

モンテカルロシミュレーションを用いた放射線計測器の計測値の検討

下山 哲矢

部局系技術支援室 工学技術系第3技術課（環境安全）

概要

核燃料物質に汚染された廃棄物は、現在のところ処理ができないため、保管・管理しなければいけない状況にある。昨年、法律が改正され、廃棄物量の文部科学省への報告及び日本原子力機構による廃棄物処分の方針が示された。また、ウラン廃棄物については、廃棄物中の放射能レベルが示され（10Bq/g）、本学の廃棄物を搬出する際には、このレベルを確かめなくてはならない可能性がある。核燃料管理施設には、学内部局から管理委託をされた物質及び廃棄物が保管されている。多くの物質は、化学組成・質量等の情報が明らかなものであるが、中には購入後数十年がたっており、物質の情報が不確かなことも少なくない。放射能の確認方法はまだ例示されていないが、測定による方法を考えた場合、モンテカルロ計算による計測値から正味の放射能の推定は役立つツールである。

今回は、核燃料管理施設設備の放射線検出器を用いてウラン化合物の計測、モンテカルロシミュレーションによる計測値の検討を行い、各種測定器にどのような利点があるのか確認した。

1. ウランについて

ウラン（化学記号 U）は天然に存在する放射性元素である。純粋な形態では銀色の重金属であり、非常に高密度（約 19 g/cm³）である。3 種の同位体（²³⁴U、²³⁵U および ²³⁸U）から成り、この天然ウラン以外の他の同位体に、²³²U、²³³U、²³⁶U および ²³⁷U がある。下表に、天然同位体の質量比、半減期、比放射能及び放射能比を示す。比放射能は個々の放射性核種の単位質量当たりの放射能であり、放射性核種がどれくらい放射能を持っているかの指標に用いられる。

表 1 天然ウラン^{[1][2]}

同位体	相対存在量（質量比）	半減期（年）	比放射能(kBq/g)	放射能比
²³⁸ U	99.28%	4.5×10 ⁹	12.4	48.8%
²³⁵ U	0.72%	7.1×10 ⁸	80	2.4%
²³⁴ U	0.0057%	2.5×10 ⁵	231,000	48.8%

ウランは原子力発電所やその他原子力等の研究において主に使用されている。一般的な原子炉は ²³⁵U の含有量を 0.72%（天然）から約 3% にまで濃縮したウランを使用している。劣化ウランは、ウラン濃縮の過程で生じた残存のウランのことである。劣化ウランは通常、質量比にして約 99.8%の ²³⁸U、0.2%の ²³⁵U および 0.001%の ²³⁴U から構成されている。劣化ウランは、研究等（例：電子顕微鏡の染色（酢酸ウラニル））やその高密度から放射線防壁等に使用されている。

2. 計測

2.1 測定器及び測定試料

測定器として本施設所有の TGS-136（β（γ）線放射能測定用）、TCS-352（α・β（γ）線放射能測定用）、TCS-161（γ線放射線量測定用）、LB770（α・β（γ）線放射能測定用、Ar+CH₄ ガスフロー比例計数管、PC にて放射能表示）、半導体検出器（α線スペクトル測定用、CANBERRA 製 Model 7401（真空装置・増幅器内蔵）、マルチチャンネルアナライザー（MCA）を通して PC で測定）の 3 種のサーベイメータ及び 2 種の測定器を用いた。

測定試料は、天然ウランと劣化ウランの廃液をスミア紙に少量しみこませて、数日乾燥させたものを使用し、その放射能測定及び天然・劣化等の計測器による測定結果の違いについて確認した。

2.2 検出効率及び半導体検出器のエネルギー校正

放射能が違う 2 種類の RaDE 線源を用いて、各測定器の検出効率の算出及び半導体検出器についてはエネルギー校正も同時に行った。RaDE 線源は、RaD（²¹⁰Pb）、RaE（²¹⁴Bi）及び RaF（²¹⁰Po）が放射平衡になっており、主に約 1 MeV の β 線と約 5.3 MeV の α 線を放出している。β 線の標準線源として使う場合、アルミニウム箔で覆い用いるが、今回の計測では覆わなかった。測定器表面までの距離を 5mm と一定として、それぞれの線源についてサーベイメータでは 60sec を 10 回、LB770 では 30min を 3 回、半導体検出器では 600sec を 2 回の測定を行い、正味の放射能から検出効率の算出及び LB770 については計測値から変換されている放射能を確かめた。表 2 に各測定器の検出効率及び LB770 に関しては実際の放射能との比を示す。

