土質系材料の放射線遮蔽性能の定量評価

吉川 絵麻¹・小峯 秀雄²・後藤 茂³・吉村 貢⁴・鈴木 聡彦⁵・
成島 誠一⁶・新井 靖典⁷・氏家 伸介⁸・佐古田 又規⁹・長江 泰史¹⁰

¹学生会員 早稲田大学大学院創造理工学研究科 (〒169-8555 東京都新宿区大久保3-4-1)

E-mail: e-ma@suou.waseda.jp

²正会員 早稲田大学教授 理工学術院 (〒169-8555 東京都新宿区大久保3-4-1)

E-mail: hkomine@waseda.jp

³フェロー会員 早稲田大学理工学研究所招聘研究員 (〒169-8555 東京都新宿区大久保3-4-1)

E-mail: shigeru.goto2462@gmail.com

⁴正会員 ソイルアンドロックエンジニアリング株式会社 (〒561-0834 大阪府豊中市庄内栄町2-21-1)

E-mail: yoshimura@soilandrock.co.jp

⁵正会員 ソイルアンドロックエンジニアリング株式会社 (〒561-0834 大阪府豊中市庄内栄町2-21-1)

E-mail: suzuki@soilandrock.co.jp

⁶正会員 西武建設株式会社 (〒359-8550 埼玉県所沢市くすのき1-11-2)

E-mail: s-narushima@seibu-const.co.jp

⁷正会員 西武建設株式会社 (〒359-8550 埼玉県所沢市くすのき1-11-2)

E-mail: yasunori-arai@seibu-const.co.jp

⁸正会員 株式会社ホーゲン (〒379-0133 群馬県安中市原市1433-1)

E-mail: s-ujie@hojun.co.jp

⁹非会員 株式会社ホーゲン東京営業所 (〒105-0004 東京都港区新橋1-18-14新橋MMビル4階)

E-mail: sakoda@hojun.co.jp

¹⁰正会員 株式会社テルナイト

(〒101-0051 東京都千代田区神田神保町3-2-3 Daiwa神保町3丁目ビル5階)

E-mail: nagae@telnite.co.jp

福島第一原子力発電所の事故以来、覆土式一時保管施設に代表されるように、土による直接的な放射線遮蔽が求められている。このような遮蔽用土構造物に対して、確実な施工管理を行うためには、土の状態を表す基本量を用いて放射線遮蔽性能を管理できることが望ましい。本研究では、覆土用土質材料および土質系充填材料を想定し、ガンマ線および中性子線透過量に対する土の基本量の関係について検討した。各土質材料の条件を変化させて透過線量を測定した結果、同一厚さの土のガンマ線低減率は湿潤密度に正比例し、中性子線低減率は体積含水率に依存することを明らかにした。また、上記に示した状態量に各放射線透過距離を乗じることで、ガンマ線および中性子線低減率に関する一義的な関係が得られることを示した。

Key Words : gamma ray, neutron beam, radiation shielding, wet density, volume water content

1. 研究背景

最大震度7を観測した2011年東北地方太平洋沖地震は、福島第一原子力発電所において深刻な事故を引き起こした。現在、事故後に発生した汚染瓦礫などの一部は、図-1に示す覆土式一時保管施設で保管されている¹⁾。遮蔽用覆土の層厚は1m以上と定められているが、現時点で

は材料特性に基づく乾燥密度や厚さなどの施工条件や放射線遮蔽性能などの覆土品質が明らかにされていない。

廃止措置を安全に遂行するためには、このような施設の構造物としての耐久性や強度などの品質、および放射線遮蔽性能の双方の確保が重要な課題である。

また現在、特に透過力が大きいガンマ線および中性子線遮蔽に有効である充填型土質系遮蔽材料が、燃料デブ

り取出しの補助材料として考案されている^{2,3)}。原子力災害対策本部による中長期ロードマップ⁴⁾によると、事故を起こした原子炉建屋の廃止措置において、原子炉建屋内の格納容器を水で満たしてデブリを取出す方法が検討されている。しかし、この工法では取出しに際して十分な冠水が行えない場合、放射線被爆や汚染水漏洩の観点で困難が生じる可能性が大きい。そこで、漏洩の危険性が低い超重泥水が考案された。放射線遮蔽および止水補助材料としての超重泥水の使用は、図-2に示すように、格納容器内を完全に満たす必要がない可能性がある。

以上のように、2011年の原発事故以来、放射線遮蔽材料としての土質材料の使用が求められている。特に現地の土質材料は、低コストで豊富に入手可能であることから、今後の廃止措置の進行に伴い需要がさらに増加していくことが予想できる⁵⁾。このような遮蔽用土構造物に対して確実な施工管理を行うためには、理論および実験的根拠に基づいた適切な仕様設計を行う必要がある。

従来、地盤工学において放射線技術は、盛土の現場密度試験などの施工管理に用いられてきた。しかし、土による放射線遮蔽という観点において研究された例は少ない。特に中性子線は、捕獲や散乱による二次ガンマ線の寄与、中性子の反応がエネルギーや物質によって複雑に変化するため、遮蔽設計方法も複雑となる^{6,7,8)}。

一方、現行のガンマ線遮蔽設計は、式(1)に示すLambert-Beerの法則に従う⁹⁾。

$$I = I_0 \exp(-\mu x) \quad (1)$$

ここで、 x は遮蔽体の厚さ、 I_0 は初期線量、 I は遮蔽体透過後に減衰した線量である。また、 μ は、遮蔽体が有する放射線強度の減衰係数である線吸収係数である。 μ は元素ごとのばらつきが大きいため、質量吸収係数(μ/ρ)を用いることが多い^{10,11)}。混合物の μ/ρ は、組成元素の重量割合に基づいて求められている。このように、土が有するガンマ線遮蔽効果は一概に断定することができず、Mannら^{12,13,15)}や Akbulutら¹⁴⁾によって自然土壌の質量吸収係数の調査が行われている。

しかし、原子力施設等で行われている質量吸収係数を用いた放射線遮蔽設計は、土質材料の施工管理に用いられる土の状態を示す基本量と関連付けられていない。土質材料を用いて適切な品質および遮蔽性能を確保するためには、施工管理の基盤である地盤工学の観点において放射線遮蔽性能を整理する必要がある。

