

充填固化体の放射能評価について[†]

酒井利明^{††} 舟橋哲雄^{†††} 渡部清美^{††††} 小澤幸利^{††††} 柏木誠^{†††††}

原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物のうち固体状廃棄物は、容器に封入し、固化処理したうえで、充填固化体として埋設処分することが予定されている。固体状廃棄物に含まれる放射性核種は、均質・均一固化体と同じ特徴を有しており、均質・均一固化体に対して確立された放射能評価方法の充填固化体への適用性については既に見出しを得ているため[1]、ここでは、最近のデータを反映した充填固化体の放射能評価方法について紹介する。

固体状廃棄物は、プラント内の発生系統、汚染形態が異なるので、廃棄物のサンプリング・核種分析を行いスケールリングファクタを設定すると共に、核種分析方法の妥当性について確認した。また、充填固化体の放射能濃度を測定するための非破壊測定装置について、その適用性をシミュレーション等により評価し、実機適用が可能であることを確認した。

Keywords: 充填固化体, 固体状廃棄物, 放射能評価, 放射化学分析法, スケールリングファクタ, クロスチェック, 放射能測定装置

Low-level dry active wastes of nuclear power plants are grouted with cement mortar in a container and planned to be disposed into the shallow land disposal site. The characteristics of radionuclides contained in dry active wastes are same as homogeneous solidified wastes. In the previous report[1], we reported the applicability of the radioactivity evaluation methods established for homogeneous solidified wastes to pre-packed concrete packages. This report outlines the developed radioactivity evaluation methods for pre-packed concrete packages based upon recent data.

Since the characteristics of dry active wastes depend upon the plant system in which dry active wastes originate and the types of contamination, sampling of wastes and activity measurement were executed to derive scaling factors. The radioactivity measurement methods were also verified. The applicability of non-destructive methods to measure radioactivity concentration of pre-packed concrete packages was examined by computer simulation. It is concluded that those methods are accurate enough to measure actual waste packages.

Keywords: pre-packed concrete package, radioactivity evaluation method, scaling factor, cross-check, non-destructive method

1 はじめに

埋設する廃棄体中の放射性核種濃度の評価方法については、平成4年4月原子力安全委員会より「放射能濃度決定方法」として、スケールリングファクタ（以下、「SF」という）法をはじめとする6種類の方法が示され、既にその一部を均質・均一固化体に適用し、六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センターへの埋設が進められている。

原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物のうち固体状廃棄物は、容器に封入し、固化処理したうえで、充填固化体として埋設処分することが予定されている。電気事業者においては、第2次埋設に向けて、固体状廃棄物に関する放射能評価方法について、固体状廃棄物のサンプリング、分析を実施するとともに検討を鋭意進めている。ここでは、最近のデータを反映した充填固化体の放射能評価方法について紹介する。

2 固体状廃棄物の放射能濃度分布の実態

原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物のうち固体状廃棄物は、気体、液体系の廃棄フィルタ、取り換え消耗器材、定期点検、改良工事に伴う各種廃材、消耗資材等であり、主にドラム缶に収納され、保管されている。この際の放射能の管理データとしては、個々のドラム缶の表面線量当量率が主体である。したがって、固体状廃棄物の放射能濃度および放射エネルギーを把握するために、表面線量当量率をベースとして、放射能濃度を算出し、放射能濃度分布の推定評価を行った。

各原子力発電所の固体状廃棄物保管状況実態調査結果に基づく平成7年度末現在の⁶⁰Co換算放射能濃度分布をFig.1に示す。

平成7年度末現在の固体状廃棄物の⁶⁰Co換算放射能濃度は $10^6 \sim 10^{12}$ Bq/tonの範囲と推定された。なお、平成7年度末現在の⁶⁰Co換算放射能濃度は平成4年度末現在の推定結果[1]と同様の分布を示している。

3 難測定核種の放射能評価方法

既に埋設が開始されている均質・均一固化体の放射性物質の放射能濃度および放射エネルギーの決定方法については、平成4年4月原子力安全委員会において

[†] Radioactivity Evaluation Method for Pre-Packed Concrete Packages of Low-level Dry Active Wastes, by Toshiaki Sakai, Tetsuo Funahashi, Ki-yomi Watabe, Yukitoshi Ozawa (ozawa@rwmc.or.jp) and Makoto Kashi-wagi

^{††} 東京電力株式会社原子力管理部 Nuclear Power Plant Management Department, Tokyo Electric Power Company, 〒100-0011 東京都千代田区内幸町1丁目1番3号

^{†††} 中部電力株式会社原子力管理部 Nuclear Power Plant Operations Department, Chubu Electric Power Company, 〒461-8680 名古屋市東区東新町1番地

^{††††} (財)原子力環境整備センター浅地処分システム研究部 Research Division of LLW Disposal System, Radioactive Waste Management Center 〒105-0001 東京都港区虎ノ門2丁目8番10号

^{†††††} 日揮株式会社第2事業本部 No.2 Project Division, JGC Corporation 〒220-6001 横浜市西区みなとみらい2-3-1

