

シンチレーション検出器を用いた食品中の放射性セシウム測定におけるラドンの影響と評価法

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

福島第一原子力発電所にて複数の原子炉がメルトダウンを起し、放射性物質が環境中に放出された事故から2年が経過した。農産物や水産物、一般食品に含まれる放射性物質への懸念から、平成24年4月には食品中の放射性物質につき食品衛生法に基づく新たな基準値が設定された¹⁾。特に放射性セシウムについては、一般食品の新基準値が100 Bq/kg、牛乳及び乳児用食品が50 Bq/kg、飲料水が10 Bq/kgという低い値が示された。

これに伴い、一般食品に含まれる放射性セシウムが確実に基準値よりも低いことを判定するための「食品中の放射性セシウムスクリーニング法²⁾」(以下「スクリーニ

ング法」)が改訂され、平成24年4月から適用された。主に東日本の各自治体は「スクリーニング法」に基づき、シンチレーション検出器によるガンマ線スペクトロメーターを用いた食品中の放射性セシウムを測定し、厚労省から結果が逐次報告されている³⁾。

厚労省「スクリーニング法」では、基準値が100 Bq/kgの一般食品につき、同法を満たす機器性能として2つの基準、即ちスクリーニングレベル及び測定下限値を定義し、確実に基準値を下回ることを測定の目的とする。その分析法例として、ヨウ化ナトリウムNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメーターを挙げている。スクリーニングレベル及び測定下限値の定義については「スクリーニング法」に詳説されているが、測定下限値として放射性セシウム

(Cs-137及びCs-134)の合計が25 Bq/kg以下と定められており、スクリーニングレベルと併せ性能基準を満たす測定装置一覧が日本アイソトープ協会から公表されている⁴⁾。

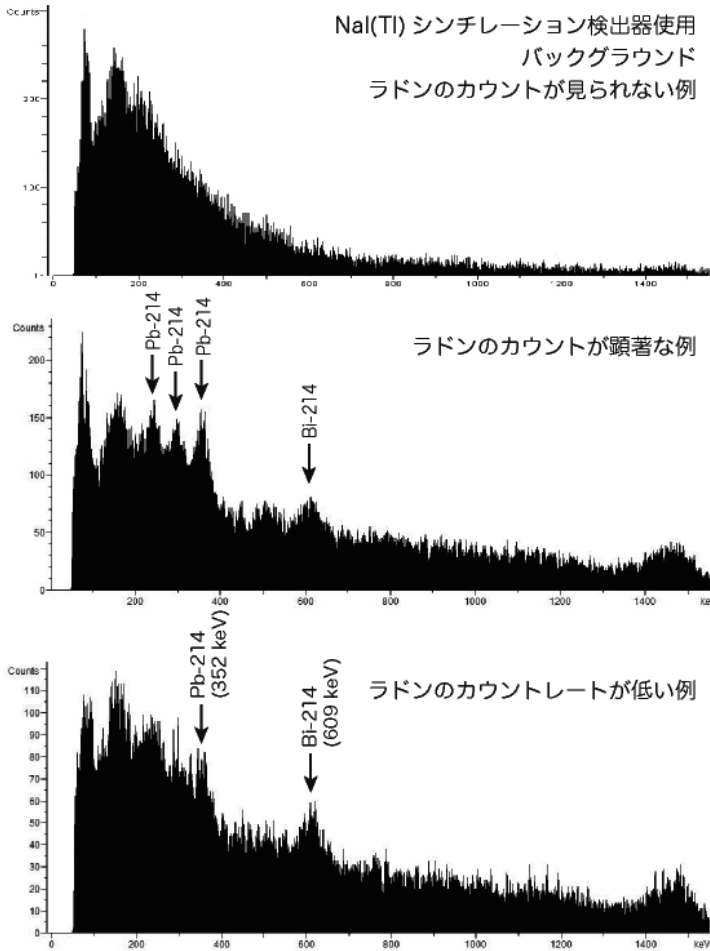
上記のように「スクリーニング法」では、ガンマ線カウンタデータから機器の性能基準を評価する手順が示されるが、試験データを取得する際にガンマ線測定に影響を与え得る外部環境(測定装置設置環境)についての試験基準は示されていない。外部環境のうち、気温等の室内気候及び電磁両立性等の機器性能基準については、平成25年3月に公示された日本工業規格「シンチレーション式放射能測定器―食品中のγ線放出核種(JIS Z 4342)」に示される。

