海域における曳航式ガンマ線スペクトロメータ定量化のための換算 係数および不確かさの評価

大西 世紀*, ソーントン ブレア** 鎌田 創* 浅見 光史*

平尾 好弘* 浦 環***

Quantification of towed gamma-ray detector measurements and evaluation of its uncertainty in Tohoku coastal waters

by

Seiki OHNISHI, Blair THORNTON, So KAMADA, Yoshihiro HIRAO, Tamaki Ura and Naoteru ODANO

Abstract

The quantification method for the towed gamma-ray detector system using NaI(Tl) spectrometer was established to measure the radioactive cesium distribution in the marine sediment in Tohoku coastal waters. The response function of the NaI(Tl) spectrometer to sediment layer is calculated by the Monte Carlo radiation transport simulation assuming that the radioactive nuclides are distributed uniformly in horizontal direction inside the detectable volume. At the same time, the vertical distribution is acquired by core-sampling method on certain points, and then the conversion factors there are obtained by integrating the contribution of the layers. Finally, the conversion factor on an arbitrary location was estimated by interpolation. The concentration of radioactive cesium measured by the towed system agreed well with that of sediment samples, and the combined standard uncertainty of the radioactive cesium concentration of the conversion factors between core samples and uncertainty of the detector's burial depth.

 * 海上技術安全研究所, ** 東京大学, ***九州工業大学 原稿受付 平成 30 年 8 月 3 日
 審 査 日 平成 30 年 9 月 28 日

目 次

1.	背景	4
2.	検出器及び測定手法	5
2	.1 曳航式スペクトロメータ RESQ システムの構成	5
2	.2 解析手法	6
	2.2.1 換算係数の定義	6
	2.2.2 検出器応答	6
	2.2.3 換算係数の補間	8
2	.3 不確かさの見積もり	10
	2.3.1 光電ピーク計数率の不確かさ	10
	2.3.2 沈み量の不確かさ	11
	2.3.3 検出器応答の不確かさ	11
	2.3.4 サンプル採泥点での換算係数の不確かさ	12
	2.3.5 補間された換算係数の不確かさ	13
3.	東北沿岸海域での実施例	13
3	.1 阿武隈川河口沖における測定	13
3	.2 仙台湾における測定	14
3	.3 福島第一原子力発電所近傍での測定	15
4.	まとめ	17
参え	岑文献	17

記号

b:検出器の沈み量(cm) [cm]
C:換算係数 [Bq ⁻¹ kg s ⁻¹]
D:放射性セシウム濃度 [Bq kg ⁻¹]
f:放射性セシウム鉛直分布 [g ⁻¹ cm ²]
g:放射性セシウム相対鉛直分布 [g ⁻¹ cm ²]
$L:$ 比較用平均化深さ(面密度) $[g \mathrm{cm}^{-2}]$
P:光電ピーク計数率 [s ⁻¹]
<i>R</i> :検出器応答 [Bq cm ² s ⁻¹]
z:海底土表面からの深さ [cm]
$\beta:$ 検出器の海底土への沈み量(面密度) $[gcm^2]$
ε_k : クリギングによる不確かさ $[Bq^{-1}kg s^{-1}]$
ε_R :検出器応答の計算モデルによる不確かさ $[Bq cm^2 s^{-1}]$
<i>l</i> :平均化深さ(cm) [cm]
$ ho:$ 海底土質量密度 $[g \mathrm{cm}^{-3}]$
ζ:面密度 [g cm ⁻²]

1. 背景

2011年3月東日本大震災により福島第一原子力発電所事故が発生し,環境中に多量の放射性物質が放出された. 放射性核種のうち Cs-134 及び Cs-137 は同時に放出された I-131(半減期 8 日)等に比べて半減期が比較的長く (Cs-134:2.0648年, Cs-137:30.1671年),放出量も多い(Cs-137:1.3×10¹⁶ Bq,小林らによる推計¹⁾)ため長期に環 境中に残留する状態にあり,これらの放射性物質の分布は今現在においても継続的な監視が続けられている²⁾. 陸上における放射性物質分布状況調査は航空機を用いた調査により東北全域が網羅されており web 等で確認する ことが可能となっている³⁾が,海洋においては当初,サンプリングによる限られた地点での観測のみとなってい た⁴⁾ため,海上技術安全研究所及び東京大学では放射性セシウムの広域分布測定を目的とした曳航式スペクトロ メータを開発し,連続測定を行ってきた^{5,6}.

曳航式スペクトロメータは検出器部分を海底に密着させた状態で曳航され,海底土からのガンマ線による検出 器信号を1秒毎に保存している.データは揚収後に内蔵データロガーから回収され,計数率,検出器応答及びデー タ補間を用いて波高分布から放射性セシウム濃度へと換算される.これらの各過程は不確かさを含んでおり,換 算結果へ影響を及ぼしている.当報告では主に既往の文献⁷⁰及び報告書⁸⁰に沿い,換算過程の定式化,不確かさ の評価及び実海域での測定例について述べる.

