

金属廃棄物に対するクリアランスレベル検認測定に係る問題点とその解決方法について

服部隆利*

原子力安全委員会は、1999年3月、原子炉廃止措置ならびに運転に伴って発生する固体状物質に係るクリアランスレベル、すなわち、放射性物質として扱う必要がないものを区分する放射能レベルを発表し、2001年7月には、クリアランスレベル以下か否かの判断に係る基本的な考え方を取り纏めた。本稿では、金属廃棄物に焦点を当てて、クリアランスレベル検認測定に係る問題点を整理し、その解決方法を紹介する。

Keywords: クリアランスレベル, 金属廃棄物, γ 線測定, 再利用, 放射能汚染

On March 1999, Nuclear Safety Commission reported clearance levels, which can classify solid wastes in decommissioning and operation as a non-radioactive material and also represented a basic concept on confirmation of the clearance level on July 2001. In this paper, some problems to confirm the radioactivity level of metal wastes are arranged and a solution is described.

Keywords: Clearance level, Metal waste, Gamma ray measurement, Recycle, Radioactive contamination

1 はじめに

原子力安全委員会は、1999年3月、我が国の主な原子炉施設（軽水炉とガス炉）の原子炉廃止措置ならびに運転に伴って発生する固体状物質（コンクリートおよび金属）に係るクリアランスレベルに関する報告書[1]を取りまとめた。クリアランスレベルとは、放射性物質として扱う必要がないものを区分する放射能レベルで、Table 1 に示す9種類の重要放射性核種に対するクリアランスレベルが重量濃度として発表された。このクリアランスレベルが法制度化されれば、原子炉廃止措置および運転に伴って発生するコンクリート（保温材等を含む）および金属のうち、クリアランスレベル以下の放射能レベルのものについては、一般の産業廃棄物として処分または再利用していくことが可能となる。クリアランスレベルの検認の定義やクリアランスレベル以下か否かの判断に係る基本的な考え方は、原子力安全委員会が2001年7月に発表した報告書「原子炉施設におけるクリアランスレベル検認のあり方について」（以下、検認報告書と略す）[2]に取り纏められた。本稿では、金属廃棄物に焦点を当てて、クリアランスレベル検認測定に係る問題点を整理し、その解決方法を紹介する。

2 クリアランスレベル検認の考え方

検認報告書では、検認の定義を、「クリアランスレベルを用いて、「放射性物質として扱う必要がない物」であることを原子炉設置者等の原子力事業者が判断し、その判断に加えて規制当局が適切な関与を行うこと」としている。また、クリアランスレベル以下であることの検認は、原子炉設置者によるクリアランスレベル以下であることの判断に加えて、規制当局が係る検認の確実性を担保すること

が重要、と位置付けている。このことからわかるように、クリアランスレベル以下であるか否かの判断（以下、クリアランスレベル確認と略す）は、原子力事業者が行う必要がある。

原子力事業者がクリアランスレベルを確認するためには、放射化汚染および二次的な汚染がないことが明らかな場合を除き、Table1 に示すクリアランスレベル報告書に重要放射性核種として記載された9種類の核種（ ^3H , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{154}Eu , 全 α 核種）の濃度（D）を評価し、それぞれのクリアランスレベル（C）で除した値の合計（D/Cの総和）が1以下であることを確認する必要がある。また、クリアランスレベルの確認を測定により行う場合には、外部からの測定が容易で放射性核種組成の主要部分を占める ^{60}Co のような核種（測定主要放射性核種）を測定し、あらかじめ設定した対象物中の放射性核種の存在割合（放射性核種組成比）により、他の核種濃度を評価する方法を適用できることが検認報告書に記述されている。また、検認報告書には、PWR, BWR, GCR別に、核種毎の相対重要度の比率を、解体廃棄物および運転廃棄物に対して評価した事例が添付されており、放射化あるいは二次的に汚染した金属に対する ^{60}Co の相対重要度は、ほとんどの場合85%を超えていていることが示され

Table 1 Clearance level for nuclear reactors. (Bq.g⁻¹)

