

A. 研究目的

原子力施設等で異常事態が発生し、放射性ヨウ素等の放射性物質の異常な放出あるいはその恐れがある場合に、「原子力施設等の防災対策について」（原子力安全委員会、平成 12 年 5 月一部改訂）では飲食物の摂取制限措置を講ずるか否かの検討を開始する目安として「飲食物摂取制限に関する指標」を示している。

事故発生初期の時期には、この飲食物摂取制限値の放射能濃度を確認できる迅速な放射線測定が要求される。また、放射性物質の放出が停止し、その周辺環境への影響がある程度予測される事故後期の放射能測定では正確な測定が要求される。

これらのことを踏まえ、本研究では、「原子力施設等の防災対策について」、「緊急時環境放射線モニタリング指針」（平成 12 年 8 月一部改訂）、科学技術庁マニュアルである放射能測定法シリーズ等を基に、食品に特化するための、事故の初期には主としてサーベイメータによる飲食物の簡易測定を中心に、後期ではゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線放出核種の分析および放射化学分析によるウラン、プルトニウム分析に係わる測定機器、測定手順、測定結果の評価等を検討した。

B. 方法

本研究においては、「原子力施設等の

防災対策について」、「緊急時環境放射線モニタリング指針」、科学技術庁マニュアルである放射能測定法シリーズ等を基にして、食品中の放射能の安全性評価に必要なデータを、より迅速かつ正確に収集するための測定法について検討した。

C. 結果

緊急時における食品中の放射能の測定法を最適化した結果は以下の通りである。

1. 調査対象

1.1 調査対象地域と食品の選定

原子力施設等で異常事態が発生し、放射性ヨウ素等の放射性物質が大量に放出される事故発生初期に放射能汚染を受ける飲食物は、既に流通している食品ではなく、「緊急時環境放射線モニタリング指針」によれば、以下に示す最大汚染地域および汚染防護対策地域から生産された主として牛乳、ほうれん草等の葉菜類、果実類及び生鮮魚介類、等である。

- ①最大空間放射線量率の出現予測地点とその近傍
- ②大気中の放射性物質の最大濃度の出現予測地点とその近傍
- ③風下軸約 60° セクター内における大気中の放射性物質の最大濃度の出現予測地点を中心とした風下軸の地表面直交線上

ただし、この範囲は当初の予想であり、わずかな時間経過で風向は変化するので、限定することはできない。調査対象地域

の範囲は「原子力施設等の防災対策について」に記載されている、「防災対策を重点的に充実すべき地域の範囲」(EPZ)内の、影響があった地点の試料を対象とする。

次に、食品の選定には、施設周辺の地産地消の特産品である、特産品、季節、摂取量等を考慮して選定する。特に、摂取量については、旧厚生省が実施している平成10年度国民栄養調査成績の結果をまとめた「国民栄養の現状」(健康・栄養情報研究会 編)を参考にして国民の摂取量の多い食品の内、葉菜類では、ほうれん草、はくさい、キャベツ、果実類では、柑橘類、りんご、牛乳を測定の対象とする。また、出穂時期が事故時と重なる場合には玄米も対象とする。

一方、事故の後期には、前記の農畜産物の他、地表面に沈着した放射性物質の地中での浸透拡散を考慮して、根菜である芋類、じゃがいも、大根、玉ねぎ、にんじん、等、精米、小麦類、魚介類、肉類、卵、等を測定の対象とする。なお、その他少量摂取(消費)の食品であっても「きのこ類」のように放射性核種を濃縮する食品にも留意する必要がある。

試料の採取に当たっては、採取者、日時、場所、試料名、採取方法、量、サーベイメータによる線量率等、可能な限り詳細な情報を記録しておく必要がある。

1.2 調査対象放射性核種

事故の初期における食品中の放射能濃度測定のための目的は食品の放射能汚染の有無を迅速に確認することと「飲食物摂取制

限に関する指標」に示された濃度を越す恐れのある試料を選別するスクリーニングにある。事故の後期における食品中の放射能濃度測定のための目的は飲食物の放射能汚染の有無の確認だけでなく放射能濃度を迅速に、できるだけ正確に求め、飲食物の摂取による内部被ばく線量を推定することにある。

事故の初期では「飲食物摂取制限に関する指標」に示された、放射性ヨウ素、放射性セシウム、ウラン、プルトニウムおよび超ウラン元素のアルファ核種が測定の対象になる。

①放射性ヨウ素については、ICRP Publication 63等の国際的な動向を踏まえ、甲状腺線量50mSv/年を基礎として、牛乳・乳製品、野菜類(根菜、芋類を除く)の2食品カテゴリーに分けられており、放射能濃度としては牛乳・乳製品は300 Bq/kg以上、野菜類(根菜、芋類を除く)は2000Bq/kg以上である。ここでは、これらの放射能濃度が測定できるサーベイメータ及びゲルマニウム半導体検出器による方法を検討する。

②放射性セシウムについては、実効線量5mSv/年を基礎に、全食品を牛乳・乳製品、野菜類、穀類および肉・卵・魚・その他の4食品カテゴリーに分け、さらに我が国におけるこれらの食品の摂取量、事故時の環境への放出を考慮して指標値が算出されている。放射能濃度として、牛乳・乳製品は200Bq/kg以上、野菜類、穀類および肉・卵・魚・その他の食品は500Bq/kg以上である。事故の初期には放射性ヨウ素と放射性セシウムが混在す

る。従って、放射性セシウムの測定は、事故初期に実施されるサーベイメータによる放射性ヨウ素測定のみで十分スクリーニングできるため、ここでは検討はしない。

一方、本研究では、緊急事態が発生するとしても、それにより大量の放射性物質が1ヶ月以上も環境中に放出し続けることは想定しない。その後の測定には、公衆の線量限度（年間 1mSv）に達する飲食物の放射能濃度を十分検出し得る測定目標値（定量下限）を設定することにした。

事故後1ヶ月以降の1年間、食物摂取による内部被ばく線量を平常時における施設周辺の住民の健康・安全を確保することの担保として用いられる、周辺監視区域外線量限度の1mSv/年を基準にする。この実効線量を放射性ヨウ素を除いたセシウムについて、牛乳・乳製品、野菜類、穀類および肉・卵・魚・その他の4食品群にそれぞれ0.1mSv/年を割り当て、これを測定可能なゲルマニウム半導体検出器をもちいたガンマ線スペクトロメトリによる方法を検討する。

なお、「飲食物摂取制限に関する指標」には、牛乳・乳製品、野菜類、穀類および肉・卵・魚・その他の4食品群について、ウラン、プルトニウムおよび超ウラン元素のアルファ核種の指標値も示されており、これらの分析方法についても検討した。

2. サーベイメータによる測定

2.1 測定器と測定対象

サーベイメータは検出器により感度、測定範囲、エネルギー特性等が異なるので、使用目的や測定しようとする放射性核種、放射線強度に応じた測定器を選ぶことが必要である。

「緊急時環境放射線モニタリング指針」によると

(1) 電離箱式サーベイメータ

ガンマ線にエネルギー特性（30keV～3MeVで±10%）および方向特性は良いが、測定下限が1μSv/h程度であるため「飲食物摂取制限に関する指標」で示された放射性ヨウ素、放射性セシウムの濃度の測定はできない。

