

NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータによる 飼料中の放射性セシウムスクリーニング法例 －2012年3月の暫定許容値見直しを受けた再検証－

東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故を受け、2011年8月に飼料中の放射性セシウムの暫定許容値が設定された¹⁾。その後、食品中の放射性セシウムの新基準値が2012年4月から施行される²⁾ことに対応するため、2012年3月に飼料中の暫定許容値が見直され、新たに牛及び馬用飼料にあつては100 Bq/kg、豚用飼料にあつては80 Bq/kg、家きん用飼料にあつては160 Bq/kg、養殖魚用飼料にあつては40 Bq/kg（製品重量（粗飼料は水分含有量8割ベース））と通知された³⁾。

飼料中の放射性セシウムスクリーニング法として、NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータによる方法を適用するためには、豚用配合飼料や養殖魚用配合飼料のように、食品よりも密度が低い試料が多いこと、暫定許容値が低いこと等に留意しなければならない。また、NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータの性能は、測定時間を長くすれば測定下限値等の改善が見込めるが、現実的にはスクリーニング法として重視される迅速性及び効率性を犠牲にすることはできない。一方、測定下限値を確保するために、大型の測定容器及びマリネリ容器が利用できるNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを選択することも重要となる。

今回、FAMICにおいて、新暫定許容値に対応するため、「食品中の放射性セシウムスクリーニング法」⁴⁾を参考に、飼料（粗飼料を含む）を対象としたNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータによる放射性セシウムスクリーニング法を再検証したので、その測定結果例の概要を報告する。また、今回の測定結果例は、特定のNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを用いて検証したものあり、実測にあたっては、用いる分析機器の性能に留意し、適切な条件下で測定されるようされたい。なお、この測定結果例は、飼料中の放射性セシウム濃度が暫定許容値を確実に上回っていることを示す場合にも、応用可能であることは言うまでもない。

I 測定機器について

以下に示す性能を有すること。

1) 測定下限値

放射性セシウム(¹³⁴Cs及び¹³⁷Cs)の合計量が暫定許容値の1/4となる値、すなわち、牛及び馬用飼料は25 Bq/kg、豚用飼料20 Bq/kg、家きん用飼料は40 Bq/kg、養殖魚用飼料は10 Bq/kg（製品重量（粗飼料は水分含有量8割ベース））以下であること。測定下限値の確認方法は、「食品中の放射性セシウムスクリーニング法」⁴⁾に準拠する。

2) 真度（校正）

適切な標準線源を用いて計数効率が校正されていること。

3) スクリーニングレベル

暫定許容値の1/2以上で、スクリーニングレベルにおける測定値の99%区間上限が暫定許容値レベルで得られる値、すなわち、牛及び馬用飼料は100 Bq/kg、豚用飼料

80 Bq/kg、家きん用飼料は 160 Bq/kg、養魚用飼料は 40 Bq/kg（製品重量（粗飼料は水分含有量 8 割ベース））以下であること。

II 前処理について

「飼料中の放射性セシウムの検査方法について」⁵⁾に準拠する。

III 測定の留意点について

- 1) 測定は、放射能測定シリーズ 6「NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法」⁶⁾に準拠する。
- 2) 測定下限値は、測定時間の平方根に反比例するため、使用する機器の性能に見合った測定時間を設定する。
- 3) 稲わらなどの密度が低い試料は、細かく粉砕するなどし、測定容器への充填量を増やす工夫が必要である。
- 4) バックグラウンド (BG) 値は定期的に測定し、BG 値の上昇により、測定下限値に影響が出ていないことを確認する。
- 5) 濃度既知の試料を測定し、真度に変化していないことを確認する。
- 6) スクリーニング法として測定する場合には、測定回数は任意であるが、スクリーニングレベル以上の測定値を分析結果とする場合には、3 回以上測定を繰り返し、その平均値を用いる。併せて、ゲルマニウム半導体検出器による測定を実施し、暫定許容値を超えていないことを確認する。
- 7) その他、測定方法に関する詳細は、使用する測定機器の取扱説明書に従う。
また、「NaI (Tl) シンチレーションスペクトロメータを用いて測定した結果を適切に評価するために（初心者編）」⁷⁾なども参考にされたい。

IV 作業環境

- 1) 前処理を実施する部屋と測定を実施する部屋は、交差汚染を防止するために、別にした方がよい。
- 2) 粉じん等からの交差汚染を防止するために、各部屋は日頃から清潔にしておくこと。
- 3) 前処理及び測定に当たり、作業者は測定機器と試料間の汚染防止のために、試料毎に手袋を取り替える等の汚染防止措置を講じること。前処理に用いた器具・機材も同様である。また、作業着も部屋毎に着替えることが望ましい。
- 4) 検出器への汚染を防止するために、試料を詰めた測定容器は、ラップ等で完全に覆うか、ポリエチレン袋等に封入すること。また、測定容器からの汚染が懸念される場合には、試料が直接容器に触れないように容器内側をラップ等で覆うか、使用後に R I 洗浄液で洗浄する。
- 5) BG 値への影響を最小限とするために、測定が終わった後の試料は速やかに別の部屋に移動させる。