^3H	200
^{54}Mn	1
^{60}Co	0.4
^{90}Sr	1
^{134}Cs	0.5
^{137}Cs	1
^{152}Eu	0.4
^{154}Eu	0.4
Total α	0.2

Some problems on measurements of low level activity close to clearance level in metal waste and the solutions, by Takatoshi Hattori (thattori@criepi.denken.or.jp)

本稿は日本原子力学会2002年秋の大会における講演内容に加筆したものである。

* (財)電力中央研究所 Central Research Institute of Electric Power Industry
〒201-8511 東京都狛江市岩戸北2-11-1

ている。このことは、 ^{60}Co の測定結果がクリアランスレベル確認に支配的な影響を与えることを意味している。

また、検認報告書には、検認対象物を管理区域外へ搬出する際には、対象物の表面の放射性物質の密度が表面密度限度の 1/10 を超えないようにすること、すなわち、物品持出し基準を適用することが明記されている。このため、二次的な汚染の恐れがある場合には、測定主要放射性核種である ^{60}Co の測定結果に基づき、物品持出し基準 ($\beta + \gamma$ 線放出核種: $4 \text{ Bq} \cdot \text{cm}^{-2}$, α 線放出核種: $0.4 \text{ Bq} \cdot \text{cm}^{-2}$) の確認も必要となる。

3 金属廃棄物の検認の問題点

金属廃棄物のクリアランスレベル検認測定には、下記のような問題が内在している。各問題は、互いに複雑に関係し合う問題のため、一つの問題だけの解決を試みても全ての問題は解決しない。以下、各問題について詳述する。

- 1) クリアランスレベルと物品持出し基準のダブルチェック
- 2) 社会的な安心
- 3) 検認測定のスピード
- 4) 金属廃棄物自身による遮蔽効果が γ 線測定に及ぼす影響
- 5) ^{60}Co の代表性を示す核種組成比の決定方法

3.1 クリアランスレベルと物品持出し基準のダブルチェック

前章で述べたように、原子炉廃止措置や運転に伴って発生する金属廃棄物のクリアランスレベルを測定によって確認する場合、測定が容易で放射性核種組成の主要部分を占める ^{60}Co を測定することになる。Table 1 に示したように、 ^{60}Co のクリアランスレベルは $0.4 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ であるが、測定によって得られる物理量は放射能量 (Bq) であるため、クリアランスレベルと比較するためには、重量濃度に換算する必要があり、どの程度の重量単位の金属廃棄物を一度に取扱ってクリアランスレベルと比較して良いのか、という問題が生じる。しかし、この問題は、すでに検認報告書に評価単位という概念で整理されており、クリアランスレベルと比較するために重量濃度を評価する際の単位は、数 ton 以内が適切とされている。したがって、1ton の金属廃棄物中の ^{60}Co を測定し、クリアランスレベル以下であることを確認する場合には、 $0.4 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ に 1ton を乗じて得られる $400,000 \text{ Bq}$ 以下であることを測定によって証明すれば良い。このような高いレベルの放射能測定は容易である。

一方、前章で述べたように、二次的な汚染の恐れがある場合には、物品持出し基準の確認が必要であり、現行法令で規定されている物品持出し基準の評価単位は、JIS Z 4504「放射性表面汚染の測定方法」にしたがうと 100 cm^2 となる。このため、金属廃棄物中の ^{60}Co を測定し、物品持出し基準以下であることを確認する場合には、 $4 \text{ Bq} \cdot \text{cm}^{-2}$

に 100 cm^2 を乗じて得られる 400 Bq 以下であることを測定によって証明する必要が生じる。また、クリアランスレベルの場合も、1ton ではなく 1kg ずつ測定するような場合には、やはり 400 Bq がないことを測定によって確認する必要が生じる。

したがって、 ^{60}Co を対象にした一度の測定で、クリアランスレベルと物品持出し基準を同時に確認するためには、金属廃棄物の放射能レベルが 400 Bq 以下であることを証明できる高い検出性能が必要で、他核種の影響の確認や測定誤差も考慮すると、 400 Bq よりもさらに低いレベルの検出性能が必要になるといえる。

