

話 題 (IV)

## デコミッショニングする原子炉の 放射能の評価について

(原研) 江 連 秀 夫<sup>+</sup>・助 川 武 則

[まえがき]

原子炉施設の解体計画を策定するにあたって、まず必要な情報は施設内の放射能の量とその分布である。施設内に放射能が無ければ、一般の建築物と同じようにその解体は従来の方法でできる。これに対して、原子炉施設は放射能を内蔵するために、解体計画の策定にはその手順、方法、安全性等を十分に留意し、作業の遂行にあたらねばならない。

原子炉施設の放射能は、その生成過程から核分裂生成物と中性子の放射化による放射能に分類される。これらの放射能の一部は、一次冷却水、建家の換気等を媒体として原子炉施設を汚染させる。この結果、解体を前にした原子炉施設には圧力容器、生体遮蔽体等の放射能と、一次冷却水系の配管、廃棄物処理系の配管、タンク等、換気系ダクト、建家の床、壁等の汚染放射能が残ることになる。それぞれの生成過程が異なるために、これらを求める方法も異なる。ここでは、主に前者の構造材の放射化放射能（以下、放射能または放射能インベントリ）の評価に関して述べる。

原子炉炉心及びその周辺の構造材の放射能の評価は、計算と測定及びこれらの組合せによって可能である。計算の手法は、原子炉の中性子束分布を求め、運転履歴に従って構造材の放射化量計算をする従来からの手法が採用されている。この方法は、計算する対象物が炉心から遠く離れていること及び体系が大きいこと、圧力容器と生体遮蔽体との間に空気層があること、非均質性が強いこと等の理由から計算モデル、計算時間等の問題がある。本稿では、これらの問題を始めとして世界の放射能の評価方法の現状と、原研動力試験炉(JPDR)で行った放射能測定値と計算評価との比較について述べる。

### 1. 放射能の評価方法の現状

炉心及びその周辺の構造物の放射能を計算で求める場合の手順は次の通りである。

- ① 縮約計算による群定数の作成又は既存の群定数の活用
- ② ①を用いた中性子束の計算
- ③ ②の結果を用いた放射化量の計算

放射能インベントリの評価が出来る計算コードについて調査してみたが、①から③までを効率良く計算できるコードシステムはなかなか見当らなかった。既存の燃焼解析用のコードを放射化量計算に使おうとすると、中性子束や実効的な放射化断面積をそのコードに合わせて編集しなおす必要がある。このため、JPDRでは既存のライブラリやコードの改良、組合せによって放射能インベントリを計算するシステムを作成した。このシステムはFig. 1に示すようにANISNを用いて縮約計算を行って領域毎の群定数を求め、この結果を用いて2次元のDOTによって中性子束の計算をし、DCHAIN-MDにより放射能を計算するオーソドックスな手順である。

放射能インベントリ計算の中性子束計算に輸送計算コードを用いる方法は、主に、日本やアメリカで採用されている。これに対してヨーロッパにおいては除去拡散コードが多く

---

<sup>+</sup> 現在原子力施設デコミッショニング研究協会

用いられている。中性子束や放射能の計算に用いている核定数の群構造等もまちまちである。計算する体系も1次元又は2次元のモデルとしている。これらの評価方法の世界の現状をTable 1に示す。これを見ても判るように詳細な手順や方法において統一したものはない。その理由の一つには計算の例は多数あっても測定結果と比較した例が少ないことがあげられる。構造物の残留放射能を測定している原子炉はJPDR, WAGR, Gundremmingen, Lingen 等である。例としてLingenの生体遮蔽体中(炉心中心面)の放射能をFig. 2に示す。

## 2. 放射能評価の問題点

放射能インベントリの計算にあたっての課題はその計算精度である。計算精度は適用される解体工法との関連で設定されることになる。計算精度を高めても適用する解体工法がその精度以上に切断や区分の管理が出来なければあまり意味がない。例えばジャイアントブレイカーを用いて生体遮蔽を解体する場合を考えると5cm以内の精度で放射能のレベル区分をするような解体は困難である。これに対して炉内の鋼構造物の解体は遠隔装置等を適用することによって、目的とする形状、寸法精度をとることが出来る。このように要求される計算精度は解体工法によって異なるが、その精度を高めることによって、解体工事から放射性廃棄物の管理まで種々の面で利点がある。

