Ⅱ.分担研究報告

食品中の放射性物質の検査に係る信頼性評価手法の検討

曽我 慶介

平成 28 年度厚生労働科学研究補助金 食品の安全確保推進研究事業

震災に起因する食品中の放射性物質ならびに有害化学物質の実態に関する研究 分担研究報告書

食品中の放射性物質の検査に係る信頼性評価手法の検討

研究代表者	蜂須賀暁子	国立医薬品食品衛生研究所生化学部第一室長
研究分担者	曽我 慶介	国立医薬品食品衛生研究所生化学部研究員

研究要旨

法に基づいて行われる検査は、基本的にその結果によって何らかの行政措置 が伴うものであるため、検査の分析値には一定の品質が要求される。分析値の 品質保証において一般にパラメータとして用いられる不確かさについて、平成 25年度は計数の統計による不確かさを中心に、平成26年度は測定操作全体の不 確かさについて、平成27年度は測定値の偏りを生じさせる因子としてジオメト リーについて、測定結果に及ぼす影響を理論と実測から検討した。平成28年度 は、検査に影響する要因として、測定ピークの判定、校正、試料及び測定環境 の維持管理について総合的に検討した。食品中放射性物質の試験法においては 測定前の分離操作は行っていないことから、放射性セシウムの測定ピークエネ ルギー範囲の計数が放射性セシウムによるものかどうかの判定が確定法では必 要であり、妨害となりうる核種について検討し、一次情報であるスペクトルの 重要性を指摘した。放射性物質検査は定量法であることから校正についても考 察した。また、放射性物質の検査が必要となる場合は事故時と予想されること から、試料及び測定環境の汚染防止について検討した。

放射能検査においても他の検査と同様に、検査の全操作を把握し、各操作に おける不確かさや偏りを生じさせる要因を推定し、それらの最終結果に与える 影響の大きさを評価していることが分析値の品質を保証する上で重要と考えら れる。

A. 研究目的

法に基づく検査は常に同じ分析結果が 得られることが重要である。食品衛生法 に基づく放射能検査では、図1に示すよ うなスキームによって対応がなされてお り、検査結果によっては、自治体単位の 出荷制限、さらには摂取制限の措置が取 られる。従って、検査の判定に用いられ る放射能の分析値の品質は、一定水準以 上にあることが要求される。そのために は、まず検査の信頼性が評価されている 必要がある。

当研究課題においては、平成24年度は 検査において重要な役割を担っているス クリーニング測定機器について、検査対 応状況を販売者に面接調査した。平成25 年度は、一般に分析値の品質評価で用い られる測定の不確かさについて、放射能 測定特有の因子である計数の統計による 不確かさ(いわゆる計数誤差)を取り上 げて検討した。測定の不確かさは、GUM (Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement、計測における不確かさの表 現のガイド)の定義によれば、「測定の結 果に附随した、合理的に測定量に結び付 けられ得る値のばらつきを特徴づけるパ ラメータ」とされる。実質上、「『測定値』 からどの程度のばらつきの範囲内に『真 の値』があるかを示す、測定の結果に附 随するパラメータ」と解釈されている。 平成 26 年は前年に引き続き測定の不確 かさについて、測定法全体での検討及び 評価を行った。特に放射能測定特有の因 子について、一般の化学分析との相違を 含めて比較検討した。平成27年度は、測 定値の偏りを生じさせる放射能測定に特 有の因子として、試料と検出器の幾何学 的位置関係であるジオメトリーを取り上 げた。放射性セシウムの汚染試料を用い て測定試料の不均質性の測定結果へ及ぼ す影響を検討し、ジオメトリーを無視し て試料量を規定量以上に充填した場合は、 放射能濃度が過小評価されることを示し た。

最終年度である平成28年度は測定全体を俯瞰し、また、放射能測定が必要と される状況を考慮し、測定ピークの判定、 校正、試料及び測定環境の維持管理について検討した。

放射線測定では、試料に含まれている 放射性核種から核壊変により放出される 放射線を検出器で測定する。現行の食品 放射能検査法では、測定対象核種である 放射性セシウム(セシウム137(Cs-137) とセシウム134(Cs-134))から放出され るガンマ線を測定しており、その検査法 はガンマ線、すなわち光子の優れた透過 性を利用し、放射性核種の抽出など分離 抽出操作は行わずに、食品を測定容器に 充填するのみの前処理となっている。従 って、確定法において正しい判定をする ためには、放射性セシウムのピークエネ ルギー位置における計数値が放射性セシ ウムによるものかどうかの評価が必須で あることから、妨害となりうる核種など 測定ピークの判定について検討した。

また、食品中の放射能検査は測定機器 を用いた定量測定であり、信頼性の高い 計測を行うためには測定機器が校正され ている必要があることから、校正につい ても検討を行った。最後に、食品中放射 能検査が必要とされる場合は、原子力施 設等の事故により高濃度汚染試料の存在 が疑われることから、試料の汚染防止及 び測定環境の維持管理についても考察を 行った。

