

稲わらの放射性セシウム濃度測定における 測定誤差に関する検討

鈴木 隆央^{*}、藤原 大、竹内 幸生、千村 和彦、山本 貴士、倉持 秀敏、大迫 政浩

国立研究開発法人国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター

(〒305-8506 茨城県つくば市小野川16-2)

A Study on Measurement Errors in Measurement of Radioactive Cesium Concentration in Rice Straw

Takahiro SUZUKI^{*}, Hiroshi FUJIWARA, Yukio TAKEUCHI, Kazuhiko CHIMURA,
Takashi YAMAMOTO, Hidetoshi KURAMOCHI, and Masahiro OSAKO

National Institute for Environmental Studies (16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506, Japan)

Summary

To properly treat agricultural and forestry wastes contaminated with radioactive cesium by means of incineration, it is necessary to measure the contamination level in advance. As agricultural and forestry wastes that contain plant matter have low bulk density and nonuniformity as sample characteristics, measurement error in the radioactive cesium concentration occurs during radioactivity analysis of them. In this study, using a kind of rice straw as a representative sample, we discussed causes of the measurement error through several investigations such as surface observation, heterogeneity and density of sample in measurement container, etc. As results of this study, it is highly likely that the contamination source of the rice straw is the adherent soil with a higher content of radioactive cesium. In addition, accumulation of the soil separated from rice straws on the bottom of the measurement container brings localization of radioactive cesium in the container, leading to the measured radioactivity being an over-estimation. The influence of the heterogeneous sample was suppressed by cutting or milling the sample. As the packing density decreased, however, the more the measured radioactivity tended to be over-estimated. From the present results, in addition to other previous research findings, we pointed out the over-estimation in radioactivity measurement of waste may affect material balance analysis of radioactive cesium during the waste incineration. Furthermore, based on the findings, we proposed an improvement of the conventional manuals for measuring radioactivity in sample to obtain more accurate radioactivity in heterogeneous sample.

Key Words: Radioactive cesium, Measurement error, Rice straw, Sample characteristics

1. はじめに

2011年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故により、放射性物質が環境中に放出され、当時屋外に置かれていた堆肥、稲わら、牧草、ほだ木等が汚染され、大量の農林業系廃棄物が発生した。農林業系廃棄物は、腐敗による悪臭や汚水の発生といった生活環境上の悪影響が懸念されており、また、農家の敷地等に保管されていることから、農林業や生活の支障となっている¹⁾。そのため、焼却等の処理

による減容化や性状の安定化が急務とされており、福島県鮫川村では、農林業系廃棄物等を焼却により減容化する実証事業が行われ、2015年7月に完了している²⁾。また、福島県内の県中、県南、いわき、川内村、会津の24自治体で保管されている農林業系廃棄物については、東京電力株式会社南いわき開閉所敷地内の一部に設置される仮設焼却施設において、減容化処理が行われる予定となっており³⁾、他にも同様の計画が進んでいる⁴⁾。さらに宮城県では、8,000 Bq/kg以下

^{*}Corresponding author: TEL: 029-850-2959, FAX: 029-850-2091, E-mail: suzuki.takahiro@nies.go.jp

の農林業系廃棄物については、安全に迅速かつ大量に処理を進めるために、一般ごみとの混焼による焼却処理が検討されている⁵⁾。

このように農林業系廃棄物の減容化処理が進められているが、現時点においても大量の農林業系廃棄物が保管されており、その適正管理のためには的確な汚染状況の把握が必要であり、環境省等により放射性セシウム(以下、放射性Cs)濃度の分析調査が行われている。また、農林業系廃棄物の焼却処理では、焼却灰の放射性Cs濃度をコントロールするために、投入する農林業系廃棄物の放射性Cs濃度をあらかじめ把握しておくことが必要となる。一般的な放射能測定における不確かさ(誤差)の要因としては、ピーク計数効率校正の誤差、試料質量の誤差、ガンマ線放出割合の誤差、試料放射能測定の誤差等が挙げられ、その中で試料放射能測定時の誤差には、試料の粉碎度や容器への試料詰め不均質さを起因とする試料均質性の誤差が含まれる⁷⁾。これらの誤差を低減させ、測定値の信頼性を向上させることは放射能測定における基本的な考え方であるが、農林業系廃棄物は植物体を含むために汚泥や焼却灰等と比べてかさ密度が小さく、また不定形のために試料が不均質になりやすい点から、試料放射能測定の誤差が大きくなることが懸念される。また、農林業系廃棄物は植物体に土壌が付着していることがあり、試料調製時等に付着土壌が剥離することによって試料が不均質になる可能性がある。植物体そのものの放射性Cs濃度を評価するのであれば、試料均質性の観点から濃度測定前に付着土壌等を除去しておくことが望ましいが、農林業系廃棄物の焼却処理では付着土壌も含めて処理されるため、農林業系廃棄物の汚染状況を評価するという観点において、性状が異なる植物体と付着土壌を併せて評価しなければならない。

環境中の放射性核種を測定するためのマニュアルとして、「放射能測定法シリーズ」が文部科学省及び原子力規制庁により原発事故以前に策定されており⁸⁾、平常時に加えて原子力災害時(緊急時)に適用する測定方法も記載されている。測定対象としているのは淡水や海水、大気浮遊じん、農作物、土壌、海産生物等の人間が摂取する可能性があるものに限られ、廃棄物についての記載はないが、家畜用の牧草も対象として挙げられている。緊急時における牧草の試料調製方法としては、試料採取後にハサミ、カッター、包丁等で1~2 cm程度に裁断し、空隙を作らないように測定容器に充填することとされている⁹⁾。試料採取方法については、収穫前の生長途中での試料採取が想定されており、牧草地を10区域に区分し、各区分の中央部の作物体を地面から10 cmの高さで約500 gずつ採取することとされている¹⁰⁾。一般的に収集された牧草や稲わらは円筒状に梱包、ラッピングされたロールベールとして保管されるが、「放射能測定法シリーズ」ではロールベールからの試料採取については考慮されていない。また、収集時に土壌を巻き込む状況が想定されるが、土壌が付着している

