

NaIシンチレーターによる土壌中放射性 セシウム濃度測定の精度向上と検証のた めの取り組み

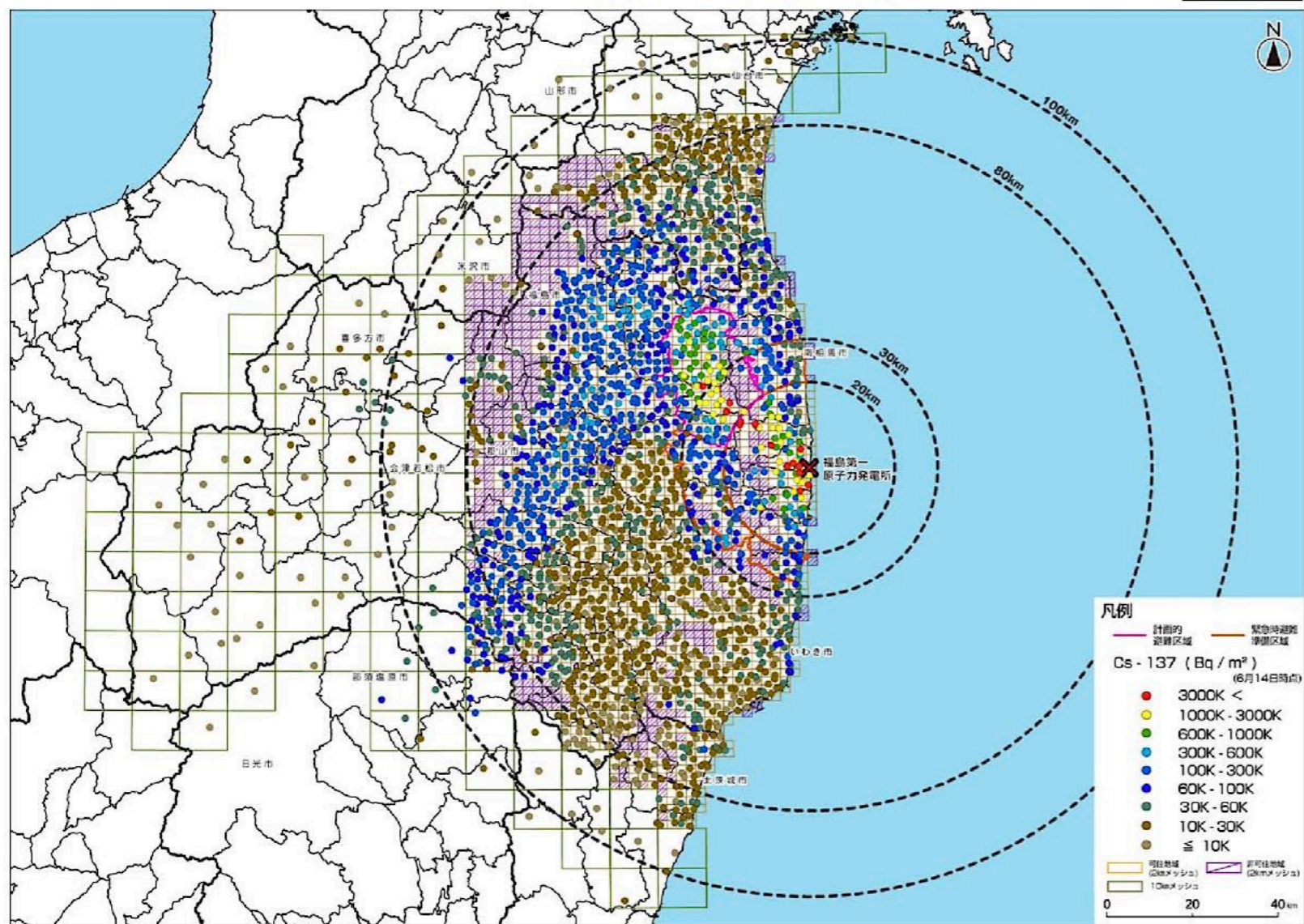
～市民放射能測定所の連携強化を目指して～

みんなのデータサイト運営委員会

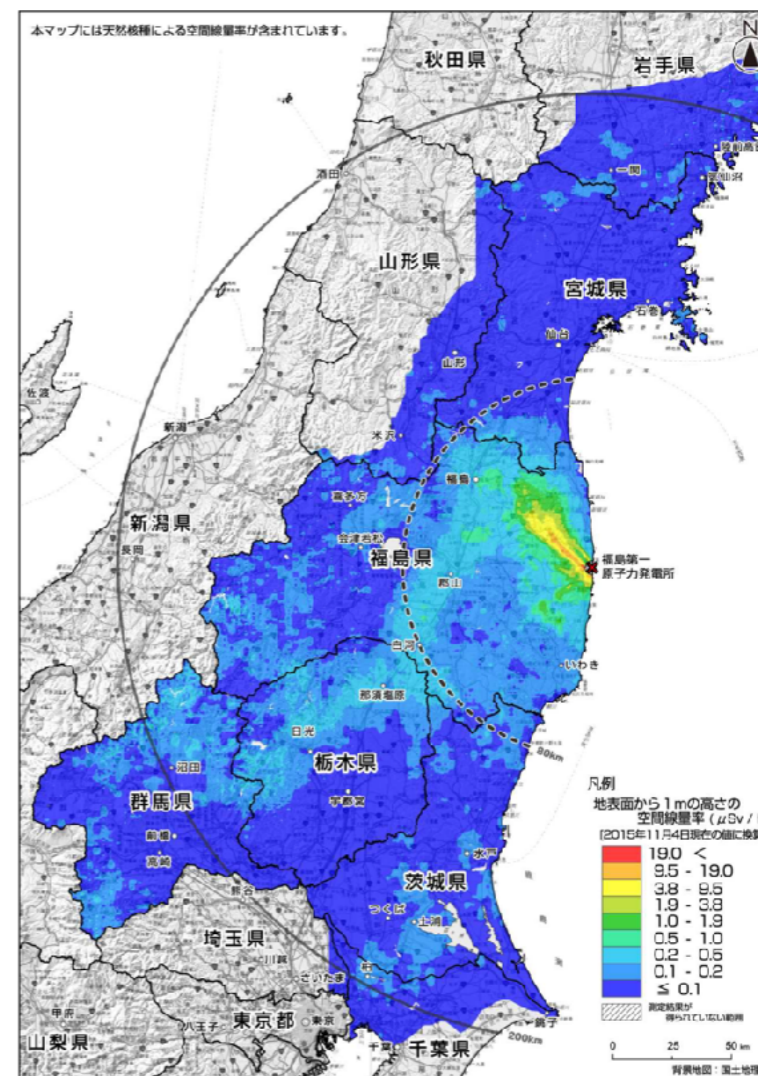
政府が実施した最初で最後の土壌調査 (2013年6月)

セシウム137の土壌濃度マップ

別紙4-2



福島県及びその近隣県における空間線量率の分布マップ
(平成27年11月4日時点(事故から約56か月後))

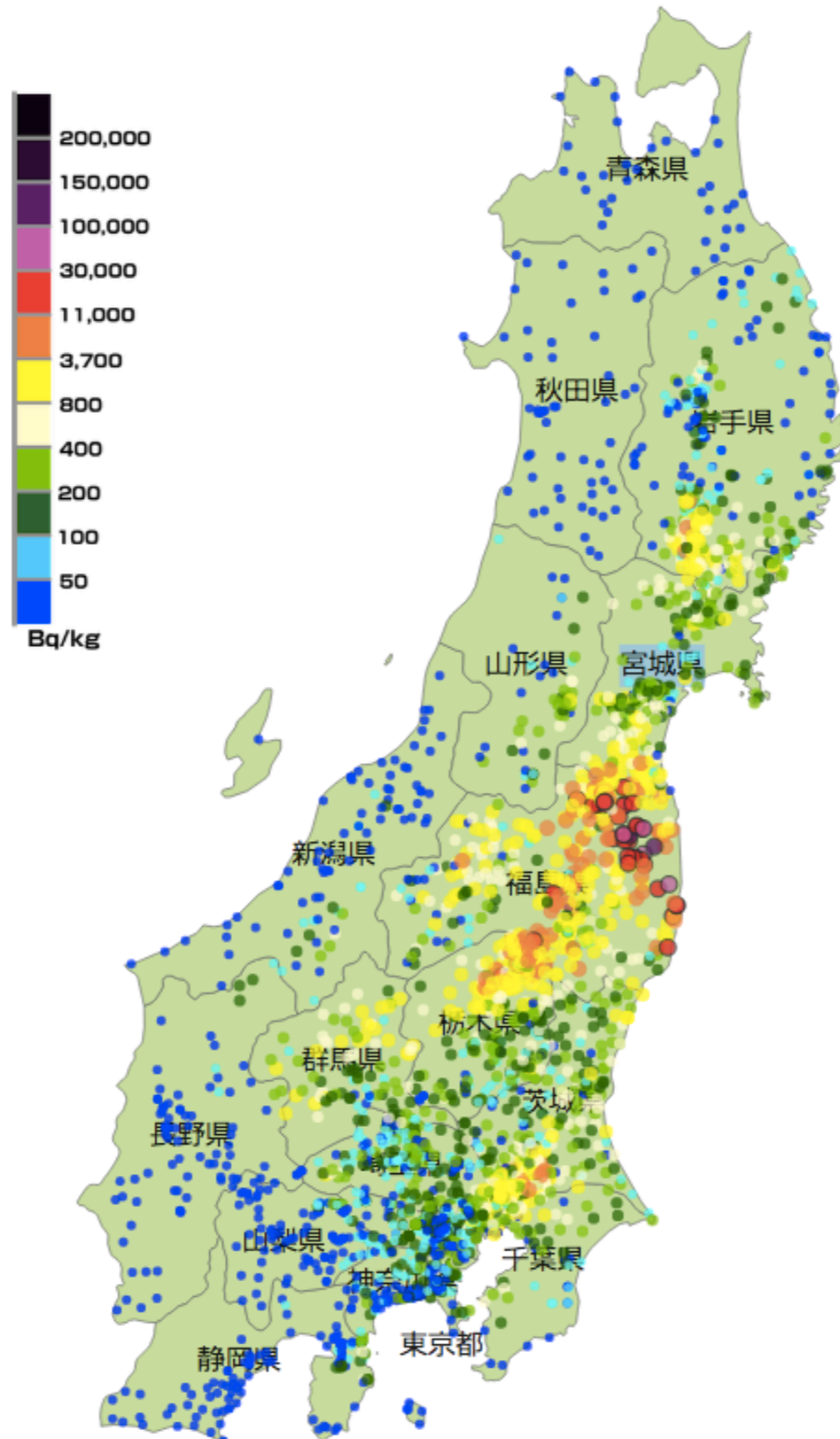


航空モニタリング

福島IFから概ね100k圏のみ調査

その後、政府は土壌測定をサボタージュして、上空300mからの空間線量率調査しかやらなくなった。

東日本土壌ベクレル測定プロジェクト



2014年秋～市民の力で約3,200地点の生活圏にある一般土壌を
広域調査し公開

データの正確性を保証する仕組み



「みんなのデータサイト」では、高木基金のサポートにより作成した4種類の基準玄米を用いた精度確認を実施し一般食品データーの正確性を確保。

一方、土壌検体では多量に含まれる天然核種の影響と考えられるデーターのバラツキが発生し正確性確保への対応に迫られた。

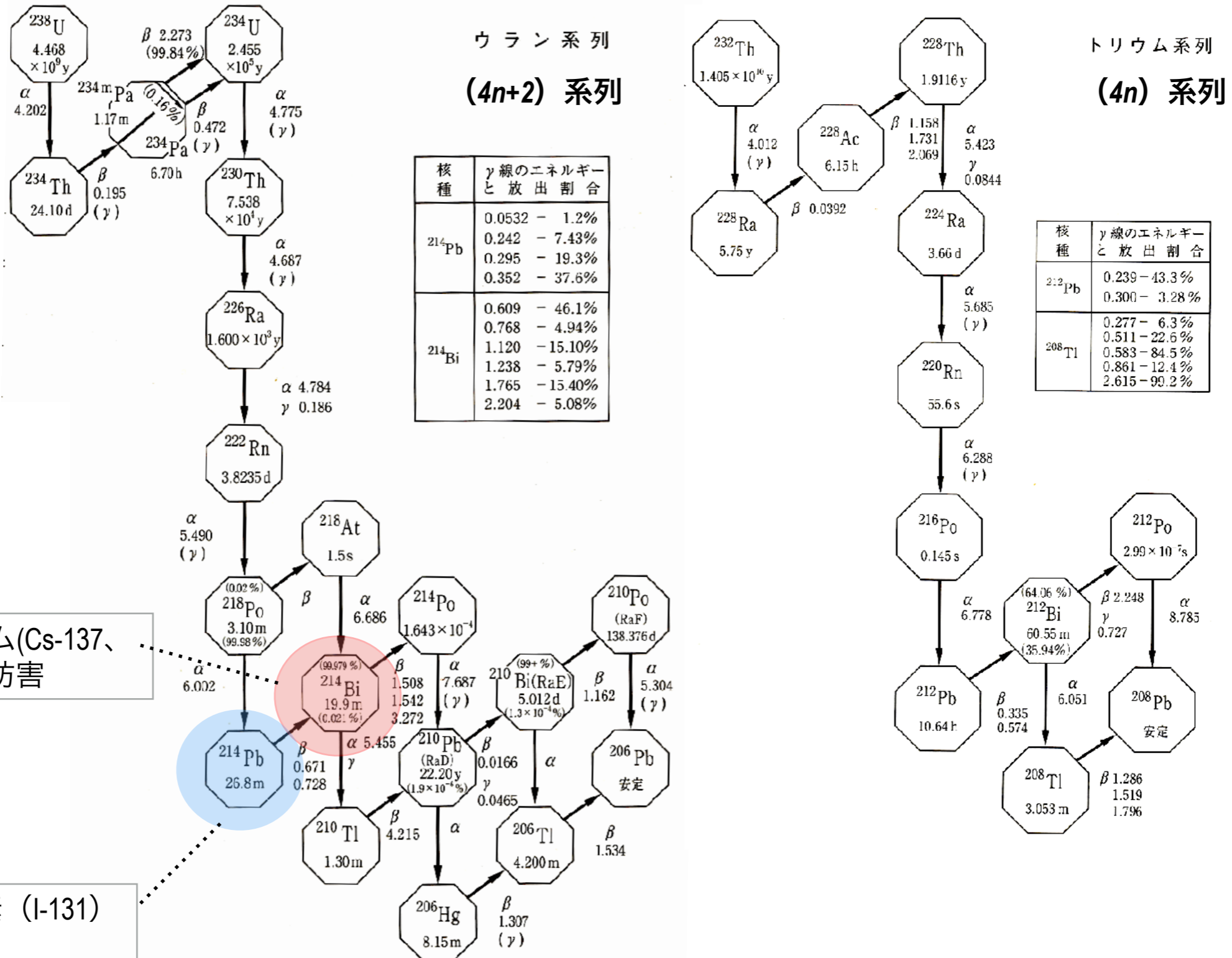
検討課題1：放射性セシウム定量を妨害する天然核種（ウラン系列・トリウム系列）の問題

