

「クリアランスレベル検認方法の標準化への
検討状況」

2) 評価対象核種の核種組成比について

三菱重工業(株) 原子力技術センター
中田 幹裕

評価対象核種の核種組成比について

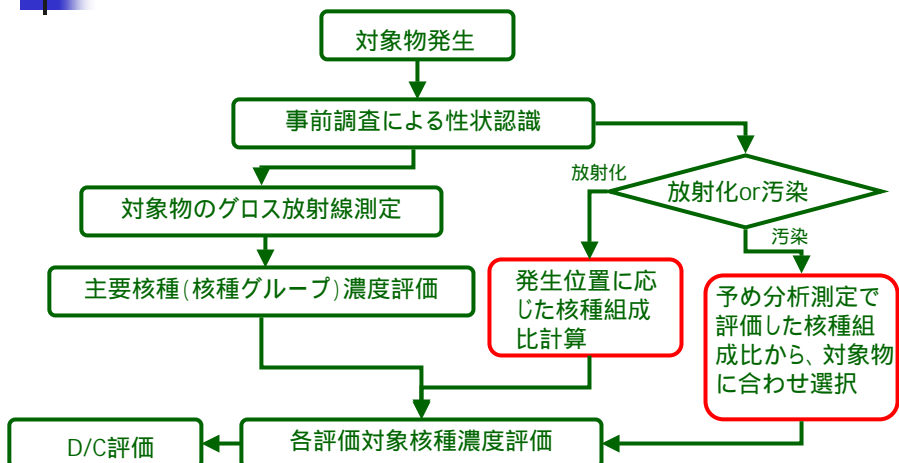
1. 核種組成比について
2. 核種組成比の評価方法
 - 2.1放射化の場合
 - 2.2汚染の場合
3. 核種組成比の事例
4. 核種組成比を用いた D/C評価例
5. まとめと今後の課題

1.核種組成比について

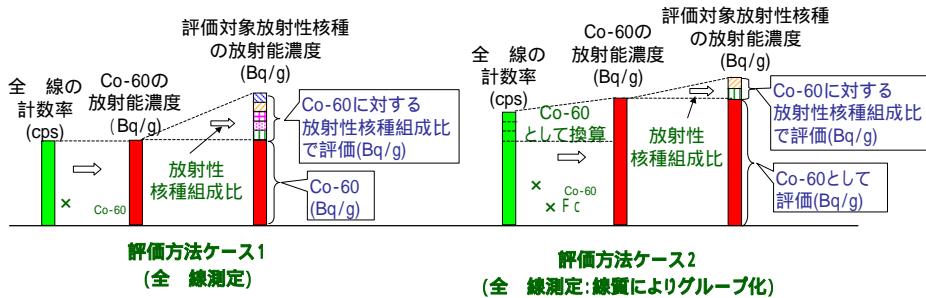
クリアランスレベル検認のための測定評価では、グロス測定値から評価した主要核種または核種グループ濃度を基に、予め評価した核種組成比で比例補正し、各核種濃度を評価する。

- (1)核種組成比は、汚染性状、対象物発生範囲や発生状況に応じて設定する。
- (2)放射化対象物の核種組成比は、計算評価で評価する。
- (3)汚染対象物の核種組成比は、分析測定で評価する。
- (4)分析測定によって求めたデータを、相関性及び分類必要性について、統計的評価を行い、成立性と分類を決定。
- (5)分析測定によって評価した核種組成比は、対数正規分布で表されるため、幾何平均値で与えることを基本とする。

1.核種組成比について



1. 核種組成比について



■ Mn-54 (線放出核種)	: 測定効率 cps/(Bq/g)
■ Co-60 (線放出核種)	(放射性核種毎に異なる)
■ Sr-90 (線放出核種)	Fc: ⁶⁰ Co以外の核種の効率や遮へい効果を考慮した補正係数
■ Cs-134 (線放出核種)	
■ Cs-137 (線放出核種)	
■ 全	