計算精度を左右する要因は2つある。その1つは計算に用いるデータの精度である。例えば放射化する親核種のうちCo, Nb等は構造物に不純物として含まれるので含有率が微量であり、測定値そのものに誤差が大きい場合がある。他の1つは計算方法に起因する計算精度である。以下においてこれらについて述べる。

### (1) 中性子群の群数

中性子束の計算は遮蔽計算の手法が踏襲されているので、熱中性子群の群定数はマクスウエル分布を仮定して求められている。炉心の中性子スペクトルはマクスウエル分布に近い。しかし、圧力容器母材、生体遮蔽等のなかでは熱中性子スペクトルはマクスウエル分布から大きくずれる。特に圧力容器の外側や生体遮蔽の内側ではマクスウエル分布と1/Eテールの区別ができないほどのスペクトルになる。

放射能インベントリの計算の場合、遮蔽計算用にも精度を有する群定数である必要があり、また熱中性子スペクトルも表現できる群数である必要がある。JPDRの場合、1つは208群(163群、45群)、もう1つは48群(44群、4群)のものを用意し、通常は48群で計算している。DOTでは10群程度で計算しているが、1次元で妥当なスペクトルを求めておけば縮約群定数はこの程度の群数でよいと考える。

### (2) モデル化の問題

放射能の計算では、多くの場合、3次元体系を1次元化して行っている。本来原子炉体系が3次元である上に、圧力容器と生体遮蔽の間の空気層による中性子ストリーミング(これにより圧力容器上、下部のかなり遠方まで放射化が進む)のような現象があるため少なくとも2次元モデルが必要であろう。炉内構造物のなかには複雑な形状のものが多く体積比で均質化するなどの措置が必要となる。また、炉心部の出力分布やボイド分布のデータは炉心近傍の構造物の放射能分布を決める直接的な因子になる。

### (3) その他のパラメータ

P1近似、角度分点数、計算メッシュ数、体系接続法等については、通常の遮蔽計算で

用いている方法に基づき設定する。JPDRの2次元円柱モデルの場合、半径方向に3.5m、軸方向に約12mあるが、メッシュ数を節約して、軸方向に3分割の接続計算で全体系をカバーできる。Fig.3はJPDR体系の熱中性子束分布をしめす(この場合は6分割接続)。

#### (4) 放射化核種について

原子炉解体に関して問題とすべき核種は、解体方法の選択で異なる。即時解体の場合は $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、遅延解体の場合は $^{94}\text{Nb}$ 、 $^{108}\text{Ag}$ 等が代表的なものである。放射化断面積ライブラリに収納する核種、反応の選択にあたっては放射能インベントリ関連の文献を参考にしてきたが、何度か追加や修正が必要であった。原子炉施設の構造材中には、微量であっても放射化断面積が大きく生成量が大いもの、生成核種が長半減期であって将来まで管理を要するもの、あるいは被曝評価上重要なものなど様々な観点から重要な元素が存在している。鋼材中のFe、Ni等の主要な成分は勿論のこと、C、Co、Nb、Sn等、コンクリート中ではLi、Co、Eu等である。これらを含めて74の核種を親核種として採用した。生成核種の半減期は1ヵ月以上のものを含めて102の反応を収録した。このうち約40が(n,  $\gamma$ )反応で占められる。現在の放射化断面積ライブラリでは、運転停止後の冷却期間を考慮して半減期が100日以下のものは省略して計算するようにしている。これらの核種の放射化断面積は大部分は評価済みの核データファイル(ENDF/B, JENDL, KEDAK, ENDL)からAMPX-IIを用いて群定数化したものであるが、なかには実験データそのものが不足しているものもあり、 $^{107}\text{Ag}(n, \gamma)^{108}$ 、 $^{108}\text{Ag}$ 、 $^{110}\text{Cd}(n, p)^{110}\text{Ag}$ のように独自の評価でファイルを作成したものもある。

