69E+14	2.04E+12	99.7
ホット試験運転合計	283	19	19	7.15E+14	5.25E+14	1.24E+15	1.46E+13	
開発運転 1	58	-	-	-	6.32E+14	6.32E+14	3.16E+11	100
開発運転 2	44	-	-	-	1.82E+14	1.82E+14	4.47E+11	99.8
開発運転 3	127	25	60	3.41E+15	-	3.41E+15	8.62E+13	97.5
開発運転 4	90	34	34	2.61E+15	3.22E+15	5.83E+15	2.02E+13	99.7
開発運転 5	81	22	34	1.98E+15	4.03E+15	6.01E+15	3.09E+13	99.5
開発運転 6	70	8	8	5.76E+14	3.54E+15	4.12E+15	5.71E+13	98.6
開発運転 7	66	-	-	-	4.20E+15	4.20E+15	2.09E+13	99.5
開発運転 8	63	-	-	-	1.94E+15	1.94E+15	1.54E+13	99.2
開発運転 9	55	-	-	-	8.70E+14	8.70E+14	2.31E+11	100
開発運転 10	38	-	-	-	6.16E+14	6.16E+14	6.11E+12	99.0
開発運転 11	42	-	-	-	5.88E+14	5.88E+14	1.10E+12	99.8
開発運転合計	734	89	136	8.58E+15	1.98E+16	2.84E+16	2.39E+14	
総 計	1,017	108	155	9.30E+15	2.03E+16	2.96E+16	2.54E+14	

てもほぼ全量を回収可能であることを確認した。

主精留塔のクリプトンのDFは1,000程度であり、運転中にはほとんどクリプトンが回収され、クリプトンの排出については、運転終了時に工程内を洗浄する際に排出されるクリプトンが大部分を占めた。

回収されたクリプトンの濃度は、95%程度であり、不純物としては、アルゴン、窒素と微量の酸素などである。酸素はオゾン爆発を考慮して設定された1.3%以下を十分下回る50ppm以下であった。

回収されたキセノンの濃度は99%以上で、不純物として混入するクリプトンの濃度は設計目標の100ppm以下であった。

(2) 運転性能について

最長4ヵ月にわたって連続運転で安定した連続運転を達成した。

せん断オフガス108バッチ、溶解オフガス155バッチの受け入れ及び2週間の分離精製工場からの連続接続による受け入れにより、再処理工程との連動運転に問題のないことを確認した。

前処理の不純物(ヨウ素、酸素、水分、二酸化炭素、キセノン)除去については、精留塔に不純物が流入し運転に影響を与える事象はなく十分な除去性能が得られた。

連続精留工程については、制御方法の変更などによって、安定した運転方法を確立した。

クリプトン精留工程及びキセノン精留工程は、圧力などの操作条件を確立し、それぞれ目標として設定したクリプトン濃度90%以上、キセノン濃度99%以上の純度で回収できることを確認した。

クリプトン、キセノンシリンダへの充てん操作に問題はなく、充てん中及び貯蔵期間中にガスが漏洩することはなかった。

(3) 放射性ガスの閉じ込めについて

クリプトン施設では放射性ガスを多量に扱うことから、放射性物質の漏洩防止対策として特に以下の対策を講じており、これらが有効に機能し、十分な閉じ込め性を維持することができた。

機器配管の接続は原則的に溶接構造とした。

精留塔などのクリプトン濃縮部は保冷の目的も兼ねて密閉構造のコンテナ内に設置した。

安全弁の放出口を中間貯槽に接続し、もし圧力上昇が発生した場合でも可能な限り回収することとした。

安全弁には漏洩を防止するため、破裂板（ラプチャーディスク）を設置した。

クリプトン、キセノン貯蔵シリンダはプロセス配管と溶接接続した。

往復型圧縮機は窒素ガス密封式とした。

分析排ガス、槽類換気はプロセス側ヘリサイクルするなど閉サイクル方式とした。

また、クリプトンの施設内漏えいを検知するために、貯蔵シリンダを設置したセル、コンテナ内、圧縮機等を設置したアンバー区域などには、クリプトンガスモニタを設置し常時監視を行い、漏えいの有無の判断に有効に活用した。