B. 方法

1. 測定ピークの判定

核データは、アイソトープ手帳 11 版 公益社団法人日本アイソトープ協会、日 本原子力研究開発機構/核データ研究グ ループ / Nuclear Data Center http://www.ndc.jaea.go.jp/nucldata/index_J.h tml、国際原子力機関 IAEA /Live Chart of Nuclides <u>https://www-nds.iaea.org/relnsd/</u> vcharthtml/VChartHTML.html を参照した。

2. 校正

日本の計量標準の整備・維持・供給を 担っている国立研究開発法人産業技術総 合研究所計量標準総合センターの情報を 参照した。

3. 試料及び測定環境の維持管理

「放射能測定法シリーズ 文部科学省」 及び「水道水等の放射能測定マニュアル 平成 23 年 10 月厚生労働省健康局水道 課」、「ISO/IEC 17025(試験及び校正を 行う試験所の能力に関する一般要求事 項)」を参考にした。

C. 結果及び考察

1. 測定ピークの判定

測定核種である Cs-137 及び Cs-134 の 壊変図を図2にそれらの主な放射線エネ ルギーを表1に示す。

Cs-137は、ベータ線を放出して Ba-137 になるベータ壊変核種であり、その過程 で数種のガンマ線(光子)を放出するが、 測定に利用されるのは実質上、放出割合 85.1%の 662 keV の光子 1 種類になる。複 数ピークでの確認ができないため、核種 同定にあたっては測定ピークの形状等を 注意深く確認する必要がある。

Cs-134 は、そのほとんど(99.9997%) は Cs-137 と同様にベータ線を放出して Ba-134 に変わり、一部(0.0003%)は軌 道電子を捕獲して Xe-134 に変わる。ベー タ壊変時に複雑なエネルギー準位を経る ため複数の光子が放出されるが、一般に 605 keV(放出割合 97.6%)と 796 keV(放 出割合 85.5%)の2本が測定に用いられ る。高濃度の試料の場合は、569 keV(放 出割合 15.4%)等のピークの検出も可能 になる。Cs-134 のように複数ピークが検 出される核種では、核種同定においてピ ーク比も重要な情報となる。なお、Cs-134 のように複数のガンマ線がカスケード状 に放出される場合は、情報が多くなる反 面、サム効果の適切な補正が必要になる。

測定妨害ピークを考えるにあたっては、 測定機器のエネルギー分解能、妨害核種 の放出光子エネルギー、半減期、放出確 率、存在確率などが影響要因として挙げ られる。エネルギー分解能は機器の性能 に依存する。食品検査の試験法通知(食 品中の放射性物質の試験について 食安 発0315 第4号 平成24年3月15日)で は、使用機器として、「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:検出器の相対効率は15%以上とし、 検出器周辺を暑さ10~15 cm の鉛遮蔽体 等で囲む。」と記載されており、エネルギ ー分解能については触れられていない。

一方で、我が国の放射線測定法の基本と なっている放射線測定法シリーズには関 連するものが2件あり、「放射能測定法シ リーズ No.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 科学技術庁」では、機器仕様例と して、相対効率は10%程度、エネルギー 分解能はコバルト 60 の 1333 keV におい て半値幅(FWHM) 1.9-2.0 keV 以下とな っており、「放射能測定法シリーズ No.33 ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法 平成 29 年 原子力規制庁 では、機器仕様例として、相対効率25% 程度、コバルト 60 の 1333 keV に対して 半値幅 2.3 keV 以下が例示されている。 これらのことから、食品検査でも同等ク ラスの機器、すなわちコバルト 60 の 1333 keV における半値幅が 2.0 keV 前後

の機器が一般に使用されていると推定さ れる。よって、定量に用いるピークエネ ルギーの前後 5 keV を妨害ピーク候補と 考え、それらの光子を放出する核種を核 データから検索したところ、Cs-137 の 662 keV で 43 核種(表2-1)、Cs-134 の 605 keV で 46 核種(表2-2)、Cs-134 の 796 keV で 31 核種(表2-3)が抽出 された。抽出された核種の半減期につい て、想定される食品検査の所要時間と比 較し、短過ぎるものを除き、当該エネル ギー光子の放出割合及び存在確率を考慮 し、妨害となる可能性が高い核種を推定 した。

その結果、Cs-137 の 662 keV 近傍の光 子リスト(表2-1)では、中性子捕獲 反応¹⁰⁹Ag(n,γ)^{110m}Ag などで生成する人 工核種 Ag-110m の 657.76 keV(半減期 249.76d、放出割合 94.32%)、中性子誘起 核分裂反応 U(n, f)⁹⁷Zr の後、ベータ壊変 で生成する人工核種 Nb-97 の 657.94 keV

(半減期 72.1h、放出割合 98.23%) など が事故時における妨害核種の候補と考え られたが、現時点ではいずれもその可能 性は低いと考えられた。なお、エネルギ 一差 6 keV のため、表 2 – 1 の欄外に記 載したが、原子力施設事故直後において 環境汚染を引き起こしやすい人工核種 I-132 は、中性子誘起核分裂反応 U(n,f) ¹³²Te の後、ベータ壊変で生成するため、 その 667.7 keV (半減期 2.295h、放出割合 98.7%) は量によっては妨害となる可能 性がある。ただし、I-132 が検出される状 況においては、I-132 以外にも検出される 難な状況と予想される。このような状況 においては、エネルギーピークの同定は 機器のエネルギー分解能に頼るだけでな く、時間をおいて複数回測定することに より半減期など情報の種類を増やして多 角的に検討することが有用である。

