

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：82105

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26660133

研究課題名(和文)ガンマ線スペクトルサーベイから土壌中の放射性セシウム分布を探る

研究課題名(英文) Exploration of radioactive cesium distribution in forest soil using gamma-ray spectral survey

研究代表者

安田 幸生 (YASUDA, Yukio)

国立研究開発法人森林総合研究所・森林防災研究領域・主任研究員

研究者番号：50353892

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：森林土壌に含まれる放射性セシウム濃度とその深度分布を、林床面におけるガンマ線スペクトルを用いて、非破壊的に測定する技術の開発を試みた。

森林において測定されたガンマ線スペクトルから放射性セシウムに由来するピークの検出およびピーク計数の算出を行った結果、土壌に含まれる放射性セシウム濃度を推定することができた。しかし、放射性セシウムの移動速度は遅く、数年に亘って土壌の表層付近に留まっていることから、林床面において検出されるガンマ線スペクトルの波形によって、放射性セシウム濃度の深度分布を推定することは現時点では難しいことが分かった。

研究成果の概要(英文)： We attempted to develop a new technique to measure radioactive cesium concentration and its depth distribution in forest soil using energy spectra of gamma ray on forest floor. This technique will not require soil samplings and permit simple and quick measurements.

Gamma ray spectra measured on forest floor clearly showed energy peaks from radioactive cesium (Cs-137, Cs-134). Peak counts of gamma-ray photon calculated around the detected peaks had significant correlation with the amounts of radioactive cesium contained in soil per unit area. This linear relationship was able to apply to estimate the actual cesium amounts in Fukushima forests. However, estimations of the depth distribution using gamma-ray spectra were difficult, since radioactive cesium still remained near the surface of forest soil.

研究分野：森林気象学

キーワード：放射性セシウム 森林土壌 ガンマ線

1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所の事故により広範囲にわたって放射性物質が拡散・沈着したが、放射性物質に汚染された森林面積は広大であるため、ほとんど除染は行われていない。このため、森林に沈着した放射性物質に由来するガンマ線の影響が懸念されている。また住宅周辺域に限っては除染対策として落葉除去などが行われた結果、空間線量率の低減効果が確認されている。しかし、除染されていない森林の落葉や林床物質の再移動などにより、放射性物質が流入・再堆積することも考えられ、長期間にわたって除染による線量率の低減効果が継続されるかどうかは検証を要する。このような背景から、森林域における放射性物質の動態の把握は重要な課題となっている。原発事故から6年以上経過したため、現在のおもな汚染物質は放射性セシウム（以後、放射性Cs）である。森林内における放射性Csのおもな蓄積箇所は落葉層も含めた土壌層となっているため、動態把握のためには、土壌中の放射性Cs分布とその変化の追跡が不可欠である。

これまでの土壌中放射性Cs測定は、土壌サンプルの分析（破壊調査）に頼ってきた。しかし、土壌中放射性Cs濃度のバラツキは大きいことが分かっており、少数点のサンプル分析調査だけでは空間分布だけでなく、その代表値を得ることも難しい。このため、放射性Cs分布の経時変化をモニタリングするためには、試料採取を伴わない非破壊的な手法による多点調査が必要であると考えた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、森林土壌に含まれる放射性Cs量とその分布を非破壊的に測定する技術を開発することである。ここでは、地表面（林床面）におけるガンマ線のエネルギースペクトル（ガンマ線スペクトル）の波形情報を用いて、放射性Cs濃度とその深度分布の推定を試みる。

地表面に沈着・蓄積した放射性Csは、次第に深度方向へ移動し、濃度の深度分布を持つようになる。この深度分布は土壌層を透過するガンマ線スペクトルの波形変化として、地表面からの測定で検出できる可能性があり、本研究でこれを検証する。

ガンマ線スペクトルを用いた放射性Csの定量分析は広く行われているが、通常はサンプル試料の分析が対象であり、また分析機器も大型のものが多く、本研究では森林内での現地測定が行えるように携帯型スペクトルサーベイメータを用いる。これによって測定されるガンマ線スペクトルから、放射性Csを定量し、スペクトル波形変化からCs濃度の深度分布が推定可能かどうかを確かめる。

