

低バックグラウンド型 Ge 半導体検出器を用いた土壌中の
U-238, Ra-226 同時迅速分析法 (第 2 報)

道広憲秀 宮崎 清 清水光郎 信森達也 (放射能科)

【調査研究】

低バックグラウンド型 Ge 半導体検出器を用いた土壌中の U-238, Ra-226 同時迅速分析法 (第 2 報)

Rapid Determination of U-238 and Ra-226 in Soil by Low Background Ge Detector

道広憲秀, 宮崎 清, 清水光郎, 信森達也 (放射能科)

Kenshu Michihiro, Kiyoshi Miyazaki, Mitsuo Shimizu, Tatsuya Nobumori

要 旨

ピークフィッティングの結果が適正でない場合には, U-238, Ra-226 のそれぞれでピークサーチ感度の設定をすることで, 両者の測定精度を確保できた。本測定法を用いて, 土壌中の U-238, Ra-226 濃度レベルの把握のために, 県下を地図上で機械的にメッシュに切った場所で調査を行った。岡山県下の U-238, Ra-226 濃度の平均と範囲は, U-238 は 0.032Bq/g 乾, 0.021 ~ 0.053Bq/g 乾, Ra-226 は 0.034Bq/g 乾, 0.017 ~ 0.058Bq/g 乾で, 広島県等の他県と同レベルにあった。

[キーワード: U-238, Ra-226, 低バックグラウンド型 Ge 半導体検出器, 岡山県, 地質]

[Key words: U-238, Ra-226, Ge Detector, Okayama Prefecture, Geology]

1 はじめに

核燃料施設の事故や異常値発見に際して, 汚染源の特定や被曝線量評価等のためには, 環境試料中の放射能のモニタリング結果を速やかに得ることが重要である。Ge 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリでは, α 線測定に伴う煩雑な化学的処理を必要とせず, 試料採取後に試料を測定容器に詰めるだけで測定可能であるとともに, 速やかに結果を得ることができる。今回, 前年度に引き続き, 低バックグラウンドの測定システムを用いて, U-238, Ra-226 の測定について同時定量方法の検討を行った。

前報¹⁾で報告したように, この方法による定量分析結果は, 公定法である α 線の測定による結果と良く一致したが, 精度向上のために, 測定条件について更に検討を加えた。

また当センターでは, 苫田郡鏡野町人形峠周辺において, 土壌中の U-238, Ra-226 濃度の監視測定を行っているが, その比較対照のために, 著者らが 1990 年代に県下全域で採取保存してあった土壌 18 試料を当該方法により定量分析した。

2 実験方法

測定方法は, 前報と同じであり, 新たに追加検討した

ところのみを述べる。環境試料は, 地図上でメッシュに分けた県下 18 地点において, 表層 5 cm の表面土壌を採取した。メッシュ分けは, 経度は 15', 緯度は 10' 間隔 (日本測地系) とした。メッシュの大きさは, 東西方向で約 23 km, 南北方向で約 18 km であった。(図 1) 採取地点への到達のためには, SONY 製の GPS を使用した。採取試料は, 実験室に持ち帰り 105 °C で熱風乾燥後に, 2 mm 篩下を測定試料とした。

環境試料の供試料重量は 53.7 ~ 75.3 g とし, 測定時間は 10,000 秒 ~ 300,000 秒とした。

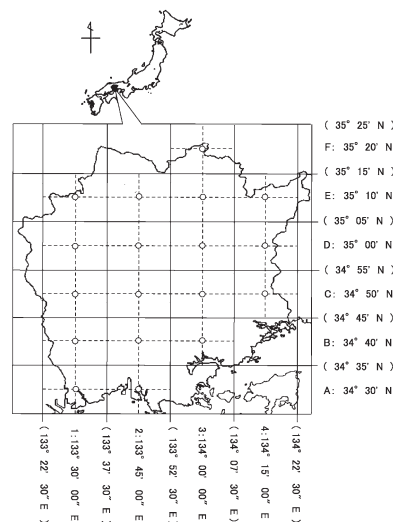


図 1 試料採取地点

3 結果及び考察

3.1 フィッティング処理

解析ソフトではスペクトルピーク処理のために、関数適合モデルとして①ガウス関数+一次関数、②ガウス関数+二次関数、③ガウス関数+三次関数、④ガウス関数+汎用階段関数、⑤コベル法の5つが準備されていて、自動計算処理される。

