

資料

NaI(Tl)シンチレーションカウンタ による食品中の放射性セシウム測定

桑原千雅子, 飯島育代

Determination of Radiocesium in foods using a NaI(Tl) scintillation counter

Chikako KUWAHARA, Ikuyo IJIMA

東京電力(株)福島第一原子力発電所(以下、福島原発)事故直後、神奈川県衛生研究所(以下、当所)では、多くの試料の放射能測定が依頼されたが、当時の人員や2台のゲルマニウム半導体検出器付きガンマ線スペクトロメータ(以下、Ge検出器)では、全ての依頼に対応することは不可能であった。

神奈川県内には2つの原子力関連施設と原子力艦船が300日近く寄港する米海軍基地がある。これらの施設等で不測な事故等が発生した際には、福島原発事故を上回る数の試料を測定する必要性が予想される。そこで、当所ではRI(Radio Isotope:放射性同位元素)実験室に、高濃度のガンマ線放射性核種を測定するために整備されていたオートサンプラー付きNaI(Tl)シンチレーションカウンタ(以下、NaI(Tl)検出器)の更新機器として、厚生労働省「食品中の放射性セシウムスクリーニング法の一部改正について」¹⁾に準拠し、食品の一次スクリーニング法に利用可能なオートサンプラー付きNaI(Tl)検出器を2016年に整備した。このNaI(Tl)検出器は、NaI(Tl)の結晶が従来の1.3インチから3インチに大きくなり、試料測定用容器の容量も7mlミニバイアルのみから20mlバイアルまで対応可能となり、検出感度を高めたものである。また、多数試料の自動測定が可能であるとともに、得られたデータを測定器メーカーから提供された専用ソフトウェアに適用するだけで¹³⁴Cs、¹³⁷Csおよび放射性セシウムの濃度を求めることができる。

今回、このNaI(Tl)検出器とGe検出器で食品の放射性セシウムを測定し、比較検討したので報告する。

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
chika_kuwahara.u79v@pref.kanagawa.jp

試料は、2011年に当所で¹³⁴Csおよび¹³⁷Csを検出した牛肉2試料、玄米、玄米粉末各1試料とした。表1に試料搬入時におけるGe検出器の定量結果を示した。牛肉は、2011年に脂肪および筋等を除去し、可食部のみとした後、フードプロセッサーで細切した。その一部を検査に使用し、残った大部分の試料を冷凍保管した。今回、その保管試料を流水中で解凍し、プラスチック容器(以下、U-8容器)には80g程度、専用の20mlバイアル(テフロンコーティングポリエチレン製)には20mlの容量の線まで、均一になるよう充填した。玄米、玄米粉末は、そのままU-8容器と専用20mlバイアルに同様に充填した。

表1 試料搬入時に測定したGe半導体検出器による¹³⁴Csおよび¹³⁷Cs濃度

試料名	基準日 ^{*1}	Bq/kg ^{*2}			
		¹³⁴ Cs		¹³⁷ Cs	
牛肉(肩ロース)	2011/7/26	120	± 4.1	150	± 3.9
牛肉(牛友スネ)	2011/8/29	66	± 3.0	84	± 2.8
玄米	2015/1/1	17.9	± 0.517	58.6	± 0.805
玄米粉末	2016/4/1	21.0	± 0.672	102	± 1.12

*1 基準日:放射能濃度を算出するための一定の日

*2 基準日に補正した濃度

NaI(Tl)検出器(PerkinElmer社製2480WIZARD2ガンマカウンター)では、20分または60分測定した。PerkinElmer社製のZantei7換算表ソフトウェアを用い、Food screening改良(540-830keV)換算式により放射性セシウム濃度を、zantei7c換算式により¹³⁴Cs、¹³⁷Csおよび放射性セシウム濃度を求めた。Ge検出器(OXFORD社製CNVDS30-35195、CANBERRA社製GC3520)では、10,000秒あるいは80,000秒測定し、 γ 線核種分析を行った。

牛肉と玄米粉末は、NaI(Tl)検出器の測定日とほぼ同じ日にGe検出器で測定した。それぞれの定量値とその計数誤差を表2に示し、玄米は、試料搬入時に検出された濃度をNaI(Tl)検出器の測定日(2017/5/1)に補正した。牛肉は、2011年の検査時(表1)より5.4年経過したため、半減期が2.062年の¹³⁴Csは16%程度、半減期が30.174年の¹³⁷Csは88%程度に減少していた。これらは、理論値どおりに減衰しており、牛肉試料は冷凍保管中の変質や放射性物質の損失が無いことが分かった。NaI(Tl)検出器で20分測定した結果を表3aに、60分測定した結果を表3bに示した。試料は、3回あるいは4回繰り返し測定し、その平均値と標準偏差を表記した。濃度20Bq/kg以上では、zantei7cで求めた¹³⁴Cs、¹³⁷Csおよび放射性セシウム

