

# Nal (T1) シンチレーションサーベイメータによる穀物試料の放射性セシウム測定

|       |   |
|-------|---|
| 誌名    | 日本食品科学工学会誌 : Nippon shokuhin kagaku kogaku kaishi = Journal of the Japanese Society for Food Science and Technology |
| ISSN  | 1341027X  |
| 著者名   | 亀谷,宏美<br>荻原,昌司<br>根井,大介<br>柿原,芳輝<br>木村,啓太郎<br>松倉,潮<br>川本,伸一<br>等々力,節子   |
| 発行元   | 日本食品科学工学会   |
| 巻/号   | 58巻9号   |
| 掲載ページ | p. 464-469  |
| 発行年月  | 2011年9月   |

農林水産省 農林水産技術会議事務局筑波産学連携支援センター  
Tsukuba Business-Academia Cooperation Support Center, Agriculture, Forestry and Fisheries Research Council  
Secretariat



# NaI (Tl) シンチレーションサーベイメータによる 穀物試料の放射性セシウム測定 —環境放射線の遮へい効果と Ge 半導体検出器測定との相関—

亀谷宏美<sup>1</sup>, 萩原昌司<sup>1</sup>, 根井大介<sup>1</sup>, 柿原芳輝<sup>2</sup>, 木村啓太郎<sup>1</sup>,  
松倉 潮<sup>1</sup>, 川本伸一<sup>1</sup>, 等々力節子<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> 独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構 食品総合研究所

<sup>2</sup> 財団法人日本穀物検定協会

## The Shielding of Radiation for the Detection of Radioactive Cesium in Cereal Sample by Using a NaI (Tl) Scintillation Survey Meter

Hiromi Kameya<sup>1</sup>, Shoji Hagiwara<sup>1</sup>, Daisuke Nei<sup>1</sup>, Yoshiteru Kakihara<sup>2</sup>, Keitaro Kimura<sup>1</sup>,  
Ushio Matsukura<sup>1</sup>, Shinichi Kawamoto<sup>1</sup> and Setsuko Todoriki<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> National Food Research Institute, NARO, 2-1-12 Kannondai, Tsukuba, Ibaraki 305-8642

<sup>2</sup> The Japan Grain Inspection Association, 15-6 Nihonbashi Kabuto-cho, Chuo-ku, Tokyo 103-0026

The shielding of radiation in the environment after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident were examined for the detection of a low level of radioactive cesium in food samples by using a NaI (Tl) scintillation survey meter. The reduction of the environmental radiation with different thickness of lead shield was demonstrated in a laboratory in the Tsukuba City. To detect the low level of radioactive cesium (<sup>137</sup>Cs and <sup>134</sup>Cs) in barley samples, the conditions in terms of the shielding and the geometry of sample and scintillation probe were designed. Under the appropriate shielding conditions, a linear correlation between the concentration of <sup>137</sup>Cs and <sup>134</sup>Cs (Bq/kg) and the net counting rate (cps) of the NaI(Tl) scintillation survey meter was confirmed.

(Received Aug. 14, 2011 ; Accepted Aug. 22, 2011)

**Keywords :** NaI(Tl) scintillation survey meter, Radioactive Cesium, Environmental Radiation, Shielding Effects

**キーワード :** NaI (Tl) シンチレーションサーベイメータ, 放射性セシウム, 環境放射線, 遮へい効果

東日本大震災に伴う、東京電力福島第一発電所の事故により食品の放射能汚染が問題となっている。今回の事故で大気中に放出された放射性核種の中で、事故後4ヶ月以上を経過した2011年7月現在、食品汚染の主原因となっているのはガンマ線放出核種の放射性セシウム (<sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs) であり<sup>1)</sup>、これらについて暫定規制値を超えた農産物については、原子力災害基本法に基づいた出荷制限が行われている。食品中の放射性核種の分析は、ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリが採用されている<sup>2)</sup>。しかし、検査機器の台数や検査にかかる時間の問題から、モニタリング検査の件数が制約されている現状がある。今後、対象となる農産物が増加するこ