2. 核種組成比の評価方法

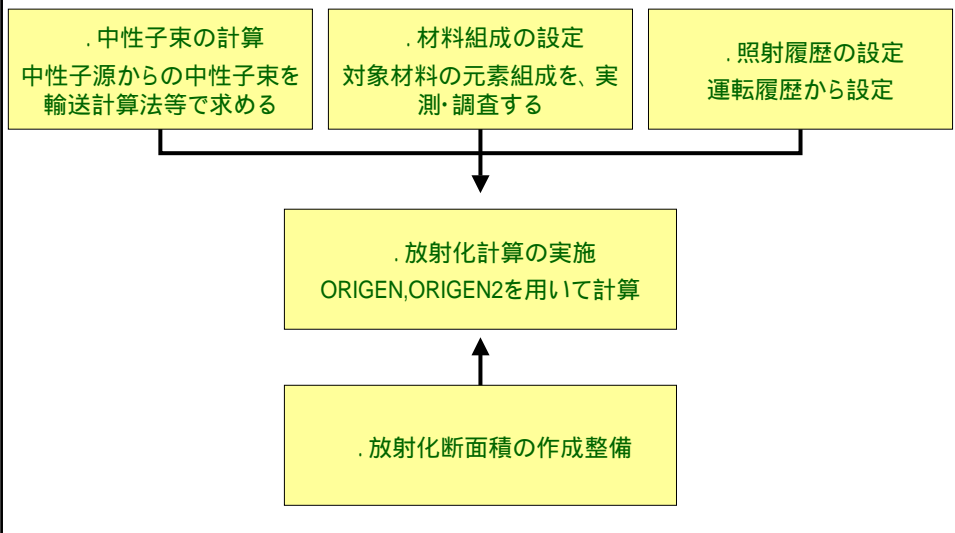
1. 放射化の核種組成比

発生位置の中性子束を、計算又は計算と測定併用で求め、放射化計算によって核種組成比を求める。ここで、中性子スペクトルが同一の範囲は、同じ核種組成比となる。

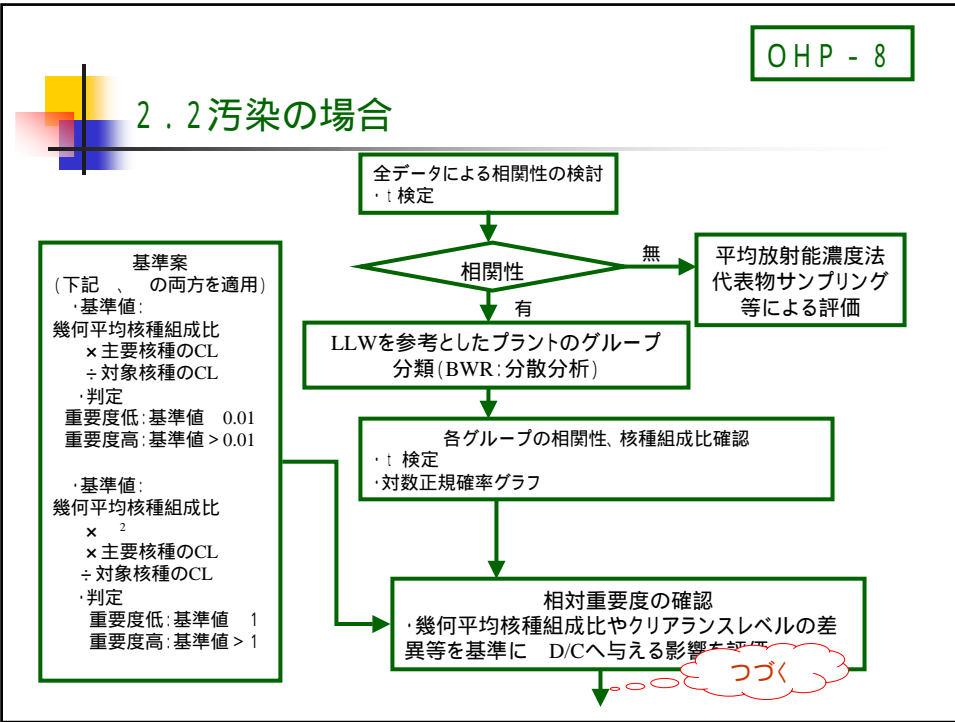
2. 汚染の核種組成比

- (1) 広い範囲に対し、放射化学分析によって、主要核種濃度と他の核種濃度を求め、これらの比を求める。
- (2) 汚染付着挙動は、濃度に依らず同一であるため、データを採取する試料は、有意なデータを得るために、クリアランスレベルより高い濃度範囲を含め広い濃度範囲から採取する。
- (3) 核種組成比データは、t検定により相関性を確認し、さらに相対重要度を評価し、大きい場合には分散分析(F検定)で分類評価を行い、有意な場合はプラント特性や系統で分類する。相関性がない場合は、平均放射濃度法などを適用する。
- (4) 核種組成比は、幾何平均で与える。

