



フォトダイオードを用いた土壌中の放射能鉛直分布測定器の開発

鈴木心也¹・岩瀬 広²・登尾浩助³・溝口 勝¹・小林大樹¹・伊藤 哲⁴

Development of a device for measuring the vertical distribution of radioactivity in soil using photodiode

Shinya SUZUKI¹, Hiroshi IWASE², Kosuke NOBORIO³, Masaru MIZOGUCHI¹, Daiki KOBAYASHI¹ and Tetsu ITO⁴

Abstract: Measurements of radiocaesium concentration profiles in a soil are very time-consuming and labor-intensive work. We developed a device for in-situ measurements of the vertical distribution of radioactivity in a soil using a photo diode sensor. Four photodiode sensors were separated by lead-shielded plates to increase directivity at each depth. Because the directivity was relatively broad, we defined a leakage coefficient to compensate the broad directivity by introducing a matrix expression. With a field test of the device in an undisturbed rice field in Iitate Village, Fukushima, we confirmed that the vertical distribution of soil radioactivity was properly measured with the device developed.

Key Words : radiocaesium, vertical radioactivity distribution, photodiode, matrix of leakage coefficient, decontamination

1. はじめに

農地土壌における除染で、除染効果を確認するために除染前後での放射性セシウム濃度の鉛直分布を測定することが重要である。不耕起水田土壌中の放射性セシウムの大部分は、地表から3~5 cmの深さに分布している(塩沢ら, 2011)。しかし、原発事故から2年半が経過した現地の水田では、夏草が繁茂し、イノシシが地表面を掘り返していることも多い(溝口, 2012a)。また、有機物の豊富な土壌では、¹³⁷Csが約40年かけて植物に取り込まれること(Kruyts and Delvaux, 2002; Chiu et al., 2008)や、降雨の範囲や強度により¹³⁷Csが土壌にばらついて吸着されることも示唆されている(Tamura, 1964)。したがって、多くの除染を必要とする農地は、同一の圃場内においても、土壌中の有機物量や栽培作物、透水性の違

い等の要因でセシウムの鉛直濃度分布にばらつきが生じることが予想される。また、セシウムは、風化した雲母類に形成され、水和陽イオンの侵入できないフレイド・エッジに固定される(中尾, 2012)ため、土壌中の粘土鉱物の種類や含有量等によっても鉛直濃度分布に違いが生じることが考えられる。このように、農地土壌中における放射性セシウム濃度の鉛直分布は複雑であり、除染を実施する際には、圃場内の複数点で測定する必要がある。

現在、土壌中の放射性セシウム濃度の一般的な深度別測定では、土壌採取を行い、研究室等に持ち帰り、深さ毎に分けた後にGe半導体検出器等により放射能を測定する(塩沢ら, 2011など)。Ge半導体検出器は高精度で測定できる利点があるが、大型かつ高価であるため現場測定に直接利用することは難しい。また、分析までの作業に多大な労力と時間がかかる上、分析後の汚染土壌の処理についても適切な処理方法を考える必要がある。このため、現場で簡単に複数点において、土壌中の放射性セシウム濃度の鉛直分布を測定できる方法の開発が必要である。

そこで筆者らは、フォトダイオードを用いて、安価で、小型で、可搬性の高い土壌放射能鉛直分布測定器を開発した。フォトダイオードは、もともとは光検出器であるが、放射線が通過する際の電離作用を利用すると、放射線を検知するセンサになり得る。最近では、このフォトダイオードを利用し、iPhoneやAndroid端末に接続することで空間線量を測定可能な線量計(ポケットガイガー、Radition-Watch.org製)も発売されている。このポケットガイガーが0.05 μSv h⁻¹地域において安定値を表示するまでの時間は、NaI (TI)シンチレータを使用しているTCS-172B (Hitachi Aloka Medica, Ltd製)の約100倍かかるが、1測定器当たりのコストは約270分の1である(Radiation-Watch.org, 2011)。溝口(2012a)はこのセンサを用いて、積雪により空間線量が低下することや晴天で乾燥した日には空間線量が高くなる傾向があることを報告している。そこで、本研究でもこのセンサを利用して土壌中の深度別の放射性セシウム濃度を捉えることができると判断し、測定器の開発に至った。

¹Graduate school of Agriculture and Life Science, The University of Tokyo, 1-1-1 Yayoi, Bunkyo, Tokyo 113-8657, Japan. Corresponding author: 鈴木心也, 東京大学大学院農学生命科学研究科.

