

# 土壌中の放射性セシウム濃度のNaI (TI) シンチレーションサーベイメータによる推定法について

A simple method for the measurement of radiocesium in soil samples using a NaI(Tl) scintillation counter

生産環境部 根本知明 佐藤睦人  
 作物園芸部 小野勇治 藤村恵人<sup>1</sup> 二瓶直登<sup>2</sup> 鈴木安和  
<sup>1</sup>現農研機構東北農業研究センター <sup>2</sup>現東京大学大学院農学生命科学研究科

東京電力福島第一原子力発電所の事故以降に福島県内の農地から土壌を採取した。この土壌を用いてゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメータで放射性セシウムの合計値 (<sup>134</sup>Cs及び<sup>137</sup>Cs) を測定し、同じ土壌を用いてNaI (TI) シンチレーションサーベイメータであらかじめ定めた方法で計数値を読み取った。4,000Bq/kgFW以下の土壌の場合、NaI (TI) シンチレーションサーベイメータの測定値からゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメータによる土壌中の放射性セシウムの合計値を推定できることが明らかとなった。また、測定値の取り方や土壌とNaI (TI) シンチレーションサーベイメータの位置関係を検討し、回帰式に対する95%信頼区間を標準誤差×1.96とした場合の推定精度を向上することができた。

キーワード：土壌中の放射性セシウム、簡易測定、NaI (TI) シンチレーションサーベイメータ

## 1 諸言

2011年3月12日以降、東京電力福島第一原子力発電所の事故により放射性物質が拡散した。その後、各地域で高い空間線量が確認され、放射性物質による土壌の汚染が問題となった。

福島県では3月下旬から県内全域を対象に土壌調査を開始し、農地から土壌を採取した。しかし、分析に使用するゲルマニウム半導体検出器を用いた核種分離型のガンマ線スペクトロメータ（以下、Ge半導体検出器）が不足しており、土壌中の放射性物質の測定点数は限られていた。

2011年4月8日に農林水産省から「稲の作付けに対する考え方」が発表され、水稲の作付けを可能とする水田の土壌中の放射性セシウム濃度の上限値が5,000Bq/kgと示された。しかし、Ge半導体検出器は不足のまま、農地の汚染状況を十分に把握できない状況が続き、農産物や土壌での調査の要望が高まっていた。

このようなことから、本研究では核種分離はできないが入手しやすいNaI(Tl)シンチレーションサーベイメータを用いた。その他に使用する器材も一般的に入手可能な器材を用いることで、農業生産現場でも利用しやすい簡易な測定方法を検討した。

## 2 試験方法

東京電力福島第一原子力発電所の事故以降に福島県内全域から採取した土性の異なる土壌について、Ge半導体検出器とNaI (TI) シンチレーションサーベイメータで測定し、その結果を比較した。

### (1) 土壌採取

県内46地点の土壌を用いた。採取地点は、福島県図を2kmメッシュで区切り各市町村から偏りなく土壌を採取できるように選定した。なお、東京電力福島第一原子力発電所から半径20kmは、警戒区域の指定により立ち入り禁止となったため調査地点から除いた。

圃場内の土壌採取は、土壌放射能濃度測定用試料採取法（農業環境技術研究所）を参考に、圃場中心点と中心点から4角へ引いた対角線の midpoint の、合計5点を採取ポイントとした。

また、放射性物質が圃場に偏りなく降り注いだ地点とするため、周辺遮蔽物が無い採取ポイントを選定し、表層から15cmをオーガーで採取した。

各圃場から採取した土壌は5点それぞれが土壌の粘性や水分状態が異なるため、均一に混ざるまで30分程度手でよく混和し供試土壌とした。

### (2) Ge半導体検出器による測定

測定は外部の分析機関に委託して、3月に採取した福島県内の土壌46点の放射性核種 (<sup>134</sup>Cs及び<sup>137</sup>Csを含む) のガンマスペクトルを測定した。

