

〔農工研技報 214〕
175～196, 2013〕

NaI(Tl)シンチレーション検出器による屋外測定での 放射性セシウム計数の解析法

吉本周平* 今泉眞之** 石田 聡* 小倉 力*** 奥島修二****

* 資源循環工学研究領域水資源工学担当

** 資源循環工学研究領域

*** 農地基盤工学研究領域水田高度利用担当

**** 企画管理部

キーワード：除染評価，放射能測定，ガンマ線スペクトロメトリ，エアポーン，福島第一原子力発電所

I 緒言

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って、福島県を中心に広範囲の農地が放射性セシウムをはじめとする放射性物質によって汚染された。食料生産基盤である農地から放射性物質を除去するために、農林水産省を中心とした取り組みによって農地土壤等の除染技術が開発されている（農林水産省，2012）。これらの農地から放射性物質を確実にかつ効率的に除去し、その効果を評価するためには、除染前後の面的な汚染分布や汚染物質の除去量を把握する必要がある。

事故による放射性物質のフォールアウトを受けた地域の汚染状況の把握については、米国エネルギー省（DOE）が航空機モニタリングによって得られた2011年3月17日から19日までの放射能測定結果（DOE，2011）を公表したことを皮切りに、文部科学省と米国DOEの共同による航空機モニタリング測定（文部科学省，2011a）や農林水産省から農業環境技術研究所への委託による農地土壤の放射性物質濃度測定（農林水産省，2011）などによって、広域的な汚染分布が明らかにされてきた。

事故後に放出された放射性核種のうち、量的に卓越していたのは放射性ヨウ素（ ^{131}I ）と放射性セシウム（ ^{134}Cs および ^{137}Cs ）である。このうち、 ^{131}I は半減期が約8日で比較的短く、長期的に問題となるのは半減期約2年の ^{134}Cs と約30年の ^{137}Cs である。セシウムは一般的に、土壤中に存在するイライトなどの粘土鉱物に強く吸着する（例えば、石川ら，2007）。このため、土壤の表面に降下した放射性セシウムは、下方へは殆ど移動せずに表面に留まる。このことは、地上での核兵器実験やチェルノブイリ原子力発電所事故のフォールアウト後に報告されている（例えば、Miller et al., 1990；結田ら，2002；Schaub et al., 2010）とともに、今回の事故後の調査でも地表面に高濃度で分布する実態が明らかになっている（塩沢ら，2011；Kato et al., 2012；Tanaka et al., 2012；奥島ら，2012）。

このような放射性セシウムの環境中での挙動に基づいて、農村工学研究所では、農林水産省が主体の下、「固化剤を用いた表土削り取り」と「水による土壤攪拌・除去」による農地除染技術を開発して提示した（農林水産省，2012）。「固化剤を用いた表土削り取り」は、未耕起圃場の表面付近に分布する放射性セシウムを固化された表土とともに効率よく剥ぎ取る手法である。また、「水による土壤攪拌・除去」は、水田土壤を水により攪拌（浅代掻き）した後に放射性セシウム含有量の高い細粒分を排出する手法であり、耕耘後の圃場でも適用が可能である。これらの手法を適用した除染の効果を評価するためには、除染前後の農地表面の放射性セシウムの分布を把握するとともに、「水による土壤攪拌・除去」については濁水として排出される放射性セシウムを測定することが不可欠である。

現場での放射能測定にはサーベイメータを用いることが多いが、天然放射性核種であるウランやカリウムなどの影響で放射能汚染を過大評価する場合がある（文部科学省，2011b）。このため、 γ 線スペクトルを測定できる検出装置によって γ 線放出核種を同定して定量することが望ましい。野外の現場では、扱いやすく検出効率の良いNaI(Tl)シンチレーション検出器がしばしば用いられている。NaI(Tl)シンチレーション検出器による放射性核種の測定法については科学技術庁（1974）のマニュアルや野口（1980）の教科書で示されているとともに、チェルノブイリ原子力発電所事故後の現地測定（例えば、Schaub et al., 2010）にも用いられている。今回の事故では ^{134}Cs と ^{137}Cs がほぼ1：1の比率で放出され（河田・山田，2012）、現況ではこれら両方の核種が卓越して残存している。土壤中の放射能を測定するためには ^{134}Cs と ^{137}Cs それぞれの計数を得る必要があるが、これらの核種から放出される γ 線のエネルギーのうち ^{134}Cs の605keVと ^{137}Cs の662keVが近接していることから、分解能に劣るNaI(Tl)シンチレーション検出器ではこれらの全吸収ピークが重なり合い、両核種を正確に弁別して計数する

ことが困難であった。尹ら (2012) はこの問題点を回避するために、¹³⁷Csの662keVピークの右半分と¹³⁴Csの796keVピークを計数する方法を提案し、実験室での試料測定に適用した。しかし、野外での測定においては温度ドリフト (例えば, Ianakiev et al., 2009) などの影響を考慮して結果を解析する必要があるが、¹³⁴Csと¹³⁷Csを弁別して解析する事例はまだない。

本研究では、NaI(Tl)シンチレーション検出器による放射性セシウム計数の解析法を示すとともに、計画的避難区域 (事故発生から1年間の積算線量が20mSvに達するおそれのある区域) に位置する福島県飯館村で実施された実証試験において試験前後の農地表面の測定と「水による土壌攪拌・除去」による濁水の連続モニタリングに適用し、解析法の適用性を検討した。

II 理論

γ線スペクトロメトリとは、γ線検出器が得たパルス波高分布すなわちγ線エネルギースペクトルを測定・解析する手法の総称である。γ線スペクトロメトリの進展によって、放射性核種が放出するγ線のエネルギーおよびその放出比を決定できるようになり、それに基づいて元素分析や放射線モニタリングが広く可能となった(野口, 1980)。

γ線スペクトロメトリが対象とする放射線は、X線、γ線といった電磁放射線である。電磁放射線のうち、原子核内のエネルギー準位の遷移によって発生するものをγ線という。γ線のエネルギーは遷移前後のエネルギー準位差であり、原子核毎に固有の値である。α壊変やβ壊変に伴ってγ線が放出されることも多く、また、壊変に伴うエネルギー準位の遷移の仕方が複数ある場合もあり、1回の壊変でエネルギーの異なる複数のγ線が異なる割合で放出されることがある。例えば、¹³⁷Csはβ線を放出して^{137m}Baとなるが、その94.7%は核異性体である^{137m}Baを経る (残りの5.6%は直接、基底状態の¹³⁷Baとなる)。

この励起状態の^{137m}Baから¹³⁷Baとなる際、662keVのγ線を放出する。このγ線の本数は、β壊変の数に対して85.1%である (残りの^{137m}Baからの遷移は、内部転換と呼ばれる軌道電子の放出である)。¹³⁴Csのβ壊変による¹³⁴Baへの遷移はより複雑で、563keV、569keV、605keV、796keV、802keV、1,365keV (それぞれβ壊変に対して8.4%、15.4%、97.6%、85.5%、8.7%、3.0%) など多様なγ線を放出する。このような核種の崩壊に伴うエネルギーの遷移は一般にFig.1のような壊変図式として纏められる。なお、本稿で言及される放射性核種のγ線エネルギーおよびその放出率、ならびに半減期をTable 1に示す。

γ線エネルギースペクトルを得ることができる検出器としては、大別して半導体検出器とシンチレーション検出器が挙げられる。半導体検出器は、放射線が入射すると電流が流れる構造であり、ピークスペクトルの分解能が良いことが利点である。シンチレーション検出器は、放射線エネルギーを吸収して蛍光を発生する物質 (シンチレータ) を用い、得られた蛍光を光電子増倍管において電子信号に変換して処理する構造で、ピークスペクトルの分解能は半導体検出器に比べて一般に劣る。

環境試料中のγ線測定において、半導体検出器は専ら高純度ゲルマニウムによるものが、シンチレーション検出器はNaI(Tl)のものが多く、それぞれ用いられている。ゲルマニウム検出器は、非常に優れた分解能を有し、複数の放射性核種を含む試料の測定に用いることができるが、分解能を維持して測定するためには常に冷却する必要がある。このため、屋外の現場で使用することが容易ではない。一方、NaI(Tl)シンチレーション検出器は、冷却の必要が無く、検出効率が良いことから、しばしば野外での放射能探査に用いられてきた (例えば, 今泉ら, 1992; 岩田ら, 2001)。

農村工学研究所が所有する鉄製の遮蔽容器において、ゲルマニウム検出器 (Ortec社製GEM-40) とNaI(Tl)シンチレーション検出器 (Bicron社製5H5/5) で¹³⁷Cs標準線源 (20.1kBq, 1981年9月1日現在) を測定した結果

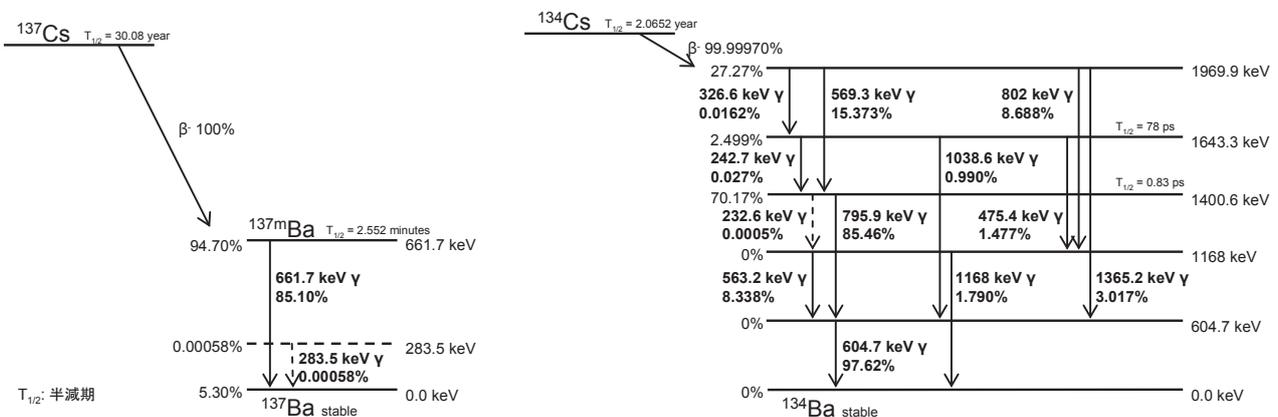


Fig.1 ¹³⁴Csおよび¹³⁷Csの壊変図式 (NNDC, 2011 から作成)
Decay schemes of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs

をFig.2に示す。両検出器のスペクトルを見ると、全吸収ピークが662keVに見られる。エネルギー分解能はピークの半値幅（FWHM: Full Width at Half Maximum）から計算されるが、ここではゲルマニウム検出器の半値幅は1.6keV、NaI(Tl)シンチレーション検出器では47keV、分解能はそれぞれ0.24%、7.1%であった。γ線スペクトロメトリにおいて、核種の同定および定量のためには基本的にこの全吸収ピークを利用することになる。なお、1,320keV付近に見られるピークは2本のγ線が同時に検出されたことに依るサムピーク（SP）である。また、全吸収ピークより低エネルギー側にもピークが見られる。410keVより低エネルギー側にはコンプトン散乱によって生じる連続スペクトル（コンプトンスペクトル）が見られ、右端をコンプトン端（CE）と呼ぶ。コンプトン端は、全吸収ピークから約200keV低い位置で観測される。また、200keV付近には後方散乱によるピーク（BS）が見られる。35keV付近のピークは、¹³⁷Cs（^{137m}Ba）の内部転換に伴

うBaの特性X線（Ba-X）である。Fig.2の両スペクトルには、遮蔽容器からの特性X線（制動放射線）は見られない。これは、内張りされたアクリル板によって線源からのβ線を遮蔽することで鉄製の遮蔽容器からの制動放射線の発生を抑えているためである。

茨城県かすみがうら市で2012年11月18日に採取した2Lの湧水試料（採水時点の²²²Rn濃度：50.4 Bq L⁻¹）を、上述のゲルマニウム検出器とNaI(Tl)シンチレーション検出器で測定して得られたスペクトルをFig.3に示す。²²²Rnは帯水層中に含まれる²³⁸Uや²²⁶Raの子孫核種であるが、さらにその子孫核種である²¹⁴Pbや²¹⁴Biの壊変で放出されるγ線の全吸収ピークがスペクトルに見られる。

福島県飯舘村八和木地区で2012年7月13日に採取した土壌試料を測定して得られたスペクトルをFig.4に示す。事故後のフォールアウトを受けた地域に今も存在する¹³⁴Csと¹³⁷Csの2つの核種のγ線スペクトルピークが卓越して検出される。NaI(Tl)シンチレーション検出器か

Table 1 主要な放射性核種のγ線エネルギー、放出率、半減期、天然存在比（日本アイソトープ協会、2001）
Gamma energy, gamma intensity, half-life and natural abundance of major radionuclides

核種	γ線エネルギー	放出率	半減期	天然存在比
⁴⁰ K	1,461 keV	10.7%	1.277 × 10 ⁹ years	0.0117%
⁶⁰ Co	1,173 keV	100%	5.271 years	(syn.)
	1,333 keV	100%		
¹³¹ I	364 keV	81.7%	8.021 days	(syn.)
	他			
¹³⁴ Cs	563 keV	8.4%	2.065 years	(syn.)
	569 keV	15.4%		
	605 keV	97.6%		
	796 keV	85.5%		
	802 keV	8.7%		
	1,365 keV	3.0%		
他				
¹³⁷ Cs	662 keV	85.1%	30.04 years	(syn.)
²⁰⁸ Tl	277 keV	6.3%	3.053 minutes	(tho.)
	511 keV	22.6%		
	583 keV	84.5%		
	861 keV	12.4%		
	2,815 keV	99.2%		
²¹⁴ Pb	53.2 keV	1.2%	26.8 minutes	(ura.)
	242 keV	7.43%		
	295 keV	19.3%		
	352 keV	37.6%		
²¹⁴ Bi	609 keV	46.1%	19.9 minutes	(ura.)
	768 keV	4.94%		
	1,120 keV	15.10%		
	1,238 keV	5.79%		
	1,764 keV	15.40%		
	2,204 keV	5.08%		
他				

