

ヨウ化ナトリウムシンチレーション検出器を用いた土壌の放射性セシウム測定

日本環境モニタリング株式会社代表取締役 理学博士 圓入 敦仁

はじめに

平成23年3月に発生した東北地方太平洋沖地震に起因する福島第一原子力発電所の事故では、大量の人工放射性物質が自然環境に放出された。複数の原子炉が同時にメルトダウンを起こし、事故発生から1年以上経過する現在も放射性物質が継続的に自然環境に放出されている⁽¹⁾。この2点を勘案すると、福島第一原発事故は人類がこれまで経験したことが無い領域の原子力災害であり、今後数十年にわたり東日本における環境中の放射能・放射線の継続的なモニタリング測定が、国、自治体、関連分野研究者の重要な課題となる。

福島第一原発の原子炉に由来する放射性物質はフォールアウトとして地表に降下・沈積し、その影

響は当初の予想より広範囲にわたるものであることが、文部科学省

が実施した航空機調査により明らかになった⁽²⁾。特に放射性セシウムによる高線量区域が、福島県内のみならず首都圏にまで及んでいることは⁽³⁾、史上初のアーバン・コンタミネーション（放射能都市汚染）として国際的に注目されている⁽⁴⁾。都市部への放射性物質の到達は、群馬県高崎市の包括的核実験禁止条約（CTBT）観測所⁽⁵⁾や、新宿区の東京都健康安全研究センター⁽⁶⁾にて克明に記録された。

本稿では、平成23年3月以降に東日本各地の土壌から検出が報告されている放射性セシウムにつき、筆者による放射能測定データと併せて示し、その移動・集積につき考察する。また、ガンマ線スペクトロメータを用いた放射能測定やデータ解釈における留意点

につき、例を挙げ議論する。

放射性セシウムの移動・集積

関東・東北の広範囲にわたる地域にて平成23年3月以降に降下・沈積した原子炉由来の人工放射性物質は、当該地域の空間線量上昇に貢献するのみならず、土壌・水―植物―動物の自然循環に取り込まれている。現在これら地域の空間線量率が自然放射能レベルより高い⁽⁶⁾要因は、様々な人工放射性同位核種の中でも、放射性セシウム（Cs-137、Cs-134）が

環境中に存在することに依る。セシウムは周期表において第一族に属するアルカリ金属元素であり、水溶液中では1価の陽イオンとしてカリウムと類似した挙動を示す。土壌中では粘土鉱物の負電荷を持つ珪酸塩シートにカリウム

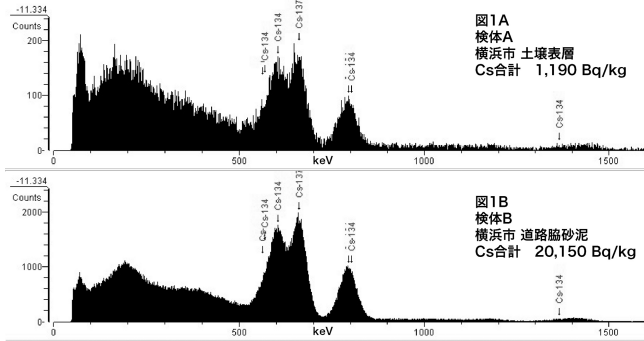
と同様に固定され、更には表面積が大きい有機物に固定されると考えられる。このため平成23年3月以降の東日本では、有機質の細粒土壌や泥からは、特に高い放射性セシウムのアクティビティが検出される傾向にある。

これら地表に沈着した放射性セシウムは、シルトサイズの泥粒子や粘土鉱物、有機物とともに風雨により移動・集積し、首都圏においても路上の吹き溜まり、流水が集まる雨樋下や排水溝、更には河川・湖沼において局所的に濃縮する傾向が見られる⁽⁷⁾。放射性セシウムの表層における挙動はまさに火山灰のそれであり、これは地質学、堆積学の研究分野である。