V 測定結果例について

A-1 測定条件

測定機器：EMF211 ガンマ線スペクトロメータ放射能濃度測定用システム ver.2 (EMF
ジャパン(株))

検出器：3 インチ ϕ × 3 インチ NaI(Tl) シンチレーター

遮蔽体：縦型鉛シールド（厚さ 50 mm 鉛、真鍮内張り 3 mm）

測定容器：ポリ容器(350 mL、900 mL)及びマリネリ容器(1 L)

試料測定時間：15 分間

BG 値測定時間：2 時間（密度が 0.5 g/cm^3 以上の試料に対しては水で、 0.5 g/cm^3 未満
の試料に対しては容器に何も入れない状態で測定した。）

A-2 測定に用いた試料

牛用配合飼料は汚染ふすまを、その他の配合飼料は汚染米ぬか油かすを一定量加えて放射性セシウム濃度を調整した。牧草（オーチャードグラス主混播生草）は 1~2 mm に裁断した。稲わらは 1 mm のふるいを通過するまで粉碎し、非汚染試料に汚染試料を一定量加えて放射性セシウム濃度を調整した。ふすま及び米ぬか油かすは、非汚染試料に汚染試料を一定量加えて放射性セシウム濃度を調整した。

B 測定結果

B-1 各測定容器における測定下限値の検証結果

表 1 各測定容器における測定下限値

試料	暫定許容値 の1/4 (Bq/kg)	密度a) (g/cm ³)	測定下限値(Bq/kg)c)		
			ポリ容器		マリネリ容器 (1L)
			350mL	900mL	
牛用配合飼料	25	0.63	39.2	17.0	7.8
豚用配合飼料	20	0.70	35.4	16.8	6.9
鶏用配合飼料	40	0.73	34.0	14.7	6.0
養魚用配合飼料	10	0.50	49.5	23.6	9.6
牧草	25	0.37	66.7	32.2	13.2
稲わら	113 b)	0.22	113	54.2	22.2
ふすま	-	0.34	72.8	31.9	12.6
米ぬか油かす	-	0.47	52.5	24.8	10.0

- a) 測定容器に詰めた試料の重量(g)／測定容器の体積(cm³)
 b) 稲わらの水分が 10 %とした場合の稲わらの暫定許容値は、水分含有量を 8 割ベースで計算する必要があるため、450 Bq/kg と計算することができる。よって、暫定許容値の 1/4 は、概ね 113 Bq/kg となる（この値は、試料中の水分含有量により変動する）。
 c) 測定下限値(Bq/kg) ($k=3$)

$$k\sigma = \frac{k \times \text{機器換算計数}}{t_s \times \text{試料密度}} \times \left[\frac{k}{2} + \sqrt{\frac{k^2}{4} + \left[1 + \frac{t_s}{t_b} \right] \times n_b \times t_s} \right]$$

t_s, t_b : 試料及び BG の計数時間 s

n_b : BG の計数率 cps

飼料中の放射性セシウムのスクリーニング法として NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータによる方法を検証した結果、350 mL ポリ容器を測定容器に用いた場合には、測定下限値は全ての試料で暫定許容値の 1/4 を超え、スクリーニング法としての適用は難しいと考えられた。しかし、1 L マリネリ容器を測定容器に用いた場合には、測定下限値は全ての試料で暫定許容値の 1/4 を下回り、スクリーニング法として適用は可能であった。また、900 mL ポリ容器を測定容器として用いた場合には、測定下限値は養魚用配合飼料及び牧草で暫定許容値の 1/4 を超え、スクリーニング法としての適用は難しいと考えられた。これら以外の試料では暫定許容値の 1/4 を下回り、スクリーニング法として適用は可能であった。

B-2 スクリーニングレベルの検証結果

表2 NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータによる測定値の分布の99%信頼区間

○ 900 mL ポリ容器を測定容器に用いた場合

試料	Ge 測定値 a) (Bq/kg)	NaI 測定値 b)				下限値とGe 測定値の割合 (%)d)	上限値とGe 測定値の割合 (%)e)
		平均値 (Bq/kg)	標準偏差 (Bq/kg)	99%区間 c)			
				下限値 (Bq/kg)	上限値 (Bq/kg)		
牛用配合飼料	38.5	47.8	5.3	34	61	89	159
豚用配合飼料	30.8	39.4	4.6	28	51	90	166
鶏用配合飼料	71.5	88.7	5.1	76	102	106	142
養魚用配合飼料	17.0	17.8	4.3	7	29	40	169
牧草	45.8	58.1	6.3	42	74	92	162
稲わら	213	219	14.8	181	257	85	120
ふすま	41.4	46.3	7.8	26	66	64	160
	22.6	27.7	6.4	11	44	51	194
米ぬか油かす	46.1	61.0	5.5	47	75	102	163
	21.1	31.3	5.8	17	46	79	218

