技術論文

TLD を用いた表面線量測定による ^{137}Cs の バーミキュライト塔内での移動の予測

小山昭夫*¹, 西牧研壮*¹, 筒井天尊*¹

(1984 年 7 月 16 日受理)

(1984 年 8 月 31 日再受理)

An Estimate of Migration of ^{137}Cs in a Vermiculite Column by Measuring the Surface Dose Rate with TLD

Akio KOYAMA,* Kenzo NISHIMAKI* and Tenson TSUTSUI*

The surface dose rate of the vermiculite column was measured during about two years with TLD to predict the migration of ^{137}Cs in the adsorbent layer. The vertical distribution of the surface dose rate was obtained from the data measured at intervals of five centimeter in vertical direction. From this dose rate distribution we estimated the length of the ^{137}Cs adsorbed layer and calculated K_f value and distribution coefficient K_d of ^{137}Cs using Inoue's method. And we calculated the surface dose rate of the vermiculite column considering the ^{137}Cs adsorbed layer as a volume source of a uniform activity distribution. For this calculation, we simplified the shape of the vermiculite column to triple layer cylinder. The core of this cylinder is vermiculite which is surrounded with rubber and mild steel shells. Broder's equation is used to calculate a build-up factor for multi-layer materials. The result of this calculation shows good agreement with the measured values with TLD, thus we can estimate the migration of ^{137}Cs in a vermiculite column by measuring the surface dose rate with TLD.

KEY WORDS : dose rate, vermiculite column, TLD, migration of ^{137}Cs , distribution coefficient, triple layer cylinder, build-up factor

I はじめに

京都大学原子炉実験所では所内で発生した放射性廃液を処理するため、凝集沈殿濾過処理装置、イオン交換処理装置、蒸発濃縮処理装置の三つの処理装置を有している。蒸発濃縮処理装置は処理能力 $0.5 \text{ m}^3/\text{hr}$ であり、中レベル放射性廃液（放射性物質濃度 $1 \sim 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ ）の処理に用いられている。 $10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以下の低レベル放射性廃液は、凝集沈殿濾過処理装置およびイオン交

換処理装置で処理されている。当実験所ではこれらの中低レベルの廃液について、濃度のみではなく、放射性物質の総量として放出管理を行っており、環境への放出を最小にするように努力している。イオン交換処理装置は、陽イオン交換塔、陰イオン交換塔の単床塔および混床塔よりなる有機イオン交換塔と、 ^{137}Cs 除去を目的としたバーミキュライト充填の無機イオン交換塔より構成され、それぞれ A, B 2 系列を有している。処理能力は各系列につき $5 \text{ m}^3/\text{hr}$ である。有機イオン交換塔は Na^+ 等の共存イオンが存在するとき、 ^{137}Cs の除去が十分ではなく、この場合に無機イオン交換塔を用いている。有機イオン交換塔は、塩酸と水酸化ナトリウムを用い再生使用するが、無機イオン交換塔は非再生で飽和すればバーミキュライトを交換する。バーミキュライト交

*¹ 京都大学原子炉実験所廃棄物処理設備研究部門；大阪府泉南郡熊取町（〒590-04）
Division of Waste Management, Research Reactor Institute, Kyoto University; Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka.

換の時期は ^{137}Cs が破過したとき, すなわち処理済液中に ^{137}Cs が検出されるときである。一般にイオン交換塔は耐圧容器となっており分解して内部のバーミキュライトをサンプリングするのは容易ではないので, 試料サンプリングにより ^{137}Cs の移動を知るのは困難である。しかし, 装置の保守管理上からは ^{137}Cs の移動と破過の時期をあらかじめ知る必要がある。このため, ^{137}Cs の破過の時期を予測することを目的として, 筆者らは, バーミキュライト塔の外壁に TLD 素子を上下方向に 5 cm 間隔で張りつけ, バーミキュライト塔の表面での照射線量 (表面線量) を測定した。

本報告は, バーミキュライト塔の表面線量の実測値と, バーミキュライトに吸着した ^{137}Cs を体積線源と見なして計算したバーミキュライト塔での照射線量とを比較し, バーミキュライト塔内での ^{137}Cs 吸着層の移動を予測する事の可能性について検討したものである。

