

JAERI-M
85-111

核種移動速度測定装置の開発(II)
帯水層土壌試料中放射性核種濃度分布の非破壊的測定

1985年8月

小川 弘道・山本 忠利・和達 嘉樹

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI M reports are issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai mura, Naka gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute. 1985

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

核種移動速度測定装置の開発(II)
帯水層土壌試料中放射性核種濃度分布の非破壊的測定

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

小川 弘道・山本 忠利・和達 嘉樹

(1985年7月5日受理)

土壌中における放射性核種の移動速度を測定することを目的とし、帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布を非破壊的に測定するシステムを開発した。

本システムでは、帯水層土壌試料中に挿入した検出器により、 γ 線の計数率分布を測定し、検出器の測定効率を係数行列とする連立方程式を作成する。濃度分布が指数関数的に変化するとする仮定を導入して連立方程式を解くことにより、帯水層土壌試料中における濃度分布を算出する。本システムに関して機能試験を行った結果、帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布を測定できることが確認された。

本報告は、システムの概要および機能試験の結果についてまとめたものである。

JAERI-M 85-111

Development of Radionuclide Migration Monitor (II)

Nondestructive Measurement of Radionuclide Concentration
Distribution in Aquifer Soil Sample

Hiromichi OGAWA, Tadatoshi YAMAMOTO and Yoshiki WADACHI

Department of Environmental Safety Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received July 5, 1985)

A nondestructive measuring system has been developed for the measurement of the radionuclide concentration distribution in an aquifer soil sample to measure the radionuclide mobility in the soil layer.

In this system, the counting rate distribution of γ -ray is measured by using detectors inserted into the aquifer soil sample, and the simultaneous equations whose coefficient matrix consists of theoretically calculated measuring efficiencies of detector are obtained. The concentration distribution in the aquifer soil sample is determined by solving the simultaneous equations assuming that the concentration distribution decreases exponentially. From the results of function tests, it is found that the radionuclide concentration distribution in an aquifer soil sample can be measured by this system.

The report describes the outline of the system and the results of function tests.

Keywords; Nondestructive Measurement, Concentration Distribution,
Radionuclide Migration, ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{137}Cs , Aquifer
Soil Sample, STEM, Function Tests

目 次

1. まえがき	1
2. 測定法	1
2.1 測定原理	1
2.2 測定効率	2
2.3 連立方程式の解法	3
3. システムの概要	4
3.1 全体構成	4
3.2 検出部	4
3.3 計数部	5
3.4 制御演算部	5
3.5 ソフトウェア	5
4. 機能試験の結果および考察	6
5. あとがき	8
謝 辞	8
参考文献	8

Contents

1. Introduction	1
2. Method of measurement	1
2.1 Principle of measurement	1
2.2 Measuring efficiency	2
2.3 Solution of simultaneous equations	3
3. Outline of system	4
3.1 Total composition	4
3.2 Detector	4
3.3 Counter	5
3.4 Controller and calculator	5
3.5 Software	5
4. Results of function tests and discussions	6
5. Remarks	8
Acknowledgement	8
References	8

図 表 一 覧 表

表 1	検出器のピーク効率および分解能
図 1	濃度分布の測定原理
図 2	システムの全体構成
図 3	検出器の外観写真
図 4	計数部の構成
図 5	計数部および制御演算部の外観写真
図 6	データ収集用プログラム SAMPLE のフローチャート
図 7	解析用プログラム CONC のフローチャート
図 8	放射性水溶液の流入
図 9	計数率の測定状況
図 10	検出器の挿入位置 (平面図)
図 11	^{60}Co の濃度分布 (平面図)
図 12	^{85}Sr の濃度分布 (平面図)
図 13	^{137}Cs の濃度分布 (平面図)

Table list

Table 1	Peak efficiency and energy resolution of detector
---------	---

Figure list

Fig. 1	Principle of measurement of concentration distribution
Fig. 2	Total composition of system
Fig. 3	Photograph of detector
Fig. 4	Composition of counter
Fig. 5	Photograph of counter, controller and calculator
Fig. 6	Flow chart of data sampling program SAMPLE
Fig. 7	Flow chart of analyzing program CONC
Fig. 8	Inflow of radioactive aqueous solution
Fig. 9	Measuring aspect of counting rate
Fig. 10	Position of inserted detector (ground plan)
Fig. 11	Concentration distribution of ^{60}Co (ground plan)
Fig. 12	Concentration distribution of ^{85}Sr (ground plan)
Fig. 13	Concentration distribution of ^{137}Cs (ground plan)

1. ま え が き

低レベル放射性廃棄物の浅地中処分に関する安全性評価を目的とする環境シミュレーション試験では、昭和58年度後半より日本原子力研究所東海研究所敷地内の海岸砂層を対象として、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の放射性核種について地中移動試験を実施している。環境シミュレーション試験において実施する帯水層試験では、通気層下部に存在する帯水層土壌をショベル系の掘削機により採取し、実験室内に設置した帯水層用装置内に充填して、放射性核種の移動試験を行う。環境シミュレーション試験のように自然状態の地層に対して実施する試験の場合、複数の同一試料を準備することは、困難である。したがって、土壌中における放射性核種の吸着濃度分布の時間変化を知るためには、非破壊測定法の開発が必要である。

環境シミュレーション試験では、土壌試料中における放射性核種の濃度分布を測定することにより放射性核種の移動速度を求める。このために、筆者らは、通気層用の放射性核種濃度非破壊測定システムを開発し、前報¹⁾で報告した。本報告では、帯水層用に開発した放射性核種濃度非破壊測定システムについて、測定法および概要について述べ、実際に高さ30cm、幅90cm、長さ270cmの帯水層土壌試料に対して実施した放射性核種濃度分布の測定結果について報告する。

2. 測 定 法

2.1 測定原理

図1に示したように、測定対象とする帯水層土壌試料をN個のブロックに分割し、N個の体積線源の集合体として考えると、帯水層土壌試料内の任意の位置における単位面積当たりの γ 線入射率 F ($1/\text{cm}^2/\text{s}$)は、次式で表わすことができる。

$$F = \sum E(n) D(n) \quad (1)$$

ここで、 n はブロックの番号を示し、 $E(n)$ は n 番目のブロックに対する検出器の測定効率 ($1/\text{cm}^2$)、 $D(n)$ は n 番目のブロック中における放射性核種量 (Bq) である ($n = 1, 2, 3, \dots, N$)。検出器の測定効率 $E(n)$ は、ブロックと検出器の位置関係、土壌の線吸収係数、検出器の種類等により求めることができる。したがって、 N ヶ所で γ 線の計数率を測定し、検出器効率および断面積で除することによって γ 線入射率を算出すれば、放射性核種量 $D(n)$ に関する連立一次方程式が得られる。その解を求めて、ブロックの重量等で除することによって、帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布が得られる。

上記のような連立方程式を解くことにより濃度分布を求める方法では、濃度ブロックの個数

1. ま え が き

低レベル放射性廃棄物の浅地中処分に関する安全性評価を目的とする環境シミュレーション試験では、昭和58年度後半より日本原子力研究所東海研究所敷地内の海岸砂層を対象として、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の放射性核種について地中移動試験を実施している。環境シミュレーション試験において実施する帯水層試験では、通気層下部に存在する帯水層土壌をショベル系の掘削機により採取し、実験室内に設置した帯水層用装置内に充填して、放射性核種の移動試験を行う。環境シミュレーション試験のように自然状態の地層に対して実施する試験の場合、複数の同一試料を準備することは、困難である。したがって、土壌中における放射性核種の吸着濃度分布の時間変化を知るためには、非破壊測定法の開発が必要である。

