

食品の汚染検査のための 放射能非破壊検査装置

石井 慶造

Ishii Keizo

(東北大学大学院工学研究科生活
環境早期復旧技術研究センター)

1 はじめに

2011年3月11日の東日本大震災の後に起こった福島第一原子力発電所事故は福島県を中心に放射能汚染災害を引き起こした。この汚染によって、福島県及びその近隣の県で生産される農作物、魚介類の放射性物質、特に、2014年においては、放射性Csによる汚染が問題となっている。厚生労働省は、安全の目安の比放射能値を、水道水については10 Bq/kg、牛乳・乳製品については50 Bq/kg、これら以外の食品については100 Bq/kgとしている。また、原則としてGe検出器による比放射能の測定値がこの基準値以下ならば、市民の食卓に供することができるとしている。しかし、Ge検出器は、液体窒素や専門家による操作が必要であり、更に高価であることより、被災地全域にこれを用いた汚染検査所を多数設けることは現実的でない。そこで、エネルギー分解能はGe検出器に比べてかなり悪いが、操作が簡単なNaI(Tl)シンチレータで測定して、その数値でもって評価してよいとされた^{1,2)}。

現在、被災地の多くの自治体に放射能モニタリングセンターが置かれており、そこでは、調べようとする食品の一部をミンチ状にしてマリネリ容器に入れ(かなりの量の食品が必要)、シンチレータ検出器で放射線を測定し、比放射能を求める²⁾。比放射能値が基準値以下なら

ば、調べようとした食品は全部、基準値以下と推定することとする。しかし、この方法では、ミンチ状にした食品はたいがいゴミと化すが、食するとしてもミンチ状にした形で食材にしなければならない欠点がある。また、測っていないほかの食品が本当に基準値以下なのか断定できない。

そこで、東北大学は、食品を丸ごと測定して、その比放射能値を求め、測ったものを直接に食することができる“放射能非破壊検査装置”を開発した。ここでは、本装置の仕組み等とそれを用いた福島市での測定結果について紹介する。

2 非破壊検査における放射能分布測定の必要性

非破壊で食品の放射線を測定して、比放射能を求めるためには、市民から持ち込まれる食品がどのように汚染しているか分からないので、まず、汚染状況を調べる必要がある。つまり、小口径の検出器数個からなる検出器システムで放射能汚染分布を調べる。一樣ならば、以下に示す方法によって精度良く比放射能の値(Bq/kg)を求めることができる。一樣でない場合、汚染分布を調べ、高い部分を取り出して、再度調べ、一樣であることを確認して定量する。

これに対して、“初めから食品の汚染が一様と分かっている”とすると考えて、検査する方法がある。この場合、食品の放射能の分布を測る必要がないので、大口径の検出器1個で非破壊検査が可能となる。しかし、問題点がある。例えば、数個からなる食品において、2, 3個が100 Bqを大幅に超えていても、平均値は100 Bq以下となり得る。この場合、この数個を数人が分けて食べた場合、2, 3人の人が100 Bqを大幅に超えたものを食べることになる。すなわち、大口径の検出器1個での非破壊検査は不可能である。野菜・果物は一般に一様に分布している場合が多いが、それでも、今、食べようとする野菜・果物などが、一様であるかどうかは、測って確かめてみなければ安心できないのが実情である。このように、“初めから食品の汚染が一様と分かっている”とするには、消費者の安心を得るための観点からは無理がある。

3 非破壊検査の方法³⁾

非破壊検査における試料の形状として、図1のような凹凸した試料と検出器を考える。検出器の面は平面で、その形状は円形であっても、四角形であっても良い。ここでは、円形とする。この場合、凹凸を平均した試料の厚さは h とし、試料の凹凸の厚さの標準偏差値を δh とする。また、放射性Csは試料に一様に分布しているものと仮定する（これは、前もって、分布を測っておく）。この場合、図1のA, B点においては、検出器に対する試料の吸収の効果は、厚さ h の円筒形に仮定した試料面からの違いは、A点では $1 - \text{const} \times 2\delta h$ で、B点では、 $1 + \text{const} \times 2\delta h$ となり、その違いの和はゼロとなる。C点とD点についても同様に成り立つ。このように、試料の形が凹凸であっても、試料は円筒形で近似できることになる。試料の厚さが増えることによる検出器と試料との間の立体角が減少する効果を考える。検出器の径を R とすると、試料の厚さ h が増えることによる検