構造材中の放射性核種で生成量が多く、長半減期であって、外部被曝をもたらす核種は $^{60}\text{Co}$ が主要であり、従って解体計画の立案の段階では $^{60}\text{Co}$ の残存量を評価すれば間にあうといっても過言ではない。しかし、将来にわたっての長期の保管や処理、処分、廃棄物対策等を考慮すると、様々な核種を評価しておかなくてはならない。 $^{60}\text{Co}$ のガンマ線にマスクされて容易には確認出来ない核種でも生成量が大い $^{14}\text{C}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{55}\text{Fe}$ 、 $^{63}\text{Ni}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{152}\text{Eu}$ 、 $^{154}\text{Eu}$ 等、環境影響評価上重要な $^3\text{H}$ 等評価しておくべき核種は少なくない。これらは、評価済み核データファイルから作成した放射化断面積を用いれば計算できる核種であり、測定によっても確認出来ているが、今回独自の方法でファイル化した放射化断面積は実際のJPDRにおける放射能の測定で確かめられたものは無かった。

### 3. 放射能インベントリ計算と測定値との比較・検討

JPDRでは技術開発の当初から幸いかなりの放射能測定を行ってきた。試料採取により比放射能を測定する方法、測定対象物の表面の線量当量率分布を測定する方法、新規に開発した非破壊望遠測定法、化学分離を用いての核種分析法等である。これらによる結果は相互に比較検討されるとともに、計算結果の評価に役立てられた。

採取試料についてのGe半導体検出器や化学分離を利用した放射能測定で定量された核種は $^{60}\text{Co}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{55}\text{Fe}$ 、 $^{63}\text{Ni}$ 、 $^{154}\text{Eu}$ 等(SUS、炭素鋼)、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{93}\text{Zr}$ (ジルコニウム合金)、 $^3\text{H}$ 、 $^{55}\text{Fe}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{63}\text{Ni}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{152}\text{Eu}$ 、 $^{154}\text{Eu}$ (コンクリート)があげられる。計算値と測定値の比較は主に $^{60}\text{Co}$ に着目した。炉心付近の構造物で放射能量の1/4程度を占める炉心シュラウドは、軸方向の分布に着目しても15%程度の差違に入っている。炉心の上部に位置する格子板(上部グリッド)では2~4倍の過大評価となり、比較的炉心に近い構造物であっても複雑

形状のものでは誤差が大きくなることを示した。炉心シュラウドの測定結果で興味深い点はコンクリート中で多量に測定される $^{152}\text{Eu}$ が検出できないことである。これは $^{152}\text{Eu}$ の放射化断面積が大きく高中性子束の場であるため燃焼によって消滅するためである。

圧力容器の被覆材(SUSの肉盛溶接)では、炉心高さ付近であれば30%程度の差違であったが、炉心から2m以上も離れた部分では50%以上の差が出てくるようであり、炉内の構造物等のモデルがさらに検討されるべきことを示している。圧力容器の母材の内部では中性子束が急激に変化するがその試料採取(炉心高さ、上方部)、放射能測定が来年度以降に予定されており、計算値の検証に役立つ有用なデータが得られると期待している。

炉心シュラウド及び圧力容器内壁面の $^{60}\text{Co}$ 放射能軸方向分布をFig.4に示す。

生体遮蔽コンクリート中ではガンマ線放出核種として $^{60}\text{Co}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{152}\text{Eu}$ 、 $^{154}\text{Eu}$ が検出され、水平方向にボーリングされたコアにそった放射能測定によって、遮蔽体中の放射能の減衰傾向が把握され、計算との比較ができた。この減衰率を決定する因子は、コンクリートの組成であり、なかでも水分量をどう見積るかがキーポイントとなる。また、Co, Eu, Cs等がいずれも不純物元素であるため、計算精度を上げるためには組成分析のデータが必要である。同様に微量に含まれるLiから生成されるトリチウムは $^{60}\text{Co}$ や $^{152}\text{Eu}$ よりも多く残存していると見られるが、確認測定を続けているところである。Fig.5にコンクリート各コアの $^{60}\text{Co}$ 測定値と計算値の比較を示す。

[おわりに]

昭和61年12月に開始されたJPDRの解体実地試験も順調に進み、炉内構造物が完全に撤去され、いよいよ圧力容器の解体、生体遮蔽体の撤去へ移行する段階を迎えている。内蔵放射能についてのデータは解体工事の全般にわたって活用されている。同時に工事の進捗にしたがって、これまで不可能だった箇所放射能や線量当量率等の測定も可能となり、測定データから教えられること、修正や評価の必要なものができてきている。JPDRの解体は平成4年度に完了する予定であるが、放射能の測定と計算はその時点まで続けられるので更にまとまったデータが蓄積できるものと思われる。

(この報告は、原子炉解体技術開発〔特別会計による科学技術庁から日本原子力研究所への委託研究〕の成果の一部をまとめたものである)