環境シミュレーション試験では、土壌試料中における放射性核種の濃度分布を測定することにより放射性核種の移動速度を求める。このために、筆者らは、通気層用の放射性核種濃度非破壊測定システムを開発し、前報¹⁾で報告した。本報告では、帯水層用に開発した放射性核種濃度非破壊測定システムについて、測定法および概要について述べ、実際に高さ30cm、幅90cm、長さ270cmの帯水層土壌試料に対して実施した放射性核種濃度分布の測定結果について報告する。

2. 測 定 法

2.1 測定原理

図1に示したように、測定対象とする帯水層土壌試料をN個のブロックに分割し、N個の体積線源の集合体として考えると、帯水層土壌試料内の任意の位置における単位面積当たりの γ 線入射率 F ($1/\text{cm}^2/\text{s}$)は、次式で表わすことができる。

$$F = \sum E(n) D(n) \quad (1)$$

ここで、 n はブロックの番号を示し、 $E(n)$ は n 番目のブロックに対する検出器の測定効率 ($1/\text{cm}^2$)、 $D(n)$ は n 番目のブロック中における放射性核種量 (Bq) である ($n = 1, 2, 3, \dots, N$)。検出器の測定効率 $E(n)$ は、ブロックと検出器の位置関係、土壌の線吸収係数、検出器の種類等により求めることができる。したがって、 N ヶ所で γ 線の計数率を測定し、検出器効率および断面積で除することによって γ 線入射率を算出すれば、放射性核種量 $D(n)$ に関する連立一次方程式が得られる。その解を求めて、ブロックの重量等で除することによって、帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布が得られる。

上記のような連立方程式を解くことにより濃度分布を求める方法では、濃度ブロックの個数

が検出器数と同じであるため、濃度分布の変化が急激である場合には、検出器を多数使用し、多数の濃度ブロックに分割する必要がある。しかし、帯水層土壌試料中に検出器を挿入して計数率を測定する場合には、検出器そのものが帯水層土壌試料中における水の流れを乱すため、検出器の個数は制限される。そこで、本測定システムは、以下に述べるような方法を用いて、少数の検出器により、急激に変化する濃度分布に対しても測定可能なものとした。

土壌中を移動する放射性核種の空間的な濃度分布は、指数関数で近似できる形が多い^{2~5)}。そこで、ある2点間では、濃度が指数関数的に変化するという仮定を導入して、 x (cm) だけ離れた2点A、Bにおいて、濃度がそれぞれ a 、 b であるとすれば、2点間にある任意の位置Yにおける濃度 y は、

$$\log y = ((x-z) \log a + z \log b) / x \quad (2)$$

で表わされる。ここで、 z は2点A、Yの距離 (cm) である。したがって、(2)式を用いることにより、ある2点の濃度を決定すると、その2点間における任意の位置の濃度を求めることができる。このような一次元内挿法は、二次元および三次元にも拡張可能であり、二次元に適用した場合、正方形の頂点の濃度を決めれば、その内部の濃度分布が指数関数的に変化する分布として決定されるため、4個の検出器から正方形内部の濃度分布が決定できる。

2.2 測定効率

γ 線検出器としては、効率の高さおよびエネルギー分解能を考慮し、さらに帯水層土壌試料中に挿入するために小型であること、操作が容易であることに留意して、NaI (Tl) シンチレーション検出器を採用した。シンチレーション検出器の場合、点線源に対する効率 E' は、

$$E' = e S \exp(-\sum \mu' r) / 4 \pi R^2 \quad (3)$$

で表わされる。ここで、 e はシンチレータのピーク効率、 S はシンチレータの断面積 (cm^2)、 μ' は線源シンチレータの間にある物質の線吸収係数 ($1/\text{cm}$)、 r はその物質に対する減衰距離 (cm)、 R は線源とシンチレータとの距離 (cm) であり、 \sum はすべての要素について加算することを表わしている。本システムで用いた測定効率 E は、 γ 線吸収物質として土壌および水を仮定し、 $E'/e S$ を対象とする濃度ブロックについて積分して、

$$E = \int_V \exp(-\mu r) / 4 \pi R^2 dV / V \quad (4)$$

で計算できる。ここで、 μ は水を含んだ土壌の線吸収係数 ($1/\text{cm}$)、 V は濃度ブロックの体積である。(4)式の積分は、数値積分により計算可能であるが、計算時間を短縮するために、以下に示したように2種類の場合に分けて、近似計算により求めた。

対象とする濃度ブロックの内部に検出器が挿入されている場合には、立方体の濃度ブロックを同体積の球として考え、その測定効率 E は近似的に、

$$\begin{aligned}
 E &= \int_{R_0}^{R_1} \exp(-\mu(R-R_0)) / 4\pi R^2 dV / V \\
 &= \int_{R_0}^{R_1} \exp(-\mu(R-R_0)) dR / V \\
 &= \{ 1 - \exp(-\mu(R_1-R_0)) \} / \mu V
 \end{aligned} \tag{5}$$

で与えられる。ここで、 R_0 は検出器の半径 (cm), R_1 は球に近似した濃度ブロックの半径(cm)である。

対象とする濃度ブロックの外部に検出器が挿入されている場合には、濃度ブロック中に分布する放射性核種が、すべてブロック中心にあるものと仮定することにより、近似的に、測定効率 E を次式で計算できる。

$$E = \exp(-\mu(R_r - R_0)) / 4\pi R_r^2 \tag{6}$$

ここで、 R_r は検出器中心と濃度ブロック中心の距離 (cm) である。

2.3 連立方程式の解法

連立一次方程式(1)を解く場合、ガウス消去法のような直接法、または、ガウス-ザイデル法およびSOR法のような反復法が用いられる⁶⁾が、本システムでは、濃度分布が指数関数的に変化するという仮定を導入したため、これらの解法は、直接使用できない。そこで、反復法を基本にした以下のような逐次改良により、連立方程式の解を求めた。ただし、二次元および三次元の濃度分布に対する解法も、方程式の順序の並べ換えにより、一次元の濃度分布に対する解法に帰着するので、簡便化のため、以下の説明においては、一次元に対する解法について述べる。

検出器の数を N 、(2)式の仮定によって1個の濃度ブロックが M 個に分割されるとし、解を求めるべき連立一次方程式を

$$Y(I) = \sum A(I, J) X(J) \tag{7}$$

とする。ここで、 $Y(I)$, $A(I, J)$, $X(J)$ は、(1)式における γ 線入射率、測定効率および放射性核種量にそれぞれ相当し、 I および J は、検出器および濃度ブロックの番号にそれぞれ対

応している ($J, J=1, 2, \dots, M(N-1)+1$)。検出器の個数は N 個であるので、 $I = M(n-1)+1$ ($n=1, 2, \dots, N$) の場合のみ $Y(J)$ の値が既知であり、その他は与えられていない。

$X(J)$ の第 0 次近似 $X_0(J)$ を $X_0(J) = Y(J) / A(J, J)$ とすると ($J=1, M+1, \dots, M(N-1)+1$)、 $Y(J)$ の値が与えられていない J に対応する $X_0(J)$ の値は、(2) 式の内挿法により決定できるので、すべての J に対して $X(J)$ の第 0 次近似 $X_0(J)$ が計算できる。 $X_0(J)$ の値を (7) 式に代入して $Y_1(I)$ を計算し、 $Y(J)$ の値が与えられていない J に対応する $X(J)$ の第一次近似 $X_1(J)$ を $X_1(J) = X_0(J)Y(J) / Y_1(J)$ で計算する。つぎに、 $X(J)$ の第二次近似を計算するために、(2) 式の内挿法によってすべての J に対して第一次近似 $X_1(J)$ を計算し、(7) 式に代入して $Y_2(I)$ を計算する。第二次近似 $X_2(J)$ は $X_2(J) = X_1(J)Y(J) / Y_2(J)$ で計算できる。このような計算を繰り返すことにより、(7) 式で計算される値は $Y(J)$ に収束するので、適当な回数で繰り返し計算を打ち切れば、その時の $X(J)$ は求める解に十分近い値であり、連立方程式の解とすることができる。

