総 説

ガンマ線スペクトル解析におけるピーク探査と面積計算実態と 今後のスペクトル解析のあるべき姿

日本アイソトープ協会理工学部会次世代スペクトル解析専門委員会^{†, #}

113–8941 東京都文京区本駒込2–28–45

[†] r706@ipc.fukushima-u.ac.jp

「ゲルマニウム半導体検出器等で使用されているスペクトル解析の現状をレビューし、問題点や改善すべき点を抽出するとともに、国内国外での新しい研究成果等をレビューする」ことを目的とする次世代スペクトル解析専門委員会での議論から、サム効果をどのように補正するか、ピーク探査のあるべき姿、測定スペクトルのみから放射能の絶対測定が可能になるかもしれない可能性についての実験と議論、参照スペクトルの活用等を紹介する。

Key Words: peak search, area calculation, gamma-ray spectrometry

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所事故（以下、東電福島第一事故とする）で環境中に放出された人工放射性核種の中の主要な核種の一つである¹³⁴Csは、 β^- 壊変後にカスケード関係にあるガンマ線を放出する核種である。したがって、測定したガンマ線スペクトルのピーク解析後にサム効果を補正して定量を行う必要があるが、事故直後における政府のモニタリングデータや

各大学・研究機関が公表したデータには、正しく補正がされていない測定値が多々みられ、そのほとんどは¹³⁴Csを過小評価していた。東電福島第一事故に由来する¹³⁴Csと¹³⁷Csの放射能比は炉心内総量の推定値から導かれる値¹⁾や正しくサム効果を補正した場合には限りなく1.00となるべき（例：海水中で多数試料の統計値 $0.99 \pm 0.03^{2)}$ 、EUでの大気中の値はほぼ¹³⁾）であるが、事故直後に報告された放射能比には0.8程度あるいはそれ以下のものも多々見られた。正しい補正が行われなかった原因はいくつか考えられるが、通常環境放射能測定では半減期が2.07年の¹³⁴Csは観測されないのサム効果に対する認識が希薄であることや、スペクトル解析ソフトがサム効果補正に自動では対応していないこと、あるいは近年のゲルマニウム半導体検出器の体積や効率の増加により、サム効果の寄与が大きくなっているにも関わらずそれが認識されていないことなどが考えられる。あるゲルマニウム半導体検出器のメーカーは、2011年9月にwebページ上でサム効果補正についての注意を喚起する⁴⁾ことも行っていた。東電福島第一事故後の日本政府の海洋モニタリングデータでは、分析を受け持った民間分析機

[#]委員長 青山 道夫 福島大学環境放射能研究所
 委員 秋山 正和 (公財)日本分析センター
 浅井 雅人 日本原子力研究開発機構
 阿部 敬朗
 セイコー・イーザーアンドジー(株)
 佐藤 泰 産業技術総合研究所
 高野 直人
 (株)スカラベ・コーポレーション
 高宮 幸一 京都大学原子炉実験所
 濱島 靖典
 金沢大学環日本海域環境研究センター
 武藤 儀一 キャンベラジャパン(株)
 山田 隆志 (株)アドフューテック
 石津 秀剛
 (公社)日本アイソトープ協会

関がサム効果補正の誤りに気づき値を修正し、当時の文部科学省のweb上で複数回にわたって値を訂正するケースもあった。また、文部科学省の海洋環境放射能調査検討会（第2回）において、「セシウムについては、134と137の比は、事故時、放出された比はほぼ1対1ですから、それに戻すことによって、そのデータが正しいかどうかという検証ができると思います。その検証をする必要があるのは、要するに、セシウム-134を測る時の測定値にサム効果などがありますので、比がおかしければ、その測定法に問題があるかもしれない。測定法に問題がなければ、ソース、要するに起源に何かある可能性があるということ、そういった意味で濃度だけじゃなくて比についても検証していただきたいということだと思います。」との議論がされている⁵⁾。この議論は、サム効果補正の重要性や後述するような国際社会に対する誤った情報発信の危惧を抱いていた専門家が存在していたことを示している。しかし日本のデータ全体では、依然としてサム効果補正について十分に考慮されているとは言い難い状況である。また国内における共同実験方式で値が付けられた土壌標準物質の ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能比は、共同実験に参加した各ラボの報告値は 0.89 ± 0.04 から 1.05 ± 0.03 の範囲を示し、個々のラボが示した分析の不確かさを超えている⁶⁾。これらのサム効果が正しく補正されていない ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能比をもつデータが公表されていることが、単に放射能計測の技術的水準が低いということにとどまらず、東電福島第一事故では使用済燃料プールからの放出があったかもしれない⁷⁾との誤った推測を支持する情報を国際社会に発信してしまっているという側面があることも忘れてはならない。

ゲルマニウム半導体検出器のガンマ線スペクトル解析におけるピーク探査やピーク面積の求め方については、文部科学省マニュアル放射能測定法シリーズ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」⁸⁾に詳

細に記載されている。しかし、現実には記載された通りの方法でゲルマニウム半導体検出器のガンマ線スペクトル解析を行うには相当高度の知識と経験が必要である。事実、各種のガンマ線スペクトル解析ソフトの国際共同実験を行い、参照スペクトルを配布して、同定されるピークの数やその面積を比べると、おおむね一致することもあれば大きく異なる結果を出している場合もある⁹⁾。

これらの状況を踏まえて、日本アイソトープ協会理工学部会次世代スペクトル解析専門委員会は、「ゲルマニウム半導体検出器およびシンチレーション検出器で使用されているガンマ線スペクトル解析の現状をレビューし、問題点や改善すべき点を抽出する。スペクトル解析技術について、日本国内および国外での新しい研究成果や技術開発をレビューする」ことを目的として2015年4月に発足した。当面はゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線測定におけるスペクトル解析の現状をレビューし、問題点や改善すべき点を抽出することに集中して議論している。この議論においては、環境分析のような微弱な放射能測定から、原子力施設事故時や中性子放射化分析のような短寿命の核種を多く含むあるいは強い放射能を持つ試料の測定までを含んでいる。

本稿では、当委員会での議論を紹介し、読者各位の議論を期待する。

2. ^{134}Cs の国際比較の結果とどのようにサム効果を補正するかの議論

各国、地域の計量標準機関において計量標準が維持供給されている¹⁰⁾が、計量標準機関同士の計量標準の斉一性は国際比較により確認されている。 ^{134}Cs の放射能の国際比較については、以下のようにいくつかの枠組みにより行われている。ひとつの枠組みとして、SIR (The International Reference System for activity measurements of γ -ray emitting nuclides)¹¹⁾を用いたものがある。これは、各計量標準機関がそれ

ぞれ放射能溶液を用意し、あらかじめ放射能値 A を付与した上で国際度量衡局に溶液を送付して比較を行うものである。SIR では、基準となるラジウム線源と送付された溶液を国際度量衡局内の同一の井戸型電離箱で測定して、それぞれの電離電流 (I_{Ra} , I_A) を取得し、下記(1)の計算式で得られた等価放射能 (A_e) を比較することが行われている。

$$A_e = A \frac{I_{Ra}}{I_A} \quad (1)$$

さらに、国際度量衡委員会放射線諮問委員会第二部会において国際比較が企画され、幹事機関が放射能溶液を作製し、複数の機関に送付して、それぞれの機関で測定された放射能を比較することも行われている。また、地域計量組織においても国際比較が企画され、ある地域内で放射能溶液の放射能測定結果が比較されることもある。これらの国際比較で主に用いられる放射能測定装置は $4\pi\beta\gamma$ 同時測定装置¹²⁾ であり、これによる放射能測定結果はサム効果の影響を受けない。これらの国際比較の結果は国際度量衡局のホームページ上で公表されている¹³⁾。公表の内容から、 ^{134}Cs の放射能については測定の不確かさの範囲でほぼ一致しており、 ^{134}Cs の放射能の国際的斉一性は日本も含めておおむね確保されている状況である。