しかしながら、NaI検出器を

用いた食品放射能測定の実務においては、天然放射性核種による放射性セシウム測定値への影響を考慮することが必要となる。サンプル中に含まれる天然放射性核種には、主に放射性カリウム(K-40)、ウラン(ラジウム)系列、及びトリウム系列が挙げられる。これらが存在することにより、コンプトン効果及び放射性セシウムのウィンドウに重なる光子ピークにより、NaI検出器では放射性セシウムのウィンドウにおける正味カウントレートが正に振れ、「スクリーニング法」に示される測定下限値(放射性セシウム合計)を越える値の誤検出が報告される可能性が排除できない。

NaIシンチレーション検出器による放射性セシウム測定において、妨害核種として天然放射性核種による影響については上記規格JIS Z 4342には述べられておらず、更には「スクリーニング法」では放射性カリウム(K-40)の影響は正のバイアスとして容認している。ウラン系列(ラドン)及びトリウム系列による放射性セシウム測定への影響について

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



は、両文書とも言及していない。本稿では、NaI検出器を用いた食品放射能測定に影響を及ぼす自然放射能の中でも、ウラン系列の天然放射性核種の影響により放射性セシウムが誤検出となる事例を紹介し、その原因と対策、及び外的要因として大気中ラドンの評価方法を述べる。本稿は、「スク

リーニング法」に基づくNaIシンチレーション検出器によるガンマ線測定業務の従事経験を有し、文献⁽⁵⁾を学習した読者を想定する。NaIシンチレーション検出器を用いガンマ線を測定する際、自

放射性セシウムの測定における自然放射能の影響

然放射能が放射性セシウムの測定に及ぼす影響及び判定法については、本誌2012年10月号特集⁽⁵⁾を参照されたい。本稿では、ウラン系列の天然放射性核種による放射性セシウム測定への影響につき議論する。

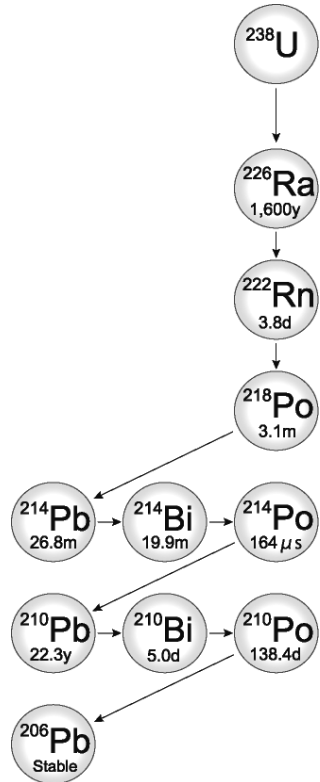
NaIシンチレーション検出器にて農産物や生乳、井戸水等のサンプルを分析した場合、図1に示すようにウラン系列に特徴的な光子ピークが観察されることがある。ウラン崩壊系列(図2)では、半減期が1,600年のラジウム(Ra-226)、同3.8日のラドン(Rn-222)を経て、鉛-214(半減期26.8分)、ビスマス-214(半減期19.9分)に壊変し、更に安定同位体の鉛-206に向かう。

NaIシンチレーション検出器にて農産物や生乳、井戸水等のサンプルを分析した場合、図1に示すようにウラン系列に特徴的な光子ピークが観察されることがある。ウラン崩壊系列(図2)では、半減期が1,600年のラジウム(Ra-226)、同3.8日のラドン(Rn-222)を経て、鉛-214(半減期26.8分)、ビスマス-214(半減期19.9分)に壊変し、更に安定同位体の鉛-206に向かう。

ラドンが存在する場合、Bi-214による609 keVのピークがCs-134の605 keVに近接する。従い、Bi-214及び低いアクティビティのCs-134が共存する場合、NaIシンチレーション検出器では両者を弁別できない。また、Pb-214による352 keVの光子ピークはI-131の365 keVに近接するため、I-131のアクティビティを定量するルーチンが含まれるガンマ線解析ソフトウェアでは、ラドンの存在によりI-131を誤検出判定する場合がある。更にはBi-214の1.76 MeVによるコンプトン効果により、放射性セシウムのウインドウを含むスペクトルのカウントが若干かさ上げされる。

食品サンプルにラドンが含まれることにより放射性セシウムが誤検出となる場合、サンプルを閉鎖空間に、例えばマリネリ容器内に密封、保存すればRn-222の半減期3.8日に従い、娘核種によるカウントレートが遁減する。サ