3. システムの概要

3.1 全体構成

本システムは、図 2 に示したように検出部、計数部および制御演算部から構成されており、制御演算用のソフトウェアにより作動する。

検出部は、12 個の γ 線検出器より成り、帯水層土壌試料中に挿入して γ 線を測定する。検出器の外観写真を図 3 に示す。計数部は、高圧電源、低圧電源、リニアアンプ、およびマルチチャンネルアナライザーを構成する A/D コンバータ、マルチプレクサ、プロセスメモリ等より成り、その概念図を図 4 に、外観写真を図 5 に示す。検出部より送られる信号を受けて、 γ 線測定を行い、マルチチャンネルアナライザーにより γ 線スペクトルを得る。制御演算部は、図 5 に示した 16bit のパーソナルコンピュータであり、マルチチャンネルアナライザーの制御、 γ 線スペクトルの解析、測定効率の計算、濃度分布の算出および表示等を行う。なお、計数部および制御演算部は、通気層用の放射性核種濃度非破壊測定システム¹⁾ と共通である。

3.2 検出部

検出部は、0.8 cm ϕ \times 1.0 cm L の NaI(Tl) シンチレータを内蔵した検出器 12 式より成り、土壌への挿入部分は、図 3 に示したように 2.6 cm ϕ \times 53 cm L の円柱状である。先端部分は、土壌内に挿入し易いように円錐状にしてある。なお、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の放出する γ 線に対する検出器のエネルギー分解能およびピーク効率を表 1 に示す。

応している ($J, J=1, 2, \dots, M(N-1)+1$)。検出器の個数は N 個であるので、 $I = M(n-1)+1$ ($n=1, 2, \dots, N$) の場合のみ $Y(J)$ の値が既知であり、その他は与えられていない。

$X(J)$ の第 0 次近似 $X_0(J)$ を $X_0(J) = Y(J) / A(J, J)$ とすると ($J=1, M+1, \dots, M(N-1)+1$)、 $Y(J)$ の値が与えられていない J に対応する $X_0(J)$ の値は、(2) 式の内挿法により決定できるので、すべての J に対して $X(J)$ の第 0 次近似 $X_0(J)$ が計算できる。 $X_0(J)$ の値を (7) 式に代入して $Y_1(I)$ を計算し、 $Y(J)$ の値が与えられていない J に対応する $X(J)$ の第一次近似 $X_1(J)$ を $X_1(J) = X_0(J)Y(J) / Y_1(J)$ で計算する。つぎに、 $X(J)$ の第二次近似を計算するために、(2) 式の内挿法によってすべての J に対して第一次近似 $X_1(J)$ を計算し、(7) 式に代入して $Y_2(I)$ を計算する。第二次近似 $X_2(J)$ は $X_2(J) = X_1(J)Y(J) / Y_2(J)$ で計算できる。このような計算を繰り返すことにより、(7) 式で計算される値は $Y(J)$ に収束するので、適当な回数で繰り返し計算を打ち切れば、その時の $X(J)$ は求める解に十分近い値であり、連立方程式の解とすることができる。

3. システムの概要

3.1 全体構成

本システムは、図 2 に示したように検出部、計数部および制御演算部から構成されており、制御演算用のソフトウェアにより作動する。

検出部は、12 個の γ 線検出器より成り、帯水層土壌試料中に挿入して γ 線を測定する。検出器の外観写真を図 3 に示す。計数部は、高圧電源、低圧電源、リニアアンプ、およびマルチチャンネルアナライザーを構成する A/D コンバータ、マルチプレクサ、プロセスメモリ等より成り、その概念図を図 4 に、外観写真を図 5 に示す。検出部より送られる信号を受けて、 γ 線測定を行い、マルチチャンネルアナライザーにより γ 線スペクトルを得る。制御演算部は、図 5 に示した 16 bit のパーソナルコンピュータであり、マルチチャンネルアナライザーの制御、 γ 線スペクトルの解析、測定効率の計算、濃度分布の算出および表示等を行う。なお、計数部および制御演算部は、通気層用の放射性核種濃度非破壊測定システム¹⁾ と共通である。

3.2 検出部

検出部は、0.8 cm ϕ \times 1.0 cm L の NaI(Tl) シンチレータを内蔵した検出器 12 式より成り、土壌への挿入部分は、図 3 に示したように 2.6 cm ϕ \times 53 cm L の円柱状である。先端部分は、土壌内に挿入し易いように円錐状にしてある。なお、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の放出する γ 線に対する検出器のエネルギー分解能およびピーク効率を表 1 に示す。

3.3 計数部

計数部は、高圧電源1台、低圧電源4台、リニアアンプ(利得2~2048倍)12台および256チャンネルのマルチチャンネルアナライザ-12式を構成するADコンバータ(変換利得256ch/8V)12台、マルチプレクサ(メモリ1k)3台およびプロセスメモリ(1024チャンネル)3台から成り、制御演算部により自動的に制御されて γ 線スペクトルを収集する。

3.4 制御演算部

制御演算部は、16bitのパーソナルコンピュータSEIKO-9500であり、ROM 8kbyte、RAM 512kbyteのメモリを有し、640kbyteのミニフロッピーディスクを2基標準装備している。また、測定データおよび演算結果の出力のために、グラフィックプリンタSEIKO-9515が付属している。

3.5 ソフトウェア

ソフトウェアは、データ収集用プログラムSAMPLEと解析用プログラムCONCに大別することができ、使用言語はBASICである。

① データ収集用プログラムSAMPLE

本プログラムは、図6に示したフローチャートに従って、帯水層土壌試料中の計数率分布を測定する。システム起動後、測定時間、測定位置等の測定条件を入力して、測定モードを設定する。測定時間になると、マルチチャンネルアナライザ-を初期化し、設定された時間だけ γ 線スペクトルを収集する。測定したスペクトルをミニフロッピーディスクに記録した後、Covell法⁷⁾によりスペクトル解析を行い、計数率分布を算出する。計数率分布は、測定データとしてミニフロッピーディスクに記録し、グラフィックプリンタに出力する。さらに、次の測定時間になると、同様に、 γ 線スペクトルを収集し、計数率分布を記録して、グラフィックプリンタに出力する。このような流れを繰り返して、設定したすべての時間に対して計数率分布の測定が終わると、本プログラムは終了する。

なお、本プログラムには、検出器の較正、エネルギー分解能およびピーク効率の測定を行なうためのプログラムCALIB1、土壌の線吸収係数を測定するためのプログラムCALIB2が含まれている¹⁾。

② 解析用プログラムCONC

本プログラムは、図7に示したフローチャートに従ってデータ処理を行い、帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布を算出する。ミニフロッピーディスクから測定条件、検出器のピーク効率、計数率分布等を読み出し、計数率をピーク効率および検出器の断面積で除することにより、 γ 線入射率の分布を算出する。2.2に従って測定効率を計算し、連立方程式を作成した後、2.3の方法によって連立方程式の解を求めて、帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布を算出する。なお、連立方程式を解く場合、測定された γ 線入射率と、濃度分

布より計算される γ 線入射率の差が、 $\pm 20\%$ 以内になれば収束したと判定して計算を打ち切り、 $\pm 20\%$ 以内に収束しない場合には、20回の繰り返して計算を打ち切る。

4. 機能試験の結果および考察

帯水層土壌試料中の放射性核種濃度分布が本システムにより測定可能であることを確認するために、帯水層土壌試料中に放射性水溶液を流入させた後、本システムにより吸着濃度分布を測定した。

測定対象とした帯水層土壌試料は、幅90 cm、長さ270 cm、深さ45 cmのステンレス製帯水層槽内に、日本原子力研究所東海研究所敷地内から採取した海岸砂（密度 2.63 g/cm^3 ）を空隙率約0.4で充填したものである。砂層の厚さは35 cmであり、砂層の下部には豊浦標準砂を5 cmの厚さで充填した。蒸留水を砂層下部より浸透させることにより水を飽和させ、帯水層を作成した。