- NaIシンチレーターは食品用に設計されているため、メーカー出荷時に土壤を用いた機器校正は実施されていない。
- 土壤にはウラン系列・トリウム系列核種が多量に含まれており放射性セシウム定量（Cs-137、Cs-134）に影響を及ぼす。
- 特に50Bq/kg未満の濃度範囲で、Cs-134の誤検出・過大評価が頻発する。
- 誤検出・過大評価の程度は天然核種の含有量とNaIシンチレーター機種も依存する。
- 134/137比がおかしくなり、混乱・誤解を生じる。

⇒NaIシンチレーター機種ごとの傾向を把握し、原因の究明と対応策が必要

土壤中に多量に含まれる天然核種

日本アイソトープ協会11版アイソトープ手帳から引用



放射性セシウム(Cs-137、Cs-134)定量を妨害

放射性ヨウ素 (I-131) 定量を妨害

一般食品と比べて土壌には岩石由来の天然核種が多量に含まれている。

検討課題2：高濃度検体を少量容器で測定した際の精度の問題

- 高濃度検体は、できるだけ少量の採取と移動に止める必要がある。
- 測定所が用意した安価な使い捨て少量容器に現地で土壌を充填することを想定。
- メーカー出荷時に一般食品用に少量容器で校正されていても、土壌検体で精度が維持されているかは保証がない。 更に、メーカー出荷時に少量容器で校正されていないNaIシンチレーター機種も存在する。
- マイクロホットスポットに対応するためにも、少量容器を用いた際の土壌測定の精度確認が必須。

➡**NaIシンチレーター機種ごとに少量容器を用いた際の精度確認を実施。**

低濃度土壌のクロスチェックに参加した測定器

機種名	略号	測定所数	台数
ATOMTEX AT1320A	AT	10ヶ所	12台
非電化工房 CSK-3i-X	CSK	3ヶ所	3台
EMF-Jpan EMF211	EMF	3ヶ所	3台
応用光研 FNF-401	FNF	2ヶ所	2台
日立アロカ CAN-OSP-NAI	アロカ	1ヶ所	1台
計		19ヶ所	21台

MDS登録測定所の60%が参加



少量容器を用いた精度確認に参加した測定器

機種名	略号	確認容器	測定所数	台数
ATOMTEX AT1320A	AT	しっかりパックF (100ml)	10ヶ所	12台
非電化工房 CSK-3i-X	CSK	V7 円筒形容器 (90ml)	3ヶ所	3台
EMF-Jpan EMF211	EMF	V2 円筒形容器 (70ml)	2ヶ所	2台
応用光研 FNF-401	FNF	V2 円筒形容器 (70ml)	2ヶ所	2台
日立アロカ CAN-OSP-NAI	アロカ	V2 円筒形容器 (70ml)	1ヶ所	1台
Captus 3000B	Captus	U8 円筒形容器 (100ml)	1ヶ所	1台
計			19ヶ所	21台

土壌の選択と検体調製

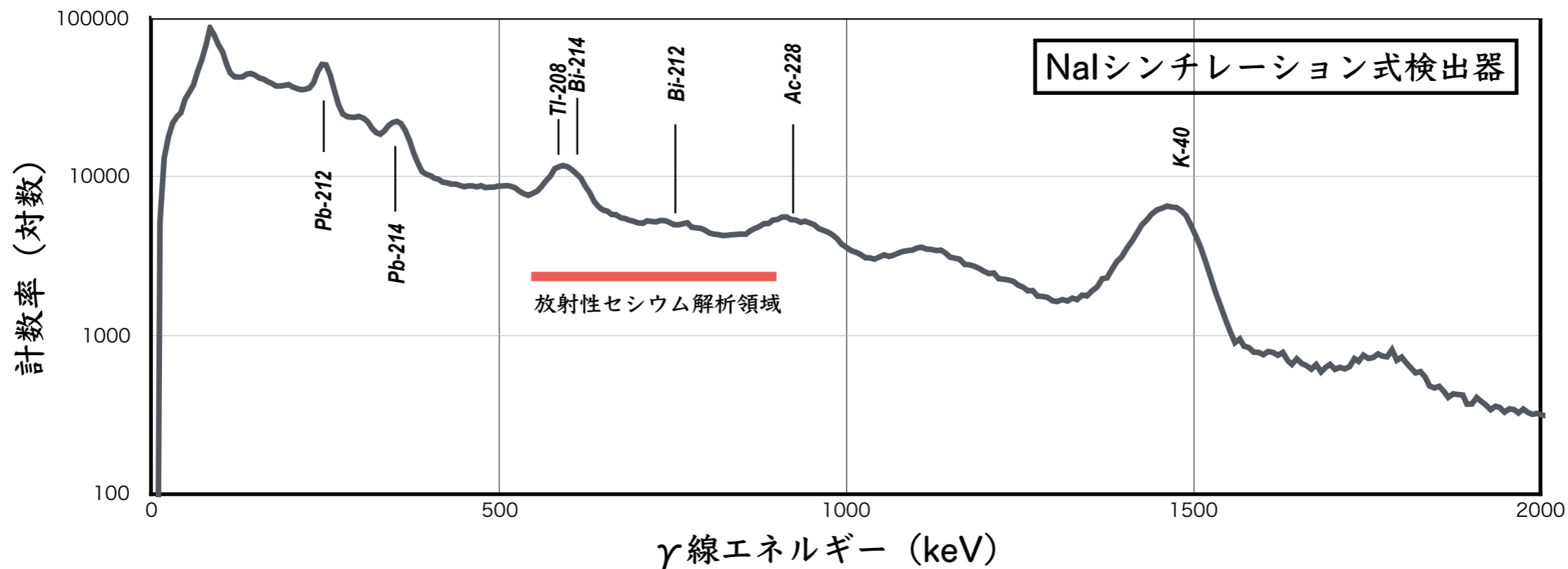
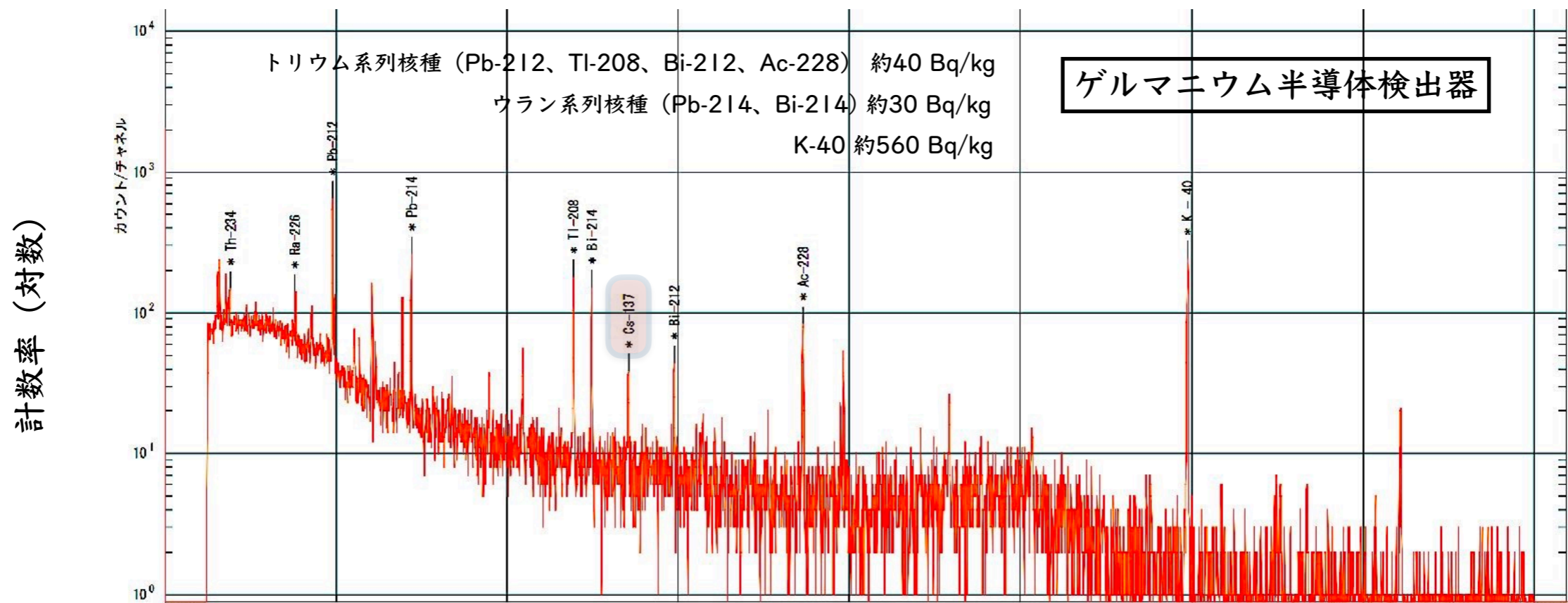
「汚染が少ない土壌が大量に必要」

「高価な大型乾燥機、分粒装置、混和器を購入する余裕はない」

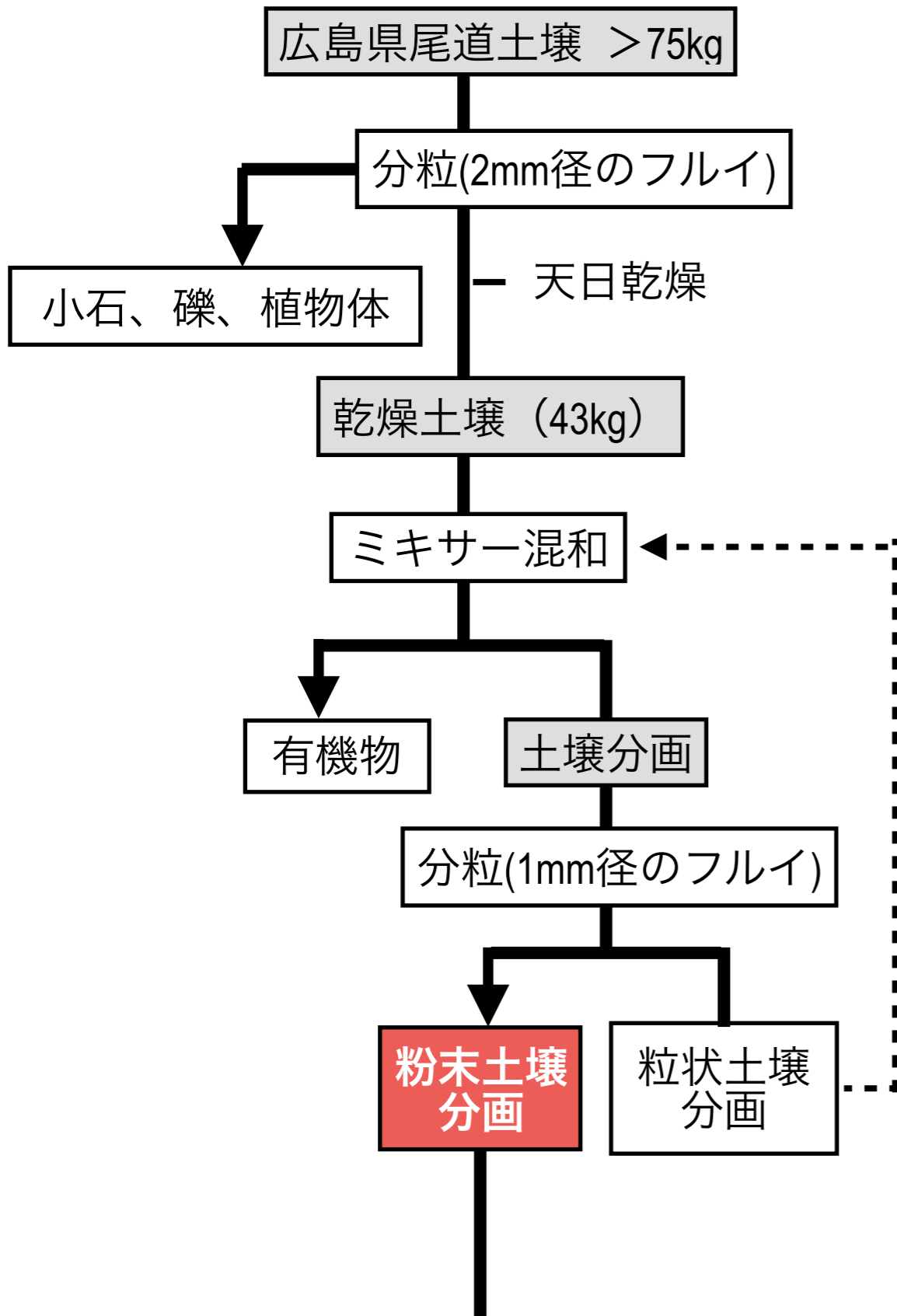
「作業場所の確保」

市民放射能測定所間の連携でクリア

広島・尾道土壌の γ 線スペクトル



低濃度土壌調製①



土壌採取
(おのみち-測定依頼所- 広島県)