(4) 安全対策について

クリプトン施設における重要な安全対策としては、反応器における水素、低温部におけるオゾン、水素ガス貯槽における水素に対する火災・爆発防止がある。

このうち、
については工程概要で説明したように酸素・水素の濃度制御が有効に機能して、その安全性が確保されることを確認できた。

また、
については、高圧ガス保安法に基づく可燃性ガスの管理を実施することにより、漏えい検知器、安全弁等が作動するような事象は発生せず安全に管理することができた。

(5) 設備保全について

施設の主な設備保全としては、まず換気設備などのユーティリティ設備、ポンプ類の回転機器などの点検・補修を実施した。その他、原子炉等規制法に基づき毎年検査を実施するほか、高圧ガス保安法に基づく検査などを実施した。両法に基づく主な検査項目を表7に示す。

これらの定期的検査、点検・補修などの設備保全は問題なく対応できたが、改善の余地があるものを以下に示す。

コンテナ内には主要機器を一括して収納し、機器の保冷・断熱には粉末状の断熱材を充てんしているが、内部機器の点検・保守が困難なことから、ある程度分割した収納方法により、個別に補修できる構造とする必要がある。

気密構造の観点から極力溶接構造としているが、放射性物質の濃度・インベントリーの低い箇所についてはフランジ接続とし検査、保守が容易

表7 クリプトン施設の主な設備検査項目

法令	検査の種類	実施頻度	検査項目
原子炉等規制法	の運転検査中	1回/年	線量率の測定
			空気中の放射性物質の濃度の測定
	停止中の検査	1回/年	反応器緊急操作系の作動試験
			セル内等漏えい検知装置の警報試験
			換気系の負圧測定及び警報試験
			換気系インターロックの作動試験
			定置式モニタ類の性能検査
無停電電源装置の作動試験			
圧空設備圧縮機の性能検査			
高圧ガス保安法	保安検査・定期自主検査	1回/年	圧力計及び温度計の比較検査・校正
			気密試験
			安全弁性能検査
			肉厚測定
			接地抵抗検査
			不同沈下測定
	ガス漏えい検知警報器性能検査		
容器再検査	*1	貯槽開放検査	
	*2	貯蔵シリンダ	
点検・整備	1回/3-5年	プロセス圧縮機分解点検	

*1 15年に1回

*2 経過年数20年未満のものは5年に1回、経過年数20年以上のものは2年に1回

となるようにする必要がある。

(6) 被ばく管理について

外部被ばく管理は、TLD（熱蛍光線量計）及び指リングによって3ヵ月ごとに行っているが、運転、保守及び改造工事をとおして検出限界（0.1mSv）を上回る有意な被ばくはなかった。

また、内部被ばくの発生はなかった。

(7) 設備改造について

設備改造については、自由度のあるコールド試験時の工程パラメータを変化させた特性確認や機能確認を基に実施したものが大部分であった。主要な設備改造の項目について工程設備及び付帯設備ごとに分類した一覧を表8に示す。これらの設備改造の結果、ホット試験では大きな改造を行うことはなく、順調に試験を進めることができた。