放射性水溶液の流入実験は、帯水層槽を傾斜させることにより行なった。図8に示したように、槽の上流側から下流側に向かって、模擬地下水を 0.3 l/min の一定流量で、均一に流入させながら、放射性水溶液を槽の中心面に沿って上流側より50 cm、砂層表面より深さ10 cmの位置に、 0.08 l/min の一定流量で流入させた。模擬地下水の流入は、砂層表面より5 cmの深さまでであり、実際には、厚さ30 cmの砂層に放射性水溶液および模擬地下水が流入したこととなった。放射性水溶液は、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の混合放射性水溶液で、RI協会より購入した塩酸性溶液を希釈、中和したものであり、その放射性核種濃度は、それぞれ 1.0×10^{-2} 、 2.0×10^{-2} および $2.0 \times 10^{-2} \mu \text{ Ci/ml}$ であった。

放射性水溶液および模擬地下水をそれぞれ100および400 l 流入した後、図9のように土壌内に検出器を挿入し、本システムにより放射性核種の吸着濃度分布を測定した。 γ 線検出器の挿入位置は、図10に示したように、30 cm間隔であり、 γ 線検出器の差し替えにより一水平面内に15ヶ所、検出器の押し込みにより深さ方向に3ヶ所（砂層表面よりそれぞれ10、20、30 cm）、計45ヶ所の位置で γ 線計数率を測定した。計数時間は、60 minであり、本システムは12台のマルチチャンネルアナライザーを装備しているため、一水平面につき120 min、総計数時間は360 minであった。

測定した計数率分布より濃度分布を算出する場合、濃度ブロックは $10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ の立方体を1ブロックとし、一水平面ごとに濃度分布を計算して、深さごとの濃度分布を求めた。計算時間は、一水平面ごとに約15 minであり、合計45 minで濃度分布の算出が終了した。なお、測定効率の計算に際しては、土壌および水の線吸収係数を以下のように決定し、水分率は0.4とした。土壌の線吸収係数は、空隙率0.4乾燥状態において、線吸収係数測定用プログラム CALIB 2により測定したところ、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の放出する γ 線に対して、それぞれ0.054、0.149 および0.132 ($1/\text{cm}$)であった。また、水の線吸収係数は、水分率1.0の状態では、それぞれ0.063、0.095 および0.085 ($1/\text{cm}$)⁷⁾である。

本システムにより濃度分布を測定した後、比較のために、槽内の帯水層土壌試料を採取して吸着濃度を測定することにより、実際の濃度分布を求めた。水平方向には15 cm間隔、深さ方向

布より計算される γ 線入射率の差が、 $\pm 20\%$ 以内になれば収束したと判定して計算を打ち切り、 $\pm 20\%$ 以内に収束しない場合には、20回の繰り返して計算を打ち切る。

4. 機能試験の結果および考察

帯水層土壌試料中の放射性核種濃度分布が本システムにより測定可能であることを確認するために、帯水層土壌試料中に放射性水溶液を流入させた後、本システムにより吸着濃度分布を測定した。

測定対象とした帯水層土壌試料は、幅90 cm, 長さ270 cm, 深さ45 cmのステンレス製帯水層槽内に、日本原子力研究所東海研究所敷地内から採取した海岸砂(密度 2.63 g/cm^3) を空隙率約0.4で充填したものである。砂層の厚さは35 cmであり、砂層の下部には豊浦標準砂を5 cmの厚さで充填した。蒸留水を砂層下部より浸透させることにより水を飽和させ、帯水層を作成した。

放射性水溶液の流入実験は、帯水層槽を傾斜させることにより行なった。図8に示したように、槽の上流側から下流側に向かって、模擬地下水を 0.3 l/min の一定流量で、均一に流入させながら、放射性水溶液を槽の中心面に沿って上流側より50 cm, 砂層表面より深さ10 cmの位置に、 0.08 l/min の一定流量で流入させた。模擬地下水の流入は、砂層表面より5 cmの深さまでであり、実際には、厚さ30 cmの砂層に放射性水溶液および模擬地下水が流入したこととなった。放射性水溶液は、 ^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs の混合放射性水溶液で、RI協会より購入した塩酸性溶液を希釈、中和したものであり、その放射性核種濃度は、それぞれ 1.0×10^{-2} , 2.0×10^{-2} および $2.0 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ であった。

放射性水溶液および模擬地下水をそれぞれ100および400 l 流入した後、図9のように土壌内に検出器を挿入し、本システムにより放射性核種の吸着濃度分布を測定した。 γ 線検出器の挿入位置は、図10に示したように、30 cm間隔であり、 γ 線検出器の差し替えにより一水平面内に15ヶ所、検出器の押し込みにより深さ方向に3ヶ所(砂層表面よりそれぞれ10, 20, 30 cm)、計45ヶ所の位置で γ 線計数率を測定した。計数時間は、60 minであり、本システムは12台のマルチチャンネルアナライザーを装備しているため、一水平面につき120 min, 総計数時間は360 minであった。

測定した計数率分布より濃度分布を算出する場合、濃度ブロックは $10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ の直方体を1ブロックとし、一水平面ごとに濃度分布を計算して、深さごとの濃度分布を求めた。計算時間は、一水平面ごとに約15 minであり、合計45 minで濃度分布の算出が終了した。なお、測定効率の計算に際しては、土壌および水の線吸収係数を以下のように決定し、水分率は0.4とした。土壌の線吸収係数は、空隙率0.4乾燥状態において、線吸収係数測定用プログラム CALIB 2により測定したところ、 ^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs の放出する γ 線に対して、それぞれ0.054, 0.149 および0.132 ($1/\text{cm}$)であった。また、水の線吸収係数は、水分率1.0の状態、それぞれ0.063, 0.095 および0.085 ($1/\text{cm}$)⁷⁾である。

本システムにより濃度分布を測定した後、比較のために、槽内の帯水層土壌試料を採取して吸着濃度を測定することにより、実際の濃度分布を求めた。水平方向には15 cm間隔、深さ方向

には砂層表面より10cm, 20cm, 30cm の位置から, 直径 3.6 cm, 長さ 5 cm の土壤試料を採取した。採取した土壤試料は, 乾燥後, 10g を測定用サンプルとして45ml の 0.1 N 塩酸とともに直径 8 cm のプラスチック容器内に封入し, HPGe 半導体検出器により, 放射性核種の吸着濃度を測定した。

^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs についての測定結果をそれぞれ図11~13に示す。ただし, 図11~13においては, 実線が本システムによる測定結果, 破線が土壤を採取して破壊的に測定した結果を示したもので, 上層, 中層および下層は, 水の流れている土壤面(土壤表面から5cmの深さ)からの深さが, それぞれ 5 cm, 15 cm および 25 cm に対応している。

図11の ^{60}Co に対する結果を両測定法について比較すると, 上層および中層における濃度分布の形状はかなり一致しているものの, 下層においては, 本システムの結果では $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の濃度がかかなり広範囲現われているのに対して, 土壤の採取による測定結果では $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の濃度が現われていない。これは, 本システムでは濃度分布の計算に際して, 上層, 中層および下層の三層を相互に独立して計算したことによるもので, ^{60}Co の場合, 線吸収係数の値が小さく, 減衰効果が少ないため, 上層の影響が現われ, 下層に $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の濃度として観測される。

^{85}Sr に対する結果である図12においては, 放射性水溶液の流入位置より下流側では両測定結果が良く一致しているが, 上流側の一致は良くない。これは, 放射性水溶液の流入位置について計数率を測定する際に, ^{60}Co および ^{137}Cs の計数率が高いために, ^{85}Sr のピークが観察されなかったことによるものである。したがって, 検出器の性能の向上により改善されるものと考えられる。

