

2.5 放射性物質試験法

本試験法の目的は、放射性物質による飲食物の汚染を調査し、公衆衛生に寄与することを目的として¹⁾、飲食物中の放射性核種の定量の試験法を収載した。鉱石、海水、空気などに関する試験は対象外とした。

飲食物の放射能汚染の原因となるものとしては、核爆発実験によるフォールアウト²⁾や原子力発電所などの核施設の事故³⁾のほか、これらの施設や放射性同位元素(RI)使用施設などから排出される空気、水および廃棄物などが考えられる。

本試験法においては、試験の対象とする核種として核分裂生成物および誘導放射性核種のうち衛生上問題となるおそれのある核種を主に取り上げている。また、自然の放射性核種である⁴⁰K、²²²Rn および²²⁶Raについては、主としてバックグラウンド放射能⁴⁾としての観点から、それらの試験法を記載してある。なお、放射能の測定は、本質的にはα線、β線、γ線のそれぞれに固有のものであることから、1.4 放射能試験法において各放射線について詳述し、合わせて測定値の統計的取り扱いを記載した。また、前述のように、本試験法は一般公衆を対象とする飲食物中の放射性物質の試験を目的としているので、各試験法の検出限度や定量感度の目標は、飲食物の汚染が衛生上問題となる程度の濃度付近におかれている⁵⁾。

放射能・放射線に関する単位はSI単位を基本としており、わが国では法律上からも1989年以降この単位⁶⁾を採用している。したがって、本試験法の記述はすべてこの単位を用いた。

【注解】

1) 本試験法は、1965年に提示された⁹⁰Sr、¹³⁷Csの試験法に始まり、それ以降その時代の要請によりほかの核種についての試験法が逐次追加された。これは当時まで行われていた大気圏内核爆発実験の結果、フォールアウト(fall-out)による飲食物の放射能汚染が問題となったためである。その後、地上の核爆発実験が停止されたことによって、フォールアウトによる飲食物の汚染が次第に減少した。一方、原子力発電などの核エネルギーを利用する施設が増加するにつれ、これらの施設から放出される放射性物質あるいは事故による汚染も問題視する必要性が生じた。チェルノブイリ原子力発電所の事故の際(1986年)、約8000km離れたわが国にも放射性物質が飛来した。また、チェルノブイリの近隣諸国から輸入された食品からも放射能汚染が認められた。すなわち、この事故は、放射能汚染が限定された場所にとどまらず、世界規模の汚染を引き起こしうることを示す貴重な教訓となった。

また、1999年、JCOウラン転換工場で発生したわが国初の臨界事故では、事故後の河川水などの環境試料中に、放射性物質はほとんど検出されなかったが、万が一の事故に備え、本書では飲食物中のウラン測定法とPuの測定法を収載した。

2) フォールアウトによる飲食物および飲料水の汚染の1例を示すと、核爆発実験が盛んに行われた直後の1963~64年が最高で、日本の主要都市の水道原水中には、⁹⁰Srが30~70mBq/l、¹³⁷Csが0~20mBq/lと報告されているものもみられた。それ以降、1969年2月から1970年2月までの阿賀野川(新潟県)、江戸川(東京都)、淀川(大阪府)では⁹⁰Sr5~17mBq/l、¹³⁷Cs0.74~4.1mBq/lとなり、大気圏内の核爆発実験の停止によりしだいに減少する傾向を示したと報告されている。1990年代以降は、水道原

水からはこれらの核種がほとんど検出されていない。一方、牛乳中(水戸市)の⁹⁰Srは1980年の70mBq/lから1990年の30mBq/lに、また、¹³⁷Csは1986年チェルノブイリ原子力発電所の事故に伴い一時的に上昇(100mBq/l)したが、1980年の170mBq/lから1990年の15mBq/lに漸減した。それ以降横ばいで、わずかに減少傾向にある。

3) チェルノブイリ原子力発電所の事故発生後、欧米諸国から輸入された食品の一部に、一定レベルを超える濃度の¹³⁴Csと¹³⁷Csが検出された。この事故で放射能汚染が顕著であった食品は、香辛料のように直接汚染されたと考えられるものや、土壌の汚染により根から吸収されて実に濃縮されたものなどであったが、それ以外に、チェルノブイリの事故の直接的な影響よりもむしろ、過去の核爆発実験のフォールアウトが地球の極地近辺に集積され、それによる放射能汚染物を摂取した動植物内に濃縮されたと推定される食品からの汚染も認められた。このように、事故発生に伴う放射能汚染は、広い範囲の汚染を考えることが要求されると同時に、放射能汚染の歴史的な背景も考慮する必要がある。