3.2 社会的な安心

クリアランスレベルの検認にとって、最大の問題はいかに社会的な安心を確保するかである。クリアランスレベルが検認された金属は、産業廃棄物として処分も可能であるが、環境負荷の低減や資源の有効活用の観点から、再利用する可能性が高い。しかし、平成 11 年度の金属くずの排出量は約 800 万 ton で再生利用率は約 78% と高く、約 620 万 ton の金属が再利用されていることから考えると、例えば東海発電所の原子炉廃止措置で発生するクリアランスレベル検認対象の金属の物量は 1 千 ton 程度で大きな量ではない。問題は、現在、良好な再利用のサイクルを構築できている再利用金属に対して風評による被害を与えるかも知れないという懸念である。参考として、クリアランスレベルを検討中の米国においては、数年前から鉄鋼業界が NRC に対して汚染金属の無拘束放出に猛反対している。

このような社会的な安心確保の問題を解決するために、再利用市場で物品持出し基準を超えるようなスポット汚染発見の可能性を完全に排除しておかねばならない。また、検認測定のデータについても、測定者の主観的な判断が入りやすいものではなく、高い客観性と信頼性を有していることが求められる。

3.3 検認測定のスピード

前節で述べたように、東海発電所の原子炉廃止措置で発生するクリアランスレベル検認対象の金属の物量は 1 千 ton 程度であるが、検認測定に高い客観性と信頼性を確保するために長時間を費やしていくことは物量が処理できない。仮に、1 年間で 1 千 ton の金属を検認していくとすると、1 日 8 時間、測定作業に従事するとして、1 日当たり約 5ton の物量の処理速度が要求される。したがって、測定装置の数や測定者が従事する人数にもよるが、おおむね 1 日 5ton 程度の処理量の確保を目標にしないと実用的ではないといえる。

3.4 金属廃棄物自身による遮蔽効果が γ 線測定に及ぼす影響

金属廃棄物中に隠れた汚染を測定するには、 ^{60}Co の放出

する γ 線の測定が有効である。 ^{60}Co は1崩壊当たり比較的エネルギーの高い γ 線を2本放出するが、測定対象が金属の場合、その遮蔽効果を適切に補正する必要がある。また、400Bq程度の極低レベルの放射能測定の場合、測定結果に過小評価や汚染の見落としを引き起こす大きな原因となるのが、金属の遮蔽効果によるバックグラウンド(BG)計数率の低下の問題である。BG計数率とは、測定対象がない状態であらかじめ測定しておく計数率で、正味の計数率を求めるために測定した総計数率から差し引くものである。この問題はクリアランスレベル検認のための放射能測定に対する要件を定めた国際規格 ISO11932「Activity measurements of solid materials considered for recycling, reuse, or disposal as non-radioactive waste」にも警告されており、以下に詳しく説明する。

Fig. 1は、厚さ3cmの鉛で γ 線計測器周囲の一部を遮蔽し、80cm x 40cmの測定面積を有する計測器上に、測定面積を覆うように厚さの異なる80cm x 40cmの金属板を置いて γ 線を計測した結果である。厚さ0cmの結果は、測定対象が何もない状態のBG計数率を示しており、この事例では612cpsであったことを示している。400Bqの ^{60}Co は計数効率10%で測定できると仮定すれば80cpsの正味計数率を与えるため、仮に400Bqが付着した厚さ4cmの金属板を測定したとすると、金属による遮蔽効果がなければ692cpsが測定の結果得られる総計数率と期待される。しかし、金属による遮蔽効果のためにBG計数率は低下してしまい、測定の結果得られる総計数率は430cpsとなる。このことは、400Bqの ^{60}Co が付着した金属板を測定した結果の430cpsの方が、何もないときに測定したBG計数率である612cpsよりも低く、正味の計数率は-182cpsというマイナスの評価結果となる事例があり得ることを示している。

この結果は極端な事例であるが、正味計数率がマイナスにはならないとしても、過小に評価される可能性があり、400Bq程度の極低レベルの放射能測定の場合には、測定対象に応じたBG計数率の補正が必要で、この事例では厚さ4cmの金属板によってBG計数率が350cpsに低下することの予測が必要であることを示している。