(syn.): 人工放射性核種, (ura.): ウラン系列核種, (tho.): トリウム系列核種

ら得られたスペクトルには、550keVから700keVまでの間にふたこぶのピークがみられるが、これは ^{134}Cs から放出される563keV、569keV、605keVならびに ^{137}Cs からの662keVの γ 線による全吸収ピークの複合である。一方、800keV付近にみられるひとやまのピークは ^{134}Cs の796keVと802keVの複合ピークである。1,400keV付近には、 ^{134}Cs の1,365keVピークや ^{134}Cs の605keVと796keVの γ 線によるサムピークによる幅広なピークがみられるが、これには土壤に含まれる ^{40}K の1,461keVの γ 線も寄与していると思われる。また、土壤には ^{238}U や ^{232}Th 、その子孫核種である ^{226}Ra や ^{228}Ra なども含まれており、さらにその娘核種 ^{214}Bi や ^{208}Tl などが検出される可能性もある。NaI(Tl)シンチレーション検出器のスペクトルの1,700–1,800keVにあるごく小さなピークは ^{214}Bi の1,764keVに

よる可能性がある。

ゲルマニウム検出器からは分解能の高いスペクトルが得られるので、核種の同定や定量が容易であり、実用的には専用のソフトウェアで放射性核種濃度、検出限界、偏差を自動的に算出することが可能である。一方、NaI(Tl)シンチレーション検出器で得られたスペクトルの分解能は低く、土壤試料の測定では ^{134}Cs と ^{137}Cs の γ 線全吸収ピークが重複し、核種毎に単一のピークとして解析できない (Fig.4)。また、土壤試料中に含まれる ^{238}U や ^{232}Th の子孫核種の壊変によって生じる γ 線や、土壤や生物体に普遍的に含まれているカリウムの放射性同位体 ^{40}K から発生する γ 線も検出器で捉えられてエネルギースペクトルに反映される。このため、NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて土壤中の放射性核種の計数を解析

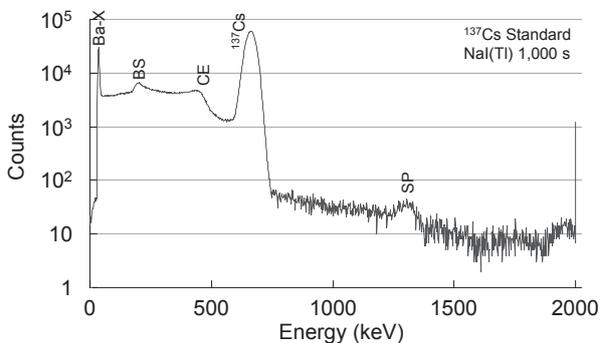
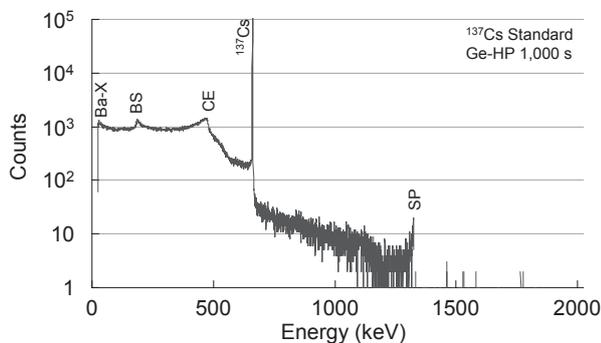


Fig.2 ゲルマニウム検出器とNaI(Tl)シンチレーション検出器による湧水試料の γ 線スペクトル
Energy spectra of gamma ray from a spring water sample with rich ^{222}Rn , obtained by HPGe and NaI(Tl) detectors

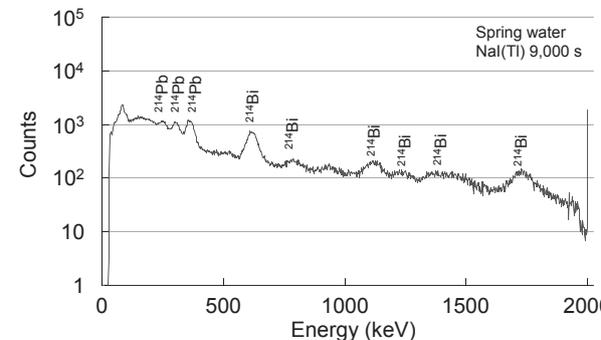
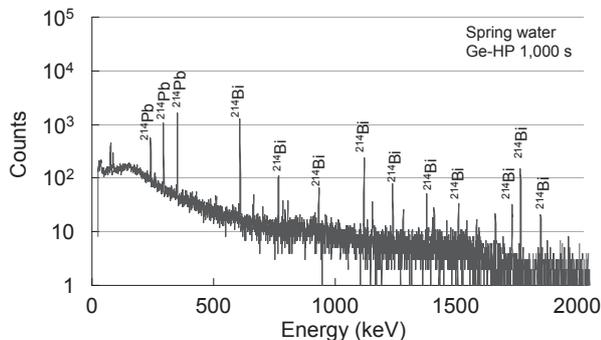


Fig.3 ゲルマニウム検出器とNaI(Tl)シンチレーション検出器による ^{137}Cs 標準線源の γ 線スペクトル
Energy spectra of gamma ray from a standard ^{137}Cs source, obtained by HPGe and NaI(Tl) detectors

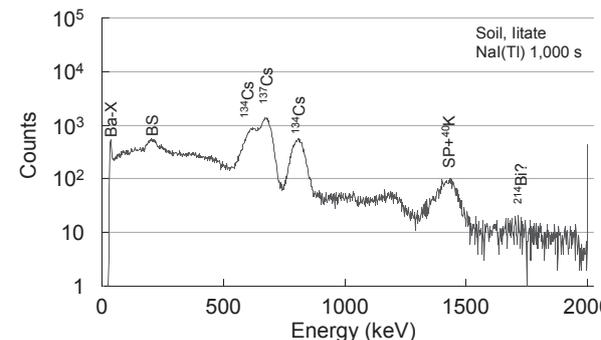
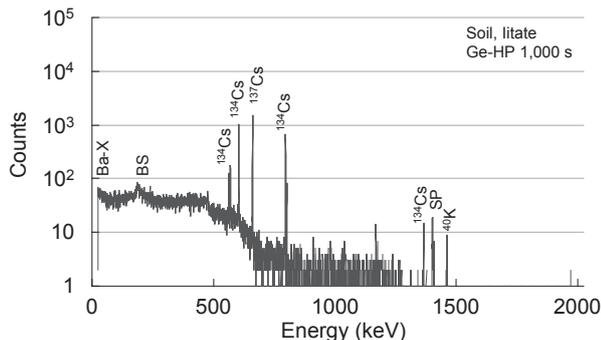


Fig.4 ゲルマニウム検出器とNaI(Tl)シンチレーション検出器による汚染土壤試料の γ 線スペクトル
Energy spectra of gamma ray from a contaminated soil sample obtained by HPGe and NaI(Tl) detectors

するためには、 ^{134}Cs と ^{137}Cs のピーク部分を分離するための工夫が必要となる。

Ⅲ 方法

1 測定装置の構成

本研究に用いた γ 線スペクトル測定装置の構成をFig.5に示す。NaI(Tl)シンチレーション検出器は、後述の「農地における放射性セシウム分布の測定」(以下、農地測定)では直径3インチ、長さ3インチ(Alpha Spectra社製12I12/3)、「濁水中の放射性セシウム濃度の測定」(濁水測定)では直径5インチ、長さ5インチ(Bicron社製5H5/5)で、それぞれ光電子増倍管とプリアンプを内蔵するものを使用した。検出器に接続される測定装置は、前者の測定では軽量リチウム電池から給電しGPS(Garmin社製15xL-W)を備えたもの(クリアパルス社製7150型)、後者の測定では外部交流電源から給電しGPSと高度計を有さないもの(クリアパルス社製7120型)を用いたが、どちらも光電子増倍管より得られた電気信号を増幅して1,024チャンネル波高分析器に送信して解析するという流れは同じである。測定時間、インターバル、連続測定回数はPCで設定することができる。測定時間毎に波高分析器から送信されたスペクトルデータは、その度毎にPCの記憶領域に保存される。7150型については、スペクトルデータが送信されると同時に、検出器の位置情報をGPSから取得してスペクトルデータに書き込む。

本研究では、1,024チャンネルで0keVからおよそ1,700–2,100keVまでをカバーできるように波高分析器のゲインを調整した。また、現場では400keV未満の散乱線が夥しく入射することによって波高分析器の処理能力を超えて測定不能になるので、農地測定で波高分析器の下限ディスクを設定して約200keV未満の γ 線をスペクトルから排除した。農地測定においては、エネルギー校正の際の確認のために、八和木地区での実証試験後の測定では ^{60}Co 標準線源(10.1kBq, 2012年6月28日現在)を、

草野地区での測定ではKCl試薬500gをそれぞれ検出器に密着させて搭載した。

2 放射性セシウムのピーク計数の定量

測定装置から一定時間毎に得られるスペクトルデータは以下の手順によって解析され、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の全吸収ピークに該当する計数が抽出される。手順全体の流れをFig.6に示す。

a スペクトルデータの読み込み

検出器からの信号を受けて波高分析器から得られる1,024チャンネルのスペクトルデータは、装置に搭載されている小型ノートPCにおいてGPSから得られる緯度、経度を統合して、1回の測定毎に1つのデータファイルとしてPC内の記憶領域に保存される。

スペクトルデータからの ^{134}Cs と ^{137}Cs に該当する計数を得るために、解析プログラムにおいて、このデータファイルと、ピーク計数のために必要なパラメータ値を読み込む。以下の処理は、1回分のデータ毎に行うが、ピーク判定については10回毎に連続する測定データを集約して実行する。

b バックグラウンド計数の引き去り

農地測定においては地表面から発生する正味の γ 線を測定するために、また、濁水測定においては濁水からの γ 線を測定するために、予め測定したバックグラウンド(BG)スペクトルを現場で測定したスペクトルデータから差し引いた。

本来、BGは、調査地区の付近で測定されるべきであるが、調査地区では周囲からの人工放射線が強く適切なBG測定ができない。このため、農地測定用のBGは、2011年8月18日に農村工学研究所の実験用水源貯水槽に浮かべたボート上で1,000秒間測定された。また、濁水測定用のBGは、2011年8月30日に農村工学研究所の実験棟内で後述の測定装置のバケツ内に蒸留水を満たして500秒間測定された。

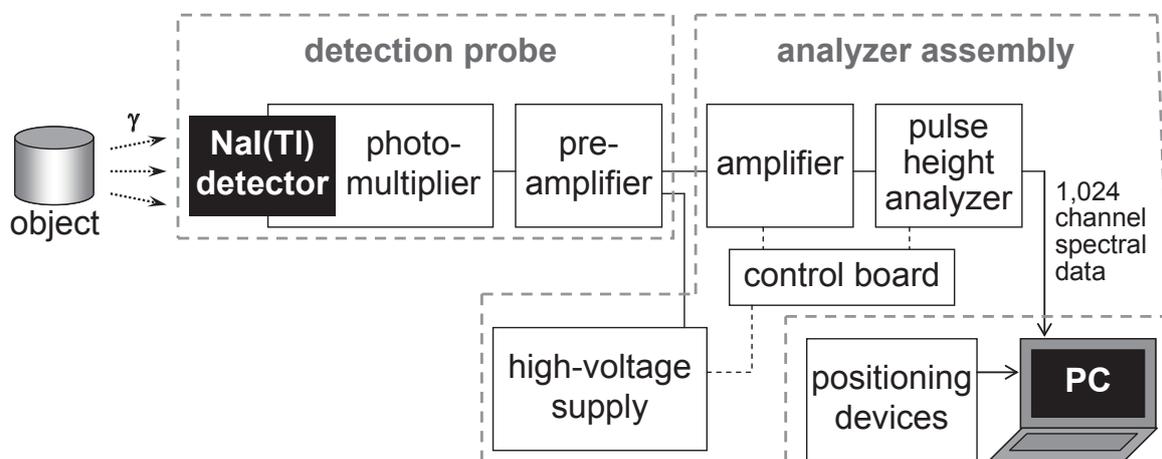


Fig.5 NaI(Tl)シンチレーション検出器による γ 線スペクトル測定装置の構成
System structure of the gamma-ray spectrometer with a NaI(Tl) scintillation detector