図2 ウラン (U-238) 崩壊系列の概念図



アイソトープ手帳 (日本アイソトープ協会編) より抜粋、一部改変

バックグラウンド減算後のCs-134 (605 keV) 及びI-131 (365 keV) のウインドウにはラドンによるカウントが入り、正味のカウントレイトは正に振れる(図3)。この結果、ガンマ線スペクトル解析ソフトウェアにより、放射性セシウムやヨウ素が検出と判定される可能性がある。

ガンマ線スペクトルの解析

は、NaIシンチレーション検出器による放射性セシウムの測定を継続する上で、測定結果の解釈をめぐる混乱を防ぐには重要な作業となる。次章では、ガンマ線スペクトロメーターを用いてラドンの変動を評価する手法を述べる。

想定されていない。従い、ラドン濃度の変化は、ガンマ線スペクトロメーターを用いて評価することになる。

ガンマデータ社製ガンマ線測定装置GDMシリーズに用いられる解析ソフトウェアWinDASでは、大気中及び水中のラドン測定モードが付属し、ラドンのBq値を定量することが可能である。

サンプルを開放系に放置すれば、サンプル内のラドンは拡散により物理的半減期より早く減少し、攪拌すれば更に短時間にて消失することが実験により確認されている。ラドンがサンプルに含まれる場合は、その影響を上記作業により数日間で低減することができる。

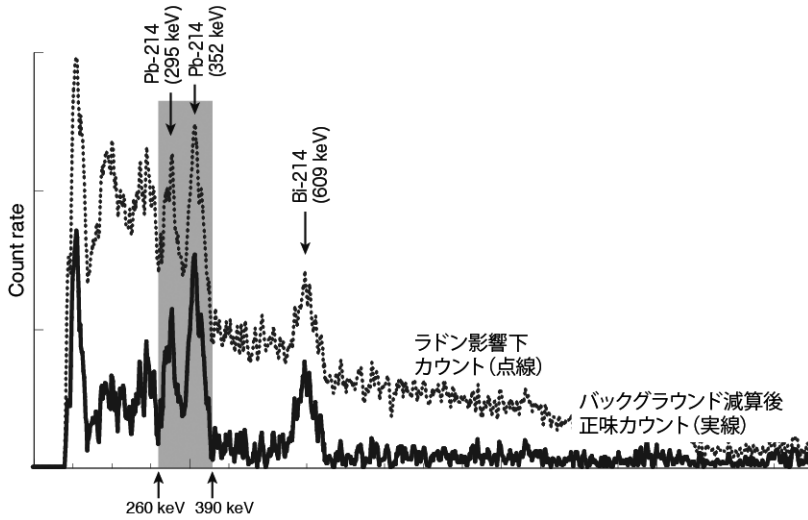
一方、大気中のラドン濃度は様々な要因で変動し、ガンマ線スペクトロメーターを用いた測定環境に影響しカウントレイトに反映される。即ち、NaIシンチレーション検出器設置場所(測定室)におけるラドン濃度の変化が、放射性セシウムの測定に影響する場合がある。例えば、バックグラウンド減算用のカウンタデータ(スペクトル)取得時に室内環境のラドン濃度が低く、サンプル測定時

上記のようなラドンによるカウントの影響が見られる場合におけるスペクトル判定法については、参考文献⁶⁾に述べる通りである。ラドンによるガンマ線カウンターの増加が、サンプルそのものによるものか、又は上述のような測定装置設置場所における室内環境の変化によるものかを考察すること

ラドン濃度の時系列データを取得する場合は、通常ラドン測定専用のアルファ線スペクトロメーターを使用する。ラドン測定装置では、ウラン崩壊系列(図2)においてPb-214の親核種であるポロニウム-214、及びBi-214の娘核種Po-214によるカウントから、ラドン濃度を求める。しかしながら、NaIシンチレーション検出器ガンマ線スペクトロメーターを用いた放射性セシウム測定の現場においては、ラドン測定の為にアルファ線スペクトロメーターを追加で導入することは

次にラドンの変動を評価する有効な手法は、連続的に取得したガンマ線のカウントデータから、ラジウム系列による放射性核種の光子ピークを選択し、そのエネルギー範囲におけるカウントレイトを計算することにより時系列データを得ることである。NaIシンチ

