



東海再処理施設における液体廃棄物の 放出モニタリングについて

水谷 朋子 宮河 直人 武石 稔

東海事業所 放射線安全部

Effluent Monitoring of Low Level Liquid Wastes from Tokai Reprocessing Plant

Tomoko MIZUTANI Naoto MIYAGAWA Minoru TAKEISHI

Radiation Protection Division, Tokai Works

サイクル機構東海事業所では、再処理施設から海洋に放出する低レベル放射性液体廃棄物の放出モニタリングを実施してきた。

放出前のモニタリングでは、迅速に放射能の定量ができる全 α 放射能、全 β 放射能、 ^3H 、 γ 線放出核種 (^{137}Cs など) を対象としている。更に、 ^{89}Sr 、 ^{90}Sr 、 ^{129}I 、 $\text{Pu}(\alpha)$ (^{238}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ の合計値) に係る核種ごとの放出量は、月ごとの排水量の割合に応じて調整したコンポジット試料を用い、放射化学分析を行い把握している。

これまでのモニタリング結果から、東海再処理施設からの放出放射能量は、1980年代に廃液処理工程の改良による低減が見られた。東海再処理施設からの放出放射能量を海外の再処理施設と比較するために、電気出力に換算した燃料処理量 (GWa) で規格化した。規格化した放出放射能量は、運転状況に依存して放出される ^3H を除き、いずれの核種も海外の施設に比べて3～5桁低い量であった。

また、海洋放出口周辺の海底土で検出されるプルトニウムは、 $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比が0.016～0.034であることからフォールアウトに起因するものであり、放射能比が約1.5～3.5である再処理施設排水の影響ではないと考えられる。

Effluent monitoring was performed for low level liquid wastes discharged from Tokai Reprocessing Plant (TRP) into the Pacific Ocean.

For every discharge, concentrations of rapid measurable radioactivity such as gross-alpha nuclides, gross-beta nuclides, ^3H and gamma emitters (e.g. ^{137}Cs) were monitored for every batch of liquid effluent samples and were confirmed to be less than the authorized limit before discharge. For the purpose of monitoring the total amounts of radioactive materials, ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{129}I and Pu isotopes (^{238}Pu , ^{239}Pu and ^{240}Pu) of a monthly composite sample were measured the radiochemical analysis.

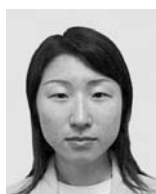
As the result of effluent monitoring, the discharge amount of radionuclide from TRP has decreased since 1980 by the improvement of the waste treatment process. To compare the discharged amounts from TRP with those of foreign reprocessing plants, both discharged amounts were normalized by the unit of energy generated (GWa). The normalized discharged amount from TRP has been one thousand to one hundred thousand of foreign reprocessing plants except for ^3H .

Pu activity ratio ($^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$) of the effluents was approximately 1.5 to 3.5, and was different from those of the seabed sediment samples (0.016-0.034) around the discharge point of TRP. Pu isotopes detected in seabed sediment samples were not originated from TRP but from global fallout.

キーワード

放出モニタリング, 迅速分析法, 処理工程の改良, 規格化放出量, Pu同位体, 放射能比

Effluent Monitoring, Simple Method, Improvement of the Waste Treatment Process, Normalized Amount of Discharge, Pu Isotopes, Activity Ratio



水谷 朋子

環境監視課分析チーム所属
技術員
放出管理業務に従事



宮河 直人

環境監視課長代理
施設周辺環境モニタリング
及び放出管理業務に従事



武石 稔

環境監視課長
施設周辺環境モニタリング
及び放出管理業務に従事

1. はじめに

サイクル機構東海事業所では、再処理施設から海洋へ放出する低レベル放射性液体廃棄物の放出モニタリングを行っている。

放出モニタリングでは、蒸発処理等の処理工程による放射性物質の除去、中和処理・一般公害物質の除去を行った低レベル放射性廃液を、貯留タンクから採水・分析し、放出廃液中の放射性物質濃度及び放出量が再処理施設保安規定に定められた基準(表1)を下回っていることを確認している。