(2) GM計数管式サーベイメータ

ガンマ線に対するエネルギー特性は50keV～3MeVで+200～-50%程度のものが多い。計数率表示、線量率表示のものおよび両目盛りを備えたものがあるが、注意すべき事は長い分解時間（100～300μs）のために起こる高線量率での窒息現象がある。計数率は1～1000s⁻¹、線量率範囲は0.1μSv/h～300μSv/h程度のもので一般的である。

GM計数管式サーベイメータにより、食品の放射能汚染の有無を迅速に確認することは可能である。しかし、ガンマ線に対する感度が低いので、「飲食物摂取制限に関する指標」に相当する濃度の試料を選別することは困難であり、サーベイメータの計数率-線量換算校正は過大評価となる。また、他の短寿命核種が混在する場合にも過大評価となる通常Cs-137線源で行われて

おり、事故の初期の段階で予想される I-131 の測定には、ことに留意すべきである。

(3) NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータ

ガンマ線に対する感度は高いが、エネルギー依存性は電離箱式、GM 計数管式に比べて劣る。最近ではエネルギー補償型サーベイメータが市販されている。計数率表示、線量率表示のものおよび両目盛りを備えたものもある。

① エネルギー補償型 (DBM 方式)

NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータ

現在、国内で市販されているものの大部分はこの形式のサーベイメータである。

低エネルギーのガンマ線に対する感度を落としていることから、計数率表示型に比べて放射性ヨウ素に対する感度は数倍悪くなっている。線量率範囲は $0.01 \mu\text{Sv/h} \sim 30 \mu\text{Sv/h}$ 程度のものが一般的である。この型のサーベイメータには、空気吸収線量率 Gy/h 表示のものと 1cm 線量当量率 Sv/h 表示のものがある。

② 非 DBM 型 NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータ

NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータの γ 線に対する計数効率は約 30% で、測定線量率範囲は $0.01 \sim 100 \mu\text{Sv/h}$ 程度である。比較的古い機種にはこの型のものがあり、現在でも使用されている。

2.2 NaI(Tl)シンチレーション式サーベ

イメータによる放射性ヨウ素の測定

使用機器類、校正方法、等の詳細は「緊急時における放射性ヨウ素測定法」(昭和 52 年制定) および現在改訂中のマニュアルを参照されたい。

2.2.1 機器および器具

- ・ NaI(Tl)検出器の大きさが $25\text{mm} \phi \times 25\text{mm}$ (1 インチ $\phi \times 1$ インチ)程度、1cps まで読み取れる計数率表示型サーベイメータ

- ・ チェック用比較線源または I-131 模擬線源：市販の Cs-137 密封線源または Ba-133、Cs-137 を適当な割合で混合し、スクリーニングレベルの 5 倍程度 ($1000 \sim 3000\text{Bq}$) にした模擬線源。

- ・ 2L ポリエチレンびん、2L マリネリ容器、0.5~1L 程度のタッパ容器

- ・ 時計、記録用紙、ポリエチレン袋、ペーパータオル等

2.2.2 校正用 I-131 標準溶液線源の調製

(1)担体溶液を水酸化リチウム 20mg、亜硫酸ナトリウム 20mg、ヨウ化ナトリウム 50mg を水 1L に溶解して作成する。

(2)牛乳、葉菜類他の食品類の測定に用いる容器 (例えば、牛乳の場合は 2L ポリエチレンびんまたは 2L マリネリ容器、葉菜類および他の食品類は 0.5 から 1L 程度のタッパ容器または 2L マリネリ容器) に、測定試料と同容積となるように担体溶液を入れる。

(3)ピペットを用いて、I-131 標準溶液の一定量を測定容器に加え、牛乳の放射能

濃度は 1500Bq/L、葉菜類、他の食品類は 5000Bq/L 程度にする。

(4)よく攪拌後、蓋をし、ビニールテープ等で密封する。

2.2.3 機器校正

(1)チェック用比較線源 (I-131 模擬線源) による機器作動状態の確認

サーベイメータの使用に先立ち、メーカーの取扱説明書に従って操作すること。また、現場での測定では、牛乳等、液体試料中の放射性ヨウ素の検出感度を上げるため検出器を試料溶液中に挿入する。このため検出器をポリエチレン袋で二重に包み、汚染を防止する。以下に測定手順を示す。

- ①サーベイメータの電源スイッチを入れ、バッテリーの有無および高圧 (H.V.) の指示値を確認する。
- ②単位表示を計数率 (s^{-1}) に切り替え、測定レンジを適切に選択し、時定数 10 秒に設定する。
- ③チェック用比較線源または I-131 模擬線源を検出器の先端に密着させ、時計を見ながら、30 秒以上経過後、10 秒間隔で指示値を 3 回読み取り、その値を記録し、平均値を計算する。
- ④バックグラウンドの測定のため、地上 1 m の高さに固定し、時定数を 30 秒に設定する。90 秒後に読み取りを開始する。時計を見ながら 30 秒間隔で指示値を 3 回読み取り、その値を記録し、バックグラウンドの平均値を計算する。
- ⑤チェック用比較線源または I-131 模

擬線源の測定値からバックグラウンド値を差し引き、正味の値を計算し、記録する。

⑥機器作動および感度確認測定を年 1 回以上定期的に行う。線源の減衰補正を行った後、当初の測定値と比較して、差が 10% 以内であることを確認する。なお、10% 以上の違いがある場合には、故障等の恐れがあるため、業者に修理・校正を依頼する。

(2)牛乳、葉菜用 I-131 標準溶液による校正

- ①ヨウ素-131 標準溶液の入ったタバ容器では検出器を容器上面の中央部に密着させる。2L マリネリ容器では容器中央部の凹んだ所に検出器を密着させる。2L ポリエチレンびんでは検出器を標準溶液中に 5cm 以上挿入する。
- ②定数を 10 秒に設定し、検出器を試料に密着させる。30 秒後から読み取りを開始する。時計を見ながら、10 秒間隔で指示値を 3 回読み取り、その値を記録し、平均値を計算する。
- ③標準試料の平均値からバックグラウンド値を差し引き、スクリーニングレベルに相当する放射能濃度 (牛乳では 300Bq/L、葉菜では、2000Bq/kg) における正味の読み取り値または換算係数 (Bq/L,kg/cps) を計算し、記録する。

上記方法による I-131 の検出限界濃度は、牛乳で 100Bq/L、葉菜で 1000Bq/kg である。

3. 各種食品のサーベイメータによる測定

3.1 牛乳

原乳と殺菌・均質化等の加工処理をした市販乳を 2L ポリエチレンびんまたは 2L マリネリ容器に入れ、2L ポリエチレンびんの場合は NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータの検出器を牛乳中に挿入し、測定する。2L マリネリ容器の場合は容器中央部の凹んだ所に検出器を密着させ、測定する。測定操作を以下に示す。