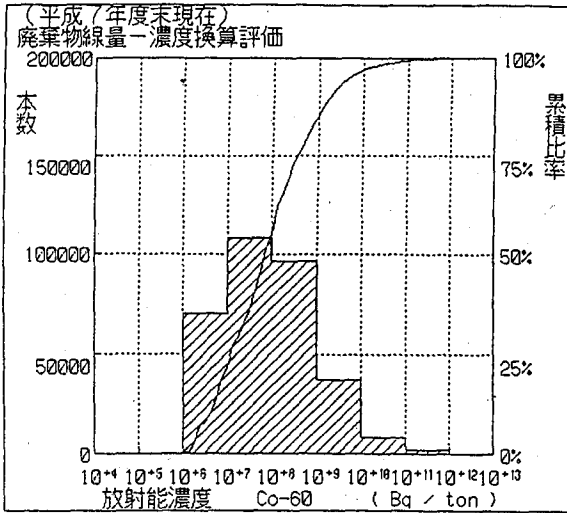


Fig.1 Distribution of radioactive concentration of ⁶⁰Co of dry active wastes generated from commercial nuclear power plants

Table 1 Evaluation methods for radioactivity concentration of dry active wastes authorized by the Nuclear Safety Commission of Japan

| 決定方法 | 決定方法の概要 |
|-------------|---|
| 廃棄体破壊分析法 | 個々の廃棄体から試料を採取して、これを放射化学分析し、当該廃棄体の放射能濃度を決定する方法 |
| 原廃棄物分析法 | 固化処理直近プロセス廃棄物から試料を採取してこれを放射化学分析し、当該バッチの廃棄体の放射能濃度を決定する方法 |
| 非破壊外部測定法 | 個々の廃棄体について外部から非破壊測定し、当該廃棄体の放射能濃度を決定する方法 |
| スケーリングファクタ法 | 代表サンプルの放射化学分析から得られる難測定核種とKey核種の相関関係と個々の廃棄体外部からの非破壊測定結果を組み合わせて廃棄体の放射能濃度を決定する方法 |
| 平均放射能濃度法 | 代表サンプルの放射化学分析から廃棄体の平均放射能濃度を決定する方法 |
| 理論計算法 | 原子炉燃焼計算等により理論的に廃棄体の放射能濃度を決定する方法 |

代表サンプル：母集団を適切に代表している廃棄体から採取した試料
 難測定核種：廃棄体外部から非破壊測定困難な放射性物質
 Key核種：廃棄体外部から非破壊測定可能なγ線を放出し、難測定核種と相関関係を有する放射性物質

了承された「廃棄体中の放射性物質濃度の具体的決定手順について」の中で挙げられているTable 1に示した6種類の決定方法がある。

均質・均一固化体に対しては、「非破壊外部測定法」、「SF法」、「平均放射能濃度法」および「理論計算法」の4種類の決定方法を核種の特성에依じて適用している。

固体状廃棄物の放射能の評価方法としては、Table 1に示した6種類の中で固体状廃棄物に適した方法を抽出し、均質・均一固化体の評価方法を踏襲して検討を進めた。

固体状廃棄物の放射能濃度の不均一性等を考慮すると、基本的には「非破壊外部測定法」により定量可能な⁶⁰Co等のKey核種の濃度を測定したうえで、汚染の程度によらずKey核種との組成比率が一定とみなせる区分ごとで評価する「SF法」の適用が最も合理的な方法と考えられた。

3.1 平均放射能濃度法の適用性(³H)

固体状廃棄物で唯一平均放射能濃度法を適用する³Hは、プラント内でトリチウム水として水と同様の挙動を示し、濃縮されることがないため、廃棄物の含水率(付着水分量/廃棄物重量)で³H放射能濃度が決定される。ここで、廃棄物の含水率はおおむね次の2つの条件で決定される。

- ① 系統水との接触および浸漬状況
- ② 廃棄物の含水の可能性

この観点から、「含水率の高い廃棄物(CFDエレメント、液体フィルタ等)」と「その他の廃棄物」について³H濃度を調査した。その結果、Fig.2に示すようにBWR、PWRごとに一定範囲に存在した。

ここで、1つの廃棄体を製作するためにドラムに収納する固体状廃棄物には、含水率の高いものから低いものまでさまざまな組み合わせが考えられるため、代表サンプルとして含水率の高い廃棄物(CFDエレメント、液体フィルタ等)を選定することで、炉型式ごとに固体状廃棄物全体を保守的に評価する平均放射能濃度法が適用可能と考えられた。

