研究論文

NaI(Tl) スペクトロメトリーによる牛乳中
放射性ヨウ素定量法の誤差評価藤元憲三^{*1}, 阿部史朗^{*1}, 藤高和信^{*1}

(1981年7月7日 受理)

Uncertainty in the Determination of ^{131}I
in Milk with NaI(Tl) SpectrometryKenzo FUJIMOTO,^{*1} Siro ABE^{*1} and Kazunobu FUJITAKA^{*1}

An uncertainty in the method of determination of radioactive iodine (^{131}I) in milk with a NaI(Tl) scintillation spectrometry of which procedure manual is provided by the Science and Technology Agency is analyzed on the basis of a train of the actually measured data, and a minimum detectable activity in a routine monitoring is estimated. Judging from the error analysis, the total systematic error of the concentration of ^{131}I in milk is about 10 pCi/l, which is mainly attributed to the presence of natural radioactive nuclides except ^{40}K , and the total random error is ± 6 pCi/l resulting from the counting error and the deviation in gain adjustment. If we define a minimum detectable activity as the sum of systematic error and three times random error, it would be about 30 pCi/l for ^{131}I . But in case some other unexpected nuclides are contained in milk, this method cannot afford to determine the concentrations precisely.

KEY WORDS: uncertainty, determination, ^{131}I , milk NaI(Tl) spectrometry, minimum detectable activity, routine monitoring, systematic error, random error

I はじめに

空間放射線および環境試料中の放射性核種の測定を行なう場合、測定値は種々の原因により変動、偏倚する。このような変動量、偏倚量を明確にし、ある値以内に留めておく、あるいはさらに小さくすることが環境計測値の比較等において必要である。このような観点から従来核実験によるフォールアウトの調査によく使われているNaI(Tl) スペクトロメータを用いた科学技術庁方式の牛乳中放射性ヨウ素の定量法¹⁾ (以下「この定量法」とい

う)を例としてとりあげ、測定値の不確かさを検討してみた。

この定量法において考慮されている誤差は計数誤差のみであり、過小評価済みであると経験的に言われている。一方、鎌田²⁾が ^{131}I を0, 50, 500, 5,250 pCi/l添加した原乳試料の測定より、その検出限界について報告している。われわれは多数の核実験直後の原乳試料の実測結果を解析することにより、上述の添加実験においては気付かれなかった誤差要因も存在することを見出した。

II 解析手法と結果

1. 定量方法と用いたデータ

本報告で利用したデータの定量方法等は科学技術庁のこの定量法¹⁾に準拠した。すなわち、1.7lの較正用標

^{*1} 放射線医学総合研究所 環境衛生研究部; 千葉市穴川 4-9-1 (〒260)

Division of Environmental Health, National Institute of Radiological Sciences; 9-1, Anagawa-4, Chiba-shi, Chiba-ken.

準試料を作成し、スペクトロメータで計測し、この定量法にならない得られた標準スペクトル中のヨウ素、セシウムおよびカリウムの各主領域（ヨウ素は 0.31~0.41 MeV (^{131}I に相当)、セシウムは 0.59~0.71 MeV (^{137}Cs に相当)、カリウムは 1.39~1.53 MeV (^{40}K に相当))の計数効率と寄与係数（上記の各主領域への残り 2 核種からの寄与）を求め、濃度の決定に用いる連立方程式の係数を定めた。また原乳試料とバックグラウンド試料を 100 分間計測し、各領域の正味の計数を得、上記の連立方程式に代入し、原乳中のヨウ素、セシウムおよびカリウムの濃度を求めた。本解析に用いたデータは **Table 1** に掲げた時期にサンプリング、計測したものである。

はじめに、計測されたすべての牛乳試料とブランク試料のスペクトルを点検し、メモリー落ちのあるもの、外来ノイズが入ったもの、計測時間が異なるもの、バックグラウンドが正しく計測されていないもの等、特に異常なものを除いた。そして残り 40 組（1 組とは牛乳試料とブランク試料を計測した 1 対をさす）のデータを本報の解析の対象とした。そのうち、フォールアウトの影響による放射性ヨウ素や放射性セシウム等の混入が少ないとみられる時の（以下「平常時の」と呼ぶ）データ数は 13 組であった。