次に半導体検出器について MCA のチャンネル数（波高値）とエネルギーの関係を見るため、RaDE 線源の 1 点（約 5.3MeV）では関係式（エネルギー校正直線）を導くことができないため、核燃料管理施設分析作業室

表2 線源による測定結果

測定器	検出効率及び放射能比	
	β (γ) 線	α 線
TGS-136	31.4%	×
TCS-352	18.6%	14.2%
TCS-161	測定されず	×
LB770	2.73	1.00
半導体検出器	—	15.5%

※不確かさは、統計的なもので1%以下

で大気中のダストをフィルタで1時間捕集して測定を行った。図1に捕集フィルタの測定結果を示す。大気中のダストからはウラン系列の ^{214}Po とトリウム系列の ^{212}Po が計測された。大気中には建材等から逸出したRn（希ガス：ラドン）以後の崩壊で生じた娘核種がダストと結びついて浮遊しているため、比放射能が高いものが顕著に計測されたのであろうと考えられる。

図2にRaDE線源及び大気中ダストのスペクトルのピーク値とエネルギーの関係に近似直線をフィッティングして同時に示す。また、後に述べる測定試料の測定結果も重ねて図2に示してある。ピーク値（MCAのチャンネル数）とエネルギーの非常によい線形性を見ることができた。今後、この近似直線式によってMCAチャンネル数をエネルギーに変換することとした。

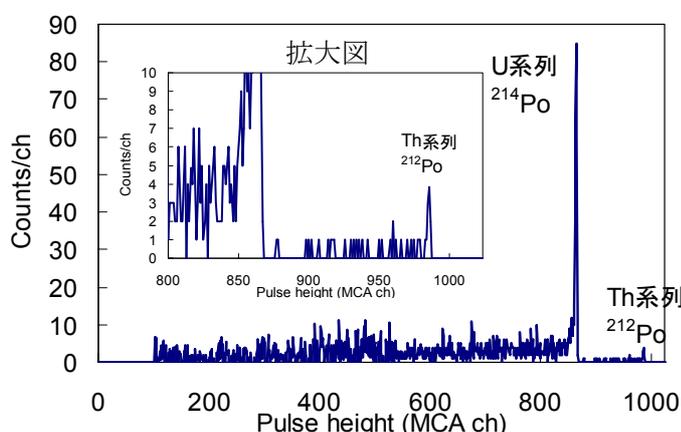


図1 大気中ダストの測定結果

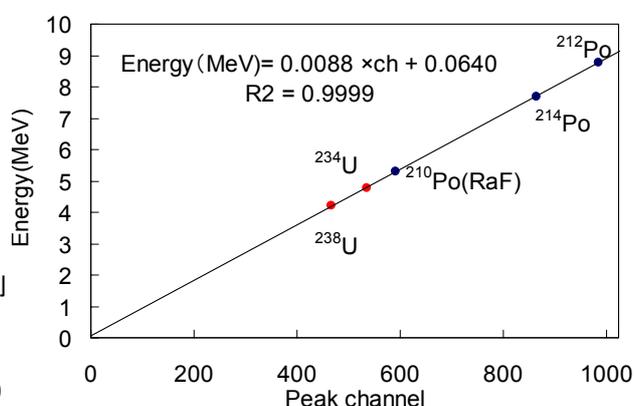


図2 エネルギー校正近似直線

3. 測定試料の計測結果

各測定器で線源と同じ条件（※半導体検出器については測定時間が1.5日に変更）で測定試料を計測した結果を表3に示す。サーベイメータ（TGS-136、TCS-352）の計測値の統計的な不確かさは8~20%程度であり、アンダーラインは検出限度以下（バックグラウンド計数値の標準偏差の3倍）を示す。また、LB770及び半導体検出器の統計的な不確かさは、1%以下である。劣化ウランの測定試料では、 β (γ) 線と α 線の測定された放射能に約10倍の違いがある。また、TCS-352での測定結果では、他の結果より β (γ) 線は大きめに見積もり、 α 線は少なめに見積もる結果となった。

表3 測定試料の測定結果

測定器	劣化ウラン試料		天然ウラン試料	
	β (γ) 線	α 線	β (γ) 線	α 線
TGS-136	11.79 Bq	×	<u>1.50 Bq</u>	×
TCS-352	13.73 Bq	1.16 Bq	<u>1.78 Bq</u>	0.82 Bq
TCS-161	測定されず	×	測定されず	×
LB770	11.97 Bq	1.60 Bq	1.65 Bq	1.43 Bq
半導体検出器	—	1.39 Bq	—	1.51 Bq