とから、検査の迅速化が求められている。タリウム活性化ヨウ化ナトリウム (NaI (Tl)) シンチレータは、結晶にγ線が照射されると蛍光を生じる。この蛍光強度を波高分析することにより核種分析が可能であるが、ゲルマニウム半導体検出器よりもエネルギー分解能は低い。しかしながら、γ線に対する計数効率もGe半導体検出器よりも高く、検出器部分を液体窒素で冷却する必要がないため維持管理も容易である。このことから、簡易的なスクリーニングに、計数効率の高いNaI (Tl) シンチレータを検出部に用いたサーベイメータやスペクトロメータを利用することが期待される。

現在の空間線量は、土壌表面などに沈着した放射性セシウムから放出されるγ線の影響により平常時に比べて著しく増加している地域がある。一部地域では、食品中の暫定規制値レベルの放射線量を、NaI (Tl) シンチレーション

<sup>1</sup> 〒305-8642 茨城県つくば市観音台 2-1-12

<sup>2</sup> 〒103-0026 東京都中央区日本橋兜町 15-6

\* 連絡先 (Corresponding author), setsuko@affrc.go.jp

サーベイメータで正確に測定するのに支障が生ずる恐れがある。NaI (Tl) シンチレーションサーベイメータによって、食品中の放射性セシウムから放出される暫定規制値レベルの放射線を正しく検出するためには、測定環境の放射線(空間線量)の影響を低減し、バックグラウンドレベルに比較して統計的に有意な差がある計数値を得る必要がある。そのための測定条件として、鉛などを用いた環境放射線を遮るための遮へい体を利用することが、環境放射線の影響を低減するために有効である。

本研究では、2011年7月時点での茨城県つくば市の環境放射線量条件下で食品試料を測定することを想定し、そのために有効な鉛遮へい体の試作を行い、空間線量低減効果を検討した結果を示す。また、今後、NaI (Tl) シンチレーションサーベイメータを使った穀物試料のスクリーニング法の開発可能性を検討するため、大麦中の放射性セシウム濃度(Ge半導体検出器による $\gamma$ 線スペクトロメトリでの測定値)と、各遮へい条件、検出器条件におけるNaI (Tl) シンチレーションサーベイメータの計数率との相関について議論する。

## 実験方法

### 1. 試料

試験圃場で栽培した平成23年産大麦(原麦)試料7点を実験に供した。

### 2. Ge半導体検出器による放射能測定

大麦試料をU-8容器に詰め、厚生労働省の定める「緊急時における食品中の放射能測定マニュアル(平成14年)2)」に従い、Ge半導体検出器(CANBERRA GC2020-7500 SL-2002CSL)を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリにより測定時間3600秒で $^{134}\text{Cs}$ および $^{137}\text{Cs}$ の測定を行った。

### 3. NaI (Tl) シンチレーションサーベイメータ

次の3種類のNaI (Tl) シンチレーションサーベイメータを、空間線量および大麦試料の測定に用いた。

- ・日立アロカメディカル製 TCS-172 (機種 A)  
NaI (Tl) 結晶サイズ 1 インチ  $\phi$  × 1 インチ  
(レートメータタイプ)  
検出エネルギー範囲; 50 keV ~ 3 MeV
- ・CANBERRA 製 RADIAGEM2000 (機種 B)  
NaI (Tl) 結晶サイズ 1 インチ  $\phi$  × 1 インチ  
検出エネルギー範囲; 50 keV ~ 1.25 MeV
- ・BNC (Berkeley Nucleonics Corp) 製 SAM-940 (機種 C)  
NaI (Tl) 結晶サイズ 2 インチ  $\phi$  × 2 インチ  
検出エネルギー範囲; 18 keV ~ 3 MeV  
(今回の実験では、スペクトロメータ機能は用いていない。)