以下、各誤差要因について順次その計算手順と結果とを示した。

2. 計数誤差

エネルギースペクトル中のヨウ素、セシウムおよびカリウム領域のカウント数には計数誤差が存在する。この誤差の濃度への影響はこの定量法にならって計算される。われわれの実測（約 10 cm 厚の鉛シールド内の 100 分計測）データより求めたこの誤差を **Table 2** に示す。

3. 測定器系のゲイン調節のずれとゲインドリフト

ゲイン調節のずれとゲインドリフトの影響を求めるため、まず各スペクトルについて ^{40}K のピーク（1.46 MeV）位置を求め、期待される位置（146 チャンネル）からのずれの程度を調べた。次にそのずれに応じて、チャンネルとエネルギーの比例関係から、ヨウ素、セシウムおよびカリウムの領域の両端を補正し、正確なカウント数を求めた。その後は通常の手順で濃度を計算した。そしてずれを補正した結果と補正していないものとの濃度の差を求め、30 組のデータについてその平均（系統誤差）と標準偏差（統計誤差）を計算し、ゲイン調節のずれとゲインドリフトによる誤差として **Table 2** に示した。

Table 1. Summary of milk sampling.

Event	Sampling date
Nuclear Explosion Test of the People's Republic of China	
the 19th (Sep. 26, 1976)	Sep. 28-Oct. 12
the 21th (Nov. 17, 1976)	Nov. 19-25
the 22th (Sep. 17, 1977)	Sep. 20-29
the 23th (Mar. 15, 1978)	Mar. 17-23
Survey of normal milk	
—	June 27-29, 1977
—	Oct. 1-9, 1977

4. 原乳中の ^{40}K 以外の自然放射性核種による干渉

次の手順に従って原乳中の ^{40}K 以外の自然放射性核種による干渉を求めた。

(i) 平常時の 13 組のデータについて、付録の(2)の操作を施し、残差選別スペクトルの平均 ($\bar{F}_j^M$) を求める。

(ii) ウラン系列やトリウム系列を含んだ試料とブランク試料について、付録の(2)と同様な操作を施し、各々の残差選別スペクトル、 F_j^U , F_j^{Th} , F_j^{BKG} を求める。ただし、ブランク試料の正味のスペクトルはブランク試料を計測したスペクトルそのものとする。

(iii) 原乳試料とウラン系列を含む試料の残差選別スペクトルの計数率の比、 a を求める。

$$a = \left(\sum_{j=1}^5 \bar{F}_j^M \right) / \left(\sum_{j=1}^5 F_j^U \right)$$

この比 a を求めることにより、5 領域相互間の相対的な様相、すなわちスペクトルが見やすくなる。

(iv) 付録の(2)の操作で求めたウラン系列を含む試料の見かけ上の濃度を A_1^U , A_{Cs}^U , A_{K}^U とする。

(v) 原乳試料とウラン系列を含む試料の残差選別スペクトルの類似性より、原乳中の ^{40}K 以外の自然放射性核種によるヨウ素、セシウム、カリウムの濃度への干渉による誤差を、 $a \times A_1^U$, $a \times A_{\text{Cs}}^U$, $a \times A_{\text{K}}^U$ として求める。これらの誤差は系統誤差である (**Table 2** 参照)。

5. 対象外の人工放射性核種の原乳中への混入

フォールアウト起源の長寿命放射性核種 (^{137}Cs を除く) の影響はこれまで見い出されていないので、この項では短寿命のものの誤差について考える。まず搾乳当日の原乳試料を計測し、この定量法よりヨウ素、セシウムおよびカリウム濃度を求める。計測したスペクトルに対象外の核種のピークが存在するか調べる。存在する場合にはその減衰を待ち再計測する。再計測よりヨウ素の減

衰を考慮して搾乳当日のヨウ素、セシウムおよびカリウム濃度を推定する。この再計測より求めた濃度が対象外の核種の影響を受けていない正確な濃度とみなし、搾乳当日の計測結果との差を求める。この差が対象外の核種の原乳中への混入による影響とする。

われわれの実測例におけるその差の最大のものを次に示す。第 19 回中国核実験直後の原乳の場合には ^{131}I , ^{137}Cs についてのおのおの 40, 90 pCi/l, 第 23 回中国核実験の場合には, ^{131}I , ^{137}Cs , ^{40}K について各々 90, 130, 50 pCi/l であった (Table 2 参照)。