本研究では、覆土用土質材料および土質系充填材料を想定して、土質材料の放射線遮蔽性能の実験的評価を行った。放射線遮蔽に大きく寄与する土の状態を示す基本量を明らかにするため、各材料の湿潤密度、含水比および厚さを変化させて透過線量を測定した。実験結果から、

図-1 覆土式一時保管施設¹⁾

図-2 原子炉建屋の模式図¹⁶⁾

同一厚さの土のガンマ線低減率は湿潤密度に正比例し、中性子線低減率は体積含水率に依存することを明らかにした。また、上記に示した状態量に各放射線透過距離を乗じることで、ガンマ線および中性子線低減率に関する一義的な関係が得られることを示した。

2. 放射線遮蔽施設に使用する想定土質材料

(1) 想定覆土用土質材料

本研究では、幅広い材料について検討するため、想定覆土用土質材料（以下、単に覆土用材料と呼ぶ）として砂である東北珪砂5号、シルトである昭和DLクレイ、粘性土であるクレイサンドおよび800℃で焼成処理された焼成関東ロームを用いた。東北珪砂5号および焼成関東ロームは、含水状態の差異による放射線遮蔽性能の相違を調査した。図-3に使用した覆土用材料の粒径過積曲線、表-1に覆土用材料の土質分類、土粒子の密度、塑性指数を示す。

(2) 覆土用材料の供試体作製方法

各覆土用材料の供試体作製方法を表-2に示す。供試体内部の粗密が均一になるよう、各試料の特性に合わせて異なる方法で供試体を作製した。

a) アクリル容器への充填

・アクリル容器側面からのタッピング

全試料を5回に分けてアクリル容器（内寸：縦300mm、横300mm、奥行100mm）に投入し、それぞれ投入後に容器の両面の透過面の外側から、奥・真中・手前

の三箇所を5回ずつハンマーで叩き、密度を均一化した。

- ・タッピングした試料への注水

タッピングにより作製した東北珪砂5号($w=0\%$)の供試体に対して、アクリル容器上部から注水することで、容器内の試料を飽和させた。

- ・突き固めによる容器への充填

含水比調整後の試料をアクリル容器に充填する。全試料を5回に分けて容器に投入し、所定高さに達するまで突き棒により突き固める。

b) 自立供試体の作製

1) 試料を仮容器で混練する際に、乾燥試料をふるいにかけて粒度調整を行って投入し、かつ適宜水分を加えて所定の含水比に調整する。

図-3 覆土用土質材料の粒径過積曲線

表-1 覆土用材料の基本物性

土質区分(呼称)	使用材料	土粒子の密度 ρ_s (Mg/m ³)	液性限界 (%)	塑性限界 (%)	塑性指数
砂	東北珪砂5号	2.746	NP	NP	NP
シルト	DLクレー	2.623	NP	NP	NP
粘性土	クレーサンド	2.667	48.9	25.3	23.6
粘性土	焼成関東ロームA	3.068	NP	NP	NP
粘性土	焼成関東ロームB	3.004	NP	NP	NP

表-2 各覆土用材料の供試体作製方法

試料状態	作製方法	試料名(条件)
アクリル容器への充填供試体	タッピング	東北珪砂5号($w=0\%$) 関東ロームA, B($w=0\%$)
	タッピング 試料への注水	東北珪砂5号(飽和)
	突き固め	関東ロームA, B($w=30\%$) DLクレー($w=30\%$)
自立供試体	突き固め	クレーサンド($w=30\%$)

2) 試料密度の均一化を図るために2.5 cm ごとの層を作製する。試料が自立するよう、締め固め密度が1.7 g/cm³ となるように、2.5 cm 分の質量の試料を測定して型枠に投入する。

3) 各層が2.5 cm になるように厚さを測定しつつ締め固めを行った。各層の締め固め面を荒らすことで試料の一体化を図る。

4) 試料を10 cm ごとに分解可能にするため、締め固め試料が10 cm に到達した時点で締め固め部分に紙を敷き、さらにその上から新たな層を作製した。

5) 試料が入った型枠を測定台の上に設置し、底となる一面以外の型枠を外す。土質材料のみになった時点で、各放射線透過線量を測定する。

6) 一定の厚さの測定が終わり次第、10 cm 厚さの供試体を撤去して各厚さにおける透過線量について測定する。

(3) 想定土質系充填材料

重泥水は、硫化バリウム鉱石の粉末を水と混合し、増粘剤としてベントナイトなどの添加剤を加えた高比重の粘土懸濁液である^{17,18)}。このような泥水は、地盤安定液として石油や天然ガス掘削の分野において開発されてきた。本研究では、比重2.5を超える、特に高比重の重泥水を超重泥水と呼ぶ。

本研究で用いる重泥水および超重泥水は、Na型ベントナイト懸濁液に、加重材であるバライトおよび、粘性の調整と安定を保つための分散剤であるピロリン酸ナトリウムを加えた泥水である。

ベントナイトは、モンモリロナイトが主成分であり膨潤性を有する粘土である。本研究では、米国ワイオミング州ビックホーン地域のNa型ベントナイト粉末(スーパークレイ:株式会社ホーゲン製)を用いた。バライト(テルバー:テルナイト株式会社製)はBaSO₄を主成分とする鉱石であり、高比重($\rho=4.209$ g/cm³)が特徴である。清水や各塩類溶液に対して不活性であることから、泥水の加重材として広く用いられる。表-3および表-4は、本研究で使ったNa型ベントナイトおよびバライトの材料特性を示す。

表-3 使用したNa型ベントナイト粉末の材料特性

土粒子の密度(g/cm ³)	2.621
モンモリロナイト含有率(%)	55
pH	9.2~10.2

表-4 使用したバライトの材料特性

粒子の密度(g/cm ³)		4.209
湿潤ふるい分析 残留分	+200 メッシュ(74 μm)	3%
	+325 メッシュ(44 μm)	5%

(4) 重泥水および超重泥水の作製および充填方法

重泥水および超重泥水の作製およびアクリル容器への充填方法を以下に示す.