ガンマ線スペクトロメータを用いた土壌の放射能測定

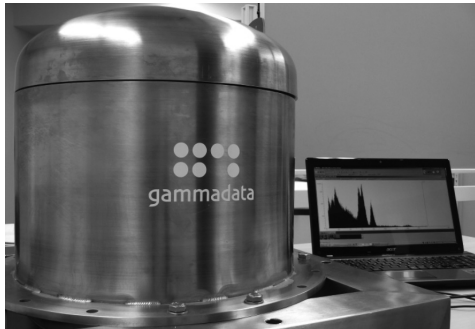
放射性セシウムの移動・集積を示す例として、筆者が横浜市内で採集した土壌検体のガンマ線測定結果を紹介する。図1Aに示すガンマ線スペクトルは、平成23年9月の採集時において、平成23年3月以降降拌されていない土壌の表

図1 横浜市内で採集した土壌試料の放射能測定スペクトル例



層3 cmから採集した検体を測定したものの(検体A)である。図1Bに示す検体Bは、同日に検体A採集地点から約40 m離れた道路脇の窪みに集積した砂泥である。検体の放射能測定には、スウェーデン王国ガンマデータ社製ヨウ化ナトリウムNaI(Tl)シンチレーション検出器ガンマ線測定装置のGDM-20(図2)を使用した。

図2 ガンマデータ社 NaI (TI) 検出器
ガンマ線スペクトロメーター GDM-20



採集地点の条件が異なる上記2検体の放射性セシウム合計のアクティビティは、半減期を考慮し平成23年4月1日の値に換算すると、検体Aが乾燥重量1 kgあたり1,190ベクレル、検体Bが20,150ベクレルと、攪拌されていない土壌表層の検体Aよりも、風雨により移動・集積した砂泥の検体Bのカウントが高く、一桁高い測定値を示す。検体Bのスペクトルは検体Aに比べてスムーズであるが、これは検体Bに含まれる放射性セシウムのアクティビティが高いためである。

これら検体のガンマ線スペクトルには、福島第一原発に由来する放射性セシウム比に特徴的な3つ

の光子ピーク(Cs-137、の62 keV、Cs-134の605 keV、796 keV)が認められる。このような放射性セシウムのアクティビティが高い土壌検体の場合、コンプトン散乱によるカウント上昇のため、放射性セシウムのウインドウから低エネルギー側に通常見られる天然の放射性同位核種によるピークが目立たなくなる。

自然放射能の影響とガンマ線スペクトルの評価

ここで自然界にみられる放射能として、ウラン系列(ラジウム系列)及びトリウム系列の放射性崩壊により生成される短半減期核種のビスマス(Bi-214)及び鉛(Pb-214、Pb-212)の光子ピークにつき、NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて土壌を測定した場合の例を示す。図3に示す検体Cのガンマ線スペクトルは、平成22年に国内にて採取された砂質試料を測定したもので、福島第一原発の原子炉に由来する放射性セシウムは含まれない。

図3に示すように、ガンマ線スペクトロメーターを用いて碎屑物の放射能を測定すると、自然放射能に特徴的な複数の光子ピークが見られる。エネルギーの低いほうから、239 keVにPb-212の295 keV、352 keVにPb-214のピークが認められ、更には609 keVにBi-214が見られる。この中でも、352 keVのPb-214は1-131の365 keVのウインドウに、609 keVのBi-214はCs-134の605 keVのウインドウに近く、NaI(Tl)シンチレーション検出器では、それぞれヨウ素やセシウムとしてカウントされてしまう。これら自然放射能同位核種によるカウントを、人工放射性同位核種である1-131やCs-134のピークと弁別することは、分解能が低く1,024チャンネルの波高分析器とNaI(Tl)シンチレーション検出器を用いたガンマ線スペクトロメーターでは困難である。

このため、シンチレーションを用いたガンマ線測定では、1-131やCs-134のアクティビティが凡そ数10 Bq/kg、又は極めて低い土壌検体においては、その測定値