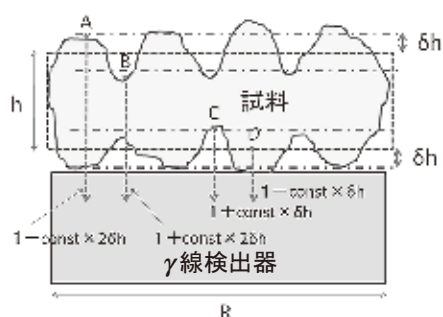


図1 試料の自己吸収

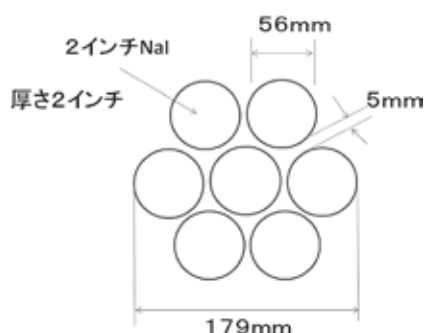


図2 検出器システム

出器と試料との間の立体角の減少率は、 $1/(1 + (h/R)^2)$ に比例すると近似できるので、 $h/R \ll 1$ であれば、この減少率は無視できる。

次に、非破壊検査のための定量方法を導くために、図2に示すような7つのNaI検出器（径2インチ、厚さ2インチ）からなる検出器システムを作成した。図3は、放射性Cs 150 Bq/kgの試料を100 gずつ積み上げて、その放射線カウント数/秒を測定し、その値を試料の重量(kg)で割ったものの逆数を示したものである。カウント数/秒を N とし、試料の重量を M とすると、 M/N は M の一次式で表されることになる。すなわち、

$$\frac{M}{N} = a(1 + bM) \quad (1)$$

である。試料の比放射能を A とすると、 N は試料の放射能 $A \times M$ に比例するので、次式が導かれる。

$$N \propto \frac{AM}{a(1+bM)} \quad (2)$$

この式より、放射線の計数値 N (カウント/秒) から、試料の比放射能 A を導く式が得られる。

$$A = N \times \frac{a(1+bM)}{M} \quad (3)$$

図1の議論の結果と合わせると、この式の特長は、試料の重さと放射線の計数値 N が分かれば、試料の比放射能 A が求められることである。

(3)式において、 $(1+bM)$ の項は、 γ 線の自己吸収の補正項を指数関数 $e^{\mu h/2}$ で近似した場合、1次近似式 $(1+\mu h/2)$ にて表した項と考えることができる。すなわち、この項は M に依存しているのではなく、 h に依存していると考えべきである。そこで、試料を円筒形に近似した場合、その円の面積を S_1 とすると、 $M=h \times S_1 \times \rho$ となるので、 $\left(1 + \frac{b}{\rho} \times \frac{S_0}{S_1} M\right)$ として、(3)式は

$$A = N \times \frac{a \left(1 + \frac{b}{\rho} \times \frac{S_0}{S_1} M\right)}{M} \quad (4)$$

と修正される。ここで、 S_0 は検出器の面積である。この補正が正しいかどうか、(4)式の $\frac{S_0}{S_1}$ の依存性を調べた。その結果を図4に示す。図4は、 $\frac{A}{N/M}$ が $\frac{S_0}{S_1}$ の1次式で表されることを示しており、上の議論が正しかったことを示している。ただし、 $\frac{S_0}{S_1}$ が0.8以下では上式は成り立たないことを示している。すなわち、試料の面積の方が検出器の面積より、1.25倍以上では現在の方法では定量できない。

さらに、 $\left(1 + \frac{b}{\rho} \times \frac{S_0}{S_1} M\right)$ の b の項は、線吸収係数に対応した項であるので、試料の密度を考