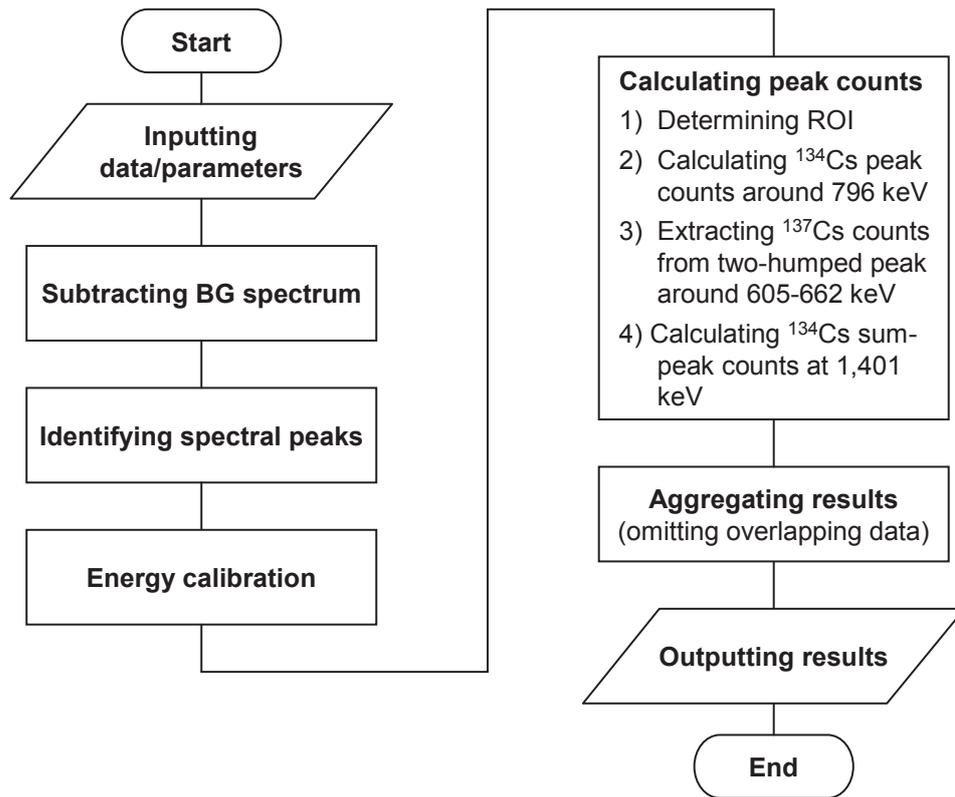


Fig.6 ^{134}Cs と ^{137}Cs の全吸収ピーク計数の抽出手順
Procedures for calculating peak counts of total absorption of γ -ray from ^{134}Cs and ^{137}Cs

c ピーク判定とエネルギー校正

NaI(Tl)シンチレーション検出器による γ 線スペクトル測定装置の一般的な特性として、温度によるNaI(Tl)結晶や光電子増倍管の特性変化に起因する γ 線ピークチャンネルの移動(温度ドリフト)が発生することが知られている(例えば, Ianakiev et al., 2009)。野外における測定では、温度ドリフトの影響を避けることができない。このため、逐次ピークチャンネルを同定し、 γ 線エネルギーとチャンネルの関係を決定(エネルギー校正)する必要がある。

スペクトルデータからピークと対応する放射性核種を同定するために、平滑化2次微分によるピーク判定法を適用した。よく用いられる手法は、ガウス関数2次微分(野口, 1980)や多項式最小2乗(Savitzky and Golay, 1964)のフィルタ関数による方法であり、得られた平滑化2次微分関数において一定基準を満たす極小値をピークと判定する(野口, 1980)。ここでは、測定ノイズによるピークの誤検知を最小限にするためにより強力な移動平均を施すため、下記の手順により、もとのスペクトルに $2N_{MA} + 1$ 個(N_{MA} は任意の自然数)の移動平均を2回施した上で1次微分として隣接するチャンネルで階差をとり、その階差スペクトルに $2N_{MA} + 1$ 個の移動平均を更に2回施した上で隣接するチャンネルで階差をとって平滑化2次微分スペクトルとする。また、この平滑化2次微分スペクトルの極小値となるチャンネルのうち、統計変動 $-\sigma$ の3倍を超えるものをピークと判定して抽出

する。

上述の計算手順を、以下に示す。検出器から得られたスペクトルについて、チャンネル k の計数値を $C(k)$ とする。スペクトルに $2N_{MA} + 1$ 個の移動平均を1回施したスペクトルの計数値を $C_{MA}(k)$ 、2回施したものを $C_{MA2}(k)$ とすると、次式で表される。

$$C_{MA}(k) = \frac{1}{2N_{MA} + 1} \sum_{i=-N_{MA}}^{N_{MA}} C(k+i)$$

$$C_{MA2}(k) = \frac{1}{2N_{MA} + 1} \sum_{i=-N_{MA}}^{N_{MA}} C_{MA}(k+i)$$

$$= \frac{1}{(2N_{MA} + 1)^2} \sum_{i=-2N_{MA}}^{2N_{MA}} (2N_{MA} + 1 - |i|) C(k+i) \quad (1)$$

この2回移動平均スペクトルに対して、1次微分を得るために、隣接するチャンネルで階差をとる。階差によって得られる1次微分スペクトルの計数値を $c'(k)$ とすると、次式で表される。

$$C'(k) = C_{MA2}(k+1) - C_{MA2}(k)$$

$$= \frac{1}{(2N_{MA} + 1)^2} \left\{ \sum_{i=1}^{2N_{MA}+1} C(k+i) - \sum_{i=-2N_{MA}}^0 C(k+i) \right\} \quad (2)$$

この1次微分スペクトルに対して、更に、2回の $2N_{MA} + 1$ 個の移動平均を施す。1回の移動平均を施した1次微分スペクトルの計数値を $C'_{MA}(k)$ 、2回のを $C'_{MA2}(k)$ とすると、次式で表される。

$$\begin{aligned}
C'_{MA}(k) &= \frac{1}{2N_{MA}+1} \sum_{i=-N_{MA}}^{N_{MA}} C'(k+i) \\
C'_{MA2}(k) &= \frac{1}{2N_{MA}+1} \sum_{i=-N_{MA}}^{N_{MA}} C'_{MA}(k+i) \\
&= \frac{1}{(2N_{MA}+1)^2} \sum_{i=-2N_{MA}}^{2N_{MA}} (2n+1-|i|)C'(k+i) \quad (3)
\end{aligned}$$

この2回移動平均を施した1次微分スペクトルから2次微分を得るために、隣接するチャンネルで階差をとる。得られる2次微分スペクトルの計数値を $C''(k)$ とすると、次式で表される。

$$\begin{aligned}
C''(k) &= C'_{MA2}(k) - C'_{MA2}(k-1) \\
&= \frac{1}{(2N_{MA}+1)^2} \left\{ \sum_{i=0}^{2N_{MA}} C'(k+i) - \sum_{i=-2N_{MA}-1}^{-1} C'(k+i) \right\} \\
&= \frac{1}{(2N_{MA}+1)^4} \sum_{i=-4N_{MA}-1}^{4N_{MA}+1} F(i)C(k+i) \quad (4)
\end{aligned}$$

ここで、

$$F(i) = \begin{cases} -4N_{MA} - 2 + 3|i|, & N_{MA} \leq |i| \leq 2N_{MA} \\ 4N_{MA} + 2 - |i|, & 2N_{MA} + 1 \leq |i| \leq 4N_{MA} + 1 \end{cases}$$

なお、 $F(i)$ は、上記の手順による平滑化2次微分のフィルタ関数である (Fig.7)。実際の計算上は、逐次移動平均と階差を施すのではなく、検出器から得られたスペクトル $C(i)$ にこのフィルタ関数 $F(i)$ を乗じることで、平滑化2次微分スペクトルを求める。なお、本研究では N_{MA} を5とした。

平滑化2次微分スペクトルの統計変動 σ'' は、上述のフィルタ関数 $F(i)$ を用いて、次のように表すことができる (野口, 1980)。

$$\sigma'' = \sqrt{\sum_{i=-4N_{MA}-1}^{4N_{MA}+1} F^2(i)C(k+i)} \quad (5)$$

野口ら (1980) は、平滑化2次微分スペクトル $c''(i)$ の極小値となるチャンネル i のうち、統計変動 σ'' の2倍から

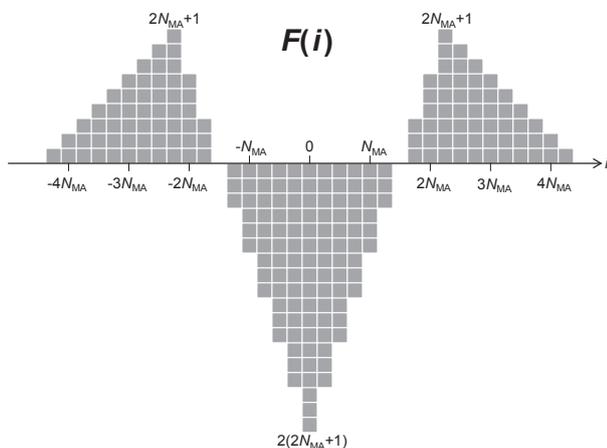


Fig.7 本研究で用いた平滑化2次微分フィルタ関数
The filter function for smoothing and second-order derivation

3倍を超えるものをピークと判定するとしている。この倍数を小さくすればより微小な凸部をピークと判定できるが、本来はピークでないものを拾う可能性もある。本研究では、この倍数を3倍に設定する。

エネルギー校正は、ピークと判定され抽出されたチャンネルと、スペクトル形状から対応する γ 線放出核種のエネルギーの対応を確認することで実施する。これらのピーク判定およびエネルギー校正の一連の手順は、ピークをできるだけ正確に検知するために、10回毎に連続する測定データを集約して実行する。

d ピーク計数の算定

検出器から得られた γ 線スペクトルから核種毎の放射能を計算するためには、各核種が放出する γ 線エネルギーの全吸収ピークの計数をスペクトルから抽出し、測定対象の形状や距離、材質などを考慮した検出効率によってピーク計数を割り戻して求めることが一般的である。これらのピークの計数を算定するためには、ピークとみなされるチャンネルの範囲、いわゆる関心領域 (Region of interest: ROI) を決定する必要がある。一般的な方法では、検出器の分解能からピークの半値幅 (Full width half mean: FWHM) を求め、ピークチャンネルを中心にFWHMの0.5–3倍のチャンネル幅をROIとしているが (文部科学省, 1974; 野口, 1980), FWHMの精度に影響されないようにROIはできるだけ広くとるほうがよいとされている (野口, 1980)。

現在、汚染土壤に卓越して含まれる核種は ^{134}Cs と ^{137}Cs であるが、NaI(Tl)シンチレーション検出器から得られる γ 線スペクトルにおいては、 ^{134}Cs の600keV付近のピーク (563, 569, 605keVの複合ピーク) と ^{137}Cs の662keVピークが重なり合い、ふたこぶのピーク (以下、A1ピーク) となっている (Fig.4)。既往の手法としては、 ^{134}Cs の800keV付近のピーク (796, 802keVの複合ピーク; 以下、A2ピーク) の計数を算定し、エネルギー効率や γ 線放出率を考慮してA1ピークから ^{134}Cs の600keV付近のピーク成分に相当する計数を差し引き、その残余を ^{137}Cs の662keVピークの計数と見なす方法が示されている (例えば、和田, 2012)。一方、尹ら (2012) は、 ^{137}Cs の662keVピークの右半分に相当する部分を切り出し、この部分 (以下、A1'部分) の計数の2倍を ^{137}Cs の662keVピーク計数と見なしている。

本研究では、ピーク判定によって抽出された ^{134}Cs と ^{137}Cs のピークに対して、ROI決定のために次の4つの方法をとる：1. ピークを中心にFWHMの μ 倍の範囲、2. 平滑化2次微分の結果を援用、3. 尹ら (2012) の方法、4. 接線を作成する方法。方法1は、ピークチャンネルを中心にFWHMの μ 倍の範囲をROIとし、補正係数 C_b を掛けることによってピーク計数とする。倍数 μ は2.0、補正係数 C_b は0.8641 (野口, 1980), A1ピークの下端は605keVから、上端は662keVからそれぞれFWHMの

$\mu/2$ 倍をROIとする (Fig.8(a))。方法2は、ピーク判定で使用した平滑化2次微分の結果を用いるもので、ピーク判定とは逆に極大値をとるチャンネルを抽出し、 ^{134}Cs の600keV付近ピークチャンネルの直前にある極大値をA1ピークのROIの下端、と ^{137}Cs の662keVピークと ^{134}Cs の800keV付近ピークの間にある極大値をA1ピークの上端かつA2ピークの下端、800keV付近ピークの直後の極大値をA2ピークの上端とする (Fig.8(b))。方法3は、尹ら (2012) に従い、662keVから720keVまでの区間をA1'部分、730keVから850keVまでの区間をA2ピークとし、A1'部分とA2ピークのベースラインをそれぞれ720-730keVと850-930keVの区間の平均値としている (Fig.8(c))。方法4は、 $2N_{MA} + 1$ 個の移動平均によって平滑化されたスペクトルについて、A1ピークとA2のピークの谷底すなわち極小値となる点を基点に、低エネルギー方向と高エネルギー方向それぞれの平滑化スペクトルとの接線をA1ピークとA2ピークのベースラインとする。ここで、基点がA1ピークの上端かつA2のピーク

の下端で、低エネルギー方向、高エネルギー方向それぞれの接点がA1ピークの下端、A2のピークの上端とする (Fig.8(d))。

A1ピークの ^{137}Cs による計数値を求めるために、 ^{134}Cs の寄与分としてA2ピークの計数値に効率係数 ζ を乗じた値を差し引く。ここで、効率係数 ζ はA1、A2各ピークの ^{134}Cs の γ 線放出率の比と、NaI(Tl)シンチレーション検出器の検出効率の比の積である。A1ピークの ^{134}Cs の γ 線放出率の和は121.4%、A2ピークでの和は94.2%、これらの比は1.29である。また、検出効率については、IAEA (1999) が示す3インチNaI(Tl)検出器の効率曲線に従い、200-3,000keVの区間はエネルギーと効率の関係が対数座標上で直線と仮定できるとして、NaI(Tl)シンチレーション検出器のエネルギー E_1 と E_2 、対応する検出効率 ε_1 と ε_2 の関係を次式で表した：

$$\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} = \left(\frac{E_2}{E_1} \right)^{-0.63} \tag{6}$$