- (1) 採取または購入地点名、採取時刻等を記録する。
- (2) 測定試料 2L を 2L ポリエチレンびんまたは 2L マリネリ容器に入れ、蓋をする。外側の汚れ等をペーパータオルでふき取る。容器に地点名、採取時刻等を記入する。
- (3) 時定数を 30 秒に設定し、検出器を試料に密着させる。90 秒後から読み取りを開始する。時計を見ながら、30 秒間隔で指示値を 3 回読み取り、その値を記録し、平均値を計算する。水の入った測定容器について試料と同じ条件で測定し、バックグラウンドの平均値を計算する。
- (4) 試料の測定値からバックグラウンド値を差し引き、正味の値を計算し、記録する。正味の値 (cps) と換算係数 (Bq/L/cps) から I-131 濃度を求める。
なお、I-131 濃度を求めるための機器校正が行われていない NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータを用いた

場合、試料の測定値がバックグラウンドより 20%程度高い値を示せば試料中に放射能があると判定し、ゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリによる精密核種分析を行う。

3.2 葉菜等の野菜

野菜の測定前の処理方法は測定結果の評価に非常に重要である。このためその前処理は主として、食品衛生法の食品、添加物等の規格基準 (平成 11 年 11 月 26 日厚生省告示第 239 号) の表 4 の第 1 欄の各食品については、それぞれ各第 2 欄の試料の調製に従う。ただし、キャベツ (芽キャベツを除く) 及び「はくさい」については、外側変質葉及びしんを除去したものに、また、「ごぼう及びサルシフィー」については、葉部を除去し、泥を水で軽く洗い落とし細切するにする。その他の食品については、科学技術庁制定、測定法シリーズ 24「緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法」(平成 4 年制定) に準じて行う。

試料は、予めハサミ、カッター、包丁等で細切し、2.2.3 機器校正で用いた同じ 0.5~1L 程度のタッパ容器または 2L マリネリ容器に入れて測定する。測定操作を以下に示す。

- (1) 採取または購入地点名、採取時刻等を記録する。
- (2) 予め 0.5~1L 程度のタッパ容器または 2L マリネリ容器の風袋重量をはかる。

(3) 採取または購入した葉菜はその大きさに応じ、必要ならハサミ、カッター、包丁等で細切する。

(4) 容器にできるだけ空隙を作らないように詰め（1L の容器に約 0.5kg が入る）、蓋をし、外側の汚れ等をペーパータオルでふき取る。

(5) 容器重量をはかり、先の風袋重量を差し引き、測定試料重量を求め、記録する。

これらの情報を容器に記入する。

(6) ビニールテープ等で蓋を固定し、ポリエチレン袋に入れて測定試料とする。

(7) 時定数を 30 秒に設定し、検出器を試料に密着させる。90 秒後から読み取りを開始する。時計を見ながら、30 秒間隔で指示値を 3 回読み取り、その値を記録し、平均値を計算する。放射能汚染の無い葉菜を入れた試料容器を用い、試料と同じ条件で測定したバックグラウンド値を差し引き、正味の値を計算し、記録する。正味の値 (cps) と換算係数 (Bq/kg/cps) から I-131 濃度を求める。

なお、I-131 濃度を求めるための機器校正が行われていない NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータを用いた場合、試料の測定値がバックグラウンドより 20%程度高い値を示せば試料中に放射能があると判定し、ゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリによる精密核種分析を行う。

4. ゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリによる核種分析

原子力発電所等で異常事態が発生し、放射性ヨウ素等の放射性物質が大量に放出される初期から事故状態の予測が確実になり、環境への放射性物質または放射線の放出が減少する事故の後期では、食品中の放射能測定は迅速性よりも食品中に存在する放射性核種の同定およびその放射能濃度をできるだけ正確に求め、飲食物摂取からの内部被ばく線量を推定することにある。

放射性核種の測定には通常、ガンマ線のエネルギー分解能の優れたゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリが用いられており、「緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリのための試料前処理法」が緊急時の放射性核種分析法の参考になる。

分析目標レベルの考え方として、事故後 1 ヶ月以降 1 年間での食物摂取による被ばくを実効線量で 1 mSv/年とする。これを放射性セシウムについて、牛乳・乳製品、野菜類、穀類および肉・卵・魚・その他の 4 食品群にそれぞれ 0.1 mSv/年を割り当てると、各食品群の Cs-137 濃度はそれぞれ 20、50、50、50 (Bq/kg,L) 以上となる。これを測定可能なゲルマニウム半導体検出器をもちいたガンマ線スペクトロメトリによる方法を検討する。

4.1 機器および器具

・ゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメーター式、ただし、検出器の相対効率 ϵ は15%以上とする。検出器外部からの放射線を低減するために、検出器周辺を10~15cm厚の鉛遮蔽体で囲む。

・I-131、Cs-137 容積線源：市販のI-131、Cs-137 標準溶液をピペットを用いて一定量を測定容器に加え、それぞれ200Bq/L、500Bq/L程度の放射能濃度とする。なお、作製方法の詳細は「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」（平成4年制定）を参照のこと。

・小型容器（50mm ϕ ×50mm：例としてU-8容器）、2Lマリネリ容器、0.5~1L程度のタッパ容器

・時計、記録用紙、ポリエチレン袋、ペーパータオル等

4.2 機器校正法

ゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメーターは検出器、高圧電源、線形増幅器、多重波高分析器、データ解析用計算機、遮蔽体、等から構成している。このため食品試料中の極低濃度のガンマ線放出核種を定量する場合には、遮蔽体を除く、各スペクトロメーターのコンポーネントの電気的な安定性が重要となる。また、最適条件で測定するためには、検出器の計数効率の決定、測定機器の調整、取り扱いも重要であり、高度な測定技術が要求される。これらの詳細は「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」（平成4年制定）に記載されているので参照のこと。

トリー」（平成4年制定）に記載されているので参照のこと。

(1) エネルギー校正

ガンマ線のエネルギー（E）とピーク中心チャンネル（p）の関係、 $E=f(p)$ 、を求めることを言い、予め測定するエネルギー範囲を決め、それに応じて γ 線のエネルギーが正確に知れているいくつかの核種（K-40、Co-60、Cs-137、Ba-133、等）を測定して $E=f(p)$ を求める。

(2) ピーク効率の校正（I-131、Cs-137 標準線源による比較法）

ピーク効率（ ϵ ）は、ガンマ線スペクトル中のI-131、Cs-137等着目するピークの計数率から測定試料の γ 線強度（放射能× γ 線放出比：1壊変あたり放出されるガンマ線の割合）を決定するために用いられ、次のように定義される。

$$\epsilon(E, X, \dots) = \frac{\text{ピークの計数率}}{\gamma \text{線強度}}$$

ピーク効率の校正は2.2.3 機器校正で示した、牛乳用I-131標準溶液線源またはBa-133、Cs-137を適当な割合で混合した模擬線源を使用する。

測定容器は、2.2「NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータによる放射性ヨウ素の測定」に用いた2Lポリエチレンびん、2Lマリネリ容器、0.5~1L程度のタッパ容器または容積100mL（50mm ϕ ×50mm）小型容器を使用する。