4) 飲料水および飲食物には自然の²²⁶Raが含まれ、摂取量は1日30~70mBqとされている。井戸水などの表面水に含まれる²²⁶Raは通常検出できないほど微量である。しかしながら、増富温泉(山梨県)では約1Bq/l、三朝温泉(鳥取県)では0.5Bq/lの²²⁶Raが含まれるとされており、これらの地域の井戸水にも²²⁶Raが検出されている。このように放射能温泉と呼ばれる地域によっては陸水中に²²⁶Raが多く含まれる場合がある。一方、自然放射性核種としての⁴⁰Kは、人体の必須元素であるカリウムの中に一定の割合(0.0117%)で含まれており、飲食物などを通じて人体に摂取され、成人(体重60kg)1人当たり約4000Bq(67Bq/kg)が含まれ、ほぼ均等に分布している。

5) 飲料水および飲食物において、自然あるいは人工の放射性物質による汚染などの結果、衛生上問題となる放射性核種はかなり限定されるので、本試験法はこれを意図した測定法となっている。また、本試験法は原則的には文部科学省「放射能測定法シリーズ」に準じた方法を採用し、測定者の混乱を生じないように配慮したが、部分的にはこれをさらに改良して衛生試験法にふさわしい方法とした。

表I 1年間0.1mSvの線量に相当する飲料水中の核種濃度

核種	0.1 mSv/年相当濃度 (Bq/l)
³ H	7600
⁶⁰ Co	40
⁹⁰ Sr	5.0
¹³¹ I	6.2
¹³⁷ Cs	10
²²⁶ Ra	0.5
²³⁸ U	3.1
²³⁹ Pu	0.5

表 II 放射線などの SI 単位

項目	単位名	記号	定義
放射能	ベクレル	Bq	1秒間に1個の壊変
吸収線量	グレイ	Gy	1kg当たり1ジュールのエネルギー吸収があるときの線量
実効線量	シーベルト	Sv	身体内のすべての組織・臓器の荷重された等価線量の和

環境における移行・蓄積などの追跡調査の場合は、かなり低いレベルまで検出しなければならないこともあるが、衛生上問題になる放射性核種の濃度としては、人体に対する影響を考えて評価することが重要である。国際放射線防護委員会(ICRP)の1990年勧告(Publication60)では、職業人に対する年間の線量限度をそれまでの50mSv(1977年勧告)から20mSvに、また、一般人の限度を職業人の1/20、すなわち1mSvと勧告している。一方、WHOはこのICRP勧告に基づいて、飲料水に関する一般人の線量限度を被曝線量限度のさらに1/10、すなわち0.1mSvと勧告している。この値は、表Iに示す濃度の放射性核種のいずれか1種を含む飲料水を1日2l、1年間摂取した場合に得られるとされており、成人の代謝に基づいて計算されている。この濃度は、ヒトが摂取する飲料水として受け入れることのできる濃度として示されている。したがって、衛生上問題となる放射性核種の濃度を評価する測定法としての定量下限の目安は、表Iに示す濃度の適正な評価が可能であり、かつ複数の放射性核種が存在する場合にはそれらの加算値が評価できるレベルが要求される。すなわち、ここに示す濃度の1/10～1/100が保証されていることが必要である。本試験法はいずれもこのレベルを十分満足するものであるが、試験法によってはより高感度定量を可能にしているものもある。

6) 放射線・放射能に関する単位は、わが国では、1977年のICRP勧告(Publication26)に基づき、「放射線を放出する放射性同位元素の数量を定める件(科学技術庁告示昭和63年第15号)」で規定され、以降、SI単位を採用することになった(表II)。

【以下、暫定規制値が定められるなど測定上重要と思われる5核種(ヨウ素131、セシウム137、ウラン、プルトニウムおよびストロンチウム90)について各論より抜粋する。】

2.5.5 ヨウ素 131 (¹³¹I)