したがって、日本国内で東電福島第一事故後に ^{134}Cs のサム効果が補正できていないようなデータが多々見られたのは、度量衡の世界の問題ではなく、測定に携わるユーザー側の技術水準とそれを支えるメーカーのサポートの問題と考えられる。

現在、日本国内のほとんどのユーザーは、サム効果の補正をメーカーが作成したスペクトル解析ソフトに委ねているのが実情である。解析ソフト自体は文科省マニュアル⁸⁾ に準拠してよく作られており^{14, 15)}、サム効果の補正だけでなく、体積線源に対する自己吸収の補正なども、設定さえ適切に行っておけば自動的に計

算される。サム効果の補正には、測定条件（線源・検出器間距離、線源形状、材質、密度等）に対応したガンマ線検出器のピーク検出効率ならびに全検出効率の値（エネルギー依存曲線）と、対象核種の核データならびに崩壊図式から構築される各ガンマ線に対するサム効果補正式が必要である。後者の核データならびにサム効果補正式は解析ソフトにあらかじめ組み込まれており、全検出効率はデフォルトではピーク・トータル比の経験式⁸⁾ を用いてピーク検出効率から計算される。したがって、測定条件に対応したピーク検出効率曲線さえ適切に入力しておけば、サム効果は適切に補正されるはずである。ピーク検出効率曲線は、通常、9核種混合標準ガンマ線源などを測定して作成される。解析ソフトには、測定した標準線源のスペクトルからピーク検出効率曲線を作成するルーチンも組み込まれており、これらの手順を適切に行っていればサム効果の補正を大きく間違えることはないと考えられる。

秋山委員は、公益財団法人日本分析センターと国内の地方自治体等の間で実施されている分析比較試料による機器校正業務の評価結果を示し、ほとんどの地方自治体等の ^{134}Cs の結果が正しいことを報告した（図1）。なお、全ての地方自治体等は、 ^{134}Cs のサム効果補正を正しく行っていた。

このように、サム効果の補正を適切に行える環境は、解析ソフトの普及によって日本国内ではほぼ整っていると判断できる。また、そのような解析ソフトを使わなくても、様々な工夫によりサム効果の補正を回避し、正確な分析をすることはできる。例えば、測定試料と同じ形状の ^{134}Cs 標準線源を準備し比較測定すれば、サム効果はキャンセルされ、ガンマ線計数率の比較だけで正確な分析が可能である。また、線源・検出器間距離を十分離して測定すれば、サム効果の影響は小さくなり、それに起因する誤差も小さくできる。

一方、解析ソフトと言えども万能ではなく、

図1 機器校正業務における ^{134}Cs の評価結果 (Color online)

サム効果の補正が大きい条件ではその補正係数の誤差も大きくなるため、注意が必要である。相対検出効率30%のゲルマニウム半導体検出器でU8容器試料を密着で測定したとき、 ^{134}Cs の主要なガンマ線に対するサム効果の補正係数はおおよそ1.1程度になる¹⁶⁾。これはサム効果によってピーク計数率が10%減少することを意味する。補正係数の計算値の誤差は、主に全検出効率（ピーク・トータル比）に起因するが、全検出効率を精度良く決定することは容易でなく、同じ検出器でも測定試料の形状（点線源か体積線源か、など）や遮蔽内部の空間の取り方によって数10%程度の違いは生じ得る。したがって、解析ソフトにデフォルトで組み込まれたピーク・トータル比の経験式も数10%程度の誤差を含むと考えた方がよい。仮に全検出効率の誤差を20%とすると、補正係数が1.1のときは約2%の誤差しか係数に与えないが、点線源や面線源を検出器密着で測定すると補正係数は1.4程度になり¹⁶⁾、約8%の誤差を与える。さらに、井戸型ゲルマニウム半導体検出器の場合は補正係数が2あるいは2.5程度にもなるため^{17, 18)}、このような汎用的な補正計算を適用することは避けた方がよく、井戸型ゲルマニウム半導体検出器に特化した特別な解析方法を適用すべきである。また、体積線源に対しても、多くの解析ソフトに組み込まれたサム

補正計算は若干の近似を行っているため¹⁴⁻¹⁶⁾、数%以下の精度を必要とする場合には注意が必要である。

しかしながら、サム効果の補正をまったく行わないと10%以上の過小評価を生じる場合でも、補正さえ行えば、その補正方法が簡易的あるいは極めて詳細かつ正確なものであるかに係わらず数%以内で比較可能性が確保されるという事実は重要である。解析ソフトを適切に使用する知識さえあれば、 ^{134}Cs の分析値を大きく過小評価することはなかったのではないかと思われる。一方で、ガンマ線分析における日本国内の技術水準の向上は、ユーザー教育の充実だけでは限界があるのも事実であり、十分な専門知識を持たないユーザーでも間違える可能性の少ない、新しいスペクトル解析方法の開発も望まれる。第3章、第4章では、そのような観点からピークサーチと放射能絶対測定の問題について議論している。

3. スペクトル解析におけるピーク探索についての議論

多くのプログラムのピーク探索には平滑化二次微分法が採用されており¹⁹⁾、文科省指針や緊急時用の文科省指針ではその手順が詳細に記載されている^{20, 21)}。ほとんどの場合はこの方法で十分な結果が得られるが、大きなピーク

図2 フィルタ幅=4.0, サーチ感度=2.5による二次微分値（赤線）としきい値（緑線）。図中の青○が探索できないピーク近傍の二次微分の挙動（Color online）

の裾や肩のピークについてはピーク検出できないケースが見られる。この現象は、同手法をNaI(Tl)シンチレーション検出器のスペクトル処理に適用した福島県住民のWBC測定でも課題とされていた点でもあるが²²⁾、特定チャンネルの二次微分計算に周辺チャンネルの計数を使用する、統計変動を平滑化する原理によって微分値が歪むため、文科省指針の手順に従ってもピーク検出は難しく、この例を図2に示す。

裾や肩のピーク検出には周辺ピークからの影響を受けない方法として、以下の方法が挙げられる。

- ① 利用者の目視による未発見ピーク探索^{14, 15, 23)}
- ② カウントデータと適合関数の残差に着目した未発見ピーク探索^{15, 23)} —Residual Search
- ③ 核種同定結果を利用した未発見ピーク探索²⁴⁾
- ④ 利用者の定義データによる未発見ピーク探索^{14, 23)}

これらの手順はAppendix-Iに譲るが、何れの方法を用いる場合も偽ピークを生成しないことに注意を払わねばならない。偽ピーク自身の最終的な放射能換算値が否検出になるとしても、偽ピークを避けるための本来なら不要な複合ピーク

図3 サーチ感度=2.5で探索したピーク ネット面積 $= -34.8 \pm 60.3$ (Color online)

ク処理が他のピークのネット面積に影響する可能性があるからである。なお、偽ピークの生成ケースは採用する方法ごとに考えられるため、Appendix-Iではその例や対策についても記した。

ただし、偽ピーク自体は通常の平滑化二次微分法でも発生し得る。これは平滑化二次微分法がカウントデータの変化だけに着目しているためである。多くの利用者が微弱ピークもピーク検出するために検出感度を高めに設定しており、また現状において、日本で広く普及しているプログラムには偽ピーク判断や除去機能が実装されていない、または十分ではないので、図3に示すような結果が得られてしまう。通常の平滑化二次微分法による偽ピークも他ピークのネット面積に影響を及ぼす可能性があるため、検出ピーク全てに対して真のピークか否かを判断し、偽ピークならば除去することが望ましい。