2. 検出器及び測定手法

曳航式スペクトロメータ RESQ(Radiometric Environment Survey and Quantification)^{5.6}は電池,制御回路,検出器 等を内蔵する. RESQ は海中への投入前に通電・起動され,測定開始状態で海中へ投入される.測定で得られた 内部ロガーのデータは揚収後に回収され,解析プログラムで処理される.2章ではこれら装置と,装置によって 取得したデータの解析方法について述べる.

2.1 曳航式スペクトロメータ RESQ システムの構成

RESQ システムは NaI(TI)検出器,制御回路,電池,錘,圧力計,温度計,加速度計及びソナーによって構成されている.水中ケーブルで結線された計測機器は水密容器に格納され,全体をゴム製のホースが覆うことで海底からの衝撃や摩擦による損傷を防いでいる.装置の概要を図1に示す.



制御回路はシリアルポートを有し, PC へのデータ転送機能の提供とロガーによる測定データの保存を行っている. ガンマ線による NaI(TI)検出器の出力信号は付随する光電増倍管で増幅された後,多チャンネル波高分析器へ送ら れ、1秒ごとに保存される. RESQ システムでは2/ット程度での曳航を想定し、海底との密着を保つように錘 が連結され、水中重量は115kgとなっている.自重により曳航体の一部が海底土中に埋まることが考えられるた め、ホース末尾にはソナーを装備し、音響画像から沈み量を検知することができる⁹.

放射性セシウム濃度の算出には信号波高分布の光電ピーク計数率が用いられる.光電ピークは比較的波高の大きな信号になるため衝撃や回路系のノイズ混入が無視でき、大まかなピーク位置がわかっていれば精密なエネルギー校正が不要となる.これは主に数十トン程度の漁船で運用することが多く、現場で精密な校正を行うことが難しい RESQ システムでは非常に大きな利点となる.また海底土は比較的原子番号の小さい元素で構成されおり、数百 keV 光子との相互作用ではコンプトン散乱が支配的となる.このため減弱係数が物質に依存しなくなり、海底土の元素組成を考慮する必要がないことも利点として挙げられる.これを利用して、RESQ システムの解析では深さを cm ではなく面密度、g/cm²で表し、海底土組成に依存しない検出器応答を用いている.

6

2.2 解析手法

2.2.1 換算係数の定義

RESQ システムでは、毎秒記録した検出器波高分布から光電ピーク計数率を取得し、換算係数で割ることによって海底土中の放射性セシウム濃度を算出している.これを式で表すと

$$D = \frac{P}{C} \tag{1}$$

となる. ここで D: 放射性セシウム濃度, P: 光電ピーク計数率 C: 換算係数である. 検出器の計測している範囲 内(ガンマ線平均自由行程の3倍程度, Cs-137:662keV に対しては海底土中で約18cm)では放射性物質は水平方向 に均一に, 鉛直方向には不均一に分布していると近似しているので,海底土を水平層に分割して層ごとに検出器 の応答を計算しておき,放射性セシウム鉛直分布と掛け合わせて,全層の和を取ることで換算係数が得られる. このとき鉛直方向の単位には面密度

$$\zeta = \int_{0}^{z} \rho(z) \mathrm{d}z \tag{2}$$

を用いる.ここで ζ :面密度, ρ :海底土質量密度分布,z:海底土表面からの深さである.また既存の海底土表 層サンプル測定¹⁰と比較可能なように,換算係数は表層の平均放射性セシウム濃度で規格化されている.これら をまとめると海底土サンプル採泥点での換算係数は

$$C_{i}(\beta_{i}, L_{i}) = \frac{\int_{0}^{\infty} f_{i}(\zeta) R(\beta_{i}, \zeta) d\zeta}{\frac{1}{L_{i}} \int_{0}^{L_{i}} f_{i}(\zeta) d\zeta}$$
(3)

と定義される. 添字 i は i 番目のサンプル採泥点での量を表し、 β :検出器の海底土への沈み量、L:比較用平均 化深さ、f:放射性セシウム鉛直分布、R:検出器応答である. 沈み量及び平均化深さはいずれも面密度で表され ており

$$\beta_{i}(b) = \int_{0}^{b} \rho_{i}(z) dz, \quad L_{i}(l) = \int_{0}^{l} \rho_{i}(z) dz$$
(4)

で与えられる.ここで b:検出器の沈み量(cm), l:平均化深さ(cm)である.海底土の質量密度分布はサンプリング地点ごとに異なるため,平均化深さ(g/cm²)はサンプリング地点によって異なる.既往のサンプリング調査¹⁰⁾では l=3cm が採用されている場合が多いため,以後特に言及がない限りこの値を採用する.