図3 東日本大震災以前に採集した土壌試料のスペクトル例

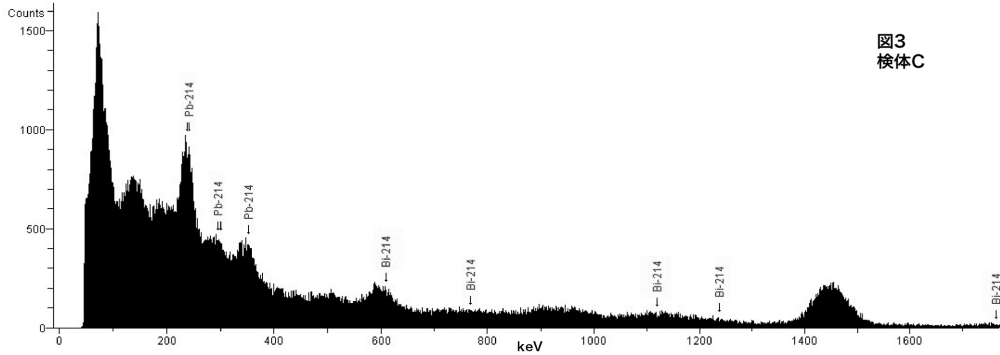


図3
検体C

の評価には注意が必要である。現在（平成24年4月）において、シンチレーション検出器による土壌の放射能測定結果にI-TIのアクティビティが見られ、低い値の放射性セシウムが検出された場合、それは自然放射能の影響による可能性が高い。

このような自然放射能の影響が考えられる測定結果については、スペクトルを評価することにより誤判定を防止することができる。図1に見られるように、福島第一原発に由来する放射性セシウムは、3つの特徴的な光子ピークを示す。一方、自然放射性同位核種による光子ピークが放射性セシウムとしてカウントされる場合、セシウムのウインドウには3つのピークが現れず、Cs-134の605 keV近傍にBi-214の光子ピーク609 keVがカウントされる（図3）。

このようにスペクトルを目視することにより、測定データの評価を実施することが重要である。自然放射能の影響は、井戸水、一部地域の原乳や水道水に見られる場合があり、これらの検体をNaI（TI）シンチレーション検出器を

用いて測定する際には留意する必要がある。

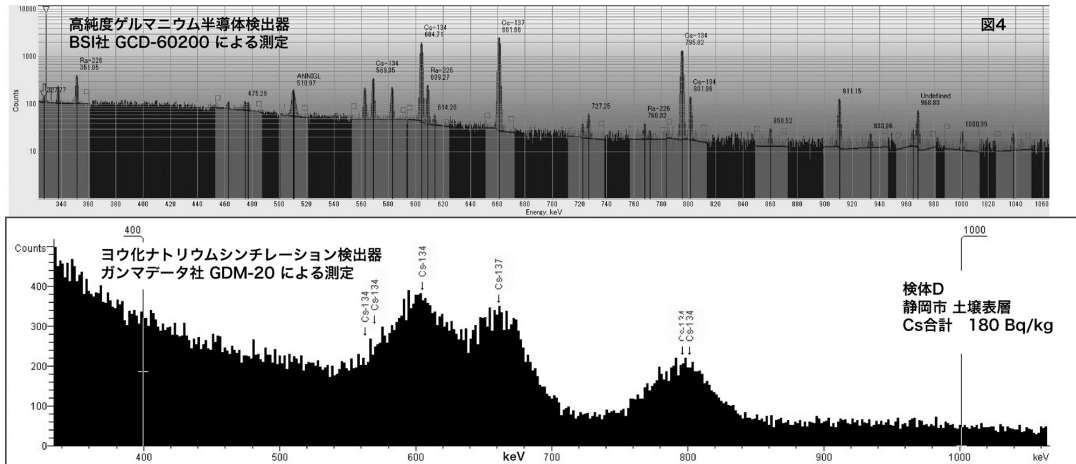
これらエネルギーが接近する放射性同位核種をガンマ線スペクトロメーターにて明確に弁別するためには、分解能が高く8、192〜16、384チャンネルの波高分析器を用いた高純度ゲルマニウム半導体（HPGe）検出器による測定が不可欠である。図4にNaI（TI）シンチレーション検出器（ガンマデータ社製GDM-20）及びHPGe検出器（ラトビア共和国BSI社製GCD-60200）放射能測定装置によるガンマ線スペクトルを比較する。測定には平成23年12月に静岡市内にて土壌表層から採集した検体を用いた（検体D）。半減期を考慮し測定結果を平成23年4月1日の値に換算すると、放射性セシウムのアクティビティ合計は乾燥質量1kgあたり約180ベクレルである。