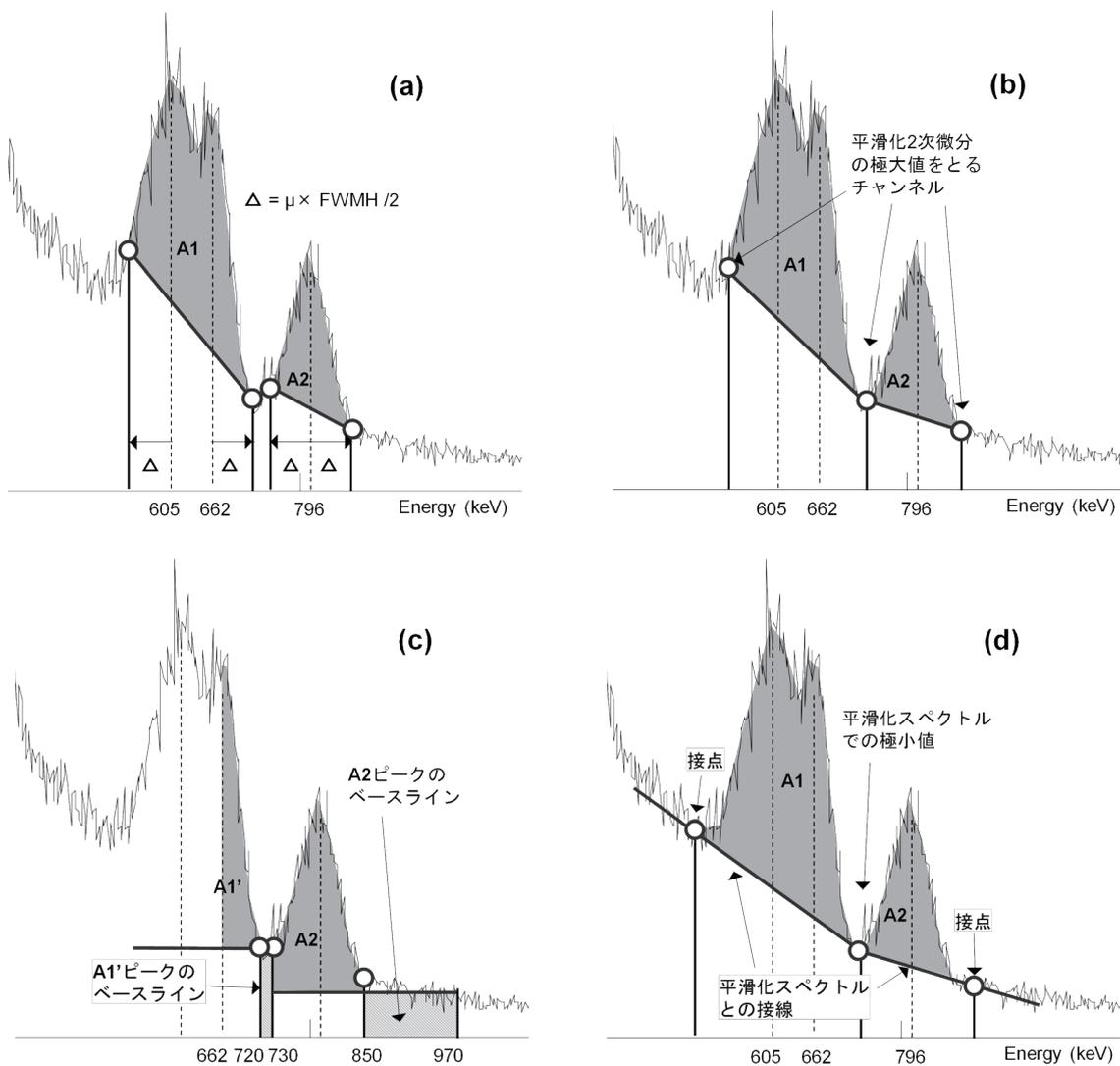


Fig.8 ピーク計数算定のためのROIの決定方法
ROI determination routines for analysis of ^{134}Cs and ^{137}Cs peak counts

A1ピークとA2ピークの ^{134}Cs の γ 線エネルギーをそれぞれ605keVと796keVとすると、検出効率の比は1.19となる。よって、効率係数は1.53である。

また、ウラン系列核種など、環境中に元々存在していた放射性核種による寄与を検討するために、 ^{214}Bi の1,764keV付近のピーク（以下、Bピーク）を方法1に従って計数する。なお、算定されたA1ピークの ^{134}Cs と ^{137}Cs の各計数、A2、B各ピークの計数は、時系列に沿って取り纏められる。

e GPS測定結果による重複点の除外

農地測定で使用される測定装置（クリアパルス社製7150型）については、測定毎にGPSによる緯度と経度の情報が付与される。測定は、予め設定された一定時間ごとに実行されるため、測定装置が移動していない時でも同じ地点で測定が繰り返されることになる。このため、直前の測定との距離の差 Δr が基準より小さい場合に測定装置が移動していないと判定し、測定結果を時系列から除外する。本研究では Δr の基準を1mに設定する。

3 農地における放射性セシウム分布の測定

農地除染技術の効果を評価するために、実証試験が実施されている福島県飯館村の2地区を対象として、NaI(Tl)シンチレーション検出器による測定装置（クリアパルス社製7150型）で放射性セシウム分布を測定した。対象地区は、農村工学研究所による「固化剤を用いた表土削り取り」と「水による土壌攪拌・除去」（農林水産省、2012）の実証試験圃場のある草野地区と、農林水産省委託プロジェクト研究「農地・森林等の放射性物質の除去・低減技術の開発」で生物系特定産業技術研究支援センター（生研センター）が圃場内、農道、法面、畦畔、用排水路の除染技術の実証試験を実施している八和木地区である（Fig.9）。草野地区では試験前の2011年8月4日と試験後の2011年8月31日に、八和木地区では試験前の2012年6月21-22日と試験後の7月25日に測定を実施した（以下、これらの測定を順に「草野1」「草野2」「八和木1」「八和木2」と呼ぶ；Fig.10）。測定装置の高さは地面から5cm、測定間隔は10秒である。

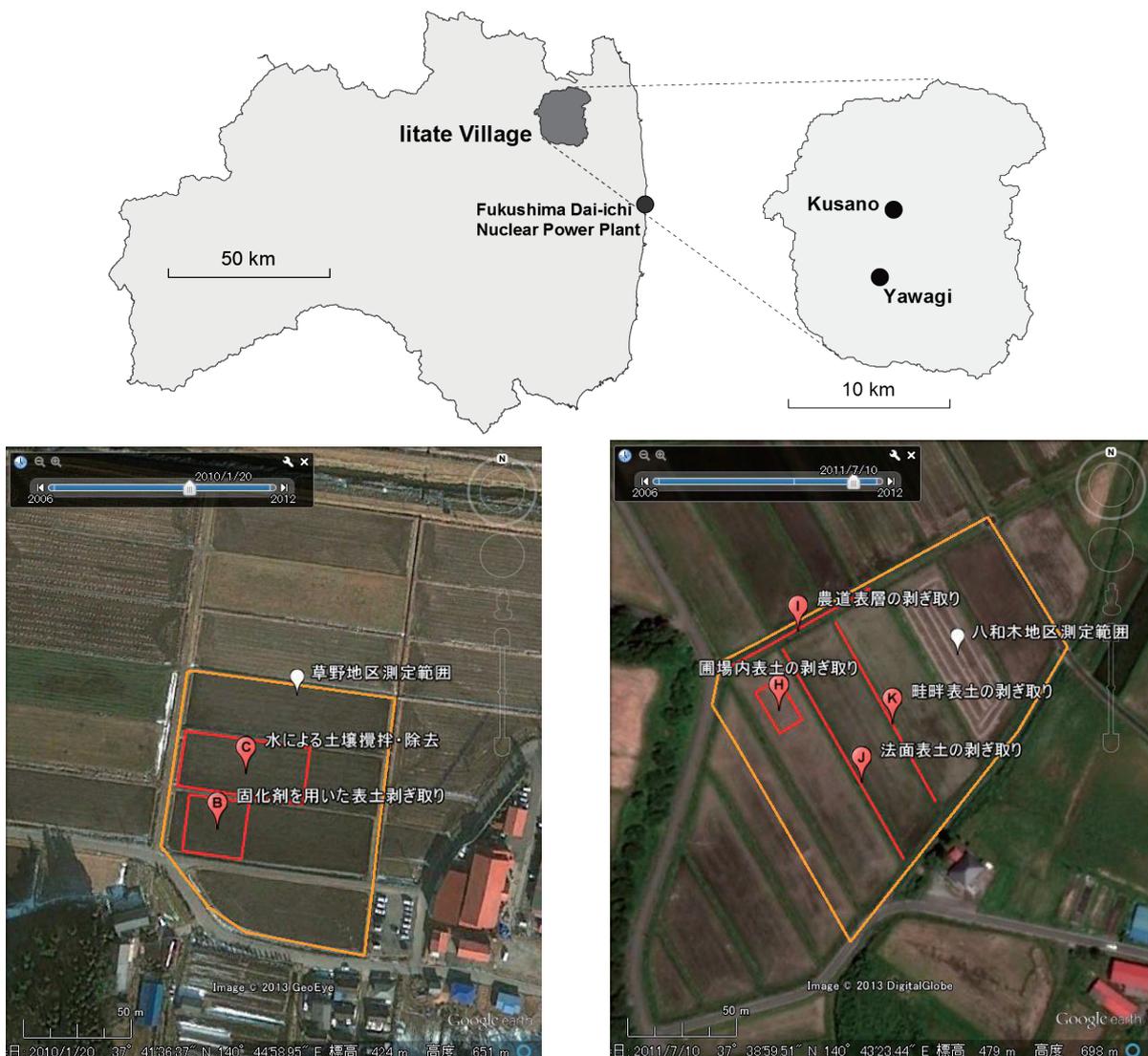


Fig.9 試験地区（飯館村草野地区と八和木地区）の位置と、圃場配置および測定範囲
Location of the study area, farm layouts and measurement areas in Kusano and Yawagi

なお、特に明記がなければ、計数値は測定時点のものである。 ^{134}Cs と ^{137}Cs の計数の比較においては、放出時点からの放射崩壊による減衰を考慮して、計数値を2011年3月11日時点に補正している。



Fig.10 飯館村草野地区における農地測定の様子 (2011年8月2日)
A measurement of radiocesium on the farm in Kusano

4 濁水中の放射性セシウム濃度の測定

飯館村草野地区の水田で2011年8月24日に実施した「水による土壌攪拌・除去」(農林水産省, 2012)の実証試験において、NaI(Tl)シンチレーション検出器による測定装置(クリアパルス社製7120型)を用いて排出される濁水中の ^{134}Cs と ^{137}Cs を連続的に観測した(以下、本測定を「濁水」と略する)。試験圃場はFig.9のC圃場で、圃場内に2つの試験区(C1およびC2;それぞれ幅14m,長さ30m)を設けた(Fig.11)。C1, C2ともに、 42m^3 の用水を投入してドライブハローにより浅代掻きした後、4台の水中ポンプで濁水を排出した。濁水の排出量はC1, C2それぞれ12, 17.6m^3 であった。浅代掻きは1回掛けで、1試験区あたり15分を要した。C2ではこれらに加えて、ポンプ排水時に長さ8mの塩ビ管を人力により水平移動させて濁水を攪乱した。

4台のうち1台のポンプの吐出口に検出器を設置して、排出される濁水中の ^{134}Cs と ^{137}Cs を連続的に観測した。測定間隔は10秒とした。検出器は直径5インチのNaI(Tl)結晶および光電子増倍管で、底面から30.5cmより上部に穴を開鑿した容量約78Lのポリバケツの中に底面から10cm離して設置した(Fig.12)。

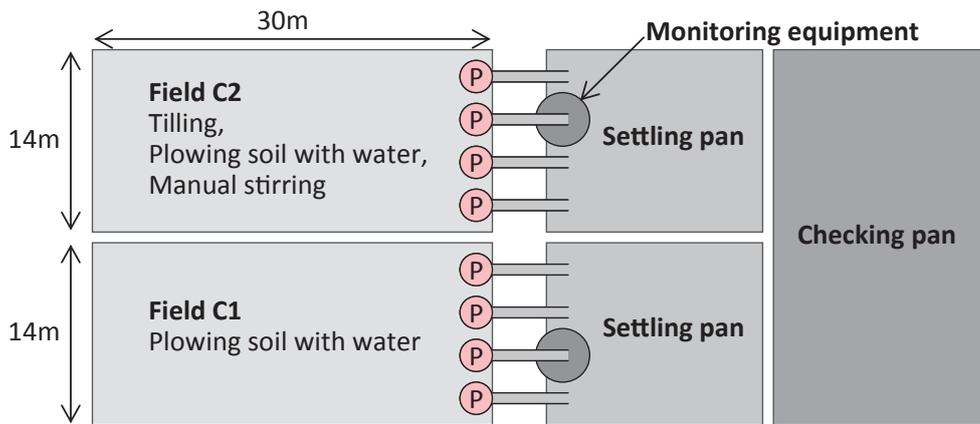


Fig.11 水による攪拌・除去が実施された圃場の配置
Field layout for the experiment of muddy water removal