### (3) NaI (TI) シンチレーションサーベイメータによる測定

#### A 機種仕様

機種 種：簡易測定法ではLUDLUM MODE 3（サーベイメータ・アナログ表示）+ LUDLUM MODEL42-2（シンチレータ）を使用した。

試験1～3ではLUDLUM MODEL2241-2（サー

バイメータ・デジタル表示) + LUDLUM MODEL42-2 (シンチレータ) を使用した。

検出部: LUDLUM MODEL42-2 は、NaI(Tl)1 インチφ×1 インチ

検出エネルギー範囲: 60keV ~ 1.25MeV

校正:  $^{137}\text{Cs}$

### B 機種と測定開始時間

LUDLUM MODEL3 + LUDLUM MODEL42-2 は時定数を 7 秒として、測定値の読み取りは時定数の 3 倍以上になる測定開始から 30 秒後とした。

LUDLUM MODEL2242-1 は時定数が可変だが、空間線量 60cps の場所で 27cps 程度の試料を測定すると、8 秒で 79.4cps (増加数が 27cps の 63% 以上) に達する。このため、時定数は 8 秒以下と考えられ測定値の読み取りは時定数の 3 倍以上となる測定開始から 30 秒後とした。

### C 測定場所のバックグラウンド値による影響確認

2011 年事故当初の農業総合センター屋外空間線量は LUDLUM MODEL3 + LUDLUM MODEL42-2 で測定すると 1000cps 以上であった。Ge 検出器による測定値と NaI(Tl) シンチレーションサーベイメータの測定値の関係を調べるにあたって、バックグラウンド値となる空間線量が低い方が NaI(Tl) シンチレーションサーベイメータの測定に有利と考えられたため、空間線量が低い地下や高階層を検討した。バックグラウンド値が 27cps と 230cps の条件でそれぞれの測定値の関係を事前に調べたところ、バックグラウンド値が低い場合の方が相関関係が高く標準誤差も低下した。(表 1)

表 1 バックグラウンド値の相関係数や標準誤差への影響

バックグラウンド値(cps)	相関係数	標準誤差
27	0.93	327
230	0.80	547

※簡易測定法と同じ土壌を用いて、簡易測定法とは異なる測定方法(読み値を取る回数 1 回)で実施した。

### D NaI(Tl) シンチレーションサーベイメータによる測定条件の検討

使用機種の違い、測定値の取り方の違い、土壌の形状の違いによる土壌と検出部の位置関係を変えて測定した。測定する際に使用する器材は、専用の分析室やそれに付随する器具等の無い場所での測定を想定して、生産現場でも入手し易く一般に販売されている資材や器具等を選んだ。

#### (A) 簡易測定法

Ge 半導体検出器の測定値を NaI(Tl) シンチレーションサーベイメータで推定することを目的として、以下の条件で測定した。

使用機種: LUDLUM MODEL3 + LUDLUM MODEL42-2

供試土壌: 3 月に採取した福島県内の土壌 46 点を、そ

れぞれフリーザーバッグ(メーカー: 旭化成(株)、商品名: Ziploc、規格: 大(27.3 cm×26.8 cm)) に入れ 15 cm×25 cm×2 cm(1.0 kg) に成形し、その中央に検出器を当てた(図 1)。

読み値: バックグラウンドは測定する場所での測定時の高さの空間線量とし、測定開始から 30 秒後の値 1 点、土壌測定は成形した土壌の中央部 3 点でそれぞれ 30 秒後の値の平均値とした。

測定値: (土壌測定値) - (空間線量) = 測定値とした。

#### (B) 試験 1: デジタル表示での読み取りの検討

使用する機種の違いによる測定結果を検討するため、使用機種を「LUDLUM MODEL3」から「LUDLUM2241-2」に変えて測定した。検出部(プローブ)は両機種とも LUDLUM MODEL42-2 である。



図 1 土壌形状(簡易測定法・平板状)

#### (C) 試験 2: 測定値の取り方の検討

試験 1 に加えて、測定値のバラツキを抑えるため値の読み取り回数を変えて試験した。バックグラウンドは測定する場所での測定時の高さの空間線量とし、土壌測定は測定する土壌の中央として、それぞれ 1 点の 30 秒後の値とその後 10 秒毎×9 回の合計 10 点の平均値に変更して測定した。

#### (D) 試験 3: 土壌形状の検討

試験 2 に加えて、ガンマ線検出効率向上のため、平板状(1 kg の土壌を縦 15 cm×横 25 cm×高さ 2 cm、図 1)から包み状(1 kg の土壌を縦 25 cm×横 25 cm×高さ 1 cm に整形し、検出部(プローブ)を包んで 2L 容器に固定、図 2)に変えて測定した。