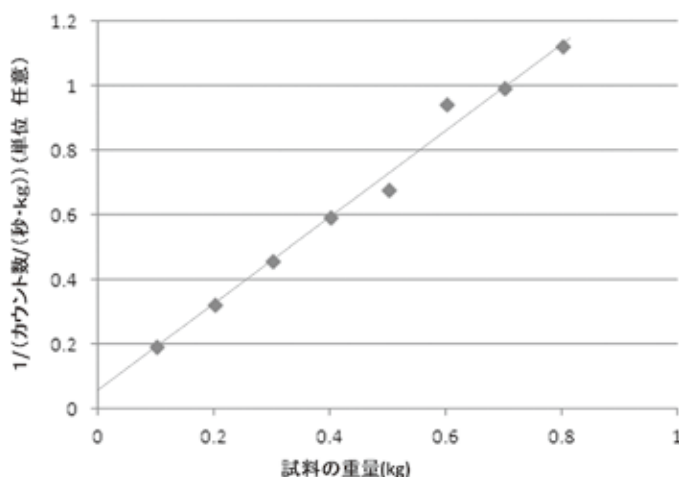


図3 試料重量と (γ 線の計数/試料重量) の逆数との間の線形性

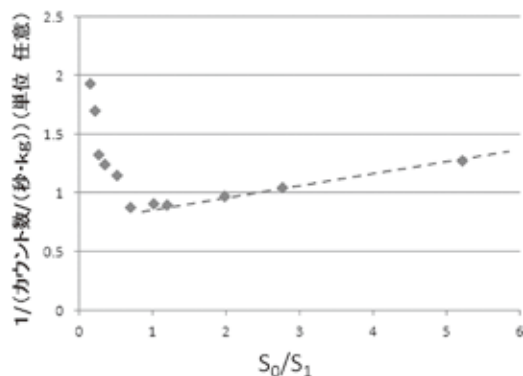


図4 S_0/S_1 と (γ 線の計数/試料重量) の逆数との間の線形性

慮すべきである。食品を構成する物質が水と炭水化物の場合、 ^{134}Cs , ^{137}Cs からの γ 線のエネルギーが 600~800 keV であるため、吸収は主にコンプトン効果であるため、線吸収係数を密度で割った質量吸収係数は元素に近似的に依存しないので、 $\frac{b}{\rho}$ も密度に依存しなくなる。この項を b' とおくと、(4)式は、

$$A = N \times \frac{a \left(1 + b' \times \frac{S_0}{S_1} M\right)}{M} \quad (5)$$

となり、試料の密度を考えなくても良いことに

なる。この式が、非破壊検査に用いられる定量公式である。(5)式において、 a の項は試料と検出器との間の立体角に依存した項であるが、検出器の径 R が試料の厚さ h より、十分に大きい場合は、前記で既に検討したように試料の形状に依存しない。しかし、図5のように試料に多くの空洞がある場合、円筒形に試料を仮定すると検出器と試料の間が大きく開くので立体角の減少が無視できなくなる。この場合、 a を試料の形状によって変化させる必要がある。

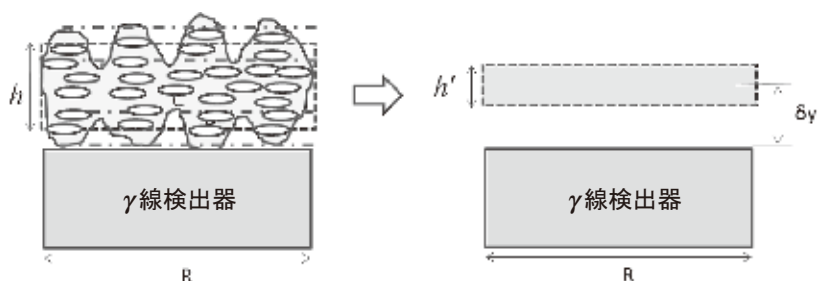


図5 多くの空洞を持った試料に対する等価形状

(5)式において、試料の量 M が非常に小さく、 $\left(1+b' \times \frac{S_0}{S_1} M\right)$ の項が1で近似できる場合、試料の大きさに依存しなくなる。一方、 M が非常に大きく、 $\left(1+b' \times \frac{S_0}{S_1} M\right)$ の項が $b' \times \frac{S_0}{S_1} M$

で近似できる場合、(5)式は $A=N \times a \times b' \times \frac{S_0}{S_1}$ となり、比放射能は試料の重量に依存しなくなる。つまり、試料の下面部分からの放射線を測定することによって、試料の比放射能が求めている。

