

NaI (TI) シンチレーションサーベイメータを用いた 放射性セシウム濃度推定に関する一考察

中込和徳¹・斎藤憲洋¹・細井要一¹

NaI(Tl) シンチレーションサーベイメータによる、放射性セシウム量の推定精度等について、焼却灰及び牛肉の実試料を用い、平成23年6月末から8月初めにかけて、若干の検討を行った。焼却灰については、市販の1Lポリ容器を用いて検討した結果、換算係数は100Bq/cps、検出下限値は120Bqと見積もられ、1200Bq程度の規制値に対するスクリーニングの可能性が示唆された。牛肉については、市販の500ml及び3Lポリ容器を用いて検討した結果、換算係数はそれぞれ、100及び33(Bq/kg per cps)、検出下限値は、それぞれ、120及び40(Bq/kg)と見積もられ、3Lポリ容器を用いた場合、400Bq程度の規制値に対するスクリーニングの可能性が示唆されたが、技術的、費用的課題から、実施は困難であると考えられた。

キーワード：NaI (TI) シンチレーションサーベイメータ、放射性セシウム、焼却灰、牛肉、スクリーニング

量の推定精度等に関する若干の検討結果について報告する。

1. はじめに

平成23年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故により、東日本を中心とした広い範囲に放射性物質が拡散し、事故から10ヶ月以上経過した現在でも、放射性セシウム(Cs-134及びCs-137)の影響が懸念されている。

放射性セシウムの各種試料中濃度は、ゲルマニウム半導体核種分析装置を用いて測定するのが原則であるが¹⁾、比較的安価で導入の容易な機器であるNaI(Tl)シンチレーションサーベイメータ(以下単にサーベイメータ)等を用いた、食品中放射性セシウムのスクリーニング方法が厚生労働省から示されている¹⁾。当該測定法において、検出下限値は、規制値の1/10以下であることが求められるとともに、測定機器及び測定環境等の影響を受けることが指摘されており、実際の測定条件下において、検出下限値をあらかじめ確認しておく必要があると考えられる。

本報では、当所のバックグラウンドレベル、及び測定条件(放射性セシウム濃度既知の実試料を校正用標準試料として用いるとともに、計数効率が出来るだけ大きくなるように独自のジオメトリを設定)における、サーベイメータを用いた放射性セシウム

2. 調査方法

2.1 試料

焼却灰については、県内下水処理場の汚泥焼却灰4検体及び県内一般廃棄物焼却施設の焼却灰14検体を、牛肉については、県外産牛肉4検体を検討に用いた。焼却灰は、一旦ビニール袋の中で混合したものを、ゲルマニウム半導体核種分析用と、サーベイメータ測定用に分取し、測定に供した。牛肉については、ゲルマニウム半導体核種分析後の試料又は、もとの肉片から採取し直した試料をサーベイメータ測定に供した。

2.2 ゲルマニウム半導体検出器による核種分析

測定には、キャンベラ社製検出器(GC2018-7500S-2002C)を使用した。試料容器は原則としてU-8容器を使用した。一部の牛肉については2Lマリネリ容器を使用した。測定時間はいずれの試料も2000秒とした。分析方法の詳細については、文部科学省編放射能測定法シリーズ(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)²⁾に従った。測定結果は、Cs-134、Cs-137ともに、サー

1 長野県環境保全研究所 大気環境部 〒380-0944 長野市安茂里米村197

ベイメータによる計数率測定時点に減衰補正した。

2.3 サーベイメータによる焼却灰の測定

測定は、日立アロカメディカル社製サーベイメータ (TCS-172B) を使用し、平成 23 年 6 月 30 日から 8 月 1 日の間に実施した。試料容器は市販の 1L ポリ容器 (アイボーイ角瓶) を使用し、容器の目盛りで概ね 800ml の試料を詰めた。計数率 (cps) の測定は、時定数を 30 秒とし、検出器部分をビニール袋で保護した上で、図 1 に示すように、試料の側面中心に垂直に密着させ、3 分経過後から 30 秒間隔で 5 回計測し、その平均値を用いた。なお、バックグラウンド計数率は、試料の無い状態で測定したが、焼却灰の代わりに純水を 800ml 入れたものについて測定した結果と差は見られなかった。正味の計数率は、試料の計数率から、一連の試料測定の開始前と終了後に測定したバックグラウンド計数率の平均値を差し引いて求めた。