ピークか否かの判断は、「第一種の過誤（無いものを在るとする過誤）」の危険率と危険率に対応するしきい値（棄却限界）を決定し、着目ピークのネット面積が棄却限界未満なら有意でない、つまりバックグラウンドと区別できない偽ピークとする、といった手順で行われる²⁵⁾。一般に危険率は5%と取られることが多く、ピーク下のバックグラウンドの計数を $B \pm \sigma_B$ とすれば棄却限界は下記式(2)である。

$$\text{棄却限界 (危険率} = 5\%) = 1.645\sqrt{(B + \sigma_B^2)} \quad (2)$$

なお危険率は必ず5%にすべきというものではなく、第一種の過誤を容認して、より多くのピークを拾う意図ならば危険率を違う値（例えば10%）に設定することも可能で、この場合、棄却限界は下記式(3)となる。

$$\text{棄却限界 (危険率} = 10\%) = 1.282\sqrt{(B + \sigma_B^2)} \quad (3)$$

ただし棄却限界による偽ピークか否かの判断は、ネット面積や棄却限界の計算手順が適切なことが前提である。ピークが林立またはピーク周辺のバックグラウンドが階段状に変化すると、バックグラウンドの変化を一次式（=文科省指針掲載の計算式）とする仮定が成立し難い。この例を図4に示すが、このケースで文科省指針掲載の計算式を適用するとネット面積に重大な過小評価が発生してしまうため、例えば同じく図4に示した「区分直線によるバックグラウンド」等による対策や、階段状に変化するバックグラウンド関数を使用した関数適合を用いなければ、ピーク除去判断が不適なだけでなく、仮にピークを除去しなくとも放射能計算結果が「第二種の過誤（在るものを無いとする過誤）」になってしまう。

ここまで記したスペクトル処理は、

- ・裾や肩に存在する、平滑化二次微分法によるピーク探査ではピーク検出し難いピークを探査する
- ・棄却限界による判断で偽ピークを検出し、これを除去する

によってピーク数が増減するため、ピーク領域設定やネット面積計算、偽ピーク判断と除去の繰り返しが必要であり、スペクトル処理は次のような手順となる。

1. 平滑化二次微分法によるピーク探査
2. ピーク領域やベースライン領域の設定
3. ネット面積計算
4. 偽ピーク検出とその除去
分岐：偽ピーク検出の場合、それらを除

図4 緑線：1次式で表現したバックグラウンド変化 ネット面積 $= -9365.3 \pm 539.3$ count 棄却限界(5%) $= 901.3$ count 青線：区分直線で表現したバックグラウンド変化 ネット面積 $= 1254.2 \pm 394.8$ count 棄却限界(5%) $= 646.8$ count (Color online)

去して2.に戻る。偽ピークを検出しなくなったら5.に進む

5. 裾や肩の未発見ピークの探査

分岐：ピーク検出したら2.に戻る。ピーク検出がなければ6.に進む

6. 核種同定

6以降にも Appendix-I に示す方法を併用してさらに詳細なピーク検出が可能であるが、その場合も2~4による再計算や検証等の偽ピークを生成しない対策が重要となる。

4. 測定スペクトルのみから放射能や検出効率を求める方法

ガンマ線スペクトロメトリーにおける放射能の定量では、通常、測定試料や測定条件に対応した標準線源、検出器の検出効率曲線が必要である。さらに、 ^{134}Cs のようなカスケードガンマ線を放出する核種の場合はサム効果の補正が必要である。多くの分析機関等では、標準線源を測定して検出効率曲線を作成し、解析ソフトを用いてサム効果を補正している。しかし、標準線源は高価であり、必ずしも測定条件に対応した線源を用意できるとは限らない。また、

サム効果の補正も解析ソフトを正しく使いこなせないと誤った結果を報告する可能性がある。このように正確な定量の障害となるサム効果であるが、一方で、サム効果を利用することで標準線源も検出効率も必要とせず、放射能の絶対測定ができる方法が古くから知られている²⁶⁾。本章では、それらの中で、最近新たに研究されている汎用性の高い方法について2つ紹介する。

ひとつは、名古屋大学の緒方氏らが考案した「簡略化サムピーク法」である²⁷⁾。サム効果を利用した放射能の絶対測定法の一つであるサムピーク法は、線源の放射能 N_0 を次式で計算する²⁶⁾。

$$N_0 = \left(\frac{N_1 N_2}{N_{12}} + N_t \right) \bar{w} \quad (4)$$

ここで、 N_1 、 N_2 はそれぞれカスケード関係にある2本のガンマ線 γ_1 、 γ_2 のピーク計数率、 N_{12} は γ_1 と γ_2 のサムピークの計数率、 N_t は γ_1 と γ_2 に対する全計数率、 $\bar{w}$ は、 γ_1 と γ_2 の角相関に起因する係数である。この式では全計数率が必要なため、他の核種あるいは他のガンマ線が混在する試料およびスペクトルへの適用は難しい。しかし、 N_t は線源-検出器間 (SD) 距離が広がるにつれて減少する。そこで、SD距離を変えて測定し、次式で表す N'_0 をプロットすると、距離が増えるに従って N'_0 は N_0 に収斂する。

$$N'_0 = \frac{N_1 N_2}{N_{12}} \bar{w} \quad (5)$$

さらに、 N_1 を横軸に N'_0 を縦軸にとってプロットするとより簡便に収斂値を求めることができる。緒方氏らは、このやり方で放射能を導出する方法を簡略化サムピーク法 (Modified sum-peak method) と名付けた。本法は、一般的なガンマ線スペクトロメトリ-検出器1台で測定可能であり、標準線源も検出効率もサム効果補正も必要とせず、簡単な計算式で放射能を算定することができる、汎用性の高い有用な方法で

ある。

サムピーク法は、

$$N_{12} = N_0 \varepsilon_1^p \varepsilon_2^p \quad (6)$$

(ε_1^p と ε_2^p は γ_1 と γ_2 に対するピーク検出効率、 $\bar{w}$ は簡単にするため1とした) であることを利用して、 N_1 と N_2 との比 $N_1 N_2 / N_{12}$ をとって ε_1^p と ε_2^p を消去し、 N_0 を求める方法であるが、実際には N_1 と N_2 はサム効果の影響により

$$N_1 = N_0 \varepsilon_1^p (1 - \varepsilon_2') \quad (7)$$

$$N_2 = N_0 \varepsilon_2^p (1 - \varepsilon_1') \quad (8)$$

となり、

$$N_1 N_2 / N_{12} = N_0 (1 - \varepsilon_1') (1 - \varepsilon_2') \quad (9)$$

となつて、全検出効率 ε_1' 、 ε_2' の項を消去できない。式(4)と式(9)は同じことを表しており、式(4)中の全計数率 $N_t = N_0 (\varepsilon_1' + \varepsilon_2' - \varepsilon_1' \varepsilon_2')$ がまさにこの全検出効率に関係した項である。簡略化サムピーク法では、この消去できない $(1 - \varepsilon_1')$ $(1 - \varepsilon_2')$ の項を1に近づけるためSD距離を離し ε_1' 、 ε_2' を小さくしている。

