

# 食品放射能測定における自然放射能の影響

日本環境モニタリング株式会社 代表取締役 理学博士 圓入 敦仁

## はじめに

平成23年3月に発生した福島第一原子力発電所の事故以来、東日本では食品中の放射能汚染への懸念から、自治体をはじめ食品メーカー、流通、小売り、市民団体から個人まで、食品中の放射能を測定し、安全性を確認しようとする動きが活発化している。

食品中の放射能測定は、原子炉から環境中に放出され生物圏サイクルに取り込まれた放射性セシウム( $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ )によるガンマ線の定量を、主たる目的とする。放射能測定に用いられる測定装置には、ガンマ線エネルギーの分解能が極めて高い高純度ゲルマニウム(HPGe)半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリー、及びヨウ化ナトリウ

ム(NaI(Tl))シンチレーション検出器を用いたスペクトロメトリーが、3・11後の東日本にて広く用いられている。シンチレーション検出器には、NaIの他にもヨウ化セシウム(CsI)やランタンプロマイド(LaBr)やプラスチックシンチレーションが挙げられるが、分解能や検出効率等の性能、検出器そのものに含まれる放射性物質の影響等を考慮すると、NaI(Tl)検出器が食品・環境放射能を迅速に測定する為には十分な性能を有し、経済的にも最も適した検出器である。

ヨウ化ナトリウムシンチレーション検出器はゲルマニウム半導体検出器に比べエネルギー分解能が低いものの、放射性セシウムや天然放射性核種である放射性カリウム( $^{40}\text{K}$ )を検出する為には十分な性能を有しており、いわゆる「スクリーニング検査」や「簡易検査」を目的として、1千台以上が過去1年間で東日本に導入されている。測定の方法論、または測定装置の性能要件の例としては、厚生労働省が「食品中の放射性セシウムスクリーニング法」(以下「スクリーニング法」と表記する)。「スクリーニング法」には、測定装置の性能を示す要件として「測定下限値」及び「スクリーニングレベル」を定義し計算式が示される。同法ではこれら定義に適合し得る分析機器の種類は規定していないが、その例としてヨウ化ナトリウムシンチレーション検出器スペクトロメーターを挙げている。スペクトロメーターは、マルチチャンネルアナライザー(MCA)を用い、ガンマ線カウン

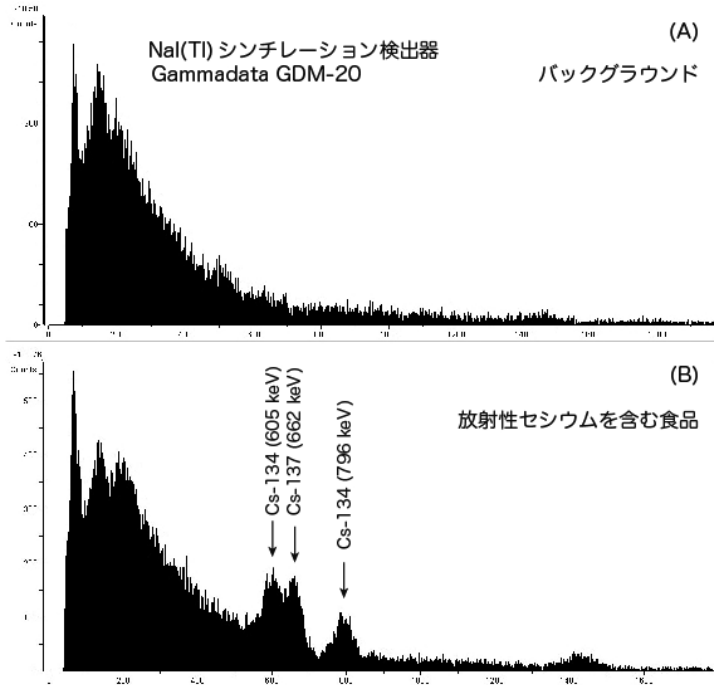
を興味がある放射性核種のウインドウにつき解析し、各核種の放射能を計算するものである。NaI検出器を使用した場合は、測定装置及びソフトウェアの性能にも依るが、迅速に放射性セシウムのアクティビティ(ベクレル値)を定量することができる。