図 2 土壌形状(試験 3・包み状)

#### (E) 試験 4: 鉛遮蔽によるバックグラウンド低減の検討

試験 3 に加えて、バックグラウンド低減のため土壌と検出部を 2mm 厚の鉛遮蔽体の中に入れて測定した(図 3)。

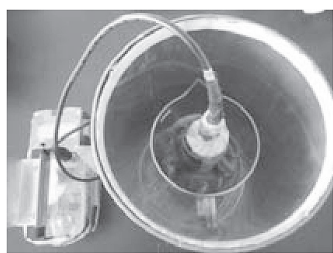


図3 2 mm鉛遮蔽体 (試験4)

### 3 結果

Ge 半導体検出器の測定結果は、測定日に合わせて半減期補正を行い <sup>134</sup>Cs 及び <sup>137</sup>Cs の合計を放射性セシウム合計値として、NaI (Tl) シンチレーションサーベイメータの測定値と比較した。(図4、5) それぞれの測定方法で、Ge 半導体検出器と NaI (Tl) シンチレーションサーベイメータの測定値を散布図に示して、その関係を比較したところ、高い正の相関関係が認められた。

簡易測定法から、デジタル表示での読み取り、測定値の取り方、土壌形状変更による検出部の位置変更、鉛遮蔽によるバックグラウンドの低減による測定値結果を検討したところ、簡易測定法に対して試験4では土壤中の放射性セシウム濃度の回帰式による推定値の95%信頼区間が±660から±332へと向上した(表2)。

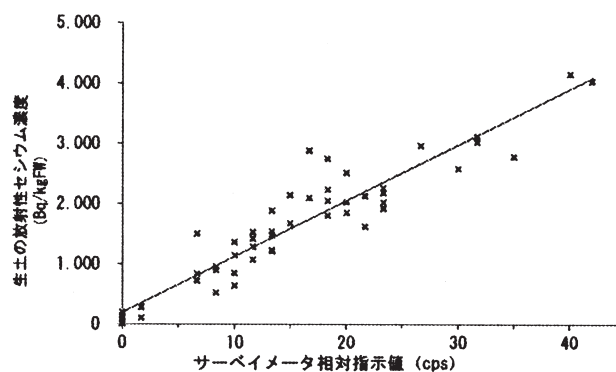


図4 サーベイメータ相対指示値と放射性セシウムの関係 ((A) 簡易測定法)

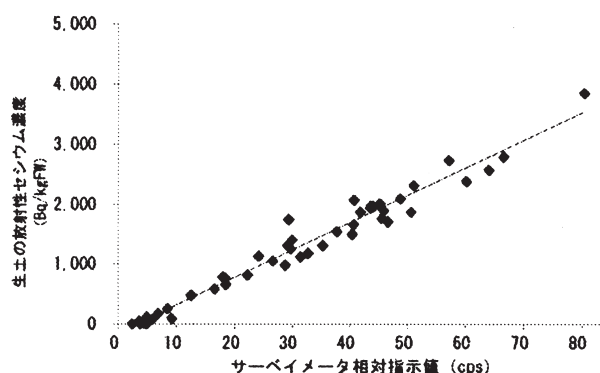


図5 デジタル表示と測定値の取り方及び土壌形状を変えて鉛遮蔽で囲ったサーベイメータ相対指示値と放射性セシウムの関係 (試験4)

表2 簡易測定法と各試験条件の比較

試験方法	機種	測定値の取り方	土壌形状	遮蔽体の有無	回帰式	推定値の95%信頼区間	標準誤差
簡易測定法	LUDLUM MODEL3	1カ所で30秒後1点	平板状	無し	$y=92.5x+200$	±660	340
試験1	LUDLUM 2241-2	1カ所で30秒後1点	平板状	無し	$y=99.0x+40$	±510	260
試験2	LUDLUM 2241-2	1カ所で30秒後1点+10秒毎9点	平板状	無し	$y=92.6x+60$	±411	210
試験3	LUDLUM 2241-2	1カ所で30秒後1点+10秒毎9点	包み状	無し	$y=47.9x+52$	±386	197
試験4	LUDLUM 2241-2	1カ所で30秒後1点+10秒毎9点	包み状	有り	$y=45.7x-137$	±332	169