ウラン系列やトリウム系列の自然放射能が高い試料については、目的ピークであるTh-234 (63keV) の近辺に、他核種からの γ 線ピークや特性X線ピークが大きなピークとして共存している。それらはピークフィッティングの妨害となるため、適正なピーク処理が出来ないことが起きた。図2-aは、フィッティングが正常にされた結果である。一方、図2-bは、他核種のピークの存在によってフィッティングが不適正なものであり、実際のスペクトルとの不一致が著しい。不一致の場合には、ピークサーチ感度の設定数値を大きい値(低感度側)に変えてやると、図2-cへと改善された。図2-bのような不適切なフィッティング結果になる原因は、ピークサーチ感

度の設定数値が小さいと無視すべきピークをも処理対象とすることで、関数適合をするエネルギー範囲を広くとって適合計算をしてしまうことによると考えられた。

一方、Ra-226の186keVピークについては、U-235による妨害を補正するためにピークサーチの感度設定数値を、逆に小さく設定する必要がある。(U-235は、天然ウランでは、通常その存在量は、放射能濃度でU-238の4.6%である。さらに186keVのU-235のカウント数を決定する基準ピークの144keVピークの放出比は11%である。この小さなピークからRa-226の186keVピークを妨害補正するためには、ピークサーチ感度を小さく設定して、このピークを正確に捕らえる必要がある。) 63keVピークの処理とは相反する感度設定になるので、フィッティング処理結果については、スペクトルを必ず視覚で確認することが不可欠と考えられた。フィッティングの結果が適正でない場合には、U-238, Ra-226のそれぞれでピークサーチ感度の設定をすることで、両者の測定精度の確保を取り計らうこととした。

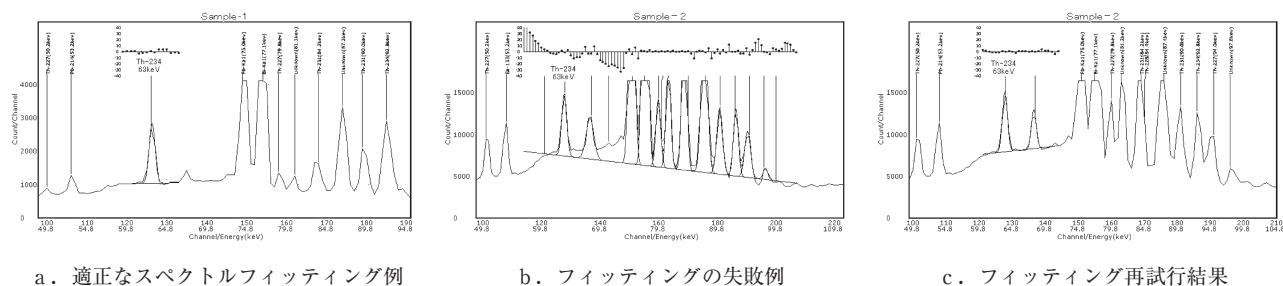


図2 スペクトルと関数フィッティング

3.2 環境土壌の測定結果

GPSで到達した位置の精度は、国土地理院の2万5千分の1の地図と、50m以下の精度で良く一致していた。また地図上の位置が田畑や住宅に当たった場合には、近接のあぜ道等で採取した。道路から外れた山間部の森林に該当して容易に目標地点へ到着できない場合には、最大で100m以内まで接近して採取した。

測定濃度の平均と範囲は、U-238が0.032Bq/g乾、0.021~0.053Bq/g乾、Ra-226が0.034Bq/g乾、0.017~0.058Bq/g乾であった。最低値と最高値では、U-238で2.5倍、Ra-226で3.4倍の開きがあった。

土壌中のU-238, Ra-226含有濃度は地質で左右される

が、一般的に花崗岩等酸性岩では高く、中性岩、塩基性岩、超塩基性岩の順番で低くなっている。また岩石が風化によって土壌になる過程で、含有濃度は、低くなったり高くなったりするともされている。²⁾ 岡山県下は、中生代の花崗岩がモザイク状に広範囲に散在^{3,4)}している。地殻を構成する岩石や地層を示す地質図⁴⁾と比較参照すると、U-238, Ra-226濃度が高いC-2, A-1地点は、花崗岩であり、逆に両核種濃度が低いA-2, D-4地点は、礫・砂・泥であった。