一方、全検出効率 ε_1' 、 ε_2' を消去せずに式(6)(7)(8)を眺めてみると、観測量であるピーク計数率 (サムピーク計数率も含む) とそれに対応する式が3個あるのに対して、未知数は N_0 も含めて5個であり、このような場合は方程式を解いて未知数を求めることはできない。ところが、例えば⁹²Tcのように4本のガンマ線が連続的に放出される崩壊図式の場合、未知数は N_0 と4本のガンマ線 ($i=1 \sim 4$) に対する ε_i^p と ε_i' で合計9個あるのに対し、観測量 (およびピーク計数率の式) は N_1 、 N_2 、 N_3 、 N_4 、 N_{12} 、 N_{13} 、 N_{14} 、 N_{23} 、 N_{24} 、 N_{34} 、 N_{123} 、 N_{124} 、 N_{134} 、 N_{234} 、 N_{1234} の15個となる。3本以上のガンマ線によるサムピークを除いても10個となり、未知数の数よりも多い。このような場合には、未知数を適合パラメータとして最尤法 (あるいは最小自乗法) を適用し、すべての未知数を同時に適合決定することができる。さらに、ピーク検出効率や全検

出効率の値をエネルギーの関数として与えれば、未知数はさらに少なくなり、適合性も格段に向上する。

この方法を使えば、1台の検出器で、標準線源も検出効率も使用せず、1個の分析試料を任意の測定位置で1回測定するだけで、試料に含まれる放射能の絶対値とその測定位置における検出器のピーク検出効率曲線、全検出効率曲線を一度に決定することができる。究極的には、検出器の大きさも測定位置も、検出器と測定試料との間にどんな吸収材があるかといった条件も、もちろんピーク検出効率も全検出効率も何も知らなくても、観測されたガンマ線スペクトル1枚だけあれば、放射能の定量と検出効率曲線の導出が可能である。

この方法はBlaauwによって最初に提案され、広いエネルギー範囲で多数のカスケードガンマ線を放出する ^{82}Br のガンマ線スペクトルの解析に適用され、その有効性が確認された²⁸⁾。この方法は、線源・検出器間距離が近くても遠くても同じように適用でき、井戸型ゲルマニウム半導体検出器で測定されたスペクトルにも問題なく適用可能である。特に、井戸型ゲルマニウム半導体検出器を用いた放射能の定量と検出効率曲線の作成においては、最も有効な手段となる可能性がある。Blaauwらは、 ^{82}Br だけでなく、カスケードガンマ線を放出する核種を複数含む混合ガンマ線源や体積線源に対してもこの方法を適用し、その有効性を検証している^{29, 30)}。体積線源に対しては、サム効果の補正の場合と同様、若干の近似が入るため、放射能の定量においては若干の過小評価となることがあるが^{29, 30)}、自己吸収の影響の小さい高エネルギーガンマ線を主に放出する ^{134}Cs への適用では、それほど大きな影響は現れない。

高野委員らは最近、どのようなカスケードパターンを示す崩壊図式に対しても汎用的に適用できるアルゴリズムを構築し³¹⁾ (Appendix-II)、井戸型ゲルマニウム半導体検出器で測定された ^{134}Cs のガンマ線スペクトルの解析に適用し、

図5 縦軸はピーク面積の計算値を測定値で除した値である。●は本方法による計算結果で、○はサムコインシデンスを無視した計算である (Color online)

図5のような良好な結果を得た。

当委員会では、この方法を用いて、放射能が既知あるいは未知の ^{134}Cs や $^{110\text{m}}\text{Ag}$ を様々な測定条件で測定し、測定スペクトルのみから放射能の絶対値や検出効率曲線を正確に求めることができるか検証する実験を、高野委員、濱島委員、石津委員らの協力により実施することを計画している。また実験に必要な線源を新たに作成することを日本アイソトープ協会に依頼している。新しく準備する線源は4種類の ^{134}Cs と ^{137}Cs の混合線源であり、その詳細は以下のとおりである。

- 1) 井戸型ゲルマニウム半導体検出器用の点線源
- 2) 井戸型ゲルマニウム半導体検出器用の体積線源
- 3) 同軸型ゲルマニウム半導体検出器用の点線源
- 4) 同軸型ゲルマニウム半導体検出器用の体積線源 (U8容器高さ50mm)

5. 参照スペクトルの収集と比較実験、公表

当委員会として参照スペクトルの収集を開始している。すでにIAEAから国際比較実験を行った際に公表されているものとして、IAEA 1999 spectrum³²⁾ およびIAEA 2002 testset³³⁾ があ

り、また複数の大学や研究所の研究者の協力を得て、1986年4月チェルノブイル事故直後に日本国内で採取された大気浮遊塵のスペクトルおよび2011年3月東電福島第一事故直後に日本国内で採取された土壌や大気浮遊塵のスペクトル等を収集し、ガンマ線スペクトル解析ソフトの比較実験の準備を行っている。この比較実験の目的の一つはピークが多数あるような原子力施設事故直後の測定スペクトルについて、第3章で議論したガンマ線スペクトル解析ソフトの違いによるピーク探査結果の違いをみることである。また、収集したスペクトルから探査された個々のピークに同定された核種を重ねて表示し、公表することは、実際に環境測定に携わっている諸氏や自らガンマ線スペクトル解析ソフトを開発使用している諸氏の役に立つものであろう。

6. 放射化分析におけるスペクトル解析

放射化分析法は試料中の元素を定量する手法のひとつであり、化学、物理学、材料工学、環境学、医学、薬学、生物学などの様々な分野で、多くの研究者に利用されている。放射化分析法には、広いダイナミックレンジで同時に複数の元素の分析ができることや、試料の前処理がほとんど不要であることなどの利点がある。一方、適切な前処理や校正試料の調製さえすれば、ほぼ自動的に元素の定量結果が出力される分析機器を用いた手法と異なり、放射化した試料のガンマ線測定で得られるスペクトルの解析を自ら行う必要があることも特徴のひとつであり、スペクトル解析の方法によっては誤った定量値が得られうる。放射化分析法を分析手段として用いている研究分野において、ガンマ線のスペクトル解析の精度は元素の分析精度に直接影響を及ぼすため、他の分野と同様にいかに適切な解析を行うかどうかは非常に重要である。しかしながら、前述のように放射化分析法は様々な分野で利用されており、そのすべての研究者がガンマ線スペクトルの解析に精通してい

るわけではないため、必ずしも適切な解析処理が行われているとは言えないのが現状である。

放射化分析を用いた定量法のひとつに、試料のガンマ線スペクトルの解析結果に加えて検出器の特性や測定条件に関するデータを用いることで、試料中に存在する核種の定量を直接行うk0標準化法という手法がある。一方で、より簡便な手法として広く用いられている比較法では、比較標準試料を測定試料と同条件で照射し、同条件でのガンマ線測定によって得られる光電ピークの面積比から定量を行う。後者を用いた多くの場合においては定量する対象元素は限られており、測定条件の再現性が保証されればサマ効果の影響も無視できるため、十分な統計量での測定ができれば定量結果に含まれる誤差は十分に小さくなる。しかし、分析対象外である元素の放射化の結果として観測されるピークについては全く解析を行わないケースもあり、分析対象外の元素の放射化による生成物が解析対象としている光電ピークに近いエネルギーのガンマ線を放出する場合や偽ピークが存在する場合などにおいては、適切なスペクトル解析が行われなければ誤った定量結果を導くこととなる。したがって、たとえ比較標準試料を用いた元素分析を行う場合においても、着目している光電ピーク以外の領域についてのピーク解析を行い、着目しているピークに不純物が原因となるような成分が影響を与えていないかなどを検証すべきである。