ヨウ素 131 は、核爆発実験に由来する核分裂生成物の中で比較的短い半減期(半減期 8.02 日)のβ⁻壊変核種 [β⁻線(最大エネルギー0.606MeV ほか)およびγ線(0.364MeV ほか)を放出する] であるが、生成量が多いことなどから、環境汚染を考える際に重要な核種である。放射性ヨウ素のうち¹²⁹I(半減期 1.57×10⁷年、β⁻壊変)は、現在の濃度レベルが低いため特殊な試験方法にたよらざるを得ないことから、本試験法の対象から除く。ここでは、放射性ヨウ素のうちで、公衆に対する曝露が最も問題となる¹³¹Iを対象とし¹⁾、牛乳、農作物(主として葉菜)および海産物(主として海

藻)の試験法を示す²⁾。

【注解】

1) 牛乳や葉菜類から人体に侵入した¹³¹Iは、甲状腺に蓄積して被曝をもたらす。

2) 飲料水の試験法は、γ線測定による試験法を示す。定量下限値は、0.2Bq/l程度。牛乳の試験法は、β線測定による定量法とγ線測定による定量法を示し、これらの定量下限値は、前者が0.01Bq/l程度、後者が0.2Bq/l程度。また、農作物および海産物の試験法は、γ線測定による定量法のみを示す。定量下限値は0.4Bq/kg程度

β線測定による定量法は、試料中に¹³¹I以外の放射性ヨウ素同位体が共存しても、これらを区別できないため、これら核種の全放射能を¹³¹Iとして表示することとした。

飲料水、牛乳はそのまま、農作物・海産物は試料を流動液とし、γ線スペクトロメーターで測定する。

別の方法として、牛乳は、ヨウ素を陰イオン交換樹脂により分離濃縮したのち、液-液抽出法により精製し、PdI₂として回収し、ヨウ素からのβ線を測定する。

2.5.6 セシウム 137 (¹³⁷Cs)

セシウム 137 は、核爆発実験などに由来する核分裂生成物のうち、長半減期(30.0 年)のβ⁻壊変核種であり、子孫核種バリウム-137m(^{137m}Ba)(半減期 2.55 分)との間に放射平衡が形成される。したがって、¹³⁷Csのβ⁻線(最大エネルギー0.514MeV ほか)に加えて^{137m}Baのγ線(0.662MeV)が長期間放出されることから、長期にわたる環境汚染を考える際に重要な放射性核種である。ここでは、飲料水、牛乳、農作物および海産物のγ線スペクトロメーターによる試験法を示す¹⁾。

【注解】

1) γ線測定法による定量下限値は、飲料水で0.02Bq/l程度、牛乳、農作物および海産物で0.2Bq/kg程度である。

2.5.9 ウラン (U)

自然界に存在するウランの同位体には²³⁴U、²³⁵U、²³⁸Uの3種類があり、すべて放射性である。²³⁴Uと²³⁸Uは天然崩壊系列のウラン系列に属し、²³⁵Uはアクチニウム系列に属する。それらの存在比および半減期は、²³⁴Uが0.0055%、2.45×10⁵年、²³⁵Uが0.7200%、7.04×10⁸年、²³⁸Uが99.2745%、4.47×10⁹年である。Uの分析法には、吸光光度法、蛍光光度法、α線スペクトロメトリー、ICP/質量分析法などがある。本試験法では、試料前処理法が簡便でUの検出感度が高いICP/質量分析計を用いる方法を採用した。ここでは、

飲料水、牛乳、農作物および海産物の試験法を示す¹⁾。

【注解】

1) 定量下限値は飲料水で $0.002 \mu\text{g/l}$ 、牛乳で $0.008 \mu\text{g/l}$ 、農作物および海産物で $0.008 \mu\text{g/kg}$ 湿重量程度である。なお、原子力施設などの防災に関して“飲食物摂取制限に関する指標”が定められており、Uについては飲料水、牛乳・乳製品で 20Bq/kg (1.6mg/kg)以上、野菜類、穀類などで 100Bq/kg (8.1mg/kg)以上である〔「原子力施設等の防災対策について」(平成 22 年 8 月 一部改訂, 原子力安全委員会)〕。

文 献

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ 14「ウラン分析法」, 平成 14 年改訂(2002)