一般的に、他の原子力施設等では、線量当量告示に定められている排水中濃度限度に基づいて放出基準が定められ、濃度で管理している。これに対して、再処理施設の場合は、放出後の海洋拡散による希釈効果を考慮し、周辺監視区域外の実効線量が $250\mu\text{Sv}/3$ ヶ月以下となるよう管理することが法令¹⁾²⁾で定められている。東海再処理施設保安規定に定める1年間の最大放出量の放射能が放出されたと仮定した安全審査における実効線量の評価は、 $5.4\mu\text{Sv}/\text{年}$ である。3か月当たりの最大放出量は、1年間の最大放出量の約4分の1であり、海洋拡散の変動を考慮しても、放出基準を下回っていれば法令の線量限度を超えるおそれはない。

本報告では、東海再処理施設の運転開始からこれまでににおける放出モニタリング結果より、放出放射エネルギーの推移を、運転状況及び海外再処理施設との比較結果とともに報告する。

表1 東海再処理施設保安規定に定める処理済廃液の放出基準及び1年間の最大放出量

核 種	最大放出濃度 (Bq/cm ³)	一日当たりの最大放出量 (GBq)	3か月当たりの最大放出量 (GBq)	1年間の最大放出量 (GBq)
全 α 放射能	3.0×10^{-2}	1.1×10^{-2}	1.0	4.1
全 β 放射能 (³ Hを除く)	1.2×10	3.7	2.4×10^2	9.6×10^2
³ H	2.5×10^4	7.4×10^3	4.7×10^5	1.9×10^6
⁹⁵ Zr- ⁹⁵ Nb	5.9×10^{-1}	1.7×10^{-1}	1.0×10	4.1×10
¹⁰³ Ru	9.3×10^{-1}	2.7×10^{-1}	1.6×10	6.4×10
¹⁰⁶ Ru- ¹⁰⁶ Rh	7.4	2.1	1.3×10^2	5.1×10^2
¹³⁴ Cs	8.5×10^{-1}	2.5×10^{-1}	1.5×10	6.0×10
¹³⁷ Cs	7.8×10^{-1}	2.3×10^{-1}	1.4×10	5.5×10
¹⁴¹ Ce	8.1×10^{-2}	2.4×10^{-2}	1.5	5.9
¹⁴⁴ Ce- ¹⁴⁴ Pr	1.7	5.2×10^{-1}	3.0×10	1.2×10^2
¹²⁹ I	(注1) 3.7×10^{-1}	(注2) 1.1×10^{-1}	6.7	2.7×10
¹³¹ I	1.6	5.2×10^{-1}	3.0×10	1.2×10^2
⁸⁹ Sr	(注1) 2.3×10^{-1}	(注2) 7.0×10^{-2}	4.1	1.6×10
⁹⁰ Sr	(注1) 4.8×10^{-1}	(注2) 1.4×10^{-1}	8.1	3.2×10
Pu(α)	(注1) 3.0×10^{-2}	(注2) 1.1×10^{-2}	5.9×10^{-1}	2.3

(注1) 1か月平均1日最大放出濃度

(注2) 1か月平均1日最大放出量

また、事業所周辺の環境モニタリングの結果から、海洋放出口周辺海底土のPu放射能比を、放出廃液のそれと比較し、海底土試料で有意に検出されたプルトニウムが施設の運転に伴うものか、過去の大気圏内核実験によるものであるかを確認した。これについてもあわせて報告する。

2. モニタリング方法

液体廃棄物の放出モニタリング対象核種及び分析法を表2に示す。

再処理施設から海洋へ放出する低レベル放射性廃液は、廃液処理工程を経て、一旦貯留タンクに貯留し、バッチごとに放出前モニタリングを行っている。放出予定廃液の採水から分析、放出可否の決定までは、施設の運転上、半日程度で行う必要がある。このため、放出前のモニタリングにおいては、複雑な化学分離操作を伴わずに迅速に測定ができる γ スペクトロメトリ、全 α 放射能分析法及び全 β 放射能分析法によって、放出基準を下回っていることを確認している。したがって、¹³⁷Csなどの γ 線放出核種は γ スペクトロメトリで、純 β 核種の⁸⁹Sr、⁹⁰Sr及び $\beta(\gamma)$ 核種は全 β 放射能分析法で、Pu(α)(²³⁸Pu、^{239,240}Puの合計値)は全 α 放射能分析法でそれぞれ評価している。