しかし地質と対応しない地点もあった。3番目にU-238が高いB-2の地質は、礫・砂であった。この地点は、水田あぜ道であったためにリン酸肥料⁵⁾の影響等がその理

表1 測定結果

地点	地質	東 経	北 緯	供試料重量 (g)	U-238 (Bq/g乾)	Ra-226 (Bq/g乾)
A-1	花崗岩	133° 30' 00"	34° 30'	75.3	0.052±0.002	0.058±0.009
A-2	礫・砂・泥	133° 45' 00"	34° 30'	74.6	0.021±0.002	0.024±0.009
B-1	蛇紋岩	133° 30' 00"	34° 40'	60.1	0.028±0.002	0.024±0.007
B-2	礫・砂	133° 45' 00"	34° 40'	53.7	0.046±0.002	0.043±0.010
B-3	礫・砂	134° 00' 00"	34° 40'	65.8	0.031±0.002	0.037±0.008
C-1	流紋岩	133° 30' 00"	34° 50'	65.4	0.031±0.002	0.047±0.008
C-2	花崗岩	133° 45' 00"	34° 50'	59.7	0.053±0.002	0.057±0.010
C-3	花崗岩	134° 00' 00"	34° 50'	67.5	0.023±0.002	0.025±0.003
C-4	流紋岩	134° 15' 00"	34° 50'	57.3	0.032±0.002	0.021±0.010
D-1	流紋岩	133° 30' 00"	35° 00'	65.2	0.022±0.001	0.019±0.007
D-2	泥岩	133° 45' 00"	35° 00'	65.5	0.040±0.002	0.051±0.012
D-3	流紋岩	134° 00' 00"	35° 00'	56.5	0.036±0.002	0.036±0.009
D-4	礫・砂	134° 15' 00"	35° 00'	67.0	0.021±0.001	0.017±0.005
E-1	安山岩	133° 30' 00"	35° 10'	56.0	0.036±0.001	0.029±0.007
E-2	花崗岩	133° 45' 00"	35° 10'	65.6	0.030±0.002	0.030±0.008
E-3	泥岩	134° 00' 00"	35° 10'	61.1	0.029±0.002	0.027±0.009
E-4	安山岩	134° 15' 00"	35° 10'	61.2	0.024±0.002	0.026±0.008
F-3	安山岩	133° 30' 00"	35° 20'	72.2	0.028±0.003	0.021±0.010
平均					0.032	0.034
最高					0.053	0.058
最低					0.021	0.017

由として考えられた。また、C-3（栗畑の隅）とE-2（森林）は地質図では花崗岩となっていたが、高濃度ではなかった。正確な地質の決定には、地質分析を行う必要があるとともに、U-238、Ra-226濃度は、土地の利用形態（都市、農用地、森林等）、表面状態（風化の進行程度、表層の堆積物、植生）や土壌の粒土構成によっても大きく左右されると考えられる。したがって僅かな場所の違いでも、場合によっては異なる濃度となると考えられるので、試料採取の際には、土壌の地点代表性や均一性も考慮する必要がある。

なお今回の結果は、国連科学委員会報告⁶⁾にある普通の岩石に含まれるU-238、Ra-226濃度の範囲にあった。また広島県等⁷⁾におけるU-238濃度の土壌調査結果とも同レベルであった。一方、日本全国の農耕地土壌について、U-238濃度は水田土では0.20～0.58Bq/g乾、畑土では0.13～0.52Bq/g乾にあり、リン酸肥料の施肥に伴い、土壌中に元からあった濃度の約2倍に上昇していることが田上⁸⁾らによって報告されているが、今回の調査におけるU-238濃度は、全国の農耕地土壌のレベルとも同等であった。また同じ2mmアンダーで篩い分けをしている

