



パッシブガンマ法によるコンテナ等廃棄物中のウラン量測定技術の開発

大木 耕一 青山 佳男 助川 泰弘* 鈴木 敏*
佐川 寛*¹ 土井 英雄*² 遠藤 保美*²

環境保全・研究開発センター 環境保全部
*原子力技術株式会社

*¹三菱重工業株式会社
*²ニュークリア・デベロップメント株式会社

Development of Technique for Measuring Uranium Quantity within Containers Using the Passive Gamma Method

Koichi OHKI Yoshio AOYAMA Yasuhiro SUKEGAWA* Satoshi SUZUKI*
Hiroshi SAGAWA*¹ Hideo DOI*² Yasumi ENDO*²

Waste Management Division, Waste Management & Fuel Cycle Research Center
* Nuclear Technology & Engineering Co., Ltd
*¹ Mitsubishi Heavy Industries, Ltd
*² Nuclear Development Co.

廃棄物中のウラン量を測定評価することは、廃棄物の管理上必要である。しかし、ウラン廃棄物のうちコンテナに収納された廃棄物については、適切な非破壊測定装置がなく、廃棄物情報からの推定評価にとどまっていた。このため、コンテナ詰廃棄物中のウラン量を、パッシブガンマ法により測定評価する測定装置を開発した。本測定装置は、NaI (TI) 検出器3台、Ge検出器1台及び廃棄物ハンドリング装置より構成される。測定手法は、²³⁸Uと放射平衡の子孫核種^{234m}Paより放出される1,001keVと766keVの線のピーク計数率を用いる方法であり、密度及び線源（核種）が偏在していても適用できる。評価法は、対向した測定点の測定データより距離の影響を除いて評価する対向対評価法を開発した。子孫核種の影響が多い場合は、その影響を取り除いて評価した。なお、計数率が少ない場合は、バックグラウンド計数率の変化を補正したグロス計数率による評価法とした。

本測定装置の適用性は天然ウラン50g～10kgを用いたウラン試験や、他の測定装置による比較試験で確認し、ウラン廃棄物の測定を開始した。

Measurement evaluation of uranium content within wastes is necessary for waste management. However, there was no appropriate NDA system for measuring containers storing uranium wastes. Therefore, the estimation of quantity of uranium relied on waste information. We have developed a new technique based on the passive gamma method for measuring quantity of uranium in uranium waste containers (1m³ volume). The measurement system consists of three NaI (TI) detectors, one HPGe detector and a handling system. The measuring method uses two discrete gamma ray energies emitted from the daughter nuclide ^{234m}Pa (1,001 keV and 766 keV). The technique is applicable even if distribution of density and radionuclides are not uniform.

We developed a new technique to remove the influence of distance between radionuclides and detectors. This technique was named the "Facing Couple Method (FCM)". If the influence of daughter nuclide is strong, the evaluation is carried out by removing the influence. When counting rate is low, gross counting rates corrected with the variation of background counting rate is adopted as an alternative method.

The applicability of this technique and system was confirmed by examination with natural uranium (50g ~ 10kg), and the measurement of uranium in the uranium waste containers was started.



大木 耕一
環境保全課
技術管理チーム所属
副主任技術員
RETFの設計、廃棄物処理
及び非破壊測定技術開発に
従事



青山 佳男
環境保全課
技術管理チーム所属
廃棄物処理及び非破壊測定
技術開発に従事



助川 泰弘
環境保全課
技術管理チーム所属
廃棄物処理及び非破壊測定
技術開発に従事



鈴木 敏
環境保全課
技術管理チーム所属
廃棄物処理及び非破壊測定
技術開発に従事



佐川 寛
バックエンド設計課
課長
放射性廃棄物処理設備、放
射線測定設備の開発に従事



土井 英雄
放射線技術開発室
室長
PWR燃料の放射能挙動評
価、非破壊測定法の開発に
従事



遠藤 保美
放射線技術開発室
主席技師
非破壊測定法の開発に従事

キーワード

ウラン廃棄物, コンテナ, 非破壊測定, パッシブガンマ法, ウラン線源, 密度偏在, 核種偏在, 子孫核種, 減衰補正, 対向対評価

Uranium Contaminated Waste, Container, Non Destructive Assay, Passive Gamma Method, Uranium Source, Density Maldistribution, Nuclide Maldistribution, Daughter Nuclide, Correct Attenuation, Facing Couple Method

1. はじめに

ウラン廃棄物中のウラン量を測定評価することは、廃棄物の管理上必要なことであり、廃棄物の処理・処分の方策を検討する上で重要である。

ウラン廃棄物の収納容器は、200ℓドラム缶(以下、「ドラム缶」という。)と約1m³のコンテナ(以下、「コンテナ」という。)に大別される。

サイクル機構では、ドラム缶についてパッシブガンマ法を用いた非破壊測定装置¹⁾²⁾により、既に測定が行われている。

一方、コンテナについては、プルトニウム取扱施設から発生する固体廃棄物を対象としたパッシブ中性子法による非破壊測定装置が実用化されている³⁾。

しかし、ウラン廃棄物については、ウランの自発核分裂による中性子が微量であり、適切な非破壊の測定装置がなく、廃棄物情報等からの推定評価にとどまっていた。

このため、コンテナ中のウラン量を安価なパッシブガンマ法により測定評価する測定装置を開発し、ウラン線源を用いた模擬廃棄物による検証試験を実施した。また、ウランの子孫核種を多く含む廃棄物についても他の測定方法と比較評価した。その結果、所定の精度が得られたので実廃棄物の測定に着手した。

本報では、開発した測定装置、採用した放射能評価法、実施した検証試験について述べる。

2. 測定方法と測定装置

2.1 測定方法

(1) 廃棄物の特徴

コンテナの寸法は、128cm × 128cm × H105.6cm (内容積は約1m³)で側面厚0.45cm (底面厚0.6cm)の鉄(SS400)の容器壁より成っている。コンテナ中の廃棄物は、内容物の密度及び含有する線源が偏在した雑固体であり、次の特徴がある。

- ・低レベル廃棄物であるため、含有されている放射能は多くはない(線源強度は弱い)。

- ・廃棄物の高密度は、平均で1g/cm³程度である。
- ・廃棄物中の主な放射能は、ウランのみによるものとウランの子孫核種を多く含むもの(ウラン製錬等からの廃棄物)がある。

(2) 開発方針

以下の要件を満たす測定装置を開発することとした。

- ① 汎用性があり、コストが安いパッシブガンマ法で測定する。
- ② 内容物は雑固体であり、密度及び線源の偏在の補正機能を有する。
- ③ 原子力発電所から発生する低レベル廃棄物の非破壊測定装置の検出下限値レベル(約1 × 10⁶Bq/t)と同等のウラン100gが測定できる。
- ④ 測定精度は、保管廃棄の記録及び保障措置を目的としたドラム缶用の非破壊測定装置¹⁾と同等として、コンテナの平均高密度1g/cm³以下で、ウラン量の測定誤差が、1σで-50% ~ +100%以内とする(σは標準偏差)。