更に、⁸⁹Sr、⁹⁰Sr、¹²⁹I、Pu(α)については、海洋放出に起因する一般公衆の実効線量等を評価するために、月ごとに排水量に応じた割合でコンポジット試料を調整し、放射化学分析を行って核種ごとの放出量を把握している。

なお、全 α 、全 β 放射能分析は、放出基準を下回っていることを確認することが目的であるのに

表2 液体廃棄物の放出モニタリング対象核種及び分析法

	核 種	分 析 法
毎 バ ッ チ	全 α 放射能	蒸発乾固法、 ZnS(Ag)シンチレーションカウンタ
	全 β 放射能 (³ Hを除く)	蒸発乾固法、GM計数管
	³ H	液体シンチレーションカウンタ
	γ 線放出核種*	マリネリピーカーによる直接測定法、 γ -スペクトロメトリ (HP-Ge半導体検出器)
月 毎	¹²⁹ I	PdI ₂ 沈殿法、 γ -スペクトロメトリ (HP-Ge半導体検出器)
	⁸⁹ Sr、 ⁹⁰ Sr	陽イオン交換法、液体シンチレーションカウンタ
	Pu(α)	陰イオン交換法、 α -スペクトロメトリ (Si-SSD)

* γ 線放出核種は、⁹⁵Zr-⁹⁵Nb、¹⁰³Ru、¹⁰⁶Ru-¹⁰⁶Rh、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、¹⁴¹Ce、¹⁴⁴Ce-¹⁴⁴Pr、¹³¹Iを対象とする。

対し、月ごとのコンポジット試料によるPu (α)等の核種分析は核種ごとの放出量の把握を目的としている。このため、核種分析の検出下限値は、全 α 、全 β 放射能分析の検出下限値に比べ、2桁程度低く設定している。

3. モニタリング結果

1) 放出放射エネルギーの推移

主要な核種についての年間の放出放射エネルギー及び電気出力に換算した燃料処理量 (GWa) を図1に示す。

燃料処理量は、一般的に処理燃料のウラン重量(t)で表される。しかし、再処理の過程で発生する

壊変生成物や超ウラン元素など放射性廃棄物の放射能は燃焼度に依存する。そこで、燃料処理の運転状況を UNSCEAR (国連科学委員会報告書) に準じて、発生した電気エネルギーに換算した燃料処理量で表し、放出放射エネルギーと比較した。

年間の放出放射エネルギーは、(1) 全 α 放射能、全 β 放射能、 ^3H 、 ^{137}Cs 、 ^{106}Ru については、放出前モニタリングにおいて有意に検出された放射能濃度に、その排水量を乗じて算出したバッチごとの放出放射エネルギーを年間合計した値であり、(2) Pu (α)、 ^{90}Sr 、 ^{129}I は月間のコンポジット試料において有意に検出された月平均の放射能濃度にその排水量を乗じて算出した月ごとの放出放射エネルギーを年間合計した値である。

東海再処理施設からの放出放射エネルギーは、表1に示す保安規定に定める基準をすべて十分に下回って管理された。

核種別に見ると、 ^3H の放出量は、燃料処理の運転中は年間およそ 10^5GBq 程度であった。運転を停止していた1983～1984年、1997～1999年は2桁程度低く、 10^3GBq 程度であった。 ^3H の放出量は、燃料処理量に依存して変化していることが分かる。 ^3H はほとんどが水 (HTO) として存在するので、蒸発処理等では除去できないことから運転状況に依存した変動を示したと考えられる。

一方、 ^3H 以外の放射性核種は、蒸発処理などの廃液処理工程により大部分が除去されること、燃料処理期間だけでなく処理終了後の設備の洗浄やメンテナンス作業、廃液処理工程の運転状況により変化するので、単純に燃料処理の時期とは一致しなかった。