### 4. 鉛遮へい体

厚さ3mmの鉛板(圧延板:純度>99.9%,密度11.34g/cm<sup>3</sup>)は、西日本セキスイ商事(株)より購入し、図1に示す円盤状の上蓋と側面厚3mmの円筒容器を作製した。また、厚さ2cmの鉛平板および厚さ1cmおよび2cmの鉛円筒(側面板)はMDS Nordon社製(純度>99.9%,密度11.34g/cm<sup>3</sup>)を使用した。これらを組み合わせて図1に示すような5つの遮へい条件を構築した。

### 5. 空間線量と遮へい効果の測定

食品総合研究所の一般実験室内と敷地内屋外での空間線量に対する鉛遮へい体の低減効果を計測した。

遮へい容器を床面(地面)から80cmの高さのテーブルの上に置き、容器の底から約6cmの位置にサーベイメータのプロープの先端位置を合わせて下向きに保持した。遮へいを行わない場合もテーブル上の同じ高さ位置にプロープを保持した。測定モードは計数率(cps)とし、サーベイメータの時定数は30秒とし、測定器を測定位置にセットして90秒後から計測を開始した。機種Aでは、30秒間隔で連続的に指示値を読み取り、5回の計測結果を記録した。また、機種BおよびCでは、測定時間を30秒として5回の繰り返し測定を行った。

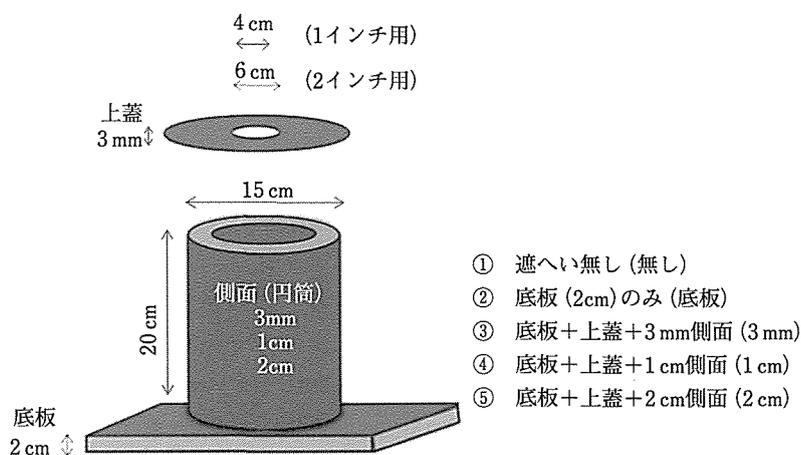


図1 環境放射線の遮へい鉛板、容器の構造

6. 大麦試料の測定

大麦試料の測定手順は、文部科学省のマニュアル「緊急時におけるヨウ素測定法」<sup>3)</sup> のスクリーニング測定手順およ

び厚生労働省の「NaI (TI) シンチレーションサーベイメータによる放射性ヨウ素測定法」<sup>2)</sup> に従い、30 秒間隔の試料測定 3 回とバックグラウンド測定 3 回を 1 測定とした。

大麦試料 450 g は厚さ 0.3 mm のスチール缶容器に入れ、実験室内で高さ 80 cm のテーブルの上で測定した。あるいは、図 2 に示したような厚さ 3 mm または 2 cm の鉛円筒容器の中にスチール缶容器を内容器としてセットした。この大麦試料の中に、サーベイメータのプロープ先端を挿入し、NaI (TI) 結晶部分が大麦試料に埋め込まれるように試料表面からの深さを一定に配置した。鉛遮へいを行う場合は、さらに、円筒容器を 3 mm 厚の鉛製の上蓋で覆った。大麦試料にサーベイメータをセットして 90 秒保持した後、機種 A では 30 秒間隔で計数率を 3 回、機種 C および機種 B では 30 秒の測定時間での計数率を 3 回読み取った (料計数率:  $n_s$ )。次にサーベイメータのプロープを試料から抜き取り、空のスチール缶容器を試料と同様に遮へい体にセットし、同じ空間位置にプロープを保持して同様に 3 回の計測を行った (バックグラウンド計数率:  $n_b$ )。試料測定およびバックグラウンド測定それぞれの計数率の平均値を求め、その差を 1 回の測定の正味計数率 ( $n_s - n_b$ ) とした。