放射能標準溶液の入った上記測定容器をゲルマニウム半導体検出器のエン

ドキャップに載せ、I-131、Cs-137 のピーク面積（計数値）が 10,000 カウント以上になるまで測定する。ピーク計数率と I-131、Cs-137 の放射能からピーク効率（ ϵ ）を求める。なお、放射能の測定およびピーク面積の計算方法は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」（平成4年改訂）に準じている、メーカー供給の解析プログラムを使用できる。

4.3 測定試料の調製

野菜の測定前の処理方法は測定結果の評価に非常に重要である。食品中の I-131、Cs-137 放射能測定のための前処理方法は基本的には「緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法」に準じて行う。このマニュアルでは、①牛乳、②乳製品、③葉菜類、④海草類、⑤魚類、⑥穀類、⑦豆類、⑧肉類、⑨卵、が分析対象となっている。また、これらの食品の分析に必要な、機器、試薬等、試料搬入時の注意点、試料の前処理方法（葉菜類については試料相互間の汚染を防止するため水洗いはしない）、試料の保存方法、等が記載されているので参照されたい。

なお、食品衛生法の食品、添加物等の規格基準（平成11年11月26日厚生省告示第239号）の表4の第1欄の各食品については、それぞれ各第2欄の試料の調製に従う。ただし、キャベツ（芽キャベツを除く）及び「はくさい」については、外側変質葉及びしんを除去したものに、また、「ご

ぼう及びサルシフィー」については、葉部を除去し、泥を水で軽く洗い落とし細切するにする。

試料は、予めハサミ、カッター、包丁等で細切し、2.2.3 機器校正で用いた同じ 2L ポリエチレンびん、2L マリネリ容器、0.5~1L 程度のタッパ容器または容積 100 mL (50 mm ϕ ×50 mm) 小型容器に入れて測定する。測定操作を以下に示す。

4.4 ゲルマニウム半導体検出器による測定

放射能の測定およびピーク面積の計算方法は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」（平成4年改訂）に準じて行う。

測定時間は、ゲルマニウム半導体検出器の相対効率、使用する測定容器（試料量）、検出目標値および I-131、Cs-137 以外の高エネルギーガンマ線放出核種の存在（コンプトンバックグラウンドレベルに影響）等に依存する。ここでは Cs-137 の分析目標レベルを、先に示したように、牛乳・乳製品、野菜類、穀類および肉・卵・魚・その他の4食品群についてそれぞれ 20、50、50、50 (Bq/kg, L) とし、測定には相対効率 15%程度の検出器を、測定容器に 2L マリネリ容器を使用した場合の測定操作の概略を以下に示す。

予め 2L マリネリ容器の風袋重量をはかり、これに食品試料をマリネリ容器内に空隙が生じないよう均等に充填する。

再度、重量をはかり、風袋重量を差し引いて測定供試料量とする。

①測定試料を検出器エンドキャップに載せ、約 2000 秒間測定する。また、原則として 1 週間毎に検出器に何も載せず、2 日以上測定し、バックグラウンドとする。

②測定スペクトル中から適当なピーク 3 本以上を選択し、これらを用いて γ 線エネルギーとピーク位置の関係を表すエネルギー校正曲線 (2 次式) を作成し、計算で I-131、Cs-137 のピーク領域を求める。

③I-131、Cs-137 のピーク領域内の計数値を積算してピーク面積 (カウント数) とその計数誤差、 $N \pm \sigma$ を計算する。

④バックグラウンドの測定結果において、ピーク探査によって I-131、Cs-137 のピークが認められピーク面積が計数誤差の 2 倍を超えた場合は、試料のピーク面積から引算する。計算には、試料の前後に測定したバックグラウンドの平均値を用いる。

⑤測定試料当りの放射能 (A) は④の処理を施したピーク面積 (N) を測定時間 (t) で除し、これを更に 4.2 機器校正法、(2) ピーク効率の校正で求めたピーク効率 (ϵ) と I-131、Cs-137 の γ 線放出比 (a) で除して求める。食品中の放射能濃度 (C) およびその誤差 (δC) は測定試料当りの放射能 (A) を測定供試料量 (kg,L) で除して求める。但し、測定から試料採取または購入時への放射能減

衰補正項を f_d とする。

即ち、

$$A = (N/t) / (\epsilon \cdot a) \cdot f_d$$

$$\delta A = (\sigma/N) \cdot A$$

$$C = A \pm \delta A / (\text{kg,L})$$

4.5 測定時間と定量可能レベル

ゲルマニウム半導体検出器を用いて I-131、Cs-137 のを定量する場合、定量可能レベルは、検出器の相対効率、測定容器 (試料量)、検出目標値、高エネルギーガンマ線放出核種の存在、等に依存する。特に、緊急時には I-131、Cs-137 のピークと同じまたは近接するピークを放出する放射性核種ならびにコンプトンバックグラウンドレベルを高める高エネルギーガンマ線放出核種等多くの放射性核種の存在が予想されるため、事故の種類または食品の汚染状況により定量可能レベルは変動する。「緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法」に記載された定量可能レベルを表 1、2 に示す。なお、表 1 の緊急時とは 1986 年 4 月 26 日に旧ソ連のチェルノブイル原子力発電所爆発事故により汚染した環境試料の測定に基づくものである。

表 1 より、緊急時 (多核種検出時) において、マリネリ容器 (2L) を用い、1 時間測定した時の定量可能レベルは、食物摂取による被ばくを実効線量で 1mSv/年とし、これを牛乳・乳製品、野菜類、穀類および肉・卵・魚・その他の 4 食品群にそれぞれ 0.1mSv/年を割り当てた場合の各食品群の Cs-137 濃度であるそ

れぞれ 20、50、50、50 (Bq/kg, L) を十分クリアできることが判る。

また、表 2 より、平常時のように放射性核種が少ない場合には、食物摂取による実効線量が $10\mu\text{Sv}/\text{年}$ までの極低濃度の食品の放射能分析が可能である。この値は発電所用軽水炉の通常運転における環境への放射性物質から施設周辺の公衆の受ける線量目標値の年間 $50\mu\text{Sv}$ を十分下回った数字である。

5. 放射性ストロンチウム分析

原子力発電所等の事故の後期では、食品中に存在する放射性核種の同定およびその放射能濃度をできるだけ正確に求め、飲食物摂取からの内部被ばく線量を推定することにある。事故後期の測定対象核種には、核分裂生成物である放射性セシウムやストロンチウムが挙げられる。特に、原子力施設から環境へ放出され、食品の放射能汚染を引き起こす恐れのある放射性ストロンチウムは Sr-89 (半減期: 50.5 日)、Sr-90 (半減期: 28.8 年) であり、これらはベータ線放出核種なので、ベータ線測定用試料の調製にあたって、放射能測定の妨害となるラジウム等の放射性核種や自己吸収に強く影響を及ぼすカルシウムの除去のための化学的分離や精製を行う必要がある。