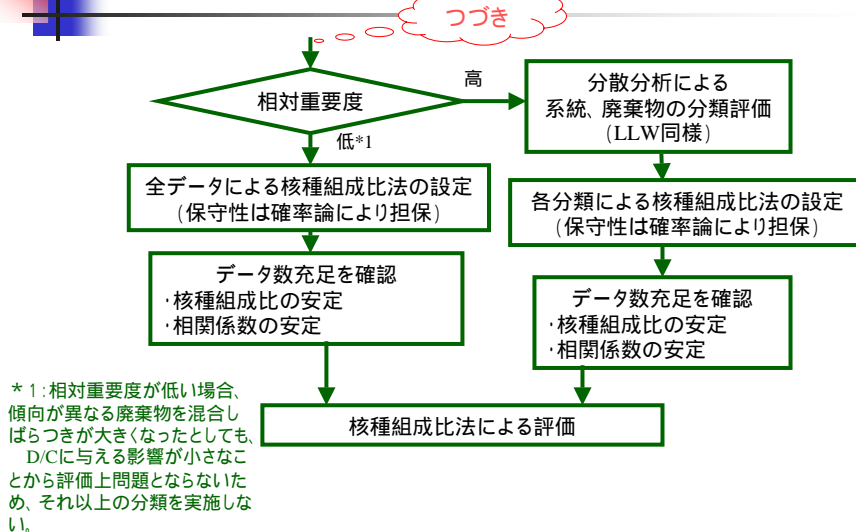
2.1 放射化の場合



2.2 汚染の場合



2.2 汚染の場合



2.2 汚染の場合

核種組成比設定までの考慮事項

- (1) t 検定 (2種の測定値による観測値の正規分布相関性)
 - t_s (t分布に従う統計量) t (自由度n-2、信頼度1- α のt分布)
- (2) 相対重要度 (対象核種の分類 (偏差縮小) が不要であること)
 - ・最重要核種に対し1%以下の重要度であること
 - ・バラツキを考慮した場合でも最重要核種より重要度が小さいこと
- (3) F検定 (分類必要性の判定)
 - VA (グループ間差異を表す統計量)
 - / Ve (各グループ内のバラツキを表す統計量) F(0.01)
 - * F(0.01): 自由度1 = (分類数 - 1)、自由度2 = (データ数 - 分類数) のF分布の上側99%値
- (4) データの充足 (データ蓄積に対する変動)
 - ・相関係数の変動が少なく一定値に収束していること
 - ・核種組成比の変動が少なく一定値に収束していること

3. 核種組成比の事例

組成比の事例

・放射化汚染

対象：PWR 1次冷却設備(炉心からのストリーミングと¹⁷Nからの中性子場)から発生した廃棄物

導出方法：放射化計算より組成比を算出
(計算条件としては中性子スペクトル、放射化断面積、元素組成、照射時間、冷却時間等)

・表面・内面汚染

対象：二次的な汚染がある廃棄物(PWR¹³⁷Cs評価事例)

導出方法：放射化学分析結果より組成比を評価

3. 核種組成比の事例

核種	クリアランスレベル (Bq/g)	放射化対象物	
		核種組成	TOTAL=1 に規格化
H-3	200	1.56E-03	0.00
C-14	5	2.01E-04	0.00
Cl-36	2	4.38E-06	0.00
Ca-41	80	4.75E-08	0.00
Sc-46	0.4	3.30E-05	0.00
Mn-54	1	4.88E-04	0.00
Fe-59	0.7	8.39E-02	0.06
Co-58	0.9	1.42E-03	0.00
Co-60	0.4	7.24E-01	0.93
Ni-59	600	1.40E-03	0.00
Ni-63	2000	1.82E-01	0.00
Zn-65	1	2.03E-03	0.00
Si-30	1	1.15E-06	0.00
Nb-94	0.2	5.01E-06	0.00
Nb-95	1	7.28E-06	0.00
Tc-99	0.3	1.06E-07	0.00
Ru-106	5	2.75E-07	0.00
Ag-108m	0.3	2.31E-06	0.00
Ag-110m	0.4	1.22E-04	0.00
Sb-124	0.5	1.84E-03	0.00
Sb-125	2	2.85E-08	0.00
Te-123m	4	1.96E-08	0.00
I-129	0.7	3.33E-13	0.00
Cs-134	0.5	3.67E-04	0.00
Cs-137	1	1.20E-06	0.00
Eu-152	0.4	5.28E-04	0.00
Eu-154	0.4	4.51E-05	0.00
Th-160	0.9	5.27E-04	0.00
Ta-182	0.7	1.05E-08	0.00
全	0.2	3.61E-07	0.00
合計		1.00E+00	1.00
重要9核種合計			0.93
重要9核種合計+Sc-46			0.93