今までの土壌中放射性Csのサンプル調査では、調査点数が限られること、分析時間を要すること、破壊調査であること（つまり同地点の再測定ができないこと）などの欠点

があった。しかし、本研究で提案するガンマ線スペクトルを利用した放射性Csの測定が可能となれば、土壌中放射性Csの分布調査に関して、現場でのサンプリングを伴わない非破壊測定が行え、さらに多点での調査が可能となるため、現在よりも広範囲で詳細な放射性Csの空間分布を把握することができる。また、定期的な固定点における調査により、分布状態の時間的な変化（放射性Cs動態）の追跡も行えることが期待できる。

3. 研究の方法

現地調査と室内実験を基にして、数値モデル化・数値解析を行い、測定技術の確立を目指し、以下の研究を実施した。

(1) 放射性Cs濃度とガンマ線量分布の測定

森林土壌中における放射性Cs濃度とガンマ線量の実態を把握するために現地調査を行った。福島県内の森林において、スクレーパープレートによる土壌採取を行いながら、深度毎のガンマ線量率とガンマ線スペクトルをNaIシンチレーション式のスペクトルサーベイメータによって測定した。土壌採取は5mm~1cm深毎に行い、採取試料の放射性Cs濃度を森林総合研究所内のゲルマニウム半導体検出器によって測定した。土壌採取によって掘り下がった各サンプリング面において、ガンマ線の線量率とスペクトルを測定し、それぞれの深度分布を得た（図1）。なお、ガンマ線測定の際、スペクトルサーベイメータのセンサー部には鉛コリメータを装着し、直下から放出されるガンマ線のみを検出できるようにした。



図1 ガンマ線スペクトル測定の様子（左）と土壌サンプリングとガンマ線スペクトル測定の様式図（右）

(2) 森林土壌を用いたガンマ線透過実験

ガンマ線が森林土壌を透過した際のガンマ線量率の減衰率やその特性を調べるために、原発事故前に採取した森林土壌を用いて、ガンマ線の透過実験を行った。ガンマ線源にはCs-137の標準線源を用い、土壌の厚みは0~10cmまで変化させた。実験では風乾させた土壌をアクリル容器に充填し、土壌下面よりガンマ線を照射し、上面においてNaIサーベイメータによってガンマ線量率を測定した。

(3) ガンマ線伝達モデルを用いた土壌中ガンマ線量率の鉛直分布の計算

林床面におけるガンマ線量率と放射性Csの深度分布との関係を明らかにするため、ガンマ線伝達モデルを用いて、土壌中における

ガンマ線量率分布の計算による再現を試みた。モデルには、上記の調査と実験により得られた結果を反映させ、計算値と実測値との比較を行った。

(4)モンテカルロ法によるガンマ線の土壤層透過に関する解析

土壤を透過したガンマ線のスペクトルと、土壤層厚の違いによるスペクトル波形の変化を調べるために、モンテカルロ法を用いたガンマ線の土壤層透過シミュレーションを行った。ここでの計算にはモンテカルロコード egs5 を使用した(Hirayama et al., 2005)。ここでは、現象を単純化するために、ガンマ線源を放射性 Cs-137 の点線源とした。また、ガンマ線の検出器は、広く用いられている NaI シンチレーション検出器とした。

(5)スペクトルサーベイメータによる土壤中放射性 Cs 濃度の非破壊測定

福島県内の森林で測定されたガンマ線スペクトルを用いて、単位面積当りに含まれる放射性 Cs 量の推定を行った。放射性 Cs は固有のエネルギーを持つガンマ線を放出する。これを利用し、エネルギーピーク計数による放射性 Cs-137 と放射性 Cs-134 の定量を行った。ガンマ線スペクトルの測定はスペクトルサーベイメータ (NaI シンチレーション検出器、TN-100、テクノエーピー) で行い、エネルギーピークとみなされる範囲 (関心領域 ROI) の決定は、尹ら(2012)の方法に従った。

4. 研究成果

(1)福島県林業研究センター多田野試験林 (福島県郡山市)において、2013年10月に一回目の土壤採取を行った結果、原発事故後、約2年半が経過していたが、放射性 Cs はまだ土壤表層に留まっていることが分かった (図2)。多田野試験林では、分解の進んだ落葉層 (F層)における放射性 Cs 濃度が Cs-134、Cs-137 とともに最も高く、深さとともに濃度が急減する傾向が得られた。深さが5cmを超えると、放射性 Cs 濃度がほぼゼロになるため、事故後に土壤に沈着したほぼ全ての放射性 Cs が限られた浅い層に集積していることになる。このときの土壤面毎のガンマ線量率 (土壤を上向きに進むガンマ線量率の深度分布)は、林床面において最も高い値を示し、Cs 濃度と同じく土壤の深さとともに急減していた。これらの結果から、ガンマ線量率の深度分布は、測定面より下層に含まれる放射性 Cs 量に依存していることが分かった。

