

(S3-12) 放射性物質による土壌汚染の調査法に関する手法の検討

○関 友博・鈴木 弘明・中島 誠・田澤龍三・保賀康史・
放射性物質による土壌・地下水位汚染の調査・対策に係る研究部会
土壌環境センター

1. はじめに

東北地方太平洋沖地震に伴う福島第一原子力発電所の爆発事故により環境中に大量の放射性物質が放出され、その降下沈着（フォールアウト）により東日本の広範囲に亘る土壌が汚染された。現在、国によりその実態調査と除染が行われていることは周知のとおりであるが、広く一般的に行われている空間線量率の測定に比べ、土壌、水質、食品等の放射能濃度を調査する手法についてはその詳細が知られていないのが現状である。

元来、これら環境放射能の測定は、1950年代から1970年代にかけて行われた大気圏核実験の降下物の実態調査を行う目的で始まり発展してきた。ここで行われていた測定は比較的低レベルの放射能を、継続的に再現性の高い方法で精度よく測定することに重点が置かれたが、現在行われている緊急時の調査は迅速性と高濃度汚染の状況把握を目的としているため、従来の環境放射能測定とは手法が異なっている。

本報告では、現在行われている公的な調査方法を整理するとともに、今回の事故への対応のために実際行われた測定手法と従来行われていた測定手法の比較を行った。

2. 測定方法の概要

今回の報告ではサーベイメータやモニタリングポストを用いた空間線量率や全 α 線、全 β 線の測定方法については対象とせず、放射能濃度の測定について整理した。従来行われていたモニタリングや事故時に測定される核種について、現在主に用いられている測定方法を表-1にまとめた。

表-1 核種別の測定方法一覧

測定方法	対象核種	測定方法の概要
放射化学分析（ α 線）	^{241}Am 、 ^{244}Cm 、 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{234}U 、 ^{235}U 、 ^{238}U	化学分離後、 α 線スペクトロメトリー
放射化学分析（ β 線）	^{90}Sr 、 ^{60}Co 、 ^3H	化学分離後、 2π ガスフロー計数装置または液体シンチレーションにより測定
γ 線 スペクトロメトリー	^7Be 、 ^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 ^{95}Zr 、 ^{95}Nb 、 ^{103}Ru 、 ^{106}Ru 、 ^{125}Sb 、 ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{140}Ba 、 ^{140}La 、 ^{144}Ce	Ge半導体検出器によるスペクトロメトリーによりエネルギー別に分別定量 NaIシンチレーションスペクトロメトリーによりエネルギー別に分別定量（ ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs などの緊急時迅速法）
元素分析	^{238}U 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu	酸分解後、誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP/MS）により元素分析（緊急時の迅速法）

従来、日本におけるこれらの測定は、文部科学省発行の「放射線測定法シリーズ」及び原子力安全委員会発行の「環境放射線モニタリング指針」に準拠して行われてきた。今回の事故に対応していくつか測定法が出されているが、基本的に機器測定の部分に関しては「放射線測定法シリーズ」を参照するか、ほぼ同じ内容となっている。現在日本で用いられている主な測定方法について表-2にまとめた。

Methodological study for measurement of radiation-contaminated soil

Tomohiro Seki, Hiroaki Suzuki, Makoto Nakashima, Ryuzo Tazawa, Yasushi Hoga and Study Group of Investigation and Countermeasure for Soil and Groundwater Contaminated by Radioactive Materials (GEPC)

連絡先：〒102-0083 東京都千代田区麹町4-2 (社) 土壌環境センター

TEL 03-5215-5955 FAX 03-5215-5954 E-mail info@gepc.or.jp

表－２ 公的な測定方法一覧

マニュアル	発行年	発行者	対応核種	測定対象
放射線測定法シリーズ No.1～No.34	S51 年 ～H20 年	文部 科学省	^{60}Co , ^{95}Zr , ^{106}Rh , ^{90}Sr , ^{131}I , Pu , U , ^{141}Am , ^{243}Cm , ^{144}Ce , ^{226}Ra , ^{237}Np , ^3H , ^{241}Am , $^{134,137}\text{Cs}$, 他	大気, 浮遊じん, 陸水, 飲料水, 牛 乳, 土壌, 農水畜産品, 指標生物, 降下物, 降水, 海水, 海底土など
環境放射線モニタリン グ指針*	H20 年 3 月	原子力 安全 委員会	^3H , ^{85}Kr , ^{241}Am , ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr , Pu , U , 他、多くの核種に ついて記述	大気, 浮遊じん, 陸水, 飲料水, 牛 乳, 土壌, 農水畜産品, 指標生物, 降下物, 降水, 海水, 海底土など
緊急時における食品の 放射能測定マニュアル	H14 年 3 月	厚生 労働省	^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs ^{90}Sr , Pu , U	牛乳, 野菜, 生海草, 魚, 生穀類, 肉類, 卵
水道水等の放射能測定 マニュアル	H23 年 10 月	厚生 労働省	^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs	水道原水, 河川水, 水道水
肥料中の放射性セシウ ム測定のための検査計 画及び検査方法	H23 年 8 月	農林 水産省	^{134}Cs , ^{137}Cs	牛ふん堆肥, 雑草堆肥, 稲わら堆肥, バーク堆肥
放射性物質による局所 的汚染箇所への対処ガ イドライン	H24 年 3 月	環境省	^{134}Cs , ^{137}Cs	空間線量、土壌
農地土壌の放射性物質 除去技術作業の手引き	H24 年 3 月	農林 水産省	^{134}Cs , ^{137}Cs	空間線量、土壌