6. その他の要因

まず較正用標準試料 (^{131}I , ^{137}Cs) の放射能濃度の誤差を考える。使用した放射能標準液の明細書によれば、放射能濃度の総合誤差 (標準偏差で表わした統計誤差の 2 倍 + 系統誤差) は 2~4% である。一方、この液を希釈、定量する過程で生じる誤差は無視できるものとする。したがって標準液の誤差に起因する濃度の誤差は、ヨウ素とセシウムの各濃度が 100 pCi/l である原乳試料の測定において大きく見積っても、その総合誤差が 4 pCi/l であり、濃度が低い平常時の原乳試料に対しては無視できる程度である。

較正用カリウム標準試料は特級試薬の塩化カリウムの一定量を脱イオン水に溶解して調製する。この標準試料作成において、カリウムの重量は非常に精度よく定量される。また ^{40}K の同位体存在比、半減期、分岐比も正確

に求められている。したがってこれらの操作より誤差が生じるとは考えにくい。

次に各較正用標準試料の計測より得られた標準スペクトル中のヨウ素、セシウムおよびカリウムの各主領域の計数効率と寄与係数の誤差を考える。較正用標準試料計測においてはカウント数を十分大きくとり、計数誤差を小さくするようにした。またその際、エネルギー調節のずれは得られたスペクトル上で正しく補正した。したがって、この誤差は無視できる程度である。

最後にバックグラウンドの変動により生じる誤差を考える。バックグラウンド計測用標準試料を 100 分間多数回計った計数率の平均と標準偏差は、ヨウ素、セシウムおよびカリウムの各主領域に対して $3,225 \pm 110$, $1,579 \pm 45$, 698 ± 22 であった。一方、上記の平均値の平方根に当る計数誤差と実測より求めたゲインドリフトから予想される統計変動はその各々の計数率に対して、77, 59, 44 であり、上記の標準偏差とだいたい一致している。したがって、この点に関してはすでに考慮した計数誤差とゲインドリフトの影響以外に大きな統計誤差は生じていないと思われる。次章で誤差要因ごとに順次考察を行なう。

III 考 察

1. 計数誤差

計数誤差の濃度への影響は原乳試料のスペクトル中の

Table 2. Summary of uncertainty.

Causes	Uncertainty (Systematic Error and Random Error (S.D.) pCi/l)		
	I-131	Cs-137	K-40
1. Counting Error	± 7	± 8	± 10
2. Deviation in Gain Adjustment and Gain Drift			
a. Systematic Error	$+ 0$	$+ 1$	$+ 2$
b. Random Error	± 2	± 2	± 9
3. Presence of Natural Radioactive Nuclides Except K-40	$+15$	$+17$	$+ 8$
4. Presence of Artificial Radioactive Nuclides Except I-131 and Cs-137	$+0 \sim +90$	$+0 \sim +130$	$+0 \sim +50$
In Normal Condition			
Systematic Error	$+15$	$+18$	$+10$
Random Error	± 7	± 8	± 13
Measured Values of Milk in Normal Condition	11 ± 6	13 ± 7	$(160)^* \pm 12$
Minimum Detectable Activity (Systematic Error $+3 \times \text{S.D.}$) <i>based on the measured values</i>	30	30	—

* Value in the parenthesis is only for reference.

ヨウ素, セシウムおよびカリウム領域のカウント数に依存する。しかし, ^{131}I と ^{137}Cs がほとんど混入していない原乳と, それぞれ約 100 pCi/l の混入が認められた原乳について, その誤差の変化は小さく, ほぼ同じ値となった。さらに原乳中の ^{40}K の濃度が変化した時のこの誤差も実測した ^{40}K の変動範囲内では同じ値であった。したがって, ヨウ素やセシウムの濃度が極端に高くない原乳について, この誤差は一定であり, それゆえ Table 2 の 1 の値は妥当なものとみられる。

2. 測定器系のゲイン調節のずれとゲインドリフト

ルーチン化された業務の試料計測開始前には標準線源を数分間計測し, 得られたスペクトル中のピーク位置を簡便に求め, それに従って測定器系のゲイン調節を行なうことが多い。この数分間という短い計測時間より生じるカウント数の統計誤差と簡便なピーク位置の判定方法とからゲイン調節に誤差が生まれる可能性がある。また ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{22}Na 等の標準線源を用いたエネルギー調節ではさらにエネルギーの高いカリウム領域が正しく設定されている保証はなく, これもまた誤差の原因となる。