全 β 放射能では、1980年代後半以降、2桁ほど、放出放射エネルギーの低減が見られた。これは廃液処理工程に導入された、第二低放射性廃液蒸発処理施設 (E施設) 及び第三低放射性廃液蒸発処理施設 (Z施設) に設置された蒸発缶の運転により、放射性物質の除染効率が上がったため³⁾と推測された。このような放出放射エネルギーの低減化努力を反映し、近年においては、全 β 放射能濃度は検出下限値未満 ($<2.2 \times 10^{-2} \text{ Bq/cm}^3$) となった。図1において、1990年度以降全 β 放射能の値がプロットされていないのはこのためである。全 α 放射能の放出放射エネルギーについても同様に、1997年度以降は検出下限値未満の濃度 ($<1.1 \times 10^{-3} \text{ Bq/cm}^3$) であったため、図1にプロットされなかった。

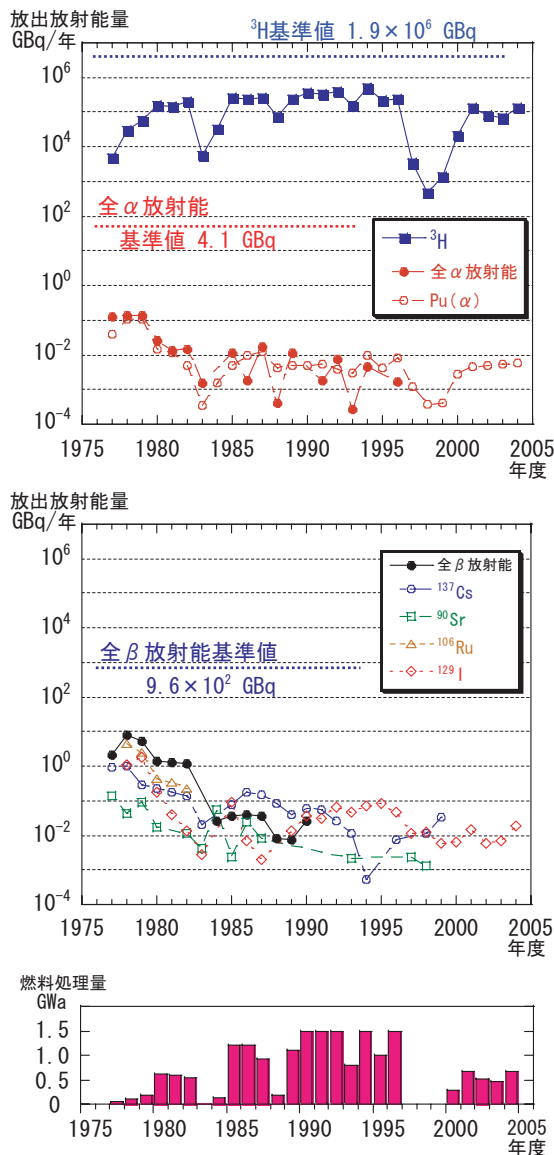


図1 海洋放出廃液の実放出放射エネルギー及び電気出力に換算した燃料処理量

2) 分析法によるモニタリング結果の比較

放出前モニタリングにおける全 α 、全 β 放射能分析結果と、核種分析の結果から算出した合計の放出放射エネルギーを比較した。

図1より、全 α 放射能の放出量はPu(α)の放出量にほぼ等しく、全 α 放射能として検出された α 核種の大部分が、Pu(α)であることが分かる。再処理施設の海洋放出廃液は、蒸発処理を経ているため、廃液試料中に残渣成分がほとんどない。測定上妨害となる自己吸収等の影響を受けないため、全 α 放射能分析結果から算出した放出量が、放射化学分析結果から算出したPu(α)の放出量と一致したものと考えられる。このことから、基準値に対するPu(α)の濃度の確認を目的とした放出前モニタリングにおいて、迅速に濃度を把握できる全 α 放射能分析法は有効であったといえる。同様に、1980年代前半までの全 β 放射能の放出量についても、 ^{90}Sr や ^{137}Cs など、主要 β 線放出核種の放出量の合計値とよく一致した。

なお、2項で述べたように、Pu(α)等の核種分析の検出下限値は全 α 、全 β 放射能分析の検出下限値より2桁ほど小さい。このため、全 α 、全 β 放射能分析において検出限界値未満の放出となった場合でも、Pu(α)等の核種分析結果から算出した放出量は有意に計上されることがある。1980年代後半以降は、放出廃液中の放射性物質濃度が低く抑えられており、全 α 、全 β 放射能濃度がともに検出限界値未満となることが多くなったことから、図1において、その年間放出量はPu(α)や ^{137}Cs 等の放出量よりも低くなっている。