放射性ストロンチウムの濃度レベルと調査時期にもよるが、食品の安全宣言のための根拠データとしての分析は主として、平常時のモニタリングに用いられている科学技術庁放射能測定法シリーズ 2「放射性ストロンチウム分析法」(昭和 58 年 3 訂) に記載されている発煙硝酸法、イオ

ン交換法、シュウ酸塩法、溶媒抽出法があるが、ここでは一般的に用いられている発煙硝酸法に準じて行う。本分析法は Sr-90 からの生成する Y-90 の成長時間を入れ、分離・精製時間に約 1 ヶ月を要するため、緊急時用の分析方法は「6. 緊急時のための迅速分析法」に記載した。

5.1 分析用試料の調製

放射性ストロンチウムの分析用試料は食品を 105°C で乾燥後、電気炉等により 450°C で 24 時間灰化したものを分析に供する。なお、食品衛生法の食品、添加物等の規格基準(平成 11 年 11 月 26 日厚生省告示第 239 号)の表 4 の第 1 欄の各食品については、それぞれ各第 2 欄の試料の調製に従う。ただし、キャベツ(芽キャベツを除く)及び「はくさい」については、外側変質葉及びしんを除去したものに、また、「ごぼう及びサルシフィー」については、葉部を除去し、泥を水で軽く洗い落とし細切するにする。

5.2 試薬・装置

発煙硝酸法に用いられる主な試薬・装置を以下に示す。

試薬

担体：塩化ストロンチウム溶液、塩化カルシウム溶液、塩化バリウム溶液、塩化鉄(III)溶液、

薬品：塩酸、硝酸、発煙硝酸、シュウ酸、アンモニア水、水酸化ナトリウム溶液、炭酸ナトリウム、塩化アンモニウム、コロジオン、エチルアルコール、等

装置： 低バックグラウンド 2πガスフ
ロー型 GM 計数装置

5.3 発煙硝酸法

- (1) 灰化した灰試料、10g（野菜類 1kg 相当）にストロンチウム担体 50mg を加える。
- (2) 王水及び硝酸、各 50mL を加え、加熱し、乾固させる。灰を分解するため、硝酸を 50mL 加え、加熱し、蒸発乾固させる。この操作を 3～5 回繰り返す。
- (3) 残留物に塩酸(1+1)100mL を加え加熱、溶解し、これをろ別(5C)する。
- (4) ろ液に Ca 担体 250mg を加え、水酸化ナトリウム溶液にて液性を $> \text{pH}10$ とし、これに炭酸ナトリウムを加え、加熱し、炭酸塩を生成させる。
- (5) 炭酸塩を遠心分離後、沈殿に塩酸を加え、溶解する。
- (6) シュウ酸とアンモニア水で $\text{pH}4.2$ にし、シュウ酸塩沈殿を生成させる。
- (7) デカンテーションにより沈殿を分離後、これに発煙硝酸（比重：1.52）を加え、硝酸塩を生成させる。水冷ししばらく放置後、沈殿をガラスろ過棒（1G4）でろ別する。
- (8) 沈殿を水で溶解し、再び発煙硝酸を加え、硝酸塩を生成させる。カルシウムがなくなるまで、この操作を数回繰り返す。
- (9) 硝酸塩を水で溶解し、これに酢酸、酢酸アンモニウム溶液を加え、Ba 担

体 10mg を加え、加熱する。更に、クロム酸カリウム溶液を加え、クロム酸バリウム沈殿を生成させる。これをろ紙(5C)を用いてろ別する。この操作により Ra-226 等を共沈除去する。

- (10) ろ液にアンモニア水と炭酸アンモニウム溶液を加え、加熱し、炭酸ストロンチウム沈殿を生成させる。これをガラスフィルター（1G4）でろ別する。
- (11) 沈殿を塩酸に溶解し、Fe(III)担体 5mg、塩化アンモニウム 1g を加え、加熱、沸騰させる。これに、炭酸イオンを含まないアンモニア水を加え、水酸化鉄沈殿を生成させる。沈殿に Y-90 も共沈する。
- (12) 沈殿をろ紙(5A)を用いてろ別する。ろ液に炭酸アンモニウム溶液を加え、加熱し、炭酸ストロンチウム沈殿を生成させる。これを予め秤量済みのガラスろ過棒（1G4）でろ別する。
- (13) ガラスろ過棒（1G4）を 105°C で乾燥し、デシケーター中で放冷後、秤量し、ストロンチウムの化学回収率を求める。沈殿を塩酸で溶解し、これに Fe(III)担体 5mg を加え、2 週間放置し、Y-90 を十分に成長させる。
- (14) Y-90 が含まれる塩酸溶液に塩化アンモニウム 1g を加え、加熱、沸騰させる。これに、炭酸イオンを含まないアンモニア水を加え、水酸化鉄沈殿を生成させ、Y-90 を共沈させる（ミルクング時刻の記入）。
- (15) 水酸化鉄沈殿をろ紙(5A)を用いて

ろ別する。ろ液は、再ミルキング用に保存する。

(16) 水酸化鉄沈殿を塩酸に溶解し、これに塩化アンモニウム 1g を加え、沸騰させる。これに炭酸イオンを含まないアンモニア水を加え、水酸化鉄沈殿を生成させる。ストロンチウムを除去する。

(17) 水酸化鉄沈殿をろ紙(5A)を用いてろ別する。この操作で Y-90 からストロンチウムが除去できる。

(18) 水酸化鉄沈殿を塩酸に溶解し、これに塩化アンモニウム 1g を加え、沸騰させる。これに炭酸イオンを含まないアンモニア水を加え、水酸化鉄沈殿を生成させる。

(19) 水酸化鉄沈殿を予め、ろ紙 (5C、24mm φ) を載せた分離型フィルターでろ過する。ガラス管の内壁をアンモニア水 (1+100)、エチルアルコールで逐次洗浄する。

(20) ろ紙を取り外し、測定用試料皿に糊付けし、赤外線ランプで乾燥する。沈殿にコロジオンを滴下し、再び赤外線ランプで乾燥し、沈殿を固定する。

5.4 ベータ線測定

測定は原則として低バックグラウンド 2πガスフロー型 GM 計数装置を使用する。本法により、測定可能な放射能レベルは、測定装置の計数効率（後方散乱、自己吸収を含む）を 30%、バックグラウンド計数率を 1cpm、測定時間を 60 分とし、有意な放射能検出レベルを計数誤差の 3 倍とした