- 1) 攪拌用容器に所定量の水道水を測り取る.
- 2) 所定の水道水を入れた攪拌容器に, ピロリン酸ナトリウムを添加し, 攪拌機を用いて 400~450rpm で 2 分間攪拌する.
- 3) 攪拌を行いながら, Na 型ベントナイトを添加し, 攪拌機により 400~450rpm で 2 分間攪拌する.
- 4) 攪拌を行いながらバライトを添加し, 400~450rpm で 2 分間攪拌する.
- 5) 作製した超重泥水をアクリル容器 (内寸: 縦 300 mm, 横 300 mm, 奥行 100 mm) に充填する. 充填時に気泡が混入した場合, 容器内で攪拌することにより空気を取り除く.

本研究では, 流動性を持つ範囲で目標比重 1.1, 1.8 の 2 種類の重泥水, および目標比重 2.5 の超重泥水を用いた. 重泥水および超重泥水の種類は, 上記の目標比重によって分類する. 以降, 試料・種類の区分に目標比重を用い, 「目標」の表記は割愛する. また, 上記の 3 種類の配合に, 中性子捕獲に有効であるホウ素の化合物, 五ホウ酸ナトリウムを添加した 3 種類の試料を用いた. 表-5 は本研究で使用した重泥水および超重泥水の配合を示す.

五ホウ酸ナトリウムの添加量は, 重泥水中および超重泥水中のホウ素水濃度が 8000 ppm となるように算出した. この値は, 福島第一原子力発電所における ^{235}U 濃縮度 5 wt% より推定された未臨界担保のための必要ホウ素濃度である¹⁹⁾.

(5) 供試体条件

実験に使用した各供試体条件の実測値を表-6 に示す. 重泥水および超重泥水は, 同配合の材料を用いてそれぞれ 2 回の測定を行った. また, 本研究で用いた体積含水率は, 試料を 24 時間 110°C の炉乾燥により求めた.

3. 検出放射線の性質

本実験では, ガンマ線および 3 種類の中性子線について土質系材料が有する遮蔽性能を評価した. 上記の放射線について性質を以下に示す²⁰⁾.

(1) ガンマ線

ガンマ線は周波数 $10^{19} \sim 10^{23}$ Hz 帯の電磁波であり, 間接電離性放射線の一種である. 福島第一原子力発電所の事故処理に対して考えられるガンマ線エネルギーレベルでは, 励起状態にある原子核のエネルギーが基底状態に

図-4 超重泥水(比重 2.5 超)

表-5 重泥水および超重泥水の配合(仕上がり 1 m³)

種類	水道水 (kg)	バライト (kg)	Na 型ベントナイト (kg)	五ホウ酸ナトリウム (kg)	ピロリン酸ナトリウム (kg)
比重 2.5	493	1972	34.5	0.0	0.99
比重 1.8	719	1007	71.9	0.0	1.4
比重 1.1	900	90	108	0.0	1.8
比重 2.5 +ホウ素	489	1955	34.2	21.4	0.98
比重 1.8 +ホウ素	707	990	70.7	30.9	1.4
比重 1.1 +ホウ素	869	87	104	38.0	1.7

表-6 供試体条件(実測値)

試料	条件	湿潤密度 (g/cm ³)	体積含水率 (%)
超重泥水 比重 2.5	ホウ素非含有	2.580	51.0
	ホウ素含有	2.580	50.4
重泥水 比重 1.8	ホウ素非含有	1.820	72.7
	ホウ素含有	1.820	71.5
重泥水 比重 1.1	ホウ素非含有	1.130	92.5
	ホウ素含有	1.140	90.1
DL クレー	w=30%	1.922	48.7
クレーサンド	w=30%	1.700	27.1
東北珪砂 5 号	w=0%	1.690	0.135
	飽和	2.013	32.3
焼成関東ローム A	w=0%	0.684	0.147
	w=30%	1.205	28.8
焼成関東ローム B	w=0%	0.952	0.0396
	w=30%	1.234	27.9

移行する過程で放出され, 物質を透過する際に接触する電子との相互作用によりエネルギーの一部または全てを電子に与える. 波長が極めて短く物質中を透過しやすいため, 特に遮蔽が重要とされる. ガンマ線と物質の相互作用には複数の型が存在するが, 本実験で用いるガンマ線源 ^{137}Cs のエネルギーにおいては, 図-5 に示すコンプ

トン散乱が生じる²⁰⁾。電子と相互作用する確率は原子が持つ軌道電子の数に依存する。

(2) 中性子線

中性子線は、原子核反応により放出された速度を持つ中性子であり、電荷を持たないため物質に対する透過力が高い。臨界を防ぐためのホウ素注入が万全ではない現状において、万一に備えて対策を講じることが必要である。また、燃料デブリの処理において、現在の位置から何らかの形、方法で移動させることになる可能性もあり、こうした現在想定できない事態に備える必要がある。中性子線は生体内で強い電離作用があり、被ばくのリスクが大きいことから、遮蔽が不可欠である。物質の相互作用においては、減速材の原子核との間で弾性散乱が生じることでエネルギーを減衰させるが、その挙動は粒子の運動速度により異なる。以下に本実験で扱う中性子線の区分について記述する。

a) 熱中性子線

物質中の原子核との衝突を繰り返し周囲の原子や分子と熱平衡状態に達した中性子は、その熱運動と同程度のエネルギー状態となり、それ以上減速しなくなる。このとき、常温における中性子線の平均速度は 2.2km/s である。この状態を熱中性子線(Thermal neutron beam)と呼び、この状態において物質による中性子捕獲が生じる可能性が大きい。燃料デブリの核分裂を抑制して放射線の総量