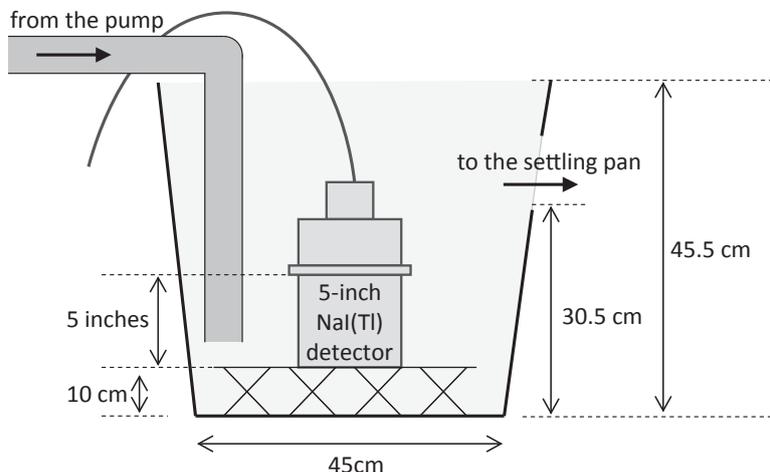


Fig.12 圃場から排出された濁水中の放射性セシウムを測定する装置の構造
Structure of the monitoring equipment for radioactivity in muddy water

この測定については、スペクトル解析によって得られた¹³⁴Csと¹³⁷Csの計数から、濁水中の¹³⁴Csと¹³⁷Csの濃度を求めた。対象核種から放出されるガンマ線本数と該当するエネルギーピークのカウンタ数の比率を、ここでは検出係数と呼ぶ。検出係数を決定するために、現地での測定に先んじて、3.0M塩化カリウム水溶液(3,700Bq L⁻¹)の⁴⁰K(1,460keV; 放出率10.7%)をバケツに投入し、塩化カリウム水溶液の水深と⁴⁰Kのピーク計数の関係を予め調べた。結果をFig.13に示す。バケツの水深30.5cmまで満たした場合の⁴⁰Kのピーク計数が123cpsであったので、この観測装置の検出係数を3.2L⁻¹とした。¹³⁴Csと¹³⁷Csの放射能濃度は、γ線スペクトルにおけるそれぞれのピーク計数に検出係数と式(6)の効率係数、ならびにγ線放出率の比を乗じることで求められる。効率係数は式(6)から、796keV(A2ピーク)の¹³⁴Csについては0.694、¹³⁷Csについては0.618である。

IV 結果

1 判定されたピークに対応するγ線放出核種

本研究において解析対象とした測定データセットの一覧をTable 2に示す。

全データに対するピーク判定の結果から、判定されたピークの検出割合をTable 3とFig.14に示す。また、各

測定における代表的なγ線スペクトルと平滑化2次微分スペクトルをFig.15に示す。ピーク判定の結果に基づき、¹³⁴Csの605keVピークと796keVピーク、¹³⁷Csの662keVピークが検知されたチャンネルから次式のエネルギー校正曲線を作成した：

$$E = a_c \chi + b_c \tag{7}$$

ここで、 χ はチャンネル、 E はγ線エネルギー (keV)、 a_c および b_c は係数である。各測定において同定された係数の平均値をTable 2に、ピークエネルギーとチャンネルの関係をFig.16に、それぞれ示す。なお、八和木2の測定のみ、⁶⁰Coの1,173keVおよび1,365keVピークを含む5点でエネルギー校正曲線を同定した。このエネルギー校正曲線に従い、判定されたピークのエネルギー範囲と明らかである生成要因をTable 3に示す。

¹³⁴Csの600 keV付近と800keV付近のピークならびに¹³⁷Csの662keVピークは、全ての解析において統計変動 -3σ を超えてピークと判定されている。これらのピークの間にも別のピークは検知されない。また、八和木2の農地測定においては、エネルギー校正用線源として搭載した⁶⁰Coの2つのピークが明瞭に確認され、全ての測定データでピークとして検知されている。一方、測定装置にKCl試料を搭載した草野地区での農地測定のスペクトルについては、過半数のピーク判定結果において⁴⁰Kの

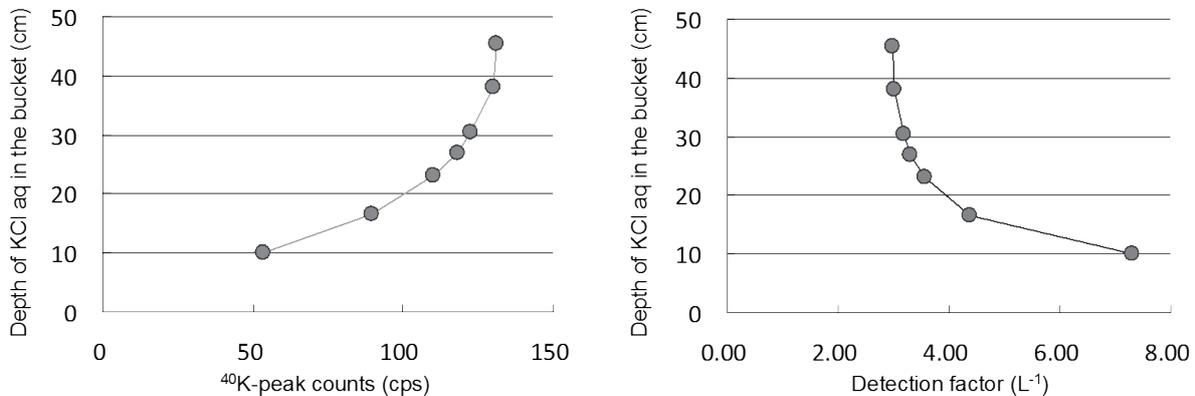


Fig.13 装置に塩化カリウム水溶液を投入した場合の水深と⁴⁰K計数率ならびに検出係数の関係
Change in ⁴⁰K-peak counts to water depth in the bucket

Table 2 解析対象としたデータセットとエネルギー校正曲線の係数
Datasets to be analyzed and coefficients of the energy calibration curve

測定略称	測定日	検出装置	校正用線源	全測定数	重複点除外後*	エネルギー校正曲線**			測定時期
						a_c	b_c	R^2	
草野1	2011年8月4日	7150型	⁴⁰ K	718	636	1.73	-48.4	0.999	実証試験前
草野2	2011年8月31日	7150型	⁴⁰ K	789	704	1.70	-48.7	0.999	実証試験後
八和木1	2012年6月21-22日	7150型	なし	1,889	992	2.11	-32.3	0.999	実証試験前
八和木2	2011年7月25日	7150型	⁶⁰ Co	662	550	2.15 [†]	-77.9 [†]	0.999 [†]	実証試験後
濁水	2011年8月24日	7120型	なし	474	—	2.09	-26.0	0.998	実証試験中

* GPS測定結果による重複点除外後の測定データの数

** 各測定における式(7)の直線の係数の平均値。 R^2 は決定係数

† 八和木2の測定のみ、⁶⁰Coの1,173keVおよび1,365keVピークを含む5点で曲線を同定

Table 3 ピーク判定によって検知されたピークのエネルギー範囲と検出率, 生成要因
Peaks detected by the peak search routine and their ranges of energy, detection rates and geneses

No.	大凡のピーク エネルギー範囲	検出率					ピークの生成要因
		草野1	草野2	八和木1	八和木2	濁水	
1	230 keV 未満	100%	100%	100%	100%	100%	スペクトル下端
2	190 keV 付近	—	—	—	—	88%	後方散乱ピーク (BS)
3	350–430 keV	7%	5%	2%	0%	27%	¹³⁴ Cs 605 keV のコンプトン端 (CE)
3'	465 keV 付近	0%	0%	0%	0%	2%	¹³⁷ Cs 662 keV のコンプトン端 (CE)
4	600 keV 付近	100%	100%	100%	100%	100%	¹³⁴ Cs 605 keV
5	662 keV 付近	100%	100%	100%	100%	100%	¹³⁷ Cs 662 keV
6	800 keV 付近	100%	100%	100%	100%	100%	¹³⁴ Cs 796 keV
7'	920 keV 付近	—	—	—	48%	—	⁶⁰ Co 1,173 keV のコンプトン端 (CE)
7	950–980 keV	0%	1%	3%	0%	0%	
8	1,020–1,060 keV	31%	20%	32%	4%	13%	
9'	1,173 keV 付近	—	—	—	100%	—	⁶⁰ Co 1,173 keV
9	1,150–1,170 keV	68%	66%	84%	—	96%	¹³⁴ Csサムピーク
10'	1,365 keV 付近	—	—	—	100%	—	⁶⁰ Co 1,365 keV および ¹³⁴ Cs 1,365 keV
10	1,340–1,370 keV	97%	96%	100%	0%	94%	¹³⁴ Cs 1,365 keV
11	1,420–1,480 keV	54%	39%	11%	91%	56%	⁴⁰ K 1,460 keV または ¹³⁴ Csサムピーク
12	1,560–1,640 keV	—	—	33%	6%	17%	
13	1,720–1,790 keV	—	—	0%	100%	13%	²¹⁴ Bi 1,764 keV か?
14	1,830–1,910 keV	—	—	12%	0%	17%	
15	1,970–2,000 keV	—	—	15%	1%	25%	

—: 近接する卓越したピークの存在やチャンネル範囲外などの理由のため対象外

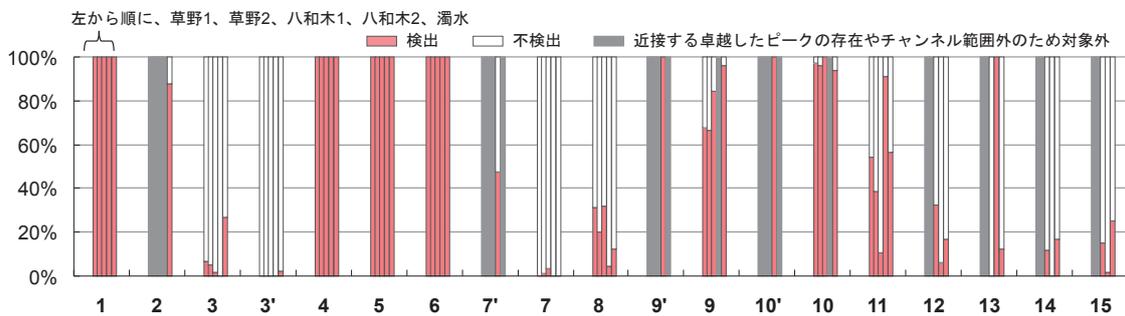


Fig.14 ピーク判定による各ピークの検出率 (ピーク番号は Table 3 に従う)
Detection rates of peaks detected by the peak search routines

1,460keVに対応すると思われるエネルギー範囲 (Table 3のピーク11) でピークが検知されているが, Fig.15のスペクトルにも見られるように, その直前にある¹³⁴Csの1,365keV (Table 3のピーク10) や1,401keVのサムピークとの区別が明瞭ではない。八和木2の農地測定では,²¹⁴Biの1,764keV付近でも全てのデータにおいてピーク判定されている。

2 ROI 決定方法の違いによるピーク計数の比較

ピーク計数の算定のために, ROIの決定方法1から4まで (Fig.8) を全データの解析に適用した。各方法を適用した場合の¹³⁷Csのピーク計数と796keV (A2ピーク) の¹³⁴Csのピーク計数との関係を Fig.17に示す。また, これらのROI決定方法に基づいて算定されたROIチャンネルの一例を Fig.18に示す。なお, これより先の結果につ

いては, 方法4によって決定されたROIに基づいて解析した結果のみを示す。方法3では, 各測定での¹³⁴Csと¹³⁷Csのピーク計数の相関性は非常に高いが, 測定間で比例係数が若干異なっている。方法4では, 農地測定と濁水測定で¹³⁴Csと¹³⁷Csの比例係数が若干異なるが, それぞれの決定係数は0.996, 0.994であり相関性は非常に高い。これらと比べると方法1と方法2の相関性は劣っている。方法1と方法2のROIの範囲は, Fig.18に示されるように, 特にふたこぶのピークの下端で顕著であるが, 目視で確認できるピークの範囲より内側にROIが決定されている。

また, ¹³⁴Csと¹³⁷Csのピーク計数, ならびに²¹⁴Biの1,764keV付近のピーク (Bピーク) の計数との関係を Fig.19に示す。¹³⁴Csと¹³⁷Csの相関性は高いが, ¹³⁷Csと²¹⁴Biの間に相関性は確認できない。