試料についても考慮されていない。

廃棄物のための測定マニュアルとしては、「廃棄物関係ガイドライン」が環境省により策定されており¹¹⁾、さらに「廃棄物等の放射能調査・測定マニュアル」が廃棄物資源循環学会により発出されている¹²⁾。測定対象には廃稲わらも含まれており、特に試料の代表性に注意する旨が記載されている。「放射能測定法シリーズ」を参考に作られているため、試料調製方法はほとんど同じであり、必要に応じて試料を粉碎・裁断等したうえでよく混合し、測定容器に1/5程度ずつ入れ、押し棒などで空隙を埋めつつ充填することとされている。一方、試料採取方法については、試料採取のインクリメント数を10か所以上とし、1か所あたりの試料採取量はJIS K 0060「産業廃棄物のサンプリング方法」に準拠し、最終的な試料量の目安は500 g~1 kgとされている。よって、保管されたロールベールからの試料採取には対応しているが、土壌が付着した試料については考慮されていない。牧草や稲わらを測定容器に充填する際、そのような付着土壌や細かい植物片等が容器の底部に偏在する可能性があるが、それらが測定値に与える影響についての知見はほとんどない。また、測定マニュアルでは必要に応じた試料の裁断や粉碎、充填時に空隙を埋めることが指示されているが、試料の粉碎度や充填密度が測定値に与える影響について、農林業系廃棄物の分析調査において実験的に検証された事例は見当たらない。そこで、本研究では主な農林業系廃棄物の一つである稲わらを対象として、放射性Cs濃度測定時の測定誤差について、その要因と程度を明らかにすることを目的とした検討を行った。すなわち、実際に放射性Csに汚染された稲わらを用いて、試料の粉碎度、測定容器への充填密度、付着土壌等の偏在が測定値に与える影響を検証した。また、検証の前段階として、稲わらの汚染分布等の状態に関する基礎資料を得るために、イメージングプレート及び走査型電子顕微鏡を用いて観察を行った。なお、放射能測定全体の誤差要因の中では試料採取に関する誤差は極めて大きいことが予想されるが、本研究では試料採取後の前処理段階に限って検証した。

2. 放射性Csによる汚染状態の観察

(1) 方法

稲わらの放射性Cs濃度を測定する際の誤差要因を検討するにあたり、そもそも実際の稲わらがどのように汚染されているかを理解しておくことが重要である。そこで、稲わらの汚染分布等の状態をイメージングプレート(以下、IP)及び走査型電子顕微鏡(以下、SEM)を用いて観察した。稲わらは、宮城県内の屋根付きの倉庫で保管されていたものを使用した。ビニールでラッピングされたロールベールの状態で保管されており、稲わら自体は風乾状態であった。また、稲わら表面には水田由来と思われる土壌が全体的に付着していた。ロールベールから稲わらを数本取り出し、そのままの状態のものを

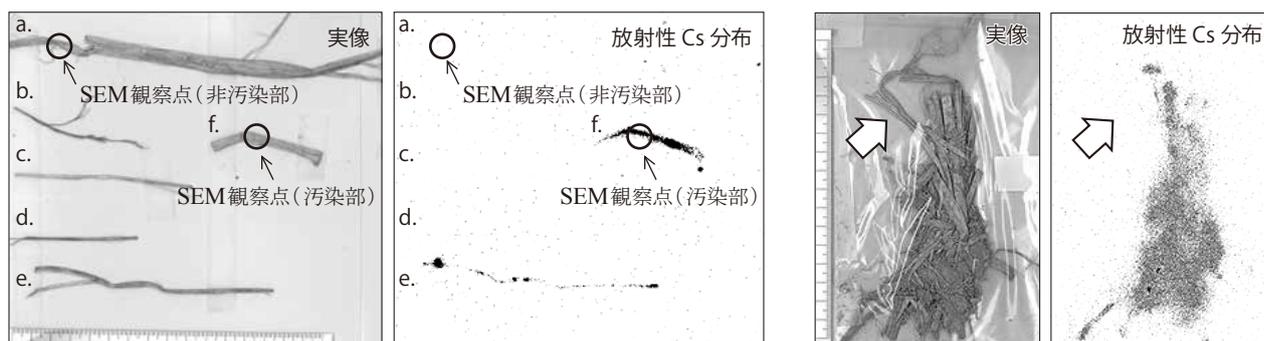


図1 放射性Cs汚染分布

試料とした。そのため、本研究において「稲わら」と記載するものは土壌が付着している状態である。試料はIP（富士フィルム株式会社、BAS IP MS 2040）に密着させ、遮蔽箱中で7～13日間露光した。露光したIPは、イメージングアナライザ（GE Healthcare、Typhoon FLA 7000 IP）で読み取り、放射能分布画像を得た。画像から稲わら表面の汚染部と非汚染部を確認し、それぞれを5 mm程度切り出して試料とし、SEM（日本電子株式会社、JSM-7800F）を用いて稲わら表面の粒子等の有無を低真空反射電子像で観察し、エネルギー分散型蛍光X線分析装置（以下、EDS：オックスフォード・インストルメンツ株式会社、X-Max50）を用いて元素組成を分析した。また、後述の3章で使用した0.25 mm以下の画分（写真2右）を付着土壌とみなして、波長分散型蛍光X線分析装置（以下、WDX：株式会社リガク、Supermini200）を用いて元素組成を分析し、散乱線成分を炭素及び窒素とみなしてファンダメンタルパラメータ法により半定量値を求めた。

(2) 結果および考察

IPにより得られた稲わらにおける放射性Csの汚染分布を図1に示す。図1左は、5～20 cm程度の稲わらでの放射性Csの汚染分布であり、a～dのように汚染されていない試料片

とfのように強く汚染されている試料片に、汚染の有無が明確に分かれていた。また、eのようにスポット的に汚染されている場合もあり、同じ試料片の中でも汚染部に偏りが見られた。葉鞘の付け根等の溜まりやすい形状と考えられる部位に放射性Csが濃集することも予想したが、そのような特定の部位への濃集は見られなかった。また、強く汚染されているfの試料片や、eのスポット汚染部において目視で判断できるような特異的な土壌の付着等は確認できなかった。図1右は特異的に多量の土壌を巻き込んだ根周辺部の汚染分布である。土壌が多く巻き込まれている部分は全体的に汚染されていたが、図中に矢印で示したような多量の土壌の巻き込みがない稲わらだけの部分はほとんど汚染されていなかった。このことから、稲わら植物体に付着した土壌が汚染源である可能性が示唆された。

SEMによる汚染部と非汚染部の観察画像を図2に示す。汚染部と非汚染部ともに微小な粒子の付着が多数見られた。稲わら植物体には植物珪酸体¹³⁾などの微小な組織も存在するが、今回確認された粒子はその形状や不規則な配置により、植物に由来するものではなく外部から付着したものと推察される。非汚染部である図2左では珪藻類がいくつか見られるが（図2 X）、その他にも付着粒子は多数存在し、雲母族の特