2.2.2 検出器応答

式(3)あるいは式(5)の検出器応答 R はモンテカルロ放射線輸送計算コード MCNP5¹¹⁾及び連続エネルギー断面積 ライブラリ MCPLIB04¹²⁾, EL03¹³⁾を用いて計算している.計算では Cs-134 及び Cs-137 のガンマ線放出率には文 献値¹⁴⁾を用い,計算領域は放射性セシウムが放出するガンマ線の平均自由行程を考慮し一辺 1.5m の立方体領域 とした.計算体系は NaI 結晶,水密容器,光電増倍管,ゴムホース海底土及び海水で構成され,光電増倍管は同密度のアルミニウムでモデル化されている.検出器応答 *R(b, z)*は,検出器沈み量 b の状態で,深さ z の海底土層に含まれる放射性セシウムに対する応答であり,計算では深さ z の位置に単位放射能濃度の面線源を設置し, NaI 結晶内での光電ピーク計数率を求める.計算体系の断面図を図 2 に示す.



図2 検出器応答計算体系断面図 (単位: cm)

海水中の溶存セシウムは既に大半の海域で数 mBq/L 以下¹⁵⁾となっており,サンプリング調査等で調べられている 海底土の放射性セシウム濃度(Cs-137: 1.7~580 Bq/kg)¹⁰⁾に比べて十分小さいため無視できる.また海底土からの溶 出に関しても分配係数(海水中濃度と媒質中濃度の比)は 2×10³程度¹⁶⁾と非常に大きいため計算では考慮しない. 計算結果の例として 3×3 φ インチ及び 3×6 φ インチ検出器に対して計算した検出器応答 *R*(0,*ζ*)を図 3 に示す.





検出器応答は海底土深さに応じてほぼ指数関数的に減衰し、検出器体積に概ね比例する.また、検出器応答に対 する沈み量の影響を計算したものが図4である



図4 沈み量の変化に対する検出器応答の変化

式(3)の特筆すべき点として,検出器固有の応答 R さえ計算してあれば任意の鉛直分布に対して換算係数が算出可能であることと,分子分母ともに放射性セシウム鉛直分布を含むため鉛直分布の絶対値 f ではなく,鉛直方向の積分値が1になるように規格化された

$$\int_{0}^{\infty} g_{i}(\zeta) d\zeta = 1, \qquad f_{i}(\zeta) = g_{i}(\zeta) \int_{0}^{\infty} f_{i}(\zeta) d\zeta$$

を満たす規格化相対分布量gを用いても同様の形

$$C_{i}(\beta_{i},L_{i}) = \frac{\int_{0}^{0} g_{i}(\zeta)R(\beta_{i},\zeta)d\zeta}{\frac{1}{L_{i}}\int_{0}^{L_{i}} g_{i}(\zeta)d\zeta}$$
(5)

で表せることが挙げられる.

00

2.2.3 換算係数の補間

式(3)で定義される換算係数は放射性セシウムの鉛直分布に依存するため,海底土サンプルを採取した地点での み求められるが,曳航式スペクトロメータ測定結果の定量化には,曳航測線上の任意の位置での換算係数を得る 必要がある.このためには(a)一定の鉛直分布を仮定して換算係数を計算するか,(b)換算係数が既知の点から補間 によって求める必要がある.陸上での放射性降下物の鉛直分布としては緩和係数(分布特性長)を1~7 g/cm²とし た指数関数で近似されることが知られている¹⁷⁾ため航空機モニタリングでは主に前者の方法が取られているが, 海底土内の放射性セシウム分布は指数分布には従わないため,この方法を用いることができない.一例として図 5 に阿武隈川河口沖での鉛直分布測定例を示すが,海底土の場合放射性セシウム分布は表面ではなく深部で最大 値を取り,指数関数で近似できないことがわかる.これは陸上に比べて海底土の場合、移動及び堆積の効果が大 きいためと考えられる.



図5 阿武隈川 St3 (河口西 5km 地点), St7 (同南西 2km) での鉛直分布と分布特性長 1, 7g/cm²の指数分布

そこで、曳航式スペクトロメータの定量化にあたっては換算係数の補間を用いる.以降では補間によって得られた換算係数を添字Iで区別し、式(1)では実際には以下

$$D = \frac{P}{C_I}, \qquad C_I = \sum_i w_i C_i \tag{6}$$

のように補間で得た換算係数を用いる.ここで*i*は前述のサンプル採泥点番号,w_iは重み付け係数である.この ようにして得られた換算係数による曳航式スペクトロメータ定量化の流れを図6に示す.