※×は測定できないこと、—は計測できるが困難であることを示す。

次に半導体検出器による各測定試料の測定結果を図3に示す。ウランから放出される α 線は、核燃料物質の内部からも放出されるため、半導体検出器自体がもっている固有のエネルギー分解能と測定回路の雑音以外に物質の密度及び粒度に影響を受けて測定されるスペクトルは幅を持ち低エネルギー側へテールをひいたようなスペクトルとなる^[3]。図3のスペクトルは、 ^{238}U 対する ^{234}U の割合 ($^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$) を見積もることによ

り、天然、劣化の判別の可能性を示している^[4]。しかし、²³⁵U の割合（濃縮度）決定は、測定されたスペクトルが ²³⁵U の存在を顕著に示していないため難しいように思われる。化学処理をして各 U のエネルギースペクトルを顕著にして測定した報告^[5]もあるが、廃棄物を増やしてしまう可能性があるため、廃棄物測定にはむいていないと思われる。

廃棄物の搬出基準の U 10Bq/g は、表 1 に示した一般的に存在量が最も多い ²³⁸U の放射能だけでよいのか否かは、放射能の測定若しくは確認方法が示されていないのでたしかではないが、スペクトル及び表 1 を見る限り、劣化ウランと天然ウランの放射能の差 (²³⁴U 及び ²³⁵U 量) が、計量（核燃料物質のウラン量）及びその化学物質情報がしっかりされている場合でも、問題となりそうである。

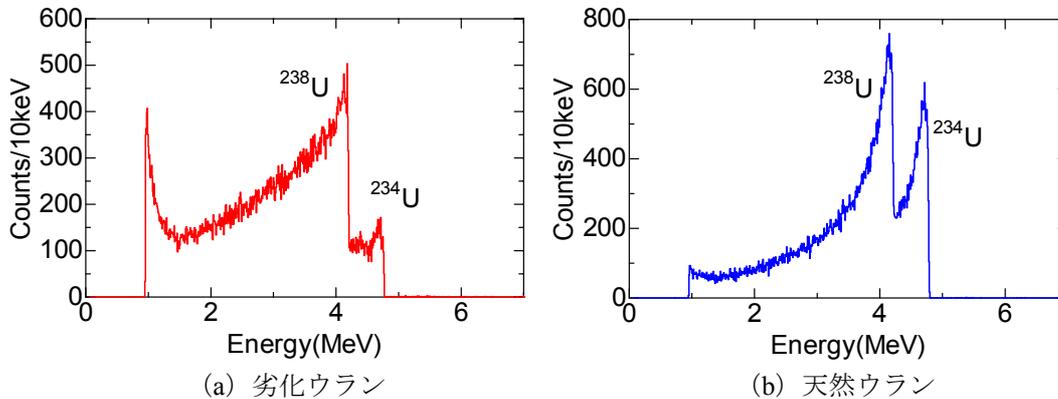


図 3 エネルギースペクトル

4. モンテカルロシミュレーション

(a) 半導体検出器

²³⁵U の計測は本当に困難なのか、また、 $\beta \cdot \gamma$ 線領域の数え落とし（図3の1MeV以下）の影響を判別するため、モンテカルロシミュレーションによって半導体検出器で計測される α 線の計算を行った。ウラン化合物から放出される α 線のスペクトルの計算については、Trimコード^[6]を使った報告^{[7][8]}があるが、同様の方法では測定試料の計算における仮定段階で時間がかかるのではないかと思います、他のモンテカルロコード (MCNP (Monte Carlo N-Particle)^[9]、Geant4 (GEometry ANd Tracking 4)^[10]、PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System)^[11]等) による計算を考え、今回はGeant4による計算を行うこととした。Geant4は、C++言語を用いたオブジェクト指向のモンテカルロシミュレーションコードで、多分野の研究で粒子と物質の相互作用の計算に使われている。今回の計算に用いた体系を図4に示す。ウラン物質を均一にした試料から当方的に²³⁴U、²³⁸U、²³⁵Uからの α 粒子を放出させ、半導体検出器でのエネルギー付与を計算した。Geant4では、通常エネルギー領域に使用する粒子と物質との相互作用のクラスと低エネルギー粒子用のクラスがある。今回は、低エネルギー用のクラスを使用した。作成した測定試料の核燃料物質自体での自己遮蔽を見るために、天然と劣化での酢酸ウラニルの厚さを変化させて計算した。図5に厚さ毎の計算したエネルギースペクトルを示す。実線は、²³⁴U、²³⁸U、²³⁵Uからの α 粒子による合計エネルギー付与の計算結果であり、4.2MeV付近に現れるピークは、²³⁵Uからのみの α 粒子によるエネルギー付与の計算結果である。計算結果は、²³⁵Uの計測・濃度の算出において今回作成した試料では困難であろうこと、また、スペクトルの形状はウランの厚さによる影響ではないように思われることを示した。