一方、HPGe検出器はその性能(分解能)の高さから、いわゆる「確定検査」対応の測定装置として用いられ、シンチレーション検出器にて放射性セシウムが検出、又は基準値に対しスクリーニングレベル以上の値であれば、ゲルマニウム半導体検出器で再測定とする自治体が多いようである。これは「スクリーニング法」に、「放射性セシウムが基準値よりも確実に低いと判断できない検体は、ゲルマニウム半導体を用いたガンマ線スペクトロメトリー等による試験法を用いて検査結果を確定するものとする」と記載されていることに依る。

「スクリーニング法」では「測定下限値(3 $\sigma$ )」を放射性セシウムの合計が25Bq/kg(基準値の1/

2012.10 産業と環境 33

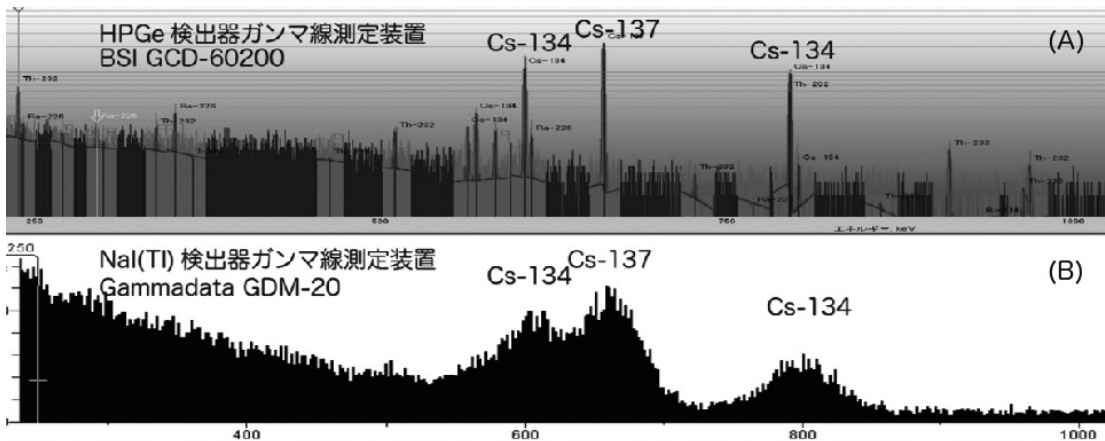
図1 NaIシンチレーション検出器を用いたガンマ線スペクトル例



4) 以下であること」と定めており、自治体にてこれに用いる測定装置は、「スクリーニング法」の要件を満たす性能を有する必要があり、その性能確認方法は同法に定められており、放射能測定装置取扱各社はこれに基づいた性能確認を自主的に行い、その性能をカタログに記載し販売する。

しかしながら「スクリーニング法」に基づき性能確認を示した場合においても、NaIシンチレーション検出器のエネルギー分解能の制約から、食品サンプルの放射性セシウムを測定する際、自然放射能の影響を完全に排除することがで

図2 HPGe半導体及びNaI(Tl)シンチレーション検出器によるスペクトルの比較



きない。この為、食品サンプルを測定した場合、放射性セシウム(Cs-134, Cs-137)や放射性ヨウ素(I-131)のウィンドウにつき正味のカウン트가大きく正に振れ、誤検出判定となる可能性がある。

「スクリーニング法」では天然放射性核種の影響については「正のバイアス」として容認し、補正の必要は無いとしている。つまり、同法は、放射性セシウムが含まれない食品サンプルを測定した場合に、天然放射性核種の影響でセシウムの値が出るような誤検出を可とする。しかしながら、過度の正のバイアスは、測定装置を提供するメーカーや取扱店としては避けたいと考え、補正すべき事項があれば導入し、誤検出を抑え性能向上を目指す。

本稿では、ヨウ化ナトリウムシンチレーション検出器によるガンマ線スペクトロメトリを用いた食品放射能測定につき、測定データの扱い、及び天然放射性核種により放射性セシウムやヨウ素が誤検出判定となる原