2015年11月に二回目の土壤採取を近傍の地点にて行ったところ、時間の経過によって放射性 Cs 濃度が着実に減少していることを確認した (図3)。濃度分布に関しては、最大値の出現位置が不明瞭になっていた。放射性 Cs が時間の経過とともに土壤内に徐々に移動していると考えられるが、2013年と同様に、5cm以深の放射性 Cs 濃度は低かった。二回目

の調査は、一回目の2年後 (事故から4年半後)に行われたが、土壤浅層 (地表面~5cm深)での濃度分布の変化は見られたが、5cm以深への放射性 Cs の移動量は極めて少なく、放射性 Cs は依然として土壤浅層に留まり続けていることが明らかとなった。

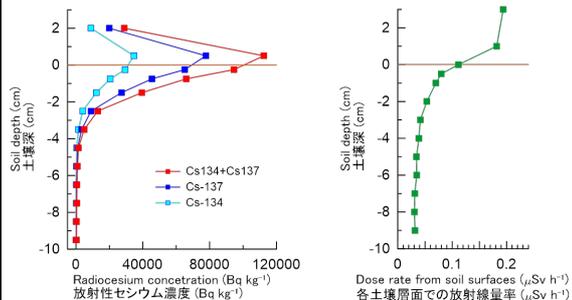


図2 土壤中放射性セシウム濃度と土壤面ガンマ線量率の深度分布

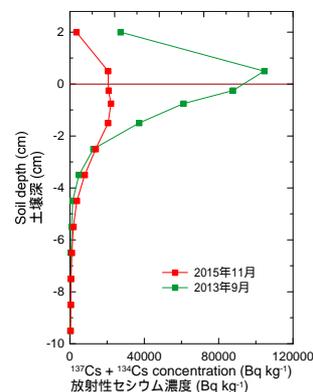


図3 土壤中放射性セシウム濃度の深度分布。2013年と2015年の比較

(2)ガンマ線が物質中に入射するとガンマ線光子と物質中の原子との相互作用により、物質を透過したガンマ線量率は、入射前の線量率よりも減衰する。減衰の程度は線減衰 (減弱) 係数として表され、物質の特性に依存した値となる。ここでは、森林土壤を透過するガンマ線の減衰割合を調べた。室内実験を行った結果、森林土壤を透過するガンマ線の割合は土壤の層厚の増加とともに減少した (図4)。透過割合は、層厚10cmで0.8であり、これは20%の減衰を表している。文献値で得た土壤の線減衰係数 (宮崎ら、2013) を用いて計算すると、実験よりも大きなガンマ線の減衰を示した。これは線減衰係数がガンマ線の散乱成分を考慮したものではないために生じた差異である。実際の現場において土壤からのガンマ線透過あるいは土壤のガンマ線遮蔽効果などを考える場合は、散乱成分の影響も含んだ本実験結果を用いた方がより良いと考える。散乱成分の効果はビルドアップ係数とよばれる補正係数を用いて表すことができる。実験で用いた森林土壤のビルドアップ係数は、土壤層厚1cmのときは約1.04、土壤層厚10cmのときは約1.35と推定された。なお、この係数値は、土質や水分含量によって変化するものである。

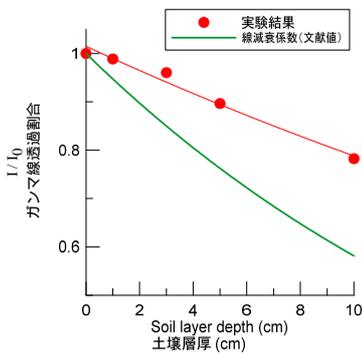


図4 土壤層厚とガンマ線透過割合の関係

(3)ガンマ線の土壤層透過実験の結果より、森林土壤中におけるガンマ線伝達モデルを作成した。このモデルでは、土壤を多層に分割し、その各層から上向きに放出されるガンマ線が林床に到達するまでに通過する土壤層の厚さに応じて減衰するように計算した。また、土壤を通過する際に生じる散乱成分の影響はビルドアップ係数で補正した。林床面におけるガンマ線量率は、各層から放出されるガンマ線量率の合計とした。

