

短報

神奈川県における牛乳の放射能調査

殿原真生子*, 飯島育代, 林 孝子, 酒井康宏*,
桑原千雅子, 上村 仁

Surveillance of Radioactive nuclides in
Milk in Kanagawa Prefecture

Makiko TONOHARA, Ikuyo IJIMA,
Takako HAYASHI, Yasuhiro SAKAI,
Chikako KUWAHARA and Hitoshi UEMURA

はじめに

2011年3月に発生した東京電力株式会社福島第一原子力発電所（以下、福島第一原発）事故により、大量の人工放射性物質が環境中に放出され、食品においても放射性物質の汚染が危惧される事態となった。

国内食品に含まれる放射性物質については、福島第一原発事故以前は法的な規制値が定められておらず、原子力安全委員会により示された指標値のみであった。同年3月17日、厚生労働省は、この指標値を食品の放射性物質の暫定規制値として設定した¹⁾。その後、食品安全委員会において放射性物質による健康影響の評価が検討され、小児の期間については成人より感受性が高い可能性があるとの指摘があった。このことを受け、厚生労働省は、小児の健康影響への具体的な配慮として、小児の摂取量が多い牛乳および乳幼児食品について独立した区分を設けるなど見直しを実施し、2012年4月1日から放射性セシウムについて新たな基準値を設定した^{2), 3)}。

神奈川県衛生研究所では、国の委託事業である環境放射能水準調査の一環として、福島第一原発事故前から牛乳について放射能調査を実施している。本事故後は、県の行政検査として、原乳では生産段階での濃度把握と暫定規制値および基準値を超えた場合の出荷停止等の迅速な対応を可能とするため、試料採取当日に検査、翌朝に結果公表という体制を組み、現在も臨んでいる。また、県内に流通している市販乳についても行政検査で対応している。さらに県民の不安解消のために、検査後、より

高感度な測定を実施し、情報提供できるように努めている。

本報では、牛乳についてガンマ（ γ ）線スペクトロメトリーによる核種分析を行い、その結果を基に放射能濃度レベルを明らかにするとともに、過去の核実験やチェルノブイリ事故による神奈川県への影響についても比較検討したので報告する。

方 法

1. 試料

牛乳試料として県内産原乳906検体および県内流通の市販乳121検体を対象とした。これらの試料は、環境放射能水準調査ならびに調査研究、福島第一原発事故以降は、行政検査として採取されたものである。

2. 試料の処理

試料の調製及び測定は、科学技術庁、文部科学省、厚生労働省のマニュアル⁴⁻⁷⁾および厚生労働省通知⁸⁾に準じた。マリネリ法は、牛乳2Lをマリネリピーカーに封入し測定に供した。灰化法は、マリネリ法で測定後の牛乳を凍結乾燥後450℃で24時間灰化し、U-8容器に封入し測定した。

3. 測定核種

ヨウ素-131（以下、¹³¹I）、セシウム-134（以下、¹³⁴Cs）、セシウム-137（以下、¹³⁷Cs）およびカリウム-40（以下、⁴⁰K）を対象とした。

4. 測定装置

ゲルマニウム（以下、Ge）半導体検出器 γ 線スペクトロメータ⁹⁾

- ・PGT社製 Ge半導体検出器IGC40200
- ・OXFORD社製 Ge半導体検出器CNVDS30-35195
- ・CANBERRA社製 Ge半導体検出器GC3520

4. 測定時間および検出限界値

行政検査の試料の測定時間は、マリネリ法で7,500秒、環境放射能水準調査および調査研究では、マリネリ法で80,000～100,000秒、灰化法80,000～100,000秒とした。

なお、それぞれの検出限界値は表1のとおりである。

表1 γ 線スペクトロメトリーにおける検出限界値

測定時間 (s)	検出限界値(Bq/kg)		
	マリネリ法	灰化法	
	7,500	80,000～ 100,000	80,000～ 100,000
¹³¹ I	0.31-0.63	0.047-0.056	—
¹³⁴ Cs	0.16-0.24	0.044-0.055	0.015-0.025
¹³⁷ Cs	0.16-0.30	0.049-0.055	0.016-0.029