²High Energy Accelerator Research Organization, 1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki, 305-0801, Japan.

³School of Agriculture, Meiji University, 1-1-1 Higashimita, Tama, Kanagawa, 214-8571, Japan.

⁴X-ability Co., Ltd., 3-16-6-801, Hongo, Bunkyo, Tokyo, 113-0033, Japan.

2013年5月4日受稿 2013年11月8日受理

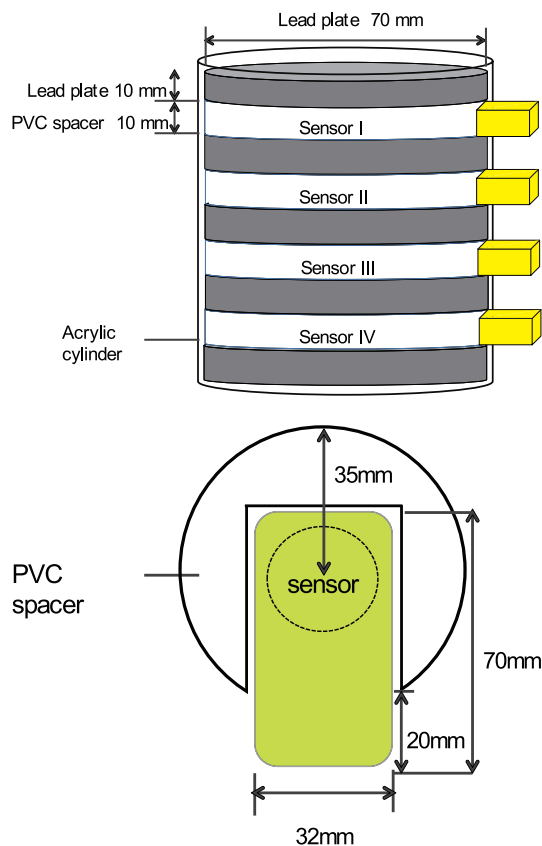


Fig. 1 放射能鉛直分布測定器模式図. (a) 全体図.
(b) センサ部.
Schematic diagram of the device. (a) Overall view.
(b) Sensor area.

土壌中に分布する放射性セシウムは全方位に放射線を放射するため、放射線量から深度別の放射性セシウム濃度を評価することは難しい。そのため、土壌放射能鉛直分布を測定可能な現場測定装置は、これまでに開発例がない。そこで、本研究では、遮蔽等に工夫を施し、測定範囲外の深度からの放射線の影響を考慮した土壌放射能鉛直分布の測定装置の開発を行った。

2. 材料と方法

2.1 放射能鉛直分布測定器

本研究では、放射線を検知するセンサとして、PIN フォトダイオード (VBPW34, Vishay 社製) を採用した。用いたセンサは、ポケットガイガー (Radiation-Watch.org 製) を一部改変した基板 (長さ 70 mm, 幅 32 mm, 厚さ 10 mm) である。PIN フォトダイオードは、安価であり、性能劣化が起りにくい利点がある。一方、このセンサは感度が高くないため、精度よく測定するためには時間をかけて測定する必要がある。

放射線は様々な方向に向かって放射されるので、各深さで濃度測定するためには、センサを設置した深さにおける放射線を捉えられるように指向性を高める必要がある。放射性セシウムが崩壊する際には β 線とともに γ 線が発生する。この γ 線は、粒子の流れである α 線や β 線とは異なり、電磁波であるために透過力が強く、遮蔽

するためにはコンクリートや鉄、鉛など比重の高い物質を用いる必要がある (藤原, 2011)。そこで、本測定器では深さ毎の指向性を持たせるために、各センサの間に鉛板を挟み込んだ。

Fig. 1 は、設計した放射能鉛直分布測定器の模式図である。鉛板は直径 70 mm, 厚さ 10 mm である。エポキシ樹脂でセンサ基板をコーティングし、防水性を持たせた。アクリル円筒内にセンサ基板と鉛板を入れ、鉛板及びアクリル円筒の遮蔽効果により、本測定器は γ 線のみを捉えることができる。測定器に組み込んだセンサを、変換基板 (X-ability 社製) を介してデータロガー Em5b (Decagon 社製) に接続した。

2.2 本測定器の評価方法

開発した測定器を以下の 3 ステップで評価した。

2.2.1 点線源による指向性評価 (漏れ係数)