II TLD によるバーミキュライト塔表面線量の測定

京都大学原子炉実験所で処理している放射性廃液中の ^{137}Cs 濃度は通常低レベルであり, したがって, バーミキュライトに吸着された ^{137}Cs によるバーミキュライト塔表面線量への寄与は小さく, バックグラウンドと同程度あるいはそれ以下である。このような低線量を測定でき, 小型で近距離間での線量分布の測定が容易な検出器として TLD を用いた。TLD 法は線量率の値を直示できないので, 一定期間の積分値として測定した。京都大学原子炉実験所に設置されているバーミキュライト塔は Fig. 1 に示すように内径 1,600 mm の軟鋼製堅型円筒で, 軟鋼の厚みは 6 mm であり, 内側には 4 mm の厚さにゴムライニングされている。バーミキュライトは無煙炭の支持層の上に 630 mm 充填されている。線量測定に用いた TLD 素子は松下電器産業株式会社製 UD-110 S であり, CaSO_4 系素子である。バーミキュライト充填層の上端より 10 cm 上を測定点 No. 1 とし, 下方向に 5 cm 間隔で No. 13 まで設置した。No. 13 は充填層下端より 13 cm 上である。

III バーミキュライト塔内での ^{137}Cs の移動

セシウムはバーミキュライトに対して特異吸着するといわれており¹⁾, また京都大学原子炉実験所の廃液受入れ水槽内の廃液を核種分析した結果より, セシウムの大部分は ^{137}Cs であることがわかっている。本研究では ^{137}Cs のみを考慮した。京都大学原子炉実験所においてバーミキュライト塔を用いて処理した廃液の量と

Fig. 1 Dimensions of the vermiculite column.

^{137}Cs 濃度を Table 1 に示す。表中で ^{137}Cs 濃度が示されていない場合は検出限界値以下であったことを示す。このような ^{137}Cs が含まれていない廃液は, 装置の定期的な試験運転のためバーミキュライト塔に通水したものである。 ^{137}Cs の測定は半導体検出器を用い, データ解析は計算機で行っている。 ^{137}Cs の検出限界値は同じ試料中に含まれている他の核種の影響などによって多少変動するが, 約 $1.8 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ である。また, バーミキュライト塔通水後の液の ^{137}Cs 濃度はすべて検出限界値以下であった。Table 1 に示す廃液を平均化して考えると, $4.72 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の廃液が 756 m^3 流れたことになる。

井上²⁾によれば, 吸着体中の放射性核種の移動は実時間 t を $T = (1/K_f) \cdot t$ と変数変換することにより水の移動と同じ式で表現できる。すなわち, 放射性核種は水に対して $1/K_f$ だけ遅れて移動する。ここに K_f は次式で与えられている。

$$K_f = 1 + \rho \cdot K_d \cdot (1-f)/f \quad (1)$$

f : 空隙率 [—]

ρ : バーミキュライトの密度 [g/cm^3]

K_d : 分配係数 [cm^3/g]

f および ρ についてはバーミキュライト塔に充填したものと同じバーミキュライトを用いて実測し, $f = 0.54$ および $\rho = 2.08 [\text{g}/\text{cm}^3]$ を得た。バーミキュライトへのセシウムの吸着には同族のアルカリ金属イオンが妨害イオンとして働くので, K_d はバーミキュライトだけではなく共存イオンの影響も受ける。バーミキュライト塔に通水する廃液は, その前に凝集沈殿ろ過処理されていることが多く, その際に凝集剤の塩化第二鉄や, pH 調整

Table 1 Volume and ^{137}Cs concentration of radioactive liquid waste treated by vermiculite column.