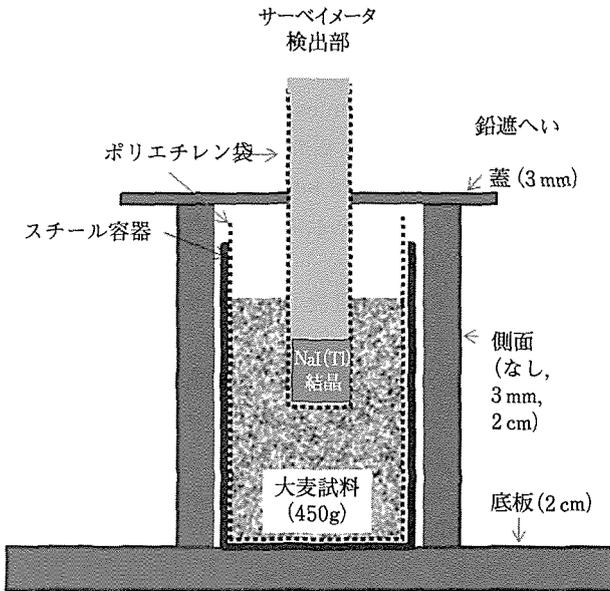


図 2 大麦試料測定を試料、遮へい体、プローブの模式図

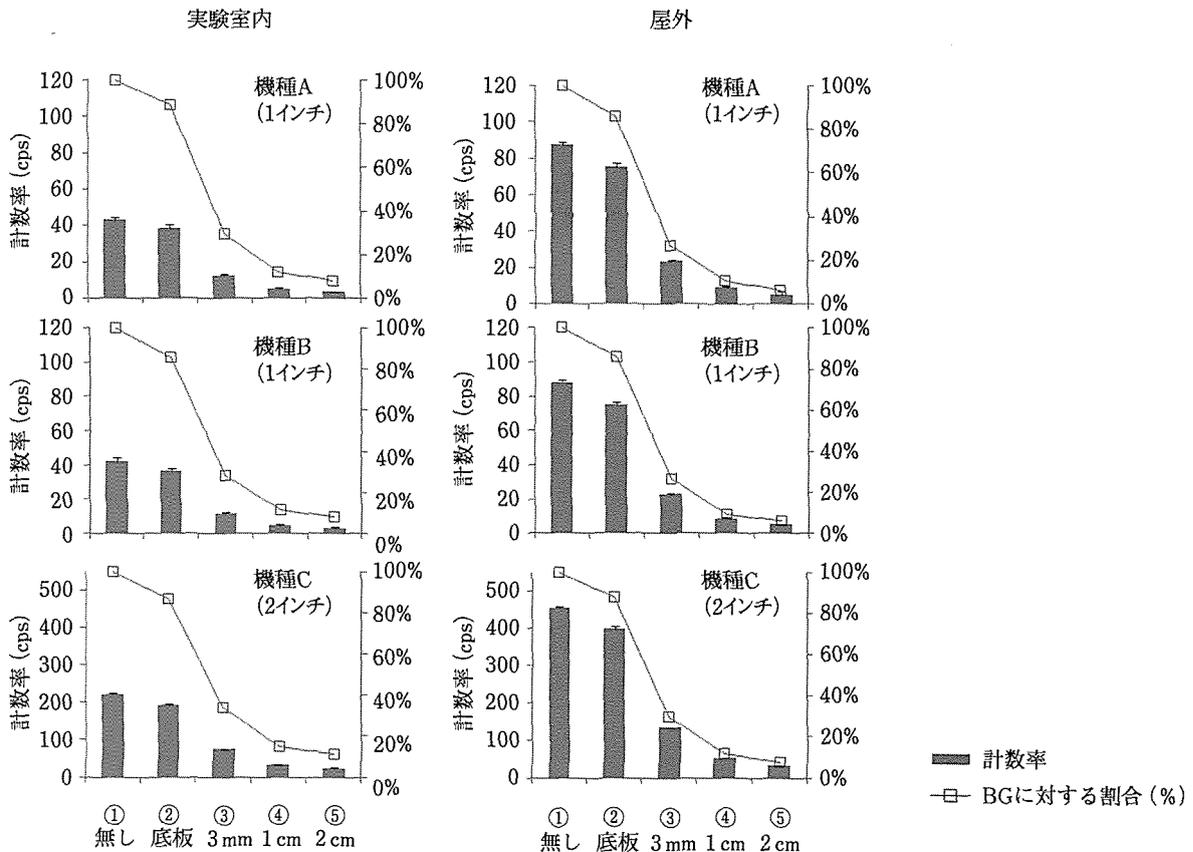


図 3 鉛遮へい容器の使用による空間線量の低減効果

- ① 無し、遮へい無し；② 底板、底板 (2 cm)；③ 3 mm、底板+上蓋+3 mm 側面；④ 1 cm、底板+上蓋+1 cm 側面；⑤ 2 cm、底板+上蓋+2 cm 側面。

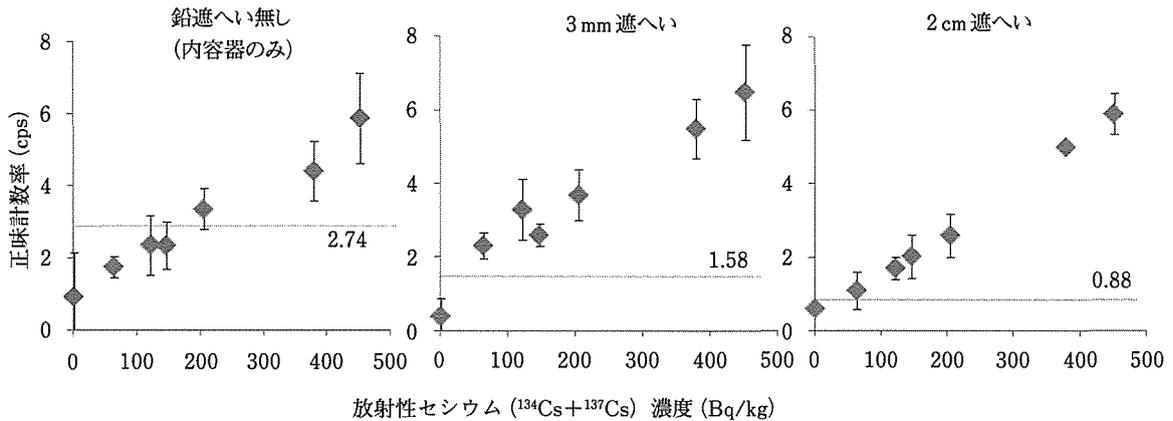


図 4 大麦試料の放射性セシウム濃度と正味計数率 (遮へい効果の比較)

機種 B (結晶サイズ 1 インチ) を用い測定. 図中の境界, 数値は, 平均的なバックグラウンド計数率に対する正味計数率の検出下限 ( $n_s - n_b = 3\sigma$ ) を表している.