場合、0.037Bq である。なお、印加電圧、Q ガス流速の調整、等装置の取り扱いは一カーの取り扱い説明書に従って行うこと。以下に手順を示す。

- (1) U_3O_8 チェック用線源を用い、装置の動作が正常であることを確認する。
- (2) バックグラウンドを 60 分間測定する。
- (3) 測定用試料を 60 分間測定する。
- (4) 再び、バックグラウンドを 60 分間測定し、最初のバックグラウンド計数率との平均値を計算する。
- (5) 測定試料の全計数率からバックグラウンド計数率を差し引き、正味の計数率 n (cpm) および計数誤差 δn を求める。

$$n \pm \delta n = (N_s/T_s - N_b/T_b) \pm (N_s/T_s^2 + N_b/T_b^2)^{1/2}$$

ここで、 N_s は測定試料の全計数値、 T_s は測定試料の測定時間 (分)、 N_b はバックグラウンドの計数値、 T_b はバックグラウンドの測定時間 (分) である。

5.5 Y-90 の計数効率の決定

Sr-90 標準溶液の一定量をピーカーにとり、4.3 発煙硝酸法の Y-90 のミルキング操作に準じて測定用試料を調製し、測定する。Y-90 の計数率を Sr-90 の放射能 (dps) で除して計数効率 E を求める。

5.6 試料中の Sr-90 濃度

試料中の Sr-90 濃度の計算は次式により求める。

$$A \pm \delta A = (n_0 \pm \delta n_0) \cdot 100/E \cdot Y$$

ここで、 $n_0 \pm \delta n_0$ はミルキング時における Y-90 の計数率、 E は計数効率、 Y は

ストロンチウムの化学回収率(%)である。

6. 緊急時のための迅速分析法

緊急時環境放射線モニタリング指針（平成 12 年 8 月一部改訂）による第 1 段階のモニタリングにおいては、農畜産物、魚介類中の放射性ヨウ素、放射性セシウムに加え、放射性ストロンチウム、ウラン、プルトニウム等の濃度測定も要求されている。

平常時の環境放射線モニタリングにおいて、放射性ストロンチウムは「放射性ストロンチウム分析法」（昭和 58 年 3 訂）、ウラン分析は「ウラン分析法」（平成 8 年 3 月、1 訂）、プルトニウムは「プルトニウム分析法」（平成 2 年 11 月、1 訂）に準じて行うが、これらの方法は試料の前処理、分解・抽出、分離・精製および測定の前工程に 1 週間～1 か月程度を要する。放射性ストロンチウムは液体シンチレーションカウンタを用いた Sr-90 迅速分析法、ウラン、プルトニウム分析は ICP-MS（誘導結合プラズマ質量分析計）を用いた方法を検討した。

6.1 緊急時のための Sr-90 迅速分析法

ストロンチウムの分離のための第一の候補として、化学分離時間が短くてすむ溶媒抽出法が挙げられる。また、測定試料調製の容易な液体シンチレーションカウンタによる測定が迅速分析には適している。この方法は牛乳、ドライミルク等の灰試料 1g を処理した時、100 分間測定でおよそ 40mBq/g の Sr-90 が測定で

きる。以下に分析操作を示す。

なお、原子力発電所等の事故により Sr-90（半減期：28.8 年）が放出された場合には、Sr-90 よりむしろ Sr-89（半減期：50.5 日）の放射能が強い。このため、ストロンチウムをクラウンエーテル系の試薬（例：固相抽出ディスク）により他の妨害核種、元素から抽出分離し、水溶液の状態で Sr-89、Sr-90、Y-90 の 3 核種をチェレンコフ光測定により 2 回測定し、Sr-89、Sr-90 の放射能を決定することができる。牛乳、葉菜類等ジュース状の試料からストロンチウムを固相抽出ディスクに抽出する方法については、今後の検討課題の一つである。

6.1.1 分析操作

- (1) 灰試料 1g をビーカーにとり、イットリウム担体 10mg、ストロンチウム担体 10mg を加え、王水で分解する。蒸発乾固後、塩酸を加え残留物を溶解する。
- (2) ろ紙(5B)を用いてろ過し、ろ液を分液ロートに移し、ピスー(2-エチルヘキシル)リン酸 (HDEHP) - トルエン溶液 (2:1 容積比) と塩酸(1+11)を加え、1 分間振とうする。10 分間静置した後、水層を除く(ミルクング時刻記入)。
- (3) 新たに塩酸(1+11)を加え、1 分間振とうする。10 分間静置した後、水層を除く。
- (4) 塩酸(2+1)を加え、1 分間振とうする。10 分間静置し、水層を別の分液ロートに移す。

- (5) 残った有機層に対し、残った有機層に対し、操作(4)を繰り返す。
- (6) 水層を操作(5)の水層に合わせ、トルエンを加えて1分間振とう後、静置する。
- (7) 水層をビーカーに移し、アンモニア水(1+1)を加え、水酸化イットリウムを沈殿させ、これをろ別する。
- (8) 塩酸に溶解し、これにシュウ酸 2gを加え、アンモニア水でpH1.0~1.5に調整し、シュウ酸イットリウムを沈殿させ、これをろ別する。
- (9) 沈殿を塩酸(1+1)に溶解し、100mLポリエチレン(あるいはテフロン)びんに移し、100mLになるまで水を加え測定試料とする。

6.1.2 Y-90 標準線源の作製

- (1) ストロンチウム担体(50mg)、イットリウム担体(10mg)および塩化アンモニウム 10gを加えた100mL遠沈管に、Y-90とSr-90が放射平衡にあるSr-90標準溶液の約100Bqを正確に分取して加える。
- (2) 塩化アンモニウム 10g、アンモニア水でpH8にし、水酸化イットリウム沈殿を生成させる。
- (3) 5分間遠心分離する。
- (4) 沈殿を塩酸(1+1)に溶解し、100mLポリエチレン(あるいはテフロン)びんに移し、100mLになるまで水を加え測定試料とする。
- (5) 上記手順でバックグラウンド用測定試料を作製する。

6.1.3 チェレンコフ光測定

Y-90(2.28MeV)のチェレンコフ光測定での計数効率 E は化学クエンチングの影響を受けない特徴がある。

- (5) 上記手順でバックグラウンド用測定試料を作製する。

- (1) 標準線源、バックグラウンド用試料および測定試料をサンプルチェンジャにセットする。

- (2) 標準線源を検出部に送り込む。

- (3) Figure of Merit (FOM)が最大になるよう。増幅器ゲイン、下限ディスクリミネータ(LLD)、上限ディスクリミネータ(ULD)を設定する。