図13の ^{137}Cs に対する測定結果は, 図11の ^{60}Co に対する結果の場合と傾向が似ており, 本システムの測定結果では下層に $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の濃度が現われている。この場合も ^{60}Co の場合と同じく, 上層, 中層および下層の三層に対して, 相互に独立して濃度分布を計算したことによるもので, ^{137}Cs は, ^{60}Co に比べて線吸収係数の値が大きいため, $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の濃度が現われる範囲がやや狭くなっている。

以上のように, 本システムにより帯水層土壤試料中における放射性核種の分布傾向を知ることができることがわかった。本システムでは, 放射性水溶液の流入中に, 放射性核種の濃度分布を知ることが目的の一つであり, 限られた個数の検出器を効果的に配置するため, 1回の測定では12個の検出器により一水平面内における計数率分布を測定する。このため, 上層, 中層および下層, それぞれの相互効果を考慮することができず, ^{60}Co および ^{137}Cs のように下層における濃度を過大評価することがあり得る。したがって, 上層, 中層および下層, それぞれの相互効果を考慮して濃度分布を算出すれば, より正確に濃度分布が測定できるものと考えられる。

5. あとがき

帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布を非破壊的に測定するシステムを開発し、その機能試験を行った結果、本システムにより濃度分布が測定できることが確認された。しかしながら、高エネルギー側の γ 線を放出する ^{60}Co および ^{137}Cs の計数率が高い場合には、低エネルギー側の γ 線を放出する ^{85}Sr の計数率が測定しにくいこと、および土壌層を上層、中層および下層の3層に分割し、各層ごとに濃度分布を決定する本方法では、他の層からの影響のため濃度を過大評価する可能性があること等がわかった。したがって、検出器のエネルギー分解能の向上および各層の相互効果を考慮した濃度分布の算出等が今後改良すべき点と考えられる。

謝 辞

機能試験を実施する際、放射性水溶液の流入実験および土壌試料の採取等の作業に協力して頂いた環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室の大塚芳郎氏、武部慎一氏および古宮友和氏に感謝致します。

参考文献

- 1) 小川弘道, 大貫敏彦, 山本忠利, 和達嘉樹: JAERI-M 85-061 (1985)
- 2) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11, 275 (1976)
- 3) 大貫敏彦, 大塚芳郎, 小川弘道, 山本忠利, 鷲尾方一, 和達嘉樹: 保健物理, 19, 13 (1984)
- 4) H. BACHHUBER, K. BUNZL AND W. SCHIMMACH: Nucl. Technol., 59, 291 (1982)
- 5) E. M. ROMNEY, R. G. LINDBERG, J. E. KINNEAR AND R. A. WOOD: Health Phys., 45, 643 (1983)
- 6) 戸川隼人: "数値解析とシミュレーション", 共立全書, 55 (1976)
- 7) 野口正安: "γ線スペクトロメトリー", 日刊工業新聞社, 48, 214 (1980)

5. あとがき

帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布を非破壊的に測定するシステムを開発し、その機能試験を行った結果、本システムにより濃度分布が測定できることが確認された。しかしながら、高エネルギー側の γ 線を放出する ^{60}Co および ^{137}Cs の計数率が高い場合には、低エネルギー側の γ 線を放出する ^{85}Sr の計数率が測定しにくいこと、および土壌層を上層、中層および下層の3層に分割し、各層ごとに濃度分布を決定する本方法では、他の層からの影響のため濃度を過大評価する可能性があること等がわかった。したがって、検出器のエネルギー分解能の向上および各層の相互効果を考慮した濃度分布の算出等が今後改良すべき点と考えられる。

謝 辞

機能試験を実施する際、放射性水溶液の流入実験および土壌試料の採取等の作業に協力して頂いた環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室の大塚芳郎氏、武部慎一氏および古宮友和氏に感謝致します。

参考文献

- 1) 小川弘道, 大貫敏彦, 山本忠利, 和達嘉樹: JAERI-M 85-061 (1985)
- 2) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11, 275 (1976)
- 3) 大貫敏彦, 大塚芳郎, 小川弘道, 山本忠利, 鷲尾方一, 和達嘉樹: 保健物理, 19, 13 (1984)
- 4) H. BACHHUBER, K. BUNZL AND W. SCHIMMACH: Nucl. Technol., 59, 291 (1982)
- 5) E. M. ROMNEY, R. G. LINDBERG, J. E. KINNEAR AND R. A. WOOD: Health Phys., 45, 643 (1983)
- 6) 戸川隼人: "数値解析とシミュレーション", 共立全書, 55 (1976)
- 7) 野口正安: "γ線スペクトロメトリー", 日刊工業新聞社, 48, 214 (1980)

5. あとがき

帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布を非破壊的に測定するシステムを開発し、その機能試験を行った結果、本システムにより濃度分布が測定できることが確認された。しかしながら、高エネルギー側の γ 線を放出する ^{60}Co および ^{137}Cs の計数率が高い場合には、低エネルギー側の γ 線を放出する ^{85}Sr の計数率が測定しにくいこと、および土壌層を上層、中層および下層の3層に分割し、各層ごとに濃度分布を決定する本方法では、他の層からの影響のため濃度を過大評価する可能性があること等がわかった。したがって、検出器のエネルギー分解能の向上および各層の相互効果を考慮した濃度分布の算出等が今後改良すべき点と考えられる。

謝 辞

機能試験を実施する際、放射性水溶液の流入実験および土壌試料の採取等の作業に協力して頂いた環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室の大塚芳郎氏、武部慎一氏および古宮友和氏に感謝致します。

参考文献

- 1) 小川弘道, 大貫敏彦, 山本忠利, 和達嘉樹: JAERI-M 85-061 (1985)
- 2) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11, 275 (1976)
- 3) 大貫敏彦, 大塚芳郎, 小川弘道, 山本忠利, 鷲尾方一, 和達嘉樹: 保健物理, 19, 13 (1984)
- 4) H. BACHHUBER, K. BUNZL AND W. SCHIMMACH: Nucl. Technol., 59, 291 (1982)
- 5) E. M. ROMNEY, R. G. LINDBERG, J. E. KINNEAR AND R. A. WOOD: Health Phys., 45, 643 (1983)
- 6) 戸川隼人: "数値解析とシミュレーション", 共立全書, 55 (1976)
- 7) 野口正安: "γ線スペクトロメトリー", 日刊工業新聞社, 48, 214 (1980)

Table 1 Peak efficiency and energy resolution of detector

Detector number	Nuclide		⁸⁵ Sr	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co
	Energy	(keV)	514	662	1332
1	Peak efficiency	(%)	3.7	2.6	1.0
	Resolution	(%)	11.5	8.6	6.4
2	Peak efficiency	(%)	3.6	2.7	1.1
	Resolution	(%)	11.9	8.7	6.7
3	Peak efficiency	(%)	3.2	2.2	0.9
	Resolution	(%)	11.2	8.3	5.9
4	Peak efficiency	(%)	4.2	2.7	1.0
	Resolution	(%)	11.1	8.4	6.1
5	Peak efficiency	(%)	3.7	2.5	1.1
	Resolution	(%)	12.0	9.2	7.3
6	Peak efficiency	(%)	3.8	2.6	0.9
	Resolution	(%)	11.1	8.2	6.1
7	Peak efficiency	(%)	3.5	2.4	1.0
	Resolution	(%)	11.2	8.5	6.4
8	Peak efficiency	(%)	4.2	2.8	1.0
	Resolution	(%)	11.6	9.2	6.6
9	Peak efficiency	(%)	3.8	2.6	1.0
	Resolution	(%)	11.6	8.9	6.2
10	Peak efficiency	(%)	3.4	2.3	1.0
	Resolution	(%)	11.8	9.4	6.7
11	Peak efficiency	(%)	3.5	2.6	1.0
	Resolution	(%)	11.3	8.6	6.6
12	Peak efficiency	(%)	3.7	2.7	1.0
	Resolution	(%)	11.7	9.1	6.5