(8) 運転体制・運転費用について

1) 運転体制

クリプトン施設では1班当たり5名の4班3交替制で運転を行った。また、日勤者2名でガス類

表8 クリプトン施設の主要な設備改造

工 程 分 類	改 造 項 目	
主 要 工 程 設 備 の 改 造	受 入 ・ 調 整	原料ガス圧縮機のシリンダウエアバンドの材質変更 除染ガス処理供給弁の小流量化による2系列化
	脱 酸 素 処 理	反応器系制御の安定性のため、水素分析計の2系列化
		均一ガス分析のため、酸素分析計サンプリング位置の変更
		循環圧縮機のシリンダウエアバンドの材質変更
		水素ガス検知器用排ガス系統の変更
	水 吸 着	流量調節計制御信号切替えの変更
	炭 酸 ガ ス 吸 着	再生時の加熱用窒素流量の自動調節化
	キ セ ノ ン 吸 着	キセノン吸着器冷却用液体窒素供給ラインの設置及び自動調節化
		キセノン吸着器温度の自動制御化及び再生時の加熱用窒素流量の自動調節化
	ク リ プ ト ン 精 留	主精留塔塔内圧力及びコンデンサ液面の自動調節化
		再循環ガス放出ラインの設置
		クリプトン精留塔コンデンサ冷却用窒素及びリボイラ加熱用窒素圧力の遠隔操作化
	キ セ ノ ン 精 留	キセノン液化塔のバッチ運転のプロセスコンピュータによる自動化
		精留塔塔頂抜き出し弁の少量化による2系列化
キセノン精留塔コンデンサ冷却用窒素及びリボイラ加温用窒素圧力の遠隔操作化		
付 帯 設 備 の 改 造	廃 液 処 理	分析用廃液配管の設置
		地下浸透水中間貯槽の設置
	安 全 放 出	安全弁吐出配管への凝縮水流入防止のため、接続位置の変更
		圧縮機ベントラインの改造
	除 染 回 収	除染ガス圧縮機室遠隔監視設備の設置
		圧縮機（K68）用潤滑油クーラの設置、回収系除染ガス配管の変更
	換 気	差圧計の基準圧力検出位置の変更、風速計の設置
	分 析	分析専用排ガスブロワの設置、分析用パージ窒素配管の設置
	蒸 気 供 給	蒸気用仕切弁の蒸気積算計の設置
	冷 却 水 供 給	屋上冷水配管凍結防止のため、蒸気トレース設置
		冷却貯槽圧力調節弁及び圧力上昇警報の設置
計 装 空 気 供 給	計装用空気圧縮機の2系列化	
窒 素 供 給	温室窒素配管マイクロヒータの設置	
水 素 供 給	パージ用窒素供給ラインの設置、水素ガス貯槽散水配管の改造	

の受け入れ、廃液分析などを行うとともに換気、ユーティリティの運転、保守要員として3名を配置し、合計25名の体制とした。1班5名の役割は、班長1名、パネル操作担当者2名、工程ガス分析担当者1名、現場巡視点検等の機械担当者1名である。

なお、運転開始当初は1班6人体制であったが、操作方法の確立、操作の自動化などにより、合理化が図れた。

2) ユーティリティ使用量

クリプトン施設の運転に必要なユーティリティ

の項目は、電力、液体窒素、水素、飲料水、工業用水及び蒸気である。このうち主要なユーティリティである電力、液体窒素及び水素の使用量の実績を表9に示す。

ユーティリティの費用は運転時で約2,000万円/月、停止時で約300万円/月であった。運転時の内訳は、液体窒素がもっとも多く56%、次いで電力が24%、水素が18%であり、停止時では約90%を電力が占めた。

なお、工業用水、飲料水及び蒸気の年間費用はユーティリティの年間総費用の2%以下であった。

表9 クリプトン施設運転時のユーティリティ使用量

項目	用途	使用量	コスト
液体窒素	精留機器の冷却，加温・パージ，圧縮機のシール等	280t / 月	1,100万円 / 月
水素	反応器に供給し，酸素・窒素酸化物・炭化水素を除去	25,000Nm ³ / 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			2,000万円 / 月

3) 点検・保守費用

点検・保守費用とは、点検・検査、修理・補修、消耗品・備品にかかる費用であり、実績から費用をまとめた結果、年間平均で建設費（50億円）の2%程度（約1億円）であった。

6. 技術開発の現状と今後の計画

6.1 クリプトン回収技術開発

クリプトン回収技術開発については、コールド試験、ホット試験、開発運転を通じて、技術の実証ができたことから、基本的に課題はないと考えている。

6.2 クリプトン貯蔵技術開発

高圧シリンダ貯蔵については、貯蔵シリンダは高圧ガスの容器として、一定期間ごとの容器再検査及びセル内の充てん配管の保安検査を受検しなければならないという管理上の課題がある。このため、長期の安全性及び合理性のある貯蔵技術としてイオン注入法技術が必要であると考えている。

イオン注入固定化法については、これまでにクリプトン施設の一部を改造して小規模のホット試験設備を設置し、回収ガスを用いたホット試験を実施している。今後は、実用性の観点から装置をスケールアップして性能向上を図っていく計画である。

7. おわりに

再処理オフガスから放射性クリプトンを回収するプロセスとして液化蒸留法を適用し、実証規模施設での技術開発を実施した。その結果、施設の安全設計に問題はなく、各工程の性能も所定の能