図4に示すように、NaI（TI）シンチレーションとHPGeの両検出器によるスペクトルを比較すると、分解能の違いは明確である。HPGeでは、上に述べた609 keVに現れるBi-214（Ra-

226）の光子ピークは、Cs-134の605 keVに重なることなく弁別される。更には、NaI（TI）シンチレーション検出器では弁別することができない、イールドが低いCs-134の光子ピークがHPGe検出器では認められる。

しかしながら、これはNaI（TI）シンチレーション検出器の性能が劣ることを意味するわけではない。NaI（TI）シンチレーション検出器は計数効率が高く、短時間で放射能測定が可能であり、更にはHPGe検出器に比べてコストパフォーマンスが高い。図1、図3のような鮮明なスペクトルを取得できる高性能のNaI（TI）シンチレーション検出器ガンマ線測定装置（図2）であれば、放射性セシウムのアクティビティ定量には確定値として十分対応することができる。一方、上述のように放射性セシウムのアクティビティが1kgあたり数10ベクレル以下の土壌を測定する場合や、井戸水等の測定で自然放射性同位元素を明確に弁別し、1ベクレル以下のレベルで放射性セシウムを定量することを目的とする場合には

図4 HPGe 検出器と NaI (TI) 検出器のガンマ線スペクトル比較



HPGe 検出器の導入が不可欠であり、測定目的にあわせたガンマ線スペクトロメーターの選択が必要となる。

おわりに

本稿では、平成23年3月の福島第一原発事故により関東・東北の広範囲にわたる地表に降下・沈積した放射性セシウムの測定につき、実際の土壤試料分析例のスペクトルを示し、検出器の違いや測定時の留意点を議論した。

Cs-137の半減期は約30年であり、関東・東北においては今後広範囲にわたる継続的な環境モニタリングの実施と放射能測定データの蓄積、国際社会に向けての情報発信が期待される。都市部に降下・沈積した放射性セシウムは風雨により移動し集積する。放射性物質

の地表、河川、湖沼、浅海における移動、堆積、集積過程を記録、考察することは、地質学、地球化学、堆積学、海洋化学、火山学、粘土鉱物学等、地球科学分野の研究領域である。

人工放射性物質という人間活動の痕跡は、自然界でどのような振る舞いを示すのか。地球の歴史の中では一瞬の出来事であるが、環境中に放出された放射性セシウムの挙動は、ミクロの世界から全球規模の影響まで、誠に興味深い研究対象である。

文献

- (1) 文部科学省「定時降下物のモニタリング」
http://radioactivity.mext.go.jp/old/ja/monitoring_by_prefecture_fallout/
- (2) 文部科学省「文部科学省(米国エネルギー省との共同を含む)による航空機モニタリング結果」
<http://radioactivity.mext.go.jp/ja/list/258/list-1.html>
- (3) 文部科学省「文部科学省による埼玉県及び千葉県航空機モニタリングの測定結果について」(2011年9月29日)
http://radioactivity.mext.go.jp/old/ja/1910/2011/09/1910_092917_1.pdf
- (4) サイエンス誌「Citizens Find Radiation Far From Fukushima」(2011年6月17日)
<http://www.sciencemag.org/content/332/6036/1368.summary>
- (5) <http://www.cpdnp.jp/002-03.html>
- (6) http://monitoring.tokyo-eiken.go.jp/mon_fallout_data.html
- (7) 文部科学省「放射線量等分布マップ」
<http://ramap.jaea.go.jp/map/>
- (8) 環境省「東日本大震災の被災地における放射性物質関連の環境モニタリング調査について」
<http://www.env.go.jp/jishin/rmp.html#monitoring>