Table 2 の 2 の値はルーチン業務として計測したわれわれのデータより求めたものである。われわれのデータのチャンネルのずれの平均 (系統誤差) と標準偏差 (統計変動) は原乳試料について -1.0 ± 1.1 チャンネル, バックグラウンド試料について -1.6 ± 1.4 チャンネルである。チャンネルのずれに系統的な偏りが認められるが, これに起因する誤差 (Table 2 の 2a) が他の項目にくらべ小さく, 全体の誤差には大きく寄与しない。一方, チャンネルのずれの統計変動に起因する Table 2 の 2b 程度の誤差はルーチン業務においてはやむを得ず生じるものと考えられる。

3. 原乳中の ^{40}K 以外の自然放射性核種による干渉

ヨウ素, セシウムおよびカリウムの 3 核種のみが存在する原乳について残差スペクトルの各チャンネルのカウント数は零付近にランダムに分布するものと期待される。しかしながら, フォールアウトの影響が小さい平常時の原乳の場合においても, 各チャンネルの残差は正に偏っていた。ただし, ヨウ素, セシウムおよびカリウム領域の残差は当然, 零となっている。また全計数率残差 (残差スペクトルの全計数) も計数誤差から期待される値より高い場合が多かった。このことは定量された各核種の濃度が正に偏った系統誤差をもつことを意味する。すなわち, ヨウ素, セシウムおよびカリウム以外の放射性核種が原乳中に混在していることを示している。

平常時の原乳を定量する時のこの系統誤差を推定するためには, 原乳中に混入している放射性核種を同定する

ことが望ましい。したがって, 自然環境中に多量に存在し, 原乳中へ混入しうる核種として, ウラン系列とトリウム系列を調べた。原乳の生のスペクトルおよびそれからバックグラウンドを差し引いた正味のスペクトルには多量のカリウムが存在しているため (Table 2 の K-40 の欄参照), 濃度が相対的に低い混入核種の同定には適さない。そこで, カリウム, ヨウ素およびセシウムの寄与を差し引いた残差スペクトルの形より核種の同定を試みた。平常時の 13 個の原乳試料の残差スペクトルの平均を用い, さらにヨウ素, セシウム, カリウム以外のチャンネルを 5 つにまとめて調べた。この各チャンネルのエネルギー幅は約 100 keV であり, NaI(Tl) の半値幅 (^{137}Cs のピークエネルギーで約 70 keV) と大差がないので, 5 チャンネルでスペクトルの特徴を表しえると思われる。Fig. 1 に示されているその残差選別スペクトルの形は娘核種と平衡状態にあるウランの同様な残差選別スペクトルと類似しており, 娘核種の平衡状態にあるトリウムやブランク試料のものとは似ていない。したがって, 原乳中に存在する放射性核種はウラン系列からの寄与が大部分であり, それとくらべるトリウム系列から

Fig. 1. Residual spectra of the normal raw milk (Milk), background (BG.), Th series and U series. Each channel number corresponds to the following energy range: Channel No. 1, 0.20 MeV-0.30 MeV; 2, 0.42 MeV-0.52 MeV; 3, 0.72 MeV-0.82 MeV; 4, 1.24 MeV-1.38 MeV; 5, 1.54 MeV-1.68 MeV.

の寄与ははるかに小さい。

原乳中に存在する微量の放射性核種をすべてウラン系列からのものと仮定し、原乳の残差選別スペクトルと同量の残差選別スペクトルを示すウラン（娘核種と平衡状態にある試料）の見かけ上のヨウ素、セシウムおよびカリウムの濃度より系統誤差を評価したものが **Table 2** の値である。

この定量法においては、各核種の濃度が平均的にこの値だけ高く計測されることを示している。この系統誤差は測定条件により変化するものではなく、計測対象の原乳への ^{40}K 以外の自然放射性核種の混入の程度に応じて増減する。われわれの入手した少数の市販乳の測定結果によれば、市販乳は原乳よりも自然放射性核種（カリウムは除く）の混入が少なく、この系統誤差が小さいようである（後述の **Fig. 2**, **Fig. 3** 中の市販乳のデータ（□）を参照。全計数率残差が小さい）。