図 6 曳航式スペクトロメータ定量化解析の流れ⁸⁰. それぞれの要素は(1)放射線輸送計算, (2)ソナーによる 補正, (3)検出器による光電ピーク計数の取得, (4)データの補間によって取得される

2.3 不確かさの見積もり

式(6)で表される放射性セシウム濃度Dの不確かさは伝搬則によって以下

$$u[D] = D\left[\left(\frac{u[P]}{P}\right)^2 + \left(\frac{u[C_I]}{C_I}\right)^2\right]^{1/2}$$
(7)

のように計算される.ここで *u*[]は括弧内の不確かさを表し, *u*[*D*]は *D* の不確かさを意味する.以下では個別の不確かさの成分とその合成結果について述べる.

2.3.1 光電ピーク計数率の不確かさ

放射性セシウムの定量化には Cs-134 の場合 796 及び 802keV ピークを, Cs-137 の場合 662keV ピークを用いる. Nal(Tl)検出器の場合,両者は重なりを持つため単純なコベル法によるピーク面積取得は不可能である.また放射 能濃度が小さい場合,Tl-238(583keV)や Bi-214(609keV)といった天然核種の影響も無視できない.このため光電 ピーク計数率の取得には複数のガウス分布及び誤差関数によるフィッティングを行う.ガンマ線エネルギーを E とし,光電ピークに対応するガウス分布 F のフィッティングパラメータを x₁, x₂, x₃ とすると光電ピークは

$$F(E, x_1, x_2, x_3) = \frac{x_1}{\sqrt{2\pi x_2^2}} \exp\left\{\frac{(x_3 - E)^2}{2x_2^2}\right\}$$
(8)

と表され,その面積 P は

$$P = \int_{0}^{\infty} F(E, x_1, x_2, x_3) = x_1$$
(9)

となり、ピーク面積の不確かさはそのままフィッティングパラメータの不確かさと等しく、

 $u[P] = u[x_1]$

と表される.パラメータ x₁, x₂, x₃及びその不確かさは非線形最小二乗法よって求める¹⁸⁾. 安定的にフィッティン グを行うにはパラメータ数を削減することが望ましい.そこで,計測中に機器の故障などがなければエネルギー 分解能が大きく変化しないことを利用し,最初に測線始点から終点まで計測結果を合計した波高分布に対して フィッテイングを行って分散(x₂に対応)を求め,測線上の各点のデータを得るときには x₂固定してフィッティン グを行う.測定データはピークフィットが成功し,かつ u[P]が一定の基準値以下になるまで積算され,これが曳 航式スペクトロメータの空間分解能の制限となる.例として図7に測線トータル波高分布へのフィッティング結 果を,図8にCs-137の許容計数率誤差を7%とした時のフィッティング結果を示す.

(10)



2.3.2 沈み量の不確かさ

図2に示したように検出器は一定の深さ(図中 b)だけ海底土に沈み込んだ状態で曳航される. 過去の阿武隈川河 口沖の曳航時には、海底土が粒径の粗い砂質の場合沈み量はほぼ0で、粘土質の場合6cm程度の沈み量が観測さ れ、全測線での平均では沈み量2.2cm、標準偏差2.4cm、という結果が得られている⁹. この結果より、阿武隈川 河口沖での沈み量bの不確かさはu[b]=1.09bとする. 面密度単位の不確かさへは式(4)を微分し、密度の不確かさ は小さいとして無視すると

$$u[\beta_i] = \rho_i u[b] \tag{11}$$

と換算される.

2.3.3 検出器応答の不確かさ

検出器応答の計算モデルには、材料組成での少量元素の無視や、形状の単純化などの種々の近似が含まれている.これらのモデル化による不確かさをすべて解析的に考慮することは不可能なので、放射性セシウム濃度が既知の土壌を用いて、実験を行うことにより推定した.実験では 37.5×64×40cm の容器に阿武隈川河口沖で採取した海底土を深さ 11.5cm まで充填し、その上 16cm まで注水した体系を作成した上、保護ホースを巻いた RESQシステム検出器部分を設置した.実験体系を図9に示す.



図9 検出器応答検証実験の体系

このときの自重による検出器沈み量は2cmとなった.計測対象となるのは光電ピーク計数のみであるため,容器の壁や検出器上方の水の量は実験に対する影響がないため,計算では容器の壁面は無視した.実験で得られた Cs-134 及び Cs-137 の,光電ピーク計数測定結果と計算結果の比を表1にまとめた.