### 実験結果および考察

#### 1. 空間線量 (バックグラウンド値) の遮へい

実験室内 (屋内) の高さ 80 cm での空間線量率は 0.1  $\mu$  Sv/h, 屋外は 0.2  $\mu$  Sv/h 程度であった. この環境で, 3 機種の NaI (TI) シンチレーションサーベイメータを用いて, 遮へい条件を変えて計数率 (cps) を測定した結果を図 3 に示す. 地表や床面からの放射線を 2 cm 厚の鉛で遮ったうえで, 検出器プローブの結晶部分を覆うように円筒形に側面方向からの遮へいを行うことで, 遮へい体を用いない場合に比べて, 著しい計数率の低下が認められた. 検出器の結晶サイズが大きくなると, 入射する放射線の絶対量が増えるため, 測定された計数率は 1 インチプローブに比較して 2 インチプローブのほうが数倍大きい. しかし, 2 cm の側面の鉛を使用した条件で, 計数率は遮へいなしの時の値の 1/10 以下に低減され, 低下の割合に機種や検出器の結晶サイズによる違いはほとんど無かった. また, 測定場所を空間線量の高い屋外に変えても, 計数率の低減割合は屋内とほぼ同様の傾向を示し 2 cm の遮へいで, バックグラウンドに比べ 5%程度にまで低減した.