このモデルに、2013年10月の現地調査で得た放射性Cs濃度の分布を与え、土壤面でのガンマ線量率の深度分布を計算した(図5)。計算値と実測値は概ね一致しており、このモデルによって、放射性Cs分布を与えることで、土壤中および林床面のガンマ線量率分布

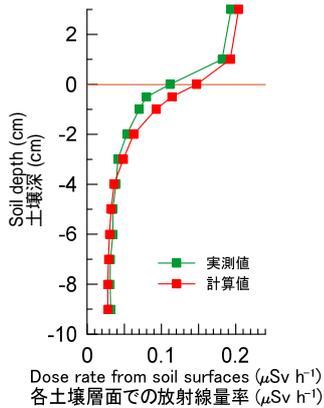


図5 ガンマ線伝達モデルによる土壤面放射線量率の計算(実測値との比較)

の傾向を再現できることが分かった。

次に、放射性Cs濃度の深度分布の違いが、林床面におけるガンマ線量率に及ぼす影響をモデル計算によって調べた。このとき、土壤に含まれる放射性Csの含有総量(単位面積当りに含まれる放射性Csの量)は同量とした。図6は与えた濃度分布(仮想の分布)とそれによるガンマ線量率分布の計算結果を示したものである(土壤深10cmまで)。濃度分布は放射性Cs濃度の最大値が下層へシフトするように与えた。なお、濃度分布0は、実際に福島県川俣町山木屋で得られたものであり、これを基に濃度分布1~3を作成し、モデルに与えた。

ガンマ線量率の計算結果は、与えられた放射性Cs濃度の分布によって大きく変化し、

土壤下層の放射性Cs濃度が上昇すると土壤中のガンマ線量率が増加する傾向を示した。しかし、放射性Csの濃度分布が変化しても、その含有総量が変わらなければ、林床面におけるガンマ線量率はあまり変わらない結果となった。今回の計算領域は土壤深10cmまでだが、このぐらいの土壤深の範囲であれば、林床面でのガンマ線量率に及ぼす、線源となる放射性Csの深度分布の影響は少なく、単位面積当りに含まれる放射性Cs量(つまり沈着量)で決まるといえる。

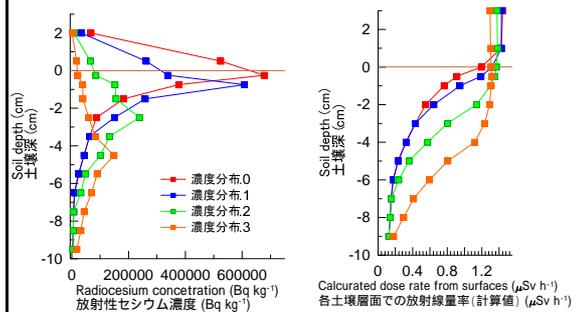


図6 放射性Cs濃度分布の変化とガンマ線量率との関係

(4)次に林床面におけるガンマ線スペクトルに及ぼす放射性Cs濃度の深度分布の影響をモンテカルロ法(egs5)に基づいたガンマ線の土壤透過シミュレーションによって調べた。図7に、土壤層厚を1cm~10cmまで変化させ、Cs-137からのガンマ線を透過させたときに、NaIシンチレーション検出器によって得られるガンマ線スペクトルの計算結果を示した。より厚い土壤層を透過したガンマ線は、相互作用(光電効果やコンプトン散乱)の結果、低いエネルギー成分が増加すると予想していたが、計算の結果、NaI検出器で検知されるガンマ線スペクトルは、土壤層内のガンマ線源の位置(深さ)を数cm程度変化させても、その波形に明らかな変化は現れなかった。

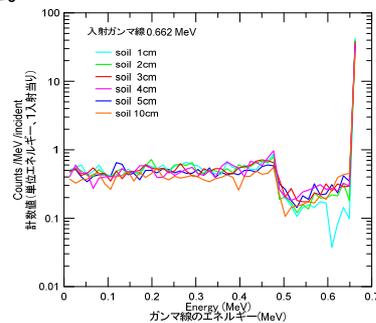


図7 土壤を透過したガンマ線のエネルギースペクトルの計算結果

本研究はスペクトル波形の変化から、土壤中放射性Cs濃度の深度分布を推定することを計画していた。しかし、実際の森林土壤中での放射性Csの移動速度は遅く、濃度分布の変化は土壤の浅層に限られていた。シミュレーション結果は、このような実際の放射性Cs分布の変化が、検知されるガンマ線スペク