Number	Treatment	Volume (m ³)	^{137}Cs concentration ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)
1	V	17	7.98E-8
2	C V	22	2.22E-7
3	C I V	21	1.04E-7
4	V	21	9.01E-8
5	C V	24	7.29E-8
6	C V	32	2.88E-8
7	C V I	32	3.72E-8
8	C I V	31	—
9	C V	31	4.44E-8
10	C I V	15	—
11	C V	25	—
12	I V	34	1.02E-7
13	I V	45	—
14	C I V	11	2.49E-8
15	C I V	18	—
16	C I V	30	—
17	C I V	17	—
18	V I	9	9.32E-7
19	C V	7	2.46E-8
20	C I V	27	3.58E-8
21	C I V	5	—
22	V I	5	9.34E-7
23	C I V	21	—
24	C I V	33	—
25	C I V	28	—
26	C I V	22	—
27	C I V	16	—
28	C I V	19	5.99E-8
29	C I V	9	1.88E-8
30	C I V	22	4.14E-8
31	C I V	38	—
32	C I V	23	—
33	C I V	31	—
34	C I V	15	—
Total Mean		756	3.57E-05 Ci 4.72E-08 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$

Rem.: V, vermiculite column; C, coagulation and precipitation; I, ion exchange (organic resin).

剤の水酸化ナトリウムが鉄イオン濃度として 200 ppm なるように注入される。さらに凝集助剤として塩化カルシウム、炭酸ナトリウムが注入され、処理済廃液の全固形分は約 1,000 ppm なる。したがって、本研究では 1,000 ppm の NaCl 中での ^{137}Cs のバーミキュライトに対する分配係数 K_d 値を実測し、 $K_d=640$ を得た。これを(1)に代入して K_f の値を求めると $K_f=1,140$ となる。これらの値を用いて、井上の方法によりバーミキュライト中での ^{137}Cs の移動を推定すると次のようになる。まず 756 m³ の水は半径 796 mm 空隙率 0.54 の円筒中を 704 m 移動する。したがって ^{137}Cs は 704/1,140=0.62 m 進んだことになる。バーミキュライトに吸着した ^{137}Cs の濃度は $3.0 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{g}$ であり単位体積に換算すると $2.9 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ となる。

IV バーミキュライト塔の表面線量率の計算

バーミキュライト塔の表面線量率を計算するため、バーミキュライト塔の形を単純化して上下方向に無限長の三重円筒モデルを用いた。円筒の中心は半径 796 mm のバーミキュライトであり、その外側を厚さ 4 mm のゴムと、6 mm の軟鋼が囲んでいる。ある高さを基準面にとり、基準面より下方向の一定の長さのバーミキュライトに ^{137}Cs が吸着しているものとし、この部分を一様密度に ^{137}Cs を含んでいる体積線源と見なして、三重円筒の表面線量率を計算した。体積線源の微小部分を考え、この部分からの放射線による三重円筒の任意の部分の表面線量率は次式で与えられる。

$$D = (3.7 \times 10^4 \times 3.6 \times 10^3 / 7.1 \times 10) \cdot \times (Q \cdot \Delta V / 4 \pi L^2) \times B \cdot \exp \left(- \left(\sum_{i=1}^3 \mu_i \cdot L_i \right) \cdot (a \cdot E \cdot \mu_a) \right) \quad (2)$$

D : 表面線量率 [mR/hr]

Q : 線源強度 [$\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$]

ΔV : 体積素 [cm^3]

L : 線源から表面線量率を評価する場所までの距離 [cm]

L_i : L のうちの各媒体中での長さ [cm]

サブスクリプト 1 ~ 3 はそれぞれバーミキュライト、ゴム、軟鋼を表す。

μ_i : 媒体 i での線吸収係数 [cm^{-1}]

E : ^{137}Cs の放出する γ 線のエネルギー [MeV]

a : 上記 γ 線の放出率 [—]

μ_a : 空気の線エネルギー吸収係数 [cm^{-1}]

B : ビルドアップファクター [—]

μ_i および μ_a は文献³⁾中の表より、 ^{137}Cs の γ 線エネルギー

ギーに対する内挿値を求めた。パーミキュライトおよびゴムについては μ_i のデータが与えられていないので、これらの物質に含まれる元素の質量吸収係数の値に近い水の質量吸収係数と、それぞれの物質の密度とより計算した。また B は次に示す Broder の式により計算した。

$$B = B_1(\mu_1 L_1) + B_2(\mu_1 L_1 + \mu_2 L_2) - B_2(\mu_1 L_1) + B_3(\mu_1 L_1 + \mu_2 L_2 + \mu_3 L_3) - B_3(\mu_1 L_1 + \mu_2 L_2) \quad (3)$$