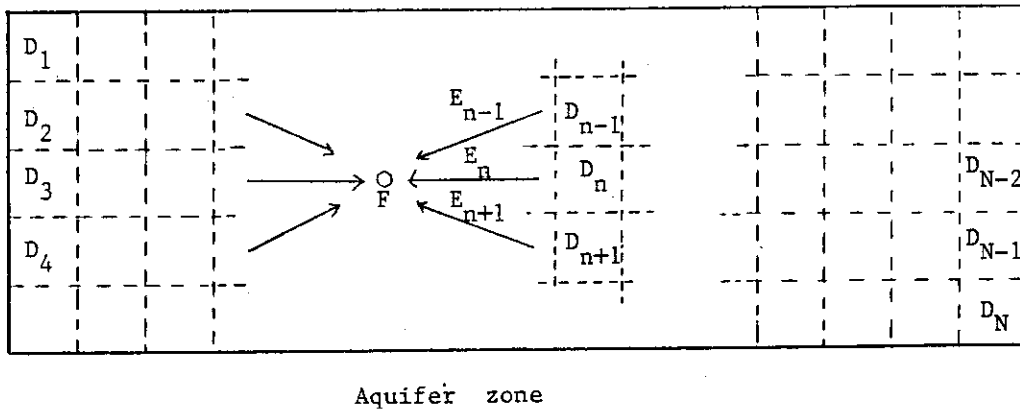


Fig. 1 Principle of measurement of concentration distribution

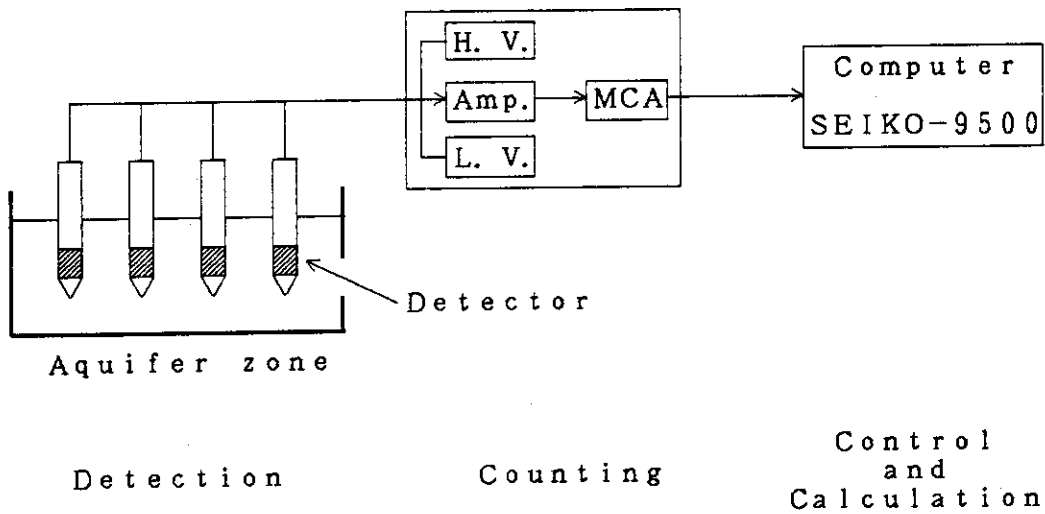


Fig. 2 Total composition of system

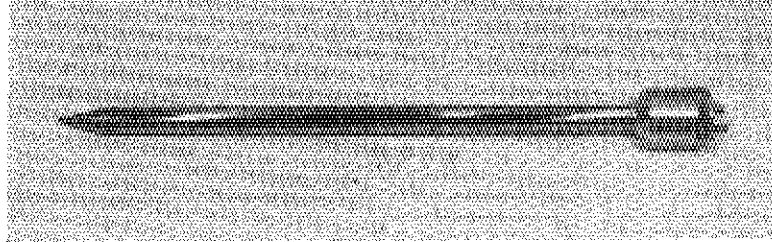


Fig. 3 Photograph of detector

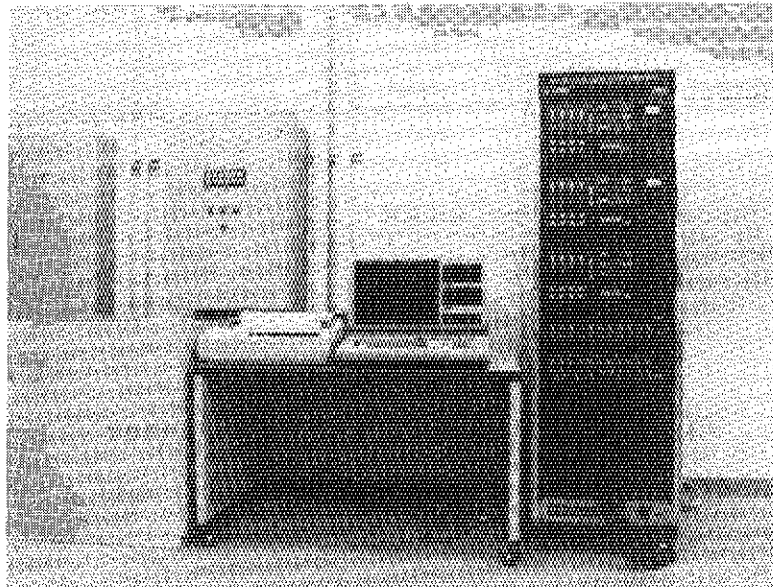


Fig. 5 Photograph of counter, controller and calculator

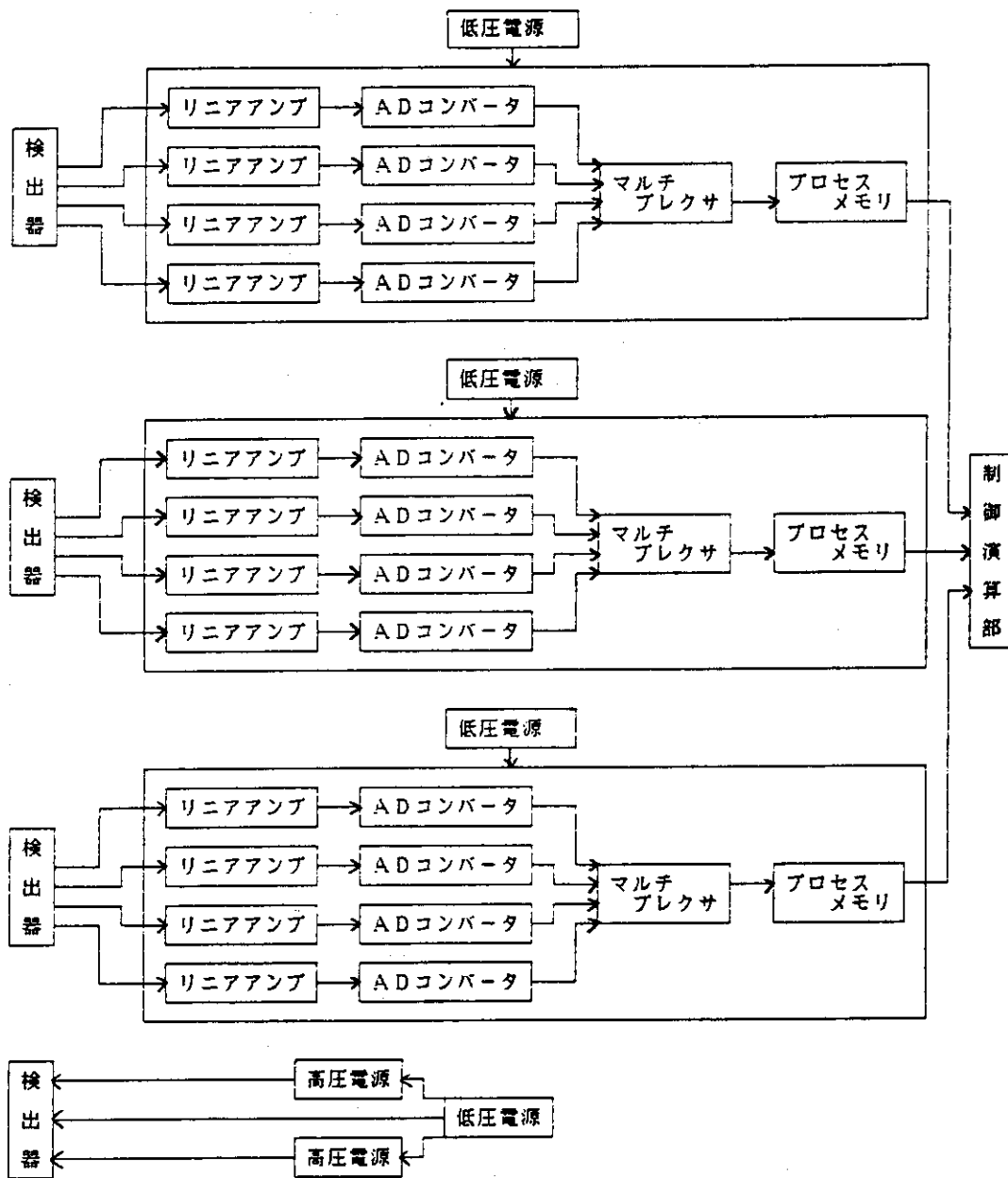