#### 2. 大麦の測定における NaI (TI) シンチレーションサーベイメータの正味計数率と Ge 半導体検出器による放射性セシウム濃度との相関

Ge 半導体検出器による測定において, 6 つの検体から検出下限を超えた  $^{134}\text{Cs}$  および  $^{137}\text{Cs}$  が検出され, その比はおおよそ 48 : 52 であった. 残りの 1 つの試料は, 今回用いた Ge 半導体検出器での測定条件において, 検出下限以下 ( $^{134}\text{Cs} < 8.3 \text{ Bq/kg}$ ,  $^{137}\text{Cs} < 7.9 \text{ Bq/kg}$ ) であった.

これらの試料 (450 g) を用い, NaI (TI) シンチレーションサーベイメータによる計測を実施した.

図 4 に 1 インチの NaI (TI) 結晶を備えた検出器 (機種 B) を用い, 異なる 3 つの遮へい条件 (鉛遮へい体無し, 3

mm 円筒, 2 cm 円筒 : 図 1 および図 2 参照) で測定した結果を示す. ここで, X 軸は Ge 半導体検出器で求めた  $^{134}\text{Cs}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の合計濃度, Y 軸は正味計数率 ( $n_s - n_b$ ) である. 正味計数率は, NaI (TI) サーベイメータの検出プローブの位置を決めてから 30 秒間の計測時間で連続的に 3 回ずつ読み取った試料計数率 ( $n_s$ ) とバックグラウンド計数率 ( $n_b$ ) の平均値の差, すなわち合計 90 秒の測定時間で計測した計数率の差に当たる. 図中のプロットは, 独立した 3 回の正味計数率の測定の平均値と標準偏差を表している.

各大麦試料に対する正味計数率の平均値は, 試料の放射性セシウム濃度に対してほぼ直線的に増加した. また, 正味計数率は遮へい条件によらず, 同レベルであった. ただし, 遮へい効果が大きくなると, 正味計数率の直線的濃度依存性は改善され, 繰り返し測定の標準偏差は小さくなる傾向があった.

なお, 1 回の測定で得られる正味計数率 ( $n_s - n_b$ ) の誤差 ( $\sigma$ ) は次式で与えられる<sup>4)5)</sup>

$$\sigma = \sqrt{\frac{n_s}{t_s} + \frac{n_b}{t_b}} \tag{1}$$

$n_s, n_b$  試料およびバックグラウンド計数率 (cps)  
 $t_s, t_b$  試料およびバックグラウンド計数時間 (s)

また, 計数率計 (レートメータ) の場合は,

$$\sigma = \sqrt{\frac{n_s + n_b}{2\tau}} \tag{1'}$$

$n_s, n_b$  試料およびバックグラウンド計数率 (cps)  
 $\tau$  時定数 (s)

放射線計測では, 正味計数率 ( $n_s - n_b$ ) の下限値は誤差 ( $\sigma$ ) の 3 倍より大きくなるように設定されることが多く<sup>5)</sup>, この関係を式で表すと次式が成立する.