一方、この誤差要因の解析における統計誤差は平常時の原乳試料について求めた残差選別スペクトルのカウンタ数の標準偏差より推定できる（**Fig. 1** の Milk のスペクトルのエラー棒は平均の標準偏差を示している）。しかし、この標準偏差には前述の誤差（計数誤差とゲイン調節のずれに起因する誤差）が含まれている。この標準偏差は前述の誤差の変動幅内に納っており、他の統計変動要因は加わっていないと思われる。ただし、この統計誤差は系統誤差の値を決定する時に若干の偏りを生ぜしめているかも知れない。

4. 対象外の人工放射性核種の原乳中への混入

浮遊塵や降下塵には数多くの核分裂生成核種の存在が認められているが、牛乳中へ移行する核種はその内の限られた核種だけであると言われてきた。檀原等の実験によれば ^{140}Ba – ^{140}La の原乳中への分泌は微量であり、ガンマ線スペクトロメータによる直接測定ではそれらのフォトピークは検出されなかった²⁾。また ^{132}I , ^{133}I , ^{135}I は ^{131}I よりも半減期が短いことを考え、この定量法は ^{131}I , ^{137}Cs , ^{40}K のみを対象核種として組立てられている。しかし、実際には対象外の人工放射性核種も原乳中へ混入しており、その影響を実測例より調べた。

Fig. 2, **Fig. 3** には原乳試料および市販乳の定量結果を示した。図中の矢印は当日の結果から1日後の再測定結果への全計数率残差と濃度の変化のようすを示すものである。**Fig. 2**, **Fig. 3** の搾乳当日のヨウ素とセシウムの濃度にはともに1日後にかなりの減衰が見られ、特にセシウム濃度の減衰が大きい。また全計数率残差も大きく減少している。一方、 ^{131}I の1日間の減衰をその半減期から計算すると約 10% にすぎず、図中の変化は ^{131}I

Fig. 2. Plot of ^{131}I concentration vs residual total count rate for raw milk. Data from raw milk samples just after the 19th Nuclear Explosion Test of the People's Republic of China (●), the 21st one (△), the 22nd one (○), and the 23rd one (■), from normal raw milk samples (▲), and from commercial milk samples (□).

St. I: the result of the standard iodine sample.

Each arrow shows a change from the result measured on the day when the milk was drawn to the one measured on the next day.

の減衰として説明しえない。このことは ^{131}I より半減期の短い多量の放射性核種の混入により、当日の原乳中のヨウ素とセシウムの濃度が高く見積られ、また全計数率残差も異常に高くなっていたことを予想させる。

実際第 19 回中国核実験直後の3日目から8日目までの原乳試料中には対象外の人工放射性核種の混入が認められた。この時の原乳試料とブランク試料のスペクトルを **Fig. 4** に示す。ブランク試料のスペクトルは通常のとおりであり、特に異常はない。原乳試料のスペクトルと放射能の弱いヨウ素標準試料のスペクトル（図中上段の破線）を比較すると、陰影で表わした部分とカリウム

Fig. 3. Plot of ^{137}Cs concentration vs residual total count rate for raw milk. Data from raw milk samples just after the 19th Nuclear Explosion Test of the People's Republic of China ($\bullet$), the 21st one (Δ), the 22nd one ($\circ$), and the 23rd one ($\blacksquare$), from normal raw milk samples ($\blacktriangle$), and from commercial milk samples ($\square$).

St. I: the result of the standard iodine sample.

Each arrow shows a change from the result measured on the day when the milk was drawn to the one measured on the next day.

のピークに顕著な相違が認められる。陰影部分の各ピークのエネルギーとその比率は ^{132}I のものと一致している。しかも搾乳1日後には上記のピークは消え、その後はスペクトルの大きな変化が認められなかった。以上のことを考え合せると混入していた未知の核種のはほとんどは ^{132}I (半減期 2.26 時間) であろう。しかし ^{132}I の親核種である ^{132}Te はその半減期 (77.7 時間) と試料中の ^{132}I ピークの急速な減衰よりみて原乳中にはほとんど含まれていなかったと思われる。一方、搾乳当日の原乳中には高濃度の ^{132}I が検出される、ということが数日続いた。このことから、牝牛体内には ^{132}Te が相当量取り込

Fig. 4. Upper group: Pulse-height spectra of the raw milk (Milk 19th 11/20) and the background (BG.) on September 20 1976 just after the 19th Nuclear Explosion Test of the People's Republic of China and of a standard iodine sample (St. I).