$\frac{S_0}{S_1}$ の依存性を考慮して定量するためには、試料の面積を固定して測る必要がある。そこで、底面積 S_1 が分かっている容器を用意し、その容器の底を埋めるように試料を入れて測定することにより、 $\frac{S_0}{S_1}$ を考慮して定量することができる。

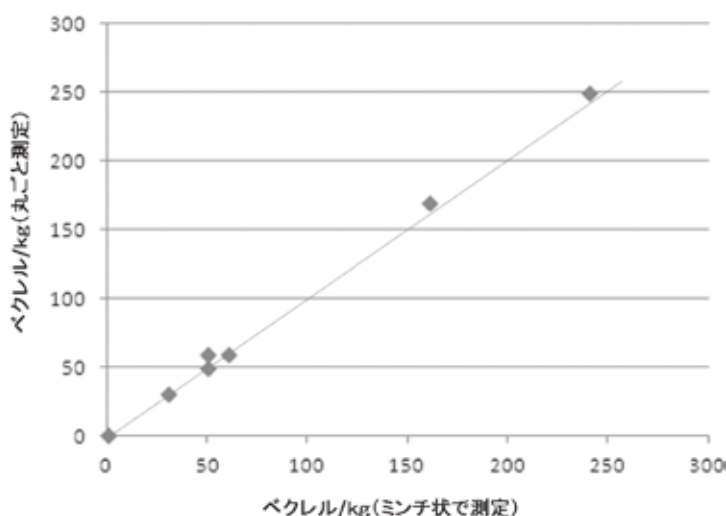


図6 破壊検査と非破壊検査の結果の一致性

図6は、(5)式に基づいて、比放射能の異なった試料を非破壊検査で測定し、次に、試料をミンチ状にして測った比放射能を比較したものである。非常に良く比例していることが分かる。

4 測定システム

図7は、非破壊検査システムの模式図である。厚さ5 cmの鉛で遮蔽されたボックスに口径2インチ、厚さ2インチのNaI検出器7本を収納している。検出器容器の中を一定に保つように空調機が連結されている。試料は試料容器に入れて、検出器の上面に置き測定する。検出器の上面には、試料の重量自動測定器が据え付けられており、重量の値はノートパソコンに入

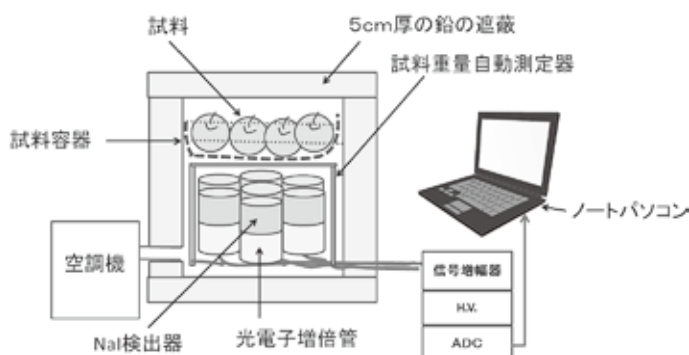


図7 非破壊検査システムの模式図

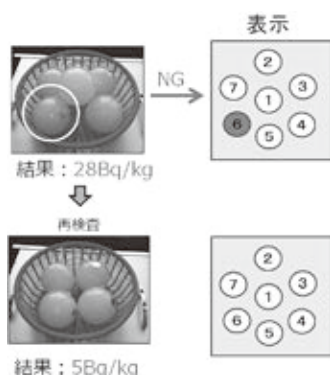


図8 試料の放射能分布一様性の検査

力される。光電子増倍管からの信号は、増幅器、ADCを通してノートパソコンに入力され、 γ 線のエネルギースペクトルを解析したのち、(5)式により、比放射能の値を求めるようになっている。

図8は、5個の試料のうち、1個が基準値を超えている場合の測定を示す。システムは最初の測定において、6番目の検出器が他の検出器より倍以上のカウント数を計数した場合、出力値が基準値以下であってもNGを出力し、6番目の検出器が高レベルであることを表示する。測定者は6番目の位置にある試料を取り除いて、再度、測定する。NGが出なければ、試料は一樣であり、出力値は信頼できることになる。