Table 1 Example of Radioactive Inventory calculation

Item	Code	Neutron group	Dimension	Nuclide	Reference	Library	Note
JPDR BWR (Japan)	ANISN/DOT DCHAIN-MD	208G or 48/7-8 1	1/2	74	Informal report (1985-1988)	208G generated by ANPX from ENDF/B.	Calculation was referred to measurement. Neutron flux and activity distributions and dose rate were calculated.
WAGR (UK)	MATRIX	7	1	A few	?	?	Radioactivity distribution was obtained by normalizing calculated values to measured ones. Dose rate was calculated.
Lingen BWR (GFR)	MAC-RAD AKTIV	3 3	1	50	EUR 8801 DE (1984)	?	Calculated values were compared with measured ones in the biological shield. Dose rate was not calculated.
Gundremingen BWR (GFR)	ANISN/DOT AKTIV	31/3 3	1/2	50	EUR 8950 DE (1984)	DLC-75/BUGLE-80	Calculated values were compared with measured ones in the biological shield. Dose rate was not calculated.
Reference LWR (USA)	ANISN ORIGEN	30 3	1	above 57	NUREG/CR-0130 (1978) NUREG/CR-0672 (1980)	Act. c.s produced from ENDF/B-IV.	Radioactivity distributions on R and Z directions were calculated.
Garigliano BWR (Italy)	ANISN/DOT EVA	100→26/? ?	1/2	~10	EUR 9474 (1984)	ZZ-DLC-100G, from ENDF/B-IV, SUPERTOG	Dose rate was calculated. Calculated and measured values were not compared. Radioactivity distributions were not illustrated.
Reference LWR (UK)	ANISN	47→3/?	1	A few	EUR 8804 EN	DLC-75/BUGLE-80	Preliminary calculation was made to decrease radioactive inventory in the biological shield concrete. To insert material with large attenuation between RPV and BS.
Reference LWR (USA)	ANISN ORIGEN	30 3	1	above 57	ANS 27 (1977)	?	Radioactivity distributions on R and Z directions were calculated.
Reference LWR (USA)	ANISN/DOT ACTIV	30/3 3	1/2	52	NUREG/CR-3474 (1984)	$\sigma_{2200}$ and RI were used.	Thermal and epithermal neutron energies were one group. Range between 0.5 and 15 Mev were divided into 29 groups.
Reference LWR (Japan)	ANISN/DOT	100/21	1/2	A few	Informal report (1988)	RADHEAT-3 Lib.	Neutron flux distribution and radioactive inventory of a few nuclides were calculated.
Oskarshamn 2 BWR (SW)	NRN	26	1	~ 10	SKB Technical report 86-18	unknown, probably older than 1970	Neutron flux and activity distributions and dose rate were calculated.