ウランの子孫核種の多い廃棄物も測定できる。

(3) 測定方法

上記(2)の開発方針に従い、以下の測定方法を採用した。

- ① 測定対象は、密度及び線源の偏在があるため測定対象を仮想的なメッシュに分割して測定することとした。測定は、偏在補正を行うために直接線(エネルギーの異なる2種類の線)とバンド計数率(コンプトン散乱領域の線)及びグロス線計数率を測定する。測定する直接線は、放出される線のうちエネルギーが高く発生割合の比較的大きい²³⁸Uと放射平衡にある^{234m}Paからの1,001keVと766keVの線とした。ここで、1,001keVの線は72.9 / (sec・g²³⁸U)、766keVの線は25.9 / (sec・g²³⁸U)の発生確率を持つ。
- ② 測定する検出器はNa(Tl)検出器3台とGe検出器1台の組合せとした。線源としてウランが主な場合、Na(Tl)検出器の計数率を用いる。一

方,Ge 検出器は,廃棄物からの線のスペクトルの確認とウラン子孫核種が多い廃棄物中の線源強度評価に用いる。ウランの子孫核種が多いとたくさんの線の放出がみられ,NaI(Tl) 検出器では,分解能の関係から1,001keVと766keVのピーク計数率の測定が困難になる。このため, ^{238}U の崩壊による766keVの計数率を算出するには, ^{214}Bi からの768keV, ^{214}Pb からの766keVの線の影響を除く必要がある。ここでは,Ge 検出器で測定された ^{238}U の766keVのピーク計数率へのウランの子孫核種の影響が所定の割合(例えば5%)以上になると,Ge 検出器による測定データでウラン量を評価することとした。NaI(Tl) 検出器とGe 検出器の役割を表1に示す。

測定は,側面を横方向に4分割,高さ方向に3分割(但し,Ge 検出器では1分割)し,4面測定する。この場合,約 1 m^3 のコンテナを約30cmの立方体に分割したことになる。例えば,1点での測定時間を15分とすると全体の測定時間は,1面当りの横方向の分割数4で4面測定することを考慮するとコンテナに収納された廃棄物当り4時間となる。

- ③ 本装置は,ウラン線源が取扱えない施設での校正及び試験を考慮し,ウラン線源と同様に2本のエネルギーピークを有しNaI(Tl) 検出器にて分解できるエネルギー間隔の線源として, ^{60}Co の測定評価も行えるようにした。また,コンテナだけでなく200ℓドラム缶も取り扱えるようにした。

2.2 測定装置

製作した測定装置の概念図を図1に,外観を写真1に示す。測定装置は,廃棄物駆動部(移動レール,ターンテーブル),操作盤よりなる廃棄物ハン

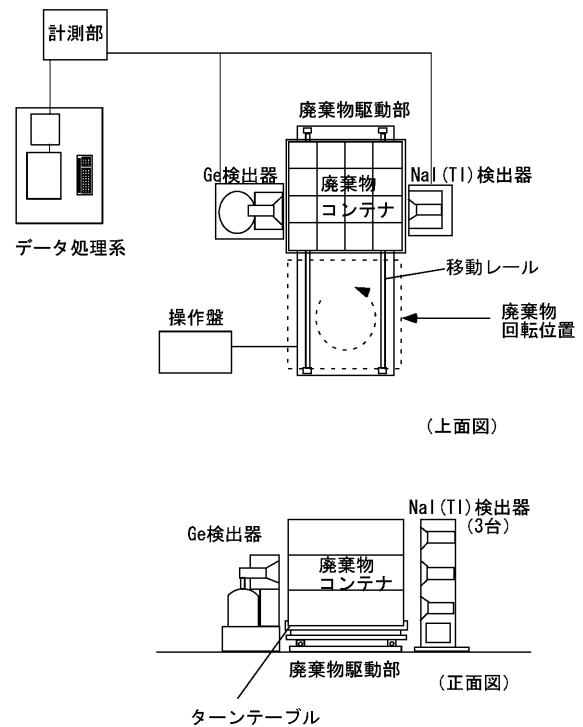


図1 測定装置の概念図

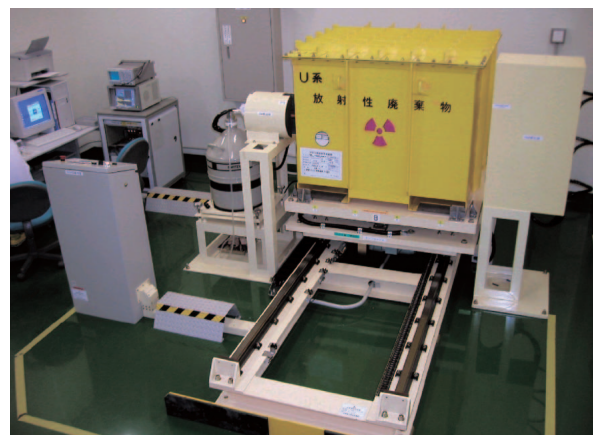


写真1 測定装置の外観

表1 NaI(Tl) 検出器とGe 検出器の役割

	NaI(Tl) 検出器	Ge 検出器	備 考
設置台数	3	1	・コンテナの大きさ128×128×105.6cm (ドラム缶の測定も可能)
測定点数 (巾×奥行×高さ)	4×4×3=48	4×4×1=16	
データの利用 (1)核種の確認と線源位置	計数率分布より線源の存在するメッシュ設定	廃棄物中に存在する核種確認	・NaIの方がGeよりも感度が良く検出下限値は小さくなる。
(2)評価法 ウランの子孫核種がほとんどない又はCo 60	NaIの計数率を利用		
ウランの子孫核種が多い		Geの計数率を利用	・766keVピーク計数率への子孫核種の影響の大きさを評価法を自動選択。

ドリリング装置とコリメータ付のNa(Tl)検出器3台よりなるNa(Tl)検出器系, コリメータ付Ge検出器1台よりなるGe検出器系及びデータ処理系より構成される。

測定は, ターンテーブル上に対象廃棄物を載せ, 検出器の設置されている所定の位置に移動レール上を移動・停止させ, 所定の時間計測する。計測が終了すると所定の距離をピッチ移動・停止させ, 次の分割点を測定する。廃棄物の所定面の測定が終了すると廃棄物を原点位置まで移動し, 90°回転させた後, 再び廃棄物を検出器の間に移動させ, 測定を行う。このようにして4面の測定を実施する。測定データは測定終了後オフラインで処理し, ウラン量の評価を行う。