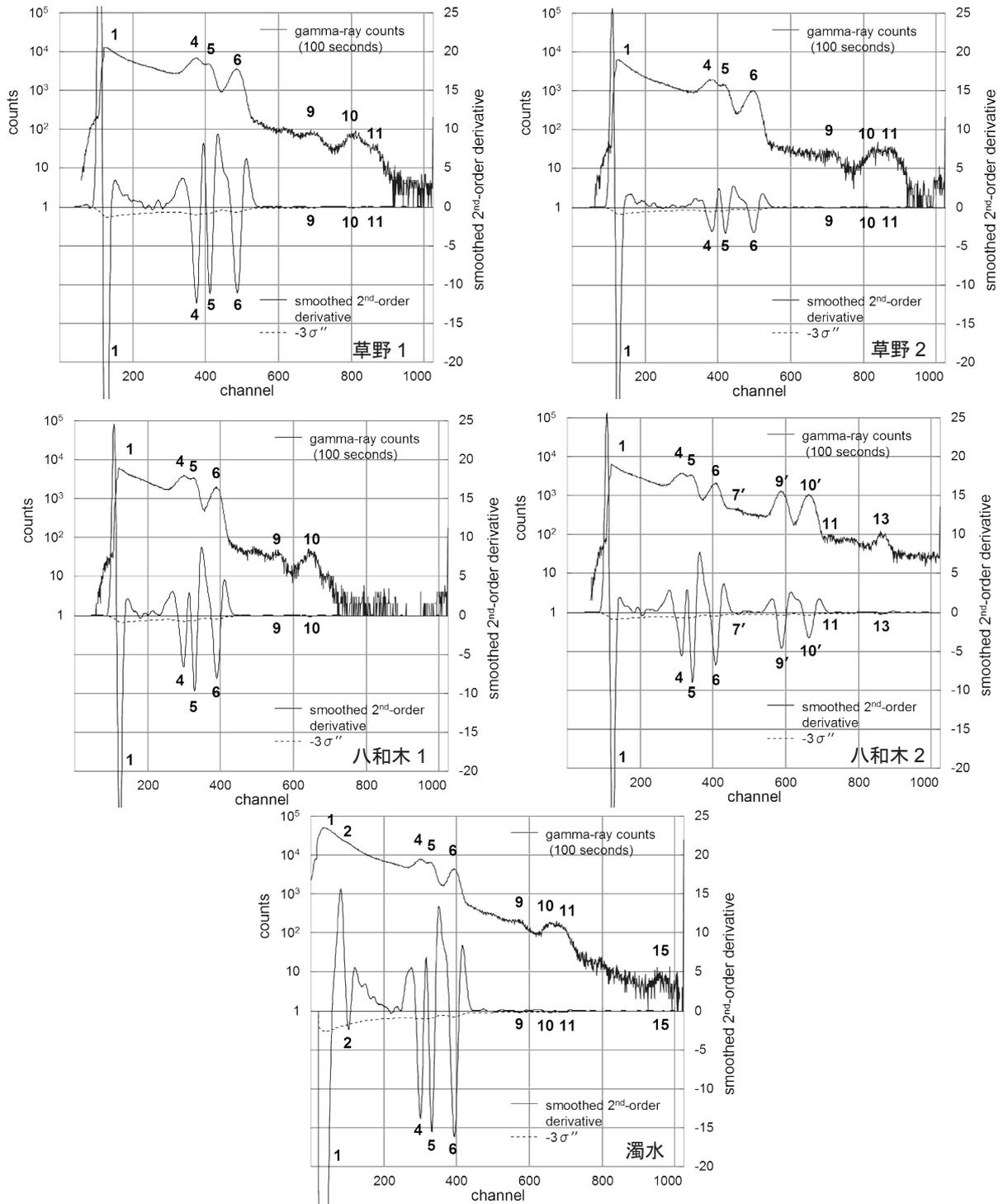


Fig.15 代表的なγ線スペクトルと平滑化2次微分スペクトル（ピーク番号はTable 3に従う）
Typical gamma-ray spectra and smoothed 2nd-order derivatives

3 農地における放射性セシウムの分布

草野地区と八和木地区での農地測定によって得られた¹³⁷Csピーク計数の平面分布をそれぞれFig.20とFig.21に示す。また、八和木地区で生研センターが実施した農道、法面、畦畔の除染実証試験の区間を含む測線における¹³⁷Csピーク計数の測定結果をFig.22に示す。

草野地区については、除染前の¹³⁷Csピーク計数は1,000–1,600cpsの範囲であったが、除染後の2011年8月

31日には、固化剤を用いた表土剥ぎ取りが行われた区画（Fig.10の区画B）では400cps以下まで、水による土壌攪拌・除去が行われた区画（Fig.9の区画Cのうち、Fig.11のC1とC2）では700cps前後まで、それぞれ計数が低下している（Fig.20）。除染区画以外については、2011年8月31日に全体的に100–200cps程度低下している（Fig.20）。

八和木地区では、除染実証試験の対象となった圃場で

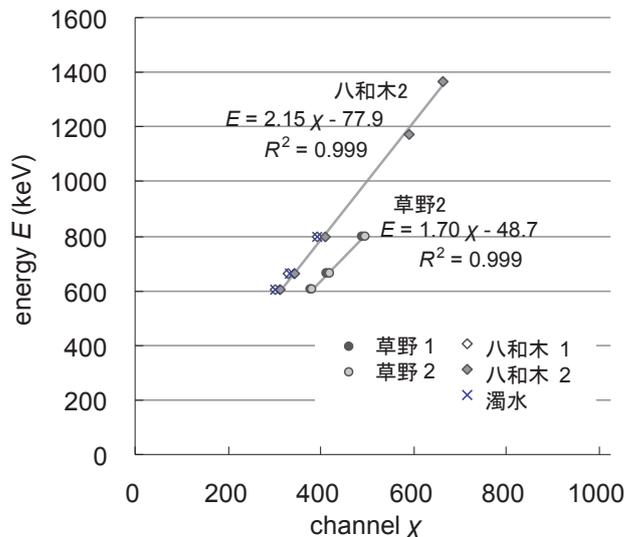


Fig.16 エネルギー校正曲線
Energy calibration curves

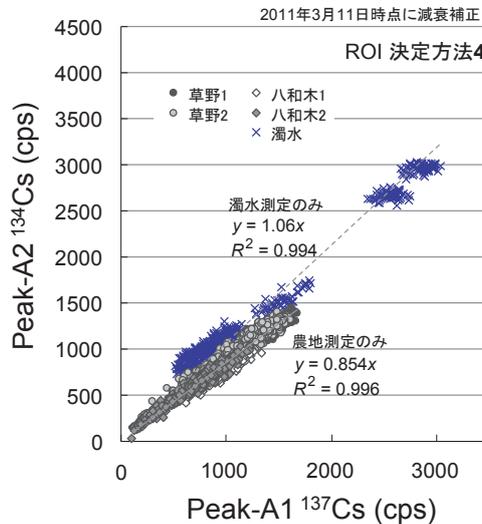
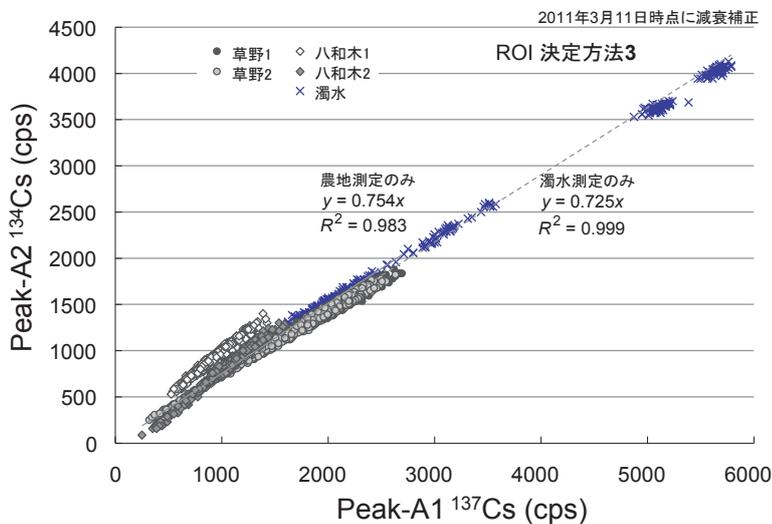
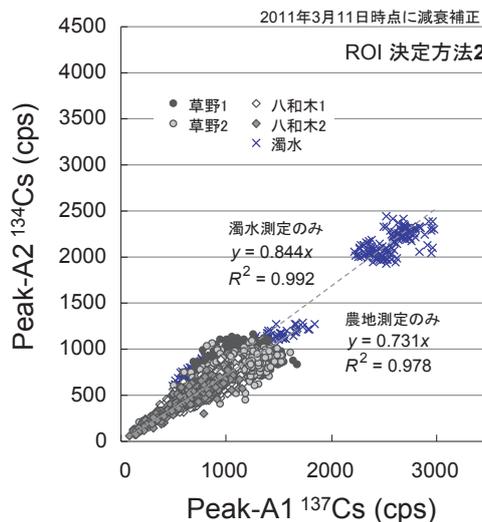
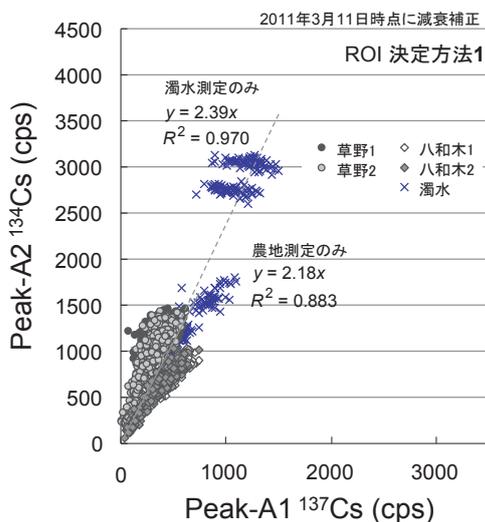


Fig.17 ¹³⁷Cs 計数と ¹³⁴Cs 計数の関係 (計数は2011年3月11日時点に減衰補正)
Relationships between ¹³⁷Cs and ¹³⁴Cs peak counts

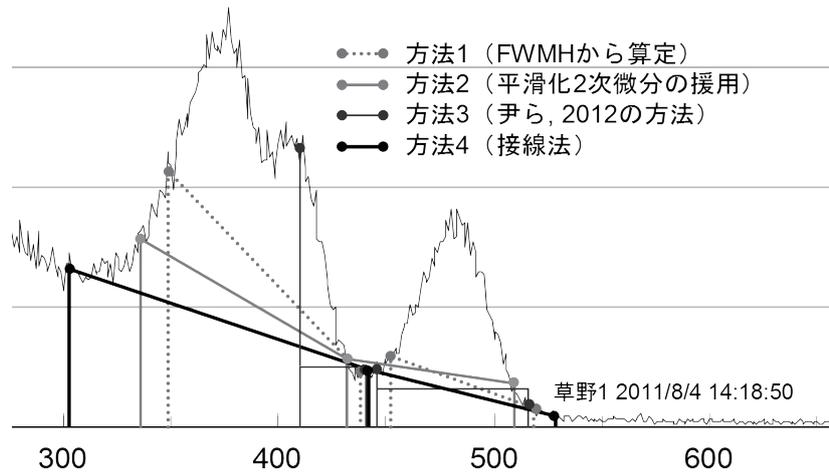


Fig.18 各ROI決定方法によって算定されたROIチャンネル範囲
ROI-channel ranges calculated by the ROI determination routines

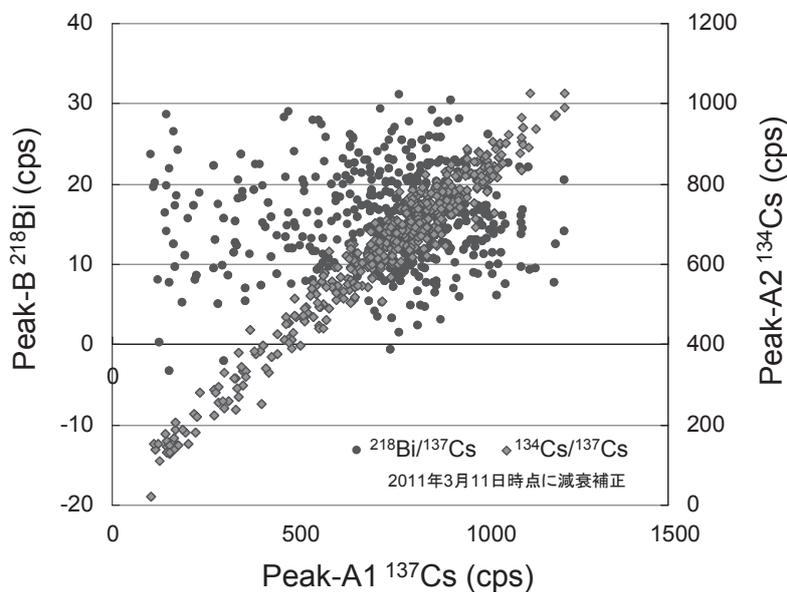


Fig.19 八和木2の農地測定における ^{137}Cs 計数と ^{134}Cs 、 ^{218}Bi 計数の関係
Relationships between ^{137}Cs , ^{134}Cs and ^{218}Bi peak counts in the Yawagi 2 observation

の平均的な ^{137}Cs ピーク計数は1,000cps前後であったが、除染後には除染された区画 (Fig.9の区画H) で400cps以下まで低下している (Fig.21)。農道 (測線I)、法面 (測線J)、畦畔 (測線K) については、それぞれ除染実証試験の対象区間で ^{137}Cs ピーク計数が低下している (Fig.22)。

4 濁水中の放射性セシウムの濃度

濁水測定において、排出される濁水中の放射性セシウム濃度を連続的に観測した結果を Fig.23 に示す。C1試験中の12:35頃までは電源供給の不具合により、C1とC2の間の12:42から12:53までについては測定装置の移動のために、それぞれ測定が途切れている。濁水が排出されている時間帯の放射性セシウム濃度 (^{134}Cs と ^{137}Cs の合算) は約 $4,000\text{Bq L}^{-1}$ であり、圃場内の水を人力で

攪拌している時間帯は $7,000\text{Bq L}^{-1}$ 以上の濃度に達した。測定装置を移動してからC2試験が開始されるまでの間は、バケツ内は空であり、その時間帯は濁水測定時に比べて高い計数率を記録した。測定結果の時系列には、バケツ内の濁水の有無にかかわらず、約90秒周期の変動が見られる。

V 考察

1 ピーク判定で検知される γ 線

ピーク判定の結果 (Fig.14, Table 3) から、 γ 線スペクトルの形状から自明である ^{134}Cs の600keV付近と800keV付近のピーク、 ^{137}Cs の662keVのピーク、ならびに ^{60}Co 標準線源を搭載して測定した八和木2での1,173keVと1,365keVのピークについては、検出率が