3.2 SF法の適用性

3.2.1 均質・均一固化体と同様のSF法を適用する核種

均質・均一固化体同様でSF法を適用した核種として⁹⁰Srを例にとり、固体状廃棄物データでの⁹⁰Sr/¹³⁷CsをFig.3に示す。

選択したKey核種¹³⁷Csとの良好な相関関係が検定によって認められ、SF法が適用可能であると考えられた。

この他、均質・均一固化体でSF法を適用したすべての核種は、固体状廃棄物でも同様にSF法が適用可能であることが確認された。

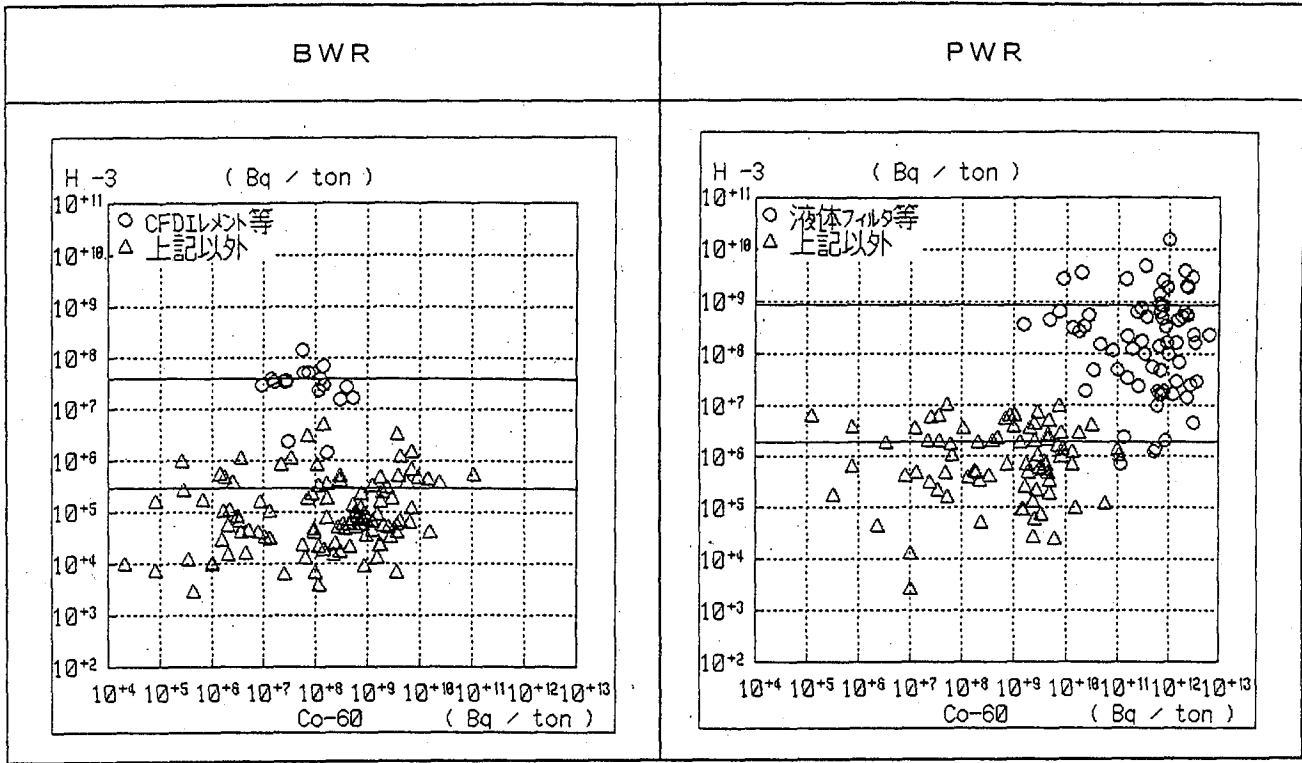


Fig.2 Evaluated mean radioactivity concentration of ³H of dry active wastes

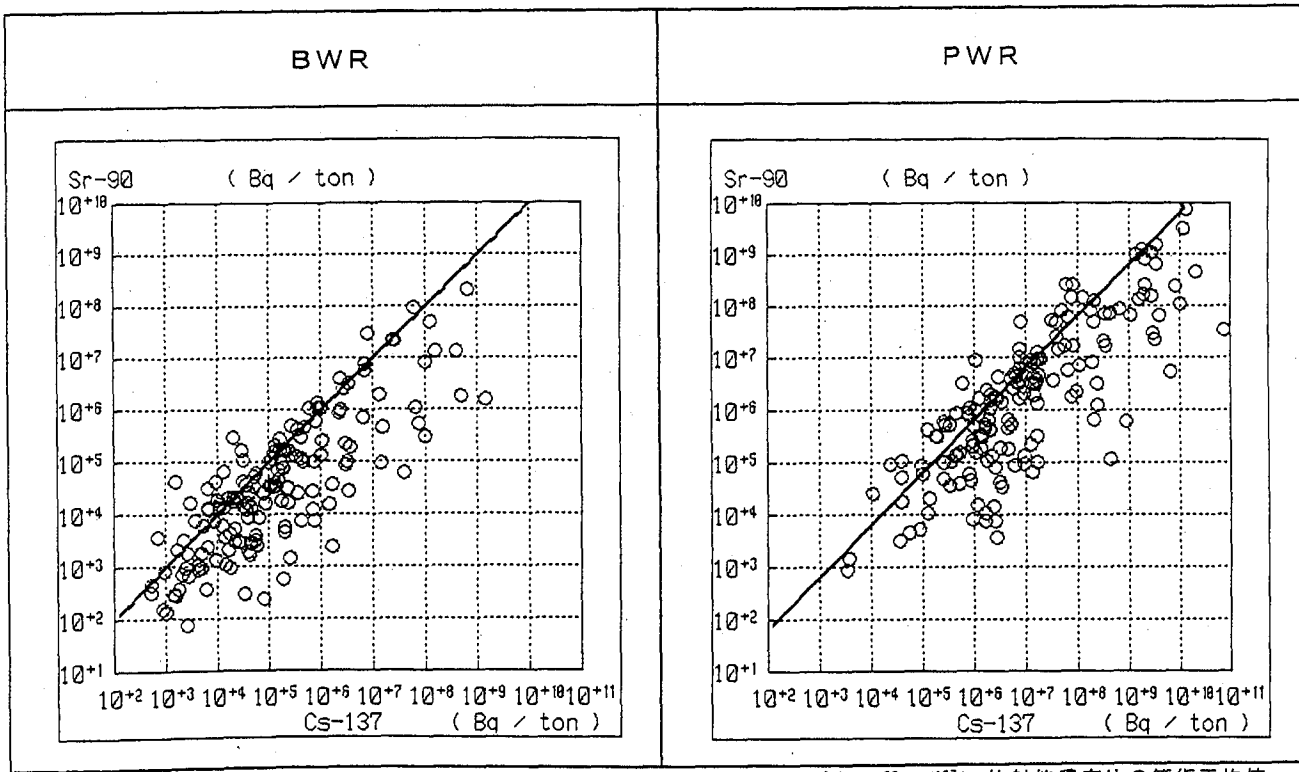


Fig.3 Correlation of ⁹⁰Sr/¹³⁷Cs of dry active wastes

3.2.2 固体状廃棄物で新たにSF法を適用する核種 (^{14}C (BWR), ^{99}Tc)

均質・均一固化体では、平均放射能濃度法を適用した核種として ^{14}C (BWR)と ^{99}Tc があり、これらの核種についてのSF適用性について以下に示す。

(1) ^{14}C (BWR)

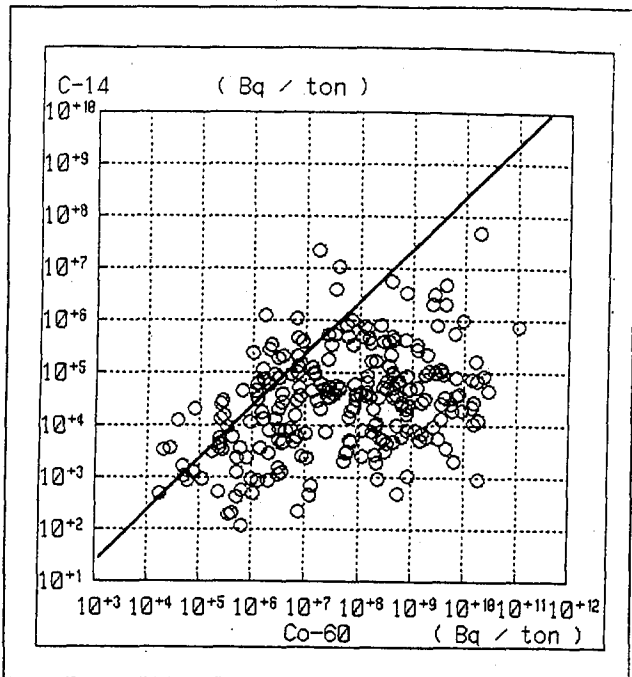
BWRでは原子炉での蒸発操作があるため、揮発性を有する ^{14}C とそれ以外の核種で蒸発時の核種移行に差が生じる結果、原子炉系とタービン系での組成比が異なる。

均質・均一固化体は、 $^{14}\text{C}/^{60}\text{Co}$ 比の高くなるタービン系と $^{14}\text{C}/^{60}\text{Co}$ 比の低い原子炉系の両系統からの廃液を一括処理した廃棄物であるため、核種組成比が混在し、 ^{60}Co との相関性は見られなかった。