Cs-134 の 605 keV 近傍の光子リスト (表2-2)では、中性子捕獲反応で生 じる Sb-124 や Ir-194 などの人工核種がい くつかあるが、半減期、放出割合、及び 存在確率から、いずれも妨害の可能性は 低いと考えられた。一方、自然核種につ いては、ウラン壊変系列(図3)に属す る Bi-214 が抽出されている。 ウラン壊変 系列は、希ガスの Rn-222 を経るため、そ れ以降の壊変核種は自然界に広範囲に分 布する。よって、Bi-214の609.32keV(半 減期 19.9m、放出確率 145.49%、表1-2参照)は、測定光子エネルギー604.72 keVと4.6keVの差はあるものの留意する 必要がある。特にエネルギー分解能があ まり高くない機器を用いている場合は常 に注意が必要である。

Cs-134の795.86 keV 近傍の光子リスト (表2-3)では、半減期、放出確率、 存在確率から、表中の核種はいずれも妨 害の可能性は通常は低いと考えられた。

一般には、Cs-134の605 keV と796 keV の2本のピークは、放出割合が各々 97.6%と85.5%であることから、前者の方 が計数値が大きく信頼性が高いとされる が、妨害を考慮すると、後者の方が信頼 性が高くなる場合もある。測定状況ごと に総合的に判断することが重要である。

妨害ピークの有無を評価するには、目

的ピークの位置、形状を精査すること、 妨害が疑われる核種の当該ピーク以外の ピークを調べること、逆に測定核種が複 数ピークを検出できる場合はそれらの比 率を確認することが一般的な手法となる。 加えて現在の放射性セシウム(Cs-134+ Cs-137)の測定においては測定2核種の 比率を確認することも併せて有用である。

Cs-134 の 604.72 keV に Bi-214 の 609.32keV の妨害が疑われる場合を例に 挙げれば、まず、Cs-134の604.72 keVの ピーク位置、形状を確認する。この作業 は、機器の性能管理としてエネルギー校 正が適切になされていることが前提条件 になる。その結果、Bi-214の妨害が疑わ れた場合は、Bi-214 の主ピークである 609 keV (46.1%) の他、1120 keV (15.1%)、 1764 keV (15.4%) のピークを調べる。ま た、Cs-134 側においても、604.72 keV (97.6%) と 795.86 keV (85.8%) の検 出比に矛盾がないか確認する(表1参照)。 さらに、現状においては Cs-134 と Cs-137 の比率も有力な情報となる。福島第一原 子力発電所事故においては、汚染源が1 か所ではなく、その汚染源ごとに2核種 の比率が異なるため、環境中に放出され た2核種の比率は場所により完全には同 ーではないものの、今までの検査データ からほぼ一定の範囲内と考えられる。

計算例として、原子力安全・保安院が 公表している「大気中への放射性物質の 放出量の試算値(Bq)」を表3に、その 情報に基づく Cs-137 と Cs-134 の放射能 量及びそれらの比率の物理的減衰による 経時変化を図4に示す。この推定値によ れば、平成 23 年 3 月においては Cs-137 及び Cs-134 の放射能量は各々15 PBq、 18 PBq であり、Cs-137 の Cs 合計

(Cs-134 と Cs-137 の総和) に対する比 は 45.5%である。半減期 2.1 年である Cs-134 は、半減期 30 年の Cs-137 に比 べて早く減衰し、事故後6年を経過した 平成 29 年 3 月においては Cs-137 及び Cs-134の放射能量は各々13.1 PBg、2.4 PBq であり合計値は 15.5 PBq となり、 平成 23 年 3 月に比べ半分以下となって いる。同じ推定値を用いて、Cs-137 の Cs 合計量に対する比率変化を右軸で示 したが、事故直後から1年毎の数値は、 45、53、61、68、74、80%と増加し、平 成 29 年 3 月は 84% となっている。現在 において検出される Cs-134 は、その半減 期から福島第一原子力発電所由来と考え られるが、Cs-137 はこの事故の他に、過 去の原爆実験等のフォールアウトの影響 を受けている可能性がある。これらのこ とから測定2核種の比率は、放出推定量 から求められた比率と同じか、あるいは それよりも Cs-137 過多側になることが 予想され、その比率から大きくずれてい る場合は、データを精査する必要がある。 このように測定で得られる情報を多面的 に活用し、測定核種に由来すると推定さ れるピーク面積を求め、濃度を算出する ことが信頼性の高い検査に繋がる。

多くの測定機器では、予めピークエネ ルギー領域を指定しておけば自動的にピ ーク認識を行い、ピーク面積を計算し、 放射能濃度が帳票に記載される。しかし ながら、ピークの形状の評価は機器に装 備されていないか、あるいは不十分なも のもあると思われ、検査者がスペクトル ごとに直接評価することが重要となる。 ここでは測定妨害核種による正側の誤り について記載したが、放射能測定はその 基となる核壊変が確率現象であり、バッ クグラウンドとなる自然放射能も同様の 不確かさを含むため、この場合の誤りは 正負両側に変動する。例えば、ピーク領 域のバックグラウンドの正負の変動はそ のままピーク面積の正負の変動となり、 ピーク前後のベースライン領域の正負の