このBG計数率の低下の問題は、極低レベルの放射能測定の性能を決定する検出限界の評価方法にも影響を与えることになる。検認報告書にも記載されているように、我が国で現在多く用いられている検出限界計数率 n_D は、次式のように表される。

$$n_D = \frac{3}{2} \left\{ \frac{3}{t_T} + \sqrt{\left(\frac{3}{t_T}\right)^2 + 4n_B \left(\frac{1}{t_T} + \frac{1}{t_B}\right)} \right\} \quad (1)$$

ここで、 n は計数率(cps)、 σ は標準誤差、 t は測定時間、添字 N は正味の計数率、添字 T は測定して得られる総計数率、添字 B はBG計数率に対するものである。この(1)式の検出限界計数率には、BG計数に起因する統計誤差が考慮されている。しかし、BGレベル自体が測定対象物によって変動する影響は考慮されていない。

BG計数率に対する統計誤差に加え、相対誤差 r のBG計数率の低下の補正に基づく誤差を加えると、(1)式は、次式のように表すことができる。

$$n_D = \frac{3}{2} \left\{ \frac{3}{t_T} + \sqrt{\left(\frac{3}{t_T}\right)^2 + 4 \left[n_B \left(\frac{1}{t_T} + \frac{1}{t_B}\right) + r^2 n_B^2 \right]} \right\} \quad (2)$$

Fig. 2は、(2)式を用いて、測定時間に対する検出限界計数率を調べた結果である。BG計数率と総計数率の測定時間は同じとした。また、BG計数率には上述の事例の612cpsを適用した。同図には、BG計数率の低下の補正精度を3%、5%および10%で評価した結果を示した。また、比較のため、(1)式の検出限界計数率の算出式による評価

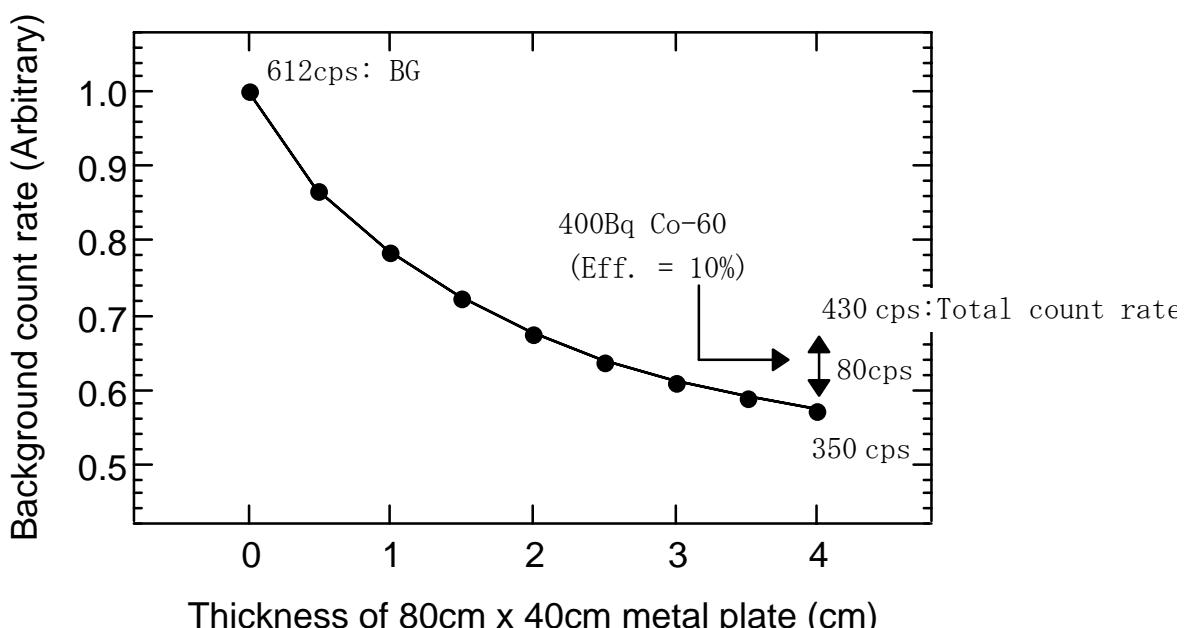


Fig.1 An example of reduction of background count rate due to metal waste.