固体状廃棄物ではデータ蓄積を進めた結果、Fig.4に示すように、固体状廃棄物全体での相関関係が成立し、SF法の適用が可能であることがわかった。

さらに固体状廃棄物のデータは、廃棄物が発生した系統が明確であり、発生系統ごとの評価が可能である。このため系統を区分した評価を行うことで、相関関係が向上すると想定された。実際に、 $^{14}\text{C}/^{60}\text{Co}$ 比の高いタービン系のみデータでは、Fig.5に示すように相関性の向上が認められた。

したがってタービン系を代表サンプルとすることで、全固体状廃棄物を保守的に評価するSF法が適用可能と考えられた。



- : 区分ごとの $^{14}\text{C}/^{60}\text{Co}$ 放射能濃度比の算術平均値

Fig.4 Correlation of $^{14}\text{C}/^{60}\text{Co}$ of dry active wastes (BWR; All waste stream)

(2) ^{99}Tc

均質・均一固化体では、 ^{99}Tc の存在濃度が低く、放射化学分析の検出限界を下回るものが多く、限られた範囲でしかデータが得られなかったため、相関関係が向上せず、SF法を適用できなかった。

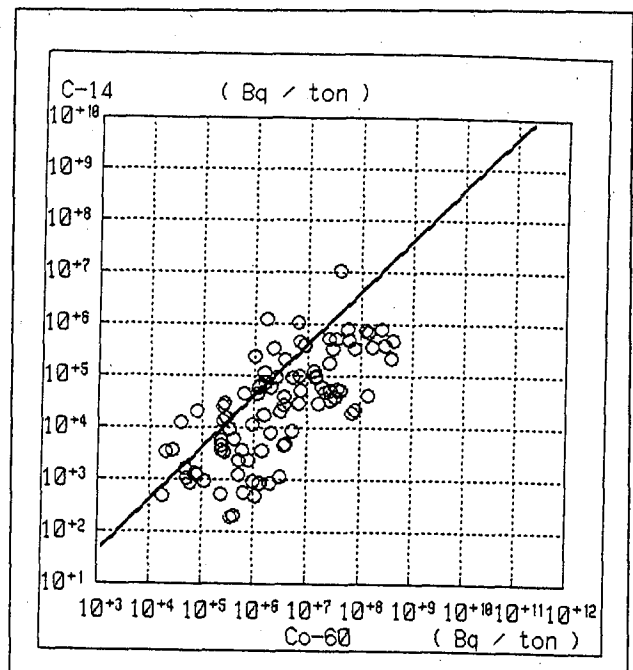
固体状廃棄物については、均質・均一固化体に比べ放射能濃度の高い廃棄物があること、および高感度機器分析(ICP-MS)の適用により ^{99}Tc の検出下限がこれまで適用してきた放射化学分析に比べ2桁程度改善されたことから、広範囲にデータを得ることが可能となった。その結果、Fig.6に示すように、選択したKey核種 ^{60}Co との良好な相関関係が認められSF法が適用可能と考えられた。