核種	C/E	C/E の不確かさ(%)	C/E
Cs-134	1.05	7.3	1.05
Cs-137	1.01	6.6	1.01

表1 光電ピーク計数率(Cs-134:796+802 keV, Cs-137:662 keV)の計算値/測定値比(C/E)

結果,表1が示すように計算値と実験値は不確かさの範囲で非常によく一致した.この C/E により,検出器応答の不確かさは ϵ_R =1.05R とした.ここで計算値におけるモンテカルロ計算に由来する統計的不確かさは概ね 0.2% 以下であったため無視している.

2.3.4 サンプル採泥点での換算係数の不確かさ

サンプル採泥点で算出される換算係数にはサンプル測定及び検出器応答からの不確かさが伝搬する.単純のため式(5)を円柱コアサンプルの各層ごとに鉛直方向に離散化し

$$C_{i}(\beta_{i},L_{i}) = \frac{\sum_{n=1}^{N} g_{i,n} R_{n}(\beta_{i}) \Delta \zeta_{n}}{\frac{1}{L_{i}} \sum_{n=1}^{M} g_{i,n} \Delta \zeta_{n}}$$
(12)

と変形する.ここで添字 n は測定時鉛直方向に分割された採泥コアサンプルの n 番目のものを意味し、 $\Delta \zeta_n$ は 表面から n 層目のサンプルの厚さを、N は分割サンプル数、M は平均化深さ L に対応したサンプル番号 $(L = \sum_{n=0}^{M} \Delta \zeta_n)$ を表す.以降では表記の単純化のため添字 i は省略する.換算係数の不確かさはサンプル測定に 由来する成分 $u[C]_g$ と検出器応答 $u[C]_R$ に分けることができ、

$$u[C] = \left\{ u[C]_g^2 + u[C]_R^2 \right\}^{1/2}$$
(13)

と表される.前者は放射性セシウム鉛直分布誤差 u[g_n]の関数であり,u[g_n]は高純度ゲルマニウム(HPGe)検出器での測定時にポアソン分布を仮定して実験的に取得される.式(13)右辺第一項を式(12)を使って展開すると,

$$u[C]_g = \sum_{n=1}^N \frac{\partial C}{\partial g_n} u[g_n]$$
⁽¹⁴⁾

$$\frac{\partial C}{\partial g_n} = \begin{cases} \frac{LR_n \Delta \zeta_n}{\sum_{m=1}^M g_m \Delta \zeta_m} & (n > M) \\ \frac{L\Delta \zeta_n (R_n \sum_{m=1}^M g_m \Delta \zeta_m - \sum_{m=1}^N g_m R_m \Delta \zeta_m)}{\left(\sum_{m=1}^M g_m \Delta \zeta_m\right)^2} & (n \le M) \end{cases}$$
(15)

が得られる.他方,検出器応答に由来する不確かさは、さらに2.3.3 で述べた検出器応答計算に由来する成分と、 沈み量の不確かさの伝播による成分に分けられ式(11)、(12)より以下

$$u[C]_{R} = \sum_{n=1}^{N} \frac{\partial C}{\partial R_{n}} \left\{ \left(\frac{\partial R_{n}}{\partial \beta} \right)^{2} u[\beta]^{2} + \varepsilon_{R}^{2} \right\}^{1/2}$$
(16)

$$\frac{\partial C}{\partial R_n} = \frac{Lg_n \Delta \zeta_n}{\sum_{m=1}^M g_m \Delta \zeta_m}$$
(17)

のように変形される.最終的にサンプル採泥点での換算係数不確かさは式(14)及び(16)を式(13)へ代入することで 得られる.

2.3.5 補間された換算係数の不確かさ

2.3.4 ではサンプル採泥点での換算係数不確かさを定式化した. 曳航式スペクトロメータの測定データ定量化に あたっては,採泥点での換算係数を補間して使用するため,補間された換算係数の不確かさについても整理する 必要がある.換算係数の補間には補間誤差が推定可能なクリギング^{19,20)}を用いるため,クリギング誤差を ε_k とす ると,補間された換算係数 $C_l = \Sigma w_c O$ の不確かさは重み付け係数をwとして

$$u[C_{I}] = \left[\sum_{i} w_{i}^{2} u[C_{i}]_{g}^{2} + \left(\sum_{i} w_{i} u[C_{i}]_{R}\right)^{2} + \varepsilon_{k}^{2}\right]^{1/2}$$
(18)

と表される.ここで異なる地点(iが異なる項)間で *u*[*C*_{*i*]}。には相関がないためこれらは二乗和で合成されているが, *u*[*C*_{*i*}] は同一の検出器応答に由来し、独立ではないため単純和で合成されている.

3. 東北沿岸海域での実施例

阿武隈川河口沖,仙台湾及び福島第一原子力発電所近傍においてサンプリング及び曳航式スペクトロメータを 用いた広域放射性セシウム分布測定を行い,放射性セシウム分布の把握とRESQシステムの実用性検証を行った.