変動は逆にピーク面積の負正の変動とな る。つまり、ピーク前後のベースライン 領域において負側に変動した場合は、ピ ーク面積を多く見積もることとなり、逆 にベースライン領域において正側に変動 した場合は、ピーク面積を小さく見積も ることになる。これらの確率による変動 の評価を誤った場合は、当然、放射能濃 度を正しく算出することができない。バ ックグラウンドの確率による大きな変動 を排除するためにも、検査者がスペクト ルの確認をすることは重要であり、疑義 が生じた場合は問題を解決するための措 置が必要となる。バックグラウンドも含 めた確率的な変動によるものの場合は、 再測定が有効な手段となる。妨害核種が 疑われる場合は、妨害核種の性質や量に より、測定時間を長くする、あるいは時 間をおいて再度測定することなどを試み る。放射能測定においては確率的影響が 常にあるため、合計の測定時間は同じで も、長時間の1回測定よりも分割して測 定する方が情報量は多くなることも考慮 し、測定妨害の種類を予測して対応する ことが重要と考えられる。

2. 校正

食品中の放射能検査は測定機器を用い た定量測定であり、信頼性のある計測を 行うためには測定機器が校正されていな くてはならない。校正は、JIS Z 8103:2000 計測用語においては「計器又は測定系の 示す値、若しくは実量器又は標準物質の 表す値と、標準によって実現される値と の間の関係を確定する一連の作業。 備 考:校正には、計器を調整して誤差を修 正することは含まない。」 と定義されて いる。

食品中の放射能検査の通知法において は、機器校正法として「校正及びスペク トル解析方法は『文部科学省編放射能測 定シリーズ No.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』 に記載の方法、あるいは国際的に認めら れた方法に従う。」とあり、国家標準にト レーサブルな標準線源を用いて校正する。

放射線測定機器の校正に用いられる標 準線源には、放射線のエネルギー、放射 能、線量率等があるが、ガンマ線スペク トロメトリーで必要となるのは、スペク トルの横軸であるエネルギーと縦軸とな る放射能について数値が定められている 放射能標準ガンマ体積線源になる。標準 線源は、これらの量について、国家標準 につながる経路が確立されていること、 すなわちトレーサビリティが確保されて いることが求められる。トレーサビリテ ィとは、測定の信頼性が測定現場で使用 する末端の測定機器にまで一定のレベル で保証されることを目的とする考え方で あり、国際相互承認と併せて計測値の社 会的認知を得る国際的な基本的条件であ る。食品中放射能測定に用いられる放射 線計測器の校正は、このように放射線エ ネルギーと放射能が既知の標準体積線源 を用いて行うことになる。

図5に放射能計測のトレーサビリティ 体系を示す。日本では産業技術総合研究 所 NMIJ の国家標準に対して、公益社団 法人日本アイソトープ協会や公益財団法 人日本分析センターの標準器がトレーサ ブルになっている。そのため、検査現場 の機器校正においては、日本アイソトー プ協会より標準線源を入手するのが一般 的である。その際、検査に使用する測定 容器と同じ容器・体積の標準線源を用意 することが重要である。なぜならガンマ 線スペクトロメトリーでは、測定試料と 検出器の位置関係であるジオメトリー、 及び試料から検出器までの透過率が計数 効率に影響するからであり、測定試料と 標準線源との間をできる限り同じ条件に することが信頼性の高い検査結果を得る ためには重要となる。測定容器と異なる 形状・材質の標準線源では校正すること はできない。そのため、検査で複数の異 なる測定容器・体積を用いる場合は、容 器・体積ごとの校正が必要である。逆に、 標準線源を共有して複数の測定機器を校 正するような場合では、検査における測 定容器・体積を標準線源のそれと同じに する必要がある。

3. 試料及び測定環境の維持管理

平成 25 年度より測定に関する問題点 について論じてきたが、実際の検査にお いては、測定に至る以前の試料の取扱い や測定環境の整備も、正しい検査結果を 得るためには重要である。

検査試料の汚染として、試料間の汚染、 クロス・コンタミネーションを考えてみ ると、そのときの測定核種(物理・化学 的性状)と汚染状況(量・均質性)によ って留意すべき点は異なってくる。試料 が不揮発性の放射性物質で均質に汚染さ れている場合は、通常の食品検査と同程 度の注意で対応できると考えられる。例 えば、基準値の 10 倍の汚染試料が 0.1% 混入した場合は、計算上は基準値の 1% の増加と算定される。現在、このような レベルを超えることはまずないと考えら れ、検査の判定に影響する可能性は低い と思われる。しかし、事故直後のように 極端に高濃度の試料が存在する場合は、 試料受付時からサーベイメータなどで試 料をランク付けして低濃度試料と動線を 分けるなどの物理的な対策が必要になる こともありえる。現在の測定核種は放射 性セシウムであり、常温常圧における揮 発性はないが、事故直後の放射性ヨウ素 のように揮発性がある場合は、高濃度汚 染試料に対しては、揮発を抑えて試料間 あるいは検査環境の汚染を引き起こさせ ないための物理・化学的な取扱い条件を 設定する必要が生じる。