4 放射化学分析法の妥当性

4.1 放射化学分析方法における均質・均一固化体との違い

難測定核種の放射能評価は、計画的にサンプリング・分析された各種廃棄物の分析データを、統計解析等の手法を用いて客観的に設定しようとするものであり、当該評価に際しては、サンプルの分析が正しく行われていることが前提となる。

固体状廃棄物の分析方法については、均質・均一固化体での分析方法に対して第三者機関の破壊分析等による確認も行われ、十分な知見が得られているため、固体状廃棄物特有の配慮すべき条件に着目して行うことが合理的であると考えられる。



- : 区分ごとの $^{14}\text{C}/^{60}\text{Co}$ 放射能濃度比の算術平均値

Fig.5 Correlation of $^{14}\text{C}/^{60}\text{Co}$ of dry active wastes (BWR; Turbine system stream)

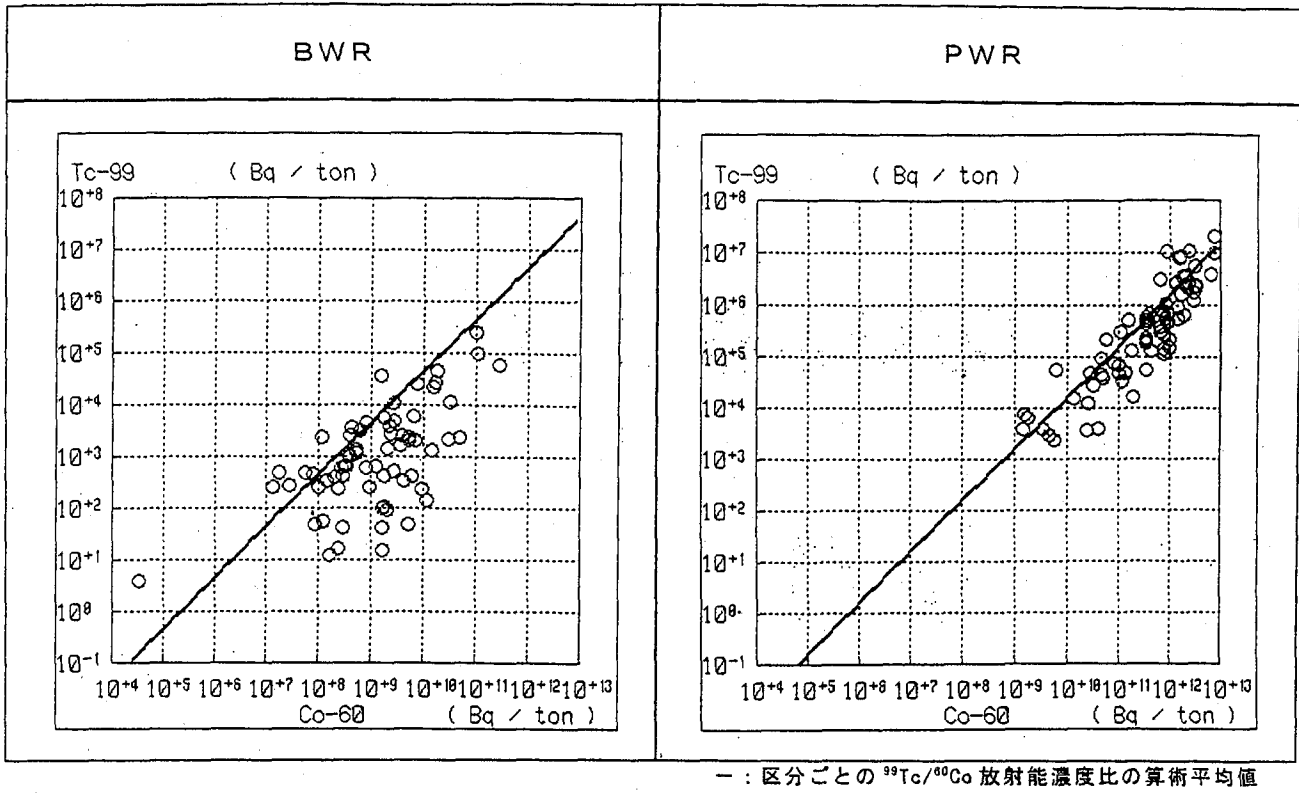


Fig. 6 Correlation of ⁹⁹Tc/⁶⁰Co of dry active wastes

固体状廃棄物と均質・均一固化体の分析手法で異なる部分は、Fig.7に示すように廃棄物に付着する放射性物質を分離して取り出す前処理の部分にある。前処理は、均質・均一固化体と同様の全量溶解と固体状廃棄物特有の、酸・アルカリによる化学除染、ヤスリ等により掻き取る物理除染に大別される。