を低減するためには、中性子を減速し、さらに熱中性子を捕獲する必要がある。中性子捕獲の生じやすさは、物質固有の熱中性子吸収断面積(図-6)としてまとめられている²¹⁾。本実験で用いるホウ素は、水中に分散しやすいと共に、熱中性子吸収断面積が大きく、熱中性子吸収材として広く用いられている。

b) 高速～速中性子線

核分裂によって原子核から放出された直後に、真空中の光の速度の 1/3～1/20 で運動する中性子線のことを高速～速中性子線(Fast neutron beam)と呼ぶ。高い運動エネルギーを有しており、他原子による捕獲の確率が極めて小さい中性子線である。

c) 全中性子線

全中性子線(Total neutron beam)は、速度に因らず運動する全ての中性子粒子を指す。

4. 放射線遮蔽実験

(1) 実験条件

図-7 および図-8 は放射線遮蔽実験の様子である。本実験では、土質材料を充填したアクリル容器(内寸:縦 300 mm, 横 300 mm, 奥行 100 mm)を4個用意し、図-7 および図-8 に示すように配列することにより、遮蔽体厚さ 10 cm, 20 cm, 30 cm および 40 cm における透過線量を測定した。地表面による放射線反射作用の影響を受けないように土台(ベース)高さは底面から約 1 m に設置した。各線源をアクリル容器の放射線透過面中央に接するように設置し、線源位置から 500 mm の地点に固定した各検出器により透過線量の測定を行った。表-7 は放射線遮蔽実験の条件を示す。また、検出放射線について、表-8 および表-9 に本実験で用いた検出器と線源を示す。

図-9 および図-10 は放射線検出器の概要を示す。NaI(ヨウ化ナトリウム)シンチレーションは、光電子変換膜によってガンマ線を光電子に変換した後、光電子増倍管を用いて増倍された信号を計測することで放射線強度を測定する。³He(ヘリウム3ガス)比例計数管は、電離ガスとして³Heを充填した外筒と心線から成り立つ。³Heは中性子吸収断面積が大きく、熱中性子を吸収した³Heが3重水素、陽子および電子に変化する。陽子は陰極の外筒に、電子は陽極の心線に向かって運動し、その過程で他の³He原子に衝突して新たな電子が放出される。電場による加速によって衝突数が増加することで、電子数が加速的に増加するなだれ現象を利用して、外部の検出回路に信号パルスを発生させる。なお、高速中性子線は、検出器入射前に熱中性子まで減速させることで測定を行う。

図-5 コンプトン散乱

図-6 熱中性子吸収断面積²¹⁾

図-7 放射線遮蔽実験の概略図 (ガンマ線)

図-8 放射線遮蔽実験の様子 (ガンマ線)

表-7 放射線遮蔽実験の条件

装置配置	線源と検出器の間隔	500 mm
	線源と容器の間隔	0
	底面からの高さ	1000 mm
容器	板厚	10 mm
	透過面	$9.0 \times 10^4 \text{ mm}^2$ (300 mm × 300 mm)
	遮蔽体 (試料) 厚さ	100 mm/容器 1 個
	アクリル密度	1.190 g/cm^3
	容量	9 L
	個数	1~4 個

表-8 使用検出器

検出項目	サーベイメータ	検出器	測定範囲 (単位)
ガンマ線	TCS-172B (アロカ製)	NaI シンチレーション	B.G.*~30 ($\mu\text{Sv/h}$)
全中性子線	TPS-451C (アロカ製)	^3He 比例計数管	0.01~10000 ($\mu\text{Sv/h}$)
高速~速中性子線	ANDES (SRE 製)	^3He 比例計数管	0~655310 (cpm)
熱中性子	WARP (SRE 製)	^3He 比例計数管	0~655310 (cpm)

※B.G.: バックグラウンド値

表-9 使用線源

対象放射線	線源	放射能 (MBq)	線量* ($\mu\text{Sv/h}$)	エネルギー (MeV)
ガンマ線	^{137}Cs	3.68	1.13	0.662
中性子線	^{252}Cf	1.067	5.18	1.406

※線量は線源と検出器の距離が 500 mm のときの値。

図-9 NaI (ヨウ化ナトリウム) シンチレーションカウンタ

 図-10 ^3He (ヘリウム3ガス) 比例計数管

(2) 測定結果の整理方法

本実験においてガンマ線および全中性子線の強度は、人体の皮膚表面深さ 1 cm における放射線の影響度合いを示す 1 cm 線量当量 $\mu\text{Sv/h}$ で検出する。一方、熱中性子線および高速~速中性子線は 1 分間あたりに計測される放射線の個数を示す計数率 cpm (count per minute) で検出される。このように、異なる単位で計測された放射線強度を比較するにあたり、得られた測定値を適切に整理する必要がある。また、線源として用いる放射性物質は壊変により放射能が減衰しているため、長期にわたる実験データの比較が困難である。本研究では、上記の問題を解決するため、土質材料のガンマ線および中性子線遮蔽性能を評価する指標として、後述の放射線低減率を用いた。アクリル容器を透過した放射線のうち、さらに遮蔽体を通過した割合を R とすると、放射線低減率 R_{rad} は式 (2) で示される^{22), 23), 24)}。

$$R_{rad} = (1 - R) \times 100 = \left(1 - \frac{I_x - I_{B.G.}}{I_{x0} - I_{B.G.}} \right) \times 100 \quad (2)$$

ここに I_x は試料を厚さ x cm 充填した状態の透過線量、 I_{x0} は試料の厚さ x cm 分の空容器の透過線量、 $I_{B.G.}$ はバックグラウンドの線量である。

測定にアクリル容器を使用しないクレーサンドの自立供試体に関しては、 I_{x0} に代わり表-4 に示す遮蔽体無しの際の線量を用いた。式(2)に示した放射線低減率 R_{rad} は、測定時の線源の放射能の大きさに因らず、容器による線量低減効果を排除しており、土質系材料の放射線遮蔽性能を端的に示す指標である。放射線低減率 R_{rad} が 100% のとき、遮蔽体を透過した放射線が 0 であることを示す。

5. 土の基本量による放射線遮蔽性能の評価

(1) 湿潤密度によるガンマ線遮蔽性能の評価

実験に用いたガンマ線のエネルギーにおいては、ガンマ線と物質の相互作用はコンプトン散乱のみといてよいほど優勢であり、ガンマ線のエネルギーは物質を透過する際に生じる軌道電子との衝突によって減衰する。したがって、ガンマ線の線量低減割合は、透過物質中の電子の存在度に依存すると考えられる。同一厚さの物質において、電子の存在度に相当する状態量は試料全体の平均密度であり、土質材料における湿潤密度に当たる。図-11に土中のガンマ線の挙動を示す。