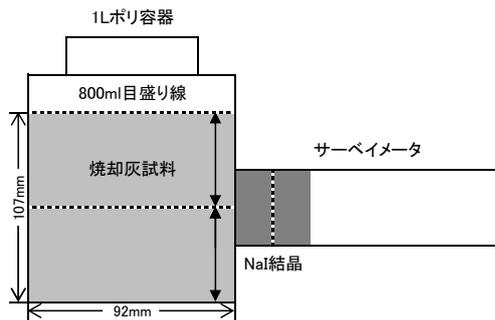


図1 焼却灰の計数率測定状況

2.4 サーベイメータによる牛肉の測定

測定は、平成 23 年 8 月 2 日から 3 日の間に実施した。測定に用いた機器及び計数率の測定方法は、焼却灰と同様の方法で行った。試料容器は市販の 500mL ポリ容器 (アイボーイ広口瓶) 及び 3L ポリ容器 (サンプラテック PE 広口瓶) を使用し、計数効率が出来るだけ大きくなるように、試料と検出器の位置関係を設定した。すなわち 500ml 試料容器については、まず、容器を 450ml の目盛りで切断し、試料を 250ml の目盛りまで隙間なく詰めた後、100ml ガラス製トールビーカー (外径 50mm, 高さ 88mm, 柴田) を、上端の高さが試料容器の切断面と一致するまで試料の中心に挿入した (このとき試料の高さは約 400ml の目盛り)。その上で、ビニール袋で保護した検出器部分を、このトールビーカーの中へ、底面に接するまで挿入した (図 2)。3L 試

料容器については、まず、容器の上部を切断し、1800ml の試料を隙間なく詰めた後、100ml ガラス製トールビーカー (外径 50mm, 高さ 88mm, 柴田) を、上端の高さが試料の上端面と一致するまで中心に挿入した (このとき試料の高さは、トールビーカー挿入前より 1cm 程度高くなった)。その上で、ビニール袋で保護した検出器部分を、このトールビーカーの中へ、底面に接するまで挿入した (図 3)。なお、バックグラウンド計数率は、牛肉試料の代わりに純水を試料と同量入れたものについて測定した。

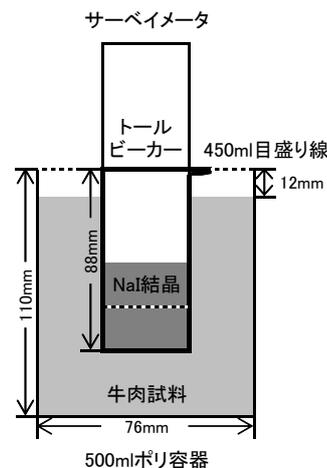


図2 500ml試料容器による牛肉の計数率測定状況

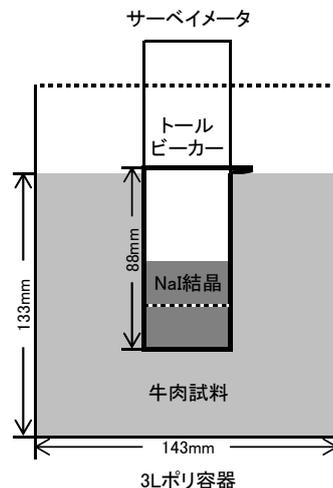


図3 3L試料容器による牛肉の計数率測定状況

3. 結果及び考察

3.1 焼却灰中放射性セシウム含有量の推定

ゲルマニウム半導体核種分析装置及びサーベイメータによる測定結果の一覧を表 1 に示した。Cs-137 と Cs-134 の濃度比は、少なくとも一方が検出下限値未満であった試料 13 及び 14 を除くと、最

表1 焼却灰の測定結果

試料番号	容量 (ml)	重量 (g)	密度 (g/ml)	Cs-134 (Bq/kg)	Cs-137 (Bq/kg)	Cs-137/ Cs-134	放射性Cs (Bq)	正味計数率(cps)	推定値** (Bq)	差*** (Bq)
1	780	435	0.56	140	150	1.1	120	1.6	160	40
2	790	434	0.55	130	190	1.5	140	2.1	210	70
3	800	664	0.83	1800	2000	1.1	2600	26	2600	0
4	800	449	0.56	830	860	1.0	760	7.4	740	-20
5	800	1543	1.9	16	23	1.4	60	3.5	350	290
6	800	742	0.93	23	36	1.6	44	2.1	210	166
7	800	793	0.99	120	140	1.2	210	3.1	310	100
8	800	943	1.2	80	98	1.2	170	2.3	230	60
9	800	413	0.52	51	69	1.4	49	0.9	90	41
10	800	659	0.82	42	58	1.4	66	2.4	240	174
11	800	269	0.34	40	42	1.1	22	0.3	30	8
12	800	488	0.61	17	16	0.9	16	1.0	100	84
13	800	759	0.95	4*	17	—	16	0.9	90	74
14	800	997	1.2	3*	3*	—	6	0.7	70	64
15	800	1408	1.8	18	17	0.9	49	0.9	90	41
16	810	961	1.2	340	410	1.2	720	8.1	810	90
17	820	287	0.35	13	14	1.1	8	-0.2	-20	-28
18	820	952	1.2	12	23	1.9	33	1.5	150	117
最大	820	1543	1.9	1800	2000	1.9	2600	26	2600	290
最小	780	269	0.34	3*	3*	0.9	6	-0.2	-20	-28
平均	800	730	0.92	200	230	1.3	280	3.6	360	76