理と対策法を解説する。

## 放射性セシウムを含むサ ンプルのスペクトル例

福島原発に由来する放射性セシウムを含む食品サンプルは、ガンマ線スペクトロメトリーを用いた測定により、特徴的なスペクトルを観察することができる。図1にヨウ化ナトリウムシンチレーション検出器によるスペクトル例を示す。図1Aはバックグラウンドのスペクトルで、サンプル測定のカウントから減算し、サンプル正味のカウントを得る為に用いる。食品サンプルに放射性セシウムが含まれず、且つ自然放射能の影響が低ければ、バックグラウンドと同様のスペクトルとなる。

図1Bは放射性セシウムが含まれる食品サンプルのスペクトルである。福島原発に由来する放射性セシウムが食品サンプル中に含まれる場合、光子ピークを3本、明確に認識することができる。即ち662keVにCs-137が一本、605keV及び796keVにそれぞれイールド（放出率）が高いCs-134のピークが見い

だされる。Cs-134の半減期は約2年、Cs-137は約30年なので、原発事故から10年後にはCs-134は95%以上崩壊しCs-137のピークのみが相対的に目立つように観測されるものと考えられる。

次に、高純度ゲルマニウム（HPGe）半導体検出器によるスペクトル（図2A）と、ヨウ化ナトリウムシンチレーション検出器（図2B）を比較する。図2では、比較のため横軸（エネルギー、keV）のスケールは同じである。両者の分解能の違いは、放射性セシウムの3つのピークを比較すれば一目瞭然である。即ち、NaI検出器では放射性セシウムの3つの光子ピークが山のような形状であることに對し、HPGeでは各ピークの幅が狭く、それぞれ単独にシャープな形状である。このように分解能が高いため、HPGe半導体検出器を用いた場合には1Bq/kg以下のアクティビティを定量することが可能である。

## ウラン系列の天然放射性 核種を含むサンプルのス ペクトル例と対処法

### (1) スペクトル例

主要な自然放射能の発生源は、ウラン（U-238）系列（ラジウム系列）、トリウム（Th-232）系列、及びカリウムである。ここでは特に、食品や水の放射性セシウム測定につき影響を及ぼす場合が多いウラン系列の崩壊過程に特徴的なガンマ線につき解説する。図3に、ウラン系列による光子ピークが認められるサンプルのスペクトル例を示す。図3A、Bともに浄化過程を経っていない天然水で、採取2〜3日後にスペクトルを取得したものである。

図3A、Bともに609keVにウラン系列のBi-214によるピークが認められる。これはCs-134の605keV（図1B）に近接しており、両者が共存する場合、分解能が低いNaIシンチレーション検出器にて弁別することは不可能である。更には、図3A、Bともに352keVにピークが見られる。これはウラン系列

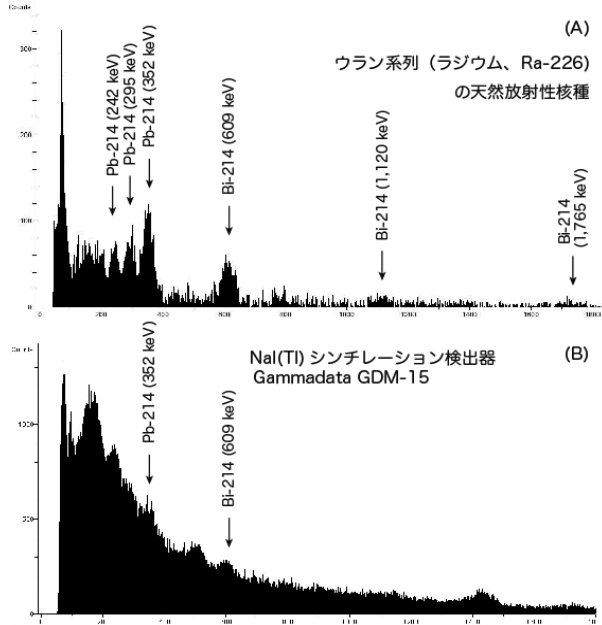
Pb-214によるピークで、I-131のピーク（365keV）に近接する。これもNaIシンチレーション検出器にて弁別することはできない。