3.1 阿武隈川河口沖における測定

阿武隈川河口沖の曳航測定は 2013 年 3 月に実施された. RESQ システムによる曳航調査と並行して実施した採 泥調査では、マルチコアサンプラーを用い、最大 50cm 深さまでの柱状サンプルを取得した. これらの柱状サン プルを一定の深さごとにスライスし、各サンプルの放射性セシウム濃度を測定することによって放射性セシウム 鉛直分布を算出した. 測定にあたっては文部科学省ガイドライン²¹⁾に従い、乾燥後に HPGe 検出器を用いて測定 を行った. このサンプル測定によって得られた鉛直分布を式(12)に代入して換算係数を取得し、補間結果を適用 して換算した放射性セシウム分布が図 10 である. この図では、河口の延長線上に放射性 Cs が高濃度を示す点が あることがわかる. また、曳航式スペクトロメータの結果はサンプリング調査の結果を再現するだけでなく、測 線の交点(図 10 左、四角で示された地点)では L1 測線での測定値(図 10 右、白四角点)と L3 測線での測定値(図 10 右、3.3km 地点の値)が一致しており、良好な再現性を持つことが示されている. 式(18)に従って不確かさを評価 するとともに、微小量の擾乱を与えて感度係数を計算し、不確かさの見積もり表を作成した結果が表 2 である. 見積もり表では代表点として図 10 中 St.7 近傍での値を用いている. 表 2 から、海底土内放射性セシウムの定量 化において検出器応答の感度係数が最も高くなっているが、最終的に得られる Cs-137 濃度に対する検出器応答の 不確かさの寄与は、沈み量あるいは補間のそれに比べると小さいことがわかる。包含係数を1 とした合成不確か さは、全測線で概ね 10%から 25%の範囲となった。



図 10 阿武隈川河口沖における Cs-137 分布(左:2 次元分布,右:L3 測線上分布). 右図中黒丸はサンプルの HPGe 検出器による測定結果を表し,四角は測線L1 曳航時の曳航式スペクトロメータによる測定値を表わす. 地図情報 は国土地理院地図²²⁾による.

不確かさ要素名	記号	単位	不確かさ評価値	感度係数	標準不確かさ	寄与割合
鉛直分布	u[g]	Bq/kg	1.0×10^{1}	1.4×10^{-1}	1.0×10^{0}	0.0027%
沈み量	$u[\beta]$	g/cm ²	2.9×10^{0}	8.3×10^{1}	2.4×10^{2}	80%
検出器応答	\mathcal{E}_R	$Bq^{-1}cm^2s^{-1} \times 10^{-3}$	$7.0 imes 10^{-5}$	1.2×10^{6}	8.4×10^{1}	9.8%
補間	ε_k	Bq ⁻¹ kg s ⁻¹	5.4×10^{-4}	1.6×10^{4}	8.6×10^{0}	0.1%
光電ピーク計数率	u[P]	s ⁻¹	7.9×10^{0}	1.1×10^{1}	8.7×10^{1}	10%
合成不確かさ	u[D]	Bq/kg			2.7×10^{2}	
(包含係数 k=1)						

表2 代表点(図 10 中 St. 7 近傍)での不確かさ見積もり表

3.2 仙台湾における測定

仙台湾における曳航測定は2013年1月に実施された.阿武隈川河口沖測定と同様にマルチコアサンプラーによ る採泥とRESQシステムによる曳航調査を行った.当初計画時には仙台湾湾口に放射性物質が蓄積する可能性が 懸念されていたため,深度60m及び深度120mの等深線に沿ってそれぞれ70kmの測線を設定した.以後深度60m に対応した測線をL60,120mに対応した測線をL120と呼称する.L60,L120の放射性セシウム測定結果を図11 に,St.2 近傍代表点での不確かさ見積もり表を表3に示す.この時点では沈み量測定ソナーは未完成であったた め,沈み量については阿武隈川河口沖のデータで代替した.仙台湾での測定においても曳航式スペクトロメータ は採泥サンプル解析結果とよく一致し,また不確かさ見積もり表は阿武隈川河口沖測定と同様の傾向を示した. 仙台湾海底土の放射性セシウム濃度は全体的に小さく,20~80Bq/kg程度であり,沖合の方が高い数値を示した. またSt3-3 は最も福島第一原子力発電所に近い位置にあるにもかかわらず,図11が示すように調査海域中では最 も放射性物質濃度が小さくなっており,これは海流の影響と考えられる.



図 11 仙台湾における Cs-137 分布(左:2次元分布,右:測線上分布).地図情報は国土地理院図による²²⁾.