図9は、本装置の写真である。全重量は750 kgである。試料を出し入れする検出容器の入

り口は観音開きになっている。操作は簡単でボタン2つと試料選択回転スイッチだけである。

測定の手順は以下のとおりである。まず、測定物を試料入れザル(3種類用意されている)に隙間なく入れ、観音開きの蓋を開けて装置内に入れる(図9の中央)。測定物の重さは自動的に測定される。蓋を閉めて、測定時間(測定時間は、1分間、3分間、5分間と選べる)を選んで、測定ボタン

を押すだけで測定が開始される。設定した測定時間が過ぎると、測定結果(Bq/kg)が自動的に印字されて出てくる(図9の右写真)。1 kgの測定物の場合、検出限界値は5分間測定で10 Bq/kg以下である。このように操作は非常に簡単であり、放射能汚染検査が市民にとって身近なものとなった。

5 バックグラウンドの除去方法

γ 線測定に関しては、測定装置の置かれた環境が放射性Csで汚染されていても、厚さ5 cmの鉛の遮蔽により、外部から来る放射性Csからの γ 線の量は1,000分の3程度に減衰されるので、外部からの放射性Csからの γ 線の影響は考えなくて良い。ただし、地面またはコンクリート床・壁に含まれている ^{40}K 及び空気中に存在している自然の放射性物質(例えば、 ^{212}Bi)からの γ 線が問題になる。さらに、試料中に含まれている ^{40}K からのバックグラウンドも定量分析に影響する。

図10は、 γ 線スペクトルから ^{137}Cs からの γ 線のネットカウントを求める方法を示している。まず、あらかじめ各 γ 線のROI設定をしておく。次に、試料を入れる前に、自然のバックグラウンドBG1を測定する。また、 ^{40}K を含んだ標準試料を用いて、1,460 keVピークのネットカウント数とこの γ 線のコンプトンバックグラウンドであるBG2と比を求めておく。試料



図9 非破壊検査システム

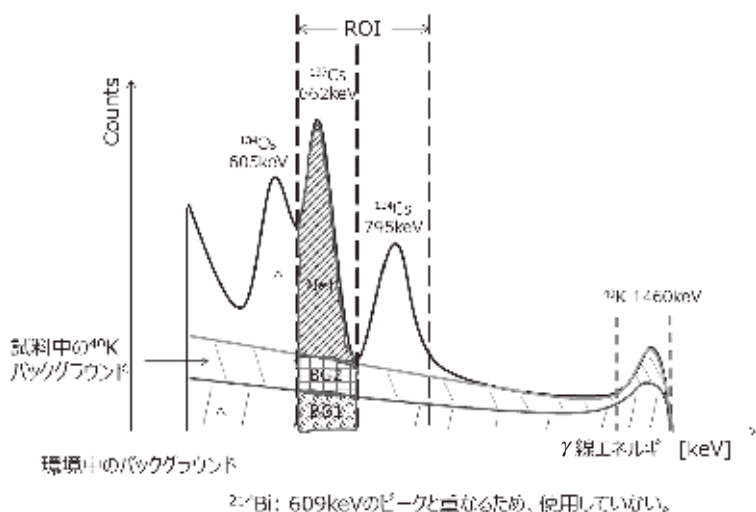


図10 自然バックグラウンド及び試料中の ^{40}K からのコンプトンテイルのバックグラウンドの差引き

を入れ、試料からの γ 線を測定する。試料に含まれていた ^{40}K からの1,460 keVピークのネットカウントを求め、次に先ほどの比を掛けてBG2を求める。662 keVの γ 線ピークのROIカウントからBG1とBG2を差し引くことによって、Netを求めることができる。このNetを γ 線放出率、検出器の検出効率、測定時間(秒)で除すると(5)式中の N が求められる。

6 温度変化によるエネルギー校正曲線の変化への補正方法

NaI(Tl)シンチレータは温度の変化とともに、 γ 線のピークが変動することが知られている。本研究で開発された装置は、空調機で検出器内

の温度を一定に保つ仕組みになっているが、東北地方の冬季は昼夜において非常に温度差があり、検出器からのエネルギースペクトルのROI設定が正しいかどうか調べる必要がある。本装置では、放射性セシウムと ^{40}K の線源を作成し、662 keVと1,460 keVの γ 線のピークを自動サーチし、エネルギー校正ができるシステムになっている。