点線源を用いてセンサの指向性を評価した (以下、指向性実験とする)。点線源は、 ^{137}Cs チェッキングソース (3 MBq) を用いた。指向性実験では、Sensor I から 10 mm 離れた位置に点線源を置き、この位置を Position 1 とした。点線源と測定器を 10 mm 離れたのは、本測定器は完全な円筒でないために現場の土壌に設置した際に少なからず隙間が空くこと、測定器の汚染防止のために用いる密閉式ビニルの厚みを考慮したからである。同様に、Sensor II から IV まで、それぞれ 10 mm 離れた位置を Position 2 から 4 とした。Position 1 から 4 のそれぞれの位置に点線源を置き、各センサの計数率 (cpm) を求めた。センサの総計数率が 3,000 カウントになるまで測定を継続した。

点線源から放射線は様々な方向に放射されているため、他位置の点線源もセンサへ影響を及ぼす。さらに鉛板を透過している γ 線も存在している。そのため、現地における深さ毎の指向性を持たせた放射性セシウム濃度の測定には、測定範囲以外からの放射性セシウム濃度を考慮する必要がある。そこで、本研究においては漏れ係数という概念を次式で定義した。

$$L_{ij} = \frac{C_j}{C_i} \quad (1)$$

ここで、 L_{ij} は点線源が位置 i にある時のそれぞれのセンサ j の漏れ係数、 C_i は ^{137}Cs 線源と同位置のセンサの計数率 (cpm)、 C_j は ^{137}Cs 線源と他位置のセンサの計数率 (cpm) である。 $i = j$ の場合は $L_{ij} = 1$ であり、 $i \neq j$ の場合の漏れ係数 L_{ij} はそれぞれの漏れ成分の寄与として評価できる。すなわち、漏れ係数が小さいことは、指向性を持たせた測定を示し、一方、漏れ係数が大きいことは、線源 i とセンサ j の間の遮蔽が十分でないことを示す。

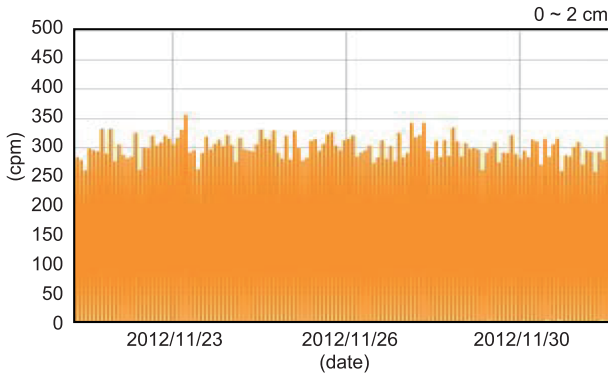
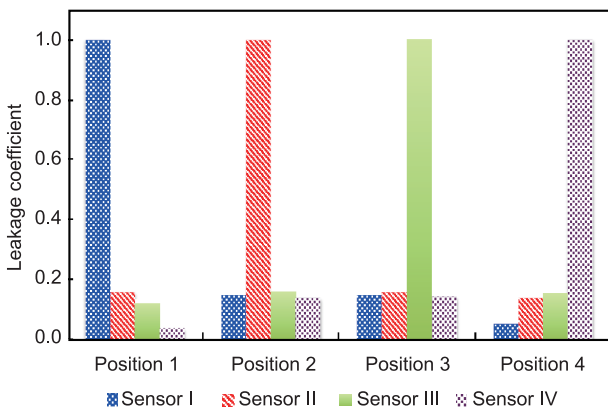
2.2.2 測定値の補正法 (補正行列)

点線源実験から得られた漏れ係数が放射性セシウム濃度によらず一定で、それぞれの漏れ成分の線形和で計数率が与えられると仮定する。さらに、実際の汚染土壌のような連続した体積線源にも適用できるとすると、漏れ係数を用いて測定範囲外からの影響を考慮した関係式を

Table 1 漏れ係数行列.

Matrix of the leakage coefficients.

	Position 1	Position 2	Position 3	Position 4
Sensor I	1.000	0.148	0.149	0.055
Sensor II	0.160	1.000	0.161	0.142
Sensor III	0.122	0.162	1.000	0.155
Sensor IV	0.039	0.140	0.143	1.000

**Fig. 2** 土壤中の放射線量の測定例 (0~2 cm).
An example of observed radiation dose in soil (0~2 cm).**Fig. 3** 各位置の漏れ係数.
Leakage coefficients at each position.