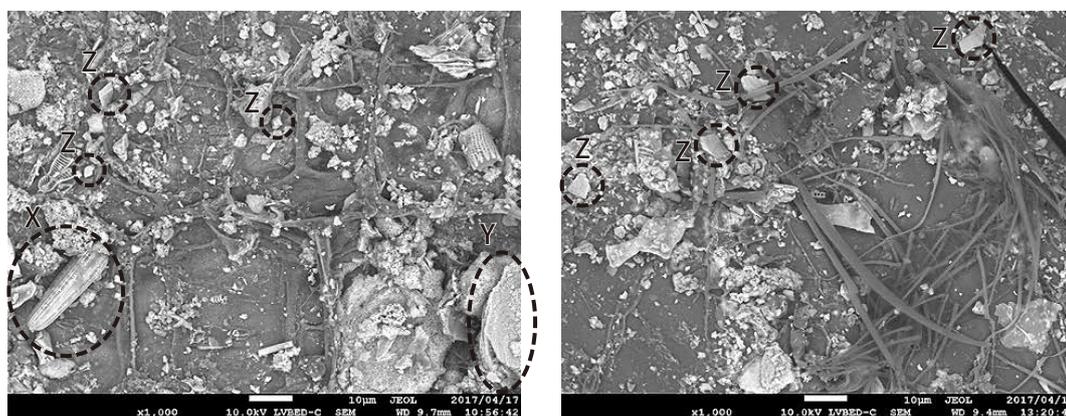


図2 稲わら表面での粒子付着（低真空反射電子像、左：非汚染部、右：汚染部）

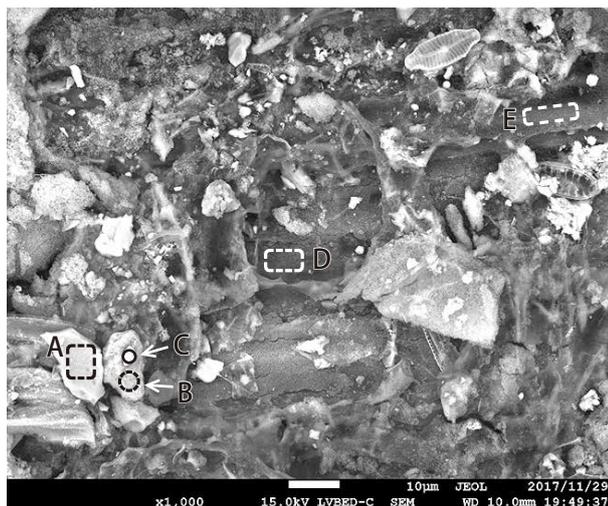


図3 非汚染部稲わら表面のEDS分析点

微である層状になった板状粒子¹⁴⁾も確認された(図2Y)。また、汚染部と非汚染部ともにへき開面をもつ粒子が多数観察された(図2Z)。図2左の非汚染部の同一試料ではあるが別視野において稲わら表面のEDS分析を行ったところ、付着粒子は土壤中に多いSiやAl、K等の元素を稲わら部よりも明確に高濃度に含むことが確認された(図3及び表1)。これらの元素は、付着土壌とみられる0.25 mm以下の画分でも濃度が高かった(表1)。以上の顕微観察やEDS分析及びWDX分析による付着粒子の元素組成から、目視では土壌等の付着がみられない稲わらであっても、数 μm 程度の微小な粒子が付着しており、その由来は土壌であると考えられた。このような微小な粒子の付着は汚染の有無にかかわらず見られることから、稲わらの汚染源としては微小な粒子の付着の有無だけではなく、付着する微小な粒子の放射性Cs濃度のばらつきの影響もあると考えられる。図1右のように目視で土壌とわかるようなものであれば土壌粒子の放射性Cs濃度が高く、それにより稲わらが汚染されていると明確に判断できるが、図1左のような土壌由来と考えられる微小な粒子が付着する場合は、さらなる顕微観察等による汚染源の特定が必要である。この結果から、断定はできないものの、放射性Csを含む土壌粒子が汚染源である可能性が高く、汚染分布の偏在には土壌粒子の付着状況や土壌粒子自体の汚染のばらつきが影響していると思われる。以上の観察結果は、稲わらの放射性Cs濃度測定時の試料調製の仕方によって、採取する稲わら自体の汚染のばらつきや、土壌の混入有無等に起因する放射性Csの偏在をもたらす様々な要因により、測定時の誤差が生じる可能性を示唆している。

表1 非汚染稲わらおよび付着土壌の元素分析結果

元素 (重量%)	付着粒子(土壌)			稲わら部		付着 土壌
	A	B	C	D	E	
C	25.8	18.9	28.2	32.9	33.5	34.4
N	2.5	1.4	N.D.	11.9	10.8	
O	14.6	20.1	19.1	38.3	38.3	32.0
Al	3.0	6.6	4.9	0.9	0.8	6.4
Si	35.1	23.7	38.1	11.0	10.7	20.4
K	4.4	7.2	1.9	0.5	0.6	1.0
Ca	6.2	3.6	5.9	2.6	3.4	0.8
Ti	1.0	17.2	0.8	N.D.	N.D.	0.3
Fe	7.2	N.D.	N.D.	1.9	1.9	2.8

注1: 分析点A～Eは図3と対応したEDS分析による結果を示す。
付着土壌は0.25 mm以下の画分のWDX分析による結果を示す。
注2: N.D.は未検出であることを示す。

3. 付着土壌等の容器底部への偏在が 測定値に与える影響の検証

(1) 方法

前章で稲わらの汚染が付着土壌に由来することを指摘したが、ここでは付着土壌等が測定値に与える影響を以下のような方法で検証する。ロールベールから適量の稲わらを周方向の異なる3点から等量ずつ取り出し、それらを混合したものを試料とした。試料取り出し時には、図1右のような土壌を極端に多く含んだものは避けた。試料は1～2 cm程度に裁断し、充填密度が 0.10 g/cm^3 になるようにV11容器(約900 mL)に詰め、NaIシンチレーション検出器(以下、NaI:日立アロカメディカル株式会社、CAN-OSP-NAI)を用いて放射性Cs濃度を測定した。先述の通り、稲わらには土壌が付着しており、容器に詰めた際には、容器底部に一部の付着土壌等が集積し偏在している様子が観察された(写真1)。

つぎに、測定後の試料を目開きが1 mm及び0.25 mmのふるいを用いて、1 mm以上(以下、1 mm以上試料)、0.25～1 mm(以下、0.25～1 mm試料)、0.25 mm以下(以下、0.25 mm以下試料)の3つの粒径に分け、それぞれの放射性Cs濃度を測定した。このとき1 mm以上試料は、充填密度 0.10 g/cm^3 でV11容器に詰め、NaIを用いて測定したが、0.25～1 mm試料及び0.25 mm以下試料は試料量が少なかったため、U8容器(約100 mL)に詰めてゲルマニウム半導体検出器(以下、Ge:セイコー・イージーアンドジー株式会社、GMX40-83-LB-B-HJ)を用いて測定した。ふるい分け後の粒径別の試料を写真2に示す。0.25～1 mm試料は細かい稲わらが、0.25 mm以下試料は付着土壌が主体であると考えられた。

なお、本研究における各測定値の減衰補正日時は、ロールベールを実験室に搬入した日時に統一した。また、測定結果は ^{134}Cs 濃度と ^{137}Cs 濃度の合算値を放射性Cs濃度として示