飲料水はそのまま、牛乳は灰化したのちUを酸抽出し、硝酸酸性としたのちマトリックスによる干渉を補正するための内標準元素を加え、ICP/質量分析計により測定する。

2.5.10 プルトニウム(Pu)

プルトニウムは、核爆発実験などに由来する放射性同位体であり、いずれの核種も α 壊変(ただし ^{241}Pu を除く)を行い、半減期が長いために長期にわたる環境汚染を考える際に重要である。主に ^{239}Pu [半減期 87.7 年, α 線(5.499MeV ほか)], ^{239}Pu [半減期 2.41×10^4 年, α 線(5.157MeV ほか)] および ^{240}Pu [半減期 6.56×10^3 年, α 線(5.168MeV)] が問題になる。ここでは、飲料水、牛乳、農作物および海産物の、 α 線測定による ^{238}Pu と $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ ¹⁾ の試験法²⁾ および ICP/質量分析装置を用いた ^{239}Pu と ^{240}Pu の試験法³⁾ を示す⁴⁾。

【注解】

- 1) ^{239}Pu と ^{240}Pu が放出する α 線エネルギーは近似するため、通常それぞれを区別して測定することはできない。このため、両核種の和として定量する。
- 2) 定量下限値は飲料水で $2 \times 10^{-2} \text{mBq/l}$ 程度、牛乳、農作物および海産物で 4mBq/kg 程度である。
- 3) 検出下限値は測定溶液で 10ppq 程度である。
- 4) Pu は、核燃料物質として定められており、その量に関係なく法律により規制される。本試験法でトレーサーとして使用する ^{236}Pu または ^{242}Pu は、使用に先だち文部科学省へ使用許可申請を行う必要がある。

文 献

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ 12「プルトニウム分析法」, 平成 2 年改訂版(1990)
- 2) 文部科学省放射能測定法シリーズ 28「環境試料中プルトニウム迅速分析法」, (2002)

飲料水は試料中の Pu を $\text{Fe}(\text{OH})_3$ の沈殿に共沈させ、牛乳、農作物・海産物は灰化したのち、イオン交換クロマトグラフィーにより Pu を分離する。電気分解によりステンレス鋼板上に析出させた Pu の α 線を測定、または ICP/質量分析装置により質量数 239 (^{239}Pu) と 240 (^{240}Pu) を測定する。

2.5.4 ストロニウム 90 (^{90}Sr)

ストロニウム 90 は、核爆発実験などに由来する核分裂生成物のうち、半減期 28.74 年の β^- 壊変核種であり、その子孫核種イットリウム 90 (^{90}Y) (半減期 64.10 時間) との間に放射平衡が形成される。したがって、 ^{90}Sr の β^- 線(最大エネルギー 0.546MeV) に加えて ^{90}Y の β^- 線(最大エネルギー 2.280MeV) が長期間放出されることから、長期にわたる環境汚染を考える際に重要な核種である¹⁾。ここでは、飲料水、牛乳、農作物および海産物の試験法を示す²⁾。

【注解】

1) Sr の放射性同位体のうち、核分裂生成物として環境汚染を引き起こすのは、 ^{89}Sr (半減期 50.53 日, 最大エネルギー 1.495MeV の β^- 線を放出) と ^{90}Sr (半減期 28.74 年) である。両核種は Sr の同位体として化学的、生物学的に同じ挙動をとるが、 ^{89}Sr は半減期が短いので、長期にわたる被曝線量を調査するときは重要な核種ではない。核爆発実験直後などで ^{89}Sr の分析が必要となることがあるが、ここでは省略する。

2) 原理は次のとおりである。Sr 担体を加えた試料を塩酸性(飲料水以外の試料は灰化試料を溶解)とし、水酸化物-炭酸塩混合物およびシュウ酸塩として粗分離を行ったのちイオン交換法によりマグネシウム、カルシウム、バリウムおよびラジウムなどから Sr を分離する。Sr の回収率を測定したのち、2 週間以上放置して生成した ^{90}Y を分離し、その放射能の測定値から ^{90}Sr の放射能を求める。

本法による定量下限値は、飲料水で 0.4mBq/l 程度、牛乳、農作物および海産物で 0.04Bq/kg 湿重量程度である。