以下に表せる.

$$C_{\text{mea } j} = \sum C_{\text{cor } i} L_{ij} \quad (2)$$

ここで、 $C_{\text{mea } j}$ は本測定器を放射能汚染土壤に設置した時の Sensor I ~ Sensor IV の計数率 (実測計数率)、 $C_{\text{cor } i}$ は遮蔽漏れの影響を考慮した Sensor I ~ Sensor IV の計数率 (補正計数率)、 L_{ij} は式 (1) より得られた漏れ係数である. 式 (2) を並べて表示し、行列式を解くことで未知数である補正計数率を求めることができる.

2.2.3 フィールドにおける計数率評価

本測定器のフィールド試験を福島県相馬郡飯館村佐須滑の水田で行った. 飯館村は、福島第一原発から 28 ~ 47 km に位置しているが、気象条件や地理的条件により、放射性物質の累積が局所的に生じている (菅野, 2011). そのため、事故発生から 1 年間の積算線量が 20 mSv に達する恐れのある「計画的避難区域」(経済産業

省, 2011) に属している. また、福島県の水田に特徴的な土壤群である灰色低地土およびグライ土が分布しており、スメクタイト、ゼオライト、雲母などの粘土鉱物を多く含んでいる (山口ら, 2011). そのため、本実験地においても放射性セシウムは豊富に存在する粘土鉱物に強く吸着され、水田の不攪乱土壤で行われた先行研究 (塩沢ら, 2011; 奥島ら, 2012) と同様に表土付近のみにおいて放射性セシウム濃度が非常に高いと考えられる.

土壤採取は、まず表面を覆っていた植物を取り除き、採土器で土壤を採取した. 採取した土壤は 2 cm 毎にヘラで区切り、実験室に持ち帰って湿重量あたりの放射性セシウム濃度を測定した.

測定器は、水田土壤に測定器と同程度の大きさの穴を移植ごとで掘り、測定器の各センサ部の厚さ 10 mm の中心が地表面からそれぞれ 1, 3, 5, 7 cm に位置するように、表面の汚染土壤が下部へ落ちないように十分に注意しながら埋設した. そして、各センサが設置された深さから上下 10 mm を測定していると仮定した. その際、測定器の放射能汚染を防ぐため、測定器は密閉式ビニル袋に入れて設置した. 4つのセンサは変換基盤を介して、データロガー Em5b (Decagon 社製) に接続した. 電源タイマーにより、30分オンその後90分オフを繰り返すように設定し、タイマーオフの間に接続されたソーラーパネルにより、バッテリーの充電を行った. 測定データは、1日に1回フィールドルータ (溝口, 2012b) と通信してインターネット経由で回収した. 測定期間は 2012年11月12日から2012年12月9日であり、本研究ではある1日の測定間隔30分、12回の測定データを代表値として本測定器の計数率を評価した. Fig. 2に測定値の一例を示す.

3. 結果と考察

3.1 漏れ係数行列

Fig. 3に、センサ別で点線源と同位置のセンサの計数率と他位置のセンサの計数率の比を漏れ係数として示した. 各鉛板の厚さ 10 mm である本測定器では、他位置の点線源の影響を 0.06 ~ 0.16 程度受けることが観察された (Fig. 3). この結果から、漏れ係数行列は Table 1 のようにまとめられる.

3.2 補正法の評価

Fig. 4は、福島県飯館村の水田の不攪乱土壤における採取土壤より得られた地表面から深さ 2 cm 毎の放射性セシウム濃度と実測計数率、補正計数率の関係を示したものである (ただし採取土壤は湿重量にて測定). 深さ毎の採取土壤の放射性セシウム濃度は、地表面付近の濃度が高く、地表面から深くなっていくにつれて大幅に低くなった. この結果は、福島原発事故後に耕起や稲作の行われていない水田の不攪乱土壤 (塩沢ら, 2011; 奥島ら, 2012) における深度別の放射性セシウム濃度の傾向と一致している. また、実測計数率は地表面付近で最も大きく、深くなっていくにつれて緩やかに小さくなった. こ