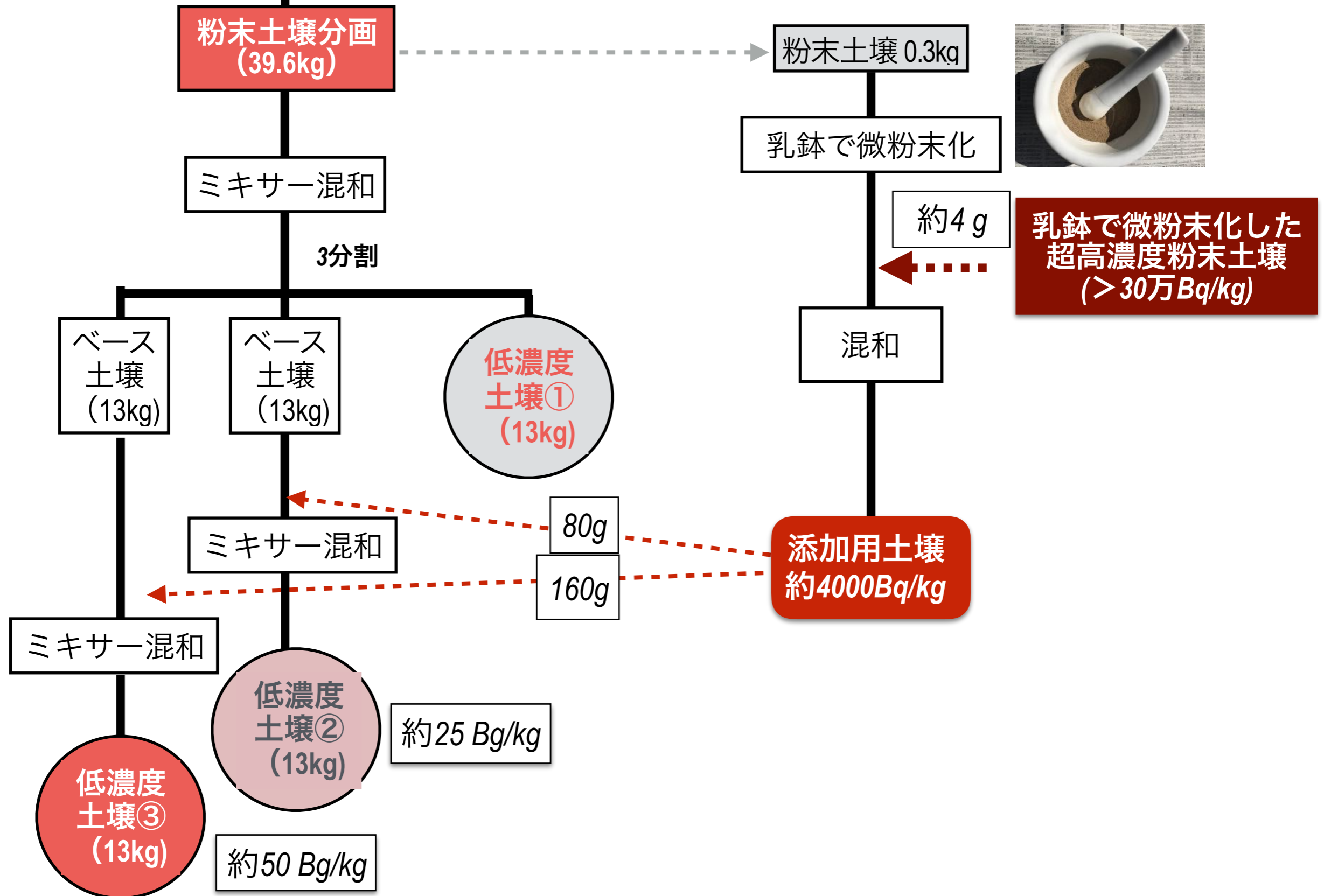


分粒作業・天日乾燥
(森の測定室 滑川 埼玉県)

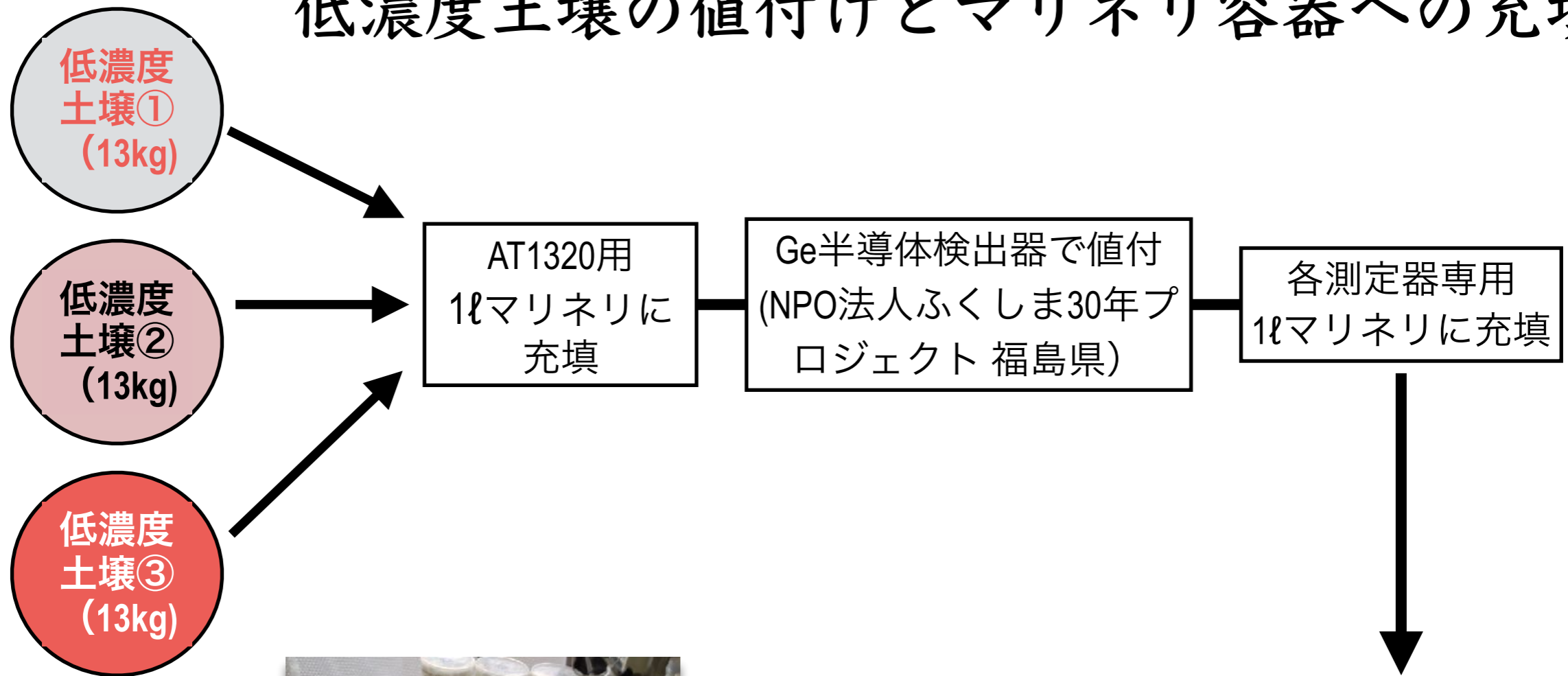


ミキサー混和
(あがのラボ 新潟県)

低濃度土壌調製②



低濃度土壌の値付けとマリネリ容器への充填



8セット(24個)

AT1320A(3)

CSK-3i(2)

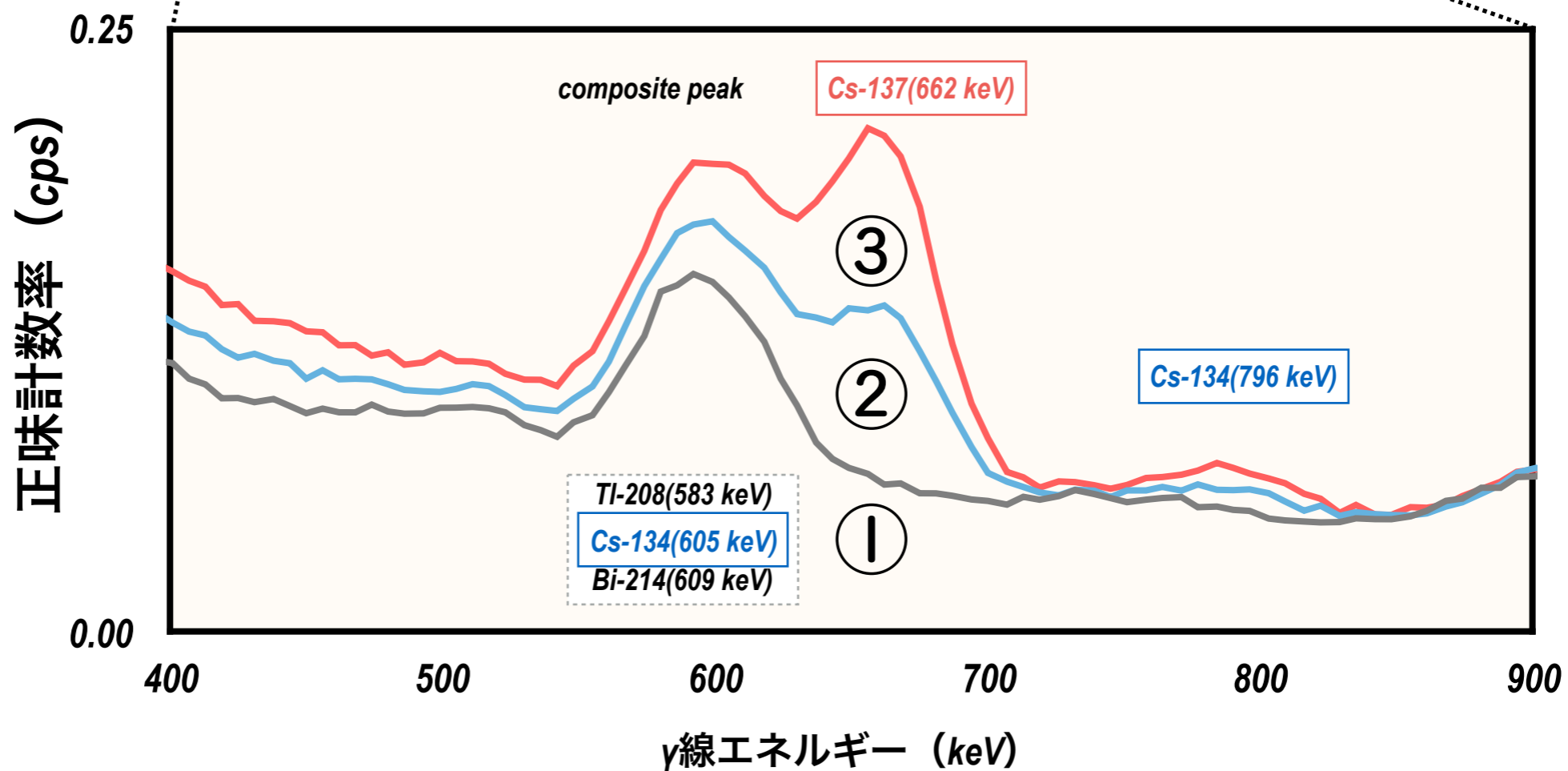
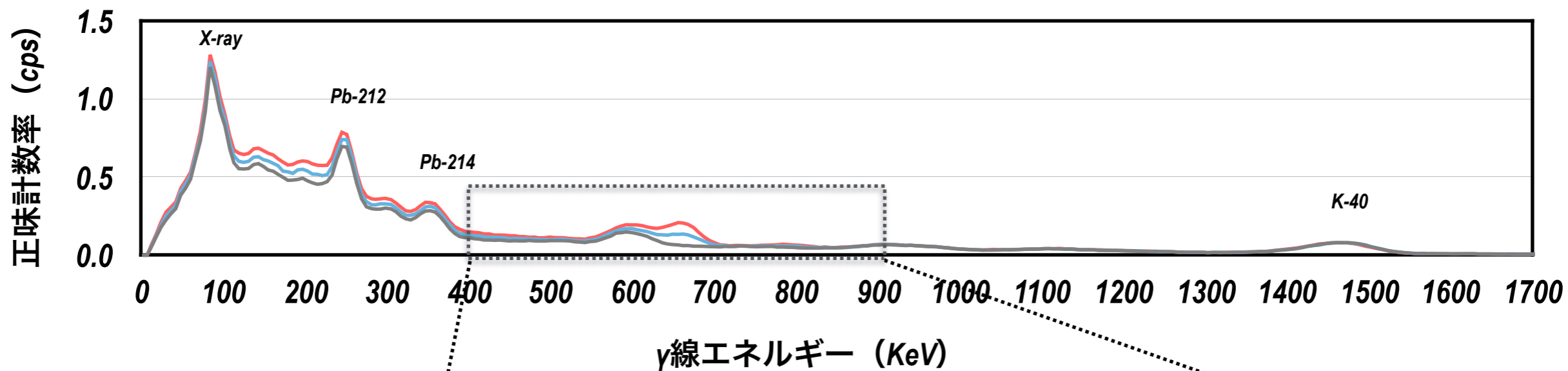
EMF-211

FNF-401

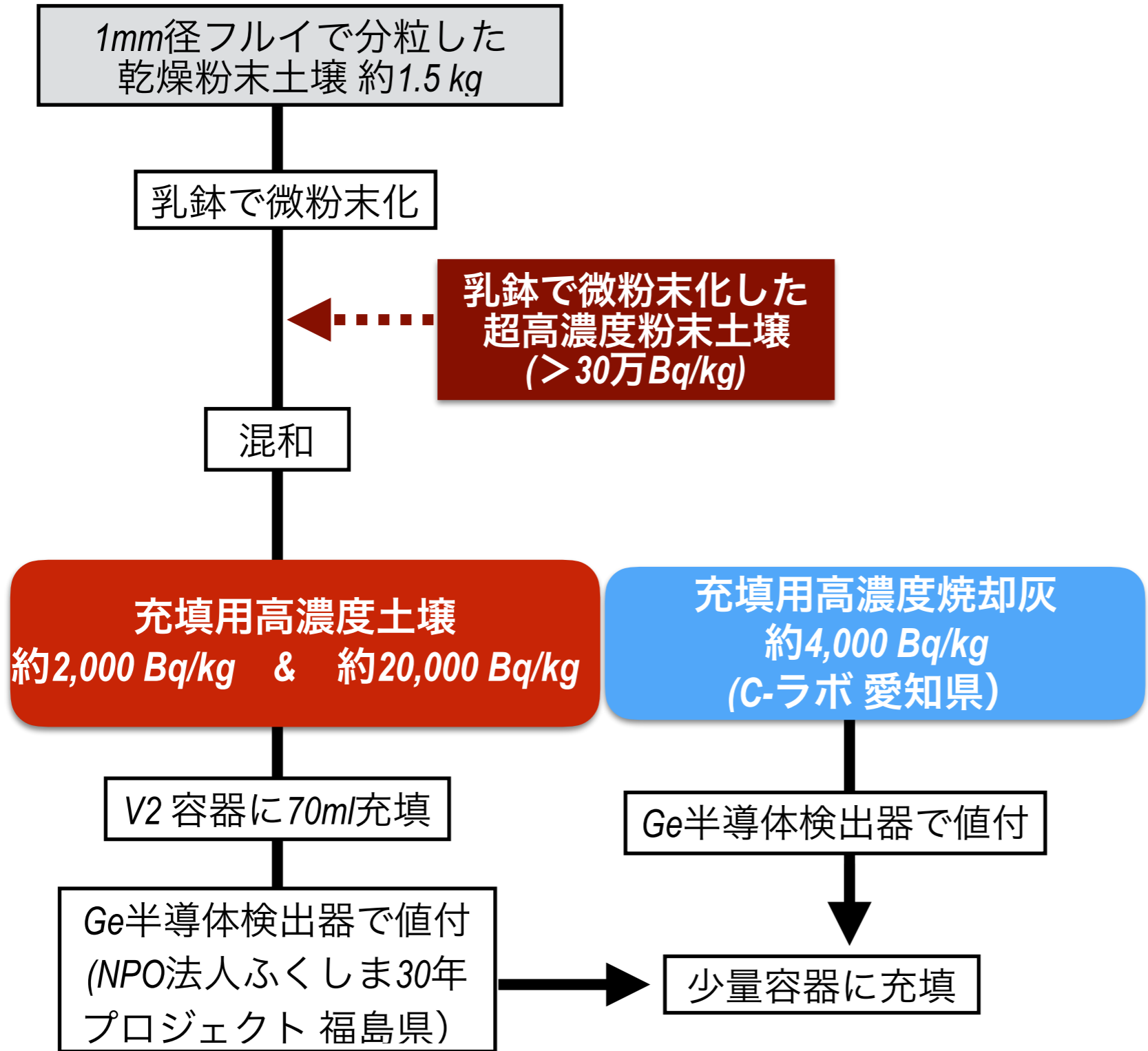
日立アロカ



低濃度土壌①～③の γ 線スペクトル(NaI)