(メッシュ記号)

(線源と計数率の対応)

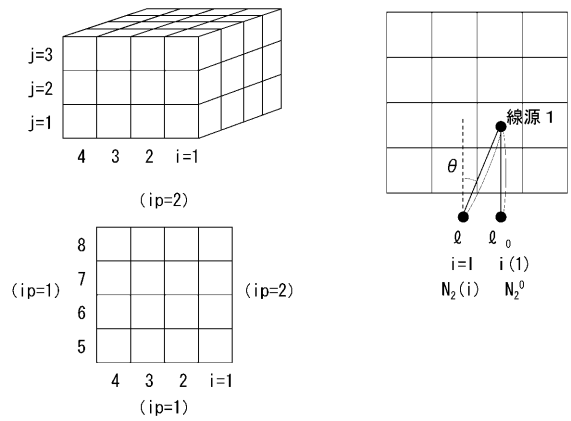


図3 線源分布設定の考え方

3. 評価方法

採用した評価フローの概略を図2に示す。対象としている廃棄物は, 含有ウラン量が少なくと予想されるので3種類の評価法を使用した。

3.1 Na(Tl)検出器の計数率分布より線源領域を設定

1,001keVのNa(Tl)検出器の計数率分布 $N_2(i, ip, j)$ より線源位置を設定する ($i = 1 \sim 8, ip = 1 \sim 2, j = 1 \sim 3$ (j は高さ方向), 図3参照)。

(1) 線源領域設定手順

以下の手順で線源領域を対象とする計数率を設定した。

$N_2(i, ip, j)$ の最大値設定

... $N_2(\max), (1), ip(1), (1)$

($(1), ip(1), (1)$)と直角直方向の最大計数率設定

...場所 $is(1), isp(1), (1)$

第1番目の線源位置 $(1), is(1), (1)$

以下の手順で1番目の線源からの寄与を取り除いた計数率分布を求める。

a) $i = 1$ への線源1からの計数率

$$N_2' = N_2^0 \cdot \frac{\ell_0^2}{\ell^2} \cdot g(\theta)$$

...ここで $g(\)$: コリメータ効率

$N_2(I) - N_2'$: 線源1以外からの計数率

$\frac{N_2(I) - N_2'}{N_2(I)} = \beta$ において他のエネルギーの計数率も同じ比例で減少させる。

これは $i = 1$ の点での線源1からの寄与を除くのに際し, 線源1からの線の廃棄物による減衰効果が $i = 1$ の点と (1) の点で同じと仮定したことになる。

b) 他の面についても($(1), ip(2), (1)$), ($is(1), isp(1), (1)$), ($is(1), isp(2), (1)$)の検出器の計数率を基に1)と同様の手順で線源1の寄与を除いた計数率を設定する。

新しい計数率分布(線源1の寄与を除いた計数率分布)で1,001keVの最大計数率の場所を探す。

上記の , と同じ手順で2番目の線源位置設定

上記の , と同じ手順で2番目の線源位置設定

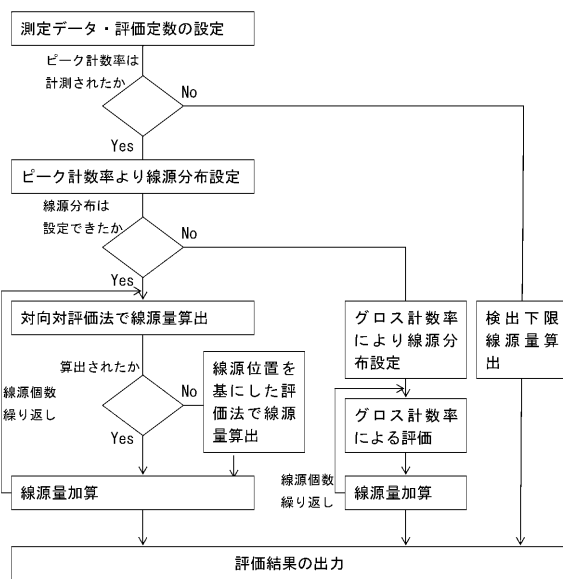


図2 評価フローの概略

- ⑤ 上記③と同じ手順で線源1 線源2の寄与を除いた計数率分布を設定する。(上記④,⑤の手順を残存計数率が所定の値以下になるまで繰り返す。)

測定対象からの計数率が小さいケースが多く, 測定された計数率の計数誤差の大きいケースが予想されるので, 766keVのピーク計数率についても同じ測定面に関しては, 廃棄物による放射線の減衰効果は同じとして, 上記③の を用いて同じ取扱いを行った。

3.2 ウラン線源に対する評価法

(1) 対向対評価法

線源から検出器に入るエネルギーの異なる直接線は, 同じ密度分布を透過するので2つの直接線のピーク計数率比(以下, 「ピーク比」という。)より実効的な減衰距離 $\langle \rho t \rangle$ を求めることができる ($\langle \rho t \rangle$ は向きによって異なる)。したがって, 線源と検出器の距離が判れば線源量(ウラン量)を求めることができる。ここで, 対向した測定データを用いれば次の関係を利用することができる。図4に示す体系では次のようになる。廃棄物中の線源から検出器aの方向と検出器cの方向の密度は同一とは限らないが, 検出器間の距離が一定

線源 - 検出器aの距離: $x +$

線源 - 検出器cの距離: $\ell - x +$

和: $\ell + 2\Delta$: 一定

したがって, 対向した測定点aとcの計数率として信頼性のある測定値が得られれば距離の影響を除いて線源量を算出できる。評価手順を以下に示す。

検出器aにおいて

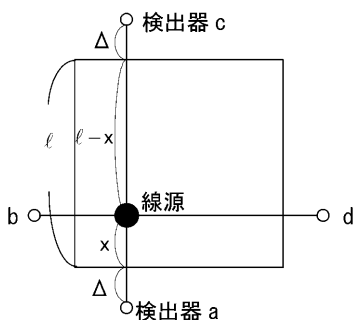


図4 対向対評価法のモデル図

$$N_a(1) = A \cdot k_1(1) \cdot k_2(1) \frac{1}{4\pi(x + \Delta)^2} e^{-(\mu_1 \cdot \rho_a \cdot \ell_a + \mu_{2(Fe)} \cdot \rho_{Fe} \Delta)} \quad (1)$$

$$N_a(2) = A \cdot k_1(2) \cdot k_2(2) \frac{1}{4\pi(x + \Delta)^2} e^{-(\mu_2 \cdot \rho_a \cdot \ell_a + \mu_{2(Fe)} \cdot \rho_{Fe} \Delta)} \quad (2)$$

ここで

$N_a(1)$: 766keVの線の点aでの計数率

$N_a(2)$: 1,001keVの線の点aでの計数率

A: 線源強度 ($g^{238}U$)