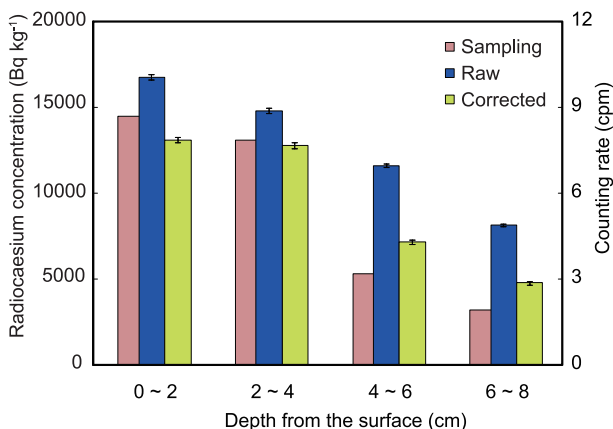


Fig. 4 福島県飯館村における水田の不攪乱土壌での深度別の放射性セシウム濃度分布 (Sampling) および実測計数率 (Raw), 補正計数率 (Corrected) の比較 (採取土壌は湿重量にて測定. 第一縦軸は放射性セシウム濃度, 第二縦軸はセンサの計数率とした).

Comparison between radiocaesium concentration at each depth level in undisturbed soil of paddy field in Iitate village, Fukushima and raw and corrected counting rates (Samples were measured in wet weight).

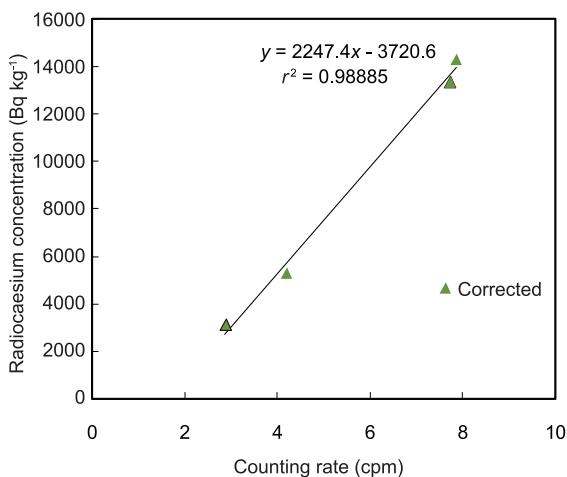


Fig. 5 採取土壌の分析により求めた放射性セシウム濃度および深度別の補正計数率の関係.

Relationship between radiocaesium concentration by soil sampling and corrected counting rate.

の原因として、鉛板の遮蔽が十分でなかったことによる漏れの影響が考えられる。それに対して、補正計数率は地表面からの深さ 0~2, 2~4 cm までの計数率は大きい、深さ 4~8 cm では実測計数率と比較するとかなり小さな値となった。ここで生じた差が補正式によって考慮した漏れの寄与である。そして、採取土壌の放射性セシウム濃度を真値とすると、補正計数率は実測計数率と比較して採取土壌から得られた深さ 2 cm 毎の放射性セシウム濃度と近い傾向を示すことを確認することができた。

Fig. 5 は、採取土壌より得られた地表面から深さ 2 cm 毎の放射性セシウム濃度と補正計数率の関係を示したものである (ただし採取土壌は湿重量にて測定)。

そこで補正計数率を x 軸に、採取土壌から得られた深さ毎の放射性セシウム濃度を y 軸に設定することで本計測器における関係式を求めた (Fig. 5)。

$$y = 2247.4x - 3720.6 \quad (r^2 = 0.98885) \quad (3)$$

その結果、提案した補正式により得られた補正計数率と採取土壌の放射性セシウム濃度から直線関係を得ることができた。すなわち、漏れ係数を評価し、提案した補正式を用いて他位置からの放射線の影響を正しく補正することにより、深さ毎の放射性セシウム濃度を現場で精度良く測定することが可能となった。また、この関係式に従うと、補正計数率が 1.66 cpm の時に 0 Bq kg^{-1} を示すことになるが、自然放射線の影響を考慮すれば、この結果は妥当であると考えられる。

4. おわりに

本研究では、放射能汚染された土壌において、深度別放射性セシウム濃度分布を推定する測定器を開発した。本測定器は、遮蔽効果の高い鉛を用いて、センサに深度別に指向性を持たせたことが特徴である。しかし、鉛板は有限の大きさのために完全な遮蔽は難しい。センサに漏れ込む放射線の影響を漏れ係数として評価し、提案した補正行列を適用すること各深さの実測計数率を補正した。その結果、補正計数率と採取土壌による深度別の放射性セシウム濃度は高い相関関係を示し、現場において放射性セシウム濃度分布を精度良く測定できることを確認できた。