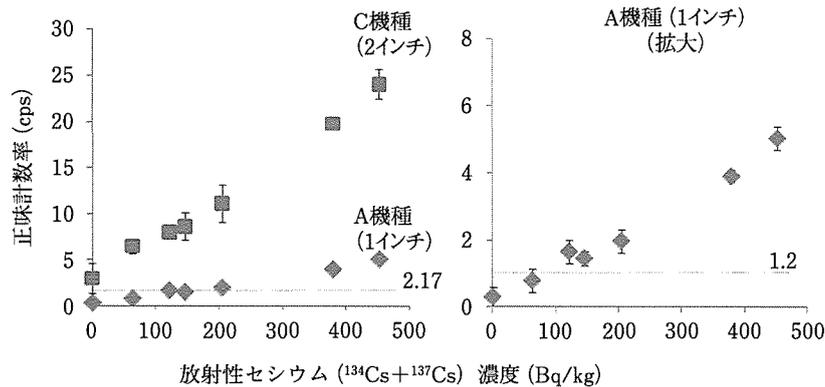


図 5 大麦試料の放射性セシウム濃度と正味計数率 (検出器の比較)

機種 A (結晶サイズ 1 インチ, レートメータタイプ)

機種 C (結晶サイズ 2 インチ)

左図; 2つの機種の応答を同一スケールで示した. 右図; 機種 A のスケールで拡大. 図中の境線 (数値) は, 計測条件での平均的なバックグラウンド計数率に対する正味計数率の検出下限 ( $n_s - n_b = 3\sigma$ ) を表している. 機種 C (2 インチ) に対しては, 2.17 cps, 機種 A (1 インチレートメータ) に対しては, 1.2 cps.

$$n_s - n_b > 3\sigma = 3\sqrt{\frac{n_s}{t_s} + \frac{n_b}{t_b}} \quad (2)$$

$$n_s - n_b > 3\sigma = 3\sqrt{\frac{n_s + n_b}{2\tau}} \quad (2')$$

このように, 正味計数率の検出下限値は, バックグラウンド値に大きく依存する. 実際の計測に当たっては, 1 対の計数率のセット ( $n_s, n_b, t_s, t_b$ ) について (2) 式の関係性を評価し, 正味計数率が  $3\sigma$  を超える場合にのみ有意に放射線が検出されたと判断できる.

機種 C を用いた今回の各遮へい条件におけるバックグラウンドの平均的な値は, 遮へい無し, 3 mm, 2 cm 側面遮へいで, それぞれ  $36.7 \pm 0.6$ ,  $11.8 \pm 0.5$ ,  $3.4 \pm 0.3$  cps であった. そこで, 検出下限と正味計数率の関係性を評価するため, この平均的なバックグラウンド値に対し, 計測時間 90 秒において正味計数率  $n_s - n_b = 3\sigma$  を与える境界線を図 4 の図中に示した. たとえば, 遮へい無しの場合においては, 高濃度の 2 試料のみが完全に検出下限を超える有意な計数率の増加を与えている. 一方, 低濃度の 4 試料の正味計数率は検出下限を下回っていた. 遮へい効果が大きくなるにしたがって検出下限値を上回る正味計数率の検出範囲が低濃度試料にまで拡大し, 低濃度試料の測定には遮へいが必要であることが確認された. 他の 2 つの機種を用いても同様な結果が得られ, 遮へい効果を大きくすると, 試料濃度に依存して, 有意な計数率の増加が認められた.

図 5 に, 1 インチプローブの検出器 (機種 A) と 2 インチプローブの検出器 (機種 C) を用い, 厚さ 2 cm の鉛円筒で遮へいした時の大麦試料の計測結果を示す. それぞれの検出器に対する遮へい体の効果としては, 上記の検出器 C の場合と同様な結果が得られた. 2 cm 遮へい体を用いた時の平均的なバックグラウンド値は機種 A で  $4.2 \pm 0.3$  cps,

機種 C で  $22.6 \pm 1.6$  cps であった. 2 インチプローブを用いた方が, 入射する放射線が多いことから計数値が大きくなる (= 計数効率が良く), 同じ試料に対しては, 1 インチプローブよりも数倍大きな正味計数率を与え, 実質的に検出下限を下げるのが可能であった. 機種 A の検出器でも, 試料濃度に対する直線的な正味計数率 (平均値) の増加が確認された. しかし, 機種 A は読み値の最小単位が 1 cps で計数率表示のみが可能なタイプの測定器であり, 計数値を積算表示することができない. このようなタイプの測定器では, 単純に 1 回の読み取りで計数率を測定することは危険であり, 何回も数多く繰り返し測定し平均をとるなど, 測定方法に十分注意を払う必要がある.