計算条件

・中性子スペクトル

ルーブ室及びアキュムレータ室より発生した廃棄物であるため、中性子スペクトルはルーブ室内の貫通口を直視しない領域の中性子スペクトルを中性子輸送計算より算出。

・放射化断面積

JENDL-3.2をベースとし、ORIGEN2用に一群縮約断面積を作成。

・元素組成

平成13年度 放射性廃棄物処理システム開発調査等報告書(第1分冊)-原子力発電施設解体放射性廃棄物規準調査-(財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター)より引用。

・照射時間

照射条件はプラント運転履歴より、連続照射として評価。

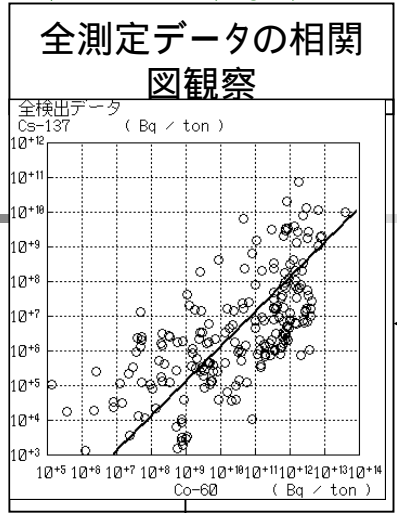
・冷却時間

実際の廃棄物の取扱いにかかる期間を考慮し、短半減期核種は除外するが、計算上は0年冷却。

3. 核種組成比の事例

**PWR¹³⁷Cs
の例**

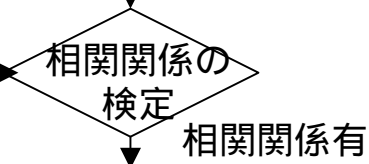
PHASE 1-1



生成機構及び核種特性等の考察

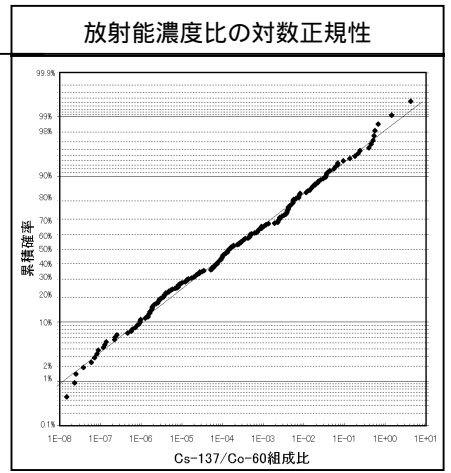
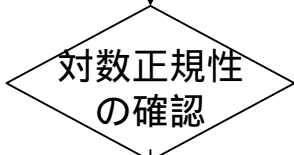
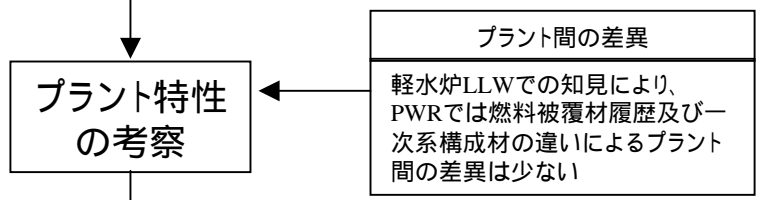
Cs-137と主要核種のCo-60は、生成源、化学的特性(溶解度)に相違があることから、燃料被覆管履歴や使用材料、系統や付着形態により傾向に相違が見られる可能性がある。

データ数	相関係数	ts値	判定基準	判定
209	0.66	12.7	2.6	A



核種組成比法適用可能

判定：
危険率1%で相関関係 = 0が棄却される
(相関関係が認められる)
現時点ではデータ数が小数のため判定できないか、又は危険率1%にて相関関係 = 0が棄却できない
(相関関係が認められない)