○ 1 L マリネリ容器を測定容器に用いた場合

試料	Ge 測定値 a) (Bq/kg)	NaI 測定値 b)				下限値とGe 測定値の割合 (%)d)	上限値とGe 測定値の割合 (%)e)
		平均値 (Bq/kg)	標準偏差 (Bq/kg)	99%区間 c)			
				下限値 (Bq/kg)	上限値 (Bq/kg)		
牛用配合飼料	38.5	40.1	1.9	35	45	92	117
豚用配合飼料	30.8	39.5	1.9	35	44	113	144
鶏用配合飼料	71.5	78.2	4.0	68	88	95	124
養魚用配合飼料	17.0	18.7	1.6	15	23	86	134
牧草	45.8	54.0	3.3	46	62	100	136
稲わら	213	224	8.6	202	246	95	115
ふすま	41.4	50.1	3.7	41	59	98	144
	22.6	28.2	3.7	19	38	83	166
米ぬか油かす	46.1	51.8	4.5	40	63	88	137
	21.1	26.4	3.7	17	36	81	170

a) ゲルマニウム(Ge)半導体検出器 (CANBERRA 製 GC2020、測定容器 ; 1 L マリネリ容器、測定時間 ; 30 分間) による測定値 (n=10)

b) NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータによる測定値 (n=20)

c) $m \pm t_{k-1,0.01} \times s$ で示したもので自由度 19、危険率 1%の t 値(片側)は 2.539 (m :平均値、 s :標準偏差、 k :測定数)

d) 下限値を Ge 半導体検出器による測定値にて除して 100 を掛けた値

e) 上限値を Ge 半導体検出器による測定値にて除して 100 を掛けた値

NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータによる測定値の 99 %信頼区間の下限値と Ge 半導体検出器による測定値との割合（下限値割合）が 50 %以上の場合、暫定許容値以上の試料を合格とする偽陰性の確率は 1 %以下となる。また、上限値と Ge 半導体検出器による測定値の割合（上限値割合）が 200 %以下の場合、暫定許容値以下の試料を不合格とする偽陽性の確率は 1 %以下となる。このことから、下限値割合が 50 %以上、かつ、上限値割合が 200 %以下の場合には、スクリーニングレベルを暫定許容値の 1/2 以上に設定可能であると判断した。

その結果、900 mL ポリ容器を測定容器に用いた場合には、養殖魚用配合飼料では、下限値割合が 50 %以下となったため、スクリーニングレベルを暫定許容値の 1/2 以上に設定できなかった。一方、1 L マリネリ容器を測定容器として用いた場合には、すべての試料において下限値割合が 50 %以上となり、かつ、上限値割合が 200 %以下となったことから、スクリーニングレベルを暫定許容値の 1/2 以上に設定可能であった。

ふすま及び米ぬか油かすにおいて 900 mL ポリ容器を測定容器として用いた場合には、放射性セシウム濃度を 40~50 Bq/kg に調整した試料では、下限値割合が 50 %以上、かつ、上限値割合が 200 %以下となった。このことから、ふすま及び米ぬか油かすでは 80~100 Bq/kg を許容値に設定し、スクリーニングレベルを 40~50 Bq/kg 以上に設定可能であった。

一方、1 L マリネリ容器を測定容器として用いた場合には、ふすま及び米ぬか油かす中の放射性セシウム濃度を 20~25 Bq/kg に調整した試料でも、下限値割合が 50 %以上、かつ、上限値割合が 200 %以下となった。このことから、ふすま及び米ぬか油かすでは許容値をより厳しく 40~50 Bq/kg に設定しても、スクリーニングレベルを 20~25 Bq/kg 以上に設定可能であり、より厳しい許容値におけるスクリーニング検査にも対応可能であった。ふすま及び米ぬか油かすなどの飼料原料を各飼料の原料に用いる場合には、各飼料の暫定許容値を超えないような配合設計を心掛けると共に、その配合割合に応じた適切な許容値を設定し、スクリーニングする必要がある。

VI 関連通知等について

- 1) 放射性セシウムを含む肥料・土壌改良資材・培土及び飼料の暫定許容値の設定について、平成 23 年 8 月 1 日付け 23 消安第 2444 号ほか、農林水産省消費・安全局長ほか通知
- 2) 食品、添加物の規格基準、昭和 34 年 12 月 28 日付け厚生省告示 370 号
- 3) 飼料中の放射性セシウムの暫定許容値の見直しについて、平成 24 年 3 月 23 日付け 23 消安第 6608 号ほか、農林水産省消費・安全局長ほか通知
- 4) 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 24 年 3 月 1 日付け、厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課事務連絡
- 5) 飼料中の放射性セシウムの検査方法について、平成 23 年 8 月 3 日付け 23 消安第 2489 号、農林水産省消費・安全局畜水産安全管理課長通知
- 6) 放射能測定シリーズ 6「NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法」、文部科学省、昭和 49 年 1 月制定
- 7) NaI(Tl) シンチレーションスペクトロメータを用いて測定した結果を適切に評価するために（初心者編）、平成 23 年 12 月 7 日、農林水産省消費・安全局消費・安全政策課