Lower group: Pulse-height spectra of the raw milk on March 19 1978 just after the 23rd Nuclear Explosion Test. The solid line (Milk 23rd 3/19) and the dotted line (Milk 23rd 3/19-20) are the spectra measured on March 19 and 20 respectively.

まれていて、ミルクによって ^{132}I がつくられたか、あるいは牧草中に ^{132}Te が付着または保持され、そこから生じた ^{132}I を牝牛が体内に取り込んだものと解釈される。 ^{132}I の混入によって ^{137}Cs および ^{131}I 濃度は過大評価されるが、その際、前者の増分は後者のその約2倍である。それは ^{132}I の光電ピークの1つがセシウムの主領域に重なっているためである。

第23回中国核実験直後(3日目から5日目)の原乳中にも対象外の人工放射性核種が多量に混入し、第19回中国核実験後の原乳試料と同様に、ヨウ素とセシウムの濃度と全計数率残差が異常に高かった。しかし、第23回中国核実験直後の原乳試料測定結果は第19回のもとの次の諸点において異なっている。i) Fig. 2 の矢印で示された変化からも分かるように搾乳1日後の再測定結果の ^{131}I 濃度は約 0 pCi/l となっている。すなわ

ち、搾乳当日の原乳中には ^{131}I がほとんど含まれていなかったと思われる。ii) 同じく Fig. 2 から分かるように、第 19 回のもものと第 23 回のもものでは再測定による濃度と全計数率残差の減少の割合が異なっており、混入核種のエネルギースペクトルのヨウ素領域への寄与が違うことを示している。iii) 第 19 回のもものは搾乳当日と 1 日後の両測定結果においてカリウム濃度の変化は認められなかったが、第 23 回のもものはカリウム濃度も見かけ上 1 日後に大きな減衰を示した (Fig. 5 参照)。これらの特徴より、第 23 回中国核実験直後の原乳に混入した核種は第 19 回中国核実験直後のものと異なり、 ^{132}I ではなく、Fig. 4 の下のスペクトルに示した陰影の部分 (610 keV, 1,120 keV, 1,750 keV 近傍) あるいはそれ以上のエネルギー領域に光電ピークをもつ短寿命放射性核種であったと思われる。ただし核種名は不明である。

対象外の人工放射性核種が原乳中へ混入した時の濃度の誤差を前もって推定することは下可能である。しかし、Table 2 に示す程度の過大評価は、 ^{131}I , ^{137}Cs 以外の人工放射性核種の混入により時折生じうるものと思われる。

5. その他の要因

解析手法と結果の章のその他の要因の項で扱った誤差は小さく、平常時の原乳試料を定量する際にはすべて無視できる程度である。

6. まとめ

以上の解析に基づき、原乳試料を定量する時の誤差をまとめたものが Table 2 である。フォールアウトの影響の大きい表中 4 番目の項目を除いて、平常時の原乳を定量する時の全体の誤差を考える。まず表中の 2 つの統計誤差 (表中 1 および 2b) がたがいに独立であるとみなせることより、全体の統計誤差は各々の誤差の二乗和の平方根として求まる。次に系統誤差として、ここでは平均的な偏りを考えているため、表中の系統誤差の和を全体の系統誤差とした。その結果を表中の下段に示した。

一方、フォールアウトの影響が小さいと思われる平常時の 13 回の原乳試料の実測結果では、ヨウ素、セシウムおよびカリウムの見かけ上の濃度の平均と標準偏差が各々 11 ± 6 , 13 ± 7 , 160 ± 12 (0.174 ± 0.013 of gK) pCi/l であった。これらの値と上記の全体の誤差とを比較すると、原乳中に常時含まれているカリウムの平均濃度 (160 pCi/l) は別にして、ヨウ素とセシウムの系統誤差と平均値は近い値を示している。また 3 核種の統計誤差もほぼ一致している。このことから、平常時の誤差と

Fig. 5. Plot of ^{40}K concentration vs residual total count rate for raw milk. Data from raw milk samples just after the 19th Nuclear Explosion Test of the People's Republic of China ($\bullet$), the 21st one ($\triangle$), the 22nd one ($\circ$), and the 23rd one ($\blacksquare$), from normal raw milk samples ($\blacktriangle$), and from commercial milk samples ($\square$).