※環境放射線モニタリングに関する指針（平成元年 3 月）及び緊急時環境放射線モニタリング指針（昭和 59 年 6 月）を廃止し統合した。

この中で、 α 線、 β 線核種の測定はストロンチウム 90、アメリシウム 141、キュリウム 243 などについて迅速法が出されているものの、化学分離を必要とするため、広くは行われていない。また、半減期の長いウラン 238、プルトニウム 239・240 など ICP/MS でも必要な感度が得られるものについては迅速法として元素分析が定められているが、今回の事故での拡散範囲が発電所周辺に限られているため、測定している機関は限定されている。

平成 23 年 3 月 11 日以降に出されたマニュアルを見ても分かるように、今回の事故においてはその排出量の多さと拡散した範囲の広さから、現在は放射性セシウムが測定されており、主としてゲルマニウム半導体検出器（以下「Ge 検出器」という。）を用いた γ 線スペクトロメトリーを用いて測定されている。

Ge 検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーは、化学分離を必要とせず多くの核種を分別測定できることから、 γ 線核種の放射能分析において主流となってきた方法であり、測定している機関も多い。しかし、従来行われてきた方法と、今回緊急時対応として行われている方法とは、その試料の調整方法が冒頭で述べたとおり異なっている。これら方法が記載されているマニュアルは放射線測定法シリーズの以下のものとなる。¹⁾

No.13 ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法

No.16 環境試料採取法

No.24 緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法

これらのうち、No.13、No.16 は通常時のモニタリング法であり、No.24 は緊急時のモニタリング法である。これらの中では、大気、野菜、魚、土壌、底質など多種の測定対象について述べられているが、今回の報告では本協会の主たるターゲットである土壌分析を中心に、それらの違いを比較したものを表－3 に示す。

3. Ge 半導体検出器による γ 線測定時の前処理方法の比較

Ge 半導体検出器による γ 線測定は、 γ 線のエネルギーにより核種を分けられることから、化学分離などの処理を必要としない。 γ 線は、その性質から、試料を直接測定できるが、試料の調整方法は低レベルの測定を必要とする平常時と今回のような緊急時では微妙に異なっており、公的に出されている方法においても違いがある。試料調整方法の違いは表－3 のようにまとめられる。

表－3 を見て分かるように、緊急時の方法は迅速性と放射性物質による試験施設・設備等の汚染を防ぐこと

に重点が置かれており、従来行われていた縮分、風乾、ふるい、粉碎などは行われていないことから、試料の代表性や均質性が犠牲にされていることがわかる。また、今回の事故に対する実調査では、揮発性の高い放射性ヨウ素を測定する必要性から、敢えて過熱を要する乾燥は行わなかったとの説明もされている。

表－３ Ge 半導体検出器による測定のための試料調整方法の比較

名称	Ge 半導体検出器等を用いる機器 分析のための試料の前処理法	環境試料採取法	緊急時におけるγ線スペクトロメ トリーのための試料前処理法
出典	放射能測定法シリーズ No.13	放射能測定法シリーズ No.16	放射能測定法シリーズ No.24
目的	実験室に到着した試料を測定容器 に入れるまでの処理方法 目的は、試料に含まれる放射性核 種を失うことなく、縮分、均質化、 濃縮をいかに行うかにある	農耕地及び未耕地の土壌並びに河 底土及び湖底土について蓄積した 放射性物質の量を求めるための採 取方法	原子力災害時に、試料の放射能を 測定するための前処理方法を定め たものの評価に必要な放射能濃度を Ge 半導体検出器で迅速に測定す ることを目的とする
採取 場所	採取に関する記載は無し	10 a 当たり水田では 5 か所、畑で は 8 か所（内 4 か所は畝、残り 4 か所は畝間） 表層のほか、目的により表層以下 の層からも採取	放射能測定法シリーズ No.16 環境 試料採取法に準ずる
採取 用具 及び 容器	採取に関する記載は無し	土壌採取器は内径 5-8 cm で高さ 20 cm および高さ 70-100 cm の 2 種 類、試料採取量は新鮮土として少 なくとも 2-3 kg	放射能測定法シリーズ No.16 環境 試料採取法に準ずる
試料 採取 方法	採取に関する記載は無し	①地点番号を付し、表面の植物遺 体、木片等を取り除く ②採取器を地点表面におき、ハン マーか掛矢で目的の深さまで打ち 込む ③外囲の土壌を取り除いて採取器 を回収し、採取器内の土壌をポリ エチレン製袋に入れる。	①表層 5 cm までの土壌を採取 ②採取量は 200 g ③採取した土壌はサーベイメータ で汚染のレベルを確認する。 その他は放射能測定法シリーズ No.16 環境試料採取法に準ずる
試料 調整 方法	①貝がら、植物根などを取除く ②乾燥：105℃ ③篩別：2 mm 以下(乾燥細土) ④混合：振混ぜ、V ブレンダー等 ⑤縮分：インクリメント縮分、 二分器または縮分機	①乾燥：105℃ ②篩別：2 mm 以下(乾燥細土) ③混合：振混ぜ、V ブレンダー等 ④縮分：インクリメント縮分、 二分器または縮分機 ⑤破碎(250 μ m 以下)	①混入している大きな草木、根、 石礫等は取り除く ②湿土のまま、約 100 g を小型容器 に入れる ③容器には空隙を作らないように 試料の上面を軽く圧縮して、上面 は水平な円柱形とする ④残試料で水分量を測定し、乾燥 重量中濃度に換算する
その 他	土壌及び海底度の試料について、 縮分方法について重点を置いた解 説となっている。	採取時期は農耕地については生育 後期～次期作付までの期間 未耕地は秋～冬（作業環境上） 保管は混合し、ポリエチレン製袋 又は広口瓶に入れて行う	迅速性および簡易性に重点をお き、他試料への汚染を防止するた めに、加熱および濃縮等の操作は 行わない 試料は小型容器ごとそのままポリ エチレン袋などに入れて保管