また、放射能測定においては著しい不 均質汚染の可能性についても留意する。 福島原子力発電所事故から6年が経過し た現在では、食品中の放射能物質は、直 接の粒子の付着等ではなく、間接的な汚 染によるものがほとんどであり比較的均 質化されているものが多いと考えられる が、特に事故直後には、粒子1つで基準 値超過にする高濃度粒子も存在しうる。 そのような場合には、試料間の汚染は厳 密に制御しなくてはならない。

放射能はその性質が放射性核種、すな わち元素に由来するため、物理的半減期 に則って減衰し、生物系の有害物などと 異なり増加することはないものの、逆に 一般的な有害物質のように化学形の変化 により測定の反応性が変わることも本質 的にはない。放射能量は時間にのみ依存 し、人為的に減少させることができない ことが特徴であり、このことは測定環境 汚染においても留意すべき点である。測 定環境が何らかの放射性物質で汚染され た場合、その物質を除かない限りその核 種の半減期に則って放射能を出し続ける。 前年度までの報告書に記載しているよう に、放射能測定の精度はバックグラウン ドに依存するため、バックグラウンドは 低いほうが望ましい。これらのことから、 測定環境を放射能で極力汚染しないよう に常に留意することが重要である。試料 及び測定機器の両方に対して汚染防止対 策を取り、汚染状況を定期的に確認し、 汚染が認められた場合は、直ちに的確に 除染及び汚染拡大防止等の措置を取る。

上述した内容の多くは、「食品中の放射 性物質の試験法について.厚生労働省 食安発0315第4号 平成24年3月 15日」の「3 検査結果の信頼性管理」 にも記載されている。信頼性の高い検査 を行うためには下記通知内容の遵守が重 要である。

「3 検査結果の信頼性管理

1)測定日毎にバックグラウンドを測定 し、通常の範囲を超えて上昇していない ことを確認する。

2)測定日毎に空の測定容器を用いてブ ランクを測定し、分析系に放射性表面汚 染がないことを確認する。

定期的に標準線源を用いて校正を行う。

4) 測定日毎にエネルギーのスケールが ずれていないことを確認する。

5) 試料を測定容器に詰める際には、特 に検出器付近に空隙ができないように留 意する。

6)試料による分析系の放射性表面汚染、 あるいは試料間の汚染が起こらないよう に留意する。特に検出部位の汚染を防ぐ ため、検出器をポリエチレン袋で覆う、 測定容器の外側に試料を付着させない等 の措置を講じる。

7)測定容器をくりかえし使用する場合は、測定容器の内側にポリエチレン袋を入れて試料を充填するなど、測定容器の汚染を防ぐ措置を講じる。

8) 試料の取り違えを防止するための措置を講じる。」

D. 結論

放射能測定における信頼性に関わる要 因及びその影響を明らかにし、分析結果 の信頼性評価法の確立に資するため、本 年度は、測定ピークの判定、校正、試料 及び測定環境の維持管理について検討し 2. 実用新案登録 た。

食品中の放射性物質検査は、放射線の 測定値を基に判定される。放射線測定機 器に限らず、現在の測定機器は、測定開 始ボタンを押せば定量結果を帳票で取り 出せるものが多くなってきている。しか しながら、定量結果までにはいくつかの 情報加工段階があり、その一つ一つに間 違いがないかを確認することが信頼性の 高い検査を行うためには必要である。そ のためには、最も信頼性が高くかつ情報 量の多い根源的なデータの活用が課題と なる。食品中放射性セシウムの検査であ れば、測定原理及び定量までのアルゴリ ズムを理解した上で一次データであるス ペクトルそのものを検査者が確認し、さ らに測定だけでなく測定環境や試料の汚 染状況についても留意し、総合的に判断 することが重要と考えられる。

E. 研究発表

- 1. 論文発表
- 1) 蜂須賀暁子:放射能分析における計 数の統計的不確かさについて、食品 衛生学雑誌, 67(2), J25-29 (2016)
- 2. 学会発表
- 1) 曽我慶介、近藤一成、蜂須賀暁子. 放 射能測定におけるジオメトリー影響 の検証. 日本薬学会 第 137 年会 (2017.03)

F. 知的財産権の出願・登録状況

1. 特許取得 なし.