今後、精度よく短時間で測定を行うためには、従来から放射線を検知するセンサとして用いられている GM 管を使用し、測定器を開発することが考えられる。また、PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) という任意形状の 3 次元体系内における放射線挙動を解析可能な汎用モンテカルロ計算コードを援用し (佐藤, 2011), 土壌水分や乾燥密度の遮蔽効果も考慮しながら、厳密な設計を行うことで、より精度の高い補正が可能になると思われる。いずれにせよ、土壌中の放射性セシウムの長期的なモニタリングも念頭において、本研究で開発した測定器を改良していくことが重要である。

謝辞

本研究を進めるにあたり、吉見弘道博士 (高エネルギー加速器研究機構), 田野井慶太郎准教授 (東京大学農学生命科学研究科), 菅野宗夫氏 (飯館村農業委員会), ふくしま再生の会の皆様に、多大なご助言とご協力を頂いた。査読者の方々には原稿の改訂で多くのご意見、ご助言を頂いた。また、本研究は、2011 年度明治大学震災復興・防災研究プロジェクトの助成を受けて実施した。ここに記して、謝意を表す。

引用文献

- Chiu, C.Y., Wang, C.J., Huang, C.C. (2008): Availability and immobilization of ^{137}Cs in subtropical high mountain forest and grassland soils. *J. Environ. Radioact.*, 99: 882–889.
- 藤原和信 (2011): 基本を知る 放射能と放射線. pp. 48–49, 誠文堂新光社, 東京.
- 菅野典雄 (2011): 美しい村に放射能が降った 飯舘村長・決断と覚悟の120日. pp. 28–34, ワニプラス, 東京.
- 経済産業省 (2011): 「計画的避難区域」及び「緊急時避難準備区域」の設定について. <http://www.meti.go.jp/press/2011/04/20110422004/20110422004-2.pdf> (Accessed 29 Jan. 2013)
- Kruyts, N. and Delvaux, B. (2002): Soil organic horizons as a major source for radiocesium biorecycling in forest ecosystems. *J. Environ. Radioact.*, 58: 175–190.
- 溝口 勝 (2012a): 農地と除染の新たな試み. 学術の動向, 10: 52–56.
- 溝口 勝 (2012b): フィールドモニタリングシステム. 水土の知, 80: 50.
- 中尾 淳 (2012): セシウムの土壌吸着と固定. 学術の動向, 10: 45.
- 奥島修二, 塩野隆弘, 石田 聡, 吉本周平, 白谷栄作, 濱田康治, 人見忠良, 樽屋啓之, 今泉眞之, 中 達雄 (2012): 浅代かき強制排水による水田土壌中の放射性物質の除去法の有効性に関する事前検討. 土壌の物理性, 121: 43–48.
- Radiation-Watch.org (2011): 感度について. <http://www.radiation-watch.org/2011/05/accuracy.html> (Accessed 7 Oct. 2013)
- 佐藤達彦 (2011): PHITS コードの公開と開発の現状. RIST ニュース, No. 51.
- 塩沢 昌, 田野井慶太郎, 根本圭介, 吉田修一郎, 西田和弘, 橋本健, 桜井健太, 中西友子, 二瓶直登, 小野勇治 (2011): 福島県の水田土壌における放射性セシウムの深度別濃度と移流速度. *Radioisotopes*, 60: 323–328.
- Tamura, T. (1964): Selective sorption reaction of caesium with mineral soils. *Nuclear Safety*, 5: 262–268.
- 山口紀子, 高田裕介, 林健太郎, 石川 覚, 倉俣正人, 吉川省子, 坂口 敦, 朝田 景, 和穎朗太, 牧野知之, 赤羽幾子, 平舘俊太郎 (2012): 土壌-植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因. 農環研報, 31: 75–129.

要 旨

土壌を採取し、深さ毎に放射性セシウム濃度を測定するには多大な労力と時間がかかる。そこで、本研究では現場で放射性セシウム濃度の鉛直分布を測定する装置を開発した。放射線を検出する4つのフォトダイオードセンサを鉛板で挟み、深度別で指向性を高めた。しかし、指向性は十分ではないため、点線源実験により測定範囲外からの影響度合いを示す漏れ係数を独自に定義し、補正行列を提案した。福島県飯舘村の不攪乱水田において本測定器を試験したところ、土壌放射能の鉛直分布がほぼ正確に測定できることが確認できた。

キーワード：放射性セシウム、鉛直放射能分布、フォトダイオード、漏れ係数行列、除染