次に測定試料部分の計算体系記述をスミア紙にウラン溶液が染込んだものと仮定した。ウランの紙への染込みは紙表面から指数分布的であると仮定して、ウラン自体の厚さを考慮しないものとした。図 6 に紙表面から染込んだ距離を変えて計算した結果を示す。計算結果は、測定結果に似たスペクトルとなり、測定結果の MCA でカットした部分 (β (γ) 線の影響のある部分) のある程度の応答の記述はできそうである。

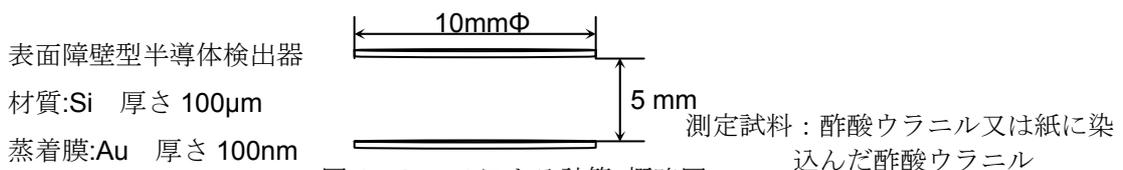


図 4 Geant4 による計算 概略図

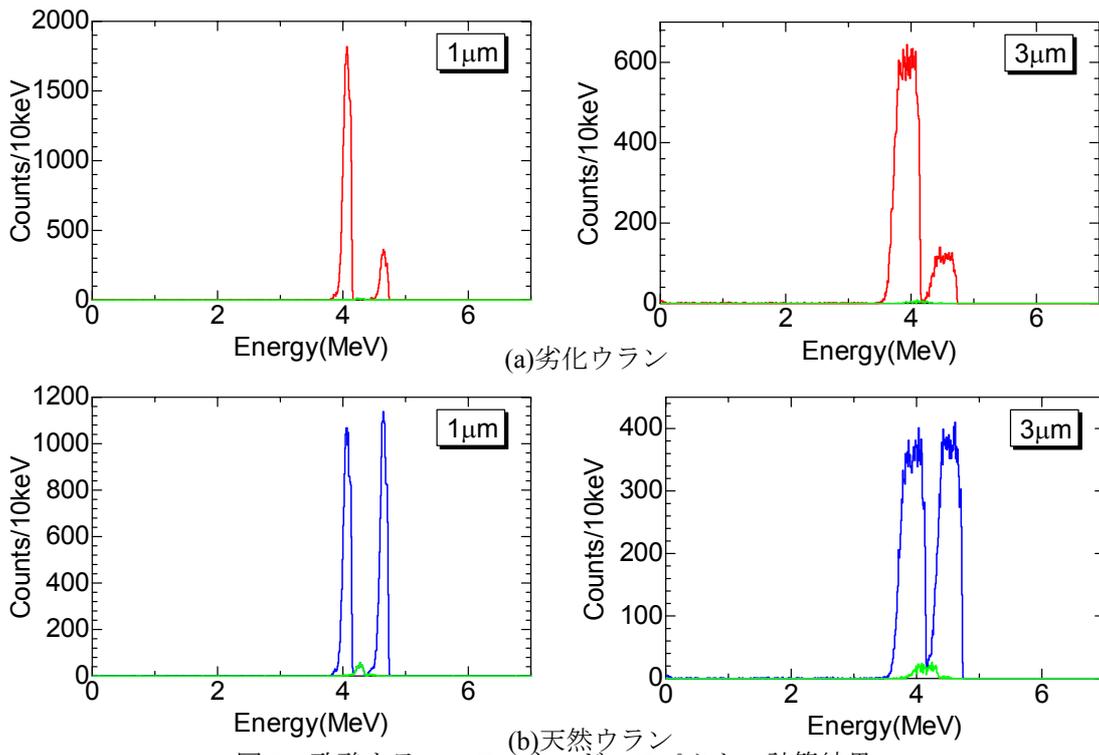


図5 酢酸ウラニルのエネルギースペクトル計算結果

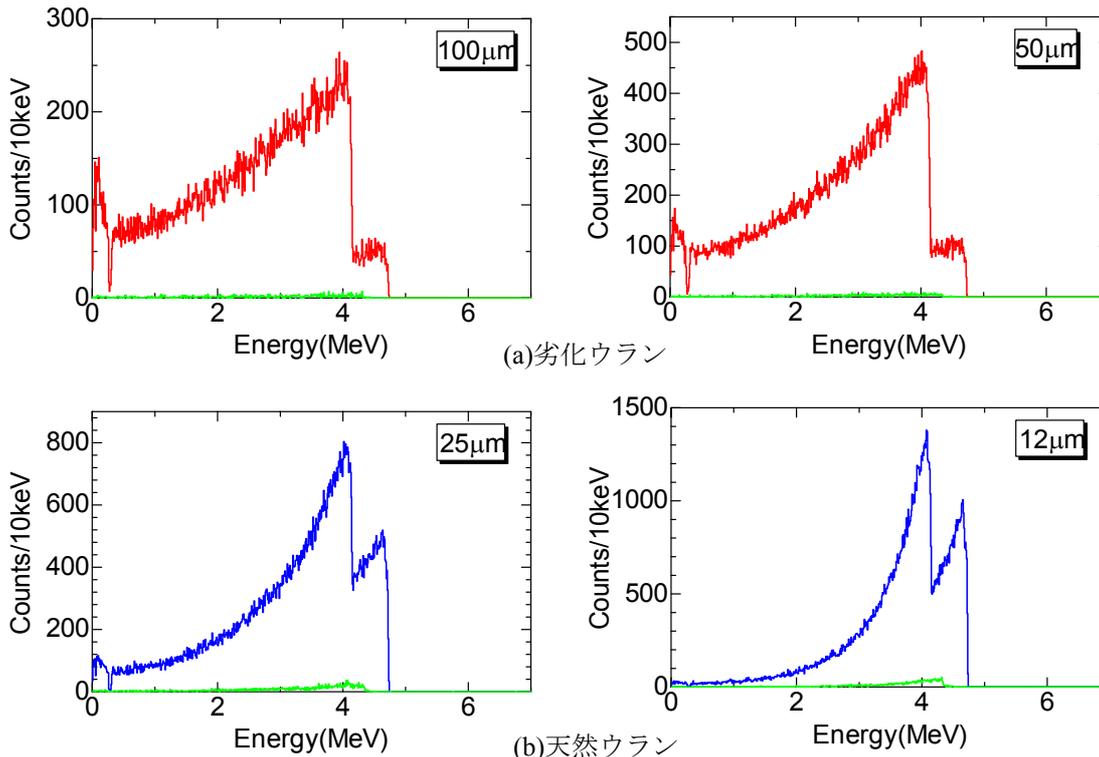


図6 酢酸ウラニルのエネルギースペクトル計算結果

(b)TCS-161 (シンチレーションサーベイメータ)

今回、TCS-161 においての測定試料の計測では、放射能が低いために計測できなかったと推測されるが、U 重量で何 g から計測可能であるか推定する。一般的なシンチレーションサーベイメータは、 ^{137}Cs 線源 ($0.662\text{MeV}@^{137}\text{mBa}$) で校正されているが、ウランから放出される γ 線 (主に約 0.2MeV) においても指示値はエネルギー補償回路によって変わらない値となっている。 ^{235}U の 1cm 線量当量定数は $0.0278 (\mu\text{Sv} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{MBq}^{-1} \cdot \text{h}^{-1})$ [12]であるため、 1m で $0.01\mu\text{Sv/h}$ を計測するには、約 360kBq が必要である。また、単純計算では 5mm の場合では約 9Bq である。表 1 より核燃料物質自体での自己遮蔽を考えない場合、天然ウランでは、 1m で約 624g 、 5mm で約 0.02g となった。 ^{238}U と ^{234}U から放出される γ 線の割合はそれぞれ、 0.01% と 0.15% (天然ウランでは ^{235}U に対して 20 倍のため、 0.1% と 2%) であり、また、エネルギーが低いため 1cm 線量

当量定数は小さく、 ^{235}U に比べて無視できる程度であろうと考えられる。以上のことにより、今回作成した測定試料は、放射能が低いため計測できないことが分かった。

(c)TCS-352 (シンチレーションサーベイメータ)

TCS-352 の検出器部分は、ZnS (Ag) とプラスチックシンチレータから構成され、それぞれ主に α 線と β 線を検出している。ZnS (Ag) は、プラスチックシンチレータより発光量が大きいので、 α 線が止まりかつ β 線の影響が少ない厚さにすれば、 $\alpha \cdot \beta$ 線同時計測が可能であることを利用した測定器である。前述の測定結果は、今回作成した測定試料の放射能が低く、また測定時間が短いため、測定値の統計的不確かさは大きな値となっている。