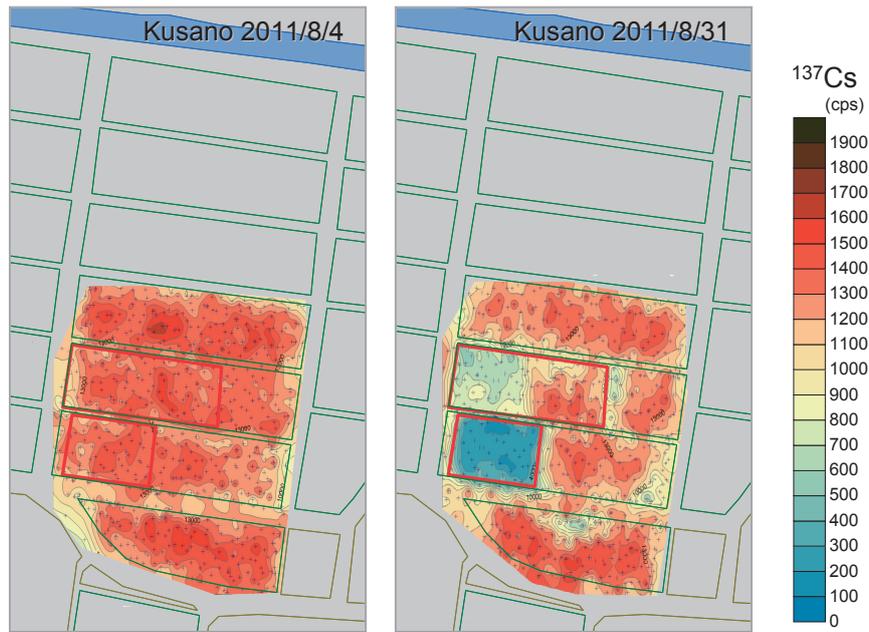


Fig.20 草野地区の農地測定における¹³⁷Csピークカウント数の分布 (左から草野1, 草野2)
Distributions of ¹³⁷Cs peak counts in the Kusano farm-surface observations



Fig.21 八和木地区の農地測定における¹³⁷Csピークカウント数の分布 (左から八和木1, 八和木2)
Distributions of ¹³⁷Cs peak counts in the Yawagi farm-surface observations

100%である。

エネルギー校正 (Fig.16) を踏まえて検出率の高い他のピークを調べると、1,340–1,480 keVに1–2個のピークがしばしば検出されている (Table 3のピーク番号11, 12)。これらは、¹³⁴Csの1,365keVピーク、¹³⁴Csの605keVと796keVのサムピーク、⁴⁰Kの1,460keVピークの寄与によるものとみられるが、八和木2を除くγ線スペクトル (Fig.15) ではこれらを含む幅広いピークを呈しており、これらを分離して定量することは困難である。また、八和木2については、⁶⁰Coの1,365keVピークがこれらのピークに重なり合っており (Fig.15)、やはり個別

に定量することは難しい。よって、¹³⁴Csのサムピークの影響を定量化することは容易でない。

ふたこぶのピーク (A1ピーク) より低エネルギー側で時折検知されるピーク (Table 3のピーク番号3, 3') は、¹³⁴Csの605keVや¹³⁷Csの662keVのγ線のコンプトン端とみられる。ピーク計数を自動的に解析するためには、検知されたピークと¹³⁴Csの600keV付近やそれ以降のピークとの紐付けが必要である。465keV付近にみられるピーク (Table 3のピーク番号3') から¹³⁴Csの600keV付近のピーク (ピーク番号4) までの間にピークは検知されないの、たとえば500keV以上で最もエネルギーの小さいピーク

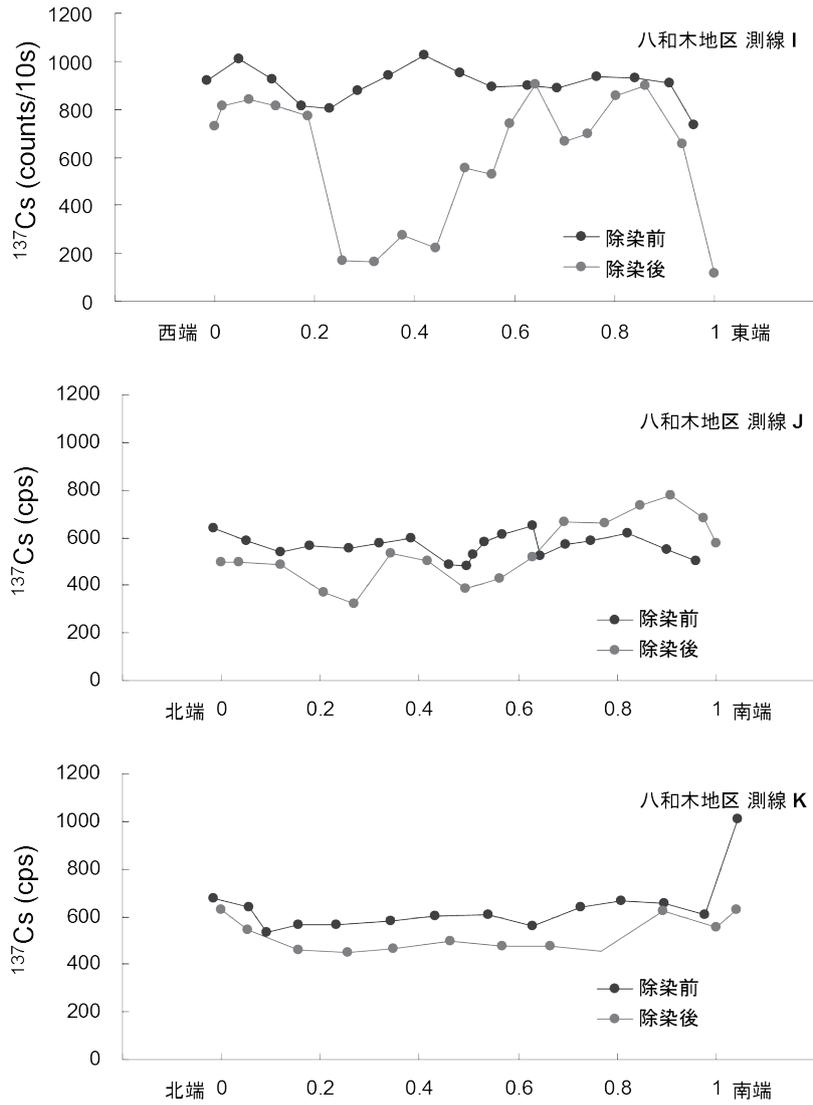


Fig.22 八和木地区の農道、畦畔、法面に対する測定での ^{137}Cs ピークカウント数の分布
Distributions of ^{137}Cs peak counts on the farm road, dyke and slope in Yawagi

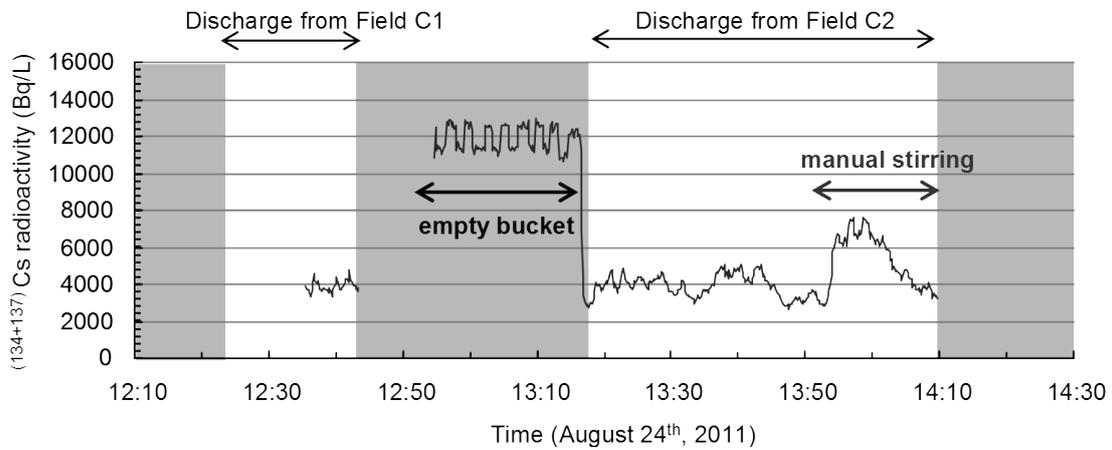


Fig.23 濁水中の放射性セシウム濃度の観測結果
Temporal change in radiocesium activity in muddy water observed by the in-situ continuous monitoring

クを ^{134}Cs の600keV付近のピークとすることで自動的な解析が可能となる。

八和木2では、1,720–1,790keVに100%検知される明瞭なピーク（ピークB）が見られる（Fig.15とTable 3のピーク番号13）。これに対応するエネルギーを有する γ 線放出核種としては、1,764keVの ^{214}Bi が考えられる。しかし、同じ地区である八和木1では、ピークが同じエネルギー範囲で全く検知されていない。これらの測定の違いは検出装置に ^{60}Co を搭載しているか否かである。このため、 ^{60}Co による影響として ^{137}Cs や ^{134}Cs とのサムピークの可能性が考えられるが、 ^{137}Cs や ^{134}Cs とピークBの計数は比例関係にはなく（Fig.19）、 ^{137}Cs や ^{134}Cs とのサムピークの影響の裏付けとはならない。よって、ピークBは ^{214}Bi によるものと断定できないが、他に帰すべき成因も見当たらない。

これら以外に、八和木1や濁水の測定でも1,500–2,000keVの範囲でいくつかのピーク（Table 3のピーク番号12–15）が検知されるが、スペクトル（Fig.15）においてピークは明瞭ではない。もともとの計数も小さく、ノイズを検知している可能性が高いことから、対応する核種を同定することは重要ではない。

2 解析手法の妥当性

スペクトルピークを計数するために、4つのROI決定方法を適用した。方法1と方法2については、 ^{137}Cs と ^{134}Cs の計数の比のばらつきが大きい（Fig.17）。方法1、方法2ともに実際のピーク範囲よりもROIが小さく設定されていることが原因とみられる（Fig.18）。方法1についてはROIを広く取るために倍数 μ を大きく設定することで改善される可能性があるが、隣接するピークとROIが重なる場合があり、適切な μ の設定は簡単ではない。方法3を適用した場合、各測定における ^{134}Cs と ^{137}Cs

の計数の相関性は非常に高いが、測定毎に傾きが若干異なっている（Fig.17）。また、方法3と方法4を比較すると、 ^{137}Cs で約2.0倍、 ^{134}Cs で約1.4倍、それぞれ方法3の方が大きな計数となる（Fig.17）。これらは、方法3のベースラインの設定方法（Fig.8(c))に従うと、ベースラインが下寄りに設定されるため過大に計数され、特に ^{137}Cs で顕著であること、ならびに、環境中の放射性核種や ^{60}Co 標準線源の影響の有無によって実際のスペクトルのベースラインが変化すると過大計数の程度も変わることが原因であると思われる。このため、尹ら（2012）のように既知濃度の試料で校正した上で遮蔽容器内で試料を測定する場合は問題にはならないが、今回のように環境中の放射性核種の影響を受ける屋外測定への適用や、 ^{40}K などを用いた効率校正による放射性核種濃度の計算においては注意が必要である。

方法4は、農地測定と濁水測定での違いはあるものの、測定の時期や場所の違いによる気温の変化や環境放射能の影響にかかわらず ^{137}Cs と ^{134}Cs の比例関係が良好である。よって、野外測定で得られたNaI(Tl)シンチレーション検出器による γ 線スペクトルから ^{137}Cs と ^{134}Cs のピーク計数を算定する方法としては適している。

方法4を用いた場合の ^{137}Cs に対する ^{134}Cs の比は、濁水測定では1.06、農地測定では0.854である。今回の事故では、事故直後に放出された ^{137}Cs と ^{134}Cs の比はほぼ1.0であるとされ（河田・山田，2012）、文部科学省（2011c）が取り纏めた土壌中の核種分析結果でも同様の比となっている（Fig.24）。 γ 線放出率については、 ^{137}Cs の662keVに対する ^{134}Cs の796keVと802keVの和の比は1.11である。一方、NaI(Tl)シンチレーション検出器の検出効率については、662keVに対する796keVの比は0.890である。よって、 γ 線スペクトルにおける ^{137}Cs の662keVピークと ^{134}Cs の796keVと802keVの複合ピーク（A2ピーク）の計数の比は、

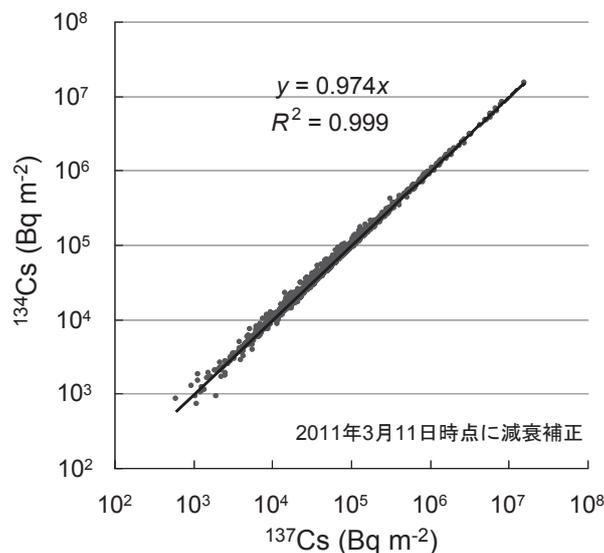


Fig.24 土壌中の ^{137}Cs と ^{134}Cs 濃度の関係（文部科学省，2011cのデータを奥村，2011が再頒布）
Relationship between ^{137}Cs and ^{134}Cs radioactivities in soils, from a dataset compiled by MEXT