$k(i)$: $g^{238}U$ 当りの線の発生数

$k_a(i)$: 検出器でのflux当りの計数率

μ : 質量減衰係数 (cm^2/g)

サフィックス1は766keVの線を, 2は1,001keVの線を示す。

(Fe)は容器壁(鉄)での値を示す。

a_a : a方向での廃棄物中での密度と透過距離の積

F_{Fe} : 容器壁での密度と透過距離の積

$$\frac{N_a(1)}{N_a(2)} = \frac{k_1(1) \cdot k_2(1)}{k_1(2) \cdot k_2(2)} e^{-(\mu_1 - \mu_2) \rho_a \ell_a - (\mu_{1(Fe)} - \mu_{2(Fe)}) \rho_{Fe} \Delta} \quad (3)$$

測定された計数率比

したがって, 測定点の計数率を用いたピーク比により実効的な線の減衰距離 a_a が求まる。

$N_a(1), N_a(2)$ を用いて次のように f_a, f_c を定義する。

$$f_a = N_a(1) \cdot \frac{4\pi}{k_1(2) \cdot k_2(2)} \cdot e^{\mu_2 \cdot \rho_a \cdot \ell_a + \mu_{2(Fe)} \cdot \rho_{Fe} \Delta} = \frac{A}{(x + \Delta)^2} \quad (4)$$

$$f_c = N_a(2) \cdot \frac{4\pi}{k_1(2) \cdot k_2(2)} \cdot e^{\mu_2 \cdot \rho_a \cdot \ell_c + \mu_{2(Fe)} \cdot \rho_{Fe} \Delta} = \frac{A}{(\ell - x + \Delta)^2} \quad (5)$$



対向対評価法……(4)と(5)式よりxを消して線源強度Aが次のように求まる。

$$A = (\ell + 2\Delta)^2 \cdot \frac{f_a \cdot f_c}{f_a + f_c + 2\sqrt{f_a \cdot f_c}} \quad (6)$$

上記の方法は対向対の測定点a, cで766keVと1,001keVの線の計数率が測定されると線源位置の効果の補正を必要としない評価ができるが, 線源強度が弱くなる若しくは, 廃棄物中での減衰が大きくなるとa点がc点のどちらかの計数率が小さくなり, 計数率の信頼性がなくなると適用できない特徴がある。

(2) 線源位置を設定した評価法

線源の強さや廃棄物中の減衰効果により、対向の測定点 a, c で766keV と1,001keV の線の計数率が得られず対向対評価が適用できない場合は、図5に示すように、線源位置を該当メッシュに設定して、a点及びb点での計数率を基に線源量を算出する。

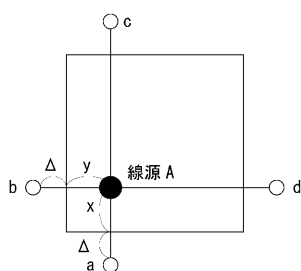
線源位置から測定点までの間の廃棄物中の減衰効果は、ピーク比又はバンド計数率とピーク計数率の比(以下「バンド・ピーク比」という。)又はグロス計数率とピーク計数率比(以下「グロス・ピーク比」という。)より算出する。

上記の対向対評価法と比較すると次の特徴がある。

	長 所	短 所
対向対評価法	位置の補正不要	対面の計数率必要
線源位置設定法	計数率の大きい値が利用できる	線源の存在するメッシュ内に線源位置の設定必要

(3) グロス計数率による評価法

含有ウラン量が少ないか廃棄物中での減衰が大きい場合は、1,001keV や766keV の線の有意なピーク計数率が測定されないことがある。この場合、グロス計数率分布より線源位置を設定し、廃棄物重量より算出される高密度を利用して、グロス計数率より線源量を算出する。グロス計数率を用いる場合、廃棄物によるバックグランド計数率の減衰効果を補正する必要がある。このため、コンテナ中の内容物が空の場合と水(密度 1 g/cm³)の場合のバックグランド計数率の測定値と、測定装置がコンクリート建屋内に設置されるとして、モンテカルロコードMCNP 4Cでの計算値(バックグランドの発生源はコンクリート中のK 40とウラン・トリウムの子孫核種と仮定⁴⁾)より、高密度によるバックグランド計数率の減衰効果を評価した。これを図6に示す。グロス計数率を用いる



線源強度 A が小さいと線源の近くの点(a, b)で計数率が得られ、はなれた点(c, d)では得られない場合がでてくる。
 $N_a(2) N_b(1)$
 $N_b(2) N_a(1)$
 $N_c(2) -$
 $N_d(2) -$

図5 線源位置を基にした評価法のモデル

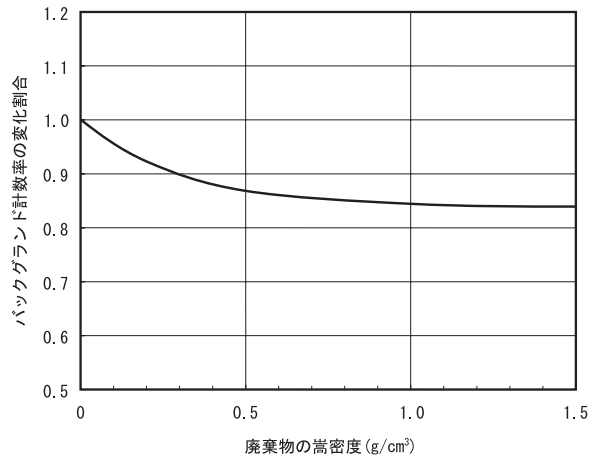


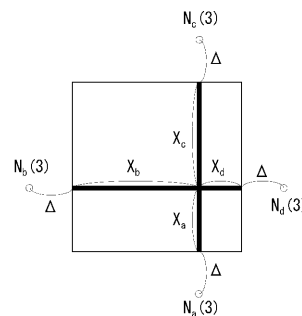
図6 高密度によるバックグランド計数率の変化(空のコンテナ(空気)における計数率を1とした)

場合は、廃棄物重量より求めた内容物の高密度を用いて、図6よりバックグランドの減衰効果を補正する。

グロス計数率を用いてウラン量を算出する場合、図7に示すように、ウラン量が分散しているとした。これは、上記のピーク計数率を用いる評価法が適用できない場合であり、対象としている廃棄物中のウラン含有量が少なく、ウランが分散していると考えられる場合を想定した。また、グロス計数率による評価は、少なくともどこかの測定点で1,001keV の線のピーク計数率が検出された(ウランの存在が確認された)場合とし、ウランの子孫核種の含有量が少ない場合のみ適用する。