2011 年 7 月 29 日に, 厚生労働省は, 牛肉の放射性セシウムスクリーニング法として NaI (TI) シンチレーション検出器を用いたサーベイメータやスペクトロメータの使用を例示し, スクリーニング法としての要件を満たす性能確認法や検出下限の確認法を示した<sup>5)</sup>. この方法では, 標準線源等を用いて, 牛肉試料の測定と同様のジオメトリ (試料と測定器の空間配置) における計数効率を求め, 濃度換算を行う. ここでも, 測定の下限値の評価としてバックグラウンドの評価が重要であることが示されており, 50 Bq/kg を検出下限とし, このときの正味計数率 (cps) が計数率の標準偏差  $\sigma$  (誤差) の 3 倍より大きくなるように, 計測時間や遮へい条件を設定することが定められている. また, 計数効率を求める条件 (試料重量, 形状, ジオメトリ) と実試料の測定を出来るだけ同一にし, 再現性を担保するよう注意されている. さらに, スクリーニングレベルの確認法などが例示されている.

本来, 計数効率が最大になるように, ジオメトリについても検討すべきであるが, 本研究では入手した試料の量が少ないことや様々な形状の遮へい体を作製できなかったこ

とから、今回の測定条件の中で最大限の計数値（率）が得られるよう期待して、試料の中にプローブを埋め込む方式をとった。したがって、機器の計数効率について開示されている情報<sup>6)</sup>を適用することはできなかった。

しかしながら、本研究の範囲でも、現在のつくば市程度の環境放射線レベルにおいて NaI (TI) シンチレーションサーベイメータを使用した農産物中の有意な放射能検出には、適切な遮へい体の使用や測定装置の選択など、計測条件への配慮が必須であることが明確に示された。

本研究で示した大麦試料の計測結果は、適切な遮へい条件や測定時間、試料体積とジオメトリを選定したうえでの計数効率の検討と測定値の分布範囲の検証を進めれば、厚生労働省の示した牛肉スクリーニング法を準用して適切なスクリーニングレベルを設定することが出来る可能性を示唆するものである。

### 要 約

つくば市内の研究所の環境放射線レベルを例に、NaI (TI) シンチレーションサーベイメータによる $\gamma$ 線測定における環境中の放射線の鉛遮へい体による低減効果を検証した。また、大麦試料を用いて、適切な鉛遮へい体の使用条件下で、検出下限を超える正味計数率と暫定規制値以下

の放射性セシウム濃度との関係に相関があることを実証した。

### 文 献

- 1) 厚生労働省、食品中の放射性物質の検査について、食品中の放射性物質に関する検査結果、<http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/2r9852000001ceor-att/2r9852000001cest.pdf> (最終アクセス日平成 23 年 8 月 12 日)。
  - 2) 文部科学省科学技術・学術政策局、放射能測定シリーズ No. 15 「緊急時における放射性ヨウ素測定法」(平成 14 年改訂版)、(財)日本分析センター、平成 16 年 7 月。
  - 3) 厚生労働省医薬局食品保健部監視安全課、緊急時における食品の放射能測定マニュアル、平成 14 年 3 月。
  - 4) (財)高度情報科学技術研究機構 (RIST)、放射計測の統計的誤差(原子力百科事典 ATOMICA)、[http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat\\_detail.php?Title\\_Key=09-04-03-18](http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat_detail.php?Title_Key=09-04-03-18) (最終アクセス日平成 23 年 8 月 12 日)。
  - 5) 厚生労働省、事務連絡「牛肉中の放射性セシウムスクリーニング法の送付について」、平成 23 年 7 月 29 日、<http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/2r9852000001krge-att/2r9852000001krme.pdf> (最終アクセス日：平成 23 年 8 月 12 日)。
  - 6) (社)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 (TI) 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 23 年 8 月 12 日)。
- (平成 23 年 8 月 14 日受付, 平成 23 年 8 月 22 日受理)