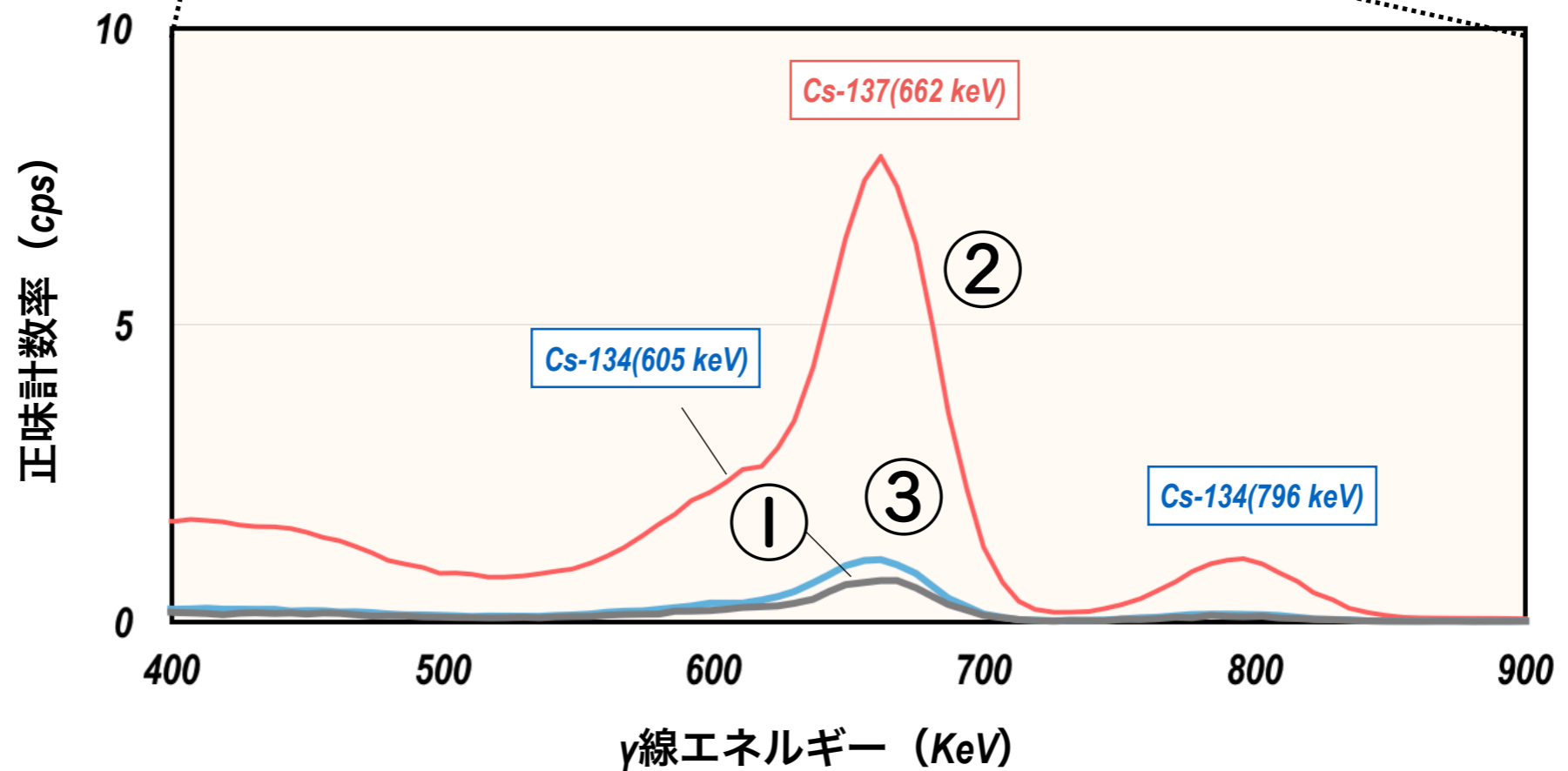
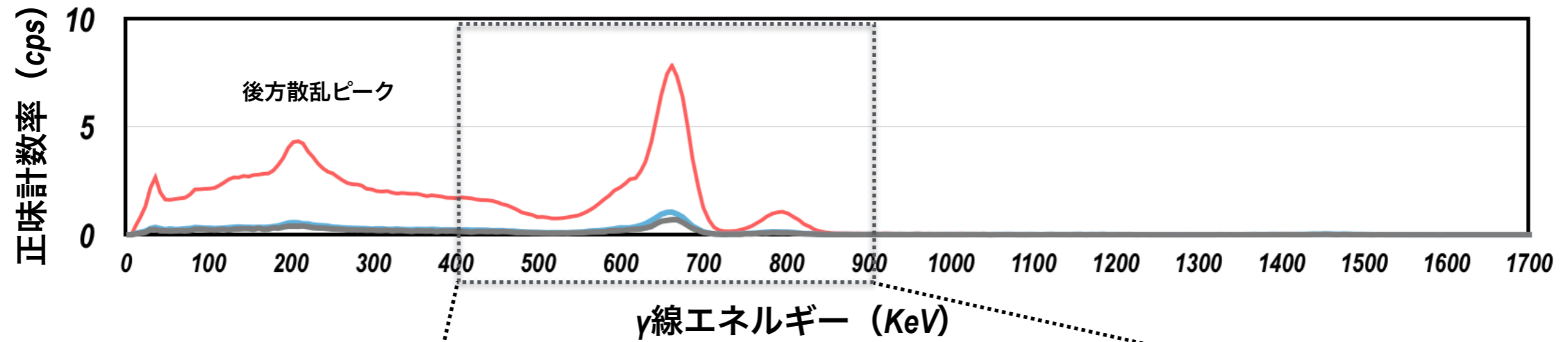


高濃度土壌の調製と少量容器への充填



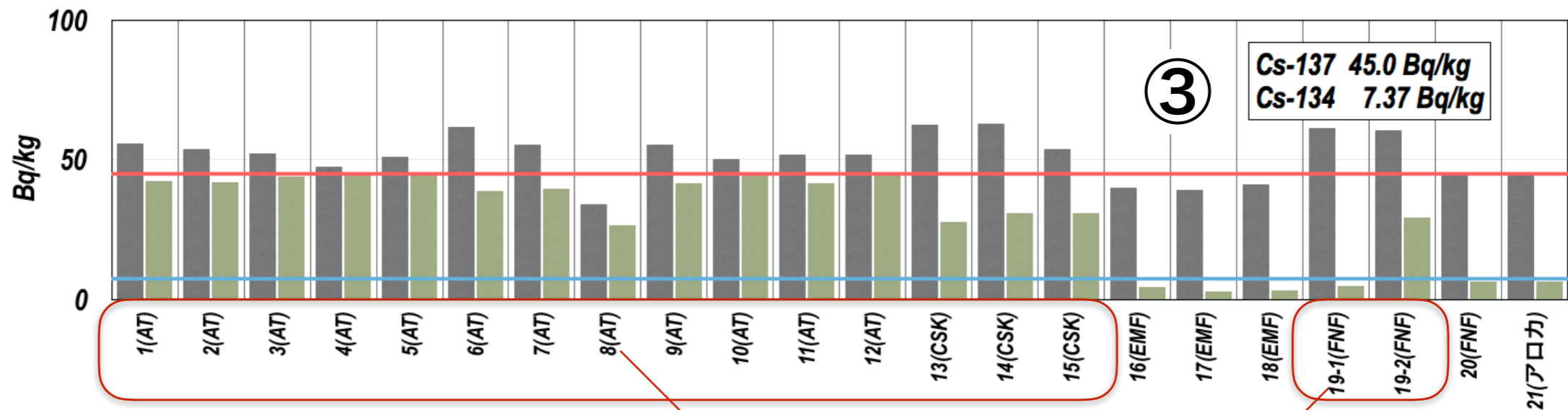
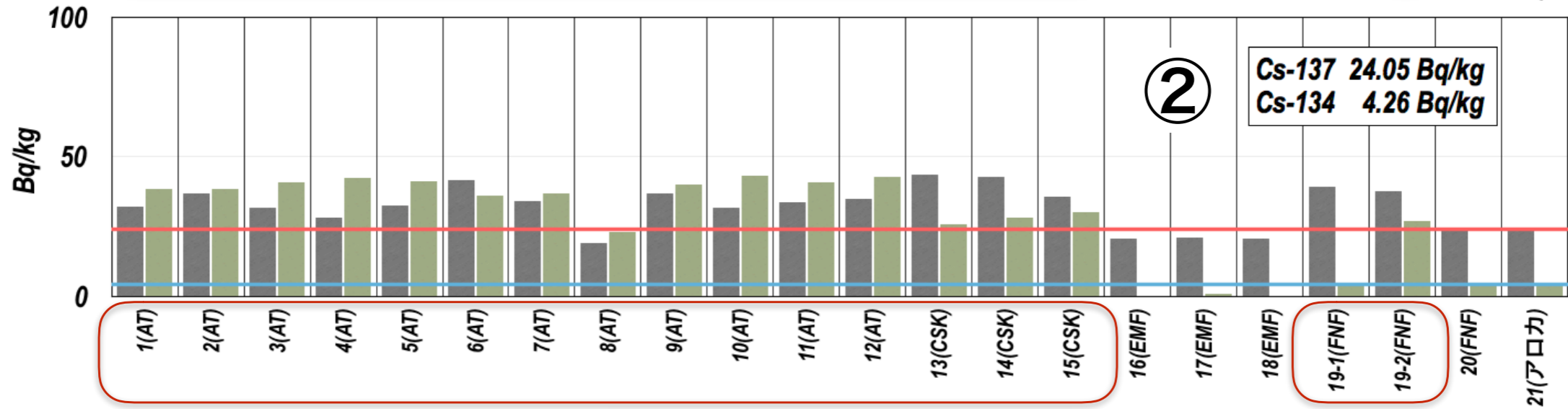
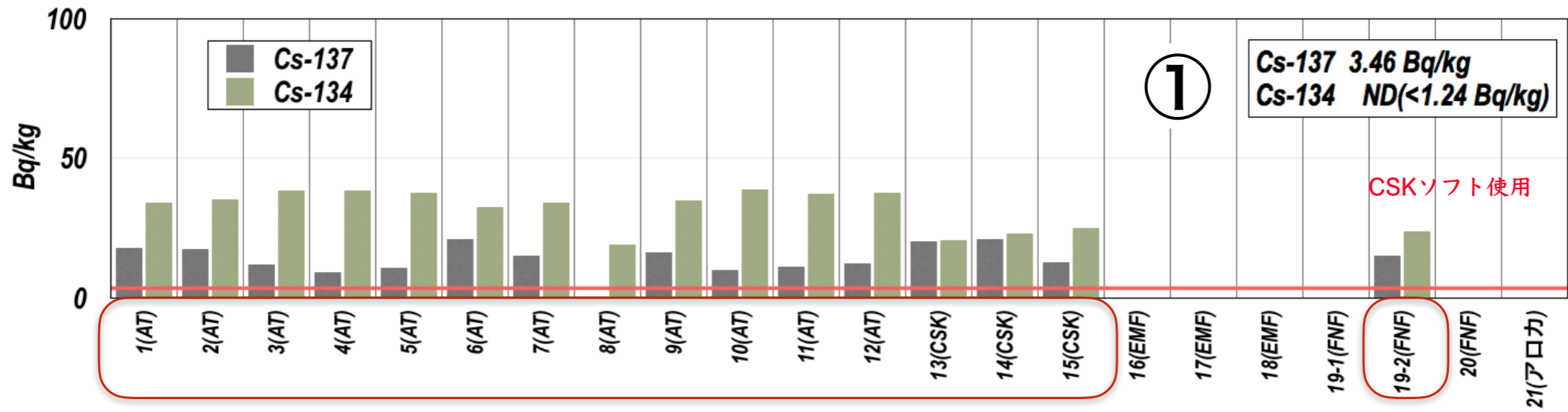
9セット(27個)
しっかりパックF(3)、V2(3)
V7(2)、U8

高濃度土壌①②、高濃度焼却灰③の γ 線スペクトル(NaI)