- なし
- 3. その他 なし

XI 3		(00	1011 01	5 10 I, DI 2	a I I/			
核種	半減期	壊変	主な β	線のエネ	主な光	子のエネル	ノギー	内部転換電
		形式	ルギー	- (MeV) と	(MeV)と	放出割合		子の放出割
			放出割	合				合 (%)
Cs-137	30.1671	β-	0.514	94.4%	0.662	85.1%		9.7
	у		1.176	5.6%	0.0321		5.8%	
					Ba-Kα			
					0.0365		1.3%	
					Ba-Kß			
Cs-134	2.0648 y	β-	0.0886	27.3%	0.475	1.5%		
			0.415 2	2.5%	0.563	8.4%		0.061
			0.658	70.2%	0.569	15.4%		0.15
			他		0.605	97.6%		0.58
					0.796	85.5%		0.26
					0.802	8.7%		0.026
					1.168	1.8%		
					1.365	3.0%		
					他			
					0.0321	0.69% B	a-Kα	
					0.0365	0.16% B	a-Kb	
Bi-214	19.9 m	α	5.455	0.011%				
			他					
		в—	1.068	5.7%	0.609	46.1%		0.95
			1.153	4.3%	0.768	4.9%		0.080
			1.425	8.2%	1.120	15.1%		0.25
			1.508	17.0%	1.238	5.8%		0.075
			1.542	17.8%	1.378	4.0%		0.016
			1.894	7.4%	1.764	15.4%		0.080
			3.272	18.2%	2.204	5.4%		0.015
			他		他			
					0.0787		1.6%	
					Po-Ka			

表1 壊変データ (Cs-137、Cs-134、Bi-214)

アイソトープ手帳 11版(編集・発行:日本アイソトープ協会)及び

Nuclear Data Center (http://wwwndc.jaea.go.jp/NuC/sbygame.html) より抜粋

表2 測定核種光子エネルギー近傍の光子リスト

「Nuclear Data Center (http://wwwndc.jaea.go.jp/NuC/sbygame.html)」及び「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 y 線スペクトロメトリー 平成 4 年 科学 技術庁」よりデータを抽出

表2-1 Cs-137の661.66 keVのピーク前後5 keVの光子放出核種

	技種	エネルキ゛ー	放出割合	庙亦形士	米 津期		実効光度*
	核性	(keV)	(%)	场发形式	十個界	归	(dps)
-21	35-Br- 76	657.02	15.91	EC	16.2	Η	1.89E-06
20	33-As- 76	657.05	6.17	B-	26.24	Η	4.53E-07
19	54-Xe-142	657.05	*791.	B-	1.22	S	* 4.49E+00
18	49-In-121	657.32	7.1	B-	23.1	S	2.13E-03
17	83-Bi-202	657.49	60.56	EC	1.71	Η	6.82E-05
16	47-Ag-110	657.5	4.5	B-	24.6	S	1.27E-03
	49-In-110	657.75	98.1	EC	69.1	М	1.64E-04
15	49-In-110	657.75	98.29	EC	4.9	Η	3.86E-05
14	47-Ag-110m	657.76	94.32	B-	249.76	D	3.03E-08
13	41-Nb- 97	657.94	98.23	B-	72.1	М	1.57E-04
12	49-In-104	658	100	EC	1.8	М	6.42E-03
11	42-Mo- 89	658.6	5.84	EC	2.11	М	3.20E-04
10	52-Te-127	658.9	0.01	B-	109	D	7.36E-12
9	31-Ga- 81	659.1	6.04	B-,N	1.217	S	3.44E-02
8	47-Ag- 94	659.1	* 50.7	EC	0.55	S	* 6.39E-01
7	31-Ga- 80	659.14	78	B-	1.676	S	3.23E-01
6	10-Ne- 18	659.25	0.14	B+	1.672	S	5.80E-04
5	91-Pa-235	659.3		B-	24.1	М	N/A
4	85-At-208	660.04	88.82	EC	1.63	Η	1.05E-04
3	68-Er-149	661	0.02	EC,P	8.9	S	1.56E-05
2	67-Ho-148	661.3	58.94	EC	9.59	S	4.26E-02
1	53-I -117	661.5	5.1	B+	2.22	М	2.65E-04
	55-Cs-137	661.66	85.1	В-	30.08	Y	6.21E-10
	56-Ba-137	661.66	89.9	IT	2.552	Μ	4.07E-03
1	88-Ra-208	661.9	* 84.	IT			* N/A
2	46-Pd- 98	662.2	19.72	EC	17.7	М	1.29E-04
3	72-Hf-171	662.2	*266.	EC	12.1	Η	* 4.23E-05
4	92-U -239	662.24	0.18	B-	23.45	М	8.87E-07
5	57-La-132	663.07	11.23	EC	24.3	М	5.34E-05
6	51-Sb-109	664	9.75	EC	17	S	3.98E-03
7	37-Rb- 78	664.42	38.74	EC	5.74	М	7.80E-04
8	58-Ce-143	664.57	5.69	B-	33.039	Н	3.32E-07
9	88-Ra-211	665	5.00E-04	Alpha	13	S	N/A

0	89-Ac-232	665	15.3	B-	119	S	8.91E-04
11	86-Rn-207	665.1	98	IT	184.5	US	3.68E+03
12	18-Ar- 34	665.54	2.5	EC	844.5	MS	2.05E-02
13	47-Ag-100	665.7	86	EC	2.24	М	4.44E-03
14	47-Ag-100	665.7	98.8	EC	2.01	М	5.68E-03
	35-Br- 80	665.8	1.08	EC	17.68	М	7.06E-06
15	39-Y -100	665.8	10.4	B-	0.94	S	7.67E-02
16	85-At-200	665.9	*100.	EC			* N/A
17	39-Y -100	665.98	7.74	B-	735	MS	7.30E-02
18	51-Sb-126	666.1	85.67	B-	19.15	М	5.17E-04
19	33-As- 80	666.2	42	B-	15.2	S	1.92E-02
20	53-I -126	666.33	32.88	EC	12.93	D	2.04E-07
21	51-Sb-126	666.5	99.6	B-	12.35	D	6.47E-07
22	51-Sb-107	666.6	13.86	EC	4	S	2.40E-02
欄外	53-I -132	667.7	98.7%	B-	2.295	Н	8.28E-05