(4) 評価法の特徴

線源量を算出するためには、廃棄物中での放射線の減衰と距離による空間的な広がり効果を補正する必要がある。ここで、廃棄物中での減衰と距離の効果の補正方法を表2に、各評価法の特徴



a点でのグロス計数率に対応する線源量が長さ X_s に渡り分布。他の b, c, d 点についても同様。但し $X_a + X_c = \ell$, $X_b + X_d = \ell$ ℓ は容器内の一辺の長さである。図中の \blacksquare は線源を示す。

図7 グロス法での線源モデル

表2 減衰と距離の効果の補正方法

項目	評価法	必要なデータ
距離の効果	① 対向対評価法 対向した対のデータで距離の効果を取り除く	対向した位置の両側での1,001keVと766keVのピーク計数率
	② 線源位置設定法 1,001keVの計数率分布より求めた線源メッシュの代表点(例えばメッシュ中心)に線源位置を設定	1,001keV計数率分布
	③ グロス計数率による評価法 グロス計数率分布より求めた線源メッシュの代表点を中心に線源が分散していると想定(図7参照)	グロス計数率分布
廃棄物中での減衰効果	① ピーク計数率を用いる方法(対向対評価法, 線源位置設定法) (A) ピーク比で補正 (B) バンド・ピーク比で補正 (C) グロス・ピーク比で補正	1,001keVと766keVのピーク計数率 1,001keV計数率とバンド計数率 1,001keV計数率とグロス計数率
	② グロス計数率による評価法 廃棄物重量より算出される嵩密度と分散した線源位置を用いて減衰効果を補正	グロス計数率

を表3に示す。図2に示すように対向対評価法, 線源位置を基にした評価法, グロス計数率による評価法(ウランの子孫核種の影響が小さい場合)の順に適用した。

3.3 ウランの子孫核種が多い場合の取扱い

ウランの子孫核種が多く含まれる廃棄物からは種々の線のピークが検出される。このため, NaI(Tl)検出器では分解能の関係から1,001keV及び766keVのピーク計数率を識別して計測することは困難になる。また, Ge検出器による測定の場合, 表4に示すように, ^{238}U の766keVの線, ^{214}Bi の768.4keVの線, ^{214}Pb の766.3keVの線が重なってくる。 ^{238}U の766keVの線を利用する場合, これらの線の寄与を補正する必要がある。このため, 次の手順で補正することとした。

- ① ^{214}Bi の609.3keV及び1,120keVのピーク計数率より放出率を考慮して, 768.4keVの計数率を対

数で内挿する。

- ② ^{214}Pb の831.8keVのピーク計数率より, エネルギー依存性が ^{214}Bi と同じとして766.3keVの計数率を算出する。
- ③ 766keVのピーク計数率より, ^{214}Bi 及び ^{214}Pb からの寄与を除き ^{238}U のピーク計数率とする。求めた ^{238}U の766keVと1,001keVのピーク計数率よ

表4 ^{214}Bi , ^{214}Pb より放出される線

核種	エネルギー(keV)	放出率(-)
^{238}U	766	2.09×10^{-3}
	1,001	5.88×10^{-3}
^{214}Bi	609.3	4.61×10^{-1}
	768.4	4.88×10^{-2}
	1,120	1.50×10^{-1}
	1,238	5.92×10^{-2}
	1,765	1.59×10^{-1}
^{214}Pb	404.8	3.00×10^{-2}
	766.3	4.89×10^{-3}
	831.8	2.82×10^{-2}

表3 各評価法の特徴

名称	評価法			適用条件
	線源分布	線源・検出器の距離	廃棄物による減衰	
対向対評価法	1001keVの計数率分布	①対向した対のデータで評価	(A)ピーク比	・1,001keV, 766keVの計数率が計測された場合
線源位置を設定した評価法	1001keVの計数率分布	②線源のあるメッシュの代表点に線源設定	(A)ピーク比又は(B)バンド・ピーク比又は(C)グロス・ピーク比	・1,001keVの計数率が計測された場合 ・廃棄物中での減衰取扱いは, 766keVの計数率の検出状況により(A)(B)又は(C)の順序(BとCは同じ性質の手法)
グロス計数率による評価法	グロス計数率の計数率分布	③線源のあるメッシュの代表点に線源設定	(D)嵩密度を設定	・グロス計数率が計測された場合(線源強度が小さいか減衰効果が大きい場合)

り、ピーク比で廃棄物中での放射線の減衰効果を求め、含有ウラン量を算出した。

4. 検証試験

4.1 ウラン線源による測定試験

(1) 試験条件の設定

線源の偏在（距離の効果）及び廃棄物による減衰効果を上述した評価法にて、適切に補正されているかを確認するため、表5に示す試験ケースを設定した。用いたウランは、天然ウランである。ケースAは、コンテナ内の線源位置を変えたケースであり、設定した位置を図8に示す。

ケースBは、ウラン量を変えた測定であり天然ウランで50g、100g、500g、1kg、10kgとした（100gは、ケースAで実施）。

ケースCは、100gの線源10個をコンテナ内に分散させたケースであり、ケースDは、500g又は100gの線源に鉄1~4.9cm、塩化ビニル1~4.5cmの遮蔽体を設置し、線源位置を変えた。

ケースEは、密度1g/cm³で密度が均一の体系であり、線源数1つでウラン量と測定位置を変えたケースと100gの線源10個を分散配置したケースである。

ケースFは、水、砂、鉄を組合せた嵩密度約1.5g/cm³の体系で密度変化のあるケースである。また、線源位置、ウラン量、線源の数を変えて測定した。

表5 ウラン試験ケース
(計63ケース)

ケース	ケース数	ウラン量	線源数	体系の特徴
A	25	100g	1	コンテナ内の線源の位置を変える（図8参照）
B	4	50~10,000g	1	ウラン量を変える
C	3	1,000g	10	複数線源配置を変える
D	16	100g又は500g	1	遮蔽体として鉄10.7~48.5mm又は塩化ビニル11.3~44.8mm設置
E	4	100g~10,000g	1又は10	水（1g/cm ³ ）の体系でU量又は線源数（1ケース）を変える
F	8	100g~10,000g	1又は10	水、砂、鉄を組合せた嵩密度約1.5g/cm ³ の体系（模擬廃棄物）を作り、位置、ウラン量、線源数を変えて測定
G	3	100gU	1	鉄12.3mm設置のケース（再現性確認）