即ち、NaIシンチレーション検出器を用い食品や水のサンプルを測定し、図3に示すようなスペクトルが認められる場合、これら天然放射性核種のカウントが、ソフトウェアの解析範囲設定により放射性セシウムや放射性ヨウ素としてカウントされることになる。

更には、このように自然放射能が食品や水サンプルに含まれる場合、1.76MeVにもウラン系列のBi-214によるピークが見られ、トリウム系列のTh-232による光子ピークが2.16MeVに見られる場合があり、これらのコンプトン効果によりセシウムのエネルギー範囲を含むチャンネルのカウントが全体的にかさ上げされる。

(2) 天然放射性核種による「誤検出」  
食品サンプルのガンマ線を測定する際、多くのソフトウエアではサンプルからバックグラウンドのカウントを減算し、サンプル正味

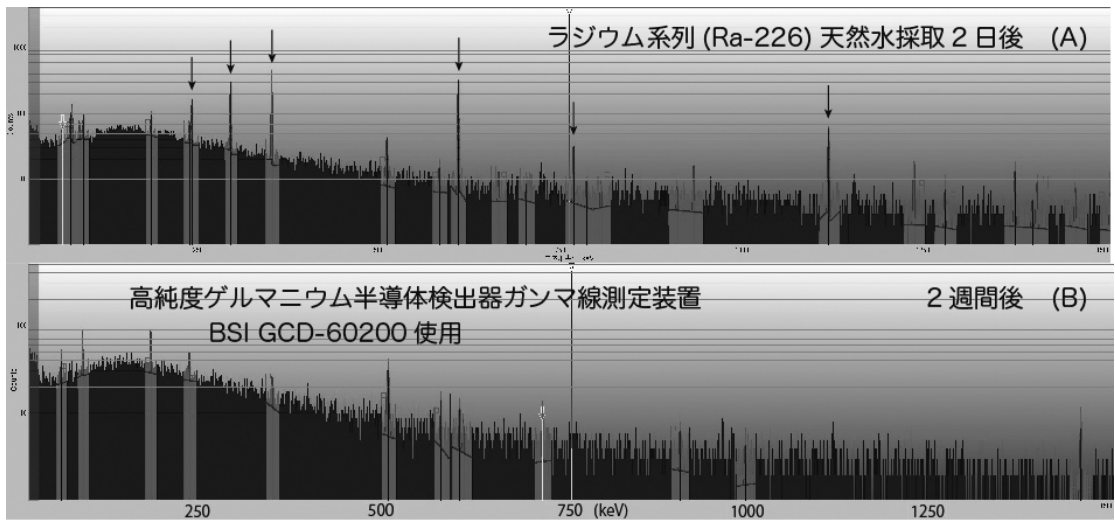
図3 ウラン系列（ラジウム系列）の放射性核種を含む水サンプルのスペクトル



のカウンタから各核種のアクティビティ（ベクレル値）を計算する。このとき、上記のように天然放射性核種の影響により、放射性セシウムや放射性ヨウ素のウィンドウにおけるカウントレート（単位時間当たりのカウンタ）がバックグラウンドのカウントレートより高い場合、正味のカウンタが正に振れ、誤検出となる場合がある。

放射能の計算方法は各社ソフトウェアにより様々であり、天然放射性核種による誤検出の値が見られる際、Cs-134のみが検出される場合や、Cs-137のみが検出となる場合、または両核種とも低い値が出ることもある。図2に示されるように、NaI検出器はゲルマニウム半導体検出器よりエネルギーの分解能が低いため、放射性セシウムの主要な光