しかしながら、多試料の元素分析の定量結果から得られる傾向や系統性が議論の中心となるような分野では、スペクトル解析の精度はあまり重要視されない傾向にある。そのような分野の研究者にとっては、他の分析機器と同様に自動的に分析結果（スペクトル解析の結果を用いて見積もられる最終的な定量結果）が出力されるようなシステムが期待されている。つまり、既定でもっとも信頼性が高いと評価される解析法が用いられ、核データを用いて全てのピークの同定と定量を行うことで、総合的に分

析対象とする核種に帰属するピーク面積が見積もられ、できれば比較標準試料の分析結果から定量値を出力してくれるようなシステムが望ましいと考えられる。

一方で、分析精度がデータの信頼性に直結するような分野の研究者の間では、どのようなスキームでスペクトル解析が行われたかどうかも重要視されているため、半自動的に分析が行われるシステムに加えて、用いる核データの種類やピーク解析の方法自体を変更できるような自由度も求められる。その場合、用いた核データの種類や解析手法が記録された解析ログが残されることも重要である。

7. おわりに

当委員会では、現在行われているガンマ線スペクトル解析における問題点を公表されている実際のデータに即して議論するとともに、今後のあるべき姿や新しいスペクトル解析ソフトの発展方向などを議論してきた。本稿でまだ議論の途中であるが、今後いくつかの絶対測定法やエネルギーと効率の関数形を決める実験、現在使われているガンマ線スペクトル解析ソフトの比較実験なども計画している。

賢明な読者諸氏からの忌憚のない意見や提案を期待して、本稿を終える。

本稿は下記の委員会構成メンバーがそれぞれの専門分野について原案を作成し、委員会内部で議論を重ねて取りまとめたものである。内容についての最終的な責任は委員長である青山にある。

日本アイソトープ協会第25期理工学部会次世代スペクトル解析専門委員会 構成

委員長 青山 道夫

委員 秋山 正和, 浅井 雅人, 阿部 敬朗, 佐藤 泰, 高野 直人, 高宮 幸一, 濱島 靖典, 武藤 儀一, 山田 隆志, 石津 秀剛

文 献

- 1) Nishihara, K., Iwamoto, H. and Suyama, K., Estimation of Fuel Compositions in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant (福島第一原子力発電所の燃料組成評価), JAEA-Data/Code. 2012; 18: 1–190
- 2) Buesseler, K., Aoyama, M. and Fukasawa, M., Impacts of the Fukushima nuclear power plants on marine radioactivity, *Environ. Sci. Technol.*, **45**, 9931–9935 (2011)
- 3) Masson, O., Baeza, A., Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., Cappai, M., Carvalho, F. P., Connan, O., Cosma, C., Dalheimer, A., Didier, D., Depuydt, G., De Geer, L. E., De Vismes, A., Gini, L., Groppi, F., Gudnason, K., Gurriaran, R., Hainz, D., Halldórsson, Ó., Hammond, D., Hanley, O., Holeý, K., Homoki, Z., Ioannidou, A., Isajenko, K., Jankovic, M., Kattlberger, C., Kettunen, M., Kierepko, R., Kontro, R., Kwakman, P. J., Lecomte, M., Leon Vintro, L., Leppänen, A. P., Lind, B., Lujanienė, G., McGinnity, P., Mc Mahon, C., Malá, H., Manenti, S., Manolopoulou, M., Mattila, A., Mauring, A., Mielietelski, J. W., Möller, B., Nielsen, S. P., Nikolic, J., Overwater, R. M., Pálsson, S. E., Papastefanou, C., Penev, I., Pham, M. K., Povinec, P. P., Ramebäck, H., Reis, M. C., Ringer, W., Rodriguez, A., Rulík, P., Saey, P. R., Samsonov, V., Schlosser, C., Sgorbati, G., Silobritiene, B. V., Söderström, C., Sogni, R., Solier, L., Sonck, M., Steinhäuser, G., Steinkopff, T., Steinmann, P., Stoulos, S., Sýkora, I., Todorovic, D., Tooloutalaie, N., Tositti, L., Tschiersch, J., Ugron, A., Vagena, E., Vargas, A., Wershofen, H. and Zhukova, O., Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-ichi nuclear reactors by European networks, *Environ. Sci. Technol.*, **45**, 7670–7677 (2011)
- 4) http://www.sii.co.jp/jp/segg/files/2013/04/file_IMAGE_FILE_5360_IMAGE15.pdf (2016年5月)
- 5) 文部科学省, 海洋環境放射能調査検討会 (第2回, 平成24年8月3日) 議事録, http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chousa/gijyutu/019/gijiroku/1325210.htm (2016年3月)
- 6) <http://www.jsac.or.jp/srm/RDJSAC0471.pdf> (2016年5月)
- 7) Stohl, A., Seibert, P., Wotawa, G., Arnold, D., Burkhardt, J. F., Eckhardt, S., Tapia, C., Vargas, A. and Yasunari, T. J., Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: Determination of the source

- term, atmospheric dispersion, and deposition, *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 2313–2343 (2012)
- 8) http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/pdf_series_index.html (2016年5月)
- 9) Blaauw, M., Keyser, R. M. and Fazekas, B., Comparison of alternative methods for multiplet deconvolution in the analysis of gamma-ray spectra, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **432**, 77–89 (1999)
- 10) Metrology in short 3rd edition, <https://www.euramet.org/publications-media-centre/documents-and-publications/metrology-in-short/>, ISBN 978-87-988154-5-7 (2016年1月)
- 11) Rytz, A., The international reference system for activity measurements of γ -ray emitting nuclides, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **34**, 1047–1056 (1983)
- 12) 納富昭弘, 放射線計測学, 国際文献社, ISBN 978-4-902590-41-8 (2015)
- 13) Ratel, G., et al., Update Final Report and APMP. RI(II)-K2.Cs-134 Final Report, [http://kcdb.bipm.org/AppendixB/appbresults/bipm.ri\(ii\)-k1.cs-134/bipm.ri\(ii\)-k1.cs-134_final_report%20\(3\).pdf](http://kcdb.bipm.org/AppendixB/appbresults/bipm.ri(ii)-k1.cs-134/bipm.ri(ii)-k1.cs-134_final_report%20(3).pdf) (2016年1月)
- 14) セイコー・イージーアンドジー株式会社, ガンマ線分析詳細仕様説明書 (2010)
- 15) キャンベラジャパン株式会社, γ 線解析プログラム分析手法説明書 (2003)
- 16) Asai, M., Kaneya, Y., Sato, T. K., Tsukada, K., Ooe, K., Sato, N. and Toyoshima, A., Efficiency calibration of Ge detector for ^{131}I and ^{134}Cs in soil samples and a simplified calculation of cascade summing corrections for volume source, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **12**, 5–10 (2012)
- 17) Kumamoto, Y., Aoyama, M., Hamajima, Y., Aono, T., Kouketsu, S., Murata, A. and Kawano, T., Southward spreading of the Fukushima-derived radiocesium across the Kuroshio Extension in the North Pacific, *Scientific Reports* 4, Article number: 4276 (2014)
- 18) Table 2 in Lutter, G., Tzika, F., Hult, M., Aoyama, M., Hamajima, Y., Marissens, G. and Stron, H., Measurement of anthropogenic radionuclides on post-Fukushima Pacific seawater samples, *NULLEONIKA*, **60**, 545–550 (2015)
- 19) Mariscotti, M. A., A method for automatic identification of peaks in the presence of background and its application to spectrum analysis, *Nucl. Instrum. Methods*, **50**, 309–320 (1967)
- 20) 文部科学省, 放射能測定シリーズ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, pp. 117–124 (1992)
- 21) 文部科学省, 放射能測定シリーズ33 緊急時におけるガンマ線スペクトル解析法, pp. 65–69 (2004)
- 22) 日本保健物理学会, 体外計測に関する標準計測法の策定に関する専門研究会報告書 <http://www.jhps.or.jp/report/pdf/report9.1.pdf> (2016年5月)
- 23) Canberra, Genie-2000 Spectroscopy System (2002)
- 24) Debertin, K. and Helmer, R. G., Gamma-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors, pp. 299–303, North-Holland (1988)
- 25) Gilmore G. and Hemingway, J. D., 実用ガンマ線測定ハンドブック, 日刊工業新聞社, pp. 130–134 (2002)
- 26) Brinkman, G. A., Aten, A. H. W. Jr. and Veenboer, J. Th., Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal—I, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **14**, 153–157 (1963), and references therein
- 27) Ogata, Y., Miyahara, H., Ishigure, N., Ishihara, M., Nishio, M. and Yamamoto, S., Development of a modified sum-peak method for activity determination of some gamma emitters, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **775**, 34–40 (2015)
- 28) Blaauw, M., The use of sources emitting coincident γ -rays for determination of absolute efficiency curves of highly efficient Ge detectors, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **332**, 493–500 (1993)
- 29) Blaauw, M., Ammerlaan, M. J. J. and Gelsema, S. J., The use of sources emitting coincident gamma-rays for the determination of photopeak and total efficiencies in non-point-source counting geometry, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **385**, 330–334 (1997)
- 30) Blaauw, M. and Gelsema, S. J., Cascade summing in gamma-ray spectrometry in marinelli-beaker geometries: The third efficiency curve, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **505**, 311–315 (2003)
- 31) 山田崇裕, 石津秀剛, 高野直人, 加算同時計数効果を用いたGe検出器の計数効率関数決定法, 第51回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集, 50 (2014)
- 32) Blaauw, M., The reference peak areas of the 1995 IAEA test spectra for gamma-ray spectrum analysis programs are absolute and traceable, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **432**, 74–76 (1999)
- 33) Los Arcos, J. M., Menno Blaauw, M., Fazinic, S. and Kolotov, V. P., The 2002 IAEA test spectra for low-level g-ray spectrometry software, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **536**, 189–195 (2005)