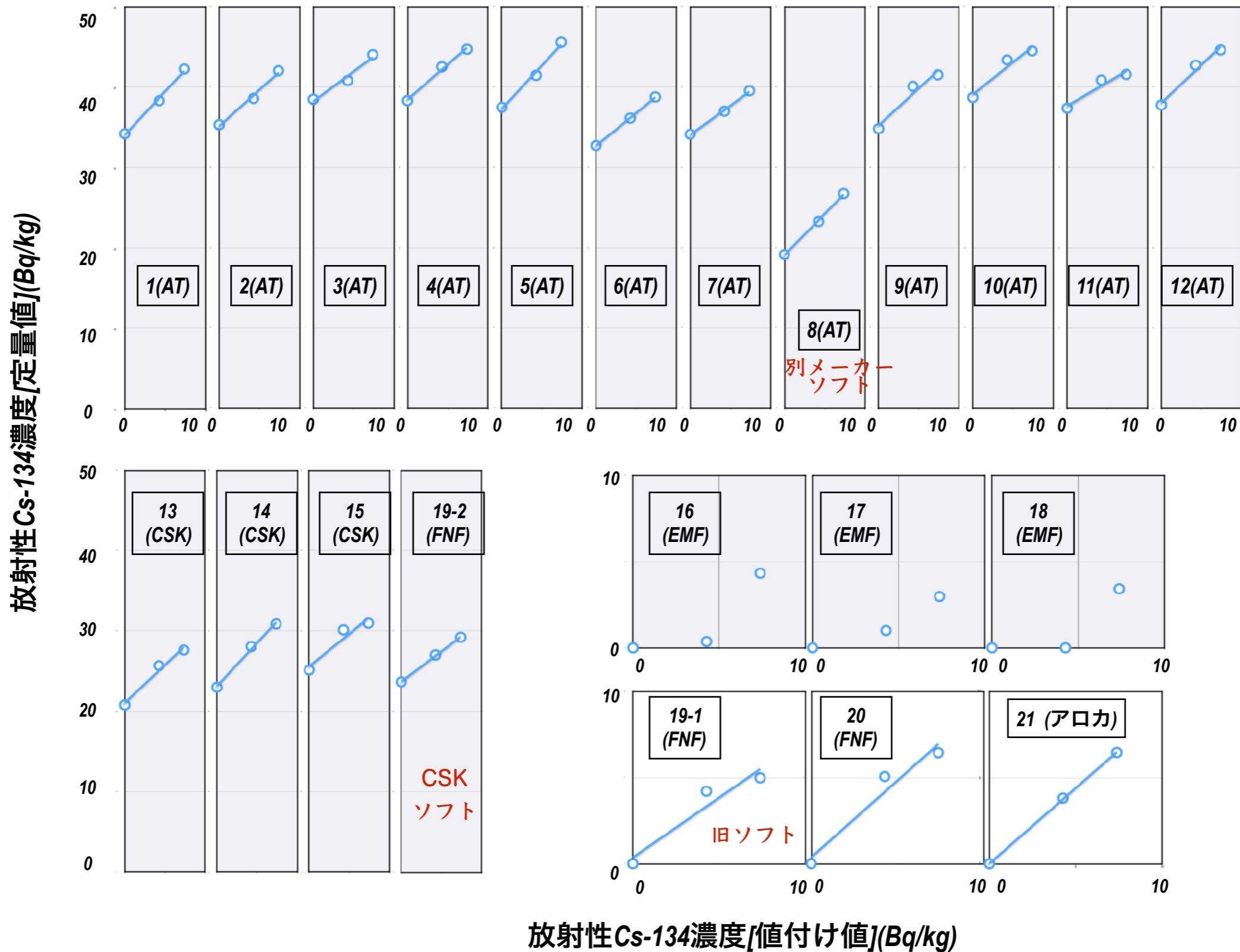


低濃度土壌のクロスチェックの 結果

放射性セシウム低濃度土壌の測定結果



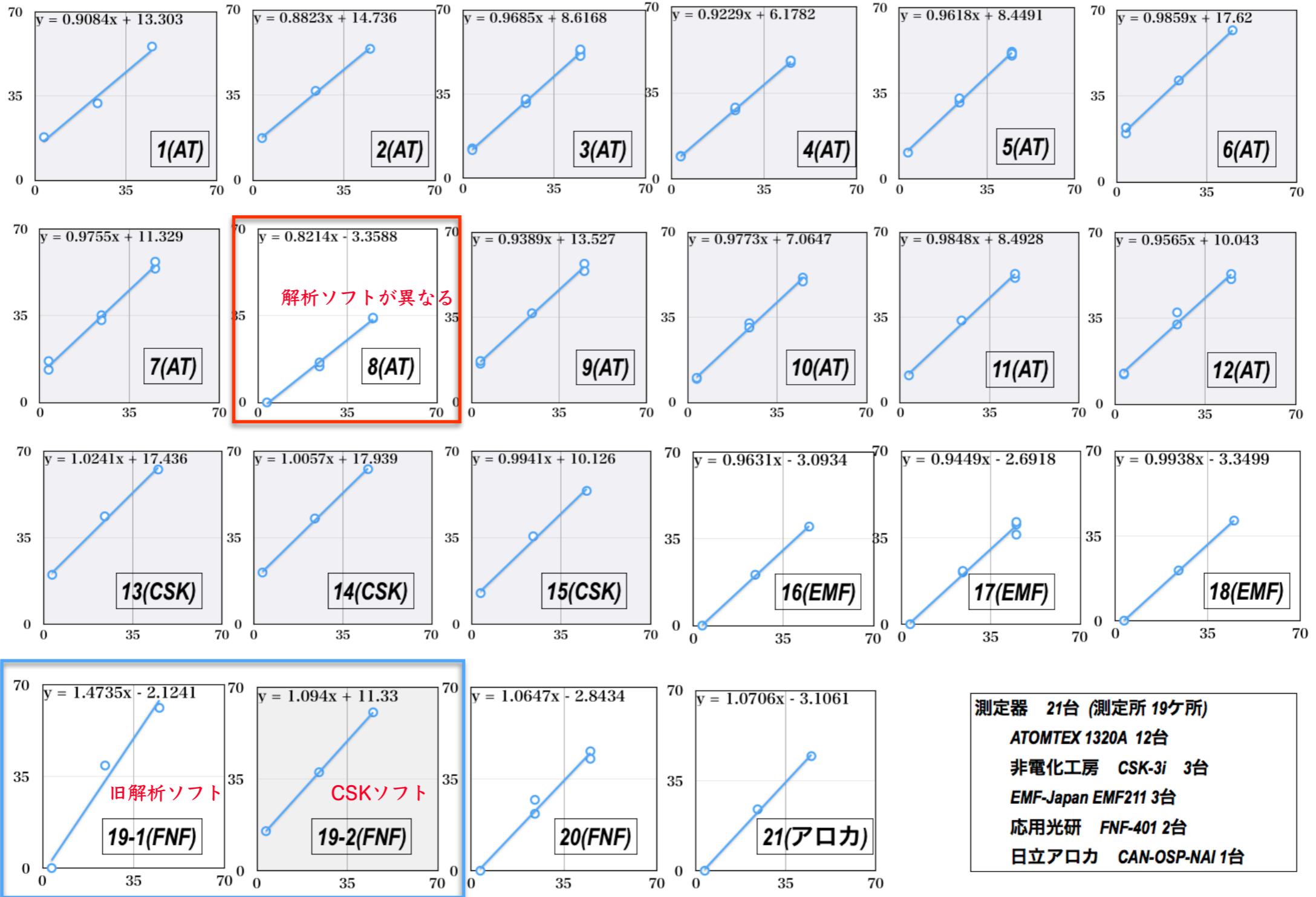
放射性セシウム(Cs-134)定量値の濃度依存性



AT、CSK機を用いた土壤中の低濃度Cs-134の定量値には信頼性が無い

放射性セシウム (Cs-137) を含む土壌測定値の直線性

放射性Cs-137濃度 [定量値] (Bq/kg)



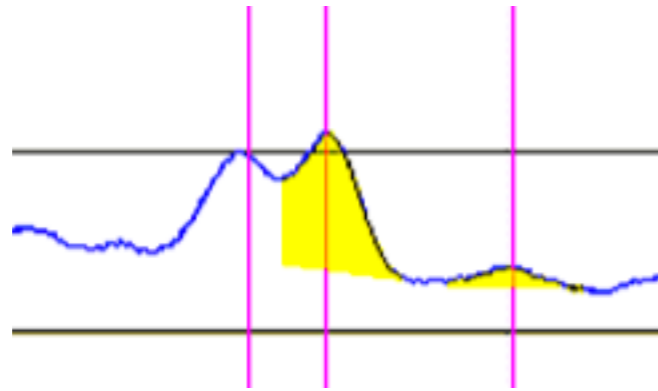
測定器 21台 (測定所 19ヶ所)
 ATOMTEX 1320A 12台
 非電化工房 CSK-3i 3台
 EMF-Japan EMF211 3台
 応用光研 FNF-401 2台
 日立アロカ CAN-OSP-NAI 1台

放射性Cs-137濃度 [値付け値] (Bq/kg)

Cs-137過大評価は解析ソフトに依存

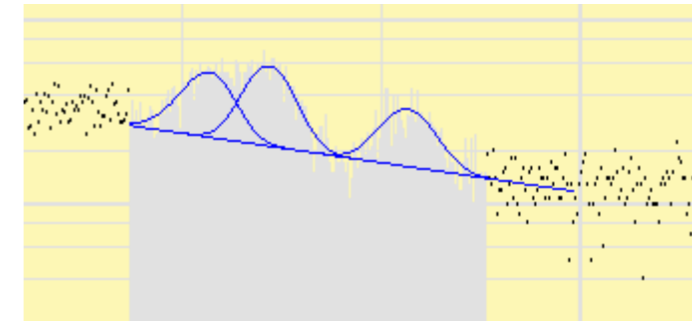
機種ごとのセシウムピーク解析法の違い(推定)

EMF



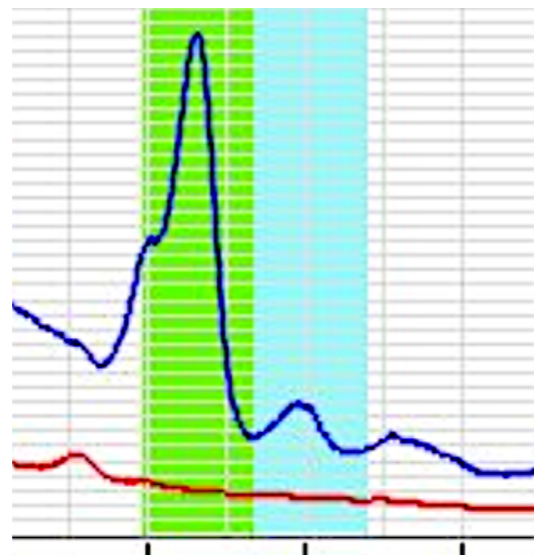
妨害を避けてCs-137解析領域(ROI)を設定

FNF (?), アロカ

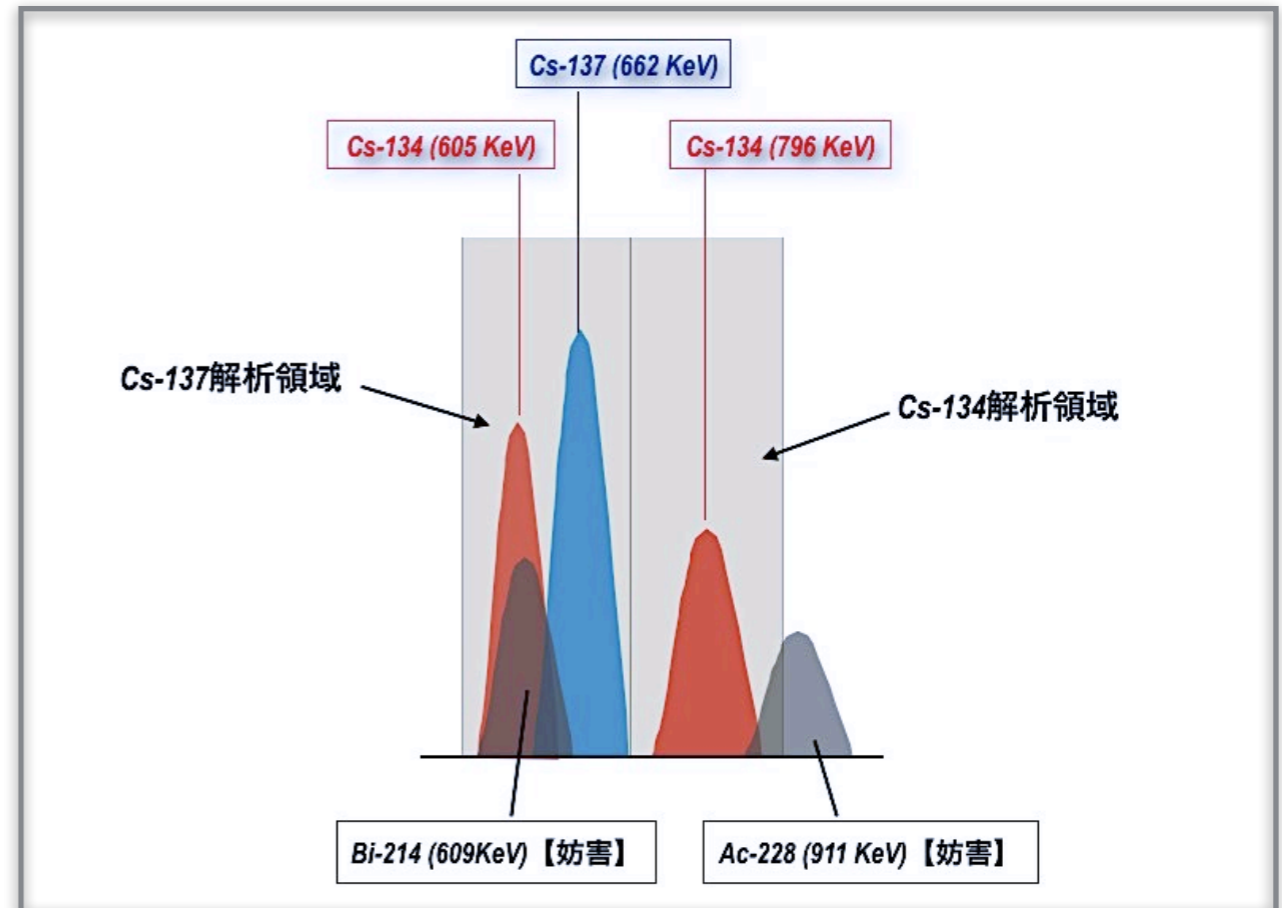


関数適合法

AT、CSK



寄与係数法 (差し引き法)