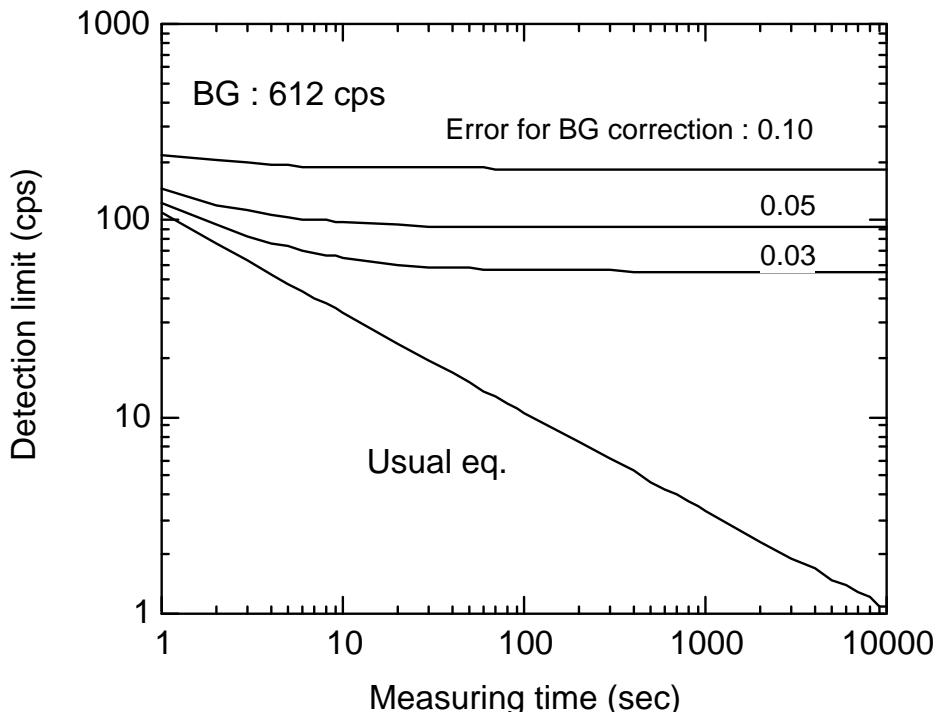


Fig.2 Detection limits for count rate as a function of measuring time.

結果についても点線で示した。この結果から、(2)式に基づき評価した結果では、数10秒以上測定時間を長くしても、検出限界計数率はほとんど低下しないことがわかる。また、BG 計数率の低下の補正誤差が 3%から 5%, 10%と大きくなるに従い、検出限界計数率は大きく悪化することがわかる。従来の評価式である (1) 式では、1 万秒測定すれば、約 1cps まで検出可能であるという結果が導かれるが、金属の遮蔽効果による BG 計数率の低下の補正には誤差が生じるため、(2) 式の結果は、長時間の測定は意味がないことを示唆している。

以上の結果から、金属廃棄物中で 400Bq 程度の極低レベルの放射能を測定する場合には、BG 計数率低下の補正誤差を加味して検出限界の性能を評価する必要があるといえる。また、検出限界性能に大きな影響を与える要因は、測定時間ではなく、測定対象物自身の遮蔽効果による BG 計数率低下の補正誤差であり、その補正誤差の低減が重要であるといえる。

3.5 ^{60}Co の代表性を示す核種組成比の決定方法

前章で述べたように、原子炉廃止措置や運転に伴って発生する固体状物質のクリアランスレベルを測定によって確認する場合、測定が容易で放射性核種組成の主要部分を占める ^{60}Co を測定し、あらかじめ設定した対象物中の放射性核種組成比により、その他の核種濃度を評価することになる。この放射性核種組成比をどのように決定するかという問題があるが、原子炉の廃止措置や運転に伴って発生する汚染は、放射化汚染と二次汚染に大別でき、汚染の発生源は、基本的には放射化と燃料に限定できる。このため、