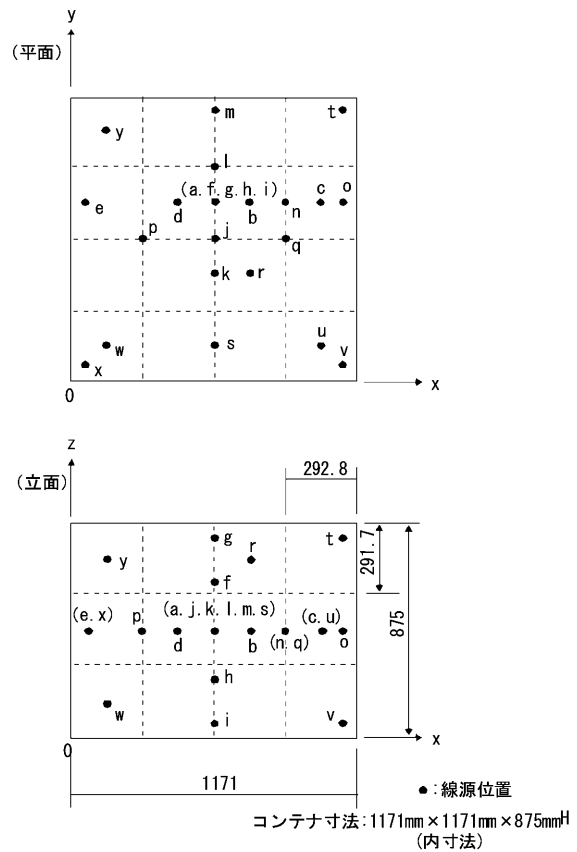


図8 コンテナ内の線源配置（断面）

ケースGは、各ケースの測定の途中で実施した再現性確認のケースである。

体系の例として、ケースFで用いた模擬廃棄物の内容物構成及び線源配置を図9及び写真2に示す。

(2) ウラン線源の作製

ウラン線源は、UO₂粉末を計量し、所定量をポリピンに入れて作製した。ウラン線源の嵩密度は、約3.2g/cm³である。測定したUO₂線源による1,001keVのピーク計数率の減衰を図10に示す。ウラン量評価においては、ウラン線源の自己吸収効果を考慮した。

(3) 試験結果

- ① ケースAの線源位置を変化させた測定結果を図11、図12に示す。評価値/真値（ウラン線源のウラン量）は0.45~2.08の範囲に分布している。
- ② 図12に示すように、ケースBのウラン量を変化させたケース、ケースCの天然ウラン100gを10個分散させたケース、ケースDの鉄及び塩化ビニルの遮蔽体を設置したケースの評価値/真値は0.61~1.66の範囲に分布している。
- ③ ケースEの水1g/cm³の体系、ケースFの水、

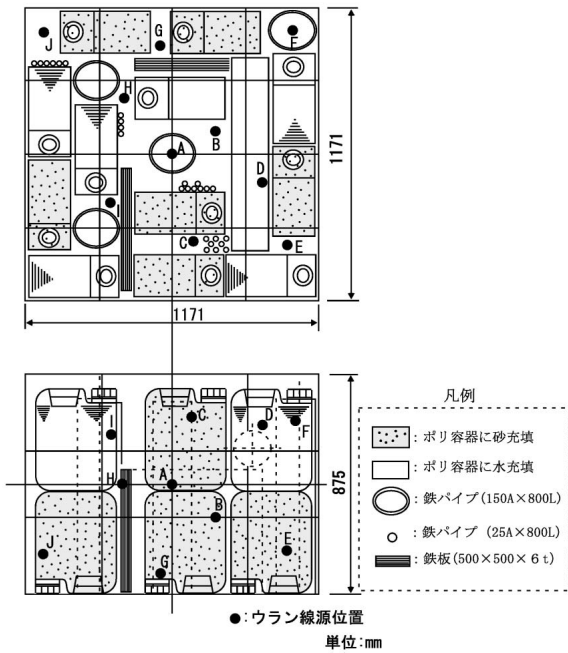


図9 模擬廃棄物の構成及び線源配置 (複数線源配置)

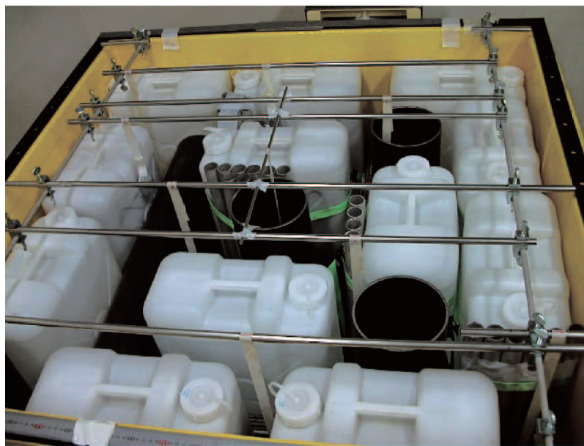


写真2 試験体系例 (混在充填複数線源 (U 100 g x 10個), 充填物は図9参照)

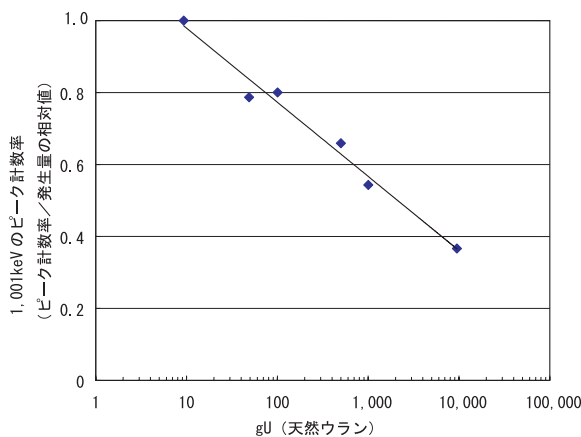


図10 ウランによる1,001keVのピーク計数率の減衰

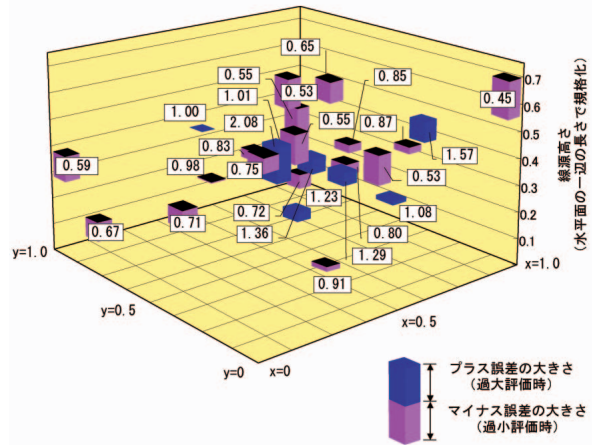


図11 天然ウラン100gの線源位置による誤差の分布 (図中の値は評価値/真値である)