神奈川県衛生研究所 理化学部
〒253-0087 茅ヶ崎市下町屋1-3-1
*現 地域調査部

結果および考察

1. マリネリ法による牛乳の放射能濃度

短時間測定のマリネリ法による牛乳の放射能濃度の推移を図1に示す。福島第一原発事故発生後、県内の環境試料から事故由来の人工放射性核種が検出されたことを受けて、県内産原乳について、2011年3月21日からマリネリ法による緊急時調査を開始した。

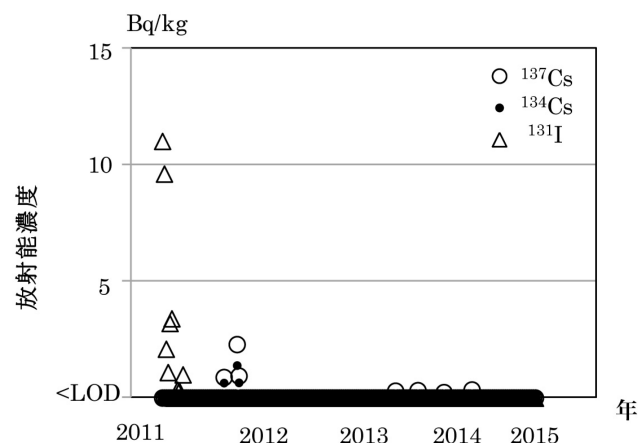


図1 短時間マリネリ法による牛乳中の放射能濃度の推移
LOD (検出限界値) : 約0.3Bq/kg

^{131}I は、2011年では事故後、県内産原乳64試料中10試料より検出されたが、暫定規制値(放射性ヨウ素として300Bq/kg)を十分下回っていた。最高値は調査開始日の3月21日の11Bq/kgで、その後、短期間に急激に減少し、4月21日以降検出限界値未満となった。半減期が8日と短く、また、環境への新たな大量放出が無かったため、短期間で減少したものと考えられる。一方 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs は、事故当初からいずれも検出限界値未満であったが、2011年9月8日に採取された試料から、暫定規制値(放射性セシウムとして200Bq/kg)を十分に下回るものの、それぞれ1.4、2.3Bq/kg検出された。同採取場所において、その後、採取された試料は全て検出限界値未満となったので、原因の特定には到らなかったが、餌からの移行が考えられた¹⁰⁾

2. 灰化法による牛乳の放射能濃度

図2に灰化法での牛乳の放射能濃度の推移を示す。灰化により試料を濃縮し、測定時間を長くして、検出限界値をマリネリ法の約1/10まで下げた(表1)ことで、多くの試料から ^{134}Cs 、 ^{137}Cs が検出された。前述した ^{134}Cs 、 ^{137}Cs が最大値となった2011年9月8日頃までは ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の濃度が比較的高い試料が確認されたが、その後、急激に低下した。同年10月以降は ^{134}Cs 、 ^{137}Cs ともに濃度は漸減し、 ^{134}Cs は2013年3月12日を最後にすべて検出限界値未満となった。

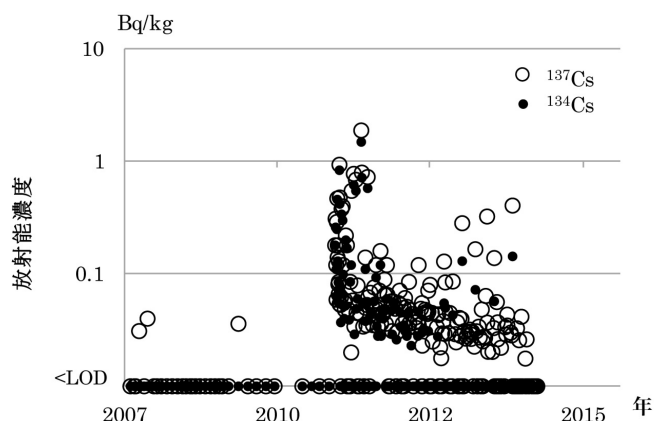


図2 灰化法による牛乳中の放射能濃度の推移
LOD (検出限界値) : 約0.03Bq/kg

3. マリネリ法と灰化法の測定結果の比較

福島第一原発事故では、図3に示すように、牛乳中の ^{137}Cs 濃度について短時間測定のマリネリ法(7,500秒)と灰化法による測定値には非常に高い正の相関($R^2=0.9863$, $R=0.9931$)が認められた。また、短時間測定のマリネリ法による測定値が灰化法に比べて若干高くなることは、結果として高めに被ばく線量評価することになり、より安全側に見積もっていると言うことができる。また、厚生労働省は検出限界値を基準値の1/5以下としており、基準値の検出限界値で要求されるレベル(10Bq/kg)に対し、マリネリ法では、その1/50程度まで測定できた。無処理かつ短時間(7,500秒)で測定可能なマリネリ法は、緊急時において非常に有用な測定法であることを再確認した。