* 検出下限値未満(検出下限値の1/2の値)

** 換算係数=100(Bq/cps)として正味計数率から放射性セシウム量を推定

*** 放射性セシウムの推定値から実測値を差し引いたもの

大 1.9, 最低 0.9, 平均で 1.3 であった。試料の容量は 800 ± 20ml の範囲にあった。試料の密度は最大 1.9, 最低 0.34, 平均 0.92g/ml であり, 試料による差が大きかった。放射性セシウム濃度 (Bq/kg) と正味計数率の関係 (換算係数) は, 試料の密度によって変化するため, 焼却灰試料については, 試料の密度によって変化しない, 放射性セシウム含有量 (Bq) と正味計数率の関係 (換算係数) について検討した。

図 4 に正味計数率と放射性セシウム含有量 (Cs-134 と Cs-137 の合計) の関係を示す。測定結果は, 概ね, 換算係数 100(Bq/cps) の線上に位置していたが, 放射性セシウム含有量が 500Bq 未満の試料について, 換算係数 100(Bq/cps) の直線より, 数 cps 程度右にずれている試料が見られた。これは, K-40 や Bi-214 等の天然核種の影響によるものと思われる, 換算係数を 100 (Bq/cps) として正味計数率から求めた放射性セシウム含有量の推定値と, ゲルマニウム半導体核種分析装置による実測値との差から, 放射性セシウム含有量として, 最大 290, 平均 76Bq の過大評価と見積もられた。

また, バックグラウンド計数率の平均値は 36 cps であり, その標準偏差 (σ) は 0.4 cps であったことから, 検出下限値 (3 σ) は, 換算係数を 100 (Bq/

cps) として, 120Bq と見積もられた。

試料量を 800ml, 密度を 1g/ml とした場合, 換算係数 100 (Bq/cps) は, 125(Bq/kg per cps) に相当するが, この値は, 社団法人日本アイソトープ協会が, 本報と同型のサーベイメータを用いて, 2L ポリビンの側面で測定した, Cs-137 濃度に対する換算係数³⁾144(Bq/kg per cps) より, やや小さい値であった。本報において, 半分以下の試料量で, 同程度の換算係数が得られたのは, Cs-137 より計数効率の高い Cs-134¹⁾ を含む実試料を, 換算係数の算出に用いたことが主な要因であると考えられる。

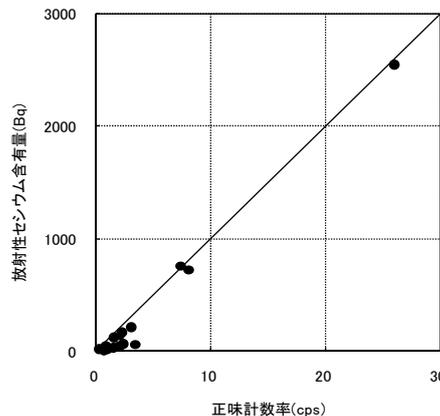


図4 焼却灰の正味計数率と放射性セシウム含有量の関係

試料の充填量の誤差が換算係数に与える影響について検討するため、試料3の充填量を、500mlから800mlまで変化させて、換算係数を求めた結果を図5に示す。この図から、試料量に対する換算係数の変化率は、約0.05 (Bq/cps per ml)と見積もられ、本報における試料量の誤差範囲に対応する、換算係数の誤差範囲は±1 (Bq/cps)程度と見積もられた。

本報では、実試料を用いて、換算係数を推定したが、試料中のCs-134(半減期約2年)とCs-137(半減期約30年)の比は、時間経過により変化し、それにもなって換算係数が変化すると考えられる。実際、表1の試料3について、約7ヶ月後に、再度サーベイメータによる計数率測定を行い、換算係数を求めたところ、6%ほど高い値となった。このことから、サーベイメータによる測定時点における、対象試料中の放射性セシウム同位体比を考慮して、適切な試料を用いて、定期的に換算係数を求め直す必要があると考えられ、できれば月1回程度の頻度で換算係数を求め直すことで、その時間経過による誤差を概ね1%以内にできると考えられた。

以上のことから、少なくとも数ヶ月に1回程度、換算係数を求め直す必要はあるが、本報の測定条件下では、1200Bq(検出下限値の10倍)程度の規制値に対して、スクリーニングを実施できる可能性が示唆された。