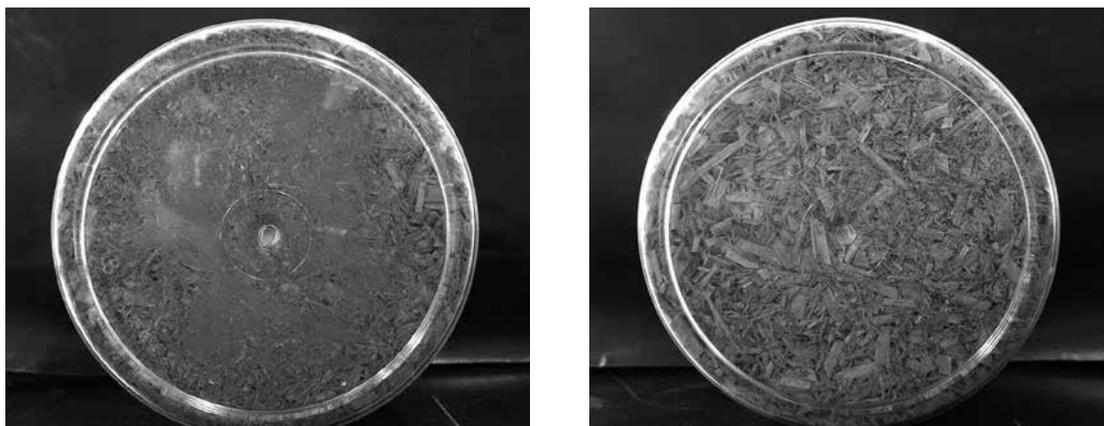


写真1 V11 容器底面の様子(左:ふるい分け前、右:ふるい分け後(1 mm 以上))

した。効率校正はGeを用いた測定ではU8放射能標準ガンマ体積線源(MX033U8PP 日本アイソトープ協会製)、NaIを用いた測定ではV11放射能標準ガンマ体積線源(MX035 日本アイソトープ協会製)を用いて行った。Ge及びNaIを用いた放射性Cs濃度の測定における計数統計による不確かさは、それぞれ約0.7～2.2%及び約5.4～6.7% (相対値)の範囲だった。

粒径別にふるい分けたときの重量比は、1 mm 以上試料:0.25～1 mm 試料:0.25 mm 以下試料 = 0.87:0.06:0.07であった。その重量比と放射性Cs濃度の測定結果をもとに、ふるい分け前の稲わらが均一に混合充填された状態を想定した放射性Cs濃度の計算値を算出し、実測値と比較した。計算値は下式を用いて計算した。

$$C_A \times p_A + C_B \times p_B + C_C \times p_C = C_{total}$$

C_A : 1 mm 以上試料の放射性Cs濃度(Bq/kg)

p_A : 1 mm 以上試料の重量比

C_B : 0.25～1 mm 試料の放射性Cs濃度(Bq/kg)

p_B : 0.25～1 mm 試料の重量比

C_C : 0.25 mm 以下試料の放射性Cs濃度(Bq/kg)

p_C : 0.25 mm 以下試料の重量比

C_{total} : 均一な混合状態を想定した計算値(Bq/kg)

先述の通り、ふるい分け前の稲わらを測定容器に詰めた際、一部の付着土壌等の細かい粒子等が容器底部に偏在していた。偏在した付着土壌等には、細かい稲わらが主体である0.25～1 mm 試料と付着土壌が主体である0.25 mm 以下試料の両方が含まれていると考えられる。そこで、0.25～1 mm 試料と0.25 mm 以下試料の測定値に与えるそれぞれの影響の度合いを検証するために、稲わらに含まれる0.25～1 mm 試料または0.25 mm 以下試料の全量が容器底部に偏在する極端な状況を想定し、図4に示すような偏在モデル試験を行った。測定容器に詰めるそれぞれの粒径の試料量は、先述のふるい分け時の重量比をもとに、全体で充填密度が0.10 g/cm³になるように設定した。具体的な試験方法としては、0.25～1 mm 試料または0.25 mm 以下試料をチャック付きビニール袋に入れ、空隙がなるべくできないようにV11容器の底部に敷き、上から1 mm 以上試料を直接詰めたものを測定試料とし、NaIを用いて放射性Cs濃度を測定した。この偏在モデル試験においても、粒径別の測定結果と重量比をもとに稲わらが均一に混合充填された状態を想定した計算値を算出し、実測値と比較した。

写真2 ふるい分け後の粒径別の試料(容器サイズ:100×70×13 mm)
(左:1 mm 以上、中央:0.25～1 mm、右:0.25 mm 以下)

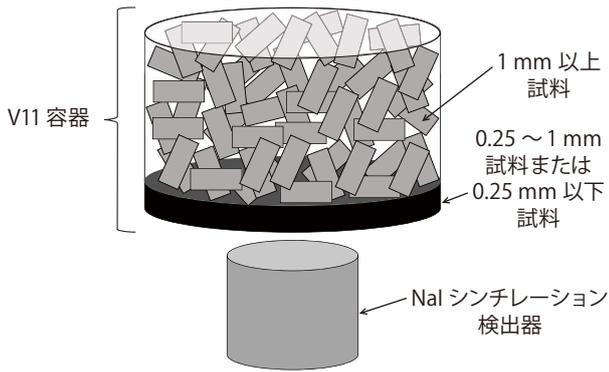


図4 偏在モデル試験の模式図

(2) 結果および考察

ふるい分け後の粒径別の放射性Cs濃度の測定結果を図5左に示す。1 mm以上試料及び0.25～1 mm試料に比べて、0.25 mm以下試料は2倍以上高い放射性Cs濃度だった。汚染状態の観察結果と合わせて、付着土壌が稲わらの汚染源である可能性が高いことが改めて示された。

ふるい分け前に測定した放射性Cs濃度の実測値と、均一混合試料を想定した計算値を図5右に示す。実測値の方が約10%高い値であり、実際には均一化が不十分であり、容器底部に一部の0.25～1 mm試料及び0.25 mm以下試料などの小粒径の試料が偏在していた影響を受けたものと思われる。土壌粒子を多く含む0.25 mm以下試料が容器底部に偏在した場合、0.25 mm以下試料は1 mm以上試料よりも放射性Cs濃度が2倍以上高いため、容器底部には密度の偏りと放射性Cs濃度の偏りの両方が生じ、測定値が高くなる要因となる。一方で、0.25～1 mm試料が容器底部に偏在した場合、0.25～1 mm試料の放射性Cs濃度は1 mm以上試料とほとんど変わらないため、測定値が高くなる要因は容器底部に生じる密度の偏りのみとなる。ふるい分け前に詰めた場合は、0.25～1 mm試料と0.25 mm以下試料の両方が容器底部に偏在