ここで B_i は各サブスクリプトの物質に対応するビルドアップファクターであり、次の Berger の式を用いて計算した。

$$B_i = 1 + c_i \cdot \mu_i \cdot L_i \cdot \exp(d_i \cdot \mu_i \cdot L_i) \quad (4)$$

c_i , d_i : 物質およびエネルギーによって異なる定数

パーミキュライトおよびゴムについては、 c_i , d_i が与えられておらず、 $c_i=1$, $d_i=0$ として計算した。三重円筒の表面線量率は(2)式を全線源部分について体積積分して求められる。

V 結果および考察

^{137}Cs 吸着層の長さが 3cm から 10cm 間隔で 63cm まで増加させた場合の、各測定点での表面線量率の計算値を Fig. 2 に示す。表面線量率の上下方向の変化は吸着層の中心の位置をピークとする上に凸な曲線となり、吸着層の長さが増加するにつれて表面線量率のピーク値は増加し、またピークの幅が広がっている。図中に、昭和57年1月12日から59年4月4日まで約2年間の集積線量の実測値を単位時間に換算したものも示す。

実測値は吸着層の長さが 43cm の場合の計算値の曲線にはば一致している。計算値の曲線は左右対称になっているので、実測値の各点を2次曲線にあてはめた回帰曲線を求めると、中心の位置はパーミキュライト層上端から 21.8cm となり、すなわち吸着層の長さが 43.6cm となる。実測値は測定期間中の集積線量を単位時間に換算したものであり、この測定期間中にもパーミキュライト塔に通水するごとに吸着層の長さは変化しており、実測値は測定期間中の平均的な値である。

この測定期間には、Table 1 に示した処理番号のうち、No. 25 から No. 34 の 10 回処理を行っており、処理量は 223 m³ である。これは全処理量の 29.5% にあたり、TLD による測定値が吸着層の移動の平均値を示しているものとすれば吸着層の先端は現在 43.6cm からさらに 14.7% 進み、50.0cm と計算できる。このように表面線量の測定期間中にも吸着層は移動するので、あまり長期間の集積線量を測定するのは適当ではない。測定期間が短すぎると測定の誤差が大きくなると考えられ

Fig. 2 Surface dose rate of each measuring point. ○ Measured values with TLD.

— Calculated dose rate curves assuming the ^{137}Cs concentration to be $2.9 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/cm}$. The length of ^{137}Cs adsorbed layer is from 3 to 63 cm. Calculated dose rate curve assuming the ^{137}Cs concentration to be $3.5 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/cm}$. The length of ^{137}Cs adsorbed layer is 43 cm.

るので、通水量を考慮に入れながら年2～3回測定するのが適当と思われる。

吸着層の長さ 50cm という値はIII章で予測した 62cm と 12cm の差が生じているが、この原因として次のようなことが考えられる。まず、Table 1 からわかるように、パーミキュライト塔に通水する前に凝集沈殿濾過処理を行っていない場合がある。また、凝集沈殿濾過処理後パーミキュライト塔に通水する前に有機イオン交換処理を行っていることも多く、このときに Na^+ 濃度が低下していると考えられる。これらの場合には K_d 値の測定を行った NaCl 1,000 ppm という条件は成り立たず、 NaCl の濃度が低くなれば K_d 値したがって K_f 値は大きい値を取り⁴⁾、 ^{137}Cs の移動速度は遅くなる。次に、(1)式は地下水のように水の流速が小さく、吸着剤と放射性核種との間が吸着平衡していることを前提としており、パーミキュライト塔の場合には流速が地下水と比較してかなり速く、この点に誤差の生じる可能性がある。さらに、通水した廃液中の ^{137}Cs 濃度は、約 $10^{-6} \mu\text{Ci/cm}^3$ から検出限界値 $1.8 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/cm}^3$ 以下のものまで分布しており、吸着層内での ^{137}Cs 濃度や ^{137}Cs の移動速度も平均化して計算したものと異なっていることが考えられる。このように、 K_d 値はさまざまな要因による影響をうけて値が変わるので、実廃液に対する K_d をあらかじめ正確に求めるのは困難であり、反対に実測により求めた吸着層の長さから(1)式を用いて平均的な