*) 実効光度 Effective Intensities (dps) は光子の放出割合 intensity と半減期 half-life から算出される。 Effective Intensity (dps) = { Intensity (%) ÷ 100 } × { *log*_e2 ÷ Half-life (s) }

*: relative 相対値, ~: approximate 概算値, ?: calculated or estimated 計算または推定値

表2-2 Cs-134の604.72 keVのピーク前後5 keVの光子放出核種

技话		工ネルキ、一	放出割合	늍恋形式	光鸿期		実効光度*
	修理	(keV)	(%)	场发形式	十八月	91	(dps)
23	53-I -132	599.8	14	B-	1.387	Н	1.94E-05
22	70-Yb-161	599.88	27.72	EC	4.2	М	7.62E-04
21	70-Yb-151	599.9	69	IT	20	US	2.39E+04
20	41-Nb-100	600.3	69.35	B-	2.99	S	1.61E-01
19	37-Rb- 97	600.5	10.76	B-	169.1	MS	4.41E-01
18	77-Ir-194	600.5	62	B-	171	D	2.91E-08
17	93-Np-240	600.57	20	B-	61.9	М	3.73E-05
16	51-Sb-125	600.6	17.65	B-	2.75856	Y	1.41E-09
	53-I -118	600.6	8.04	B+	13.7	М	6.78E-05
15	53-I -118	600.6	93.28	B+	8.5	М	1.27E-03
14	88-Ra-226	600.66	5.00E-04	Alpha	1600	Y	N/A
3	53-I -138	601	1.14	B-,N	6.41	S	1.23E-03
12	53-I -137	601.05	4.8	B-	24.5	S	1.36E-03
11	53-I -120	601.1	87	EC	53	М	1.90E-04
10	69-Tm-154	601.4	39.5	EC	3.3	S	8.30E-02
9	84-Po-208	601.52	1.00E-03	EC	2.898	Y	N/A
8	88-Ra-211	601.6		Alpha	13	S	N/A
7	39-Y - 82	601.9	1.1	B+	8.3	S	9.19E-04

6	55-Cs-140	602.25	53.3	B-	63.7	S	5.80E-03
	61-Pm-136	602.7	49.74	EC	107	S	3.22E-03
5	61-Pm-136	602.7	*384.	EC			* N/A
	51-Sb-124	602.72	25	B-	93	S	1.86E-03
4	51-Sb-124	602.73	97.79	B-	60.2	D	1.30E-07
3	53-I -124	602.73	62.9	EC	4.176	D	1.21E-06
2	52-Te-135	603.7	27.9	B-	19	S	1.02E-02
1	49-In-105	604.12	9.21	EC	5.07	М	2.10E-04
	55-Cs-134	604.72	97.62	В-	2.0652	Y	1.04E-08
1	57-La-134	604.72	5.04	EC	6.45	М	9.03E-05
2	75-Re-190	605.14	14.89	B-	3.2	Н	8.96E-06
3	77-Ir-190	605.14	39.9	EC	11.78	D	2.72E-07
4	73-Ta-164	605.2	14.1	EC	14.2	S	6.88E-03
5	79-Au-188	605.3	* 16.3	EC	8.84	М	* 2.13E-04
6	53-I -118	605.6	77.61	B+	13.7	М	6.54E-04
	53-I -118	605.6	100.17	B+	8.5	М	1.36E-03
7	29-Cu- 74	605.9	86	B-	1.63	S	3.66E-01
8	52-Te-110	605.9		EC	18.6	S	N/A
9	36-Kr- 79	606.09	8.12	EC	35.04	Н	4.46E-07
10	49-In-112	606.4	1.11	EC	14.97	М	8.57E-06
11	51-Sb-136	606.62	18	B-	0.923	S	1.35E-01
12	47-Ag-112	606.7	3.1	B-	3.13	Н	1.91E-06
13	58-Ce-135	606.76	18.81	EC	17.7	Н	2.05E-06
14	48-Cd-105	607.22	3.74	EC	55.5	М	7.78E-06
15	27-Co- 70	607.6	*100.	B-	0.5	S	*1.39E+00
16	83-Bi-204	608.1	93.5	IT	1.07	MS	6.06E+02
17	54-Xe-135	608.18	2.9	B-	9.14	Н	6.11E-07
18	82-Pb-192	608.2	18.62	EC	3.5	М	6.15E-04
19	31-Ga- 74	608.4	14.41	B-	8.12	М	2.05E-04
20	33-As- 74	608.43	0.55	EC	17.77	D	2.48E-09
21	22-Ti- 51	608.55	1.18	B-	5.76	М	2.37E-05
22	86-Rn-218	609.31	0.12	Alpha	35	MS	2.38E-02
23	83-Bi-214	609.32	45.49	В-	19.9	Μ	2.64E-04