Abstract

Peak Search and Area Calculation in Current Gamma-ray Spectrometry and Discussion of Next Generation Gamma-ray Spectrometry

EXPERT COMMITTEE ON NEXT-GENERATION GAMMA-RAY SPECTROMETRY, SCIENCE AND ENGINEERING COMMITTEE, JAPAN RADIOISOTOPE ASSOCIATION[†], #: 2–28–45 Honkomagome, Bunkyo-ku, Tokyo 113–8941, Japan (#Michio AOYAMA, Masakazu AKIYAMA, Masato ASAI, Takaaki ABE, Yasushi SATO, Naoto TAKANO, Koichi TAKAMIYA, Yasunori HAMAJIMA, Giichi MUTOH, Takashi YAMADA, Hidetake ISHIZU)

Expert Committee on next-generation gamma-ray spectrometry, Science and Engineering Committee, Japan Radioisotope Association was established September 2015 and now is working on several aspects of gamma-ray

spectrometry. Main issues are to review current available gamma-ray spectroscopy software for high purity germanium detector. Our discussion covers wide range of specific aspects of gamma-ray spectroscopy e.g. peak search methods, area calculation and correction of cascade-sum effect. We also review new development about gamma-ray spectroscopy in worldwide. We also will conduct an experiment on the possibility of absolute measurement of sample activity measured by high purity germanium detector using only the nuclear decay chain data and a spectrum of the sample. Reference spectrum will be also collected and distributed to test comparability of current available gamma-ray spectroscopy software. In this article we present current status of our discussion and ask readers to make comments on them.

Appendix-I. 裾や肩に存在するピーク探索について

裾や肩に存在するピークは通常の平滑化二次微分法ではピーク検出し難く、本文中に示したように以下の方法による対策が考えられる。

- ①利用者の目視による未発見ピーク探索^{14, 15, 23)}
- ②カウントデータと適合関数の残差に着目した未発見ピーク探索^{15, 23)}—Residual Search
- ③核種同定結果を利用した未発見ピーク探索²⁴⁾
- ④利用者の定義データによる未発見ピーク探索^{14, 23)}

①「利用者の目視による未発見ピーク探索」では、利用者がスペクトルやネット面積計算イメージを確認しながらマニュアル操作で未発見ピークを挿入する。利用者の習熟度に依存するものの効果は高い。一方でスペクトル処理が停止することや利用者の挿入判断に時間が掛ることが予想され、測定に続いて核種分析を行う処理や複数スペクトルの連続処理には採用し難い。

②「カウントデータと適合関数の残差に着目した未発見ピーク探索」では、まず次式で適合領域内のチャンネルごとの残差 (Reduced Residual) を定義する。

$$\text{残差}(i) = (N(i) - f(i)) / \sigma N(i)$$

ここに、

- i : 適合領域内のチャンネル
- $N(i)$: i チャンネルの計数
- $f(i)$: 適合関数による i チャンネルの計算計数
- $\sigma N(i)$: i チャンネルの計数の不確かさ

次に適合領域中、連続的に残差 (i) が大きい箇所を探索して通常の平滑化二次微分法でピーク検出できなかったピークがあるとする。つまり、①「利用者の目視による未発見ピーク探索」の自動化である。利用者の挿入判断や操作がなく、また③④として後述する、吟味が必要

な挿入定義データを利用しないため汎用性が高い。このイメージを図I-1に示す。

③「核種同定結果を利用した未発見ピーク探索」では、事前の核種分析で核種同定された各核種の未発見ガンマ線を順次、ピーク挿入していく。しかし、核データ登録核種やガンマ線が多いと、多重同定や誤同定の可能性によってピーク挿入判断が難しくなるため、存在核種がほぼ明らかなスペクトルに対し、それに対応し

図I-1 (a) 残差が大きいチャンネルが連続する領域 (赤○)。未探索ピークを含まない関数適合を実施。reduced $\chi^2=99.832$, (b) 残差が大きいチャンネル領域にピークをあるとして挿入、7ピークで関数適合実施。reduced $\chi^2=7.425$ (Color online)

図I-2 ^{134}Cs の796keV+801keVはピーク検出できるが、605keVは ^{137}Cs の662keVの影響でピーク検出できない。 ^{134}Cs は核種同定されているので、未発見ガンマ線605keVをピーク挿入して“検出”(Color online)

た核データを与えることが前提で、汎用性に欠ける。図I-2にNaI(Tl)シンチレーション検出器のスペクトルへの適用例を示す。

④「利用者の定義データによる未発見ピーク探査」では、利用者が予め核データや専用ファイルにピーク検出し難いガンマ線を登録しておき、当該ガンマ線が未探査の場合にピークを挿入する。これは③の一種で、スペクトル処理としても組み込みやすく、日本メーカーのプログラムにも実装されている。しかし単純なピーク挿入だけでは後述の偽ピーク生成に繋がるため、③以上に適切なデータの準備と偽ピークか否かの判断が重要になる。

次に上記方法を使用する際の、偽ピーク生成を避けるための注意点を検討したい。

①「利用者の目視による未発見ピーク探査」においては、プログラム側のピーク周辺の拡大／縮小、縦軸スケールの切換え等の機能が災いし、特に低計数部分だけに着目してリニアスケールで拡大表示すると統計変動をピークとして認識してしまう可能性がある。この問題は、ピーク挿入後に直ちに挿入ピークのネット面積や棄却限界を計算し、利用者がピーク挿入が適切であったかを判断できる機能を実装することで解消できる。例えばCanberra US社のIPF