しており、密度の偏りと放射性Cs濃度の偏りのそれぞれの影響の度合いを評価することはできないため、次の偏在モデル試験に基づき考察した。

偏在モデル試験の測定結果を図6に示す。0.25～1 mm試料の全量を容器底部に偏在させた場合、計算値と実測値はほとんど変わらなかった。本研究で用いた稲わらに含まれる細かい稲わらは重量比で6%であり、その全量が容器底部に偏在して密度の偏りが生じても、測定値に与える影響は少ないということになる。しかし、細かい稲わらを多量に含むような試料の場合は、容器底部に偏在することで測定値が過大評価される可能性も否定できない。なお、測定容器内で試料の密度の偏りが生じた場合、ガンマ線自己吸収効果の違いによる影響が考えられる。しかし、¹³⁴Cs及び¹³⁷Csのガンマ線エネルギーは604～795 keVと高いためにその影響は小さいと考えられ、また既報¹⁵⁾において、植物体の玄米とアルミナ及びKClからなる標準線源との間のガンマ線自己吸収効果の違いは1%以下であったことが報告されていることから、本研究では密度の偏りによるガンマ線自己吸収効果の影響を考慮しない。

0.25 mm以下試料の全量を容器底部に偏在させた場合、計算値よりも実測値の方が約20%高い値となり、放射性Cs濃度の偏りによる測定値への影響が大きいことがわかった。また、計算値と実測値の差は、図5に示されたふるい分け前における差(約10%)よりも大きいことから、容器底部に偏在する付着土壌の量が多いほど、測定値が高くなる可能性が示唆される。以上の結果から、これらの誤差要因を回避するためには、より細かくすることができる粉砕による試料の均一化や粒径別での測定を検討することが望ましい。

4. 粉砕度及び充填密度が測定値に与える影響の検証

(1) 方法

先述のように、本研究に用いた稲わらには水田由来と思われる土壌が付着しており、測定容器に詰めた際に付着土壌が

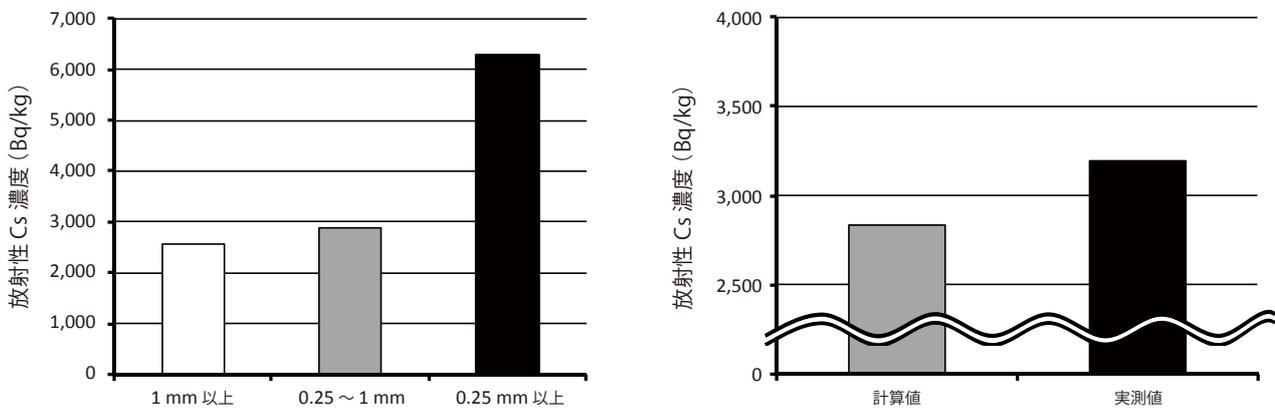


図5 ふるい分け前後の放射性Cs濃度(左:ふるい分け後粒径別、右:ふるい分け前)

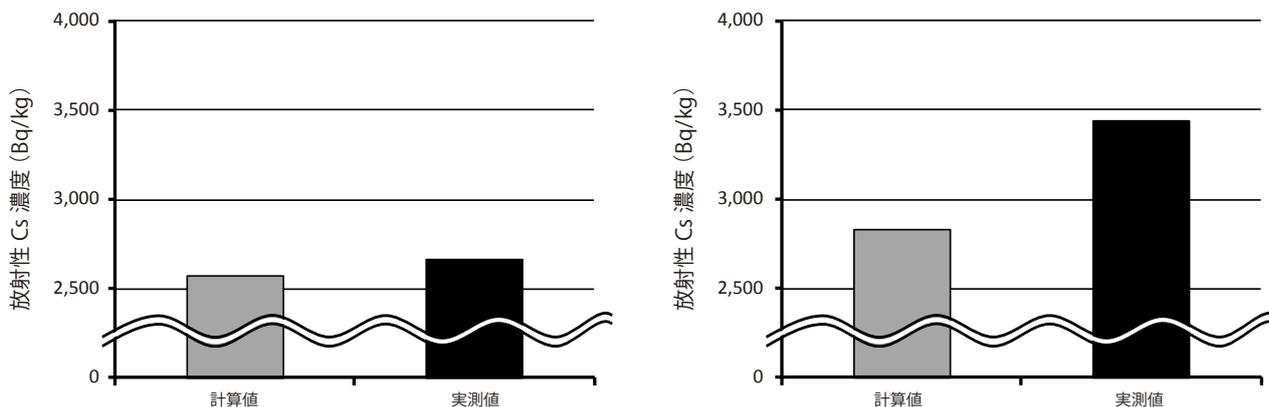


図6 偏在モデル試験の放射性Cs濃度
(左:0.25～1 mm 試料の場合、右:0.25 mm 以下試料の場合)



写真3 粉碎度別の試料(容器サイズ:100×70×13 mm)
(左:有姿、中央:裁断、右:粉碎)

容器底部に偏在する様子が見られた。したがって、試料の粉碎度及び測定容器への充填密度が測定値に与える影響のみを検証するうえでは、付着土壌の影響を除外するため、あらかじめ目開き1 mmのふるいにかけることで、付着土壌等を取り除いた。

粉碎度は「有姿」、「裁断」、「粉碎」の3通りとし、「裁断」ではハサミを用いて1～2 cm程度に裁断し、「粉碎」ではコーヒ豆用のプロペラ式電動ミルを用いて粉碎した。それぞれの粉碎度の様子を写真3に示す。「有姿」及び「裁断」の充填密度は、最大の圧力で詰めた場合、適度な圧力で詰めた場合、ほとんど圧力をかけずに詰めた場合を目安とし、「密度大」、「密度中」、「密度小」の3通りをそれぞれ設定した。「粉碎」の充填密度は、充填時に圧力をかけても充填密度があまり変わらなかったため、「密度中」のみの1通りとした。また、放射性Cs濃度の測定には、NaIまたはGeを用いることで、測定機器による違いについても検証した。つまり、粉碎度、充填密度、測定機器の組み合わせは全14通りであり、それぞれの試料数はn = 3またはn = 4とした。本研究で設定したそれぞれの充填密度を表2に示す。