### 4 考察

以上から、0～4,000Bq/kg FWの土壌の場合、NaI (Tl) シンチレーションサーベイメータの測定値からGe 半導体検出器による土壤中の放射性セシウムの合計値を推定できると考えられた。

また、それぞれの試験で回帰式の95%信頼区間を標準誤差×1.96として、簡易測定法と比較して試験1から試験4までの信頼区間を個別に見ると、試験1では測定値のデジタル表示により測定値の読み取り精度が向上したと考えられ、試験2では放射線測定値の点数を増やすことによる変動係数(測定値の標準偏差/測定値の平均)の縮小が精度の向上に繋がり、試験3では測定試料と検出器(プローブ)の位置関係改善により測定効率が向上するため、Ge 半導体検出器による測定値をより細かく推定できると考えられた。

また、試験4ではバックグラウンドの低下により、今回の測定方法の中では試験4が回帰式に対する信頼区間から

精度の高い測定方法だった。

測定時の注意点として、本試験の使用機種はLUDLUM MODEL44-2だったが、シンチレータを変えて大きさや密度の異なる結晶を用いた場合や、エネルギー補償のあるNaI (Tl) シンチレーションサーベイメータを用いれば、散布図が変化すると考えられることから、他機種で測定する場合は再度回帰式を求める必要がある。

次に、<sup>134</sup>Csのサム効果と、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの比率がNaI (Tl) シンチレーションサーベイメータに与える影響を考える。本試験の実施時期は9月30日で原子力発電所事故のおよそ200日後であり、Ge 半導体検出器の測定は4月10日であったため半減期補正を行って比較した。事故後30日後のGe 半導体検出器による測定は、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの比率が1:1程度であったものの、200日後には0.8:1程度となる。これは、それぞれの半減期の違いによる存在比率の変化であり、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>CsがNaI (Tl) シンチレーションサーベイメータ

に与える影響を考えると  $^{134}\text{Cs}$  はサム効果により  $^{137}\text{Cs}$  に対して多くの影響を与えると考えられるため、本測定法による予測式は、 $^{134}\text{Cs}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  の比率が 0.8 : 1 程度の場合に可能であると考えられる。

また、他の放射性物質による影響として土壌由来の  $^{40}\text{K}$  や施肥による  $^{40}\text{K}$  の影響が考えられ、NaI (Tl) シンチレーションサーベイメータ測定値に影響を与えていると考えられ、本試験では、それらの影響も含めた散布図としている。

測定に際しては空間線量ができるだけ低い場所を選んだ方がいいが、そのような場所が無い場合は鉛遮蔽体を用いると空間線量の影響を低減することができる。

最後に、測定後に水稻の作付け基準に照らし合わせる場合は、必要に応じて乾土率を求めて (Bq/kg DW) へ換算した。乾土率を求める場合は、土壌の乾土率をそれぞれビーカーに土壌 50g を量り、乾熱 105°C で 24 時間後の重量を測定し、(乾土重) ÷ (生土重) として乾土率を求めた。

以下に、試験 3 から作成した土壌放射線簡易測定マニュアル概要を示す。

#### [土壌放射線簡易測定マニュアル 2011. 11. 30] 概要

##### 1 土壌採取

- ほ場の 4 角と中央の midpoint 4 カ所と、中央の合計 5 カ所を選ぶ。
- ライナー採土器を土壌面と垂直に刺し、ハンドルを回しながら 15 cm 刺し入れて採取する。



##### 2 サンプル調製

- 均一になるようよく混ぜ、1 kg を計り取る。
- 土壌を 2L 容器に入れ整形する。



##### 3 NaI サーベイメータによる測定

- 測定開始 30 秒後、その後 10 秒毎に 9 回数値を読み取り平均値を指示値とする。



##### 4 生土の放射性セシウムの推定値算出

- x : 測定値 (COUNTS/SEC) =  
メーター指示値 (読み取り値) - バックグラウンド値
- y : 生土の放射性セシウム推定値 (Bq/kg)
- 包み状 :  $y = 47.85x + 51.59$

※本推定法での生土の誤差は ± 386 (包み状) である。

## 謝 辞

本研究を実施するにあたり、土壌調査に協力いただいた生産者の皆様、農業環境技術研究所の皆様に、お礼申し上げます。