核種		工ネルキ"一	放出割合	庙 亦形式	半減期		実効光度*
	1次1里	(keV)	(%)	城发形以	十個升	9]	(dps)
13	50-Sn-125	791.6	* 55.	IT	0.23	US	* 1.66E+06
12	39-Y - 97	791.7	69.37	IT	142	MS	3.39E+00
11	75-Re-184	792.07	37.68	EC	35.4	D	8.54E-08
10	46-Pd- 97	792.7	13.84	EC	3.1	М	5.16E-04
9	50-Sn-125	792.8	* 40.	IT	6.2	US	* 4.47E+04
8	32-Ge- 81	792.94	34.08	B-	7.6	S	3.11E-02
	39-Y - 84	793	30	EC	4.6	S	4.52E-02
7	39-Y - 84	793.1	98.3	EC	39.5	М	2.87E-04
6	53-I -122	793.28	1.33	EC	3.63	М	4.23E-05
	51-Sb-130	793.4	86	B-	6.3	М	1.58E-03
5	51-Sb-130	793.4	100	B-	39.5	М	2.92E-04
4	52-Te-131	793.75	13.37	B-	33.25	Н	7.74E-07
3	61-Pm-134	794.7	22.75	EC	5	S	3.15E-02
2	49-In-100	794.9	86.59	EC	5.9	S	1.02E-01
1	56-Ba-134	795.7		IT	2.63	US	N/A
	55-Cs-134	795.86	85.46	B-	2.0652	Y	9.09E-09
1	65-Tb-149	796	96.98	EC	4.16	М	2.69E-03
2	25-Mn- 46	796.1	1.6	EC	36.2	MS	3.06E-01
3	69-Tm-149	796.2	~*250.	EC	0.9	S	* 1.93E+00
4	48-Cd-107	796.46	0.06	EC	6.5	Н	1.78E-08
5	45-Rh-110	796.7	5.35	B-	3.2	S	1.16E-02
6	26-Fe- 49	797.1	23.7	B+	64.7	MS	2.54E+00
7	27-Co- 50	797.3	26.99	B+P	38.81	MS	4.82E+00
8	50-Sn-131	798.5	* 86.	B-			* N/A
9	69-Tm-162	798.68	5.18	EC	24.3	S	1.48E-03
	69-Tm-162	798.68	8.38	EC	21.7	М	4.46E-05
10	97-Bk-246	798.7	61	EC	1.8	D	2.72E-06
11	56-Ba-143	798.79	15.56	B-	14.5	S	7.44E-03
12	95-Am-246	798.8	24.8	B-	25	М	1.15E-04
13	64-Gd-143	798.89	10.71	EC	110	S	6.75E-04
14	31-Ga- 84	798.9		B-,N	85	MS	N/A
15	60 Nd 154	799 55	10.66	B-	25.9	S	2.85E-03
	00-INU-134	177.55					
16	72-Hf-182	799.6	9.4	<u>B-</u>	61.5	Μ	1.77E-05
16 17	72-Hf-182 81-Tl-210	799.6 799.6	9.4 98.96	B-	61.5	M M	1.77E-05 8.79E-03

表2-3 Cs-134の795.86 keVのピーク前後 5keVの光子放出核種

表3 大気中への放射性セシウムの放出量及びその比率

核種	1 号機	2 号機	3 号機				
	放出量_PBq						
Cs-134	0.71	16	0.82				
Cs-137	0.59	14	0.71				
合計	1.3	30	1.53				
	比率 %						
Cs-134	54.6	53.3	53.6				
Cs-137	45.4	46.7	46.4				

放出量は下記資料の数値を引用し、それを基に比率を算出した。

「表5 解析で対象とした期間での大気中への放射性物質の放出量の試算値(Bq)」

 [・]東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に係る1号機、2号機及び3号機の炉心の 状態に関する評価について:平成23年6月6日原子力安全・保安院、
<u>http://dl.ndl.go.jp/view/download/digidepo_6017222_po_20110606-1nisa.pdf?contentNo=1&alternativeNo=</u>



- 図1 食品中の放射性セシウムの検査の流れ
 - 1) 食安発0315第4号 平成24年3月15日
 - 2) 事務連絡 厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課 平成24年3月1日 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



¹³⁴Ba₇₈ STABLE

図2 Cs-137 及び Cs-134 の壊変図(IAEA/Live Chart of Nuclides の図に太矢印を加筆) https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html



図3 ウラン壊変系列

原子力百科事典 ATOMICA:一般財団法人 高度情報科学技術研究機構 http://www.rist.or.jp/atomica/data/pict/08/08010312/07.gif の図に赤破線加筆



図4 放射性セシウムの減衰による経時変化 (表3参照) 平成23年3月の放出量をCs-137:15 PBq、Cs-134:18 PBq(平成23年6月6日原子力安全・ 保安院推定値)とし、それぞれの半減期を30年、2.1年としたときの核種ごとの放射能量の 減衰による経時変化、およびそれらの合計量の変化を左軸で示す。また、 Cs-137の放射性セシウム(Cs-134+Cs-137)に対する比率変化を右軸で示す。



図5 放射能計測の国際的トレーサビリティ体系 https://www.nmij.jp/library/IR(J)/confidence/index.html より