トルの波形変化として現れないことを示しており、現時点では、スペクトル波形の情報から放射性 Cs 濃度の深度分布を捉えることは難しいことが分かった。

(5)ガンマ線スペクトルに現れる放射性 Cs のエネルギーピークから、森林土壌の放射性 Cs 沈着量（単位面積当りの放射能濃度、 $Bq\ m^{-2}$ ）の推定を試みた。まず、2013年に複数の現地調査で得られたデータをもとに、ピーク計数と沈着量の関係を求めた。Cs-137とCs-134に対応するピークの位置は、ガンマ線スペクトルの平滑化2次微分によるピーク判定によって同定することができた。尹ら（2012）の方法に従ってピーク計数値を算出し、放射性 Cs の沈着量と比較した結果、Cs-137、Cs-134ともに良い直線関係が得られた。この関係式を検量線として、2013年と2015年の放射性 Cs 沈着量をガンマ線スペクトルより推定した結果を図8に示した。両年において、推定値と実測値の差は小さかったため、スペクトルサーベイメータによる測定によって放射性 Cs 沈着量を概ね推定できることが分かった。また、この方法によりCs-137とCs-134を弁別できることも分かった。ただし推定値の誤差は、相対誤差で20%程度であったことから、局所的な放射性 Cs 分布や定点での経年変化などの測定に用いるためには、誤差をもっと小さくする必要がある。

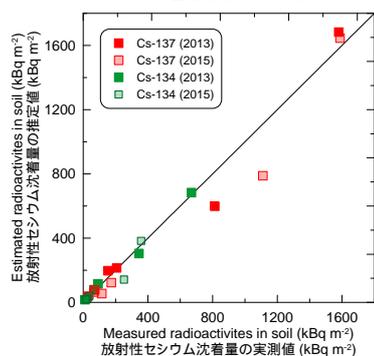


図8 森林土壌の放射性 Cs 沈着量の実測値と推定値の比較

本研究では、目的であった森林土壌に含まれる放射性 Cs の深度分布を非破壊的に測定する技術の開発を期間内に達成するには至らなかった。放射性 Cs が今もなお土壌の浅層に滞留し続けているため、その分布の変化を本研究の提案手法では捉えきれなかったことが主な原因として挙げられる。しかし、森林土壌中における放射性 Cs 分布の実態や、それに伴うガンマ線量率の形成に関する多くの知見を得ることができた。

<引用文献>

Hirayama et al., The egs5 code system, KEK Report, 2005-8, 2005

尹ら、NaI (TI) スペクトロメータによるセシウム 134 および 137 を弁別した定量方法、土肥誌、83、2012、296-300

宮崎ら、放射能除染の土壌科学、日本学

術協力財団、pp.176、2013

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計0件)

〔学会発表〕(計4件)

安田幸生、大谷義一、スペクトルサーベイメータによる土壌中放射性セシウム濃度の非破壊測定の試み、日本農業気象学会2017年全国大会、2017年3月27~3月30日、北里大学十和田キャンパス(青森県十和田市)

安田幸生、大谷義一、森林内除染処理から4年経過後の土壌中放射性セシウム濃度の鉛直分布、東北森林科学会第21回大会、2016年8月25日~8月26日、岩手大学農学部(岩手県盛岡市)

安田幸生、大谷義一、蛭田利秀、渡部秀行、橋内雅敏、森林土壌中における放射性物質濃度と放射線量率の深度分布、東北森林科学会第19回大会、2014年9月1日~9月2日、コラッセふくしま(福島県福島市)

大谷義一、安田幸生、坪山良夫、立木樹冠の線減衰係数の測定、東北森林科学会第19回大会、2014年9月1日~9月2日、コラッセふくしま(福島県福島市)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

6. 研究組織

(1)研究代表者

安田 幸生 (YASUDA, Yukio)

国立研究開発法人森林総合研究所・

森林防災研究領域・主任研究員

研究者番号：50353892

(2)連携研究者

大谷 義一 (OHTANI, Yoshikazu)

国立研究開発法人森林総合研究所・

森林防災研究領域・研究専門員

研究者番号：90353614

坪山 良夫 (TSUBOYAMA, Yoshio)

国立研究開発法人森林総合研究所・

研究ディレクター・国土保全・水資源研究担当

研究者番号：10353773

(3)研究協力者

蛭田 利秀 (HIRUTA, Toshihide)

福島県・農林水産部森林整備課・主査