	-					
不確かさ要素名	記号	単位	不確かさ評価値	感度係数	標準不確かさ	寄与割合
鉛直分布	u[g]	Bq/kg	6.7×10 ⁻¹	1.5×10^{-1}	1.0×10^{-1}	0.0055%
沈み量	$u[\beta]$	g/cm ²	4.2×10^{0}	2.6×10^{0}	1.1×10^{1}	66%
検出器応答	\mathcal{E}_R	$Bq^{-1}cm^{2}s^{-1} \times 10^{-3}$	$7.0 imes 10^{-5}$	1.1×10^{4}	7.7×10^{-1}	0.32%
補間	ε_k	Bq ⁻¹ kg s ⁻¹	8.8×10^{-3}	8.2×10^{2}	7.2×10^{0}	28%
光電ピーク計数率	u[P]	s^{-1}	1.6×10^{-1}	1.9×10^{1}	3.0×10^{0}	4.9%
合成不確かさ	u[D]	Bq/kg			1.3×10^{1}	
(包含係数 k=1)						

表3 代表点(図11中St.2近傍)での不確かさ見積もり表

3.3 福島第一原子力発電所近傍での測定

前節までの結果で曳航式スペクトロメータの妥当性が検証できたため、これを2015年9月、福島県沿岸海域に 投入し、発電所前面の南北にわたる放射性セシウムの分布測定を行った.測定によって得られた広域分布を図12 に、採泥サンプルとの比較を図13に示す.過去の反射強度測定や、海底図、あるいはRESQシステム末尾ソナー ケースの破損状況からこの海域では海底はほぼ岩礁であることがわかっており、検出器沈み量は0cmとしている. 海底土中の Cs-137 濃度は平均的には200Bq/kg程度であるが、局所的にスパイク状に2000Bq/kg以上にまで濃度 が上昇する地点が観測された.水深を示す図13中の水色線と上昇地点を比較すると、これらは海底の窪みの位置 に対応していることがわかる.この結果は、発電所近傍では海底に岩盤が露出しているため放射性セシウムの吸 着は少ないが、海底の凹凸により高濃度の分布(アノマリー)が形成されていることを示している.



図 13 測線上での Cs-137 分布. 実線が Cs-137 濃度, 灰色帯が不確かさ, 水色線が水深(右目盛)を表す

4. まとめ

曳航式スペクトロメータの計数率から海底土中の放射性セシウム濃度へと換算する係数を定式化し、その不確 かさを見積もった.換算係数は検出器応答と放射性セシウムの鉛直分布に依存するため、まず事前に検出器応答 関数を放射線輸送計算コードで計算しておき、次にサンプルでの放射性セシウム鉛直分布実測値と掛け合わせた 上で和をとって採泥点における値を取得し、曳航式スペクトロメータによる広域測定時には各測線上へと補間を 行う.この手法では必ずしも曳航測線がサンプル採泥点を通る必要がないため、採泥点を柔軟に設定できる利点 がある.またこの換算係数の算出には相対鉛直分布のみが必要となるため、放射性物質鉛直分布が指数関数で近 似可能な遠洋等²³⁾では、サンプル採泥を行わずとも換算係数が算出可能である.

阿武隈川河口沖及び仙台湾での実海域測定では、海底土サンプルの HPGe 検出器による放射能濃度測定結果と 曳航式スペクトロメータ測定結果は非常によく一致した.阿武隈川河口沖では阿武隈川の延長線上に放射性物質 の分布がみられ、陸域からの流入の影響が考えられる一方、仙台湾では陸からの流入による影響はなく、また福 島第一原子力発電所からの距離も大きいため比較的低い放射性セシウム濃度を示した.これらの海域での測定に より曳航式スペクトロメータの妥当性が確認できたため、福島第一原子力発電所前面の海域に投入し、福島沿岸 海域の広域分布測定を行った.この測定においても曳航測定結果はサンプル測定結果をよく再現し、また深度と の比較により海底の窪みに放射性セシウムが蓄積している状況が明らかになった.

不確かさの寄与としては補間,沈み量の寄与,検出器応答の3つが支配的である.補間に関しては採泥点数が 有限である以上避けることはできないが,サンプル点の増加により補間誤差を減少させることは可能である.沈 み量及び検出器応答はさらに大きな不確かさの寄与を示したが,これらの要素は現在の「検出器応答と鉛直分布 の積により換算係数を算出する」方法ではなく,曳航側線が採泥点の上を通るように設定し,「採泥サンプルの放 射能濃度とその点での曳航式スペクトロメータの計数率の比」で換算係数を求めれば沈み量及び検出器応答関数 を用いる必要がなくなり,これらに由来する不確かさの影響を排除することができる.表2,3の見積もりによる と,この手法を採用できれば不確かさは現在の値から70%程度減少すると考えられる.