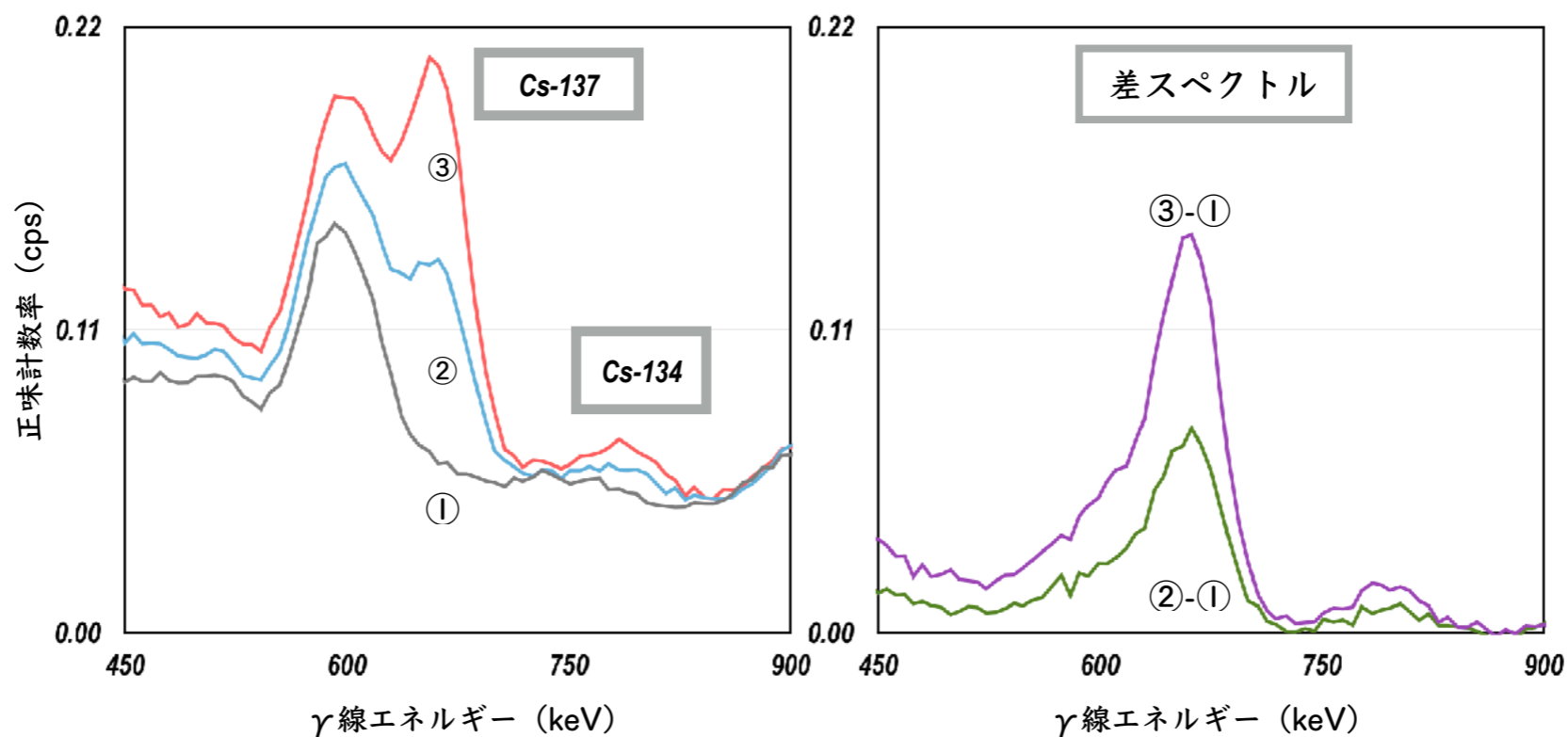


寄与計数法はROIを広く設定しているので計数を稼ぐには有利だが天然核種の影響を受けやすい方法

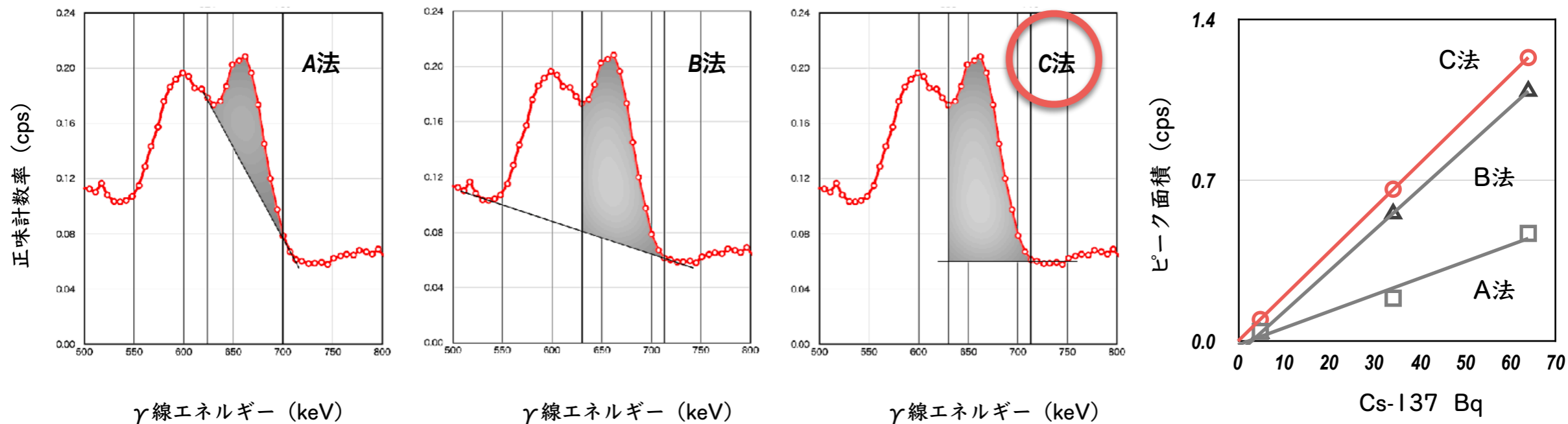
➔ 誤検出・過大評価が頻発するAT、CSK機に新たな解析法の開発が必要

AT機に於ける新たなCs-137 解析法の検討

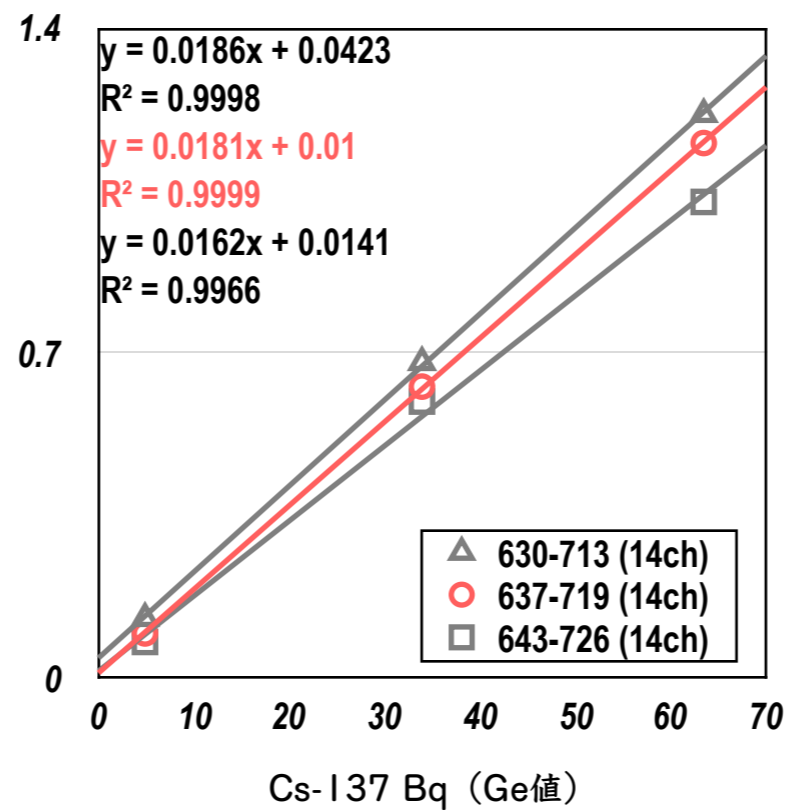
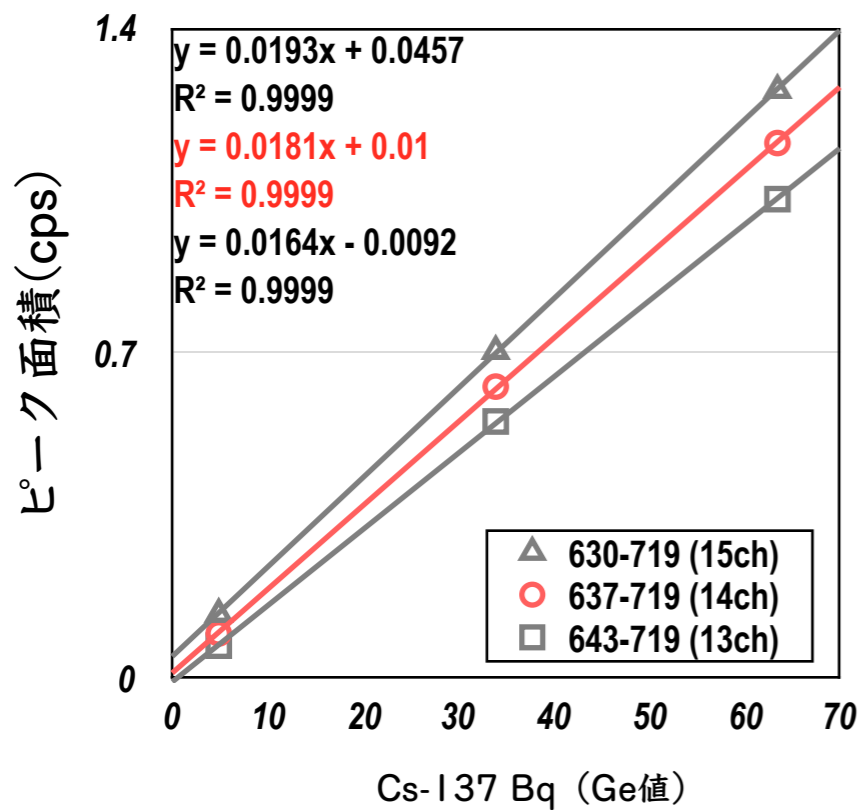
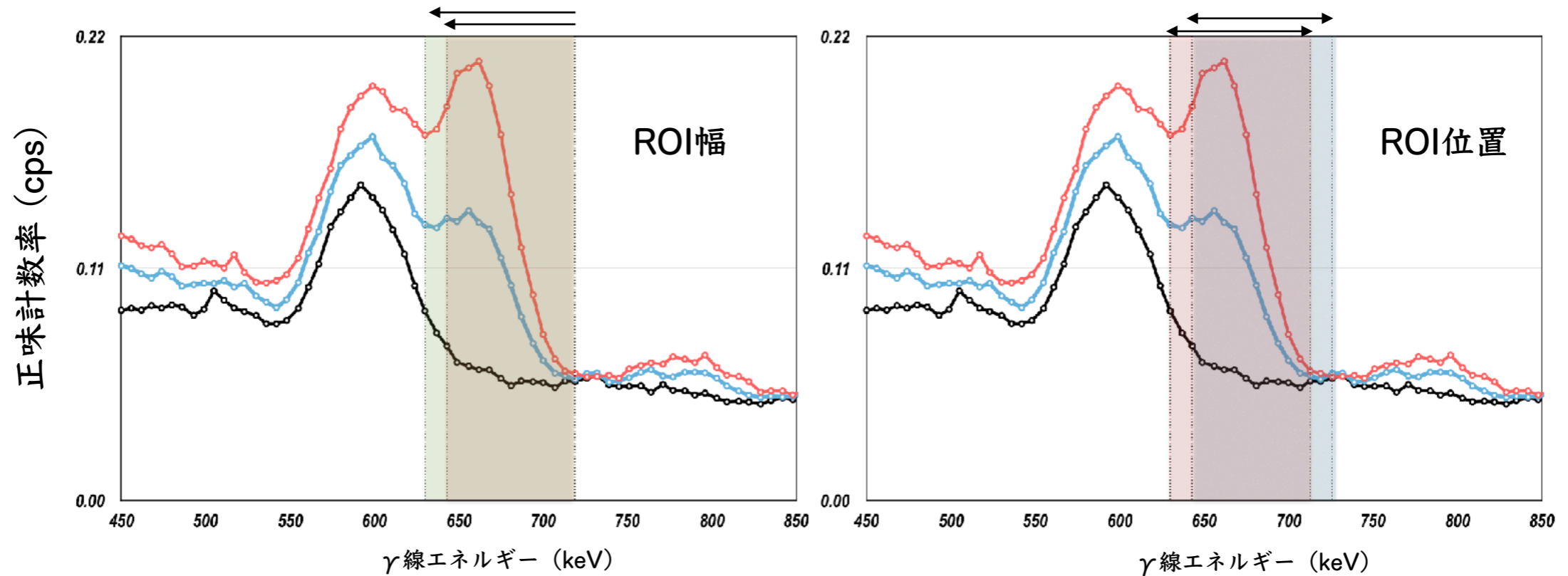
低濃度土壌①～③を用いた放射性セシウムによる γ 線スペクトル変動域の確認