表2 再測定等したGe半導体検出器による¹³⁴Cs、¹³⁷Csおよび放射性セシウムの濃度

試料名	基準日*1	Bq/kg*2					
		¹³⁴ Cs		¹³⁷ Cs		放射性セシウム	
牛肉（肩ロース）	2017/1/5	20.6	± 1.39	130	± 3.49	150	
牛肉（牛友スネ）	2017/1/12	11.3	± 0.400	72.4	± 0.842	84	
玄米*3	2017/5/1	8.21	± 0.236	55.6	± 0.763	64	
玄米粉末*3	2016/12/27	16.4	± 0.524	101	± 1.10	120	

*1 基準日:放射能濃度を算出するための一定の日

*2 基準日に補正した濃度

*3 再測定せず、試料搬入時に測定した定量値を基準日における放射能濃度に補正した

表3 NaI(Tl)検出器による¹³⁴Cs、¹³⁷Csおよび放射性セシウムの濃度

a. 20min測定

試料名	測定回数 n	供試料量 g	Bq/kg						
			¹³⁴ Cs *1		¹³⁷ Cs *1		放射性セシウム*1	Food screening改良放射性セシウム*2	
			mean	SD	mean	SD		mean	mean
牛肉（肩ロース）	3	19.32	23	± 4.9	130	± 3.7	160	180	± 7.4
牛肉（牛友スネ）	4	21.05	2.4	± 4.5 (ND)*3	71	± 3.7	74	100	± 13
玄米	4	18.64	0.12	± 0.25 (ND)	60	± 5.6	60	85	± 6.9
玄米粉末	3	13.14	7.2	± 7.3 (ND)	110	± 8.1	110	150	± 5.9

b. 60min測定

試料名	測定回数 n	供試料量 g	Bq/kg						
			¹³⁴ Cs *1		¹³⁷ Cs *1		放射性セシウム*1	Food screening改良放射性セシウム*2	
			mean	SD	mean	SD		mean	mean
牛肉（肩ロース）	3	19.32	22	± 3.5	130	± 8.6	160	180	± 6.7
牛肉（牛友スネ）	4	21.05	4.7	± 4.5 (ND)*3	67	± 2.4	72	100	± 1.8
玄米	4	18.64	1.1	± 2.2 (ND)	58	± 4.0	60	87	± 6.4
玄米粉末	3	13.14	15	± 11 (ND)	110	± 3.9	120	150	± 12

*1 zantei7cにより算出した¹³⁴Cs、¹³⁷Csおよび放射性セシウムの濃度

*2 Food screening改良により算出した放射性セシウム濃度

*3 ND: Not Detectable

濃度はGe検出器での定量値と非常に良く一致し、20分測定で十分な精度の定量値が得られることが確認できた。また、¹³⁴Csは、Ge検出器で16Bq/kg未満の試料（表2）では、検出限界値を下げるために測定時間を20分から60分に長くしても検出されることは無かった（表3 a, b）。このことから、緊急時におけるNaI(Tl)検出器による測

定時間は、20分が適当と考えた。放射性セシウム濃度が100Bq/kg以下では、NaI(Tl)検出器でzantei7cによる定量値は、Ge検出器よりいずれの試料も小さくなる傾向が認められた。zantei7cにより算出される定量値は、Ge検出器の定量値と非常に良く一致しているが、今回の調査では、100Bq/kg以下の食品で過小評価になる可能性が

示唆された。一方、Food screening改良により算出された放射性セシウム濃度は、どの試料においても、Ge検出器の定量値より高くなった。食品のスクリーニング調査としては、安全側に配慮し、こちらの方法を採用した方が良いと考えられた。

今回調査した食品は、種類、試料数および濃度範囲などで限定的ではあるが、Ge検出器とNaI(Tl)検出器による定量値は非常に良く一致していた。今回使用したNaI(Tl)検出器は、試料の自動交換が可能で、測定時間も短く、1日に多数の試料測定ができることから、緊急時調査には非常に有用であることが分かった。しかし、原子力関

連施設等の事故時の測定対象は、ウラン、トリウム系列の天然放射性核種等を多く含む土壌や重量の小さい大気浮遊じんといった環境試料が想定される。現在、Zantei7換算表はあくまでも食品試料にのみ適用とされているため、環境試料への適用の可否については、今後、さらに検討していく必要がある。

参考文献

- 1) 厚生労働省医薬品食品局食品安全部監視安全課：食品中の放射性セシウムスクリーニング法の一部改正について事務連絡（平成23年11月10日）