- (4) 計数誤差が1%未満になるように測定時間を設定し、標準線源の計数率 n_A (cpm) を求める。標準線源の放射能を N_0 (Bq) とすると、

$$\text{計数効率 } E = n_A / (N_0 \times 60).$$

- (5) サンプルチェンジャを動かして測定試料を検出部に送り込む。

- (6) 測定時間を t_s 分として J_s 回測定し、その都度、計数率 n_{s_i} (cpm) を求める。

- (7) サンプルチェンジャを動かしてバックグラウンド用試料を検出部に送り込む。

- (8) 測定時間を t_{BG} 分として J_{BG} 回測定し、その都度、計数率 n_{BG_i} (cpm) を求める。

- (9) 異常データの棄却を行い、正味計数率 n (cpm) およびその計数誤差 σ を計算する。

- (10) 測定試料の放射能 A および計数誤差 δA を求める。

(11) 試料中の Sr-90 濃度の計算は次式により求める。

$$A \pm \delta A = (n_0 \pm \delta n_0) \cdot 100/E$$

ここで、 $n_0 \pm \delta n_0$ はミルキング時における Y-90 の計数率、E は計数効率である。

6.2 ウラン分析法

食品試料の試料処理法は、科学技術庁放射能測定法シリーズ 14「ウラン分析法」(平成 8 年 3 月、1 訂) に準じて行う。以下に ICP-MS を使用する迅速分析法を示した。なお、ICP-MS はウランを高感度で測定できるが、分析供試料が少ない場合には、試料の不均一性によるデータのばらつきを生じる恐れがあるため、500℃で灰化した灰 5g を分析することとする。本法による食品の検出感度は灰 5g (約 500g 生) を用い、測定時間を 10 秒、バックグラウンド計数率を 5cps とした場合のバックグラウンド計数率の標準偏差の 3 倍とした場合、0.008 μ g ウラン/kg 生である。

6.2.1 前処理・測定試料の調製

- (1) 試料をピーカーに移し入れ、硝酸、過酸化水素で分解する。溶液を乾固(白色)し、これを硝酸(3+11)に溶解し、吸引ろ過する。
- (2) ろ液を 50mL メスフラスコに移し、標線まで水を加え、よく振り混ぜ測定用原液とする。
- (3) 測定用原液 1mL を 100mL メスフラスコに移し、内部標準としてビスマス

またはタリウム(1 μ g/mL)1mL を加え、硝酸(1+13)を標線まで加え、よく振り混ぜ測定溶液とする。

6.2.2 ICP-MS 測定

測定機器に関する注意、測定操作(装置の起動、測定条件の最適化、等)はメーカーの取り扱い説明書に従って行うこと。

- (1) 測定溶液をプラズマ中に噴霧し、ウランの m/z238 と同時にビスマスの m/z209 またはタリウムのイオン強度を測定し、ウランとビスマスまたはタリウムのイオン強度比を求める。再現性を確保するため、データの取り込み時間(積分時間=滞在時間×掃引回数)は最低 1 秒以上とする。測定を 5 回繰り返す。
- (2) 別に、検量線用標準溶液として、ウラン標準溶液(0.1 μ g/mL)の 0、2、4、6、8、10mL をそれぞれ 100mL メスフラスコにとり、内部標準としてビスマスまたはタリウムを(1 μ g/mL)1mL を加え、硝酸(1+13)を標線まで加え、よく振り混ぜ測定溶液とする。
- (3) 検量線用標準溶液を内部標準測定モードで測定し、検量線を作成する。但し、データの取り込み時間(積分時間=滞在時間×掃引回数)は試料溶液と同じにする。
- (4) 検量線を用い、試料のイオン強度比に相当するウラン量を求め、測定試料中のウラン濃度(μ g/mL)を求める。
- (5) 試料中のウラン濃度を次式に従って

て求める。

$$A(\mu\text{g/g})=n \times F/w$$

但し、 n は測定試料中のウラン濃度($\mu\text{g/mL}$)、 F は希釈容量(mL)、 w は供試料(g)

本法は試料の不均一性、即ち代表性を考慮したことで、500g 生相当 (灰 5g) の食品試料を使用した。ICP-MS はウランに対して非常に高感度であることから、極少量の試料で分析が可能である。最近の文献では高周波加熱分解装置により数百 mg 程度の試料での分析が行われる。食品の分解操作を以下に示す。

- (1) 灰試料約 0.5g を高周波加熱分解装置の分解容器にはかり取る。
- (2) 硝酸 6mL、過酸化水素 1mL を加え、高周波加熱分解装置により分解する。分解に要する時間はほぼ 1 時間である。
- (3) ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (4) 乾固物を硝酸(3+11)に溶解し、吸引ろ過する。
- (5) ろ液を 50mL メスフラスコに移し、標線まで水を加え、よく振り混ぜ測定用原液とする。

6.3 迅速プルトニウム分析

従来の「プルトニウム分析法」(平成 2 年 11 月、1 訂) は試料の前処理、分解・抽出、分離・精製および測定各工程に 1 週間程度を要する。このため、ここでは試料の分解にマイクロウェーブ分解装置を用い、24 時間程度で分析結果が得られる四重極型 ICP-MS を用いた迅速分析法を検討した。なお、ウランの場合には

ICP-MS 測定における妨害元素の除去を行わなかったが、プルトニウムの場合には、溶液中に 100pg/mL 程度ウランが存在してもウランの水素化物 ($^{238}\text{UH}^+$) が $m/z239$ (Pu-239) に影響を及ぼす。

このため、硝酸系陰イオン交換樹脂を用いたウランの分離操作を行う。但し、試料中にウランが 10 μg 以上含まれる場合は、酢酸系陰イオン交換樹脂を用いたウランの分離操作を行う。

対象食品として、牛乳および葉菜を選定した。牛乳 0.1L、葉菜 100g 生試料を用いた場合の Pu-239、Pu-240 の検出感度は、それぞれ 50、200mBq/L、kg である。但し、放射化学分析操作でのプルトニウムの回収率を 70%、ICP-MS で 1 分間 3 回繰り返し測定した時のバックグラウンド計数値の変動 (標準偏差) の 3 倍とした。

6.3.1 牛乳の前処理法

- (1) 牛乳 0.1L を磁性皿に入れ、ガスコンロ上で加熱し、蒸発乾固・炭化する。
- (2) 炭化物をマイクロウェーブ高温灰化装置で完全に灰化する。
- (3) 灰化物をテフロン製高压分解容器に移し、硝酸を加える。もし、Pu を α 線スペクトロメトリで測定する場合、化学回収率を正確に決定したい場合には Pu-242 標準溶液を加え、分解する。
- (4) 分解液を 200mL テフロンビーカーに移し、亜硝酸ナトリウムで Pu^{4+} の化学形にする。

6.3.2 葉菜の前処理法

- (1) 生試料 100g を磁性皿にはかり取る。
- (2) 電子レンジに入れ、25 分間乾燥する。
- (3) 乾燥物をマイクロウェーブ高温灰化装置で完全に灰化する。
- (4) 灰化物をテフロン製高压分解容器に移し、硝酸および Pu - 242 標準溶液を加え、分解する。
- (5) 分解液を 200mL テフロンビーカーに移し、亜硝酸ナトリウムで Pu^{4+} の化学形にする。

6.3.3 ウラン分離除去法

- (1) 分解液を予め硝酸(3+2)でコンディショニングして置いた硝酸系陰イオン交換樹脂に流し、その後、硝酸(3+2)でウランを洗浄除去する。
- (2) 塩酸(5+1)でカラムを洗浄し、トリウムを除去する。
- (3) ヨウ化アンモニウム-塩酸混合溶液を流し、樹脂に吸着したプルトニウムを溶離する。
- (4) 溶離液に硝酸を加え、蒸発乾固する。乾固物に硝酸(1+11)に溶解して ICP-MS 測定試料溶液とする。