Cs-137単独のピーク面積算出法の選択



Cs-137解析領域 (ROI) の検討



ピーク面積(cps)とCs-137 (Bq)との関係から最も相関性の高い直線回帰式を得た。

$$\text{ピーク面積(cps)} = 0.0181 \times (\text{Cs-137 Bq}) + 0.01$$

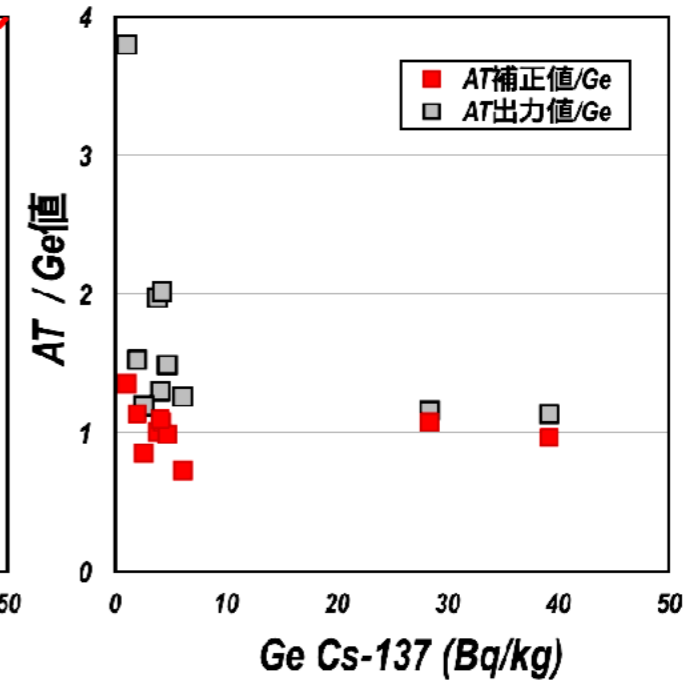
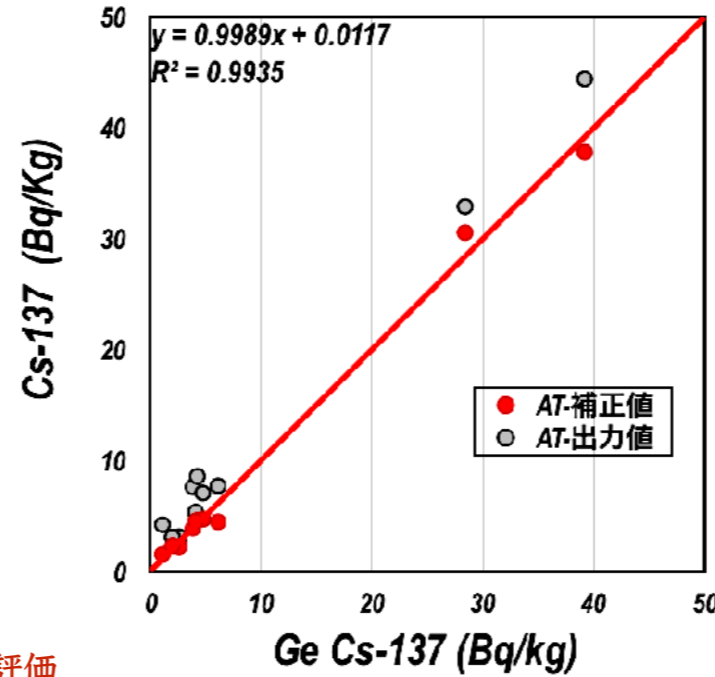
一般土壌への適用

アドフューテック社製解析ソフト搭載AT機 (AT(5))

Ge	Ge	AT(5)	AT(5)	補正值
Cs-137 Bq/kg	Cs-134 Bq/kg	Cs-137 Ba/ka	Cs-134 Ba/ka	Cs-137 Bq/kg
39.20	1.2	44.4	21.6	37.80
1.10	ND	4.18	14.3	1.49
3.84	ND	7.58	13.9	3.86
4.24	0.6	8.55	11.9	4.56
4.73	ND	7.04	11.1	4.67
6.11	ND	7.69	8.58	4.44
28.40	0.9	32.9	8.19	30.54
4.10	ND	5.32	6.78	4.49
2.60	ND	3.1	5.67	2.21
2.00	ND	3.05	4.79	2.27

過大評価

誤検出+過大評価

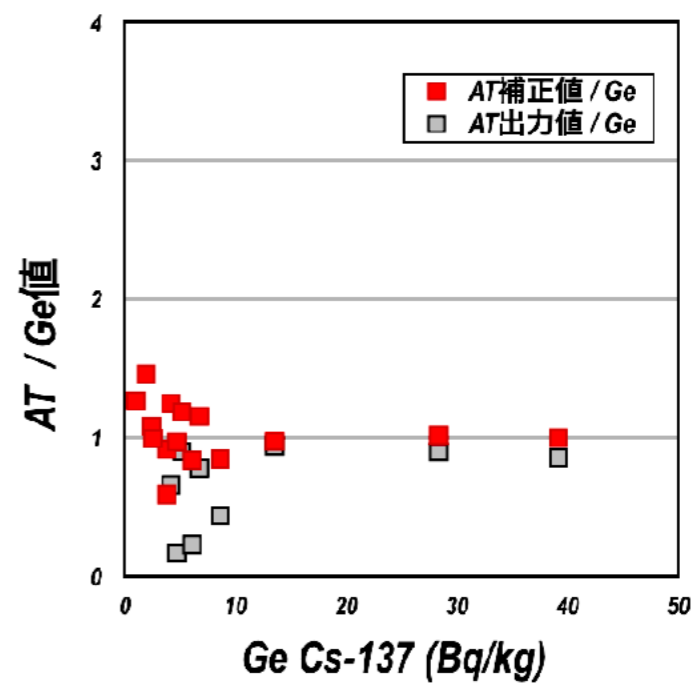
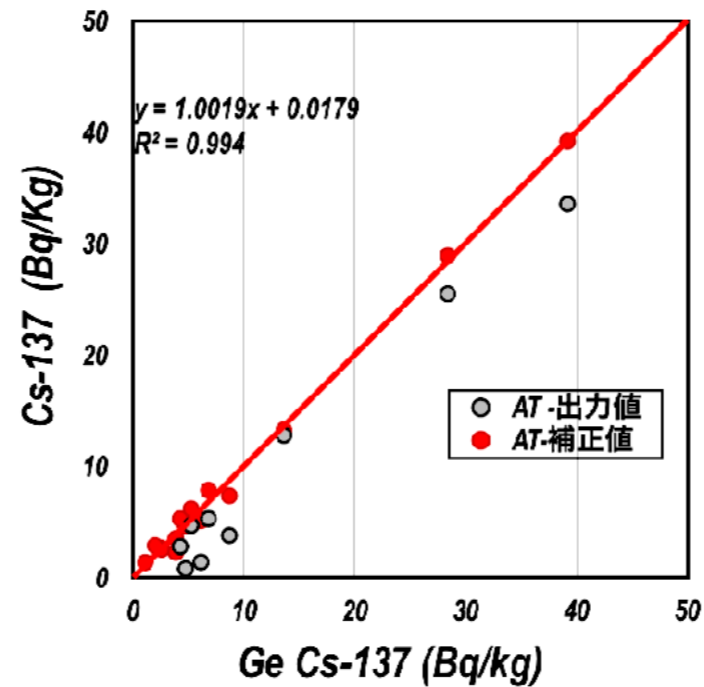


日本環境調査研究所製解析ソフト搭載AT機 (AT(8))

Ge	Ge	AT(8)	AT(8)	補正值
Cs-137 Bq/kg	Cs-134 Bq/kg	Cs-137 Ba/ka	Cs-134 Ba/ka	Cs-137 Bq/kg
39.18	1.19	33.6	16.0	39.22
8.66	ND	3.8	7.3	7.36
3.84	ND	ND	6.5	3.52
4.73	ND	0.8	5.6	4.61
4.23	ND	2.8	5.5	5.29
3.84	ND	ND	5.1	2.27
28.38	0.89	25.5	4.2	28.94
1.08	ND	ND	3.7	1.37
6.79	ND	5.3	3.2	7.86
2.46	ND	ND	2.9	2.67
2.56	ND	ND	2.9	2.55
6.11	ND	1.4	2.6	5.14
5.21	0.55	4.7	2.1	6.19
1.97	ND	ND	1.9	2.88
13.59	0.96	12.8	ND	13.28

過少評価

誤検出+過大評価

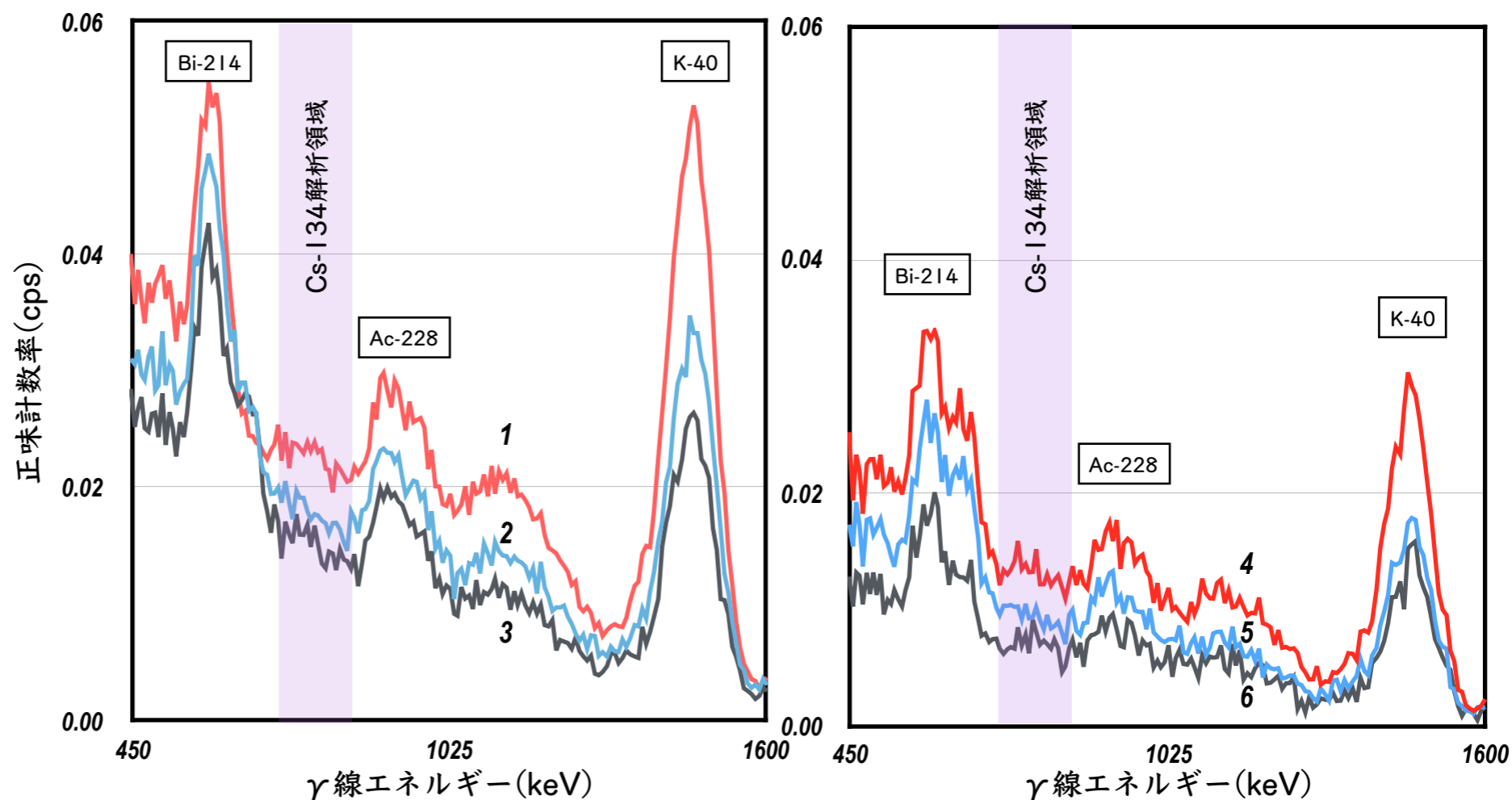


AT機に於けるCs-134誤検出の要因の推定

ゲルマニウム半導体検出器 (Ge) でCs-134が不検出の土壌検体をAT機で測定した際の γ 線スペクトル

	Ge Cs-134 Bq/kg	AT Cs-134 Bq/kg
1	ND	14.5
2	ND	14.2
3	ND	11.5
4	ND	9.12
5	ND	6.88
6	ND	5.97

Ge 下限値 0.5 Bq/kg



Ge半導体検出器でCs-134が不検出の検体でもAT機では誤検出が発生する。
 誤検出の大きさはCs-134の解析領域のベースラインの高さに強く依存する。
 ベースラインを押し上げる要因は土壌に含まれるウラン系列・トリウム系列核種と放射性カリウム (K-40)
AT機では放射性カリウム (K-40) による寄与の差し引きができていない可能性が高い!

低濃度土壌のクロスチェックから判明したこと

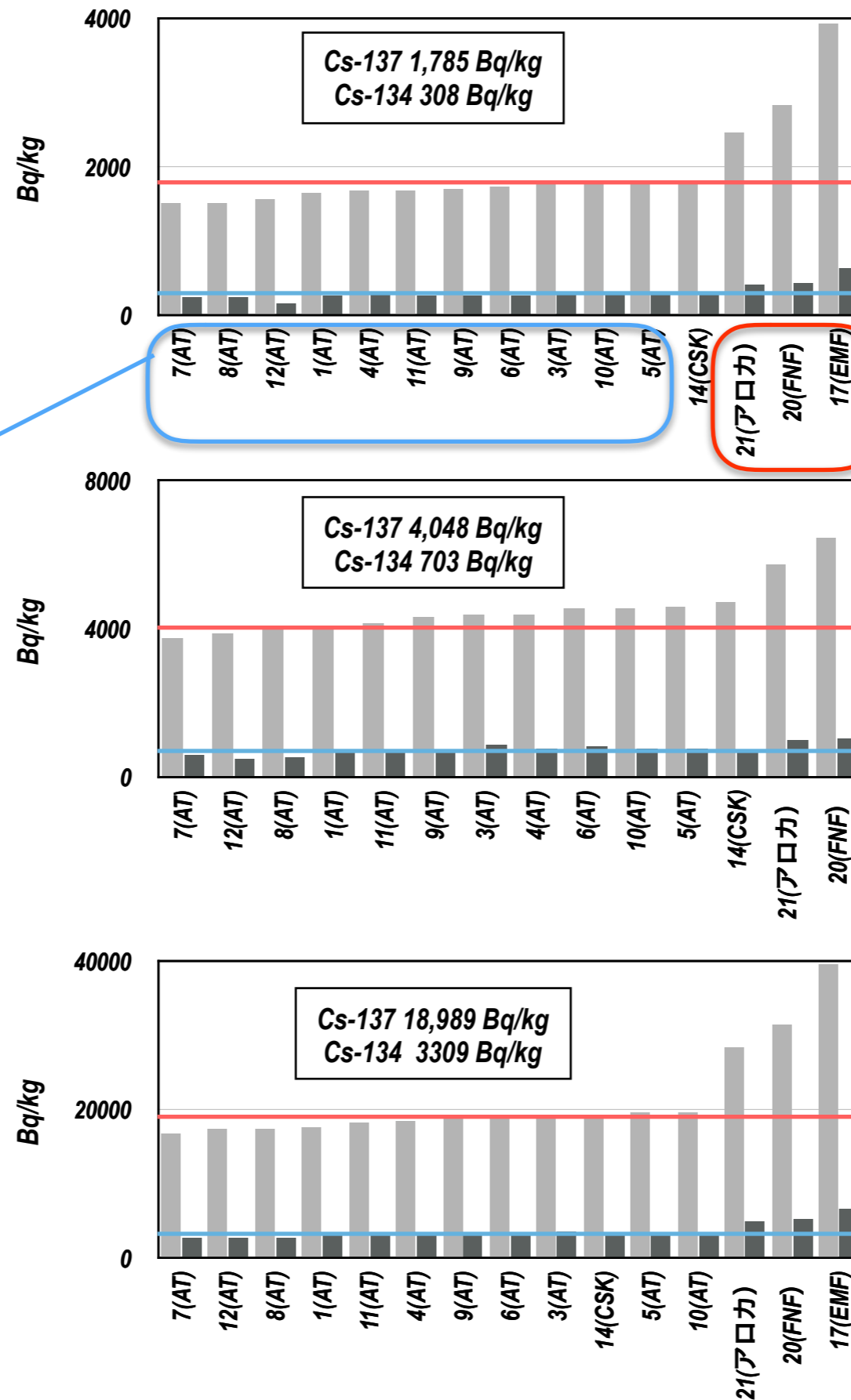
- 検討したNaIシンチレーター機種の中でEMF、FNF、日立アロカは天然核種の影響を受けにくいことが判った。
- 一方、AT、CSKでは土壌中に共存する天然核種（K-40も含む）の影響で、Cs-134の誤検出や過大評価が発生していることが再確認された。
- また、AT、CSKではCs-137の低濃度領域においてCs-137の過大評価（使用ソフトによっては過小評価）も発生していることが新たに判明した。
- その原因は、メーカー提供の解析ソフトに組み込まれている解析法が原因であると推測できる。
- 新たに開発したCs-137単独ピーク解析法によりAT機のCs-137の過大評価（あるいは過小評価）をある程度解消できたが、Cs-134で発生する問題の根本的な解決には至らなかった。同様の解析法を採用するCSK機でも本補正法は適応可。
- 低濃度Cs-134の値は、Cs-137の過大評価（又は過小評価）を補正した後に、「Cs-137値を用いた減衰理論比（Cs-134/Cs-137比）による補正」で導き出すこれまでの方針を継続する。