想像もできないような核種組成が大きな割合を占めるケースの発生は考えにくく、炉心からの距離や冷却系統別に発生した固体状物質を分類することで、代表的な放射性核種組成比の決定が可能と考えられる。

4 解決方法

3.1 節～3.4 節に述べたクリアランスレベル検認測定に係る問題解決を目標に、電力中央研究所ではクリアランスレベルと物品持出し基準の同時確認手法の開発に取組んできた。当所が新たに開発した測定手法は下記の特徴を有している[3]。本章では、本測定手法の測定原理と測定性能について概説する。

- (1) 1 回の γ 線測定により、クリアランスレベルと物品持出し基準が同時に確認でき、1 日当りの処理物量も約 5ton 以上と実用的。
- (2) 測定対象物毎に校正を自動的に行い、対象物に応じて $\pm 30\%$ 以内の誤差で自動測定を実現し、測定データに高い客観性を与える。
- (3) ^{60}Co の相対重要度が 80%以上ならびに測定誤差による -30% の過小評価の可能性を考慮して、400Bq よりもさらに低い 250Bq の検出限界性能 (BG 計数率の低下の補正誤差も加味) を満足し、汚染を見落とす可能性を排除して社会的安心が確保できる。

4.1 測定原理

本手法の処理フローは、Fig.3 のとおりである。まず、重量計測の後、レーザーを用いた非接触式形状計測装置により金属廃棄物の形状を計測し、検出器と測定対象物の間

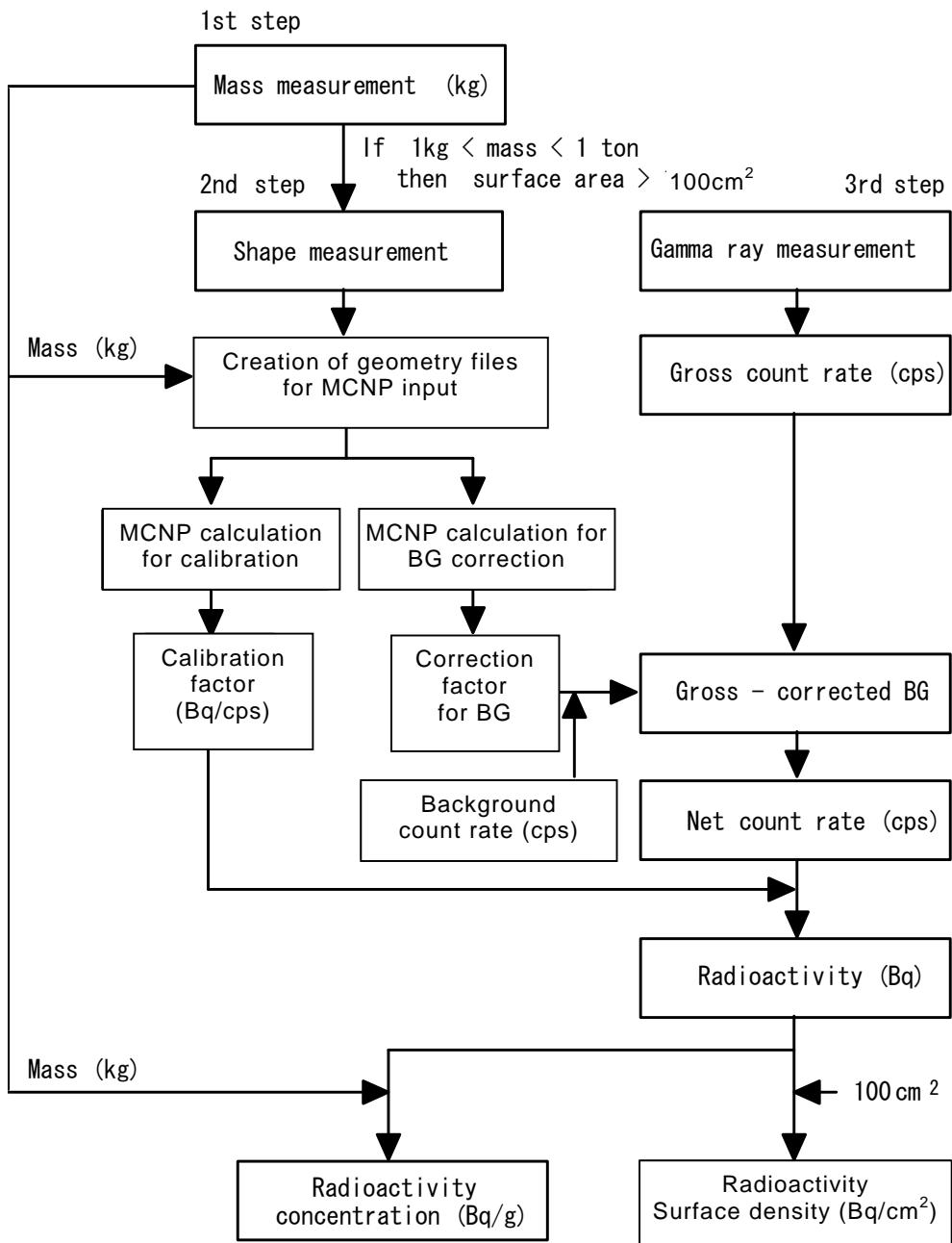


Fig. 3 Flow chart of the present method.