Fig. 4 Composition of counter

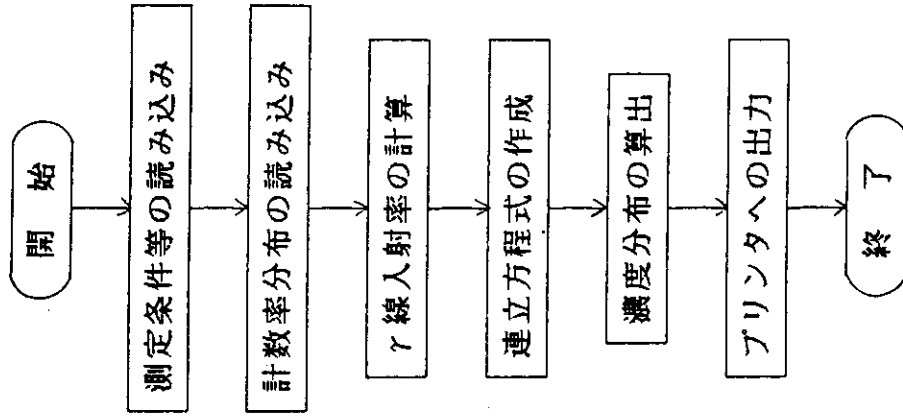


Fig. 7 Flow chart of analyzing program CONC

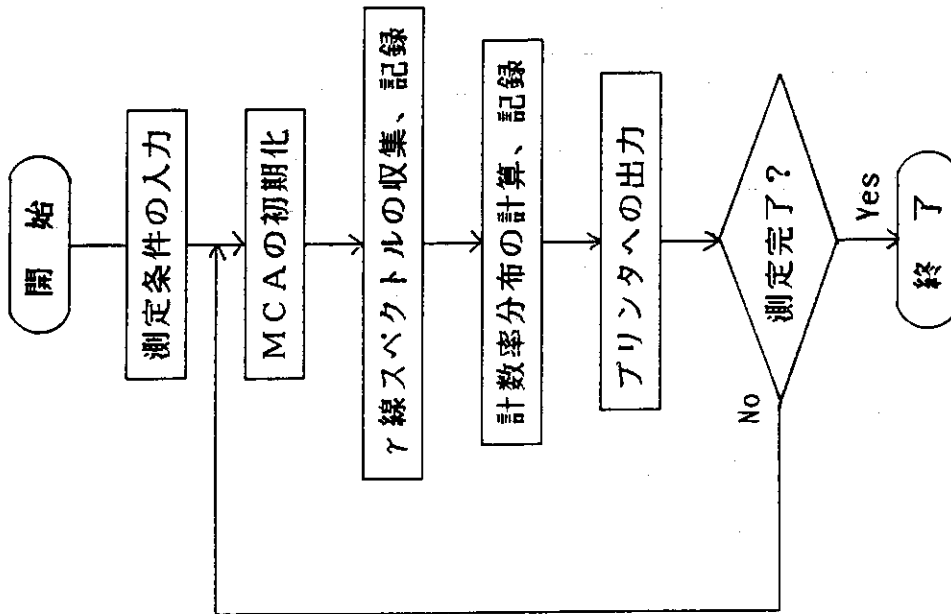


Fig. 6 Flow chart of data sampling program SAMPLE

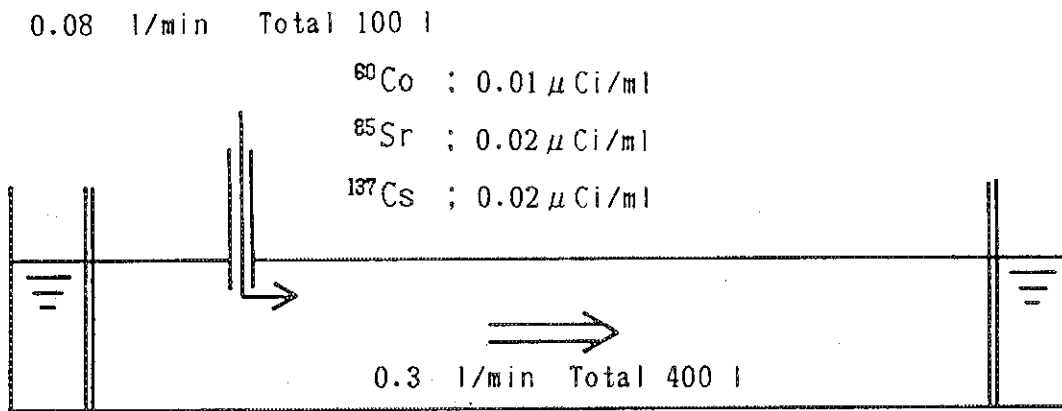


Fig. 8 Inflow of radioactive aqueous solution

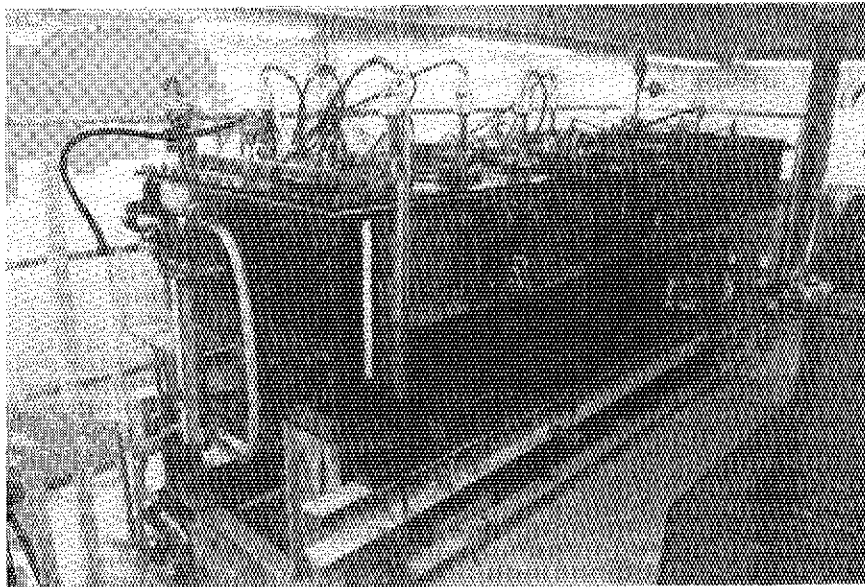


Fig. 9 Measuring aspect of counting rate