全発電所での核種組成比法適用

PHASE 1-2 へ

3. 核種組成比の事例

PWR¹³⁷Cs の例

PHASE 1-2

判定基準:

基準値: 幾何平均核種組成
× 主要核種のCL

÷ 対象核種のCL

基準値: 幾何平均核種組成
× ² × 主要核種のCL

÷ 対象核種のCL

判定:

A: 判定基準 > 0.01

B: 判定基準 0.01

A: 判定基準 > 1

B: 判定基準 1

A: 相対重要度高

(系統・汚染形態の分類評価が必要)

B: 相対重要度低

(系統・汚染形態の分類評価は不要)

PHASE 1-1より

核種の相対重要度判定

相対重要度

低

高

該当グループ分類なし

全グループ分類

系統・汚染形態の分類評価
なし

PHASE2 へ

PHASE3 へ

グループ分類		全発電所
幾何平均核種組成比		1.4E-4
標準偏差		24.9
SF × 2		8.5E-2
判定基準	原安委	5.5E-5
	DS-161	1.4E-4
判定基準	原安委	3.4E-2
	DS-161	8.5E-2
判定	原安委	B
	DS-161	B
判定	原安委	B
	DS-161	B

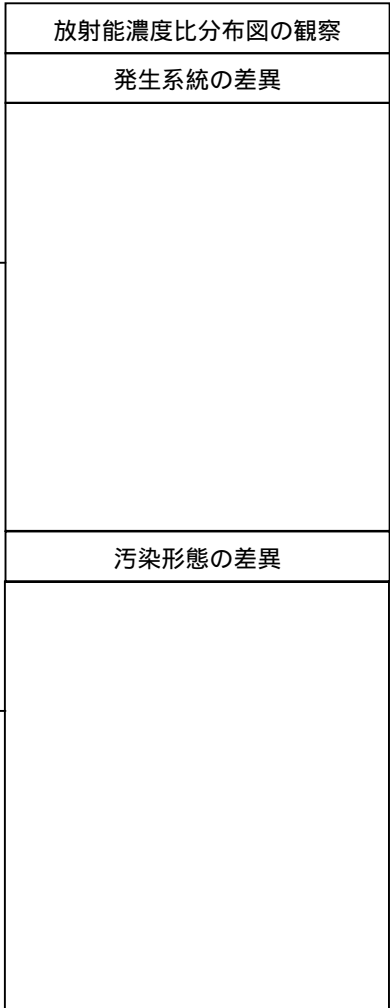
3. 核種組成比の事例

PWR¹³⁷Cs
の例

PHASE 1より

PHASE 2

該当グループ
分類なし



廃棄物分類
の評価

PHASE 3 へ

廃棄物分類の可能性(同等性)のF検定

層分類	分散比 F0	F(0.0 1)	判定
発生系統			
汚染形態			

3. 核種組成比の事例

PHASE3

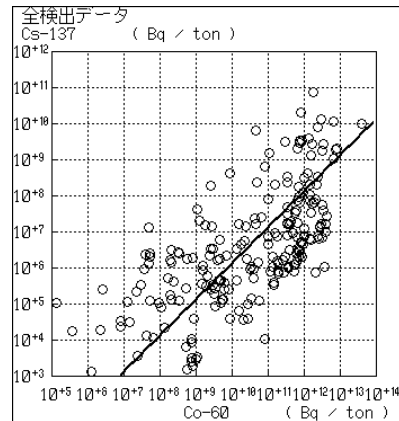
グループ分類	データ数	判定
全発電所、全廃棄物	209	充足

PHASE 2 より

サンプル数の評価

データ数は充足している

相関係数、核種組成比は安定している



統計値の信頼限界評価

相関係数の安定性

PWR

核種組成比の安定性

核種組成比 / 核種組成比信頼上限

放射能濃度決定用核種組成比設定可能

グループ分類	核種組成比 (幾何平均)	標準偏差 (対数)
全発電所、全廃棄物	1.4×10^{-4}	24.9

3. 核種組成比の事例

核種組成比PWR案の事例

現在のLLWやクリアランスレベル研究で採取したデータによる試算値(幾何平均値)