3) 海洋放出に起因する実効線量

東海再処理施設から海洋放出された液体廃棄物に起因する一般公衆の実効線量を、再処理施設設置承認申請書に従って評価した。

結果を図2に示す。実効線量の評価に当たり、検出されなかった核種については、検出下限値の濃度で放出されたとみなして算出した推定放出量（不検出量という）を、実測の放出量に加えて評価した。

図2に示すようにこれまでの最大値は $0.2\mu\text{Sv/年}$ 、2004年度は $0.013\mu\text{Sv/年}$ であり、法令に定める周辺監視区域外の実効線量である年間 1mSv 及び3ヶ月 $250\mu\text{Sv}$ を大きく下回っていることを確認した。

4) 海外再処理施設の放出放射エネルギーとの比較

東海再処理施設からの海洋放出放射エネルギーを、イ

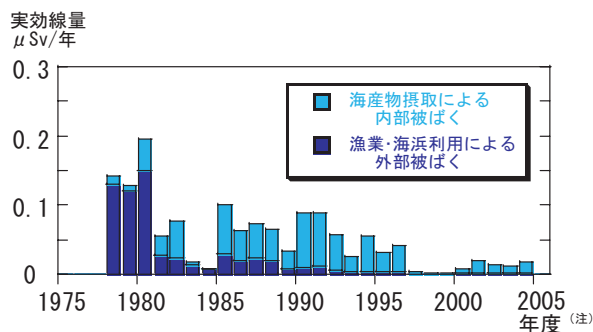


図2 海洋放出廃液に起因する周辺住民等の実効線量

(注) 1979～1993年は1～12月の1年間、1994年は同年1月～翌年3月までの15ヶ月間、1995年からは4月始期の年度で表示。

ギリスBNFL社のSellafield再処理施設及びフランスコジェマ社のLa Hague再処理施設からの放出放射エネルギーと比較した。比較にあたり、放出放射エネルギーを燃料処理量(GWa)で除して規格化した。以下、この値を規格化放出量と表記する。

東海再処理施設については4月始期とした2004年度までの結果を、Sellafield再処理施設及びLa Hague再処理施設については1月始期とした1997年までの結果を図3に示す。

^3H の規格化放出量は各施設とも同程度であった。 ^3H は燃料処理の過程で発生したものが、燃料処理量に依存し、液体廃棄物として放出されていると考えられる。

Pu(α)では、東海再処理施設からの放出量は海外の再処理施設に比べて、百分の一から1万分の一程度であった。 β 線及び γ 線放出核種では、 ^{90}Sr 及び ^{137}Cs は1万分の1以下、 ^{129}I は1千分の1程度であった。

東海再処理施設における海洋放出放射エネルギーは、当初の設計においても海外の再処理施設に比べて低く抑えられていた。更に、ALALAの考え方に基づいて実施した廃液処理工程の改善により、放出放射エネルギーの低減化が図られた結果が示された。

4. プルトニウム同位体の放射能比

サイクル機構では、事業所周辺の環境モニタリングの一環として海洋放出口周辺海域の海底土中の $^{239,240}\text{Pu}$ を分析している。これらの分析結果は、Shinohara⁴⁾が報告しているように再処理施設の運転開始後も大きな変動はなかった。海底土から検出された $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度について、 $^{239,240}\text{Pu}$ と同時に定量化される ^{238}Pu 濃度との放射能比($^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$)を