図4 ラジウム系列の放射性核種を含む水サンプルのスペクトル比較

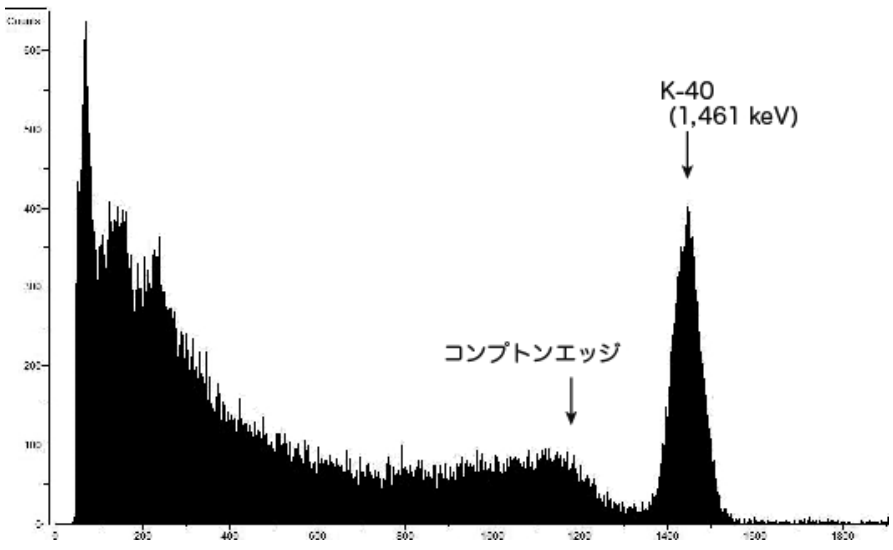


子ピークが複合する。Cs-134は796 keVのピークから計算される場合が多いが、食品サンプルにCs-134が含まれない場合においても、天然放射性核種の影響によりサンプル正味のカウンタがCs-134のウィンドウにつき正に振れ、Cs-134として計算される場合がある。一方、605 keV (Cs-134)と662 keV (Cs-137)の複合ピークについては、ソフトウェアに採用される計算方法により、Bi-214 (609 keV) によるカウンタがCs-137として計算される場合がある。

(3)天然放射性核種の判定法  
食品や水サンプルにウラン系列の天然放射性核種が含まれ、放射性セシウムが検出との測定結果になった場合、サンプル中に放射性セシウムが含まれなければ、ガンマ線スペクトルには図3のようなピークが見られる。例えばCs-134に値が出た場合、それ



図5 塩化カリウム試薬のスペクトル



がCs-134によるものであれば、図3に見られるような600 keV付近のピークのみならず、800 keV付近にもピーク(Cs-134の796 keV)が見られるはずである(図1B)。

の目視により放射性セシウムは不検出であると判断する。以上のように天然放射性核種の影響により、放射性セシウムや放射性ヨウ素が誤検出となるサンプル例として代表的なものには、岩

ところが図3には800 keV付近に単独ピークが見られず、図3A、Bともに600 keV付近のピークはウラン系列(Bi-214)によるカウントであることが推測できる。

更には、環境中に福島第一原発由来のCs-134が存在すれば、必ずCs-137が存在し、662 keVにもピークが見られるはずである。図3においては662 keVのピークも認められない為、スペクトル

石中を通過した井戸水や湧水が挙げられる。また、地域的なものであると推測されるが、野菜類や原乳にも図3に示すようなスペクトルが見られることがある。

このようなサンプルを測定した場合、ウラン系列のラドン(Rn-222)は半減期が3.8日であるため、1週間程度放置すれば、徐々に自然放射能のカウントレイトが低下することを観察することができる。図4にラジウム系列の核種によるピークが顕著に見られるサンプルの測定例を示す(ゲルマニウム半導体検出器使用)。図

4Aはサンプル採取2日後に測定したもので、Pb-214(242 keV)、Bi-214(609 keV)、Pb-214(242 keV)、Bi-214(609 keV)のピークが認められる。一方、図4Bは同サンプルをマリネリ容器に密封保存し、2週間後に測定したものである。これらラジウム系列のピークは見いだされず、放射性崩壊が進んでいることを観察することができる。

NaIシンチレーション検出器を用い食品や水の放射能を測定し

図3のようなスペクトルが得られた場合、そのサンプルを用いて260 keV(390 keV)のウィンドウにおけるカウントレート(cps)を時系列に記録することにより、ラドン濃度の低下を追跡することができる。また、このような測定実験により、自然放射能による放射性セシウムや放射性ヨウ素の誤検出を確認することができる。測定装置の使用時間に余裕があれば、このような実験を行いガンマ線測定につき理解を深めたい。