先ず、 α 線について測定値に計測されるエネルギーについて違いがあるのか否かを計算した。計算では、検出効率を求めた RaDE 線源の 5.3MeV と天然ウランから放出される α 線 (主に 4.2MeV、4.8MeV の単色線と半導体検出器で測定したスペクトル) について Geant4 で計算し、エネルギー補正が必要か否かを判断することとした。実際の測定器では、アルミニウム蒸着マイラー膜固定枠がつけられているが、形状が複雑であるため今回は省略した。図 7 に下限エネルギー (測定可能なエネルギーの下限値) 毎の計算した天然ウランと RaDE 線源の計数比を示す。線源又は測定試料から測定器までの空気層 (約 10mm) によって α 線が減衰するため、下限エネルギーを設定することで α 線のエネルギーによる影響がみられた。図 7 の比で表 3 の測定結果を補正すると表 4 に示す結果となり、ある程度の補正が可能であろうことが分かった。

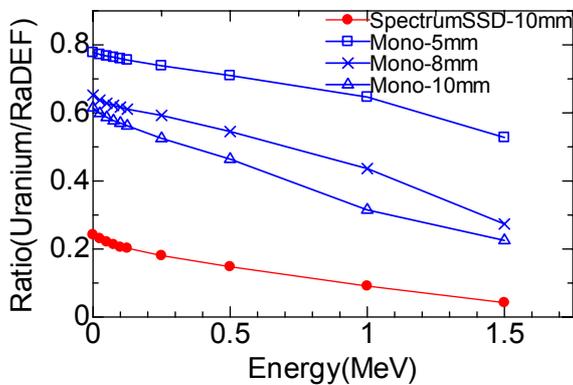


図 7 下限エネルギー毎の測定比

表 4 検出率の違いを考慮した測定結果 (天然ウラン・単色の場合)

下限 エネルギー (MeV)	線源からの距離	
	10mm	8mm
0.0 (なし)	1.33 Bq	1.26 Bq
0.05	1.39 Bq	1.31 Bq
0.1	1.44 Bq	1.33 Bq
0.5	1.77 Bq	1.51 Bq

次に、 γ 線の影響について考える。 γ 線がどの程度影響しているのか計算することによって、今後の $\beta \cdot \gamma$ が混在する放射能についての汚染検査について有効ではないかと考えた。計算には EGS5 (Electron Gamma Shower 5) [13] を用いて検出部分全面からの散乱を考慮するため、固定枠も計算にいれることとした。EGS5 は電子・光子の物質との相互作用を計算できるモンテカルロシミュレーションコードであり、国家標準でも使われている信頼性の高い計算コードである。EGS4 ではユーザーコードが Mortran 言語であったが、EGS5 では Fortran 言語に改訂されている。図 8 に計算体系図 (CGVIEW[14]) を示す。計算の線源位置等は、測定の条件と同じである。また、計算の γ 線エネルギーは、代表的な線源のエネルギーで行った。その計算結果を図 9 に示す。おおよそ 0.1MeV 以上で 2% 程度であった。しかし、図 9 ではサーベイメータの下限エネルギー (光電子増倍管で観測される光子等) を考慮していないので、検出のオーダーがわかる程度であるが、ウラン化合物測定ではあまり影響がないことが分かった。

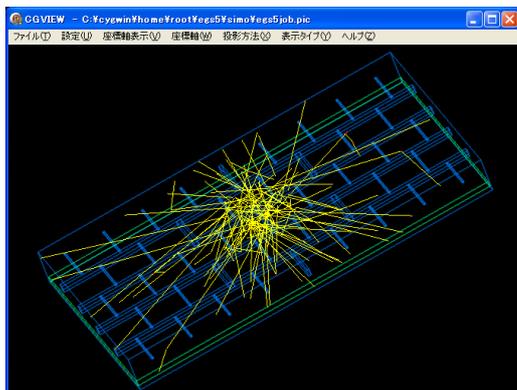


図 8 TCS-352 の EGS5 計算体系

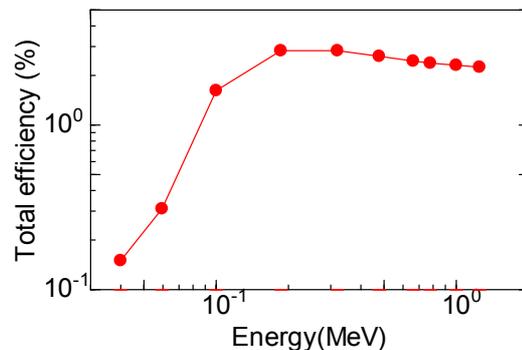


図 9 TCS-352 の γ 線検出効率計算

(d)LB770 (Ar+CH₄ ガスフロー比例計数管)