力を有し、クリプトンの回収率については、目標である90%以上を安定して達成できることを確認した。回収したクリプトンの貯蔵技術については、高圧シリンダ法を適用したが、種々の検査への対応の面で実用性に課題があり、長期安定貯蔵として開発を進めているイオン注入固定化技術を適用する必要がある。このため、クリプトン回収後の長期貯蔵技術としては、今後も継続して固定化技術開発に取り組んでいく予定である。

再処理施設から放出される放射性ガスについては、開発を開始した当初（1970年代）に2000年時点の全世界の原子力発電の伸びを最大42.6億kWeと予測し、再処理に伴うクリプトンの放出による大気中の濃度上昇の影響は無視できないと考えられた。このため、過去には（1960年～1980年代）世界の主要国でクリプトン回収技術開発が進められ、サイクル機構でも開発に取り組んできた。その後、原子力発電の伸びの鈍化や再処理計画の見直しなどにより、現在まで技術開発を進めているのはサイクル機構が唯一の機関である。クリプトンの放出に伴う影響については、東海再処理施設では、安全審査において年間最大処理量をベースに、敷地境界最大地点での実効線量は約5.1μSv/年と評価されている⁷⁾。また、1977年運転開始以降のクリプトンの放出量実績による評価では、年間0.9μSv/年以下であり、公衆の実効線量限度1mSv/年と比較しても十分小さい値である⁸⁾。また、国連科学委員会の報告（1993年）によれば、大気中の放射性クリプトン濃度は北半球1.2Bq/m³で、その上昇は1970年代の2倍程度である⁹⁾。

このように現時点で、再処理施設においてクリプトンの放出による地域的及び地球規模的に問題となる影響はないといえる。また、2000年における全世界の原子力発電量（設備容量）は、当初予測の約10分の1の4.36億kWeとなっており¹⁰⁾、早急にクリプトンを回収する技術の確立が求められることはないと考えられる。一方、地球環境問題を背景に世界のエネルギー消費が飛躍的に増加する場合、原子力の役割がさらに増加することが予想される。その場合にはクリプトンが大気全体に拡散する核種であるため、グローバルな視点から注目されることも予想され、クリプトンの放出低減化技術は、将来的な備えの一つとしての選択肢は変わらないと考えている。今後とも、環境問題などの社会の動向、経済性を踏まえた合理的な技

術開発の必要性などを考慮し、これまでに培った技術を将来に活かせるようにしておくことが重要であると考えている。

参考文献

- 1) 中西芳雄, 他: “再処理施設における放射性希ガス処理”, 日本原子力学会誌, Vol 21, No .6(1979).
- 2) 東海事業所再処理工場技術開発部試験運転第一課: “クリプトン回収技術開発施設”, 動燃技報, No 55, p .61~63 (1985).
- 3) 石山啓一, 他: “クリプトンのゼオライト封入固定化技術”, 神戸製鋼技報 Vol 39 ,No .2 ,April(1989).
- 4) 林晋一郎, 他: “イオン注入法によるクリプトン固定化技術の開発”, 動燃技報, No .101, p .103~117 (1997).
- 5) 木村典道, 他: “クリプトンガスのイオン注入固定化試験X V III 放射性クリプトンガスでの特性試験及び長期連続試験”, 日本原子力学会誌要旨集(2001年秋の大会), N30 .
- 6) 冨来靖, 他: “再処理オフガスに含まれるキセノンの有効利用に向けた精製試験”, サイクル機構技報, No .15, p .113~129 (2002).
- 7) 核燃料サイクル開発機構, : “使用済燃料等による放射線の被ばく管理及び放射性廃棄物の排気に関する説明書”, 再処理施設設置承認申請書添付書類5 ,p .5 3 50 (2002).
- 8) 茨城県東海地区環境放射線監視委員会「環境放射線監視委報」
- 9) Meteorological Organization Global Atmosphere Watch : “REPORT OF AN EXPERT CONSULTATION ON ⁸⁵Kr AND ²²²Rn : measurements , effects and applications ”, Freiburg ,Germany ,28 31 March (1995)
- 10) 日本原子力産業会議: “世界の原子力発電開発の現状”(2001).