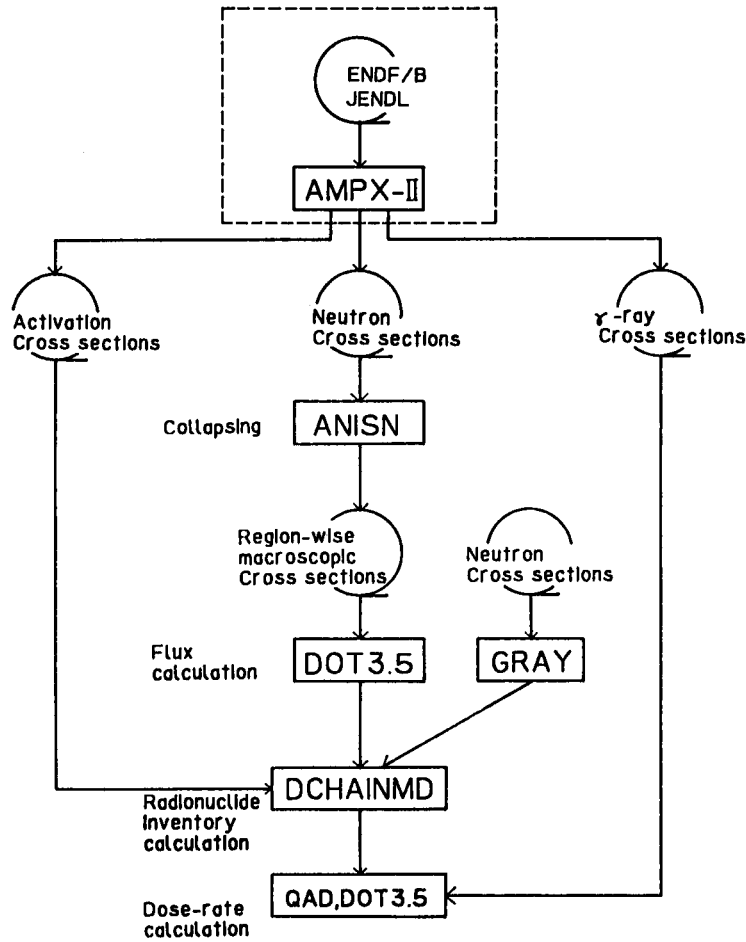


Fig.1 Schematic Flow of Calculations

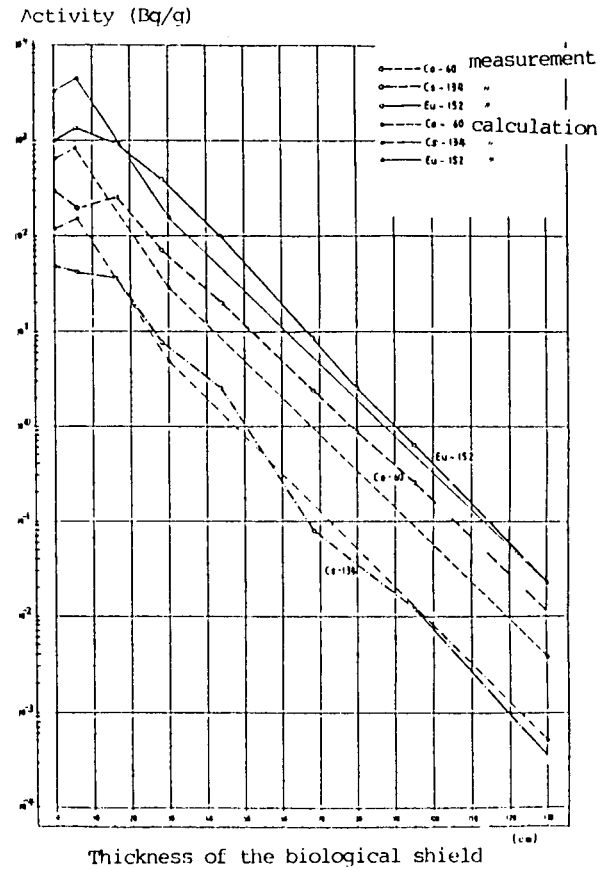


Fig.2 Radioactivity as a function of the thickness of the concrete (measurement and calculation)