図3 室内ラドン濃度の変化によるガンマ線スペクトルの差異



レーシオン検出器を用いた場合、次に述べる手法により、カウントレートの相対変化からラドンの時系列データを取得し、ラドンの変動をモニタリングすることができ

る。図3に示すように、NaIシンチレーション検出器は、ウラン系

列（ラジウム系列）の放射性核種 Pb-214 及び Bi-214 によるガンマ線をカウントする。この中でもイールド（放出比率）が高い Pb-214 の光子ピーク（295 keV 及び 352 keV）につき、260 keV ~ 390 keV のエネルギー範囲におけるカウントレ

ート（cps）を時系列に計算することにより、ラドンの相対変化を記録することができ

る。ガンマ線解析ソフトウェア WindAS の意の時間カウントを連続的に取得できる機能を備えており、例えば1時間単位のカウントデータを時系列に得ることができ

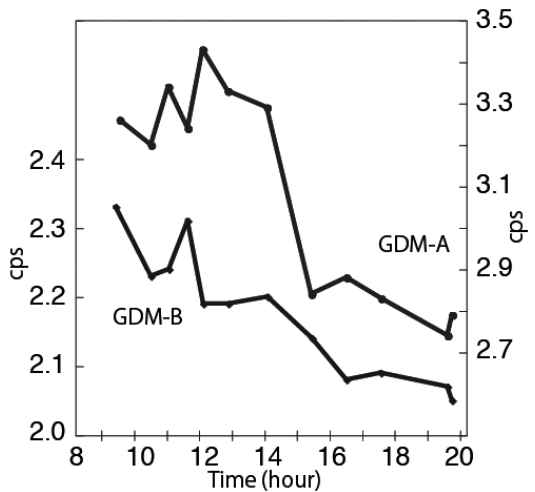
る。2台の測定装置による時系列データは時間とともにカウントレートが通減する同様の傾向を示す。上記エネルギー範囲（260 keV ~ 390 keV）におけるカウントレートの通常の

バックグラウンド減算後正味カウント（実線）

図4は国内におけるNaIシンチレーション検出器ガンマ線スペクトロメーター装置（ガンマデータ社製）設置室内にて、1日の間に顕著にラドン濃度の変化がみられる事例である。ここでは日中連続的にカウントデータを取得し、上に述べるエネルギー範囲におけるブランク測定のカウントレート（cps）を時系列にプロットした。カウントレートの変動が外的要因（測定装置設置場所における環境変化）であることを客観的に検証するために、検出器及び遮蔽体のスペックが異なるガンマ線スペクトロメーターを2台室内に設置し、カウントデータを取得した。

ここに示す実験期間は1日のみであるが（図4）、数時間にわたる時系列データにより、ラジウム崩壊系列のPb-214によるカウントレートの変化を明確に読み取

図4 Pb-214のウィンドウにおける
カウントレートの相対変化



において、外的要因としてラドン（Rn-222）の崩壊生成物であるPb-214によるカウントに変化が生じる原因として、設置場所周辺の空間ガンマ線量率の変化、及び装置設置室内におけるラドン濃度の変化が挙げられる。前者の場合、例えば降水により一時的に大気中に含ま

れるラドンが地上に降下し、空間ガンマ線量率が上昇する⁽⁷⁾。しかしながら、食品放射能測定用のシンチレーション検出器は通常鉛遮蔽内に設置されており、降水による空間線量率増加の程度では、遮蔽の効果によりPb-214のウィンドウにおけるカウントレートに大きな変化は見られない。

従い、図4に見られるようなカウントレートの変化は、室内に於ける大気中ラドン濃度の変化を反映しているものと考えられる。ラドン（Rn-222）は気体であるため、何らかの要因により室内のラドン濃度が上昇すれば、ガンマ線測定装置遮蔽体内にラドンが侵入し、シンチレーション検出器によるカウントレートが上昇する。

大気中ラドンの起源には、土壌からの逸出及び大陸由来の気塊が挙げられ、ラドン濃度の日周変動や季節変動に反映する⁽⁸⁾⁽⁹⁾。また、屋内の場合では、建材に由来するラドンや換気状況が、室内のラドン濃度に影響すると考えられる⁽¹⁰⁾。

一方、表層のラドン濃度は地殻変動、即ち地殻中の応力歪みの開放イベントに起因する地表へのラドン散逸により変動すると考えられ、地震との関連性が議論されている⁽¹¹⁾。