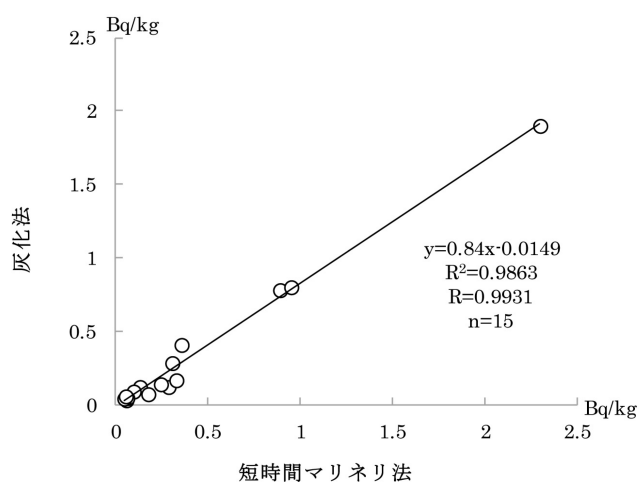


図3 牛乳中の ^{137}Cs 濃度

図3における短時間マリネリ法の ^{137}Cs 濃度が約1 Bq/kgを上回る3試料の濃度では近似直線上にあるのに対し、それより低い大部分の試料については相関係数が0.8232と、やや下回った。 ^{137}Cs 濃度レベルが低くなるほど両方法での濃度にずれが生ずることがわかった。放射能分析では、濃度レベルが低いほど放射能計数率に対する計数誤差が大きくなり、真値の存在する範囲の幅が広がり、得られる濃度はある範囲に分散する。この結果はそれを裏付けていた。

セシウムと同族のカリウム（アルカリ元素）の同位体で、天然の放射性核種である ^{40}K は、 ^{137}Cs と同じくベータ線、ガンマ線を放出する。また広く自然界に存在し、食品にも多く含まれていることが知られており、牛乳中にも50Bq/kg程度が存在している¹¹⁾。当所では ^{40}K についても牛乳中の濃度レベルを調べた。

^{40}K のマリネリ法と灰化法で求めた濃度の関係を図4に示す。 ^{40}K はすべての牛乳試料で定量できたため、ばらつきはあるが、ほぼ50Bq/kgに収束していた。両者間の濃度がずれている試料においても、そのずれは計数誤差の範囲内に含まれ、ほぼ一致すると評価できた。

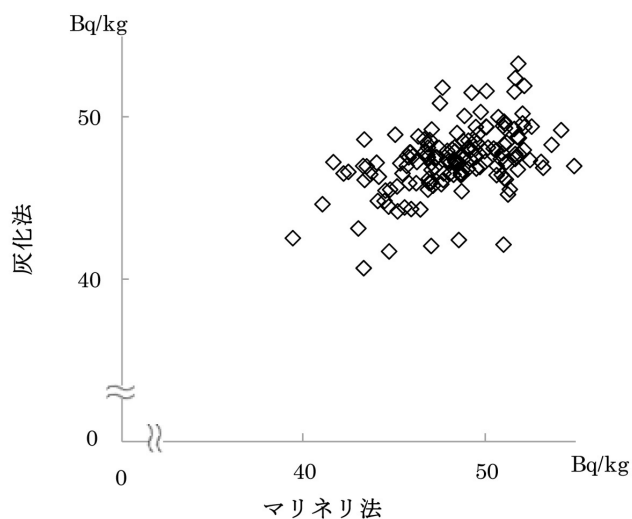


図4 牛乳中の ^{40}K 濃度

4. 1978年からの牛乳の放射能濃度の推移

1978年から2015年3月までの牛乳中の放射能濃度を図5に示す。なお、1978年当初は灰化法でのみ測定を実施し、マリネリ法を開始した2007年以降はマリネリ法で測定後の牛乳を灰化法で測定している。また検出限界値は、表1に示すとおり測定法及び核種により異なるが、それぞれの核種の長期間にわたる変動をわかりやすくするため、検査結果を一つの図に示した（図5）。当所では牛乳の測定を開始した1978年1月には、 ^{137}Cs が0.17Bq/kg検出された。高城らが示すように¹²⁾、1960年