核種	核種組成比
^{54}Mn	1.1×10^{-1}
^{90}Sr	2.2×10^{-5}
^{134}Cs	5.7×10^{-6}
^{137}Cs	1.4×10^{-4}
全 α	1.5×10^{-5}

4. 核種組成比を用いた D/C評価例

グロス測定による主要核種濃度評価と、核種組成比を用いた各核種濃度及びD/Cの総和の評価事例

1. サーベイメータを用いた事例
(汚染したバルブ)
2. 専用測定器を用いた事例
(汚染配管:自動汚染性状認識トレイ型)

4. 核種組成比を用いた D/C評価例

1. グロス測定評価からの D/C評価

- ・サーベイメータによる 線グロス測定及び専用測定器による 線グロス測定で⁶⁰Co濃度を評価
- ・核種組成比で各核種濃度を評価し D/Cを評価

2. 放射化学分析結果からの D/C評価

- ・サーベイメータでの最大指示位置から採取した試料の放射化学分析結果からの D/C評価
- ・検出限界以下の核種は、検出限界値とした

3. これらの D/C値を比較

4. 核種組成比を用いた D/C評価例

サーベイメータによる評価

対象物概要



汚染バルブ

事前調査

発生位置: 原子炉補助建屋 (A/B建家)
 材質: ステンレス鋼
 重量: 275g
 放射線環境: A/B建屋であるため放射化を考慮する必要なし
 ラフサーベイ: 測定形状より NaIサーベイメータによる測定
 放置期間: 60日
 汚染性状: 表面汚染

Gross判定結果

試料が複雑形状であるため NaIサーベイメータで測定
 Gross: 0.17 μ Sv/h BG: 0.09 μ Sv/h
 Net: 0.08 μ Sv/h

評価結果と判定

放射能濃度換算係数
⁶⁰Co 18.1 Bq/g / μ Sv/h
 対象物形状に対し計算評価
 モンテカルロ計算(MCNP)を使用

核種組成比

核種	核種組成比 (総認想定日)
³ H	-
⁵⁴ Mn	1.10E-01
⁶⁰ Co	-
⁹⁰ Sr	2.20E-05
¹³⁷ Cs	5.70E-06
¹³⁷ Cs	1.40E-04
¹⁵² Eu	-
¹⁵⁴ Eu	-
全 核種	1.50E-05

⁶⁰Co濃度

測定日換算: 1.45Bq/g 検認想定日換算: 1.31Bq/g

評価と判定

核種	核種別濃度(D)(Bq/g)		クリアランスレベル(Bq/g)	D/Cの判定	
	Gross測定値と組成比法	放射化学分析値		Gross測定からの計算値	放射化学分析値からの計算値 ¹⁾
³ H	4.46E-01	5.62E-02	200	2.23E-03	2.81E-04
⁵⁴ Mn	7.72E-02	2.22E-03	1	7.72E-02	2.22E-03
⁶⁰ Co	1.31E+00	2.38E-01	0.4	3.28E+00	5.96E-01
⁹⁰ Sr	3.18E-05	6.75E-05	1	3.18E-05	6.75E-05
¹³⁷ Cs	6.19E-06	3.82E-04	0.5	1.24E-05	7.63E-04
¹³⁷ Cs	2.03E-04	1.90E-02	1	2.03E-04	1.90E-02
¹⁵² Eu	-	-	0.4	-	-
¹⁵⁴ Eu	-	-	0.4	-	-
全 核種	2.22E-05	9.38E-04	0.2	1.11E-04	4.69E-03
¹⁰⁸ Ag	-	2.37E-02	0.3	-	7.89E-02
^{110m} Ag	-	5.12E-03	0.4	-	1.28E-02
¹²⁵ Sb	-	2.76E-02	2	-	1.38E-02
合計				3.36E+00	7.28E-01

¹⁾TNDの核種は、ND値を用いて D/Cを評価した

D/Cの評価結果

- ・放射化学分析ではクリアランスレベルを超えないものとして区分
- ・専用器測定ではクリアランスレベルを超えるものとして区分

4. 核種組成比を用いた D/C評価例

専用器による評価

対象物概要



汚染配管

核種組成比

核種	核種組成比 (検認想定日)
³ H	-
⁵⁴ Mn	1.10E-01
⁵⁸ Co	2.40E+00
⁶⁰ Co	-
⁹⁰ Sr	2.20E-05
¹³⁴ Cs	5.70E-06
¹³⁷ Cs	1.40E-04
¹⁵² Eu	-
¹⁵⁴ Eu	-
全 核種	1.50E-05