おわりに

本稿では、NaIシンチレーション検出器を用いた食品中の放射性セシウム測定における自然放射能の影響につき、ウラン崩壊系列のラドン（Rn-222）の評価方法を解説した。ガンマ線スペクトロメーターでは、サンプル中又は環境中のラドン濃度が高い場合、Pb-214及びBi-214による光子ピークを観察することができ

る。シンチレーション検出器ガンマ線スペクトロメーターを用いて、放射性セシウムの測定を目的とする場合、ラドンは妨害核種として厄介な存在であり、本稿に述べた手法にて評価する必要がある。同時に、ガンマ線スペクトルのカウントデータを解析することにより、NaIシンチレーション

また、大気中ラドン濃度には季節変化が観測されることが報告されている⁽⁸⁾⁽¹²⁾。これら観測記録によると、本邦においては10月～1月にラドン濃度が上昇し、日周変動の振幅が高くなる傾向にある。これは秋季～冬季における大陸由来の気塊到来、及び冬季には夜間地表付近の大気が鉛直方向に混合せずにラドン濃度が高くものと解

ラドン濃度変動の要因

1 シン検出器を用い食品中の放射性セシウムを測定する際、図1及び図3に示すようなラドンによるカウントが認められる場合には、それが食品サンプルに含まれるラドンに因るものか、又は測定環境（ラドン濃度）の変化に因るものかについては、上記のように連続したブランク測定及びスペクトル解析により評価することができ

ガンマ線測定装置の設置場所

ガンマ線測定装置の設置場所

ガンマ線測定装置の設置場所

ガンマ線測定装置の設置場所

検出器を用いてラドンの変動をモニタリングすることができる。

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、東日本を中心に国内には千台以上のNaIシンチレーション検出器によるガンマ線スペクトロメーターが導入された。本稿に述べたように、NaIシンチレーション検出器はラドン濃度の相対変化を記録する為には十分な性能を有しており、これはラドンモニタリングの全国観測網が整備されたことになる。

これらガンマ線スペクトロメーターを活用し連続的にカウントデータを取得することにより、全国におけるラドン濃度の季節変化や日周変動の把握、更には地殻変動と表層ラドン濃度との関連性について考察するためのデータを蓄積することができる。全国に配備されたNaIシンチレーション検出器ガンマ線スペクトロメーターを有効活用する一案として、同装置を使用したガンマ線測定によるラドンのモニタリングを提案したいと考える。

参考資料

- (1)厚生労働省「薬事・食品衛生審議会食品衛生分科会放射性物質対策部会資料」(平成24年2月24日)
<http://www.mhlw.go.jp/stf/shingi/2-98520000023nbs.html>
- (2)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/2-985200000246v.html>
- (3)厚生労働省「食品中の放射性物質の検査結果について」
<http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/2-98520000029gee.html>
- (4)日本アイソトープ協会「食品中の放射性セシウムスクリーニング法に対応可能な検査機器の情報について」
<http://www.jriis.or.jp/products/info/706.html>
- (5)圓入敦仁「食品放射能測定における自然放射能の影響」、産業と環境、41(10)、33-38(2012)
- (6)小堤大介・山本裕一「食品放射能の自主検査における精度管理」、食品と開発、48(5)、16-18(2013)
- (7)日本原子力研究開発機構敦賀本部「環境放射線モニタリング情報、降雨と空間γ線量率」
http://www.jaea.go.jp/04/turuga/jturuga/realtime/unchange_file/expln_4.html
- (8)吉岡勝廣・飯田孝夫「大気中ラドン濃度の周期性長期変動の主要な影響因子―海洋と陸地の違い―」、保健物理、42(1)、53-62(2007)
- (9)土田智宏ほか「柏崎刈羽地域及び佐渡における大気中ラドン濃度と空間線量率上昇時における大陸由来ラドンについて」、新潟県放射線監視センター年報、6、58-61(2008)
- (10)三好猛雄・巻出義紘「東京都心部における大気中のラドン濃度変動」、東京大学アイソトープ総合センター1、33(2)、5-7(2002)
- (11)細田正洋ほか「屋内ラドンの高濃度化の要因調査―熊本市の場合―」、保健物理、43(4)、349-353(2008)
- (12)小池裕也「大気中の放射性鉛同位体濃度の変動要因」、東京大学アイソトープ総合センター1、38(3)、5-8(2007)
- (13)石川徹夫ほか「地震とラドン濃度異常(Ⅰ)―従来の観測例―」、保健物理、43(2)、103-111(2008)