LB770 は、窓厚 0.4mg/cm² (プラスチック) のガスフロー比例計数管であり、10 個の計数管と 10 個の測定試料は 10cm 厚の鉛で遮蔽されている。また、計数管上部に guard カウンター (ガスフロー比例計数管) を配置することによって、宇宙線・高エネルギーγ 線等からなるバックグラウンドを除去している。α・β 線の弁別は、計数管からの信号 (波高値 (エネルギー付与)、立ち上がり時間 (飛程)) で行っており、同時測定が可能である。計数管・測定回路からの信号は PC によって計測し、統計・バックグラウンド・検出効率等を考慮して、単位時間当たりの計数値 (Bq) が示される。当施設の LB770 は納入時に、校正線源 (α 線：²⁴¹Am、β 線：¹⁴C) によって検出効率が値づけされている。

今回、LB770 計測値の確認に用いた RaDE 線源は、アルミニウム等で RaD の放射線を遮蔽しなかったため、RaD+RaE の放射能が計測されていると考えられるが、表 2 に示した β (γ) 線の放射能比に少し問題があるように思われる。そこで、β 線の測定においてエネルギー補正が必要か否か、また、γ 線及び内部転換電子の影響を計算によって確かめることとした。β 崩壊は、中性子が陽子と電子と反電子ニュートリノに崩壊するため、放出される電子は連続スペクトルを示す。そのため、計算するためには、¹⁴C 線源、RaDE 線源及びウラン廃棄物から放出される β 線のエネルギースペクトルが必要である。今回は β 崩壊記述に、Geant4 の放射性物質の崩壊を用いて、その他放射線の振る舞いを EGS5 で計算することとした。(他には、EDISTR^[15]、Cernlib の GENBOD^[16]等にも可能性がある) 図 10 に Geant4 での β 崩壊の確率密度関数を示す。図 10 では、RaDE 線源及びウラン廃棄物については放射平衡により 2 つの核種から放出される β 線を示しており、それぞれの核種についての縦軸は図 10 の矢印の方向を示している。

検出器の構造は、製造元に公開されている情報から推測される検出器を仮定して計算に用いることとし、他の測定試料 (10 個同時測定可能な装置のため) の影響も無視することとした。図 11 に β 線の計算結果の 1 例を示す。図 11 では横軸を電離電子数で表しているが、比例計数管のため出力値はこの値の約 10⁵ 倍の値と

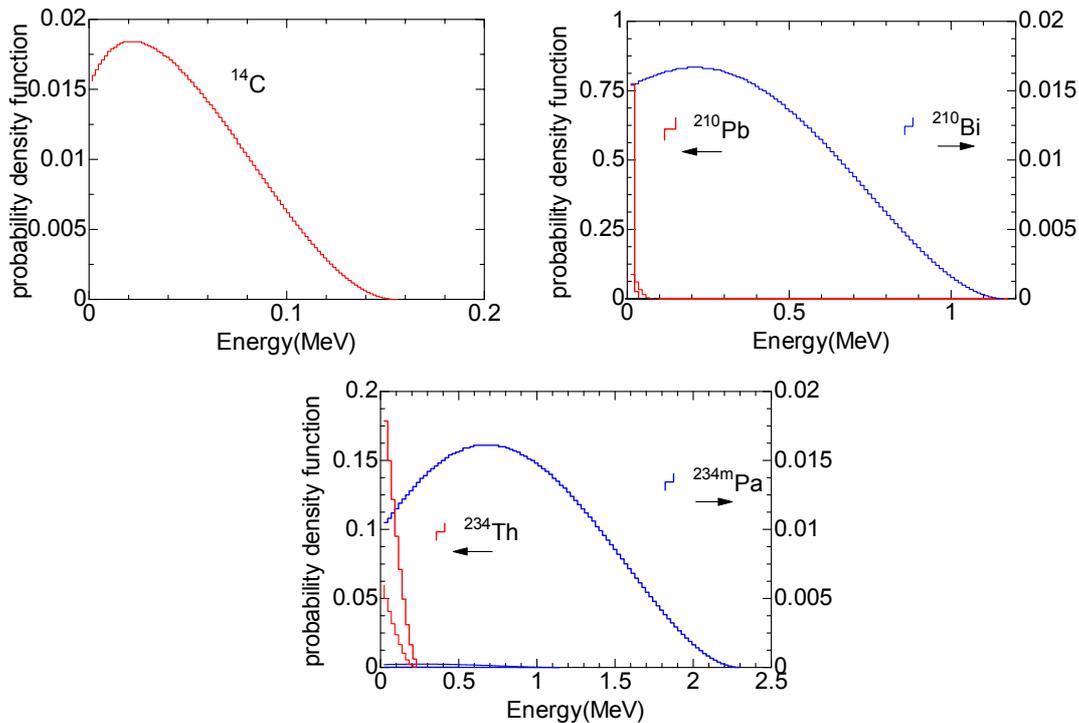


図 10 ¹⁴C (全 pdf=1)、RaDE 線源及びウラン廃棄物から放出されるであろう β 崩壊の確率密度関数 (全 pdf=2)