「粉碎」の試料の測定値を真値に近い対照区とし、「有姿」及び「裁断」における各充填密度の測定値を処理区として、Geを

表2 設定した粉碎度と充填密度

測定装置	粉碎度	充填密度 (g/cm ³)	
Ge	有姿	大	0.15
		中	0.10
		小	0.07
	裁断	大	0.18
		中	0.15
		小	0.10
粉碎	中	0.22	
NaI	有姿	大	0.10
		中	0.07
		小	0.04
	裁断	大	0.12
		中	0.10
		小	0.07
粉碎	中	0.14	

用いた測定とNaIを用いた測定のそれぞれにおいて、Dunnett法による平均値の多重比較検定を行った。

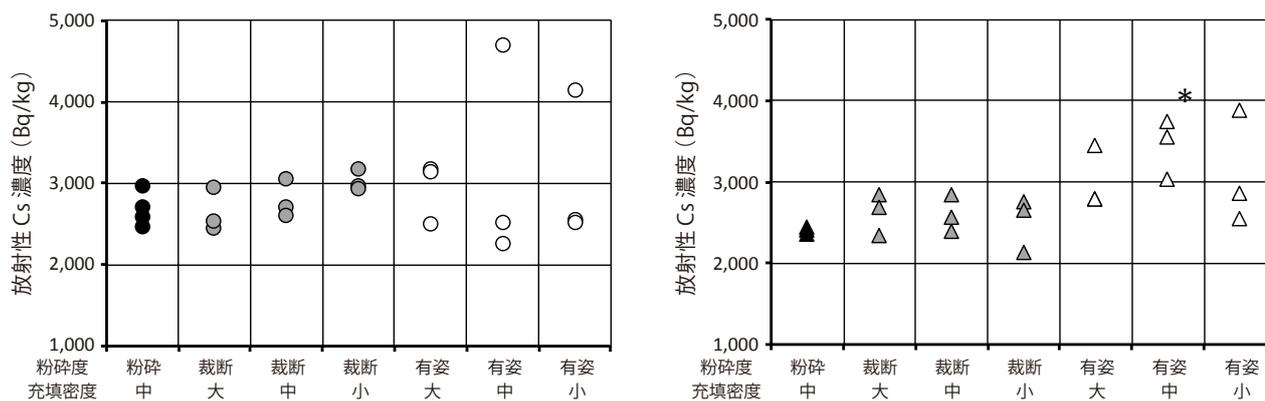


図7 粉碎度及び充填密度と放射性Cs濃度(左:Geを用いた測定、右:NaIを用いた測定)
(図中の*は「粉碎」と有意差($P < 0.05$)があることを示す)

(2) 結果および考察

各粉碎度及び各充填密度における放射性Cs濃度の測定結果を図7に示す。左図がGeを用いた測定結果であり、右図がNaIを用いた測定結果になっている。

粉碎度の観点からみると、有姿では測定値のばらつきが大きかった。稲わらは形状が不定形でかつ細長いため、有姿では試料の混合が不十分になり、汚染状態の観察で見られた汚染の不均一性を解消できなかつたと思われる。また、Geを用いた測定では、有姿での測定値のばらつきが顕著であったが、これは試料量の少なさが影響した可能性がある。一方で、裁断または粉碎では測定値のばらつきが小さかったことから、付着土壌を取り除いた稲わら試料においては、1～2 cm程度の裁断で粉碎とほぼ同等の均一性を確保できることが示された。

充填密度については、有姿のばらつきが大きさを含むが、充填密度が低いほど測定値が高くなる傾向が見られ、Geを用いた測定における裁断した試料についてはその傾向が明確に見られた。試料を測定容器に詰める際は上から押し込んでいくため、充填密度が低い場合は容器上部に比べて検出器に近い容器底部の密度が高くなりやすく、この密度の偏りが影響して測定値が過大評価された可能性がある。また、充填密度が低いと必然的に試料量が少なくなるため、汚染のばらつきの影響を受けやすくなることも考えられる。以上の点を考慮し、測定値の過大評価を防ぐために、なるべく高い充填密度で試料を詰めることが望ましい。

測定結果の平均値の統計的な差をDunnnett法により検定したところ、Geを用いた測定では有意差は見られず、NaIを用いた測定では「粉碎」と「有姿:密度中」との間でのみ有意差($P > 0.05$)が確認されたことから、試料数を増やした検討も今後必要である。

5. 総合考察

(1) 測定容器内における放射性Csの偏りが測定値に与える影響

本研究で用いた稲わらは土壌が付着しており、その付着土壌が汚染源である可能性が高く、その付着土壌が容器底部に偏在すると、測定値が過大評価されることが示された。付着土壌は稲わら植物体よりも放射性Cs濃度が2倍以上高いことから、容器底部に付着土壌が偏在することは、放射性Csが偏在することに言い換えることができる。そこで、先行研究を参考にして、測定容器内の放射性Csの偏りについて考察する。

吉田らによれば、玄米等の食品の放射性Cs濃度の測定において、2 Lマリネリ容器の底部に放射性Csを含まないビーズを用いて容器内で偏在する状況をつくると測定値が過小評価され、一方で、容器の上部にビーズが偏在する場合は測定値が過大評価されることが報告されている¹⁶⁾。後者の検証は、容器の底部に放射性Csが偏在している点では、本研究の偏在モデル試験の状況と類似しており、測定値の過大評価という同様の結果が得られた。

環境水の放射性Cs濃度の測定では、放射性Csを含む懸濁物質が2 Lマリネリ容器の底部に沈降することにより、測定値が20～30%程度過大評価されることが報告されている¹⁷⁾。また、ろ過法及びゲル化法による代替手法が提案されている。この検証においても、本研究の偏在モデル試験の状況と類似しており、測定値の過大評価という結果も同じだった。稲わらにおける代替手法としては、環境水のろ過法を転用する場合、ふるい分けによって付着土壌等を分別し、それぞれの放射性Cs濃度を測定することになる。これらのように、研究例としては少ないが、異なる媒体を用いた類似研究が行われており、容器内での放射性Csの偏りが測定値に与える影響の重要性が示されている。

本研究は、放射性Csによって汚染された廃棄物の中でも、特に測定試料の不均一性が大きいと思われる稲わらに焦点を

当て、測定誤差の要因とその程度を検証したものである。実際に保管されている稲わらは、放射性Cs濃度レベルや付着土壌の量だけでなく、含水比、試料片の大きさ、腐熟状況、保管状況など様々な点で異なるため、より定量的な検証を行うためには、これらの要因についても考慮する必要がある。