以上のようなサンプルそのものに自然放射能(ラジウム系列)による影響が見られる事例以外に、バックグラウンドのカウントレイトが変動し、測定値に影響を及ぼす場合がある。これは局所的なものであると考えられるが、大気中のラドン濃度に日周変動が見られる場合や、或る一定期間ラドン濃度が高くなる現象を筆者は国内にて観察している。この原因として、地殻中の応力歪の解放に起因する地表面からのラドン散逸量の変化や、表層の気象条件等が挙げられる。

## 放射性カリウムの影響

ヨウ化ナトリウムシンチレーション検出器を用いた食品の放射能測定において、放射性セシウムが「誤検出」となる原因の多くは、放射性カリウム ( $K-40$ ) の存在である (存在比  $0.012\%$ )。カリウムは生物の必須元素であり、食品にはカリウムが少なからず含まれる。

図5に、塩化カリウム試薬をNaI検出器で測定したスペクトルを示す。図1Aのバックグラウンドと明確に異なる点は、 $1,460\text{keV}$ に $K-40$ のピークが見られ、それより低いエネルギーではコンプトン散乱の寄与によりカウントが増加していることである。

図5から図1Aを減算し正味のカウントから放射性セシウムのウインドウにつきアクティビティ (Bq値) を計算した場合、 $K-40$  のコンプトン効果による影響で正味のカウントは正になり、放射性セシウムが検出 (つまり誤検出) となる。

厚生労働省「食品中の放射性セ

シウムスクリーニング法」(1)では、 $K-40$ による「正のバイアス」を容認し、これによる「誤検出」の補正は必要無いとしている。

しかしながら理化学機器メーカーの使命は正しい値を出す測定装置を提供することであり、ユーザー側も食品を測定する度に誤検出があれば、測定結果の判断に難儀する。

$K-40$ のコンプトン効果に係る補正は、ベクレル値が既知の線源を用いて補正係数を得ることに可能である。しかしながら、 $Cs-134$ が共存する場合、 $605\text{keV}$ 及び $796\text{keV}$ のサムピークが $1.4\text{MeV}$ に出るため、これによるカウント増が $K-40$ のウインドウに重なる。つまり、これは解が存在しない循環計算になる。これを解決するためには、イタレーションを用い近似解を求めるアルゴリズムをソフトウェアに導入することが必要となる。

## おわりに

本稿では、ヨウ化ナトリウムシ

ンチレーション検出器ガンマ線スペクトロメトリーによる、食品に含まれる放射性セシウムの測定につき、自然放射能の影響につき具休例を示し、その対処法を解説した。

NaI検出器は「簡易検査」の位置づけで食品スクリーニングに用いられることが多いが、測定器の性能、特にソフトウェアに導入される機能により、正確に放射性セシウムのアクティビティを定量することが可能である。このためには、厚生労働省「スクリーニング法」を満たす性能のみならず、解析ソフトウェアには $Cs-134$ と $Cs-137$ の弁別定量アルゴリズム、及び放射性カリウムによるコンプトン効果の補正アルゴリズムが導入されていることが不可欠である。更には納入業者の技術力、そして何よりも測定業務に従事する担当者の積極的な学習と理解が、データを正しく解釈するための最も効果的な処方箋である。

福島原発に由来する放射性物質に汚染された東日本の土壌は、見えない健康への不安を我々の孫の世代のみならず、何代も先の世代

まで残すことになる。人工放射性物質による長期にわたる低線量被曝の健康への影響は、前例はチェルノブイリのみであり、不明な点が多い。五感で感知することができない放射能の影響を極力抑えるためには、放射性セシウムが検出される食品の摂取を避けることが必要となる。 $Cs-137$ の半減期が30年であることを考慮すると、食品中の放射性物質測定は、食品の安全性を確認する為にも、原料から製品まで、今後長期にわたり継続して実施されることが望ましい。

## 謝辞

図4に示したスペクトルは、株式会社山田製油様(京都市)からご提供頂いた、京都府内にて採取された井戸水のサンプルを測定したものである。

## 参考資料

(1)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」(平成24年3月1日)  
<http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/2r985200000246ev.html>