Each arrow shows a change from the result measured on the day when the milk was drawn to the one measured on the next day.

して解析した上記の誤差要因項目と数値はほぼ妥当なものと認められる。平常時の原乳試料の実測結果のヨウ素とセシウムの平均値は誤差解析で考えた系統誤差と考えられ、ヨウ素やセシウムが原乳中に混入していない場合においても、見かけ上零でない正の濃度が求まることを示している。

平常時の原乳試料の実測結果に基づき、この定量法の平常時のヨウ素の最小検出濃度を推定する。最小検出濃度として平常時の実測結果より求めた標準偏差の 3 倍と平均値との和をとれば、われわれの計測条件において、その値は約 30 pCi/l となる。またその系統誤差の補正を行えば、補正されたその値は約 20 pCi/l となる。この最小検出濃度を超える結果が得られた場合は、少なくとも原乳中に何らかの人工放射性核種が混入したことを示していると考えられる。

対象外の人工放射性核種が原乳中に多量に混入した場

合は、II章の第5項で述べたように、ヨウ素は 90 pCi/l、セシウムは 130 pCi/l もの誤差が生じる可能性がある。この対象外の核種の混入による誤差を前もって推定することはできない。したがって、エネルギースペクトルより対象外の核種の混入が認められた場合には、1日後(時には数日後かも知れない)に原乳試料を再計測し、その減衰を確認した上で定量しなければならない。

われわれと異なる計測条件下で測定する場合においても、ここで解析・考察した誤差要因が影響し、定量誤差を大きくすると考えられ、計数誤差のみを考慮することは誤差の過小評価となろう。したがって、平常時の多数の原乳試料の測定を行ない、定量法の系統誤差と統計誤差を求め、最小検出濃度を設定し、人工放射性核種の牛乳中への混入の有無を判定する必要がある。

ここで記述した誤差解析の手法およびその考え方は他の種々の測定にも応用できるものであろう。

最後に当誤差解析に用いた原乳試料測定データを快く提供して下さった放射線医学総合研究所環境衛生研究部の各位に感謝いたします。

付 録

残差選別スペクトルの計算手順

(1) i) ヨウ素, セシウムおよびカリウムの標準試料について、スペクトル N_i^I , N_i^{Cs} , N_i^K ($i=1, 2, \dots, 200$) を求める。

ii) 標準試料の放射能を $S(\mu\text{Ci})$ とし、単位放射能 (μCi) 当りのスペクトル $N_i^{I^0}$, $N_i^{Cs^0}$, $N_i^{K^0}$ ($i=1, 2, \dots, 200$) を次のヨウ素の例のように求める。

$$N_i^{I^0} = N_i^I / S^I \quad (i=1, 2, \dots, 200)$$

(2) i) 原乳試料の正味のスペクトル N_i^M ($i=1, 2, \dots, 200$) を求める。

ii) 原乳のヨウ素, セシウムおよびカリウム領域の見かけ上の濃度をこの定量法によって求め, A_I^M , A_{Cs}^M , A_K^M とする。

iii) 原乳試料の残差スペクトル R_i^M を次式のように定義する。

$$R_i^M = N_i^M - \{A_I^M \times N_i^{I^0} + A_{Cs}^M \times N_i^{Cs^0} + A_K^M \times N_i^{K^0}\} \quad (i=1, 2, \dots, 200)$$

iv) この残差スペクトルから下記のように5領域をぬき出し、それを残差選別スペクトルとする。

$$F_j^M = \sum_{i=m_j}^{n_j} R_i^M \quad (j=1, 2, \dots, 5),$$

$$(m_j, n_j) = \begin{pmatrix} 20, & 30 \\ 42, & 52 \\ 72, & 82 \\ 124, & 138 \\ 154, & 168 \end{pmatrix}$$

なお残差選別スペクトル取扱の便宜上 ^{131}I , ^{137}Cs , ^{40}K の各領域をはずして任意に5領域を選んだ。これは、後の議論がしやすいよう、図上で結果が見やすいように選んだものである。

参 考 文 献

- 1) 科学技術庁原子力局; γ 線スペクトロメータによる牛乳中放射性ヨウ素の迅速定量法 (1974).
- 2) 鎌田 博; 放射線科学, 16(6), 8 (1973).
- 3) 檀原宏他; 第 13 回放射能調査研究成果発表会論文抄録集, p.76 (1971).