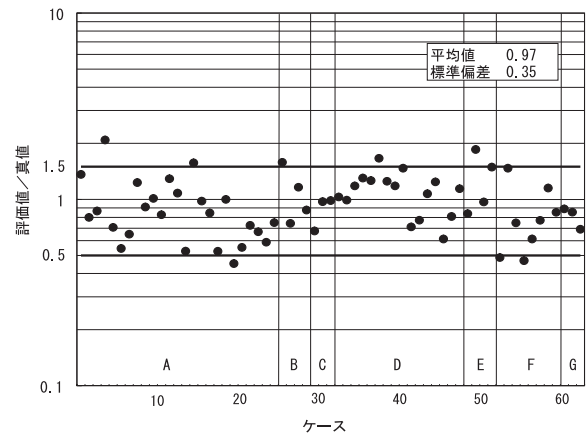


図12 評価値/真値の分布

砂,鉄を組合せた嵩密度約1.5g/cm³の密度非均質の体系は,実廃棄物に近い体系である。この場合,評価値/真値は0.47~1.85に分布した。

④ 図12に示したウラン線源を用いたコンテナでのウラン試験の評価値/真値の平均値は0.97であり,標準偏差()は0.35であった。

即ち,測定誤差の±1は±35%であった。また,対数正規分布での標準偏差は1.43の対数値である。

4.2 ウランの子孫核種が多い廃棄物に対する検証試験

保有していたウラン廃棄物のスラッジ(子孫核種を多く含む。密度は約1g/cm³程度)を200ℓドラム缶に収納した廃棄物に対して,開発した測定装置でコンテナモードとドラム缶モードで測定を行った。測定した廃棄物は,766keVのピーク計数

率のうち、ウランの子孫核種²¹⁴Biからの寄与のみであり、約50~90%の範囲であった。測定例を表6に示す。なお、線源量を求める場合には子孫核種の影響を補正したピーク計数率を用いる。

スラッジ廃棄物は、密度及び線源の分布がほぼ均質と考えられるので、別途保有しているパッシブガンマ法を用いたドラム缶用の非破壊測定装置¹⁾での評価値と開発した測定装置での評価値(コンテナモード,ドラム缶モード)の比較を行った。その結果を図13に示す。

ドラム缶用の非破壊測定装置は、対象物をターンテーブルに載せ、回転させながらGe検出器を用いて測定するものであり、内容物による線の減衰補正は、外部透過線源を用いて行うものである。本装置は、既にドラム缶廃棄物の測定を行い、保管廃棄の記録及び保障措置対応に使用しているものである。

図13の縦軸は開発した測定装置での評価値/ドラム缶用測定装置での評価値である。この相対値は、コンテナモードで測定した場合0.83~1.23の範囲にあり、平均値は1.05、変動係数は14%であった。また、ドラム缶モードで測定した場合は、相対値の平均値は0.96、変動係数は14%であった。

これらより、開発した測定装置は、ドラム缶用の非破壊測定装置と同様の値を示しており、子孫核種を多く含むウラン廃棄物に対して、適用可能

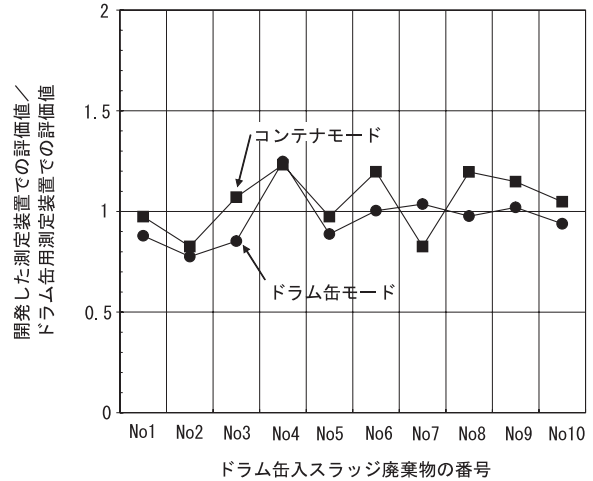


図13 ドラム缶廃棄物(スラッジ)に対する測定結果の比較

であると考える。

4.3 実廃棄物に対する測定結果

実廃棄物コンテナについて、含有核種の異なる2種類について測定した。1つは子孫核種がほとんどないウランを含む廃棄物で、内容物の嵩密度が、0.4~1.3g/cm³の廃棄物であり、他はウランの子孫核種を含む廃棄物で、嵩密度は、0.3~0.5g/cm³程度であった。

これらの測定結果を図14に示す。

表6 スラッジを収納したドラム缶廃棄物に対するGe検出器でのピーク計数率測定例

測定位置	ウラン 1001keV n ₂ (cps)	ウラン 766keV n ₁ (cps)	766keVのピーク計数率のうち ²¹⁴ Biからの寄与 i ₁ (cps)	766keVのピーク計数率のうち ²¹¹ Pbからの寄与 i ₁ (cps)	ウラン766keVの補正計数率 n _i (cps)	相対値 n _i /n ₁
側面 1 No1	0.142	0.228	0.182	-	0.045	0.200
側面 1 No2	0.647	1.022	0.700	-	0.323	0.316
側面 1 No3	0.671	0.892	0.637	-	0.255	0.286
側面 1 No4	0.108	0.229	0.179	-	0.050	0.220
側面 2 No1	0.138	0.338	0.180	-	0.158	0.467
側面 2 No2	0.677	1.031	0.757	-	0.275	0.266
側面 2 No3	0.682	0.976	0.707	-	0.269	0.275
側面 2 No4	0.129	0.244	0.160	-	0.084	0.345
側面 3 No1	0.117	0.250	0.162	-	0.088	0.352
側面 3 No2	0.631	0.986	0.737	-	0.249	0.252
側面 3 No3	0.666	0.986	0.740	-	0.245	0.249
側面 3 No4	0.147	0.204	0.159	-	0.045	0.222
側面 4 No1	0.161	0.169	0.153	-	0.016	0.096
側面 4 No2	0.653	0.996	0.727	-	0.268	0.269
側面 4 No3	0.626	0.957	0.668	-	0.289	0.302
側面 4 No4	0.112	0.211	0.170	-	0.041	0.196

(注) Ge検出器は高さ方向には中央1ヶ所、横方向には側面当り4ヶ所測定する。また、n₁* = n₁ - i₁ - i₂ (下4桁を四捨五入)
 (注) 766keVの計数率に対して²¹¹Pbからの寄与は検出下限以下であった。

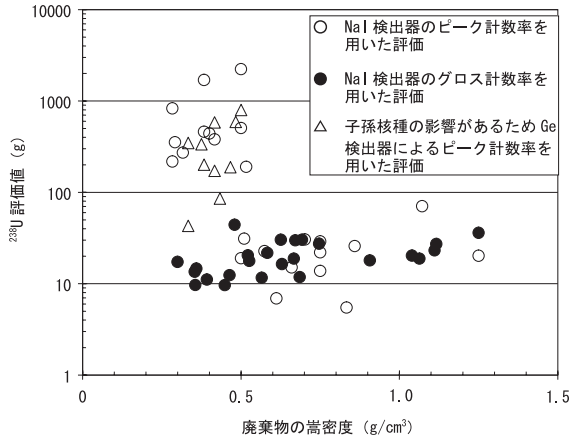


図14 実廃棄物コンテナの測定結果

ここでは、各評価法の妥当性を確認するために、各評価法に分類して表した。約50g以下では、グロス計数率を用いた評価法が多く、NaI(Tl)検出器のピーク計数率を用いた評価（線源位置設定法及び対向対評価法）については、約5g~2,000gと全体的に適用されている。これは、線源の偏在によるものと考えられ、表面付近の少ない量を評価したものと考えられる。なお、子孫核種の影響があるためGe検出器によるピーク計数率を用いた評価（線源位置設定法及び対向対評価法）では、約50~900gの範囲であった。