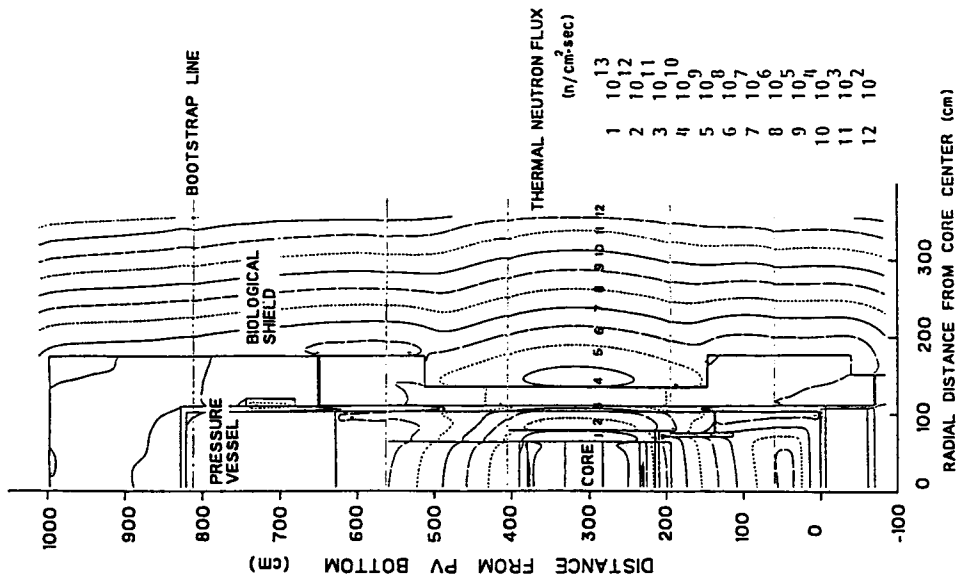


Fig.3 Contour Map of the Thermal Neutron Fluxes

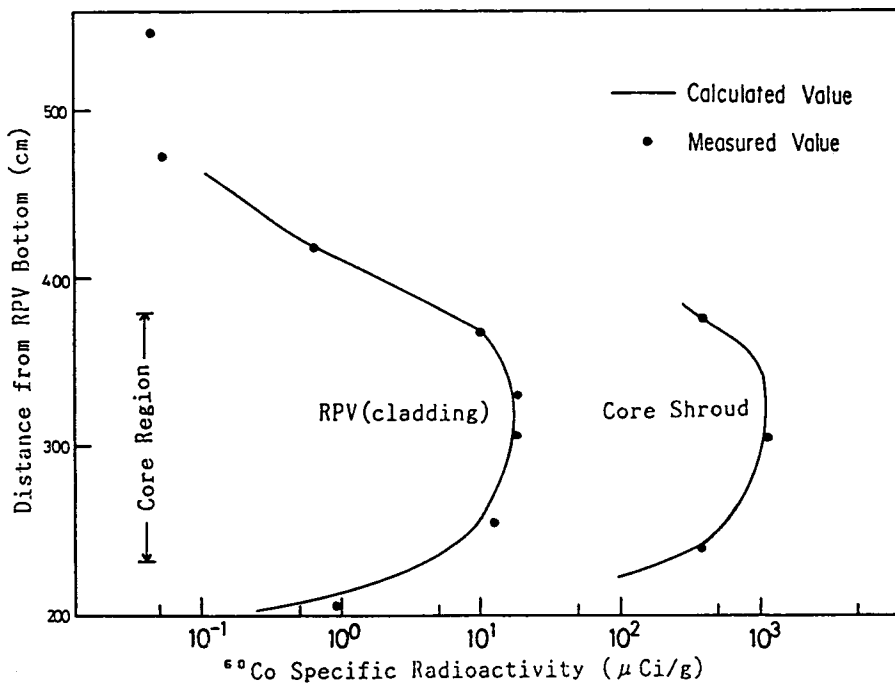


Fig.4 Axial Distributions of <sup>60</sup>Co Specific Radioactivities in the Cladding of RPV and Core Shroud

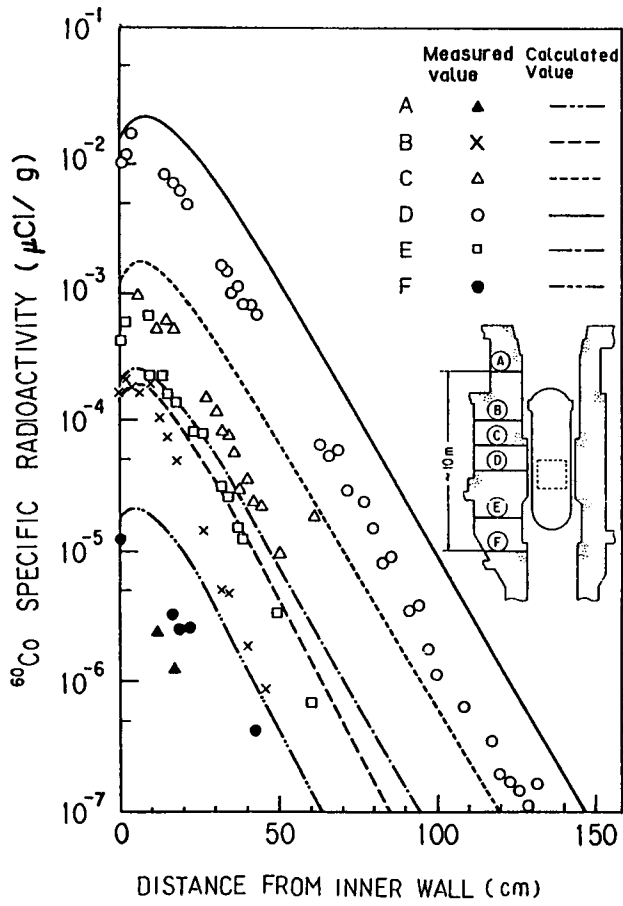


Fig.5 Calculated and Measured  $^{60}\text{Co}$  Radioactivity Distributions at Different Levels in the Biological Shield