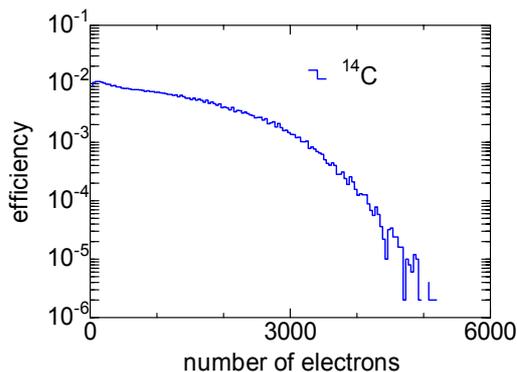


図 11 ¹⁴C の計算結果 (初期電離電子数)

表 5 計算結果のまとめ

下限 エネルギー keV (電子数)	RaDE/ ¹⁴ C	ウラン廃棄物 / ¹⁴ C
0 (なし)	3.01	3.13
10 (385)	2.75	2.70
15 (577)	2.64	2.43

γ 線・内部転換電子の計算結果も含む

なっていると推測される。

全計算結果を表 5 に示す。表 5 には、 β 線の他に γ 線及び内部転換電子の計算結果も含んでおり、下限エネルギー10keV で測定結果と計算結果が同程度の比率となった。この場合、ウラン廃棄物の放射能の測定結果は約 2%程度少なく見積もる結果となるが、放射能を見積もるための他の不確かさが大きいいため、放射能を見積もるにはあまり影響しないと考えられる。しかし、ウラン廃棄物の γ 線の影響は全計数値の 2%程度であり、また、内部転換電子の影響も無視できないため、 β 線の放射能表示からウラン量 (Bq/g) を推定することは大変難しいと思われる結果となった。

5. まとめ

表面障壁型半導体検出器は、天然ウラン、劣化ウランの判断を迅速にまた少量の物質で可能であることが分かった。サーベイメータでの放射能測定でも、ある程度の精度で測定が可能であることが分かり、放射能測定を行う現場の状況等に応じて、サーベイメータの測定も有効である。ガスフロー比例計数管測定器については、スミア紙等による汚染検査において有効であり、同時に 10 サンプル測定可能なことから、多くの試料の測定を行う場合は最もすぐれた測定器であると考えられる。

ウラン廃棄物の放射能測定の基本は、放出される α 線であるが、今後は廃棄物全体の放射能の測定において、Ge 検出器の γ 線測定による方法を確認したい。

参考文献

- [1] Table of Isotopes Eighth Edition, WILEY INTERSCIENCE
- [2] 放射線データブック, 地人書館
- [3] M. Hosoe et al. : Nucl. Instr. and Meth. **223** (1984) 377
- [4] A Martín Sánchez et al. : Nucl. Instr. and Meth. **A313** (1992) 219
- [5] H. Surbeck : Appl. Radiat. Isot. **53** (2000) 97
- [6] SRIM Web Page : <http://www.srim.org/>
- [7] M. Jurado Vargas, A. Fernández Timón : Nucl. Instr. and Meth. **A548** (2005) 432
- [8] 亀尾 裕ら : 日本原子力学会和文論文誌, Vol.4, No.3(2005) 187
- [9] D. J. Whalen et al. : LA-12196(Sep 1991) Table.A.9.
- [10] S. Agostinelli et al. : Nucl. Instr. and Meth. **A506** (2003) 250
- [11] H. Iwase et.al.: J. Nucl. Sci. Technol. **39**(2002) 1142
- [12] アイソトープ手帳 10 版, 日本アイソトープ協会
- [13] H. Hirayama et al. : Report SLAC-R-730
- [14] Y.Namito et al. : KEK internal 2004-8, December 2004 R,(web: <http://rcwww.kek.jp/research/egs/kek/cgview/>)
- [15] L.T. Dillman : ORNL/TM-6689
- [16] F. James : CERN 68-15