K_d 値を計算する方が現実的である。

TLD による線量測定値を基にして計算した吸着層の長さ 50cm を基にして(1)式から K_f 値および K_d 値を求めると、それぞれ 1,400 および 790 を得る。このとき吸着層中の ^{137}Cs の平均濃度は $3.7 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/g}$ 、単位体積当りに換算すると $3.5 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/cm}^3$ となる。この値と、バーミキュライト塔表面線量測定期間約 2 年間の平均的吸着層の長さ 43.6cm を用いて、表面線量を計算した結果を Fig. 2 に点線で示している。この曲線は、実線であらわした曲線のうち、 $H=43\text{cm}$ の曲線を y 軸方向に拡大したものにほぼ等しく、TLD の測定誤差が 20~30% であることを考慮すると、実測値とほぼ一致している。したがって、バーミキュライト塔の表面線量測定期間中の平均的な ^{137}Cs 吸着層の長さが 43.6cm、現在の長さ約 50cm という値はほぼ妥当なものと考えられる。

VI 結 論

^{137}Cs 処理の目的で設置されているバーミキュライト塔に放射性廃液を通水した場合、その ^{137}Cs 吸着層の移動状態を、TLD によるバーミキュライト塔表面線量測定値より予想することの可能性について検討した。本研究の結果得られたおもな知見は次のようなものである。

1. CaSO_4 系の TLD 素子による表面線量測定により、 $10^{-7} \mu\text{Ci/cm}^3$ 程度の低濃度の ^{137}Cs を含む放射性廃液を通水したバーミキュライト塔の ^{137}Cs 吸着層の移動状態を推定することができる。TLD を交換する頻度としては、TLD による測定可能な線量の下限値や、京都大学原子炉実験所でのバーミキュライト塔への通水量などを考慮すると、年 2~3 回が適当と思われる。

2. バーミキュライト塔内での ^{137}Cs の移動を井上の方法を用いて推定するためには、バーミキュライトに対

する ^{137}Cs の K_d 値を実測する必要がある。しかし、この値は共存するナトリウムイオンなどのアルカリ金属イオンの影響をうけるので、共存イオン濃度のデータがない場合には ^{137}Cs の移動を正確に推定することはできない。逆に TLD による表面線量の測定結果より、バーミキュライト塔に通水した廃液の平均的な K_d 値を求めると 790 を得る。これは 1,000 ppm NaCl について実測した 640 よりも大きいので、全廃液中に含まれている NaCl の平均値は 1,000 ppm よりも小さいと考えられる。

3. バーミキュライト塔の表面線量率は、内部の ^{137}Cs を吸着したバーミキュライトを体積線源と見なし、その外をゴムと軟鋼で囲んだ上下方向に無限長の三重円筒モデルで計算できる。

4. 京都大学原子炉実験所に設置されているバーミキュライト塔について、TLD による表面線量の測定結果より ^{137}Cs 吸着層の長さを推定すると、測定期間約 2 年間の平均的な値で 43.6cm であった。この吸着層の長さを体積線源として計算したバーミキュライト塔の表面線量値は、実測値と比較的よく一致した。

参 考 文 献

- 1) J.C. COLLINS; "Radioactive Wastes : Their Treatment and Disposal," p.120 (1960), John Wiley & Sons, New York.
- 2) 井上頼輝; "放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究", 京都大学学位論文 (1970).
- 3) 兵藤典典; "放射線遮蔽入門" (1966), 産業図書, 東京.
- 4) 西牧研壮; "放射性廃棄物陸地保管を目的とした放射性核種の地中での挙動に関する工学的研究", 京都大学学位論文 (1977).