の幾何学的位置情報を点群として把握する。形状計測した金属廃棄物は、直ちに移動させて γ 線を計測するが、その移動と γ 線計測の時間に、形状計測した点群情報をもとに 2 種類の 3 次元モンテカルロ計算 (MCNP コード) を実行する。

一つ目の計算は、校正定数を求めるためのもので、測定対象物の内部から仮想放出される γ 線が検出器に入射して得られる計数効率を MCNP 計算により求め、測定対象核種に固有の γ 線の放出率によって補正し、単位放射能当たりの計数率である校正定数が算出される。

もう一つの計算は、金属廃棄物の遮蔽効果による BG 計数率の低下の補正を行うためのもので、補正手法の概要は次のとおりである。まず、金属廃棄物の形状計測結果をもとに、検出器周囲の球面から内向きに仮想放出されるγ線

が検出器に入射するときの計数効率を金属廃棄物がある場合とない場合について MCNP 計算によって求め、その比率を補正係数とする。次に、算出した補正係数をあらかじめ実際に測定しておいた BG 計数率に乗じることによって補正が完了する。この補正後の BG 計数率を用いることで、自動的に的確な正味の計数率を求めることができる。

Fig. 4 に、3cm 厚の鉛遮蔽体の内部に 40cm x 40cm x 5cm (厚) のプラスチックシンチレーション検出器を 2 台平行に上向きに並べた γ 線計測系内に置いた SUS304 製のバルブの写真と、このバルブを形状計測して得られた点群画像から γ 線計測系とバルブを自動的に体系化して作成した MCNP 入力ファイルを視覚化した結果を示す。放射能分布が均一な放射化汚染を測定対象とする場合、 γ 線は MCNP ファイル上の金属廢棄物中から一様に発生するものとし