7 被災地での本装置の適用

現在、本装置は、福島市内(20台)、大玉村(1台)、桑折町(1台)、伊達市内(7台)、二本松市内(5台)、北茨城市大津港(1台)、女川町女川港(1台)、石巻市石巻港(1台)、丸森町(1台)、東北大(1台)で稼働している。表1は、平成25年10月1日～平成

26年3月31日までの6か月間、福島市で市民が各家庭から持ち込んだ食品を非破壊検査した結果である⁴⁾。全部で7,767件の利用があり、非常に市民が活用していることが分かる。野菜類、果実類はほとんど測定下限値20 Bq/kg以下である。キノコ・山菜類は高く、100 Bq/kgを超える確率が50%である。一方、肉類も33%と高いが、これはほとんどが野生動物でイノシシとヤマドリ値が非常に高いためである。このように、丸ごと検査のお蔭で、家庭で食べている食品の放射能汚染状況が非常によく把握できるようになってきた。表1から、福島市では山で採れるもの以外は、ほとんどが測定下限値の20 Bq/kg以下となっている。

表 1 福島市の食品サンプルの検査結果

表. 品目ごとの検査件数の内訳 (平成 25 年 10 月 1 日～平成 26 年 3 月 31 日)							
品 目	検出下限値未満 (20 Bq/kg 未満)		20 Bq/kg 以上 100 Bq/kg 未満		基準値超過 (100 Bq/kg 超過)		検査件数合計 ①+②+③
野菜類	2,540	(96.9%)	78	(3.0%)	4	(0.2%)	2,622
果実類	2,165	(76.0%)	634	(22.3%)	48	(1.7%)	2,847
穀 類	446	(84.8%)	75	(14.3%)	5	(1.0%)	526
肉 類	42	(23.9%)	75	(42.6%)	59	(33.5%)	176
魚介類	86	(93.5%)	6	(6.5%)	0	(0.0%)	92
加工食品	453	(51.5%)	416	(47.3%)	11	(1.3%)	880
山菜・きのこ	114	(20.5%)	164	(29.4%)	279	(50.1%)	557
その他	47	(70.1%)	15	(22.4%)	5	(7.5%)	67
品目合計	5,893	(75.9%)	1,463	(18.8%)	411	(5.3%)	7,767

表中の () 内の数字は検査件数合計 (①+②+③) に占める割合

福島市環境課放射線モニタリングセンター提供

8 おわりに

2011 年の夏, 食品の汚染検査において食品をミンチ状にして測っていた状況下, ミンチ状にしないでそのまま測る方法はないかと考えた。非常に大きな口径の検出器の上に試料を載せて測れば, 2π カウンターでの測定となり, 試料の形状に関係しないのではと考えた。大口径の検出器システム (7 本の BaF_2 シンチレータ検出器から構成) を, ずいぶん前に学内のほかの研究施設に貸し出してあったことを思い出し, 早速, これを返却してもらい, 福島市に持ち運び, 非破壊検査を開始した。非破壊検査は市民に好評であり, 福島市の強い要請もあって, それまでのデータを基に本装置を開発した。この開発に当たっては, 東北大学大学院工学研究科 RI 実験室の桜田喬雄氏, 及び福島市環境課放射線モニタリングセンターの島貫広昭氏, 半澤健一氏の強力な協力を得た。装置は現在, 製品化され, 日栄工業(株) (ITI 社, コメット社との被災地企業の連携で製作している)

が販売している。

7 章で記したように, 現在, 本装置は福島市において非常によく活用されており, 福島市民の食の安心に貢献している。食品が汚染されているかどうか直接に検査できることにより, 福島県内で生産される農作物の食が広がるのが期待され, 福島の復興を加速するものと期待できる。

参考文献

- 1) 「食品中の放射性物質の対策と現状について」厚生労働省, http://www.mhlw.go.jp/shinsai_jouhou/dl/20131025-1.pdf
- 2) 「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」厚生労働省, <http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/2r985200000246ev.html>
- 3) 石井慶造, 「非破壊放射能測定装置, およびその放射能測定方法」, 特願 2013-180694
- 4) 福島市 ふくしまウェブ「ご家庭の食品に含まれる放射性物質の測定結果をお知らせします」, <http://www.city.fukushima.fukushima.jp/soshiki/29/monitoring120403.html>