代前半まで米国並びに旧ソ連邦等により大気中核実験が頻繁に行われていた。また日本に距離的に近い隣国の中華人民共和国は、1965年以降に大気中核実験を頻繁に行っていたため、当時は環境放射能のレベルが高かった。その後、大気圏内核実験が1980年に禁止され、牛乳中の ^{137}Cs 濃度は徐々に減少傾向を示し、検出限界値未満～約0.03Bq/kgで推移した。1986年4月のチェルノブイリ原発事故により、 ^{131}I は急激に上昇し、その後、短期間で減少し、同年6月に検出されたのを最後に検出限界値未満となった。 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs については、事故直後は ^{134}Cs は検出されなかったが、同年5月17日にそれぞれ最高値の1.1、2.3Bq/kg検出された。その後、徐々に減少し、 ^{134}Cs は1987年12月を最後に検出限界値未満となった。半減期が約30年と長い ^{137}Cs は、その後、減少傾向にあるものの長期間にわたり、微量（0.013～0.074Bq/kg）ながら検出されてきた。これは、成層圏まで到達している核実験のフォールアウトが対流圏に継続的に降下していることに起因する。2011年の福島第一原発事故では、図5に示すように、放射能濃度はチェルノブイリ原発事故と同様の推移を示した。現在、 ^{137}Cs は行政検査では検出限界値未満が続いているが、灰化すると、今なお微量ながら ^{137}Cs が検出されている。その放射能濃度は、福島第一原発事故前の濃度と同じレベル（0.02Bq/kg程度）にまで減少している。長期間にわたる測定結果から、現在の放射能濃度はチェルノブイリ原発事故前の濃度より低く福島第一原発事故以前と同じ濃度レベルに戻り、推移していることがわかった。

まとめ

当所では福島第一原発事故以前から長期にわたり牛乳の詳細な放射能調査を実施している。事故発生直後からは検査件数を大幅に増加し、迅速に牛乳の検査を実施してきた。

福島原発事故から4年が経過し、現在に至るまで放射性セシウム濃度は基準値を大きく下回っている。半減期が約2年の ^{134}Cs は、2013年3月12日に検出された後は検出限界未満となっている。

灰化法による測定時間を長くした詳細な調査で、より低いレベルの放射性セシウム濃度を確認し、過去の放射能濃度と比較したところ、その濃度レベルは福島第一原発事故前まで減少しており、安全性が十分に確保されていることが明確になった。

また、行政検査に用いているマリネリ法による短時間での測定による放射性セシウムの濃度は、詳細な灰化法による濃度と良く一致、もしくは若干高い傾向にあり、短時間でのマリネリ法が緊急時に有効な方法であること

が再確認できた。 ^{40}K では計数誤差範囲内で一致していた。

今後も長期的な観点から放射能調査を継続し、食品の

安全と安心につながる情報を提供していく必要がある。
(平成27年8月1日受理)