評価法としては、線源強度による評価法の分布（適用）から妥当性が確認できた。

ここで、子孫核種の影響が少ないケースで、NaI(Tl)検出器によるピーク計数率を用いて線源量を評価できたケースに関して、グロス計数率を用いて線源量を評価し、相互比較した。その結果を図15に示す。

ピーク計数率を用いた評価値が約30g^{238U}以下の場合、線源強度が弱くなるため、ピーク計数率では評価できない線源が出てくることから、グロス計数率を用いた評価値の方が若干大きくなっている。

これらを除く範囲では、ピーク計数率を用いた評価値とグロス計数率を用いた評価値は概略一致した。

実廃棄物コンテナ測定においてウラン量が定量できなかったケースの検出下限値を図16に示す。ここで、1,001keVのピーク計数率が全く計測されない場合を検出下限とし、ウラン量の検出下限値を1,001keVのピーク計数率がメッシュ毎データのう

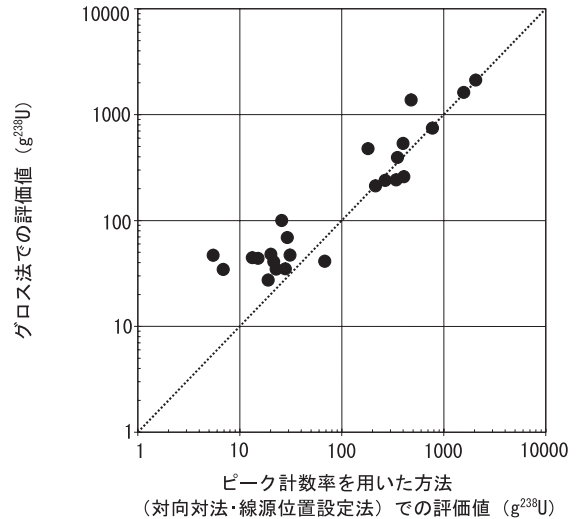


図15 ピーク計数率を用いた評価値とグロス計数率を用いた評価値の比較

ち1つでも有意な値が得られるか否かで評価した。

図16に示すように、本装置の検出下限値は、内容物の嵩密度に依存し高くなるが、今回の嵩密度の範囲において、線源位置を内側のメッシュの中央に設定した場合、約10~50g^{238U}であり、線源位置を表面側のメッシュ中心に設定した場合は、約2~4g^{238U}であった。

5. おわりに

コンテナ中に収納された廃棄物中のウラン量を、パッシブガンマ法により測定する測定手法及び測定装置を開発した。開発した測定装置は、NaI(Tl)検出器3台、Ge検出器1台及び廃棄物ハンド

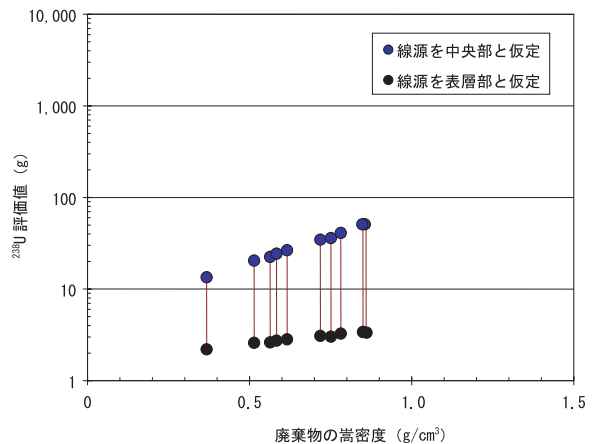


図16 ウラン量が検出下限以下となったケースの検出下限値

リング装置より構成される。

本測定手法は、 ^{238}U と放射平衡の子孫核種 $^{234\text{m}}\text{Pa}$ より放出される $1,001\text{keV}$ と 766keV のピーク計数率を用いる方法であり、密度及び線源が偏在していても適用できる。

ウランの子孫核種の影響が小さい場合、NaI(Tl)検出器の対向した測定点の測定データより距離の影響を除いて評価する対向対評価法を適用した。

対向対評価法を適用するための有意な計数率データが得られない場合、 $1,001\text{keV}$ のピーク計数率分布より線源が存在すると考えられる位置のメッシュ中心に線源があるとした評価法を適用した。

$1,001\text{keV}$ のピーク計数率は観測されたが、 $1,001\text{keV}$ のピーク計数率データで線源分布を評価できない場合は、グロス計数率を用いて評価した。グロス計数率を用いる場合は、測定対象物によるバックグラウンド計数率の減衰を考慮した。また、子孫核種の影響が多い場合は、子孫核種の影響を補正したGe検出器のピーク計数率を用いて線源量を評価した。

本測定手法及び装置の適用性は、天然ウラン $50\text{g} \sim 10\text{kg}$ を用いたウラン試験及び子孫核種が多い廃棄物に対して、ドラム缶用測定装置との比較

試験(クロスチェック)で確認した。

測定精度は、ウラン線源による測定試験より、 $\pm 50\%$ 程度(図12参照)で評価できることを確認した。

また、実廃棄物に対する測定データを用いて、ピーク計数率を用いた評価値とグロス計数率を用いた評価値の整合性も確認した。

今後は、保管されている実廃棄物の測定に適用すると共に、測定精度の向上を図る予定である。

参考文献

- 1) 助川泰弘, 鈴木敏, 他: “パッシブガンマ法によるウラン廃棄物測定試験”, JNC TN8440 2002-019, P20 ~ P68(2002)
- 2) Frazier Bronson, Canberra Industries, Inc: “Q2 A Very Low Level Quantitative and Qualitative Waste Assay and Release Certification” Waste Management '90(1990)
- 3) 館野久夫, 後藤安志, 他: “パッシブ中性子同時計数法による廃棄物コンテナ中Puの測定技術開発”, サイクル機構技報, No.10, P51 ~ P57(2001)
- 4) M.Tsutsumi, T.Oishi, et al.: “Simulation of the Background for Gamma Detection System in the Indoor Environments of Concrete Buildings”, J.Nucl. Sci. Technol., vol.38, No.12, p.1109 ~ 1114(2001)