(Interactive Peak Fit)ではピーク挿入とネット面積計算を同時に行うのでこの目的に十分な機能を備えている。

②「カウントデータと適合関数の残差に着目した未発見ピーク探査」においては、当て嵌めのバックグラウンド関数が不適切な場合、ピーク周辺の残差が大きくなり、偽ピークを挿入してしまうケースが考えられる。具体的には大きなピーク前後の階段状のバックグラウンドに一次式を当て嵌める、あるいは逆に、傾斜に乗ったピーク下のバックグラウンドに階段状の関数を当て嵌める等である。したがってこの問題はバックグラウンドに当て嵌める関数形を、ピーク周辺の計数変化に応じて決定することで避けられる。

②のもう一つの注意点は、単純な「残差が大きい」だけでピーク挿入するのでは、大きなピーク周辺では偽ピークを生成しやすいことである。残差の定義上、分母項(=計数の不確かさ $=\sqrt{\text{計数}}$)は計数増加に伴って相対的に小さくなるのに対し、分子項(=計数-適合関数)は適合結果に依存する。そのため高計数では関数適合による計数の再現性が高くても計算上の残差が大きくなり、挿入判断の感度が高くなり過ぎる恐れがある。これは逆に、小さなピーク周辺では計数の不確かさが相対的に大きく、挿入判断の感度が下がることも意味する*。図I-3に計数の多寡に依存する残差の例を示す。対策としては、通常残差だけでなく計数との比(=(カウントデータ-適合関数)/計数)すなわち、適合の“精度”もピーク挿入判断の材料とする等が挙げられる。

*あるチャンネルの計数を40000とする。仮に98%の精度で関数適合されていれば、

$$\text{残差} = (40000 - 40000 \times 0.98) / \sqrt{40000} = 800 / 200 = 4$$

一方、同じ98%の精度の適合でも計数=1000なら、

$$\text{残差} = (1000 - 1000 \times 0.98) / \sqrt{1000} = 20 / 31.62 \sim 0.653$$

のように、計数の多寡によって大きな感度差が生じる。

図I-3 (a) 大きなピーク周辺。目視上、適合は十分と見なせるが、大きな残差(赤○)がある。 $\text{reduced } \chi^2=93.567$, (b) 小さなピーク周辺。目視上、裾に未発見ピークがあるが残差が十分に大きくない(青○)。 $\text{reduced } \chi^2=2.138$ (Color online)

③「核種同定結果を利用した未発見ピーク探索」、④「利用者の定義データによる未発見ピーク探索」で重要な点は、先に記したように事前のデータ吟味であり、適用スペクトルに対する想定検出核種が反映されていることが必要で、この吟味を怠った用法は偽ピーク生成に直結する。

データ吟味を行った上での用法であっても、ほぼフラットな領域に偽ピークを挿入してしま

図I-4 消滅放射線(511 keV)の裾の ^{85}Kr 514 keVを処理するために、ユーザ定義データ登録してピーク挿入を実行、関数適合で処理した結果 (Color online)

うことがある。これは③④が当該ガンマ線エネルギーを単純にチャンネル換算しているためであるが、あらかじめ二次微分法でピークサーチしてあるなら、極端にサーチ感度を下げない限り、裾や肩以外のピークを見落とすことはほとんどない。したがって事前のピーク探索によって周辺にピークが存在しない状況ではピーク挿入すべきではない。

また③は、通常「主ピークの検出を確認→2番目に検出し易いガンマ線の挿入(または確認)→……」等の手順を踏むが、どこで止めるかの判断基準が必要になる。判断基準の例として、当該ガンマ線を挿入した場合にピークが有意か否かの確認が挙げられる。具体的には主ピークのネット面積を用いて当該ガンマ線のネット面積を計算し、そのネット面積が本文中にも示した棄却限界(例えば危険率=5%)を上回るかを事前に確認し、棄却限界以下ならピーク挿入すべきではない。

①～④全てに共通して言えるが、既存ピークに非常に近いチャンネルにピーク挿入することは避けた。さもないとピークの中にピークを生成するような信頼性に乏しい結果になりかねない。また特に消滅放射線(511 keV)等、通常のガンマ線よりピーク半値幅が広い場合も同様で、この例を図I-4に示す。

ここまでは裾や肩のピーク探索の手順と注意点を示したので、次にその手順で新たに挿入

されたピークのネット面積の評価について検討したい。挿入されたピークはほぼ他ピークと複合関係になるため最終的に何らかの方法で分離する必要があるが、そのピーク分離にはピーク関数適合が望ましい。これはネット面積評価に加え、挿入ピークの検証という目的にも合致する。そもそも②「カウントデータと適合関数の残差に着目した未発見ピーク探索」により得られるのは関数適合と実計数の差に着目した結果であり、挿入ピークを含め、改めて関数適合によってピーク分離、ネット面積評価する手順が自然である。一方①「利用者の目視による未発見ピーク探索」、③「核種同定結果を利用した未発見ピーク探索」、④「利用者の定義データによる未発見ピーク探索」は挿入判断だけなら関数適合を必要としないため、形式的にピーク領域設定をやり直し、全計数積算法でネット面積計算するという方法も取り得るが、関数適合を使わない比較的簡単なピーク分離では精度に不安が残る。日本で広く普及しているプログラムで使用されている、関数適合を使わないピーク分離方法には、

- ・ 2ピーク間の midpoint または最小近傍でのピーク分割
- ・ 同一核種中のネット面積が計算済みの他のガンマ線ピーク—できれば“主ピーク”—を使用した妨害寄与差引き

がある^{14, 15)}。前者の問題点は、2ピーク間にハッキリした窪みがある場合、妨害成分を相殺できるが、裾や肩にピークを挿入する場合、相殺できないことである。図I-5にピーク分割と関数適合それぞれによるネット面積計算結果を示す。

後者の問題点は、他ピークのネット面積の不確かさが累積すること、放出率や効率（不確かさや、サム効果や自己吸収効果の補正有無）等のスペクトルデータ以外のデータ精度の影響を受けること、妨害核種に対する核種同定の妥当性やその主ピーク自身が他ピークから妨害を受けた、いわゆる妨害連鎖によって処理不能状

図I-5 (a) 通常のピークサーチで発見できない²²⁸Ac (1459 keV, 放出率~0.9%) をピーク挿入。ピーク領域を⁴⁰K (1461 keV) の中点近傍で2分割処理。ネット面積=5340.1±94.6 cnt, (b) 通常のピークサーチで発見できない²²⁸Ac (1459 keV, 放出率~0.9%) をピーク挿入。1459 keV と⁴⁰K (1461 keV) の2ピークで関数適合。ネット面積=2259.6±198.9 cnt (Color online)

態に陥る可能性があること等である。

以上から判断して①~④の何れの方法で裾や肩にピーク挿入する場合も、ネット面積評価には関数適合によるピーク分離が望ましい。そして、関数適合はピーク挿入結果に対する検証としても有用である。すなわち、挿入ピーク自

身だけでなく、同時に適合した他のピークの適合結果も検証対象とし、異常なパラメータや不確かさ**を検知した場合はピーク挿入を不適と判断し、挿入ピークを除去することができる。また、特にバックグラウンド関数について、不自然な発振や凹凸が発生していないことの確認が必要だが、これらの検証はピーク挿入時に限らず関数適合による処理全般についても言える。