人形峠周辺の監視結果⁹⁾における土壌中U-238濃度とも同等であった。

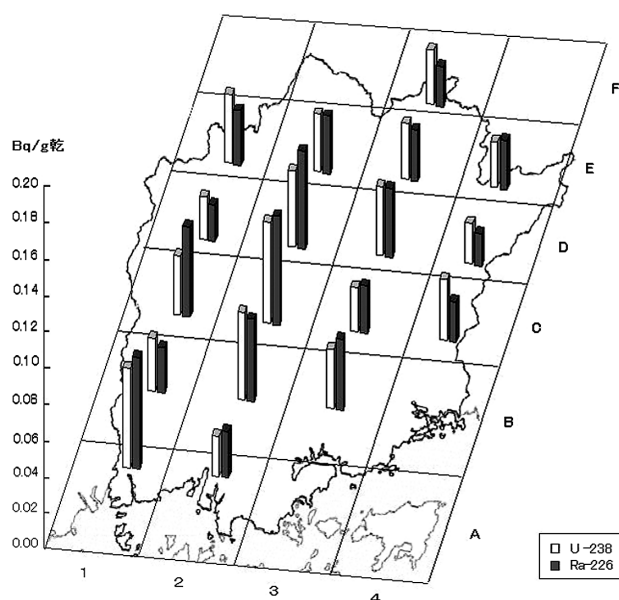


図3 U-238、Ra-226の濃度分布

いろいろな要素により、その地点のU-238とRa-226濃度が決まるものと考えられるため、土壤中の放射能調査は、目的をはっきりさせて地点等調査方法を決めることが重要である。

4 まとめ

- (1) ピークフィッティング処理については、その結果はスペクトルを必ず視覚で確認することが必要であった。フィッティングの結果が適正でない場合には、U-238、Ra-226のそれぞれでピークサーチ感度の設定をすることで、両者の測定精度の確保を取り計らった。
- (2) 土壤中のU-238、Ra-226濃度レベルの把握のために、県下を地図上で機械的にメッシュに切った場所で調査を行った。
 - ① 岡山県下のU-238、Ra-226濃度の平均と範囲は、U-238は0.032Bq/g乾、0.021～0.053Bq/g乾、Ra-226は0.034Bq/g乾、0.017～0.058Bq/g乾で、広島県等の他県と同レベルにあった。最低値と最高値では、U-238で2.5倍、Ra-226で3.4倍の開きがあった。
 - ② 検出下限値は、供試料重量70g、測定時間16万秒ではU-238：0.005Bq/g乾、Ra-226：0.02Bq/g乾、測定時間1万秒ではU-238：0.1Bq/g乾、Ra-226：0.7Bq/g乾の程度であり、本測定方法は緊急時及び環境調査の両方で十分実用可能であった。

参考文献

- 1) 道広憲秀, 宮崎清, 清水光郎, 信森達也: 低バックグラウンド型Ge半導体検出器を用いた土壤中のU-238, Ra-226同時迅速分析法, 岡山県環境保健センター年報, 30, 67-71, 2006
- 2) 松田秀晴, 湊進: 日本の主な岩石中の放射能(線量), RADIOISOTOPES, 44, 789-793, 1995
- 3) 野瀬重人編, 光野千春, 沼野忠之監修: 岡山県地学のガイド, 6-15, 株式会社コロナ社, 東京, 1981
- 4) 国土庁土地局国土調査課監修: 土地分類図33(岡山県), 財団法人日本地図センター, 東京, 1974
- 5) 放射線医学総合研究所監訳: 放射線の線源と影響(1977年国連科学委員会報告書), 上巻, 120-123, アイ・エス・ユー, 東京, 1973
- 6) 放射線医学総合研究所監訳: 放射線の線源と影響(1977年国連科学委員会報告書), 上巻, 67-70, アイ・エス・ユー, 東京, 1973
- 7) 日本分析センター編: 自然放射性核種水準調査, 日本分析センター年報, 平成16年度, 7-8, 2005
- 8) 田上恵子, 内田滋夫: U/Th比を用いたリン鉱石原料中のリン酸肥料施用による農耕地土壤中ウラン増加割合の推定, RADIOISOTOPES, 55, 71-78, 2006
- 9) 岡山県環境保健センター編, 平成17年度人形峠周辺の環境放射線等測定報告書, 28, 52-53, 2005