なお、前処理以降の単離・精製、計測については、均質・均一固化体の分析手法と同様であることを確認している。

いずれの方法を適用した場合も分析対象とした試料の処理前後にγ線計測を行い除去率を確認することで放射能濃度を定量的に把握することができる。

4.2 放射化学分析法の妥当性

放射化学分析法の妥当性検証は、同一サンプルを複数の分析機関でそれぞれの分析方法で分析し、その結果をクロスチェックすることにより実施した。

クロスチェックは、固体状廃棄物と均質・均一固化体の分析方法で異なる前処理に着目した。

前処理は、廃棄物に付着する放射性物質を適切に回収する技術である。金属類は、塩ビ・ゴム、気体フィルタ等の廃棄物と比べ汚染が強固に付着している。したがって、金属類で前処理方法の妥当性を確認すれば十分であると考えられる。

また、クロスチェックにおいては、放射化学分析結果の実測値を得ることが必要であることから、比較的放射能濃度の高い試料を採取することが必要であり、この点からも、金属類が適しているといえる。

対象放射性物質は、六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センター「埋設事業許可申請書」に記載された11核種のうち、理論計算法で評価される⁵⁹Niを除く10核種とした。

試料はBWRおよびPWRで汚染の付着状況が異なるため、それぞれ代表的な金属類を採取し、放射化学分析を実施した。

その結果、BWRでは試料ごとの汚染にバラツキが認められたため、核種ごとの放射能濃度を比較することはできないものの、⁶⁰Co等のKey核種との組成比は最大でも2.6倍程度であり、そのほとんどは2倍未満の範囲に収束した。

PWRでは試料ごとの汚染がほぼ均一な状況にあったため、核種ごとの放射能濃度は一定範囲に収束した。また、⁶⁰Co等のKey核種との組成比についてもほとんどが2倍未満の範囲に収束し、最大でも4.1倍程度であった。

以上より、各分析機関の前処理方法には差異はなく、採用している前処理方法は各々妥当なものと考えられた。

また、分析方法の妥当性について第三者機関である財団法人日本分析センターにて、各分析機関の分析マニュアルを検証したところ、各分析方法は、全般的に問題なく、妥当との結果であった。

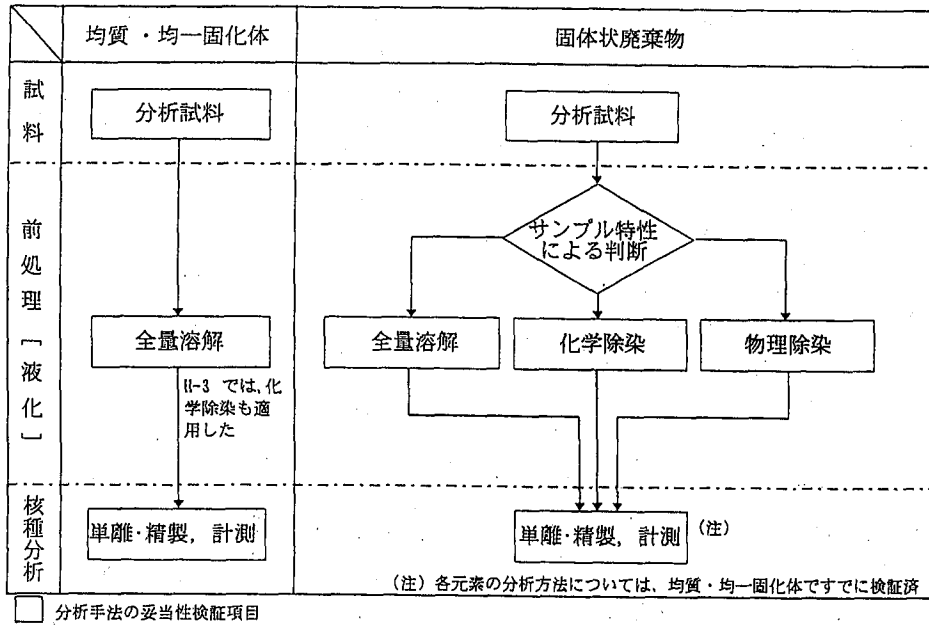


Fig. 7 Differences on cross-check of radioactivity measurement between homogeneous solidified wastes and dry active wastes

5 放射能測定装置の適用性

廃棄体全体からの透過γ線を外部から計測することにより、⁶⁰Co, ¹³⁷Cs等、主要なγ線を放出する放射性物質の廃棄体中の放射能濃度を測定する非破壊放射能測定装置（以下、「放射能測定装置」という）は、均質・均一固化体に対しては既に原子力発電所で実用化されている。一方、固体状廃棄物を固型化した充填固化体に対して適用を考えている放射能測定装置は、均質・均一固化体用の放射能測定装置に一部改良を加え、所定の性能が得られるよう、種々の工夫がなされたものである。本項では、放射能測定装置の充填固化体に対する適用性について示すこととする。

5.1 測定対象廃棄体の概要

放射能測定装置の測定対象となる充填固化体は、次に示す4種類に分類され、各々の放射能測定を行う上での誤差要因として、廃棄体中の汚染部位（以下、「線源」という）の位置がランダム、密度が均質・均一固化体と比べて大きいものがある等の点が挙げられる。各廃棄体の概略をTable 2に示す。