Appendix-II. サム効果を利用してスペクトルのみから放射能の絶対値と検出効率曲線を求める方法

サム効果を利用して放射能の絶対値と検出効率曲線を求める方法を第4章で紹介したが、ここではより一般化した壊変図式を例に取り、その原理を具体的に説明するとともに、任意の壊変図式に適用するための計算アルゴリズムについて紹介する。なお、この内容は「第51回アイソトープ・放射線研究発表会」（2014年7月、東京）において（公社）日本アイソトープ協会の山田崇裕、石津秀剛両氏および、（株）スカラベコーポレーションの高野直人氏によって発表されたものであり、本稿の記述はその要旨集³¹⁾から3氏の承諾を得た上で抜粋したものである。

図II-1に中間準位が3つの場合の一般化された壊変図式を示す。この場合、例えば準位1→0（以下、1-0とする。）に相当するガンマ線ピークは、1-0に相当するエネルギー全吸収があり、3-2、2-1及び3-1が検出されない場合に出現する。このように、計測によるピーク出現のパターン（以下、ピーク・パターンという。）は、1回の壊変の後、ある立ち寄り準位と次の立ち寄り準位の間の遷移で全吸収されその次の

図II-1 Example of a decay scheme

図II-2 Peak patterns in the decay scheme shown in Fig. II-1

通過準位への遷移が不感というように、全吸収と不感の組み合わせで決まる。このようなカスケードにガンマ線を放出する核種の場合、観測されるピークの数、準位のステップ数 m から n 個をとる組み合わせを $n=m$ まで加算した $\sum_{n=1}^m {}^m C_n$ となる。図II-1の例だと、図II-2に示す8個のピーク・パターン（ただし、 r_0 は何も検出されないピーク・パターン）となる。

この各ピーク・パターンにおける出現するピークの計数率は、核データより得られる分岐比などを用いて表すことができる。例えば、 N_{r1} に対しては次式が成り立つ。

$$N_{r1} = Ak_3 \{ p_{3-1} p_{1-0} G(E_{3-1}) F(E_{1-0}) + p_{3-2} p_{2-1} p_{1-0} G(E_{3-2}) G(E_{2-1}) F(E_{1-0}) \} + Ak_2 p_{2-1} p_{1-0} G(E_{2-1}) F(E_{1-0}) + Ak_1 p_{1-0} F(E_{1-0}) \quad (A-1)$$

ここで、それぞれの記号の意味を以下に示す。

**非常に近い2ピークを適合すると、ピーク高さ等の適合パラメータの不確かさが大きくなる 경우가多く、最悪の場合は関数適合で得られる共分散行列の対角項、すなわち適合パラメータの分散が負値といった状況に陥る。

図II-3 Example of cascade sequences and peak patterns (Color online)

- N_{r_i} : ピーク・パターン r_i に相当する
ピークの実測の計数率
 r_i : i 番目のピーク・パターン
 A : 放射能
 k_i : 分岐比
 p_{i-j} : 準位 $i \rightarrow j$ への遷移における γ 線分
岐比
 E_{i-j} : $\varepsilon_i - \varepsilon_j$
 ε_i : 準位 i のエネルギー
 $F(C_i^F, E_{i-j})$: E_{i-j} のピーク計数効率関数

$$F(C_i^F, E_{i-j}) = \exp \left[\sum_l C_l^F \{ \ln(E_{i-j}) \}^l \right] \quad (\text{A-2})$$

$G(C_m^G, E_{i-j})$: E_{i-j} の全計数非効率関数

$$G(C_m^G, E_{i-j}) = \exp \left[\sum_m C_m^G \{ \ln(E_{i-j}) \}^m \right] \quad (\text{A-3})$$

- C_l^F : ピーク計数効率関数の係数
 C_m^G : 全計数非効率関数の係数

ピークが観測されない r_0 を除き、全てのピーク・パターンについて N_{r_i} を式で表すことができ、この例では7つの連立方程式が成り立つ。ここで $0 \leq l \leq 1$, $0 \leq m \leq 2$ とすれば、計測量 N_{r_i} と核データから得られる k_i , p_{i-j} は既知であるから、未知のパラメータは A , C_0^F , C_1^F , C_0^G , C_1^G , C_2^G の6つである。したがって、7つの連立方程式を解けば $F(C_l^F, E_{i-j})$, $G(C_m^G, E_{i-j})$, さらに放

射能 A をも得られることとなる。

これまで原理について説明をしてきたが、一般的に、任意のスペクトルに関して式 (A-1) のようなピーク計数率の式を構築して解くのは非常に厄介な作業である。そこで、ここからは任意の壊変図式に対してピーク計数率を構築するための計算アルゴリズムについて説明する。ここで、「1つの崩壊を通し、どの準位に立ち寄りどの準位を飛び越すかを綴り合わせた行程」を表す概念（以下、カスケード・シーケンスという）を定義し、図II-3に中間準位が3つある場合の例を示す。

このカスケード・シーケンスを使うと、各々のピーク・パターンに相当するピークの計数率 $\varphi_{r_i}(C_a^A, C_l^F, C_m^G)$ は以下の式で表わされる。

$$\begin{aligned} \varphi_{r_i}(C_a^A, C_l^F, C_m^G) \\ = C_a^A \sum_S \left\{ P_{R_i^a}^S \prod_Q F(C_l^F, E_{i-j}) G(C_m^G, E_{i-j}) \right\} \quad (\text{A-4}) \end{aligned}$$

それぞれの記号の意味を以下に示す。

- $\varphi_{r_i}(C_a^A, C_l^F, C_m^G)$: ピーク・パターン r_i に相当するピークの計算上の計数率
 C_a^A : r_i 番目のピークをもたらす核種 a の放射能
 $R_{r_i}^a$: r_i 番目のピークをもたらす核種 a の R 番目のカスケード・シーケンス

- $P_{R_i^a}$: カスケード・シーケンス R_i^a の確率
- Q : カスケード・シーケンス R_i^a を構成する要素遷移 ij に関する、ピーク計数効率×全計数非効率の綴り合わせ
- S : 同じエネルギーのピークについて、ピーク・パターンに関する和

ある1つのピーク・パターンに整合するカスケード・シーケンスは複数存在することがある。例えば、図II-3のピーク・パターン3は2-1の遷移に相当するピークが得られるから、整合する可能性があるカスケード・シーケンスは2-1の遷移が含まれる3と7の2種類である。したがって、ピーク・パターンに整合するカスケード・シーケンスに沿ってピーク計数効率と全計数非効率を掛け算して収集すれば各々のピークの計数率が求まり、以下の h 個の正規方程式を用いて実測のピーク計数率 N_{r_i} と比較す

ることが可能である。これらの式について C_a^d , C_l^f , C_m^g を最適化しながら最尤関数適合を行うことで、ピーク計数効率関数及び全計数非効率関数を決定することができる。

$$\frac{\partial}{\partial C} \sum_{r_i} \frac{\{N_{r_i} - \phi_{r_i}(C_a^d, C_l^f, C_m^g)\}^2}{\sigma_{\phi_i}^2} = 0 \quad (\text{A-5})$$

井戸型ゲルマニウム半導体検出器で ^{134}Cs を測定したスペクトルに対し、これまで述べてきた方法を適用した実験結果を本文中図5に示している。 ^{134}Cs の場合ピーク・パターンは16であり、同数の式が成り立つ。計算により求めたピーク計数率は測定されたピーク計数率とよく一致し、本法の適用可能性を示唆するものであった。この方法が適用できれば、従来用いられているピーク・トータル比などは不要となり、井戸型ゲルマニウム半導体検出器での測定を含む真の加算同時計数効果の大きい測定に対する不確かさの改善も期待できる。