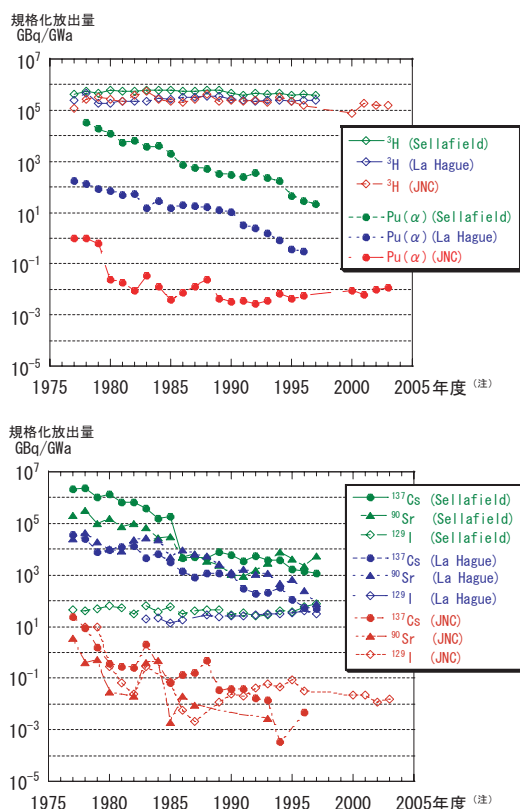


図3 海外再処理施設との規格化放出量の比較

(注) JNCは4月始期の1年間, Sellafield及びLa Hagueは1月始期の1年間で示す。

求めた。結果は表3に示すように0.016~0.034であった。これは、山本ら⁵⁾が報告している過去の大気圏内核実験時のフォールアウトにおける $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比0.034~0.043と同レベルであった。なお、 ^{238}Pu は検出下限値に近い濃度であり、放射能比の算出には測定における標準偏差の3倍に相当する濃度を超えた結果のみ採用した。

一方、放出モニタリングによる放出廃液のコンポジット試料のPu(α)分析の結果、これまでに検出された廃液中の $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比はおよ

表3 プルトニウム同位体の放射能比

$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比		
分析値	海洋放出口周辺海底土	0.016~0.034
	海洋放出廃液	1.5~3.5
文献値	フォールアウト	
	降下物 ^{*1}	0.025
	湖沼土・海底土 ^{*2}	0.034~0.043
	使用済燃料 ^{*3}	
	PWR 28GWd/t	1.9
	PWR 35GWd/t	3.0

*1 UNSCEAR 1982 *2 参考文献5 *3 参考文献6

そ1.5~3.5の範囲であり、 ^{238}Pu が $^{239,240}\text{Pu}$ に比べて多かった。ORIGEN2.1で評価した軽水炉中の使用済燃料の放射能比約1.9⁶⁾とほぼ一致する値を示した。

これらのことから、海洋放出口周辺海域で検出されたプルトニウムは、フォールアウトに起因するものであり、再処理施設から放出された液体廃棄物の影響ではないことが確認された。

5. まとめ

これまでの放出モニタリングの結果より、東海再処理施設からの放出放射エネルギーは、基準に対して十分低く管理されていることが示された。

東海再処理施設では、当初の設計より放出放射エネルギーの低減化の努力がなされていたが、運転開始後も廃液処理施設の増設など、運転方法の改善を行ったためである。この結果、燃料処理量(GWd)で規格化した放出放射エネルギーは、海外の再処理施設と比べて、 ^3H を除き、3桁から5桁低く抑えられてきた。

一方、環境モニタリングにおいて海洋放出口周辺海域の海底土中で検出されたプルトニウムの $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比を調査したところ、放出廃液の $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比とは大きく異なっていた。このことから、環境中で検出されたプルトニウムはフォールアウトに起因するものであり、再処理施設から放出された液体廃棄物の影響ではないことが確認された。

参考文献

- 1) 使用済燃料の再処理の事業に関する規則(総理府令第10号:昭和46年)
- 2) 核燃料物質の加工の事業に関する規則等の規定に基づき、線量限度等を定める件(平成12年12月26日科学技術庁告示第13号,平成12年12月26日科学技術庁告示第18号により一部改訂)
- 3) 東海事業所再処理工場 処理部化学処理第2課・廃棄物処理課:“再処理工程の運転 7.2放射性液体廃棄物”,サイクル機構技報, No.55, p.36(1985).
- 4) Shinohara, K.: “Assessment of radiological effects on the regional environment due to the operation of Tokai Reprocessing Plant”, Journal of environmental radioactivity, 72, 299-322 (2004)
- 5) Yamamoto, M. et al.: “Fallout ^{237}Np , Pu Isotopes and ^{241}Am in Lake and sea sediments from the coastal area of the Sea of Japan”, Radiochimica Acta, 51, 85-95 (1990)
- 6) 東海再処理施設の安全性確認に係る基本データの確認, サイクル機構, JNC TN8410 99-002, p2-2 (1999)