- ① A廃棄体（金属類収納）
- ② A廃棄体（圧縮体収納）
- ③ A廃棄体（溶融体収納）
- ④ B廃棄体（プラスチック類収納）

5.2 放射能測定装置の原理

充填固化体は均質・均一固化体と異なり、密度、線源位置および線源個数にバラツキをもつため、直接的に線源位置および密度分布の正確な情報を得ることは困難である。そこで、放射能測定装置では、充填固化体の平均密度、光電ピーク計数値および散乱線計数値等を利用して線源位置および密度分布の補正を行うことで、測定値の変動幅を抑え、測定精度の向上を図っている。現在、実用段階にある放射能測定装置は次の4種類である。各測定法の概要をTable 3に示す。

- ① ECT測定法
- ② グロスγ測定法
- ③ コリメータ測定法
- ④ スペクトル補正測定法

5.3 シミュレーションについて

放射能測定装置で充填固化体を測定する際の主な誤差要因は、次の2つである。各々の特徴をTable 4に示す。

- ① マトリックス誤差
- ② 計数値の統計誤差

これらについては、計算機によるQAD計算で得られた直接線及び散乱線に対して統計的変動を加味し、複数回のシミュレーション結果（放射能測定値）のバラツキから測定精度（=標準偏差(σ)/平均値×100）を算出することで、一括した評価を行うこととした。シミュレーションの概要をFig. 8に示す。シミュレーションでは、ドラム缶内に廃棄物および線源をランダムに発生させた後、モルタル充填を行い、充填固化体を模擬することとした。

Table 2 Types of pre-packed concrete packages for dry active wastes

| 測定法 | E C T測定法 | グロス γ 測定法 | コリメータ測定法 | スペクトル補正測定法 |
|---------|---|---|---|---|
| 装置構成 | | | | |
| 測定原理 | NaI検出器の測定情報から得られる小ブロック毎の放射能分布及び平均密度情報から、Ge半導体検出器による γ 線スペクトロメトリの結果を補正し、各核種の放射能を算出する。 | グロス γ 線計数率と、Ge半導体検出器による γ 線スペクトロメトリの結果から、各核種の検出効率を考慮し、各々の放射能を定量化する。 | Ge半導体検出器のコリメータを介して得られるピーク/ピーク比より減衰補正効果を求め、 γ 線スペクトロメトリの結果から各核種の放射能を算出する。 | Ge半導体検出器のスペクトル情報から得られるコンプトン/ピーク比より、減衰補正係数を求め、 γ 線スペクトロメトリの結果と上記の補正係数から、各核種の放射能を算出する。 |
| 減衰補正情報 | 放射能分布 平均密度情報等 | 平均密度 | ピーク/ピーク比による 減衰効果 | 散乱線情報 (コンプトン/ピーク比) |
| 放射能定量情報 | γ 線ピーク計数率 | グロス γ 線計数率 γ 線ピーク計数率 | γ 線ピーク計数率 | |
| 特徴 | ・小ブロック毎の放射能分布を求めることによる減衰補正 | ・散乱線を利用した減衰補正 | ・コリメータを介したピーク/ピーク比による減衰補正 | ・散乱線を利用した減衰補正 |

Table 3 Radioactivity measurement and evaluation systems for pre-packed concrete packages

| | A 廃棄体 | | | B 廃棄体 |
|-----------------|---|--|---|--|
| | 金属類 | 圧縮体 | 溶解体 | プラスチック類 |
| 概略図 | | | | |
| 内容物種類 | ①金属類 ②コンクリート類 | ①保温材類 ②フィルタ類 | ①固体状廃棄物全般 ②廃棄体は金属層及びセメント層の2層で構成される | ①プラスチック類 ②塩ビ・ゴム類 |
| 放射能測定を行う上での誤差要因 | ・モルタル充填後の廃棄体の嵩密度が均質・均一固化体と比較して大きい ・線源位置がランダムである(缶等の圧縮物は当該分類に含まれる。) | ・モルタル充填後の廃棄体の嵩密度が均質・均一固化体と比較して小さい ・線源位置がランダムである | ・モルタル充填後の廃棄体の嵩密度が均質・均一固化体と比較して大きい ・廃棄体は2層にわかれ、各層の密度及び放射能は均一に分布している ・基本的には金属層にCo-60が、セメント層にCs-137が存在する | ・モルタル充填後の廃棄体の嵩密度が均質・均一固化体と比較して小さい ・線源位置がランダムである |