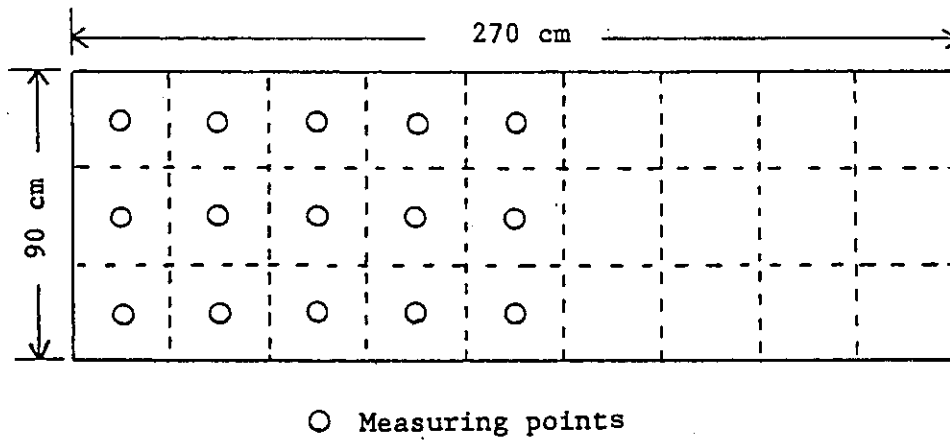


Fig. 10 Position of inserted detector (ground plan)

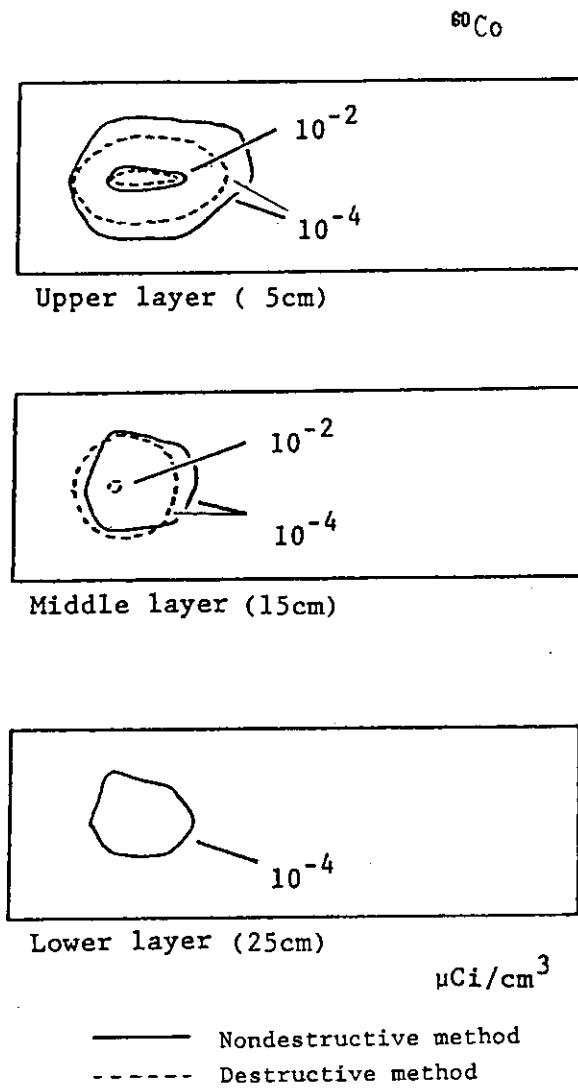


Fig. 11 Concentration distribution of ^{60}Co (ground plan)

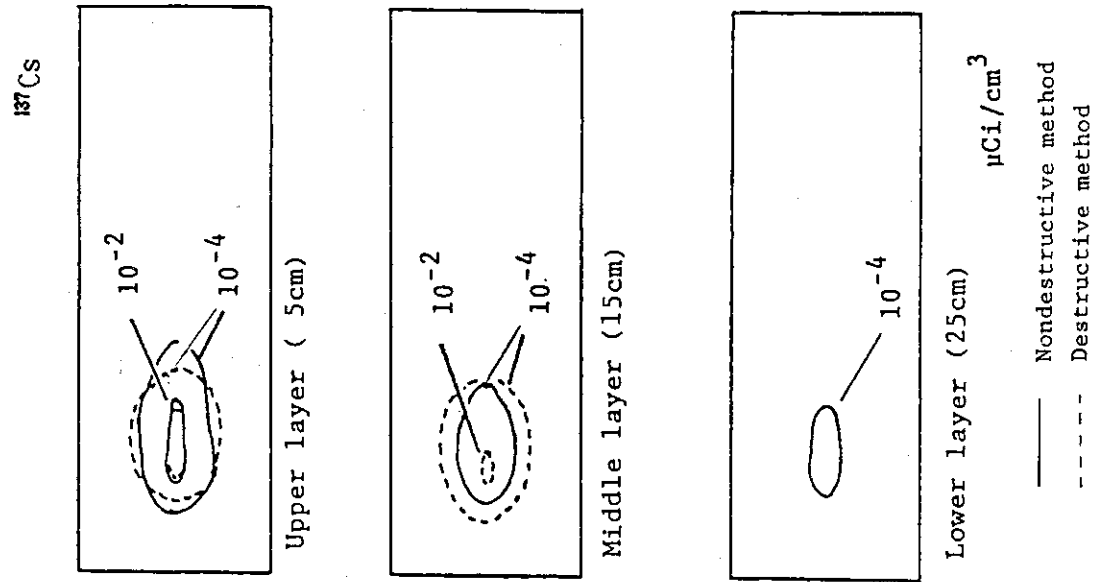


Fig. 13 Concentration distribution of ^{137}Cs (ground plan)

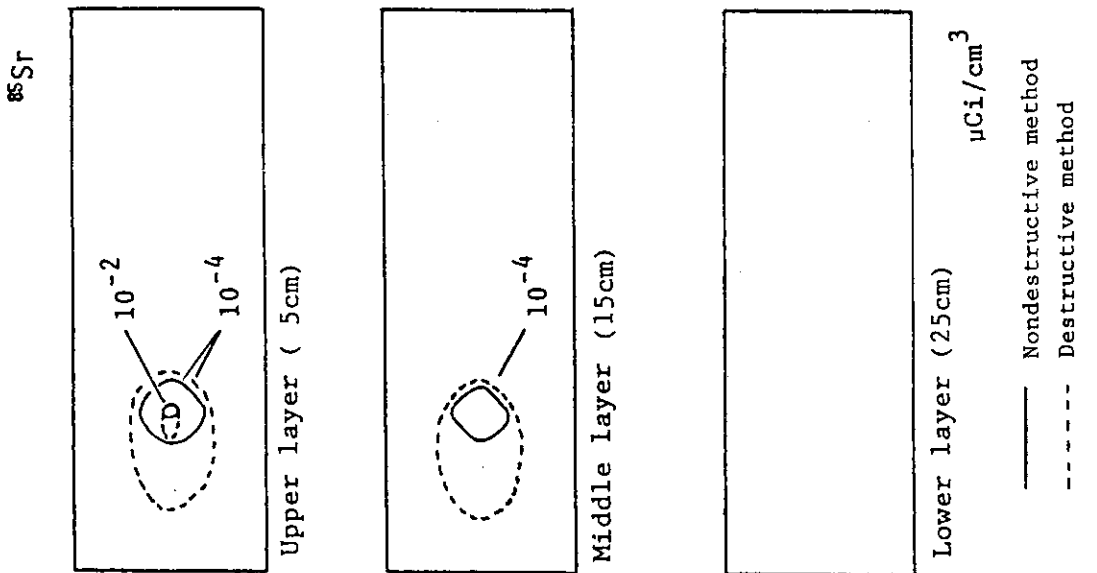


Fig. 12 Concentration distribution of ^{85}Sr (ground plan)