(2) 放射性Cs濃度の測定値の過大評価

本研究で扱った稲わらのように、不定形の植物体で放射性Csを含む土壌の付着も考えられる試料の放射性Cs濃度の測定値は、試料調製に起因する過大評価につながる誤差要因を多く含んでいることが明らかとなった。この点を踏まえて、これまでに報告された以下の二つの問題について考察した。

a) 農林業系廃棄物の焼却処理における物質収支の解釈

稲わらや牧草など放射性Csを含むこれらの農林業系廃棄物を焼却処理する際に、排ガスに含まれる放射性Csがバグフィルターで十分に除去できているかについて、物質収支の観点から考察した知見が岩見ら¹⁸⁾により報告されている。岩見らによれば、遠野市一般廃棄物焼却炉で放射性Csを含む牧草を焼却した際の測定データを用いて、物質収支の視点及び投入した放射性Csの灰としての回収率から、バグフィルターの除去率を64.6%と報告した。一般に、ばらつきの大きい焼却対象廃棄物の性状から物質収支を実測で明確に考察することは困難性が高いことから、バグフィルターの除去性能の把握は、フィルター前後の直接的な実測による評価が適切であり、筆者らも多くの測定調査の結果により、十分な除去性能が発揮されていることを報告してきた¹⁹⁾。岩見らの結果は、行政から公表されたデータを統計的に分析して得られたものであるが、そもそも基礎となっている測定データ自身が物質収支の検討に利用可能なものであるかの検証も必要である。回収された主灰や飛灰がその性状から相当程度均一性が確保された試料であるのに対して、焼却対象物の牧草は、稲わらと同様に不定形の植物体であり、放射性Csの測定の際には、本研究で指摘した先述の誤差要因により同様の現象が生じる可能性がある。すなわち、牧草試料の測定の際に、測定容器内での土壌粒子等の微小な粒子の偏在や、容器内への充填の仕方による密度の偏在などにより過大評価になった場合に、灰の試料がその均一な性状から適正に評価されていたとすれば、見かけの物質収支がインプットとアウトプットで合わない現象が生じる可能性が高い。なお、牧草試料の測定は、灰中の放射性Cs濃度をコントロールする上で行われたものと推察され、牧草中の放射性Cs濃度の過大評価は安全側の評価になることから、その意味では過大評価の可能性自体を問題視する必要はない。

b) 指定廃棄物の放射性Cs濃度の再測定結果の解釈

宮城県、栃木県、茨城県では、指定廃棄物の放射性Cs濃度の再測定が行われており、申請時の放射性Cs濃度から物理的減衰を考慮した推計値と再測定値が比較されている。全

体的な推計値と再測定値のずれが報告されているが、特に宮城県の稲わらでは、推計値よりも再測定値の方が低くなる傾向が見られた²⁰⁾。その原因については、指定廃棄物の申請時に放射性Cs濃度が高いものを選んで申請した、空間線量率が高い部位を選んで測定した、申請後に攪拌されて均一化した、申請後に含水率が変化した等の可能性が指摘されている。申請時の測定において試料調製がどのような方法で行われたのかを遡及することは難しいが、本研究で検証した粉砕度、充填密度、付着土壌等の偏在等の要因が影響し、申請時の測定で過大評価されていた可能性もある。

(3) 正確な測定値を得るための試料調製方法

冒頭に挙げたように、現状の測定マニュアルとして、「放射能測定法シリーズ」や「廃棄物関係ガイドライン」等が策定されており⁸⁻¹²⁾、試料の裁断や粉砕、空隙ができないような試料充填等が留意点として記載されている。しかし、土壌が付着しているような試料については考慮されておらず、粉砕度や充填密度の影響度合いについても十分な記載はされていない。そのため、試料調製方法は測定者によって様々となり、先述のような過大評価が生じた可能性がある。そこで、現在策定されているマニュアルにおける試料調製方法に、本研究で得られた知見を加えた、望ましい稲わら等の不定形の植物体試料の調製方法を提案する(図8)。現状のマニュアルには記載されていないが、稲わら等に土壌が付着している場合は、ふるい分けによる粒径別での測定や、粉砕による均一化等の工夫により、過大評価を避けることができると思われる。また、現状のマニュアルでは「必要に応じて」裁断または粉砕を行うことになっているが、有姿における汚染の不均一を起因とする測定値のばらつきを考慮し、裁断または粉砕を必ず行うことが望ましい。充填密度が低いと容器内部で密度差が生じることに留意する必要がある。ただし、粉砕等の前処理は非常に時間がかかり、特別な器具類も必要となることから、試料搬入から測定までの迅速性と簡便性を考慮しつつ、稲わらの性状に応じた試料調製方法を採用することが重要である。

6. 結論

農林業系廃棄物の一つである稲わらを対象として、放射性Cs濃度測定時の測定誤差について、その要因と程度を明らかにすることを目的とした検討を行った。得られた主要な知見を下記に示す。

- ① 稲わら表面の汚染状態は、試料片によって汚染の有無が明確に分かれており、同じ試料片の中でも汚染の偏りが見られた。また、稲わらに付着する土壌が汚染源である可能性が示された。
- ② 稲わらをふるい分けた粒径別の放射性Cs濃度の測定により、最も細かい粒径区分にある付着土壌が汚染源である可能性が改めて示された。稲わらを測定容器に充

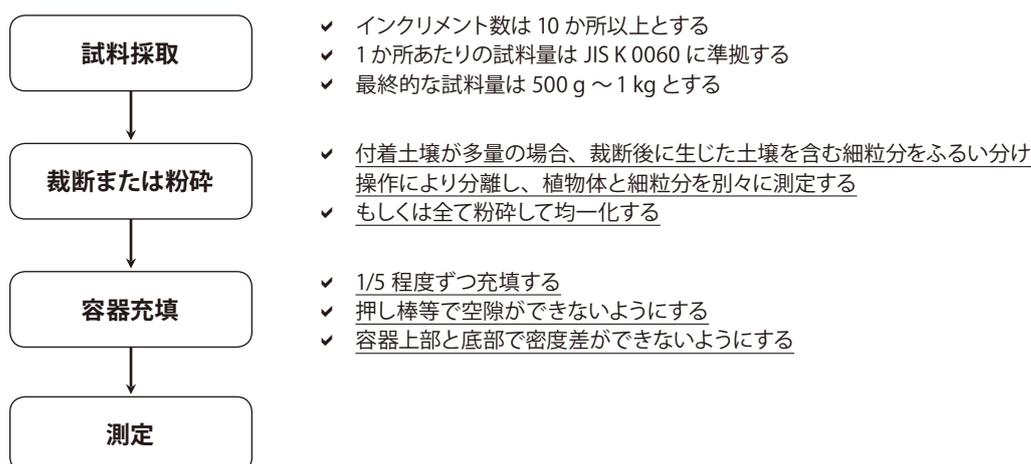


図 8 望ましい稲わら等の試料調製方法
(下線部は本研究結果から導かれた留意点を示す)