6.3.4 ICP-MS によるプルトニウムの測定

ICP-MS への試料溶液の導入方法はいくつかが報告されており、分析感度、試料溶液導入効率に影響を及ぼす。一般的には、同軸型ネブライザーが用いられているが、より検出感度を高めるために 50

倍感度の良い超音波ネブライザーが推奨できる。ICP-MS によるプルトニウムの測定はウラン分析法と同様である。なお、Pu-239、Pu-240 の定量は m/z 239 および 240 の強度と Pu - 242 の強度比から行う。

D. 考察

1. サーベイメータによる測定におけるデータの評価について

(1)バックグラウンドの違い

バックグラウンドの線量率は測定する場所によりそれぞれ違いが生じるので、対象とするものを測定する場とバックグラウンドを測定する場を同じになるよう気を付ける必要がある。これは屋内外による差、裸土の上とコンクリート路面の上の差、木製と石製の台上の差等により違った線量率を示すことがある。特に、バックグラウンド測定と食品試料測定時の地表からの高さが異なる場合は注意する必要がある。

(2)測定方法による測定精度

サーベイメータの指示は、検出器に入射する γ 線光子数のランダムな変動などで常時変化しており、任意の時刻における 1 回の読み取り値の相対標準偏差 σ ($\Delta n/n$) は、 n を計数率(s^{-1})、 τ は時定数(s)とすると $\sigma=(2\pi\tau)^{-1/2}$ で表される。このように誤差を減らすには、時定数を大きくすることが良いことが判る。また、誤差を減らすには、多数回測定を繰り返し、その結果を平均する。多数回測定における標準偏差

は、読み取りの回数と間隔に依存する。時定数に等しい間隔で 10 回読み取った結果の平均値の標準偏差は、1 回読み取りのおよそ 1/2 となる。

(3)スクリーニングレベル（飲食物の摂取制限に関わる指標）の測定

最近、エネルギー補償をした NaI(Tl) シンチレーションサーベイメータが市販されている。このサーベイメータは、低エネルギーの γ 線に対する感度（実質的な測定時間を少なくする）を低くすることでエネルギー補償をしている。このため、I-131 (364keV) に対する感度は、エネルギー補償を行っていない計数率表示型サーベイメータに比べて低くなっている。このようなエネルギー補償をしたサーベイメータを用いて測定する場合、「飲食物摂取制限に関する指標」に示された濃度（牛乳：300Bq/L、葉菜：2000Bq/kg）を越す恐れのある試料のスクリーニングに困難なことが予想される。これを解決する一つの方法として、測定試料を 3mm 厚程度の鉛の遮蔽中で時定数 30 秒で 3 回以上測定（1 試料当たり 6 分以上を要す）する必要がある。しかし従来の、計数率表示型サーベイメータを用いると、鉛の遮蔽なしに時定数 10 秒で回測定（1 試料当たり 1.5 分）で飲食物摂取制限の指標の 1/2~1/3 の濃度まで判別できる。エネルギー補償のない従来のタイプのサーベイメータでは牛乳、葉菜について正味線量率がおおよそ 0.025~0.05 μ Sv/h で指標値の測定が

可能である。

(4)測定器等の汚染

測定者の被ばく防護とは別に、測定器本体も汚染される可能性があるので、測定者の手指や測定器の汚染防護措置（手袋、ポリエチレン袋の使用）に気を付ける必要がある。

原子力施設より放出された放射性物質が到達した地点では、当然周囲の放射線量は高くなっており、測定対象物の放射能測定値に影響を及ぼすので、正しい結果を得ることはできない。正しい結果を得るには汚染されていない場所に搬出して行うことが適切である。

試料の採取・運搬にあたって測定器、運搬する車内、採取運搬者、搬入場所等が汚染されないよう、その都度機材の汚染の有無を確認し、汚染されたものは取り替え、決まった場所に保管するよう定めておく。

2. 放射性核種精密分析のための指定測定機関

原子力発電所等の事故等による放射性物質の放出が減少または停止し、原子力緊急事態解除宣言が出された後、第 2 段階のモニタリングが実施される。第 2 段階のモニタリングでは広範な地域につき、放射性物質および放射線の周辺環境に対する全般的影響を評価し、確認することにある。当然、食物摂取により被る被ばく線量を詳細に検討することになる。被ばく線量推定の基礎データである食品中の放射性核種の精密分析が必要となるが、

対象となる放射性核種の内、ガンマ線放出核種にはゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリーを、純ベータ線放出核種である Sr-89, Sr-90, ウラン、プルトニウム、超ウラン元素等のアルファ核種の分析は放射化学分析で行われる。

ゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリー、放射化学分析は分析・測定に必要な装置、器具等の施設設備ならびに習熟した分析・測定技術が必要となるため、これらの実施が可能な分析・測定機関で実施されることが適当である。

E. 結論

初期対応用の NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータにより、牛乳で 100Bq/L、葉菜で 1000Bq/kg の I-131 が測定できることが判った。これはスクリーニングレベルに相当する放射能濃度（牛乳では 300Bq/L、葉菜では、2000Bq/kg）以下である。一方、マリネリ容器（2L）に牛乳・乳製品、野菜、海草、魚、穀類、肉類、卵等の食品試料を入れ、相対効率 15%のゲルマニウム半導体検出器により 10 分間測定した場合、I-131 の定量可能レベルは、18、36、18、18 (Bq/kg, L) で、Cs-137 では、40、80、40、40 (Bq/kg, L) であった。

事故の後期の放射能測定では I-131、Cs-137 だけでなく、Sr-90、ウラン、プルトニウムの迅速分析も要求される。このため、Sr-90 の分析には、発煙硝酸

法に加え、Sr-90 の壊変生成核種である Y-90 の溶媒抽出、チェレンコフ光測定による迅速分析法も採用した。ウラン、プルトニウムの分析では最近、迅速・極微量分析に用いられている ICP-MS を用いた分析法を検討した。特に、プルトニウムでは、試料の分解にマイクロウェーブ分解装置を用いた迅速分析法を検討した。これにより分析時間は大幅に低減でき、従来の α 線スペクトロメトリーによる定量では結果が得られるまで一週間程度要したのに比べ 24 時間程度であった。

本研究により確立された、緊急時における食品中の放射能の測定法は、食品中の放射能の安全性評価に必要なデータを、より迅速かつ正確に収集するための測定法として有用である。

参考文献

- 1) 「原子力施設等の防災対策について」(原子力安全委員会、平成 12 年 5 月一部改訂)
- 2) 「緊急時における放射性ヨウ素測定法」(科学技術庁、昭和 52 年制定)
- 3) 緊急時環境放射線モニタリング指針(原子力安全委員会、平成 12 年 8 月一部改訂)
- 4) 「緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法」(科学技術庁、平成 4 年制定)
- 5) 「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクガンマ線スペクトロメトリー」(科学技術庁、平成 4 年制定)
- 6) 「放射性ストロンチウム分析法」(科