少量容器を用いた精度確認の 結果

少量容器を用いた機種別精度確認結果

AT機は出荷時にメーカー作製の少量容器(100ml)で校正済みだが、本検討で使用した容器(しっかりパックF)と材質・形状が若干異なる。

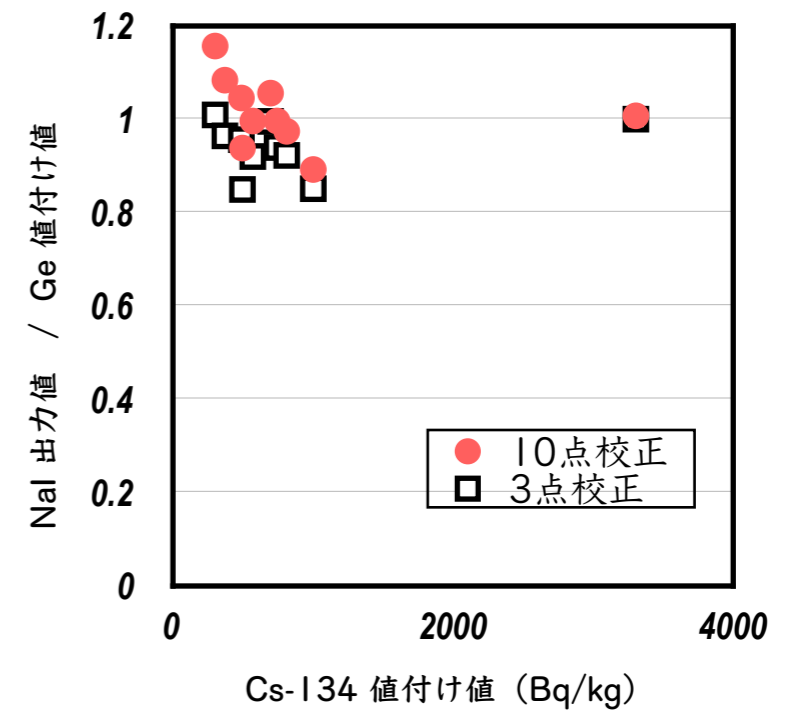
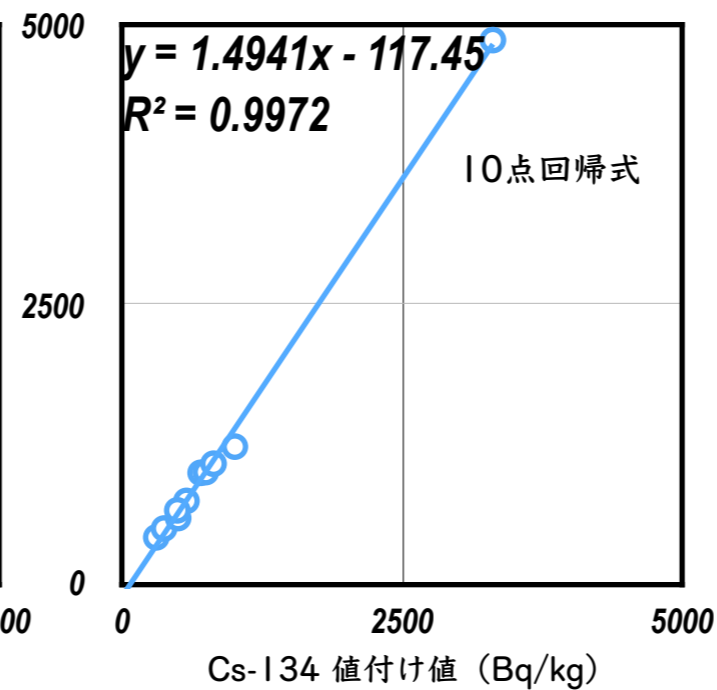
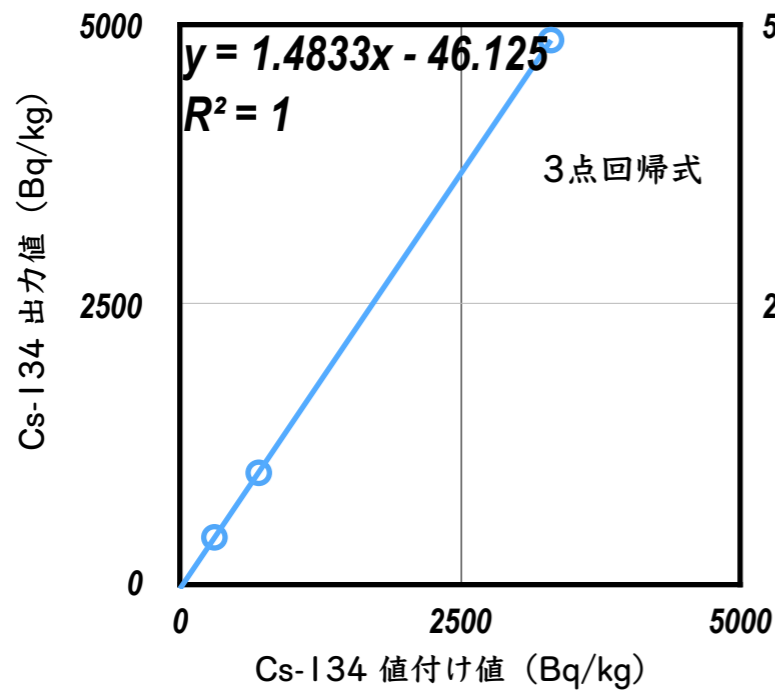
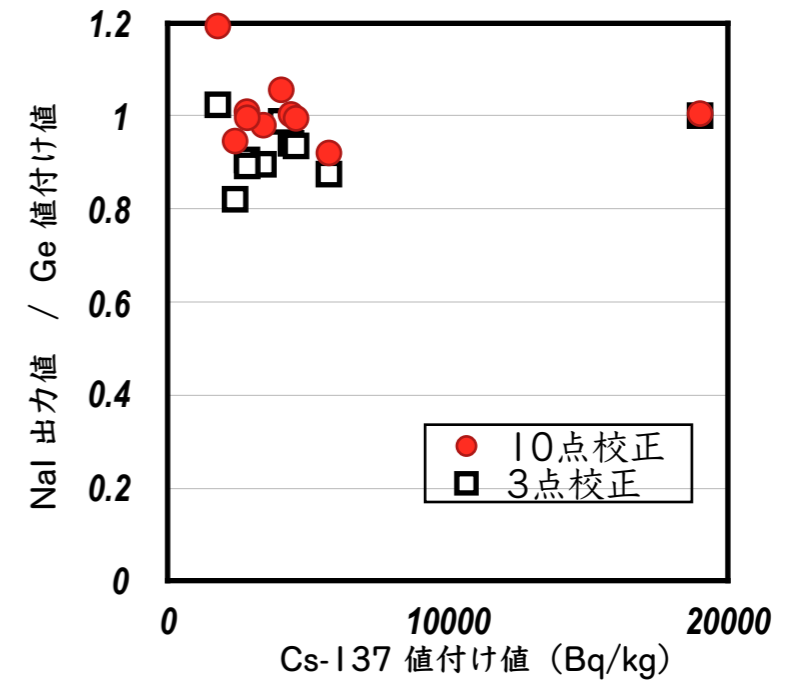
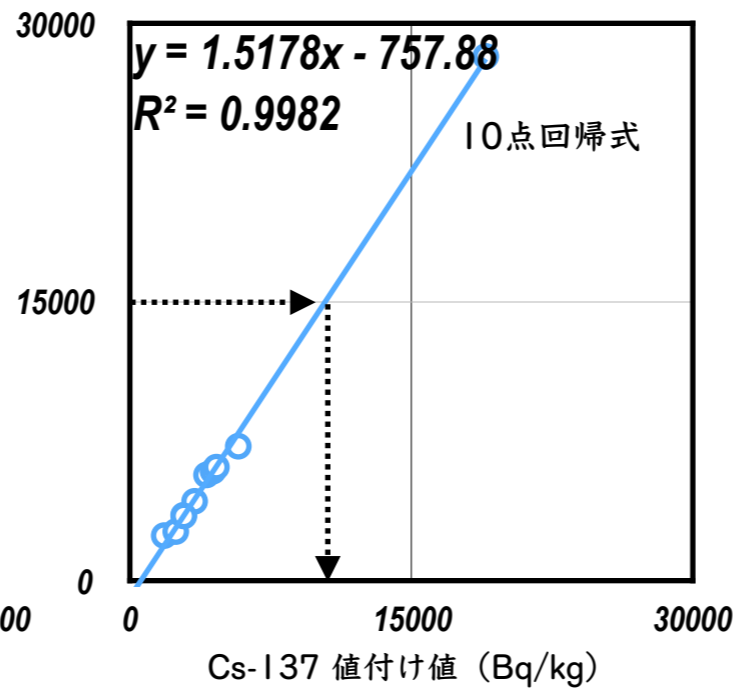
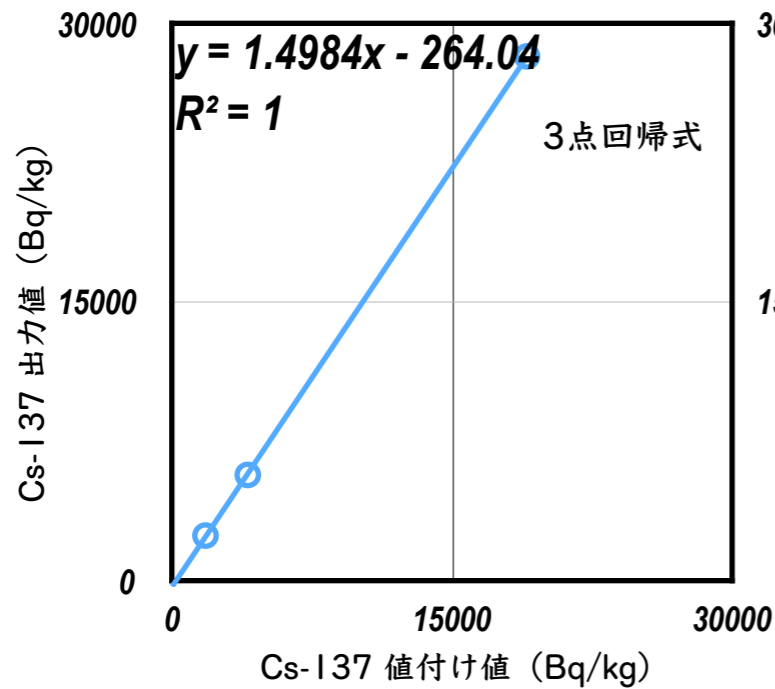
いずれの濃度においてもATでは定量値が値付け値から±20%の範囲に収まっていた。



メーカー出荷時に少量容器(V2)で未校正

CSKはメーカー作製の濃度既知のCs-137校正用線源(V7容器)が供給されユーザーが独自校正する方式を採用

日立アロカメディカル CAN-OSP-NAIの少量容器校正例



V2容器を用いてGeとのクロスチェック例数を増やして求めた回帰式を使用すると、Cs-137、Cs-134の補正值が共に値付け値の±20%の範囲に収まった。

少量容器を用いた精度確認から判明したこと

- 放射性セシウムの高濃度領域では相対的に天然核種の濃度が低くなるためセシウム低濃度の領域（50Bq/kg以下）で発生する諸問題は生じなかった。
- メーカー出荷時に少量容器で校正済のAT機では、容器形状と材質が若干異なる少量容器（しっかりパックF）を用いてもGe値との大幅なズレは生じなかった。
- 出荷時に少量容器で校正されていない機種ではGeとのクロスチェック例数を増やすことで正確性を高めることができることが判った。
- 今後は、Geとのクロスチェックをさらに広い濃度範囲で実施し少量容器の実用性を確認したい。

最後に

- 事故後6年が経過し、多くの測定室が資金面や人材確保の困難に直面している。
- 土壌・環境汚染はまだまだ深刻であり、汚染の移動による環境濃縮が発生し、更に汚染土壌の再利用も計画されている。 市民レベルでの継続的な測定と更なる監視が必要とされている。
- 一方、時間の経過によりCs-134が消滅し、やがて対象がCs-137のみになる状況で土壌中の低濃度のCs-137をNaIシンチレーターでも精度良く測定できることになれば、市民測定のスキル向上や測定対象の拡大に資することになると確信している。
- 少量容器を用いた精度確認はより詳細な土壌マップ作成やマイクロホットスポットの調査に重要な役割を担うことも疑いはない。
- MDSの集まりや、今回の高木基金の助成事業は、各測定室のスキル向上や人材掘り起こし、情報共有の機会として非常に有益であった。 感謝致します。