評価結果と判定

⁶⁰Co濃度

測定日換算: 0.651Bq/g 検認想定日換算: 0.586Bq/g

評価と判定

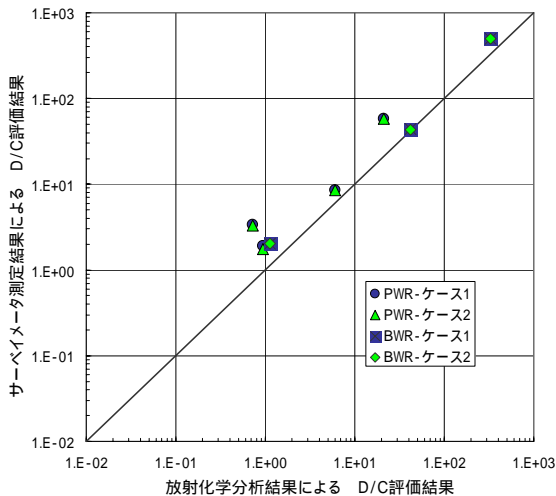
核種	核種別濃度(D)(Bq/g)		クリアランス レベル(Bq/g)	D/Cの判定	
	Gross測定値 と組成比法	放射化学分析値		Gross測定 からの計算値	放射化学分析値 からの計算値 ¹⁾
³ H	4.49E-01	1.18E-02	200	2.25E-03	5.88E-05
⁵⁴ Mn	3.76E-02	9.14E-03	1	3.76E-02	9.14E-03
⁵⁸ Co	9.15E-02	6.79E-06	0.9	1.02E-01	7.55E-06
⁶⁰ Co	5.86E-01	3.50E-01	0.4	1.47E+00	8.76E-01
⁹⁰ Sr	1.41E-05	7.66E-04	1	1.41E-05	7.66E-04
¹³⁴ Cs	2.84E-06	3.87E-03	0.5	5.68E-06	7.75E-03
¹³⁷ Cs	8.95E-05	4.57E-03	1	8.95E-05	4.57E-03
¹⁵² Eu	-	-	0.4	-	-
¹⁵⁴ Eu	-	-	0.4	-	-
全 核種	9.75E-06	3.99E-03	0.2	4.88E-05	2.00E-02
⁶³ Ni		8.05E-01	2000		4.02E-04
⁹⁵ Nb		2.46E-04	1		2.46E-04
¹²⁵ Sb		3.49E-02	2		1.74E-02
合計				1.61E+00	9.36E-01

*1:NDの核種は、ND値を用いて D/Cを評価した

D/Cの評価結果

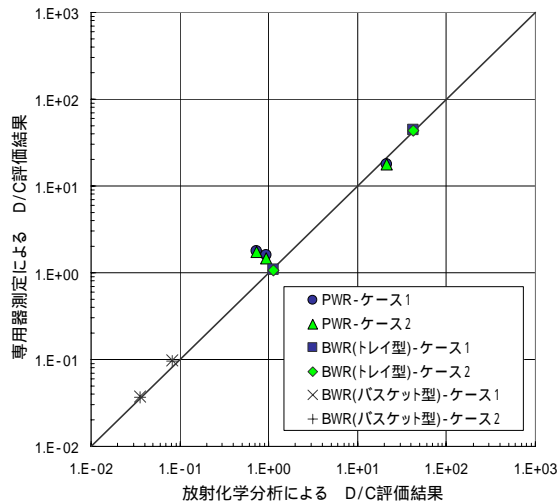
- 放射化学分析ではクリアランスレベルを超えないものとして区分
- 専用器測定ではクリアランスレベルを超えるものとして区分

4. 核種組成比を用いた D/C評価例



サーベイメータ測定と放射化学分析による D/C評価結果の比較

4. 核種組成比を用いた D/C評価例



専用品測定と放射化学分析による D/C評価結果の比較

5. まとめと今後の課題

- クリアランスレベル検認のための核種組成比評価手法を開発した
- グロス測定評価と放射化学分析値からの D/C 値を比較し、良く一致しており、核種組成比を用いたグロス測定評価の妥当性が確認された。
- 今後、不確定性の影響を考慮し、安全を確保した核種組成比を用いた評価手法の、データ拡充、さらなる確証及び合理化を図る。