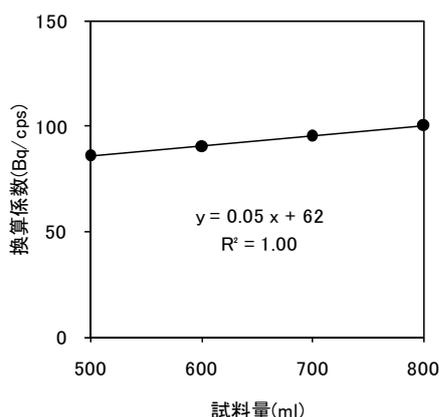


図5 焼却灰の試料充填量と換算係数の関係

3.2 牛肉中放射性セシウム濃度の推定

サーベイメータによる検出下限値を小さくするためには、バックグラウンド計数率を小さくする必要がある¹⁾ことから、測定に先立って、所内において、バックグラウンド計数率のできるだけ低い場所を探した。その結果、排水処理棟の2階南側のバックグラウンド計数率が最も低く、平均で約21cpsで

あった。これは、焼却灰の測定を実施した大気環境部第4研究室のバックグラウンド計数率(平均で約36cps)と比較すると、15cpsほど低い値であった。しかし、バックグラウンド計数率の標準偏差(σ)から求めた検出下限値(3σ)は、ともに1.2cpsであり、顕著な差は見られなかった。更に、厚さ5cmの鉛遮蔽ブロック内に検出器部分を入れてバックグラウンド計数率を測定したところ、計数率の平均値は約2cpsと低い値であったが、検出下限値(3σ)は約0.8cpsであり、大幅な低減は見られなかった。このように、それぞれの標準偏差から求めた検出下限値に顕著な差は見られなかったが、本報では、バックグラウンド計数率の最も低かった排水処理棟2階南側において、サーベイメータによる測定を実施した。

ゲルマニウム半導体核種分析装置及びサーベイメータによる測定結果の一覧を表2に示す。試料の密度はいずれも約1g/mlであった。Cs-137とCs-134の濃度比は、最大1.6、最小1.1、平均1.2であった。500ml及び3L試料容器における、換算係数はそれぞれ、概ね100及び33(Bq/kg per cps)であった。このうち3L試料容器の値は、社団法人日本アイソトープ協会が、本報と同型のサーベイメータを用いて、2Lポリビン中に検出器を挿入して測定した、Cs-137濃度に対する換算係数³⁾である、67.8(Bq/kg per cps)の半分程度の値であった。バックグラウンド計数率の標準偏差から求めた、検出下限値(3σ)は、それぞれ、120及び40(Bq/kg)と見積もられ、3L試料容器を用いた場合、400Bq(検出下限値の10倍)程度の規制値に対して、スクリーニングを実施できる可能性が示唆された。しかし、本報では実試料を用いて換算係数を算出しているため、少なくとも数ヶ月に1回程度、換算係数を求め直す必要があるとともに、校正用試料である牛肉等が時間とともに劣化するという、技術的な課題がある。また、測定に供する試料量が多いこと、自動測定ができないこと等、材料費や人件費など、費用面での課

表2 牛肉の測定結果

試料番号	試料容器	Cs-134 (Bq/kg)	Cs-137 (Bq/kg)	放射性セシウム (Bq/kg)	正味計数率 (cps)	換算係数 (Bq/kg per cps)
1	500ml	30	47	77	0.76	100
2		150	160	310	3.1	
3	3L	68	77	145	4.2	33
4		130	150	280	8.7	

題もあり、食品のスクリーニングへの適用は困難であると考えられた。

謝 辞

調査の実施にあたっては、文部科学省環境放射能水準調査用のゲルマニウム半導体核種分析装置を使用させていただきました。ここに感謝の意を表します。

文 献

1) 厚生労働省, 事務連絡「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 23 年 11 月 10 日.

- 2) 文部科学省科学技術・学術政策局 (1992) 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, 放射能測定法シリーズ, No.7.
- 3) 社団法人日本アイソトープ協会, 緊急時における食品中の放射性セシウム測定に用いる NaI(Tl) シンチレーションサーベイメータの機器校正 (続報), 平成 23 年 6 月 20 日, <http://www.jrias.or.jp/index.cfm/6,15496,110.html> (最終アクセス日 平成 24 年 1 月 17 日).

A Study on Estimation of Radioactive Cesium Level Using a NaI(Tl) Scintillation Survey Meter

Kazunori NAKAGOMI¹, Norihiro SAITO¹ and Youichi HOSOI¹

¹ Nagano Environmental Conservation Research Institute, Atmospheric Environment Division,
1978 Komemura, Amori, Nagano 380-0944, Japan