現在自然拡散及び核種の崩壊により海底土内の放射性セシウム濃度は減少する傾向にある⁸⁾. 特に Cs-134 は半 減期が 2.0648 年と短く、半減期 30.1671 年の Cs-137 に比べると速やかに減少し、海底土面でのガンマ線スペクト ルが変化するため、いずれ現在の Cs-134,Cs-137 マルチピークフィッティングは不要となり、Cs-137 のシングル ピークフィッティングで十分となり得る. また計数率の低下により曳航式スペクトロメータの分解能が劣化する ため、これを補うような技術、例えばコンプトン連続部以下をも計数するような手法が、将来的には必要となる ことが予想される.

謝 辞

当研究は本研究の一部は,原子力規制庁「海域における放射性物質の分布状況の把握に関する調査研究」及び 水産庁「高濃度に放射性セシウムで汚染された魚類の汚染源・汚染経路の解明のための緊急調査研究」の成果の 一部である.

参考文献

- T. Kobayashi, *et al.*, "Source term estimation of atmospheric release due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident by atmospheric and oceanic dispersion simulations,", J. Nucl. Sci. Technol., 50,255-264, 2013.
- 2) 原子力規制委員会,モニタリング 原子力規制委員会, http://www.nsr.go.jp/activity/monitoring/.
- 3) 原子力規制委員会,航空機モニタリング結果 原子力規制委員会, http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/191/list-1.html.
- 4) Nuclear Regulation Authority, Readings of sea area monitoring |NRA, http://radioactivity.nsr.go.jp/en/list/205/list-1.html.

- 5) B. Thornton, *et al.*, "Continuous measurement of radionuclide distribution off Fukushima using a towed sea-bed gamma ray spectrometer,", Deep-Sea Res. Part I: Oceanogr. Res. Pap., 79, 10-19, 2013.
- B. Thornton, *et al.*, "Distribution of local 137Cs anomalies on the seafloor near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant,", Mar. Pollut. Bull., 74(1), 344-350, 2013.
- 7) S. Ohnishi, *et al.*, "Conversion factor and uncertainty estimation for quantification of towed gamma-ray detector measurements in Tohoku coastal waters,", Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., A 819, 111-121, 2016.
- 8) 海上技術安全研究所,原子力規制庁委託事業平成26年度放射性物質測定調査委託費(海域における放射性物 質の分布状況の把握等に関する調査研究)事業報告書,https://www.nsr.go.jp/data/000186107.pdf.
- 9) Y. Hirao, *et al.*, "Development of a Sonar System to Estimate the Seafloor Subsurface Burial Depth of a Towed Gamma-Ray Spectrometer,", Mar. Technol. Soc. J. 48(3), 155-162, 2014.
- M. Kusakabe, *et al.*, "Spatiotemporal distributions of Fukushima-derived radionuclides in nearby marine surface sediments,", Biogeosciences, 10(7), 5019-5030, 2013.
- 11) X-5 Monte Carlo Team, "MCNP A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5,", LA-UR-03-1987, 2003.
- M.C. White, "Photoatomic Data Library MCPLIB04: A New Photoatomic Library Based on Data from ENDF/B-VI Release 8,", LA-UR-03-1019, 2003.
- 13) K.J. Adams, "Electron Upgrade for MCNP4b,", X-5-RN(U)-00-14, 2000.
- 14) B. R. Firestone, "Table of Isotopes, eighths ed.,", Wiley-VCH, Berlin, 1998.
- 15) Nuclear Regulation Authority, Readings of Sea Area Monitoring in Off-shore Sea Area NRA, http://radioactivity.nsr.go.jp/en/list/292/list-1.html.
- International Atomic Energy Agency, "Sediment Distribution Coefficients and Concentration Factors for Biota in the Marine Environment,", Technical Reports Series 422, 2004.
- International Atomic Energy Agency, "Guidelines for Radioelement Mapping Using Gamma Ray Spectrometry Data,", IAEA-TECDOC-1363, 2003.
- 18) J. Pinheiro, et al., "NLME: Linear and Nonlinear Mixed Effects Models,", http://CRAN.R-project.org/package=nlme.
- 19) G. Matheron, "Principles of geostatistics,", Econ. Geol. 58, 1246-1266, 1963.
- 20) 間瀬茂、「地球統計学とクリギング法 RとgeoRによるデータ解析」、オーム社、2010年.
- 21) 文部科学省,「放射能測定シリーズ No.7 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」, 平成4年改訂.
- 22) 国土地理院,国土地理院基盤地図情報 25000, http://www.gsi.go.jp/kiban/.
- E. Black, *et al.*, "Spatial variability and the fate of cesium in coastal sediments near Fukushima, Japan,", Biogeosci. Discuss. 11(5), 7235–7271, 2014.