遮蔽体厚さ 10 cm におけるガンマ線低減率と湿潤密度の関係を図-12に示す。図-12より、厚さ 10 cm の土質材料の湿潤密度に対してガンマ線低減率が正比例的に増加することが確認できる。本実験で用いた土質材料は、主成分が BaSO_4 , SiO_2 など、異なる元素で構成されるが、低減率の誤差は微小であることが確認できる。したがって、土質材料のガンマ線遮蔽性能は、土の組成に因らず、湿潤密度により評価できることが明らかとなった。

(2) 体積含水率による中性子線遮蔽性能の評価

熱的なエネルギーレベルで中性子線の実体は粒子であり、弾性体としての古典力学に従う。運動量保存の法則より、中性子線の減衰(運動エネルギーの低下)は中性子と質量がおおむね等しい水素原子(核)、つまり陽子との

図-11 土質材料中のガンマ線の挙動

図-12 ガンマ線低減率と湿潤密度の関係

弾性衝突が最も効果的であり、熱中性子レベルまで減速した中性子は、他の原子核に吸収される確率が大きくなり、遮蔽効果が発現される²⁹⁾。図-13に土中の中性子線の挙動を示す。

図-14、図-15 および図-16 は水素原子の存在度を水分子の体積割合として捉えて、遮蔽体厚さ 10 cm における各中性子線低減率を体積含水率で整理した結果である。

図-14 は熱中性子線低減率と体積含水率の関係を示す。重泥水および超重泥水と覆土用材料(東北珪砂5号、焼成関東ローム)は異なる低減傾向を示した。重泥水および超重泥水の熱中性子線低減率と体積含水率には、正の相関性が認められる。また、熱中性子吸収断面積が大きいホウ素を含有する重泥水および超重泥水は、非含有の試料に比べて70%程度大きい低減率を示した。一方、東北珪砂5号および焼成関東ロームにおいて、体積含水率30%付近の試料は負の熱中性子線低減率を示した。これは、線源を設置しない自然環境下よりも熱中性子線の線量が増加したことを意味する。熱中性子線増加の原因として、高速中性子が土質材料中の原子、特に水素原子核と弾性衝突することにより熱中性子に変化し、その増加分が熱中性子の低減よりも上回ったためと考えられる。

また、図-14 から、ホウ素などの熱中性子捕獲を起こす物質を添加していない土質材料は、遮蔽体厚さ 10 cm において体積含水率が50%未満であるとき、その熱中性子線低減率は0%付近に留まった。この原因としても、高速中性子の熱中性子化による見かけ上の低減率低下が考えられる。

図-15 は高速～速中性子線低減率と体積含水率の関係を示す。土質材料の高速～速中性子線低減率は、おおむね体積含水率に依存することが分かる。しかし、同等の体積含水率を有する土質材料であっても、東北珪砂および関東ロームの高速～速中性子線低減率に差異が存在する。上記の2種類の土質材料は、強熱減量試験により工学的水分以外の水分、つまり電気的拘束水や結晶水を有さないことが確認されており、水素原子密度は体積含水率によって表せる。したがって、低減率に差異が生じる原因のひとつとして、覆土用土質材料の疎密に関する不均一性が挙げられる。また、東北珪砂5号および焼成関東ロームは体積含水率0-0%において10%~30%程度の低減率を有することから、光速に近い速度で運動する中性子は、水中の水素原子以外の原子核との衝突においてもある程度のエネルギー減衰を引き起こすことが分かる。このとき、中性子は2.2 km/s以下に減速しており、その速度変化は運動量保存則に従い、中性子粒子と土粒子を構成する原子との質量差に影響されると考えられる。

図-16 は全中性子線低減率と体積含水率の関係を示す。図-15と同様に、材料の体積含水率の増加に伴い中性子線低減効果が大きくなる傾向が確認できる。ここで、全

中性子線の低減率は、全体的な変動幅が大きい。これは全中性子線計測に適用した中性子サーベイメータの測定対象エネルギー範囲が $0.025\text{eV}\sim 15\text{MeV}$ と極めて広いため、相対的に分解能が低いこと、また、放射中性子線束が小さい微弱線源を適用したために現実的な時間で計測できる時定数では十分でないことによると考えられる。

齋藤ら²⁶⁾や Komine²⁷⁾による重泥水および超重泥水の放射線遮蔽実験では、線源と検出器の距離を本研究よりも短い 150 mm に設定しており、遮蔽体厚さ 10 cm において全中性子線低減率が体積含水率 $\theta=50\sim 100\%$ の間で正比例する結果が得られた。

以上から、各速度における中性子線低減率は覆土用材料や泥水などの材料形態によらず、おおむね体積含水率に依存する傾向があることが分かった。しかし、体積含水率が小さい遮蔽材料においては、他の要因による中性子線遮蔽への影響が顕著であると考えられるため、土の性質が中性子線の低減に与える影響を明確にする必要がある。

6. 土質系充填材料の厚さに伴う放射線低減率

土質系充填材料である重泥水および超重泥水を用いて測定した遮蔽体厚さの変化に伴う放射線低減率を図-17、図-18、図-19 および図-20 に示す²³⁾。各低減率の値は、測定データ($n=2$)の平均値を示す。

図-17 より、厚さに伴うガンマ線低減率の大小関係は、図-12 に示したガンマ線低減率と湿潤密度の関係に従った。遮蔽体厚さの増加に伴い、湿潤密度による差異が徐々に小さくなることから、透過距離の増加によるガンマ線の低減が顕著であることが示された。また、厚さが 40 cm のとき、超重泥水比重 2.5 および重泥水比重 1.8 による低減率が 100% に近い値を示す一方、重泥水比重 1.1 および水道水による遮蔽では低減率 90% 未満を示した。本研究によって、いずれの比重の重泥水および超重泥水も、水道水より優れたガンマ線遮蔽性能を有するという、これまでの放射線に関する知見を検証することができた。

図-18 から、ホウ素含有と非含有の重泥水および超重泥水において、厚さの変化に伴い異なる低減挙動が確認された。ホウ素による熱中性子線の遮蔽は、特に遮蔽体厚さが小さいときに有効である。また、厚さ 10 cm において確認できるホウ素の有無による差異は、厚さ増加に伴い徐々に小さくなった。これは、熱中性子線の遮蔽には、粒子の捕獲が有効であるが、捕獲が生じない場合でも原子核との衝突により運動方向が変化するため、遮蔽体の厚さ増加とともに検出器に到達する個数が減少したと考えられる。したがって、点線源の直線上においては、

図-13 土質材料中の中性子線の挙動

図-14 熱中性子線低減率と体積含水率の関係

図-15 高速～速中性子線低減率と体積含水率の関係

図-16 全中性子線低減率と体積含水率の関係

距離を十分に設けることで、ホウ素による中性子の捕獲を行わずとも遮蔽が可能であることが示された。また、

水道水と比較すると、ホウ素含有の重泥水および超重泥水の熱中性子線低減率が大きく、ホウ素非含有の重泥水および超重泥水の熱中性子線低減率が小さいことが明らかとなった。

図-19 は、高速～速中性子線と遮蔽体厚さの関係を示す。中性子と物質との相互作用は原子核との弾性衝突が主であることから、弾性衝突が生じる確率および散乱は中性子の運動経路上の原子核密度に依存する。この確率は古典統計に基づいており、中性子線源と検出器を結ぶ直線に対して遮蔽体厚さが増加すれば、確率は指数関数的に大きくなる。したがって、蔽体厚さの増加に伴い検出器に到達する中性子が 0 に近づくため、土質系材料の水素原子密度による遮蔽性能の差異が減少する。また、高速～速中性子線の低減に、ホウ素含有の影響がほとんど存在しないことが認められる。

図-20 より、体積含水率の相違による全中性子線低減率の差は微小であり、超重泥水はおおむね水道水と同等の性能を示した。

以上から、放射線量の減衰に関して、物質の湿潤密度および体積含水率と共に、放射線の透過距離が重要な要素であることが示された。ここで、図 18～図-20 より、固相が多い重泥水および超重泥水ほど、水道水よりも低減率が小さい。これは、単位容積あたりの水素原子の数を示す体積含水率の相違に起因する。したがって、本材料を放射線遮蔽材料として使用するにあたり、ガンマ線遮蔽と中性子線遮蔽の優先性を考慮する必要がある。また、東北珪砂 5 号を用いた同実験においても、厚さの変化に伴う低減率の挙動は同様であることが確認された。

7. 土の基本量を用いた遮蔽設計の試み

前章までに述べた内容では、放射線遮蔽のメカニズムと土構造物の施工管理に用いる土の基本量を関連付けた。本章では、本研究で得た土質系材料の放射線遮蔽実験結果から、要求される放射線遮蔽性能をもとに覆土の層厚や超重泥水の配合を決定する土構造物の放射線遮蔽設計を試みる。

(1) 総透過密度によるガンマ線遮蔽性能の評価

土の状態を表す基本量を用いた遮蔽設計を行うにあたり、全ての土質系材料について各放射線低減率と一義的な関係にある物理量を特定する。そこで、ガンマ線が透過した全ての物質に関して、湿潤密度に厚さを乗じた値の総和を“総透過密度”として定義する。総透過密度は、ガンマ線が厚さ x cm の土質系材料を透過する際に衝突する電子の存在度を表す関数である。図-21 は、ガンマ線低減率と総透過密度の関係を示す²⁴⁾。総透過密度に伴

図-17 ガンマ線低減率と遮蔽体厚さの関係

図-18 熱中性子線低減率と遮蔽体厚さの関係

図-19 高速～速中性子線と遮蔽体厚さの関係

図-20 全中性子線低減率と遮蔽体厚さの関係

うガンマ線低減率の変化は、式(3)のように近似($R^2=0.991$)することができる。

$$R_{rad} = \{1 - \exp(-0.05\rho_t x)\} \quad (3)$$

ここに、 ρ_t : 遮蔽体の湿潤密度

x : 遮蔽体距離

このように、構成元素の異なる粘土、シルト、砂、重泥水および超重泥水のガンマ線遮蔽性能が、ある指数関数により一括して表現できることから、土構造物による遮蔽設計では土粒子の構成元素ごとに線吸収係数を考慮する必要が無く、ひとつの設計手法が適用できると考えられる。

ここで、環境省が設定する人体への追加被曝許容線量は $0.23 \mu\text{Sv/h}$ であり、そのうち $0.04 \mu\text{Sv/h}$ が自然由来のガンマ線である。したがって、遮蔽材料から透過が許容される線量値は $0.19 \mu\text{Sv/h}$ となる²⁸⁾。本研究結果より、 ^{137}Cs によるガンマ線量と透過許容線量から必要低減率が R_{rad} として算出できるため、遮蔽対象物が放出するガンマ線量が既知であるならば式(2)および(3)より設計に必要な未知数が算出できる。図-22 にガンマ線遮蔽設計のフローチャートを示す。

以上から、ガンマ線の線量低減割合は土質材料の湿潤密度に透過距離を乗じた総透過密度に依存することが明らかになった。ここで、長期間にわたる廃止措置ならびに放射性廃棄物の保管において放射線遮蔽材料は使用期間中にその機能を維持することが必要とされる。土は土粒子、間隙水および間隙空気で構成される複合体であるため、土の水分量が変化すると湿潤密度が変化する。土の水分は大気湿度や温度に依存して容易に変化するため、土の状態を考慮した放射線遮蔽性能の評価が重要になる。また、土構造物の施工管理においては、湿潤密度よりも乾燥密度を用いる場合が多く、放射線遮蔽を目的とした土構造物を設計する際には、湿潤密度と乾燥密度の双方におけるガンマ線遮蔽性能を把握する必要がある。

本研究は ^{137}Cs を線源として用いた結果であるため、覆土式一時保管施設のような ^{137}Cs による汚染瓦礫の管理施設への適用は有意であると考えられる。しかし、超重泥水の導入を想定した原子炉建屋では、原子炉压力容器の外側で $70\sim 80 \text{ Sv/h}$ の放射線量率が計測されている(東京電力、平成 29 年 7 月)²⁹⁾。実際の压力容器中心、あるいはデブリがあるとされる格納容器底部においては、この値をはるかに超えると考えられる。本研究の実験環境は、最大 $1 \mu\text{Sv/h}$ の線量当量率であるため、現実の 1 億分の 1 以下のレベルである。したがって、燃料デブリ付近など高線量、高エネルギー下を想定して土の遮蔽性能を算出するためには、異なる線量およびエネルギー条件の実験結果を用いて外挿を行う必要がある。

図-21 ガンマ線低減率と総透過密度の関係

図-22 ガンマ線遮蔽設計フローチャート

(2) 総透過水分密度による中性子線遮蔽性能の評価

全土質系材料が示す中性子線低減率と一義的な関係にある物理量を特定するため、中性子線が透過した全ての物質の水分密度 ρ_m (体積含水率/100× ρ_w) に厚さ x cm を乗じた値の総和を“総透過水分密度”として定義する。総透過水分密度は中性子線が厚さ x cm の材料を透過する際に衝突する水分子の存在度を表す。

図-23、図-24 および図-25 は各中性子線低減率と総透過水分密度の関係を示す。全体的に総透過水分密度に依存する傾向は認められるが、土質系材料の種類ごとにばらつきを示した。また、図-23、図-24 および図-25 から、総透過水分密度 0 g/cm^2 付近の東北珪砂 5 号の乾燥試料は、他と異なる挙動を示した。それぞれのプロットは、低減率が小さい方から順番に厚さ $x=10 \text{ cm}, 20 \text{ cm}, 30 \text{ cm}$ および 40 cm である。東北珪砂 5 号は、間隙水や吸着水による水素原子を有していないにもかかわらず、遮蔽体厚さの増加に伴い検出器に到達する中性子が減少している。したがって、ここで生じた低減は、中性子に減速や吸収

ではなく、水素原子よりも重い原子核と衝突することで生じた散乱に起因すると考えられる。放射線低減率と散乱に関しては、今後の研究において実験的調査を行う。全試料におけるばらつきの大部分は、既に5章や6章で示した理由で説明できる。

以上より、土が有する中性子線遮蔽性能は主に含水量が支配的であることから、長期的変化に関しては各土質材料の水分保持力の調査が不可欠である。また、中性子線は水素原子の形態に因らず作用するため、地盤工学分野で一般的に扱う工学的水分(110℃で24時間乾燥)に限らず、強熱減量水分に関しても検討する必要がある。

8. まとめ

本研究では、覆土用土質系材料および充填型放射線遮蔽材料として考案された超重泥水のガンマ線遮蔽性能および中性子線遮蔽性能を評価することで、次の結論を得た。

- 1) 遮蔽材料が同じ厚さの場合、ガンマ線低減率は土質材料の湿潤密度に第一次近似として正比例することが示された。また、ガンマ線低減率は、湿潤密度に厚さを乗じた値の総和である総透過密度に一義的に依存した。以上から、土構造物のガンマ線の遮蔽性能は、土の種類や土粒子の構成元素ごとの線吸収係数に因らず、施工条件によって一様に評価できることが明らかとなった。
- 2) 遮蔽材料が同じ厚さの場合、各中性子線低減率は土質材料の体積含水率に伴い増加する傾向が認められた。また、各中性子線低減率は水分密度に厚さを乗じた値である総透過水分密度に依存する傾向があった。しかし、複数のエネルギー減衰現象が生じることで、材料ごとの差異やばらつきが生じた。
- 3) 厚さ10cmにおいて、ホウ素を含有する重泥水および超重泥水は、含有しないものに比べて70%程度大きい熱中性子低減率を示した。しかし、遮蔽体厚さが増加するに従い、ホウ素含有の有無による差は減少した。したがって、熱中性子の遮蔽には、中性子捕獲と同時に、十分な距離を設けることが有効である。
- 4) 本研究では、土質系材料の遮蔽による放射線量の変化を実験的に評価し、具体的な数値として示した。実験で得られた土質系材料の放射線遮蔽性能を覆土材や超重泥水の施工条件と関連付けることで、設計に活用する方策を提案した。

図-23 熱中性子線低減率と総透過水分密度の関係

図-24 高速～速中性子線低減率と総透過水分密度の関係

図-25 全中性子線低減率と総透過水分密度の関係

謝辞: 本研究の一部は、文部科学省「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」の採択課題「福島第一原子力発電所構内環境評価・デブリ取出しから廃炉までを想定した地盤工学の新技术開発と人材育成プログラム(地盤工学会)」の支援により得られたものである。ここに感謝いたします。

参考文献

- 1) 東京電力株式会社：福島第一原子力発電所覆土式一時保管施設の増設について 2013, <https://www4.tepco.co.jp/news/2013/images/131211c.pdf> (閲覧日：2017 年 7 月 7 日)。
- 2) 氏家伸介, 長江泰史, 成島誠一, 新井靖典, 稲元祐二, 水野正之, 佐古田又規, 齋藤祐磨, 小峯秀雄：変形追従型放射線遮蔽材の開発, 第 11 回環境地盤工学シンポジウム論文集, pp. 471-478, 2015.
- 3) 稲元祐二, 成島誠一, 長江泰史, 水野正之, 氏家伸介：高比重変形追従材を用いた放射能汚染貯蔵技術の開発, 第 11 回地盤工学シンポジウム論文集, 2015.
- 4) 原子力災害対策本部：東京電力(株)福島第一原子力発電所 1~4 号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ 2015, http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images/t120730_02-j.pdf (閲覧日：2017 年 6 月 9 日)。
- 5) 福島県原子力発電所安全確保技術連絡会安全対策部会：東京電力株式会社福島第一原子力発電所における覆土式一時保管施設の増設に関する協議結果 2015, <https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/79422.pdf> (閲覧日：2017 年 6 月 9 日)。
- 6) 原子力安全技術センター：放射線施設のしゃへい計算実務マニュアル, 公益財団法人原子力安全技術センター放射線障害防止法出版物編集委員会, pp. 1-28, 2015.
- 7) Ochbelagh, D. R., Hakimabad, H. M. and Najafabadi, R. I.: The investigation of Am-Be neutron source shield effect used on landmine detection, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 577, pp. 756-761, 2007.
- 8) Elsheikh, N., Habbani, F. and Elagib, I.: Investigations of shield effect and type of soil on landmine detection, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 652, pp. 1-4, 2011
- 9) 兵藤智典：放射線遮蔽入門 第二版, pp. 130-131, 産業図書, 1979.
- 10) 日本アイソトープ協会：アイソトープ手帳, pp. 1-196, 丸善出版, 2011.
- 11) 日本アイソトープ協会：改訂 2 版 ラジオアイソトープ基礎から取扱まで, pp. 11-41, 丸善, 1990.
- 12) Mann, K. S., Singla, J., Kumar, V. and Sidhu, G. S.: Verification of some building materials as gamma-ray shields, *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 151, No. 1, pp. 183-195, 2012.
- 13) Mann, K. S., Kaur, B., Sidhu, G. S. and Kumar, A.: Investigations of some building materials for γ -rays shielding effectiveness, *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 87, pp. 16-25, 2013.
- 14) Akbulut, S., Sehhatigdiri, A., Eroglu, H. and Çelik, S.: A research on the radiation shielding effects of clay, silica fume and cement samples, *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 117, pp. 88-92, 2015.
- 15) Mann, K. S., Heer, M. S. and Rani, A.: Investigation of clay bricks for storage facilities of radioactive-wastage, *Applied Clay Science*, Vol. 119, pp. 249-256, 2016.
- 16) 東京電力ホールディングス株式会社福島第一廃炉推進カンパニー：1~4 号機の状況(平成 29 年 3 月), 2017, <http://fpcj.jp/wp/wp-content/uploads/2017/03/a13c22a63f10ae9aedcb8abcf0dc72f.pdf> (閲覧日：2017 年 6 月 9 日)。
- 17) 孫利民, 菊地敏男, 後藤洋三, 林正夫：重泥水を用いた同調液体ダンパー(TLD)に関する研究, 土木学会論文集, No. 661/1-53, pp. 211-220, 2000.
- 18) 林正夫, 斎藤修二, 中田雅夫, 西村宏之：重泥水により作動する高出力 CAES の設計概念と実証実験, 第 29 回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集, pp. 1-7, 1999.
- 19) 日本原子力開発機構：東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置技術に係る原子力機構の取り組み 2013 年度版, pp. 40-41, <https://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat05/pdf/20131204-01.pdf> (閲覧日：2017 年 7 月 7 日)。
- 20) 河田燕：物理工学実験 9 放射線計測技術, 東京大学出版会, pp. 1-157, 1978.
- 21) 日本原子力研究所：単位質量, 単位体積当りの熱中性子吸収断面積および散乱断面積(表)1962, <http://jo-lissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/pdfdata/JAERI-6010.pdf> (閲覧日：2015 年 12 月 1 日)。
- 22) Yoshikawa, E., Komine, H., Saito, Y., Goto, S., Narushima, S., Arai, Y., Mizuno, M., Ujiie, S., Sakoda, Y., Nagae, Y., Yoshimura, M. and Suzuki, A.: Radiation Shielding Properties of Heavy Bentonite Based Slurry for Decommissioning of the Fukushima First Nuclear Power Plant, *GeoChicago2016 (CD-ROM)*, 2016.
- 23) 吉川絵麻, 小峯秀雄, 後藤茂, 氏家伸介, 成島誠一, 長江泰史, 吉村貢：放射線遮蔽性能を有する超重泥水の透過厚さによる線量低減効果の評価, 第 51 回地盤工学研究発表会, pp. 2167-2168, 2016.
- 24) 吉川絵麻, 小峯秀雄, 後藤茂, 氏家伸介, 成島誠一, 長江泰史, 吉村貢：放射線遮蔽性能を有する超重泥水の線量低減効果の評価および遮蔽設計に向けた試み, 平成 28 年度年次大会第 71 回年次学術講演会, pp. 383-384, 2016.
- 25) 土工管理とラジオアイソトープ編集委員会：土工管理とラジオアイソトープ 表面型密度計・水分計の取り扱い手引き, 土質工学会, pp. 27-55, 1974.
- 26) 齋藤祐磨, 小峯秀雄, 成島誠一, 新井靖典, 水野正之, 氏家伸介, 佐古田又規, 吉村貢, 鈴木聡彦, 井上恵介, 後藤茂：福島第一原子力発電所の燃料デブリ取り出し・事故由来廃棄物を想定した重泥水・土質材料の放射線遮蔽効果の評価, 第 11 回環境地盤工学シンポジウム発表論文集, pp. 483-488, 2015.
- 27) Komine, H.: Radiation shielding experiments of geomaterial for recovery from the Fukushima I nuclear power plant accident, *Geo-Environmental Engineering (CD-ROM)*, 2015.
- 28) 環境省：平成 23 年 10 月 10 日災害廃棄物安全評価検討会・環境回復検討会 第 1 回合同検討会資料 別添 2 追加被ばく線量年間 1 ミリシーベルトの考え方, http://www.env.go.jp/press/file_view.php?serial=18437&hou_id=14327 (閲覧日：2017 年 7 月 7 日)。
- 29) 東京電力ホールディングス株式会社：2 号機原子炉格納容器内部調査～線量率確認結果について～, http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2017/07/20170728_2.pdf (閲覧日：2017 年 7 月 28 日)。

(2017. 3. 1 受付)

THE QUANTITATIVE EVALUATION FOR RADIATION SHIELDING CAPABILITIES OF SOIL MATERIALS

Ema YOSHIKAWA, Hideo KOMINE, Shigeru GOTO, Mitsugu YOSHIMURA,
Akihiko SUZUKI, Seiichi NARUSHIMA, Yasunori ARAI, Shinsuke UJIIE,
Yuki SAKODA and Yasushi NAGAE

The 2011 off-the Pacific coast of Tohoku earthquake affected Japan, wreaking severe damage to a nuclear power plant in Fukushima. During decommissioning, ensuring worker safety is important in relation to fuel debris retrieval. Given that background, the authors specifically examined the use of heavy bentonite-based slurry as a filling material in a nuclear reactor. Heavy slurry can shield gamma rays and neutron beams because of its high specific gravity and water contents. Also, soil materials are used for soil cover type storage facilities for radioactive waste without evaluation for shielding. This research was conducted to investigate and define the radiation shielding capability of soil materials for controlling nuclear accidents. To quantify the radiation shielding capability, the authors measured the transmitted radiation dose through soil materials under some conditions of pass length. Results show that the reduction of the gamma ray dose has a proportional relation with wet density of materials, and show that the reduction of the neutron beam dose is related with the volume water content of materials. The research described in this paper is a proposal for application to the design for construction using soils for decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station.