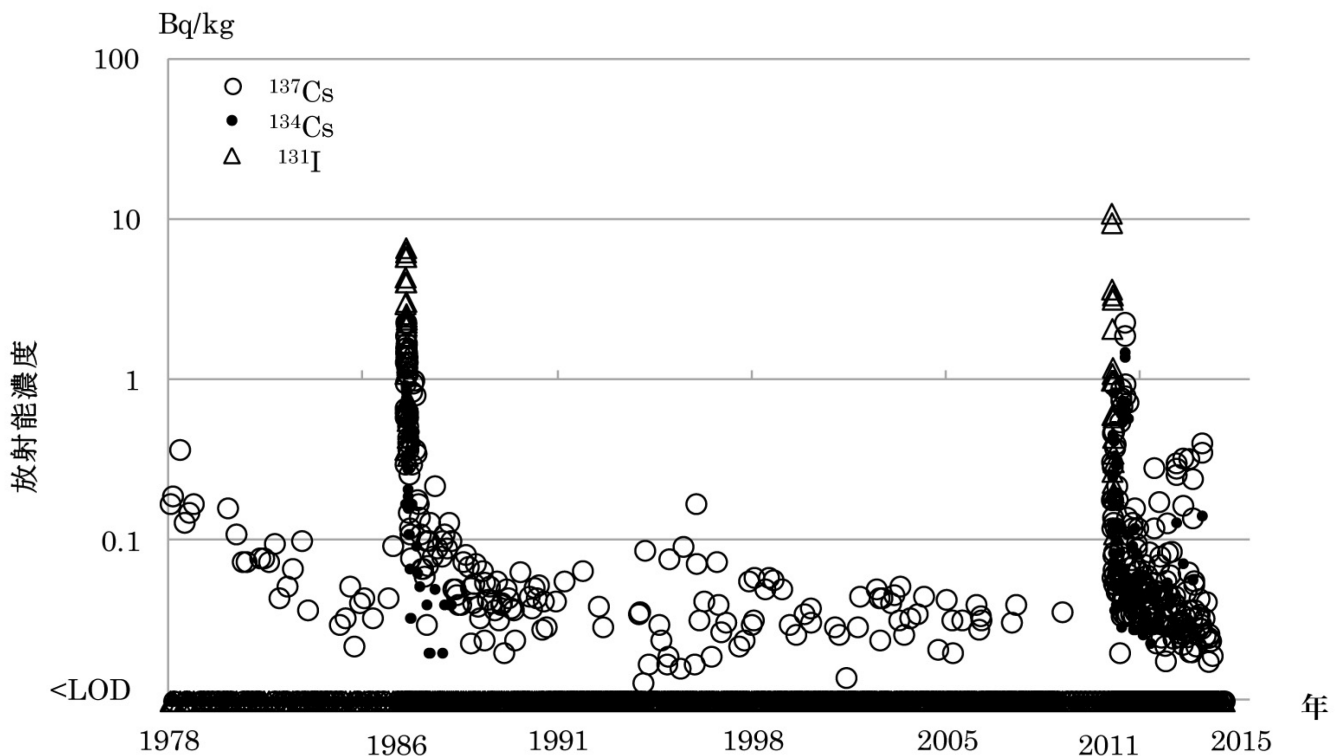


図5 牛乳中の放射能濃度の推移

LOD (検出限界値) : 表1 参照

文 献

- 1) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：放射能汚染された食品の取り扱いについて，食安発0317第3号（平成23年3月17日）
- 2) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：乳及び乳製品の成分規格等に関する省令の一部を改正する省令，乳及び乳製品の成分規格等に関する省令別表の二の（一）の（1）の規定に基づき厚生労働大臣が定める放射性物質を定める件及び食品，添加物等の企画基準の一部を改正する件について，食安発第0315第1号（平成24年3月15日）
- 3) 林孝子，酒井康宏，飯島育代，桑原千雅子：神奈川県における食品の放射能調査（平成23年3月～平成25年度）. 神奈川衛研報告，**44**，20-24（2014）
- 4) 科学技術庁：セシウム137分析法（1963）
- 5) 科学技術庁：放射性ヨウ素分析法（1977）
- 6) 文部科学省：文科省放射能測定法シリーズ24（1992）
- 7) 厚生労働省医薬局食品保健部監視安全課：緊急時における食品の放射能測定マニュアル（2002）
- 8) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知：食品中の放射性物質の試験法について，食安発0315第4号（平成24年3月15日）
- 9) 神奈川県衛生研究所：神奈川県における放射能調査報告書－2014－（2015）
- 10) 農林水産省消費・安全局長，生産局長，林野庁長官，水産庁長官通知：放射性セシウムを含む肥料・土壤改良資材・培土及び飼料の暫定許容値の設定について，23消安第2444号，23生産第3442号，23林政産第99号，23水推進第418号（平成24年3月23日）
- 11) 食品安全委員会：食品中の放射性物質の健康影響について，平成24年1月
〈http://www.fsc.go.jp/sonota/emerg/radio_hyoka_kaisetu.pdf〉
- 12) 高城裕之，飯島育代，小山包博：生活環境中の放射線および放射性物質の水準2．神奈川県における環境放射線（能），神奈川衛研報告，**22**，22-28（1992）