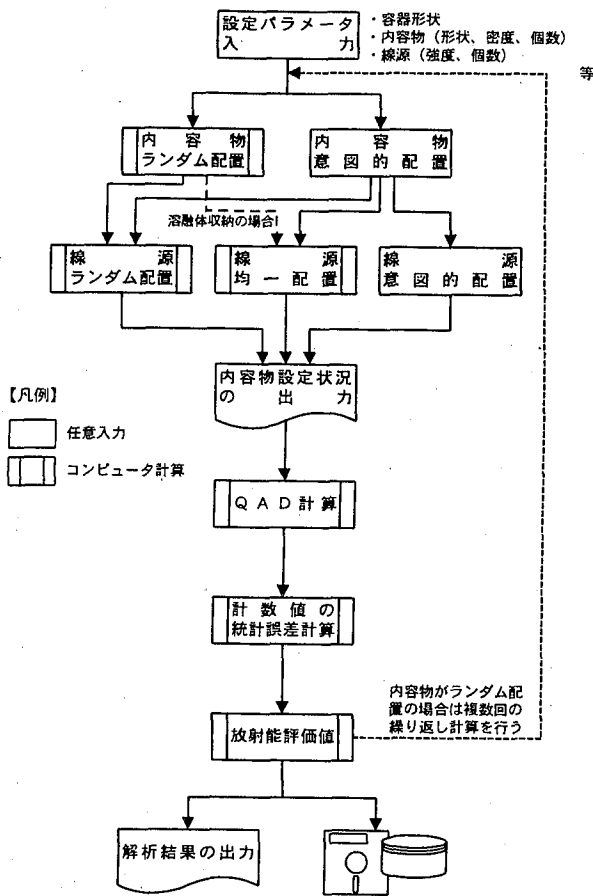
Table 4 Characteristics of error on radioactivity measurement and evaluation

| 誤差 | 定義 | 特徴 |
|----------|------------------------|---|
| マトリックス誤差 | 廃棄体中の放射能及び密度分布により生じる誤差 | ①線源が多くなるとマトリックス誤差は小さくなる ②廃棄体の密度が大きくなるとマトリックス誤差も大きくなる |
| 計数値の統計誤差 | 放射線崩壊がランダムであることに起因する誤差 | ①廃棄体の放射能濃度が高くなると計数値の統計誤差は小さくなる |

なお、シミュレーション結果が実際の充填固化体を模擬できていることについては、同一条件で行ったシミュレーション計算結果と模擬廃棄体測定結果の比が1.0~1.2の範囲で一致していることで確認した。

5.4 放射能測定装置の測定性能

前述の4種類の放射能測定装置について充填固化体に対する適用性をシミュレーション計算により確認した結果、Fig. 9に示す通り、密度が大きい廃棄体(金属類を



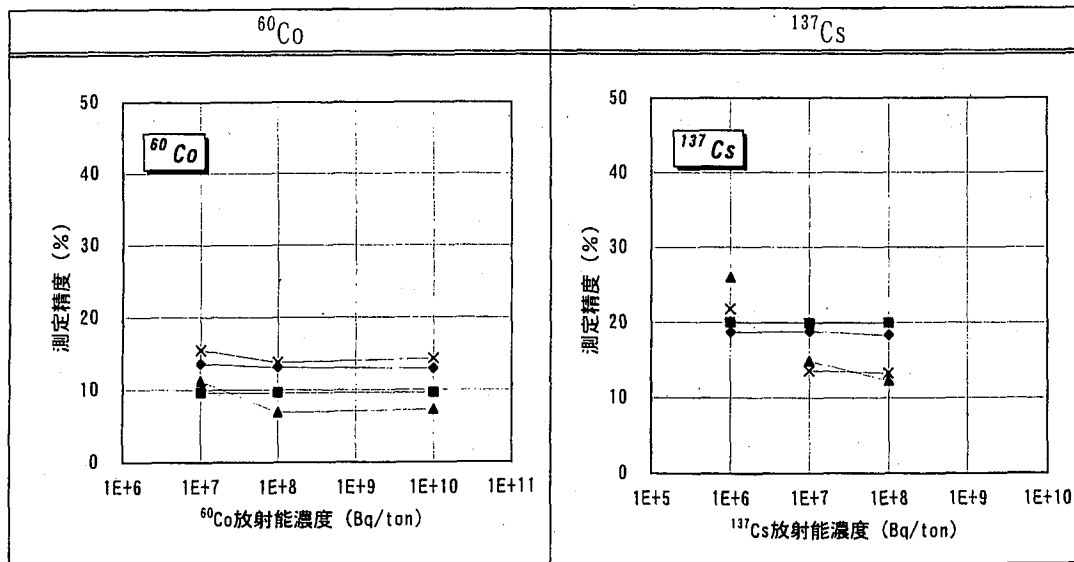
収納した場合)においても良好な測定精度が得られることがわかった。

以上より、前述の4種類の放射能測定装置は、いずれも充填固化体に対して適用可能であることがわかった。

6 おわりに

固体状廃棄物は、プラント内の発生系統、汚染形態が異なるので、保守的な配慮をもとに代表性のある廃棄物のサンプリング・核種分析を行いSF設定の見通しを得ると共に、核種分析方法の妥当性について同一サンプルのクロスチェックにより確認した。また、充填固化体の放射能濃度を測定するための非破壊測定装置について、その適用性をシミュレーション等により評価し、充填固化体に想定される密度・線源位置のバラツキを考慮しても、実機適用が可能であることを確認し実用化の見通しを得た。

Fig.8 Outline of computer simulation for pre-packed concrete package



◆: ECT測定法 ■: グロスγ測定法 ▲: コリメータ測定法 ×: スペクトル補正測定法

<シミュレーション実施条件>
 ① 廃棄体: A廃棄体(金属類収納)
 ② 線源個数: 10個

Fig.9 Evaluation error of radioactivity measurement of pre-packed concrete packages

参考文献

- [1] 松村勝秀他：原子力発電所雑固体廃棄物の廃棄体製作技術と課題.放射能廃棄物研究 2,153-181(1996).