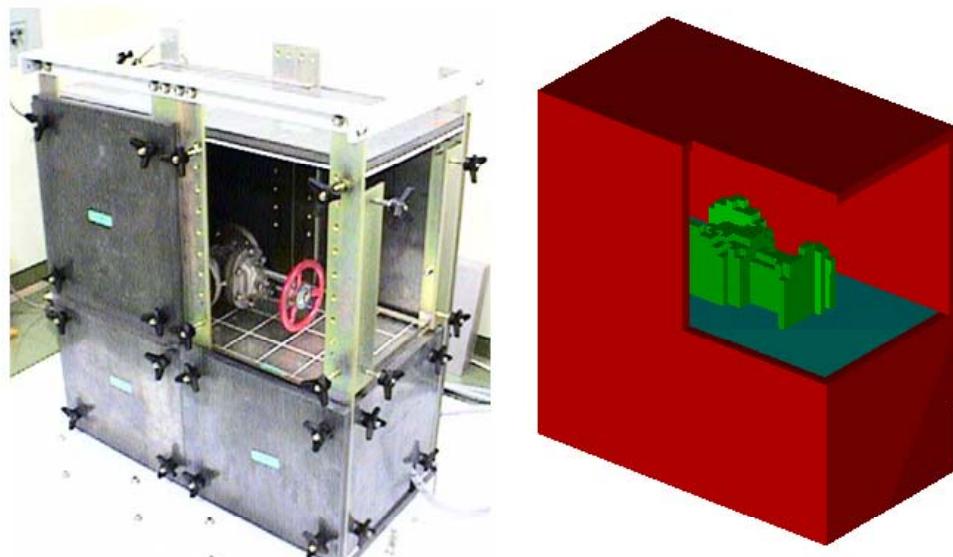


Fig.4 Metal valves in an actual gamma detection system and automatically formed MCNP input image.

て取扱われ、局所的な汚染が懸念される二次汚染を測定する場合については、安全側に評価するため、最も感度が低い場所を自動的に選定してその位置にホットスポットがあるものとして表現される。

4.2 測定性能

本手法による放射能の測定精度は、Fig.3 に示した γ 線計測系を用い、約 100 種類のさまざまな形状、大きさ、数量の模擬金属廃棄物に対する性能試験によって実験的に評価されている。本手法では、最も感度が低く測定しにくい場所に ^{60}Co の局所的な表面汚染がある場合、 $\pm 30\%$ 以内の誤差で放射能レベルが自動測定可能であり、放射化汚染のような均一な放射能分布の場合についても、同様に $\pm 30\%$ 以内の誤差で測定可能である。また、BG 計数率の低下の補正精度については、上述の約 100 種類の模擬金属廃棄物のうち BG 計数率の低下が認められた約 60 ケースについて明らかにしており、本手法では $\pm 3\%$ 以内の誤差で高精度にその低下の補正が可能である。さらに、検出限界性能については、局所的な表面汚染および放射化汚染を想定した上述の約 100 種類の模擬金属廃棄物に対して明らかにしており、80cm x 40cm x 50cm (高) の測定容積の上下にサンドイッチ方式で検出器を配置し、その周囲を厚さ 5cm の鉛で遮蔽して BG 計数率の低下を $\pm 3\%$ 以内の誤差で補正することにより、約 100 秒の処理時間 (60 秒計測、約 40 秒計測準備) で、ほとんどすべての模擬金属廃棄物について、400Bq よりもさらに低い 250Bq の検出限界性能を達成可能である。また、 γ 線計測系を大型化し、80cm x 80cm x 40cm (高) の測定容積を確保して複数の金属廃棄物を一度に測定し 1 回に約 20kg 以上ずつ測定していくことで、1 日当たり 5ton 以上の物量 (年間 200 日で 1,000ton) が処理可能な見通しが得られている。

5 まとめ

本稿で紹介したクリアランスレベル検認測定に係る問題の解決方法は、 γ 線計測を用いて、測定対象の金属廃棄物中に 250Bq という極微量の放射能がないことを証明できるこれまでにない新しい測定手法である。この証明は、物品持出し基準と照らして考えれば、金属廃棄物のいかなる表面の 100cm² にも汚染がないことを示す保守的な安全側の評価となるが、その代償として、金属廃棄物の全面をサーベイメータなどで測定する労力をなくし、サーベイメータでは測定しにくい場所の汚染の見落としの可能性を完全に排除している。今後は、平成 14 年度中に製作する大型化した実用機を用いて実証試験を行い、実際の金属廃棄物に対する測定性能を確認する予定であるが、性能実証の後、本手法が、検認後の再利用金属に対する社会的安心の確保に有効なツールとして活用されれば幸甚である。

参考文献

- [1] 原子力安全委員会 放射性廃棄物安全基準専門部会：主な原子炉施設におけるクリアランスレベルについて（平成 11 年 3 月）（1999）。
- [2] 原子力安全委員会：原子炉施設におけるクリアランスレベル検認のあり方について（平成 13 年 7 月）（2001）。
- [3] 服部隆利：金属廃棄物中の放射能レベルの区分評価技術の開発-クリアランスレベル確認のための新しい高精度な自動測定手法-、電力中央研究所研究報告、T01015（2002）。