4. 今後の課題

4.1 測定法の差異によって生じる影響について

通常 Ge 検出器の校正に用いられる標準物質は、アルミナ粉末に分散された状態で提供されている。風乾や $250\mu\text{m}$ への粉碎は、試料の密度や状態(含水率等)を標準物質に近づけるという役割があると考えられる。 γ 線の透過性能や水や環境試料への自己吸収を考えれば、これらの試料調整差により大きな誤差が出るとは想像しがたいが、両方法の比較試験を行い、少なくとも差がないことを確認したうえで、その不確かさの差などは明確にしておく必要があると思われる。

4.2 試料採取地点の明確化

12月に環境省より出された「除染関係ガイドライン」²⁾では、空間線量率測定に際しての測定地点の選定方法などについて示されたが、上述した放射能測定法シリーズでは土壤汚染対策法に準じるような明確な採取地点の設定についての記載がないのが現状である。

IAEAによるTECDOC-1092「原子力あるいは放射線緊急事態におけるモニタリングの一般的手順」³⁾では、土壤試料のサンプリング計画について以下のような記載がなされている。

汚染している可能性のある場所の環境調査の間の重要な決定事項一つはサンプリング地点の選択である。多くの方法が採用できるが、もっとも一般的な以下の方法を利点欠点を含めて詳しく議論する必要がある。(中略)

単純なランダムサンプリング

単純なランダムサンプリングはサーベイする地域全体のサンプリング地点のランダムな選択である。(中略)この方法は狭い地域に有効な統計的に正当なサーベイ方法である。(中略)

系統的なサンプリング

このサンプリング計画においては格子を調査場所に配置し、サンプルを規則正しい間隔で集める。(中略)この方法は格子の出発位置がランダムに選ばれていて、放射能がランダムに分布しているならば統計的に正しい。(中略)

層化抽出法

層化抽出法は調査場所を予備的な調査に基づいて、大雑把に言って同程度の汚染レベルの領域(または層)に分割することからなっている。(中略)この方法は完全に地域を網羅することと汚染パターンを検出することの両方を可能とする。

今回の事故の汚染マップの作成に当たっては、政府が中心となり、専門家により信頼性の高い調査が行われた。今後は、自治体レベルあるいは個別に行われる自主的な調査が増えてくることが予想される。放射性物質で汚染された土壤の対策を判断する上で、サンプリング地点の選定はそのデータの代表性を確保するために重要なファクターであり、土壤汚染対策法の中でも示されているように、今後は公的なマニュアルの中にその方法論のガイドラインが示されることが望ましいと考える。

4.3 放射能濃度の表示方法に関する課題

現在、土壤中の放射性物質の濃度を表す方法としては、主として文部科学省が行っている沈着量(Bq/m^2)と農林水産省が行っている含有量(Bq/kg)の二つの方法が用いられている。また、試料の採取深度も異なっている。現在これらの数値は単純には比較できない状態で公開されているため、今後、関連性の整理が必要になると考える。

4.4 空間線量率と放射性物質濃度の関係に関する課題

空間線量率(Sv/h)と放射能濃度との関係は各機関が行ったサンプリング調査で検討されており、良い相関が認められているが、今回の放射性物質による土壤汚染の主な核種であるセシウム134・137は、半減期が異なること、放出する γ 線のエネルギーも異なることから、空間線量率の減衰等の将来予測のためには核種ごとの線量換算係数の整理が必要と考える。

参考文献

- 1) 文部科学省：放射能測定法シリーズ No.13, 1982, No.16, 1983, No.24, 1992.
http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/pdf_series_index.html
- 2) 環境省：除染関係ガイドライン, 2011.
- 3) IAEA：Generic Procedures for Monitoring in a Nuclear or Radiological Emergency, 1999.