填する際、付着土壌等の微小な粒子が容器底部に偏在する様子が観察され、その量が多いほど測定値が過大評価される傾向が示された。

- ③ 付着土壌を取り除いた稲わら試料においては、有姿試料では汚染が不均一であるために測定値のばらつきが大きい、1 ~ 2 cm 程度の裁断試料で粉碎試料と同等の均一性が確保でき、測定値のばらつきが抑えられた。また、充填密度が低いほど測定値が過大評価される傾向が示された。
- ④ 付着土壌の容器底部への偏在が測定誤差の要因になる点は、食品や懸濁物質を含む環境水の測定における誤差要因を検討した既往研究でも指摘されており、均一性の確保や逆に分画して個別に測定するなどの改善策が考えられる。
- ⑤ 稲わら等の農林業系廃棄物の放射性 Cs 濃度測定における測定値の過大評価が生じやすい点は、焼却処理における物質収支及び指定廃棄物の再測定結果において説明が困難な現象の解釈に役立つ。
- ⑥ 現在の測定マニュアルの策定状況を整理し、本研究で得られた知見を加えた稲わら等の不定形の植物体試料の調製方法を提案した。

本研究により、稲わら等の農林業系廃棄物の放射性 Cs 濃度の測定において、付着土壌、粉碎度、充填密度等に配慮する必要性が示されたが、各因子が測定値に与える影響の度合いについては、確度をもった定量的な評価には至らなかった。試料性状の多様性を踏まえたさらなるデータの集積とともに、不確かさのシミュレーションによる検討などを通して、様々な誤差要因の中で今回対象とした誤差要因の影響の度合いを明確にしていけることが必要である。

参 考 文 献

- 1) 「農林業系廃棄物の処理に向けた環境省の取組について (環境省廃棄物・リサイクル対策部)」宮城県美里町 HP (http://www.town.misato.miyagi.jp/07kurashi/pdf/h2812_kankyousyou_siryuu.pdf), 2017年8月閲覧
- 2) 「福島県鮫川村における実証事業」環境省 HP (http://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_fukushima/specified_waste/samegawa.html), 2017年8月閲覧
- 3) 「開閉所農林業系廃棄物減容化事業」環境省 HP (http://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_fukushima/specified_waste/processing_kaihei.html), 2017年8月閲覧
- 4) 「可燃性除染廃棄物等の減容化事業を進めます」二本松市 HP (<http://www.city.nihonmatsu.lg.jp/uploaded/attachment/26583.pdf>), 2017年8月閲覧
- 5) 「第11回宮城県指定廃棄物等処理促進市町村長会議の議事録について」宮城県 HP (<http://www.pref.miyagi.jp/soshiki/houtai/sitei-kaigi11.html>), 2017年8月閲覧
- 6) 「茨城県の指定廃棄物等の放射能濃度の再測定結果について」環境省 HP (http://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_other/ibaraki_gunma/pdf/remasurement_result_ibaraki_170331.pdf), 2017年8月閲覧
- 7) 「JAB NOTE 9 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の放射能濃度測定に係る不確かさの評価ガイドライン」公益財団法人日本適合性認定協会 HP (<https://www.jab.or.jp/files/items/4299/File/RL509V2.pdf>), 2017年8月閲覧
- 8) 「放射能測定法シリーズ」日本の環境放射能と放射線 HP (http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/pdf_series_index.html), 2017年8月閲覧
- 9) 「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」日本の環境放射能と放射線 HP (<http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No24.pdf>),

- 2017年8月閲覧
- 10) 「環境試料採取法」日本の環境放射能と放射線 HP (<http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No16.pdf>), 2017年8月閲覧
- 11) 「廃棄物関係ガイドライン」環境省 HP (<http://josen.env.go.jp/material/>), 2017年8月閲覧
- 12) 「廃棄物等の放射能調査・測定マニュアル」一般社団法人廃棄物資源循環学会 HP (<http://jsmcwm.or.jp/wp-content/uploads/2014/07/26a73ad7a8f42aba210a427b9437888a.pdf>), 2017年8月閲覧
- 13) 近藤 錬三, 佐瀬 隆: 植物珪酸体, その特性と応用. 第四紀研究, **25**, 31-63 (1986).
- 14) 須藤 俊男, 下田 右, 四本 晴夫, 会田 嵯武朗: 「粘土鉱物の電子顕微鏡写真図譜」, p.87, 講談社, 東京 (1980).
- 15) 米沢 伸四郎: Ge 検出器 - γ 線スペクトロメトリーによる玄米認証標準物質中 ^{134}Cs , ^{137}Cs 及び ^{40}K の分析 - 第一部放射能濃度の定量 -. 分析化学, **65**, 645-655 (2016).
- 16) 吉田 充, 西塚 菜穂子, 村上 恵理, 八戸 真弓, 濱松 潮香: 放射能の不均一分布がゲルマニウム半導体検出器を用いた食品の放射能測定値に及ぼす影響. 日本食品科学工学会誌, **63**, 132-135 (2016).
- 17) 北島 枝織, 畠山 雅人, 土屋 貴史, 保高 徹生: 高濁度懸濁物質を含む環境水中の放射性セシウム定量へのゲル化法の適用. 分析化学, **62**, 513-519 (2013).
- 18) 岩見 億丈, 笹井 康則: 物質収支による放射性セシウムの灰中回収率の推定. 廃棄物資源循環学会論文誌, **27**, 106-116 (2016).
- 19) 「放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分(技術資料: 第四版)改訂版(平成26年4月14日)」国立研究開発法人 国立環境研究所 HP (<http://www.nies.go.jp/fukushima/act-pg1-01.html#result>), 2017年8月閲覧
- 20) 「宮城県の指定廃棄物の放射能濃度の再測定について」環境省HP (http://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_other/miyagi/pdf/miyagi_info_160217.pdf), 2017年8月閲覧

2017年9月14日受付
2017年12月5日受理

和 文 要 約

放射性セシウムに汚染された農林業系廃棄物の焼却等による処理にあたり、事前に汚染状況を把握する必要がある。しかし、農林業系廃棄物は植物体を含むためにかさ密度が小さく不均一になりやすいため、測定誤差が大きくなる懸念がある。そこで、実際に汚染された稲わらを用いて、稲わら表面の汚染状態を観察し、容器底部への付着土壌等の偏在、試料の粉碎度、測定容器への充填密度が放射性セシウム濃度の測定値に与える影響を検証した。その結果、稲わらの汚染源は付着土壌である可能性が高く、その付着土壌が容器充填時に底部に偏在することで、放射性セシウムの偏りが生じ、測定値が過大評価されることが示された。一方、稲わら表面の汚染状態の不均一による測定値のばらつきは、裁断または粉碎し混合することにより抑えられたが、充填密度が低いほど測定値が過大評価される傾向が見られた。以上の結果と先行研究等を踏まえて考察し、測定容器内の放射性セシウムの偏りによる測定値の過大評価が、焼却炉の放射性セシウムの物質収支の解釈に影響を与える可能性を指摘した。また、現状の測定マニュアルにおいて、正確な測定値を得るための試料調製方法を提案した。