2011年3月11日時点で0.985となるはずである。よって、濁水測定の1.06はこの理想的な比に近いが、農地測定の0.854はこれよりも小さく、 ^{137}Cs に対して ^{134}Cs が少なく見積もられていることになる。このことについて、以下に考えられる理由を示す。

- ・ ^{134}Cs のサムピーク発生の影響を考慮していないため、 ^{134}Cs ピークの計数が過小に評価され、それに伴って ^{137}Cs ピークの計数が過大に評価されている可能性がある。
- ・A1ピークに ^{134}Cs の796 keVや802 keVのコンプトン端が寄与しているため、A1ピークひいては ^{137}Cs ピークの計数が過大に評価されている可能性がある。
- ・A1ピークやA2ピークに含まれる ^{214}Bi の計数を差し引いていないため、 ^{134}Cs ピークや ^{137}Cs ピークの計数が過大に評価されている可能性がある。

これらのうち、 ^{214}Bi の計数の差し引きについては、八和木2の測定で見られる1,764keV周辺のピークが ^{214}Bi によるものとは断定できず、同地区での測定である八和木1の結果でピークが見られないことから、1,764keV周辺のピーク計数を ^{214}Bi によるものとみなして計算し、A1ピークやA2ピークから差し引くことは適当ではないと思われる。また、 ^{134}Cs の796keVや802keVのコンプトン端については、同様の現象である ^{134}Cs の605keVや ^{137}Cs の662keVのコンプトン端が検知される場合があるものの(Fig.14, Table 3)、判然と視認できるピークではなく(Fig.15)、A1ピークへの寄与は小さい。サムピークによる過小評価の可能性については、1,401keVに見られるべきサムピークが ^{134}Cs の1,365keVや ^{40}K の1,460keVの存在のために、定量的な評価が困難である。また、校正用線源として ^{60}Co を使用する場合、 ^{60}Co の1,365keVピークがこのピーク群と重複する。よって、 ^{134}Cs や ^{137}Cs の濃度が既知の試料を今回使用した測定装置で測定してサムピークの発生割合を予め把握し、計数の解析の際に補正を施すことが必要である。なお、濁水測定では ^{137}Cs に対する ^{134}Cs の比が今回の事故での放出比である1.0付近になったが、これは、上述の過小計数の可能性が考えられるだけでなく、5インチの検出器による測定にもかかわらず3インチの検出効率を適用したことによって計数を過大に見積もり、その結果として理想的な比に近付いたものと思われる。このように、 ^{134}Cs と ^{137}Cs のピーク計数をより正確に算定して土壌中の濃度を算定するためには、サムピークを考慮し、5インチの検出器については効率曲線を調べるのが課題として残されている。

方法4でのROI決定によって農地測定と濁水測定の結果を解析し、 ^{134}Cs と ^{137}Cs のピーク計数を算出した。農地測定については、Figs.20-22に示されるように、除染前後の放射性核種分布の変化を的確に評価している。除染対象外の圃場区画でみられる若干の計数変動は、土壌の含水率や農地表面の植生の違いが影響している可能性がある。濁水測定については、Fig.23に示すように、特

定できない何らかの原因で計数値が短周期で振動しているが、平均的な挙動としては人力の攪拌によって濁水中の懸濁物質濃度が上昇している時間帯に ^{134}Cs と ^{137}Cs の合計濃度が上昇していることが示された。このように、濁水中の放射性核種濃度の時間変化傾向は圃場での操作を反映しているものとみられる。

今後は、効率補正を適用して、農地測定で得られたピーク計数の分布を農地表面の放射性核種濃度に換算することが不可欠である。なお、ピーク計数から放射能濃度を推算するためには、土壌の含水率や農地表面の植生の影響を考慮する必要がある。また、広域の農地測定に対応するために、気球や無人ヘリ等を利用した1m以上の高度からの測定結果を解析できるよう、高度補正を組み込むことが求められる。更に、濁水測定については、実際の濁水中の放射性核種濃度と比較して測定の妥当性を検討するとともに、放射性物質動態のモニタリングの観点からは、渓流水や通常時の圃場排水にも対応できるように低濃度でも測定可能な測定装置や解析手法を開発することが必要である。

VI 結 言

東京電力福島第一原子力発電所の事故によって汚染された農地を対象として、NaI(Tl)シンチレーション検出装置から得られた γ 線スペクトルのピーク判定と計数解析を自動的に実行する手法を提示するとともに、福島県飯館村で実施された除染技術実証試験の効果の評価に適用した。以下に、結果の概要を示す。

- ・ピーク判定の結果、 ^{134}Cs の600keV付近と800keV付近のピーク、 ^{137}Cs の662keVのピークについては、検出率が100%である。 ^{137}Cs の662keVのコンプトン端に相当するとみられる465keV付近から ^{134}Cs の600keV付近のピークまでの間にピークは検知されないの、これを足掛かりにすることで自動的な解析が可能となる。
- ・接線を用いたROI決定手法(方法4)によって解析された ^{137}Cs と ^{134}Cs のピーク計数については、測定の時期や場所にかかわらず比例関係が良好であることから、野外測定で得られたNaI(Tl)シンチレーション検出器による γ 線スペクトルから ^{137}Cs と ^{134}Cs のピーク計数を算定するための方法としては従前の手法よりも適している。
- ・ピーク計数の解析において、 ^{134}Cs のサムピーク影響は無視できないが、今回の解析では考慮していない。しかし、1,401keVのサムピークは、 ^{134}Cs の1,365keVや ^{40}K の1,460keVと重複して定量的な評価が困難である。よって、放射性核種濃度が既知の試料を測定してサムピークの発生割合を予め把握し、計数の解析の際に補正を施すことが必要である。
- ・今回の提示した手法によって、実証試験前後の農地表

面の放射性核種分布と試験中に排出される濁水の放射性核種濃度を測定した結果を解析し、 ^{137}Cs と ^{134}Cs のピーク計数を算出した。農地測定については、除染前後の放射性核種分布の変化が的確に評価された。また、濁水測定については、人力の攪拌によって濁水中の懸濁物質濃度が上昇している時間帯に放射性核種濃度が上昇していることが示された。

なお、本研究は、平成23年度科学技術戦略推進費「放射性物質による環境影響への対策基盤の確立」、平成24年度「農地・森林等の放射性物質の除去・低減技術の開発」の一部として実施された。本研究の実施にあたって飯館村、応用地質株式会社の関係各位の協力を受けた。また、水利工学研究領域の中達雄領域長、農地基盤工学研究領域の塩野隆弘上席研究員、企画管理部農村技術支援チームの野口克行チーム長、寺川淨司氏をはじめとして農村工学研究所の各位には現地での測定において多大にご尽力いただいた。記して謝意を表する。

参考文献

- 1) Department of Energy, U.S. (DOE) (2011) : The situation in Japan. <http://energy.gov/japan2011> (閲覧日 : 2012年11月15日)
- 2) Ianakiev, K.D., B.S. Alexandrov, P.B. Littlewood, M.C. Browne (2009) : Temperature behavior of NaI(Tl) scintillation detectors. *Nucl. Instrum. Meth. A*, **607**(2), 432–438
- 3) 今泉眞之・小前隆美・濱田浩正 (1992) : γ 線スペクトロメトリーによる断層調査:長野県山口村の阿寺断層を例として、応用地質, **33**(2), 91–103
- 4) International Atomic Energy Agency (IAEA) (2005) : 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, 放射線医学総合研究所, 305p.
- 5) 石川奈緒・内田滋夫・田上恵子 (2007) : 放射性セシウムの水田土壌への収着挙動における粘土鉱物の影響, *Radioisotopes*, **56**(9), 519–528
- 6) 岩田昭夫・山内靖喜・大濱善輝 (2001) : 沖積低地における活断層の γ 線探査, 物理探査, **54**(3), 164–174
- 7) 日本アイソトープ協会(2001) : アイソトープ手帳10版, 丸善, 167p.
- 8) Kato, H., Onda, Y., Teramage, M. (2012) : Depth distribution of ^{137}Cs , ^{134}Cs , and ^{131}I in soil profile after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident. *J. Environ. Radioact*, **111**, 59–64
- 9) 河田 燕・山田崇裕 (2012) : 原子力事故により放出された放射性セシウムの $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比について, *Isotope News*, **697**, 16–20
- 10) Miller, K.M., Kuiper, J.L., Helfer, I.K. (1990) : ^{137}Cs fallout depth distributions in forest versus field sites: Implications for external gamma dose rates. *J. Environ. Radioact*, **12**(1), 23–47
- 11) 農林水産省 (2012) : 農地土壌の放射性物質除去技術 (除染技術) 作業の手引き 第1版, 75. <http://www.s.affrc.go.jp/docs/press/pdf/120302-01.pdf> (閲覧日 : 2012年11月15日)
- 12) 農林水産省 (2011) : 農地土壌の放射性物質濃度分布図の作成について. <http://www.s.affrc.go.jp/docs/press/110830.htm> (閲覧日 : 2012年11月15日)
- 13) 文部科学省 (2011a) : 文部科学省及び米国エネルギー省航空機による航空機モニタリングの測定結果. <http://radioactivity.mext.go.jp/ja/contents/4000/3710/view.html> (閲覧日 : 2012年11月15日)
- 14) 文部科学省 (2011b) : 文部科学省による、岩手県、静岡県、長野県、山梨県、岐阜県、及び富山県の航空機モニタリングの測定結果、並びに天然核種の影響をより考慮した、これまでの航空機モニタリング結果の改訂について. <http://radioactivity.mext.go.jp/ja/contents/5000/4899/view.html> (閲覧日 : 2012年11月15日)
- 15) 文部科学省 (2011c) : 放射線量等分布マップの作成等に係る検討会 (第7回) 配付資料. http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chousa/gijyutu/017/shiryo/1310688.htm (閲覧日 : 2012年11月25日)
- 16) 中 達雄・若杉晃介・原口暢朗・奥島修二・塩野隆弘・石田 聡・吉本周平・今泉眞之 (2012) : 農地の物理的除染対策技術の開発, 水土の知, **80**(7), 19–22
- 17) 野口正安 (1980) : γ 線スペクトロメトリー, 日刊工業新聞社, 243p.
- 18) National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, DOE (NNDC) (2011) : NuDat 2.6. <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/> (閲覧日 : 2012年12月2日)
- 19) 奥村晴彦 (2011) : 放射線量等分布マップ. <http://oku.edu.mie-u.ac.jp/~okumura/stat/110903.html> (閲覧日 : 2012年11月25日)
- 20) 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除染法の有効性に関する事前検討, 土壌の物理性, **121**, 43–48
- 21) 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**(8), 323–328
- 22) Schaub, M., Konz, N., Meusburger, K., Alewell C. (2010) : Application of in-situ measurement to determine ^{137}Cs in the Swiss Alps. *J. Environ. Radioact*, **101**(5), 369–376
- 23) 科学技術庁 (1974) : NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法, 日本分析センター, 75p.
- 24) Tanaka, K., Takahashi, Y., Sakaguchi, A., Umeo, M., Hayakawa, S., Tanida, H., Saito, T., Kanai, Y. (2012) : Vertical profiles of Iodine-131 and Cesium-137 in soils in Fukushima Prefecture related to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident. *Geochem. J.*, **46**(1), 73–76
- 25) 尹 永根・鈴井伸郎・山口充孝・河地有木・田野井慶太郎・中西友子・茅野充男・中村進一・藤巻 秀 (2012) : NaI(Tl)スペクトロメーターによるセシウム134および137を弁別した定量方法, 土肥誌, **83**(2), 296–300
- 26) 結田康一・駒村美佐子・木方展治・藤原英司・栗島克明

(2002)：原子力施設事故等に伴う農作物・土壌の緊急放射能調査：チェルノブイリ原発事故と東海村臨界事故への対応を中心に，土肥誌，**73**(2)，203-210

27) 和田道治 (2012)： γ 線測定によるCsの定量入門. <http://ja.scribd.com/doc/99954021/> (閲覧日：2012年11月25日)

受理年月日 平成24年12月4日

Analytical Procedure for Counting Radiocesium Peaks of Gamma-ray Spectra from In-situ Measurements with NaI (Tl) Scintillation Spectrometers

YOSHIMOTO Shuhei, IMAIZUMI Masayuki, ISHIDA Satoshi,
OGURA Chikara and OKUSHIMA Shuji

Summary

An analytical procedure to calculate ^{134}Cs and ^{137}Cs peak counts from gamma-ray spectra of NaI(Tl) scintillation detectors is developed and applied to evaluation of decontamination of farmlands in which soil has been contaminated after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. A peak-search technique using smoothed 2nd-order derivatives and a ROI-determination routine which correspond to the detected peak channels of ^{134}Cs and ^{137}Cs enable the peak-count analysis to be automated. Peak counts of ^{134}Cs and ^{137}Cs calculated with using the ROI-determination routine which regards tangent lines to smoothed gamma-ray spectra into baselines of the peaks are well-correlated with each other, regardless of periods of the measurements, and therefore the procedure using this routine is applicable to field observations. Distributions of calculated radiocesium peak counts on paddy fields changes in monitored radiocesium activity in muddy water emitted during a decontamination operation show effects of decontamination measures clearly.

Keywords : Decontamination evaluation, Radioactivity monitoring, Gamma-ray spectrometry, Airborne survey, Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant