

. 分 担 研 究 報 告

食品中放射性物質検査における適正なサンプリング計画策定

渡邊 敬浩

平成 26 年度厚生労働科学研究費補助金 食品の安全確保推進研究事業

震災に起因する食品中の放射性物質ならびに有害化学物質の実態に関する研究 研究分担報告書

食品中放射性物質検査における適正なサンプリング計画策定

研究代表者 蜂須賀暁子 国立医薬品食品衛生研究所 生化学部第一室長

研究分担者 渡邊敬浩 国立医薬品食品衛生研究所 食品部第三室長

研究要旨

食品成分規格への適合を判定するための検査には、サンプリング、分析、判定基準の 3 つの要素が不可欠である。食品成分規格として、放射性物質には最大濃度が設定されており、これへの適合を判定するために多くの検査も実施されている。しかし、サンプリングが明確に規定されていない。検査実施主体間でサンプリングの内容を整合させるためにはサンプリングが規定され公に示される必要があり、その際には、成分規格の実効に対して過剰あるいは不足の内容とならないよう科学的根拠に基づき検討しなければならない。本研究では、放射性物質を対象とする食品検査において規定すべきサンプリングについて検討する。

本年度は、実際の食品(干しシイタケ)ロットを 3 つ入手し、各ロットから抜き取った個々の干しシイタケの放射性セシウム濃度を測定し、ロット内の濃度分布を推定した。その結果、ロット中の放射性セシウム濃度の分布型が対数正規型であることを明らかにした。さらに、この実データに基づき推定した分布を対象とし、サンプルサイズの変化を伴う計数規準型及び計量規準型サンプリングの性能を、計算及びシミュレーションにより推定し、評価した。

研究協力者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所 食品部 主任研究官

土山智之 名古屋市衛生研究所 食品部

宮崎仁志 名古屋市衛生研究所 食品部

A. 研究目的

食品成分規格の実効のために検査が行われる。検査はサンプリング、分析、分析結果に基づく判定の 3 つの要素で構成されている。検査の対象は個々の食品ではなく、生産や出荷を要素として一群と見なされる集団(ロット)である。

放射性物質についても、平成 24 年 4 月に食品成分規格が設定され、数多くの検査が実施されている。その検査では、一定水準の性能への要求を満たす方法を用いて分析をし、規格値(最大濃度)に照らして判定する事が示されている。しかし、サンプ

リングは明確に規定されておらず、どのようなサンプリングを行うかは、つまり、ロットからどのくらいの数の食品をどのように抜き取るかは、検査実施主体の判断に任されているのが現状である。検査実施主体間で、合理的に説明可能な内容で検査結果を整合させるためにも、規定に従い同一のサンプリングが実行されるように内容を規定することが必要である。また、サンプリングの規定に当たっては、成分規格の実効に対して過剰あるいは不足とならないよう科学的根拠に基づき、内容は検討しなければならない。

本研究では、食品中放射性物質検査における適正なサンプリング計画を策定することを目的とし、1)実際に放射性セシウムに汚染された食品(干しシイタケ)ロット内の放射性物質濃度分布の推定と考察、2)推定されたロットをモデルとする分布からの計数規準型サンプリングを試行した際のサンプルサイズ別 OC 曲線の作成、3) 推定されたロットをモデルとする分布からの計量規準型サンプリングを試行した際のサンプルサイズ別 OC 曲線の作成を実施し、国際的に認められているサンプリング計画の比較結果も踏まえ、適正なサンプリング計画について検討した結果を報告する。

B. 研究方法

1) ロットから抜き取った干しシイタケにおける放射性セシウム濃度の測定

試料：同一生産者からの一括出荷を想定し、干しシイタケの出荷に用いられることを確認した箱(出荷箱)をロット

とした。1 ロットには概ね 10 kg(3000 個以上)の干しシイタケが含まれる。このロットからランダムに 0.4 kg(約 150 個)の干しシイタケを抜き取った。同様の抜き取りは、計 3 ロットに対して行い、それぞれのロットに相当する 3 つの試験室試料(以下、ロット 1、ロット 2、ロット 3)を調製した。ロット 1 からは 40 個、ロット 2 からは 52 個、ロット 3 からは 53 個の干しシイタケをランダムに抜き取り、その 1 つ 1 つを測定用試料とした。

装置：ゲルマニウム半導体検出器には、ORTEC 社製 GEM 25185-P 及び GEM-20-70 を用いた。

放射性セシウム濃度の測定：干しシイタケを 1 本ずつ粉碎し、4.7 倍量の水を加えて攪拌した。調製した試料を U8 容器に充填し、ゲルマニウム半導体検出器により、放射性セシウム(Cs-134 及び Cs-137)濃度を測定した。Cs-134 及び Cs-137 濃度に伴う計数誤差が 3 Bq/kg 以下もしくは RSD(計数誤差/濃度 × 100)が 2% 以下となるように、測定時間を設定した。放射性セシウム濃度は、試料を試験室へ搬入した日をもって減衰補正した。

2) 記述可能な分布へのフィッティング

1 つのロットから得た全ての固体の放射性セシウム濃度を 1 つのデータセットとし、このデータセットから記述可能な分布へのフィッティングは、Oracle 社製 Crystal Ball, Fusion Edition により実施した。

アンダーソン - ダーリング検定の判

断基準(フィッティングの程度を判断するパラメータ)は、ロット1は0.303、ロット2は0.201、ロット3は0.248であった。一般にアンダーソン-ダーリングの判断基準が1.5未満であれば、分布に適合していると判断される。

3) OC 曲線の作成

計量規準型サンプリング計画に沿ったシミュレーションは、Oracle社製Crystal Ball, Fusion Editionにより実施した。

C. 結果

1) 放射性セシウム濃度の分布

ロットからランダムに抜き取った干しシイタケの放射性セシウム濃度(n=40~53)を、ロット別にヒストグラムとして示した(図1)。

検出された放射性セシウムの濃度範囲は、3つのロット間で異なる。しかし、濃度範囲内での検出頻度は対象ではなく、高濃度側に裾を引く分布であった。特に、ロット3に対するヒストグラムの非対称性は高く、高濃度になるに従い、検出頻度が単調に減少している。ロットごとの放射性セシウム濃度の平均値はそれぞれ、278.3 Bq/kg、120.9 Bq/kg、102.1 Bq/kgであった。ヒストグラム中に矢印で示した通り、ロットごとの平均値は濃度範囲の中央からずれ、低濃度側に位置している。以上の結果から、干しシイタケロット内の放射性セシウム濃度の分布は、正規分布に従わないことが強く示唆される。

ロットごとに実測した個々の干しシイタケの放射性セシウム濃度をヒストグ

ラムとして表す事で、検出濃度の頻度を視覚化し、各ロット内の濃度分布の概要を把握することはできる。しかし、記述することができないため、記述可能な何らかの分布へのフィッティングを試みた。Crystal Ballの機能を使用して、各種の連続分布へのフィッティングを試行した結果、ロット1~3の全てに共通して、対数正規分布をフィッティングすることができた。

確率変数 x の対数 $\ln(x)$ が正規分布に従うとき、確率変数 x は対数正規分布に従う。従って、対数正規分布を記述するパラメータは、 $\ln(x)$ の平均 μ と、分散 σ^2 あるいは標準偏差 σ である。

x の平均 μ_x と分散 σ_x^2 は、

$$\mu_x = \exp\left(\mu + \frac{\sigma^2}{2}\right)$$

$$\sigma_x^2 = \mu_x^2 \exp((\sigma^2) - 1) \text{ となる。}$$

また、 x の平均 μ_x 、分散 σ_x^2 が与えられたときは

$$\sigma^2 = \ln\left\{1 + \left(\frac{\sigma_x}{\mu_x}\right)^2\right\}$$

$$\mu = \ln(\mu_x) - \frac{\sigma^2}{2} \text{ となる。}$$

分散の式にある、 $\frac{\sigma_x}{\mu_x}$ は x の分布の

相対標準偏差(RSD)である。このように、 x と $\ln(x)$ の平均、標準偏差は

相互に関連付けられるので、対数正規分布を x の平均 μ_x 、分散 σ_x^2 で記述することもできる。

表 1 には、実測値とフィッティングされた対数正規分布の平均値及び標準偏差を示した。対応する値は概ね一致した。以上の結果から、(少なくとも干しシイタケのロットを対象とした)、食品中放射性物質検査のためのサンプリングの検討では、対数正規分布をモデルとすることが妥当と考えられた。ロットごとにフィッティングされた対数正規分布の RSD% は、それぞれ 58%、80%、94% であった。このことから対数正規分布を分布型とすることに加え、RSD を広い範囲に変化させて、サンプリング計画を検討する必要があると考えられた。

2) 対数正規分布からのサンプリングの性能

サンプリング計画の性能を知るためには、母集団中の分布を知り、記述する必要がある。図 2 には、一例として、ロット平均が 100、RSD% が 20、40、60、100 の対数正規分布の確率密度と累積確率を示した。横軸は母集団中の要素が取る数である。RSD%=20 の対数正規分布は比較対称性が保たれており、確率密度が最高の点はロット平均である 100 に近い。RSD% が増加すると、確率密度が最高となる点は低値側に移動する一方、高値側の確率密度の低下の傾きは緩かになる。図 2 に示した一例からも分かる通り、対数正規分布の対称性は RSD の増加と共

に低下する。確率密度の変化から予想されるように、RSD が小さい対数正規分布の累積確率は、ロット平均から遠い部分では緩やかに増加し、ロット平均付近で急激に変化する変曲点が見られる。また、ロット平均における累積確率は 0.5 に近い。RSD が大きくなるほど、累積確率の変化は低値側から始まるようになり、急激な変化は見られなくなる。また、ロット平均における累積確率は 0.5 よりも大きくなる。

正規分布においては、RSD が増加すると、分布の範囲は広がるが、確率密度の最大は常にロット平均であり、対称性は保たれる。RSD が増加した時に、ロット平均の累積確率が高値側に大きく増加するのが対数正規分布の特徴である。

計数規準型サンプリング計画の性能を評価するためには、サンプリングの対象となるロットの不良率を知る必要がある。そこで、種々の RSD を持つ対数正規分布のロット平均と不良率の関係を調べた。放射性物質の基準値を想定して、対数正規分布に従う要素の値が 100 を超えた場合を不良とした。

図 3 に、対数正規分布のロット平均と不良率の関係を示す。RSD が 10% ~ 20% 程度で、対称性が良く正規分布と同じような形状の対数正規分布では、ロット平均と不良率の関係は S 字状のカーブとなり、ロット平均が 100 前後で変化する時に、不良率も急激に変化した。ロット平均が 100 であるときの不良率は、RSD=10% では 48%、RSD=20% では

46%となり、正規分布の場合と同程度の値であった(正規分布のロット平均が100の場合、RSDによらず不良率は50%である)。ロット平均の増加に対する不良率の増加率は、対数正規分布のRSDが大きくなるとともに緩やかとなり、RSDが75%~100%では全体として傾きの変化がなくなり、S字状を示さなくなった。また、ロット平均が100である場合の不良率は、RSD=75%では36%、RSD=100%では34%となり、ロット平均が基準値と一致した場合でも、不良率は50%を大きく下回る。図2からも同様に、対数正規分布の場合には、RSDが大きいくほど、100における累積確率は0.5を超えてより大きくなるため、不良率は50%を下回りより小さくなること分かる。

干しシイタケの放射性セシウム濃度データからフィッティングされた対数正規分布のRSDは、ロット1で58%、ロット2で80%、ロット3で94%であった。ロット平均を100、RSDが上記の値となる対数正規分布をもつモデルロット1~3を対象にする計数規準型サンプリング計画の性能を、OC曲線として図4に示す。サンプルサイズは、国際的に認められる複数のサンプリング計画中に指示されている数を踏まえ、1、3、5、10とした。また、ロットから抜き取られた個々の干しシイタケの放射性セシウム濃度が、1つでも基準値である100を超えた場合はロットを不合格、つまり合格率は0とした。

ロット平均との比較により基準値への適合を判断するとすれば、ロット平均が基準値付近となる濃度での不良率

を保証する検査が要求される。今回のモデルロット1~3における基準値濃度での不良率は、32%~40%である。本来数%の不良率を保証するために計画される計数規準型サンプリング計画の適用が妥当でないことは明らかだが、その予想通り、RSDの一番大きなモデルロット3を対象とすると、サンプルサイズが3の場合にもロットの合格率は42%であり、サンプルサイズを大きくするほど低下した。つまり、ロット平均と基準値の比較により適合を判断するならば、本来基準に適合するロットの合格率が、より多くのサンプルを抜き取ることで低くなる。従って、サンプリング計画の性能としては不適切である。ロット3に対して、計数規準型サンプリング計画を採用した検査において、サンプル平均が基準値に一致するロットの合格率を50%程度にするためには、サンプルサイズを2とする必要があった。しかし、この計画であると、サンプル平均が基準値の2倍以上である220であっても、10%が合格してしまう。保証するロット平均の値を基準値の1.5倍である150とするならば、サンプルサイズを5とすることで合格率50%の検査を実施することも可能である。

モデルロット1~3を対象とする計量規準型サンプリング計画の性能をOC曲線として図5に示す。サンプルサイズは計数規準型の場合と同様、1、3、5、10とした。アイテムの放射性セシウム濃度の平均値、あるいはアイテムをコンポジットした試料の濃度が基準値を超えた場合を不合格とした。また、合格率が95%あるいは10%になる

ロット平均の値を表 2 に示した。

全てのモデルロットについて、サンプルサイズを 1 とする計量規準型サンプリング計画の OC 曲線は緩やかに下降するカーブとなり、合格率が 95% となるロット平均は 35 ~ 48 付近、10% 合格となるロット平均は 225 以上であった。サンプルサイズを増加させると、OC 曲線の傾きは急となり、サンプルサイズを 5 とすると、95% 合格するロット平均は 56 ~ 68 付近、10% 合格となるロット平均は 145 ~ 180 付近となった。

D. 考察

検査対象となる多くの化学物質について、食品ロット内の濃度分布が明らかになっていることは少なく、サンプリングを検討する場合には、正規分布を仮定することが多い。本研究では、放射性セシウムにより汚染された干しシイタケのロットを 3 つ入手し、各ロットに含まれる個々の干しシイタケ(アイテム)の放射性セシウム濃度を測定した。得られた測定値からロット内の放射性セシウム濃度の分布を明らかにし、通常想定される正規分布ではなく、対数正規分布であることを示した。平成 21 年度厚生労働科学研究補助金「検査におけるサンプリング計画並びに手順のハーモナイゼーションに関する研究」の分担研究報告書「不均一分布からのサンプリングのシミュレーションによる最適化」では、実際の圃場から採取した生鮮野菜の残留農薬濃度の分布が示されている。4 種類の農薬の濃度分布中、正規分布に適合したものはなく、3 種類には対数正規分布が

適合し、それらの RSD は 30 ~ 100% の範囲であった。このことから、高い均質性を考慮することなく散布された農薬等が食品に残留する場合、あるいは環境に存在する物質によって食品が汚染される場合には、それら物質濃度の分布は対称な正規分布ではなく、非対称な分布となり、またその変動範囲が大きいことが予想される。

H25 年度に実施した本研究では、国際的に認められているサンプリング計画を比較し、その中で、Codex 残留農薬部会(CCPR)が策定した、残留農薬検査で実施するサンプリングのガイドラインでは、濃度に分布が想定されないロット(均質とは想定不可能な食品ロット)に対しては、その分布型等を問うことなく、ロットサイズに応じてサンプルサイズを、1、3、5、10 とすることが示されていることを報告した。また、汚染物質の最大基準値や分析法、サンプリング計画を収載した CAC STAN 193 においても同様に、ロットサイズに応じて、サンプルサイズが 1、3、5、10 として決められていることを報告した。さらに、これら国際的に認められているサンプリング計画に示されたサンプルサイズで、RSD が 10 ~ 30% であると仮想した正規分布及び対数正規分布からサンプリングする計画には、十分な性能があることを明らかにした。

本年度は、まず実際のロットから得た放射性セシウム濃度のデータをフィッティングすることで、異なる RSD をもつ対数正規分布のモデルロットを作成した。さらに、作成したモデルロットから、サンプルサイズを 1、3、5、10

として実行する計数規準型及び計量規準型サンプリング計画の性能を評価した。

計数規準型サンプリング計画の性能評価では、抜き取られるアイテムの濃度が基準値以上であった場合に不良とし、1つの不良も許容しない(合格判定個数を0)とすると、サンプルサイズを3としても、ロット平均が基準値に一致するロットの合格率は42%という、適用しがたい性能となった(真には適合しているロットを誤って判定する確率が高すぎる)。サンプルサイズを2とすると、ロット平均が基準値に一致するロットの合格率は70%程度となったが、逆に、ロット平均が220のロットでも合格率が10%程度となった。つまり、基準値の倍以上のロット平均をもつロットであっても、このサンプリング計画を採用した検査では見逃され、流通する可能性が大きく(明らかに適合していないロットを誤って判定する確率が高すぎるため)、これも妥当な検査とは言い難い。

計量規準型サンプリング計画の性能評価では、ロット平均が基準値に一致するロットの合格率は50~70%程度であった。合格率が10%(不合格率90%)となるロットの平均は、サンプルサイズを大きくするとともに小さくなる(より基準値に近づく)。今回実測値からモデル化した対数正規分布のうち、RSDが最大であったモデルロット3(RSD=94%)であれば、サンプルサイズを10とすることにより、ロット平均が150のロットであっても、合格率を10%とすることができる(ロット平均が基準値の1.5倍のロットの90%を不

合格と判定することができる)。今回実測値からモデル化された対数正規分布のうち、最小であったRSDが58%のロットであれば、サンプルサイズを5としても同じ性能となる。95%合格するロットのロット平均には、RSDの違いによる大きな差は見られない。

以上の通り、モデルロットを対象とした検討の結果からは、計量規準型サンプリング計画の採用が適切であり、合格率が10%となるロット平均を指標に、妥当なサンプルサイズを決めるべきと考えられた。

E. 結論

放射性セシウムに汚染された干しシイタケのロット中の濃度分布は、対数正規分布に従っており、そのRSDは50%以上であることが明らかとなった。

サンプルサイズを1、3、5、10とする計量規準型サンプリング計画をこのロットに適用した時の性能を評価した結果、もっとも分布の広いRSD=94%のロットにおいても、サンプルサイズを10とすれば、平均値が150のロットの合格率を10%とできることが明らかとなった。

以上のことから、生産者と消費者との合意や納得が必要であるが、サンプルサイズを最大10とする計量規準型のサンプリング計画を、食品の放射性物質濃度が成分規格に適合しているかを判定する事を目的とした検査に採用することが提案される。

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

なし

H. 知的所有権の取得状況

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

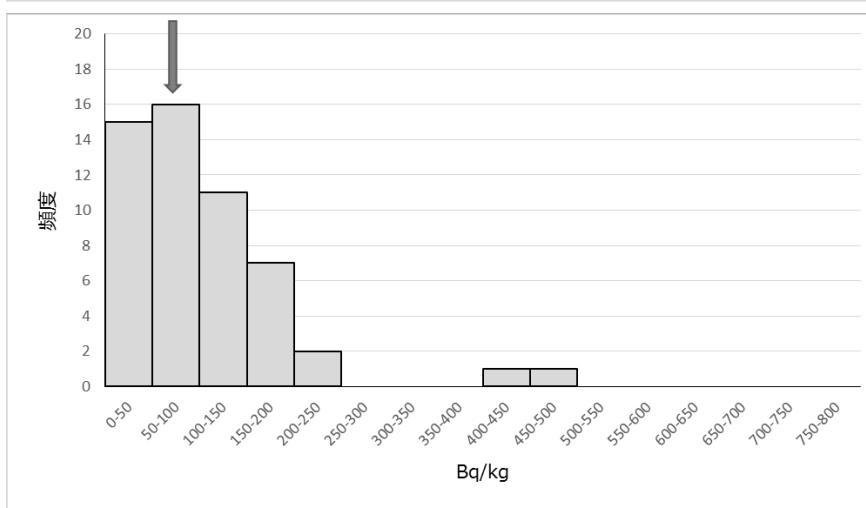
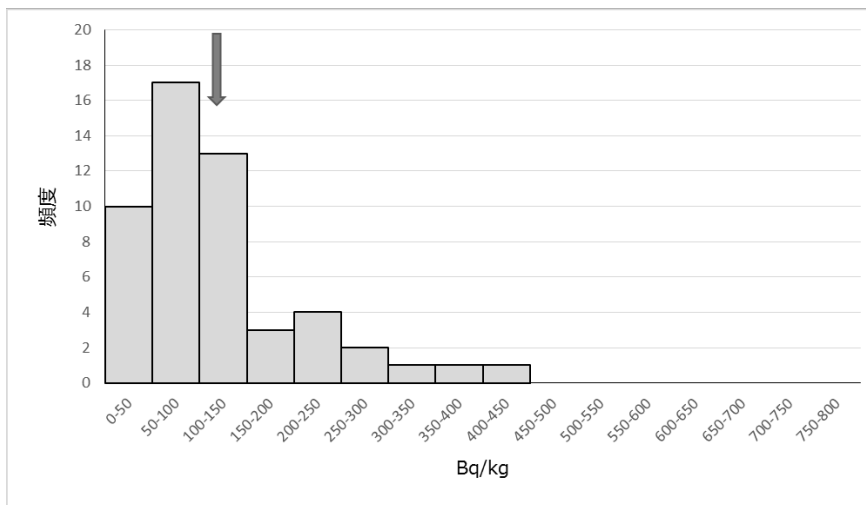
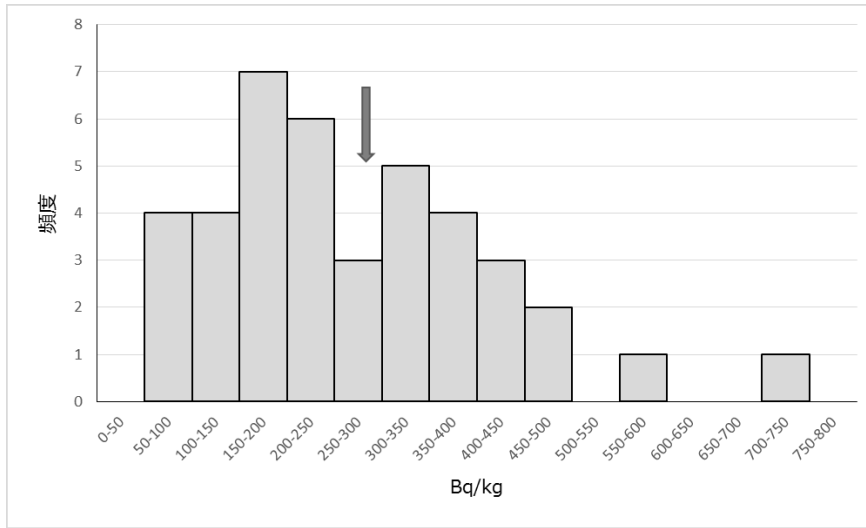


図1 干しシイタケロット中の放射性セシウム濃度のヒストグラム

表 1 干しシイタケロット中の放射性セシウム濃度分布のパラメータ

ロット	実測		フィッティング	
	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
1	278.3	163.6	268.4	156.0
2	120.9	90.9	122.1	98.1
3	102.1	91.7	103.2	96.7

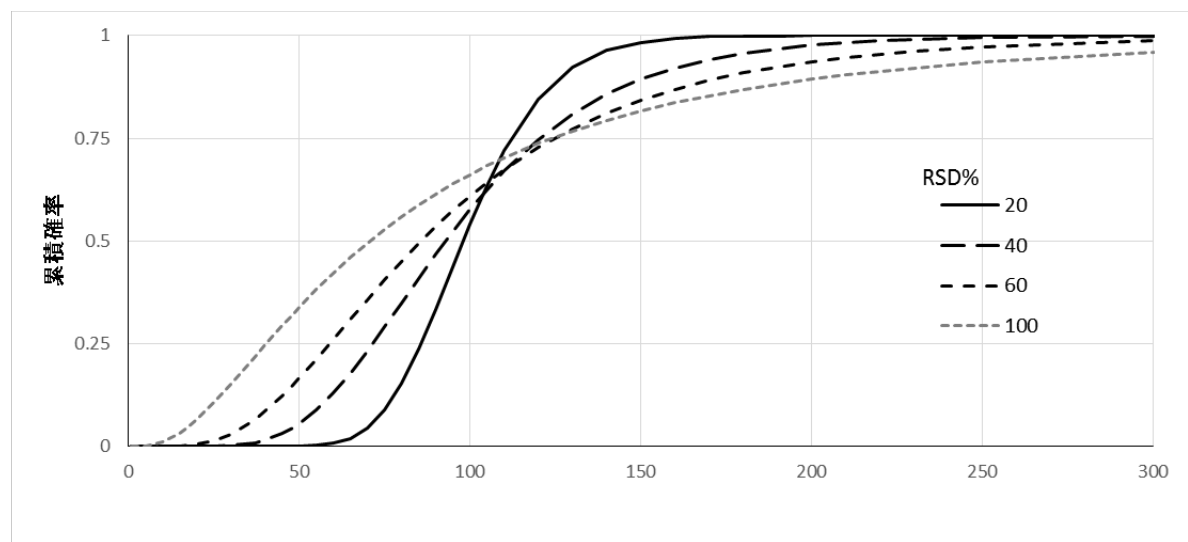
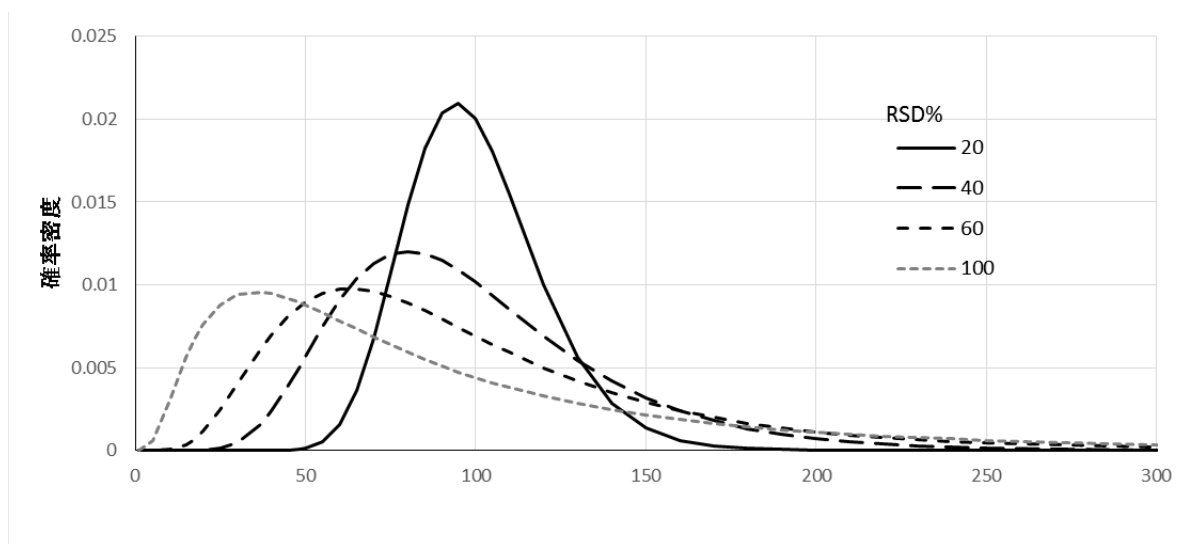


図2 対数正規分布の確率密度と累積確率
平均値は100とした。

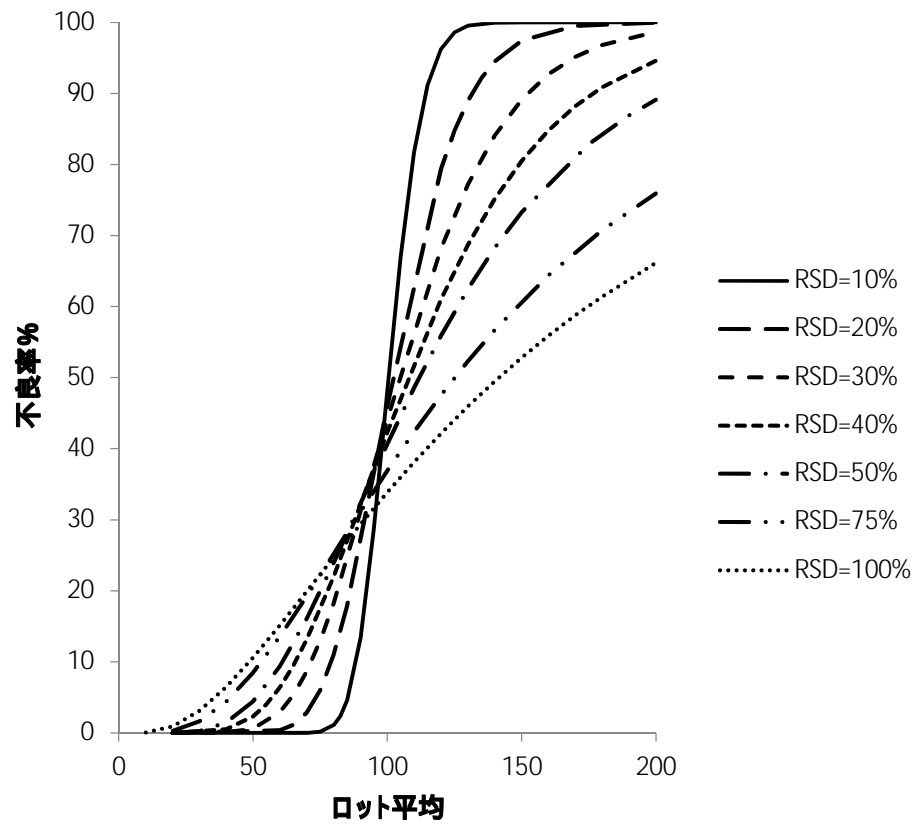
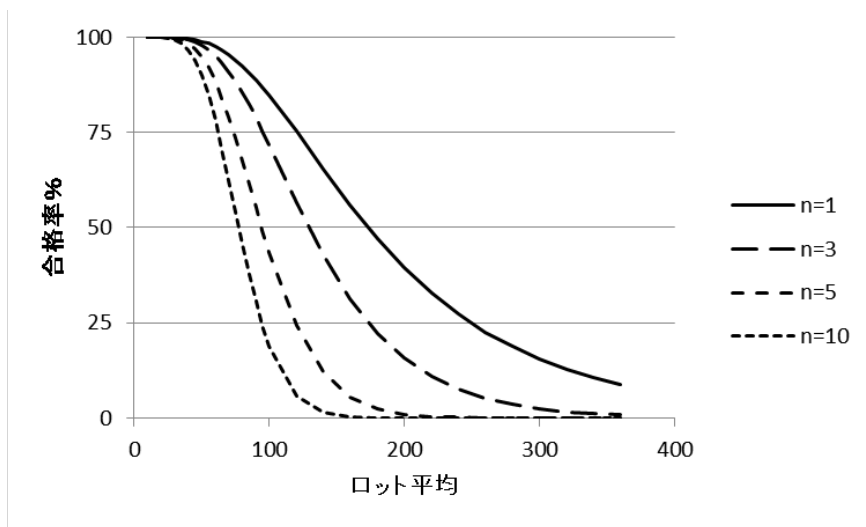
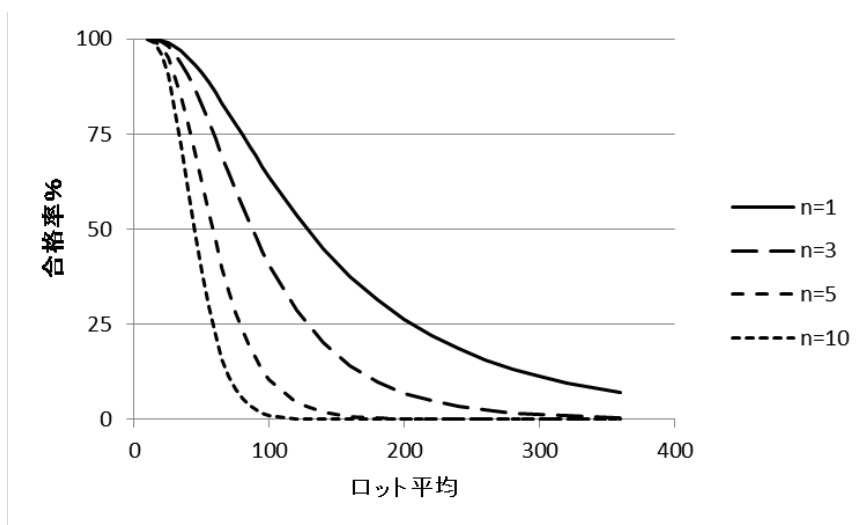


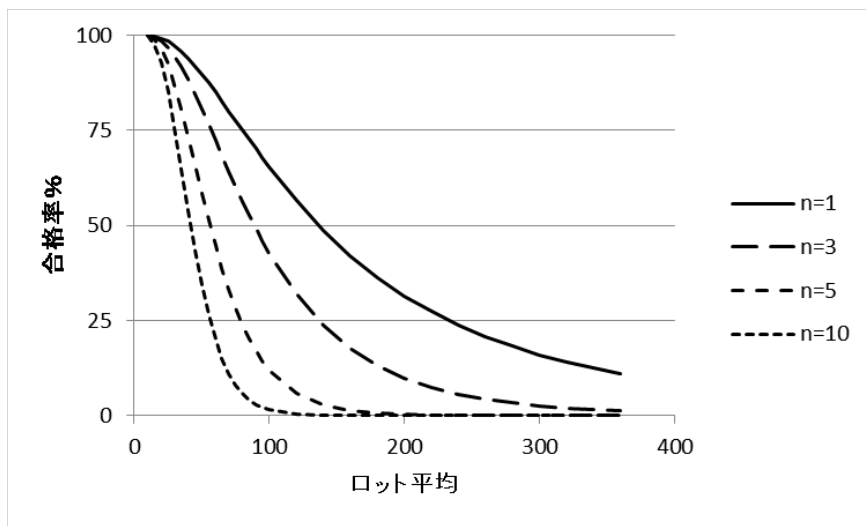
図3 対数正規分布の平均値と不良率



ロット1 RSD=58%



ロット2 RSD=80%



ロット3 RSD=94%

図4 シイタケロットからの計数基準型サンプリングのOC曲線

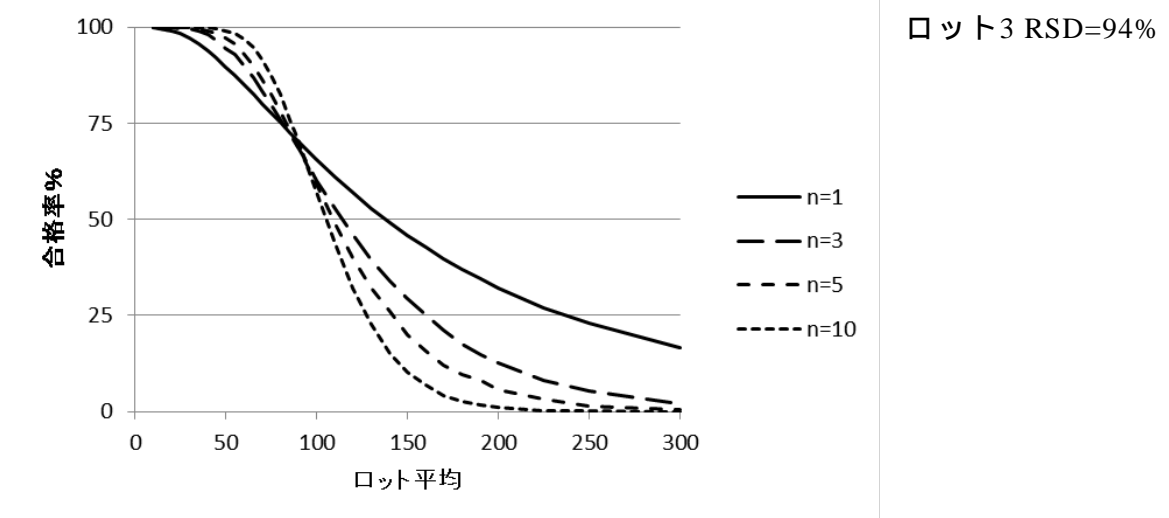
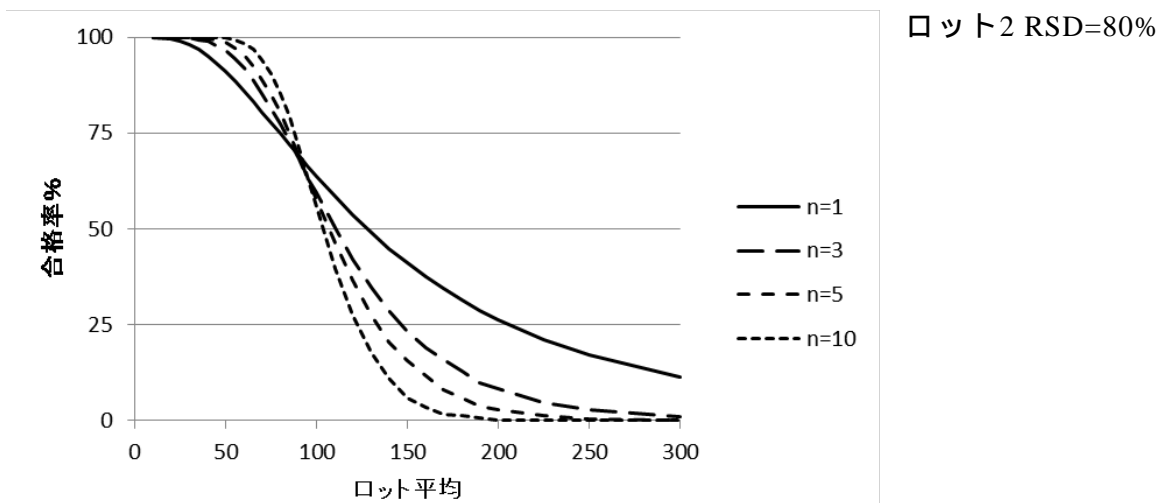
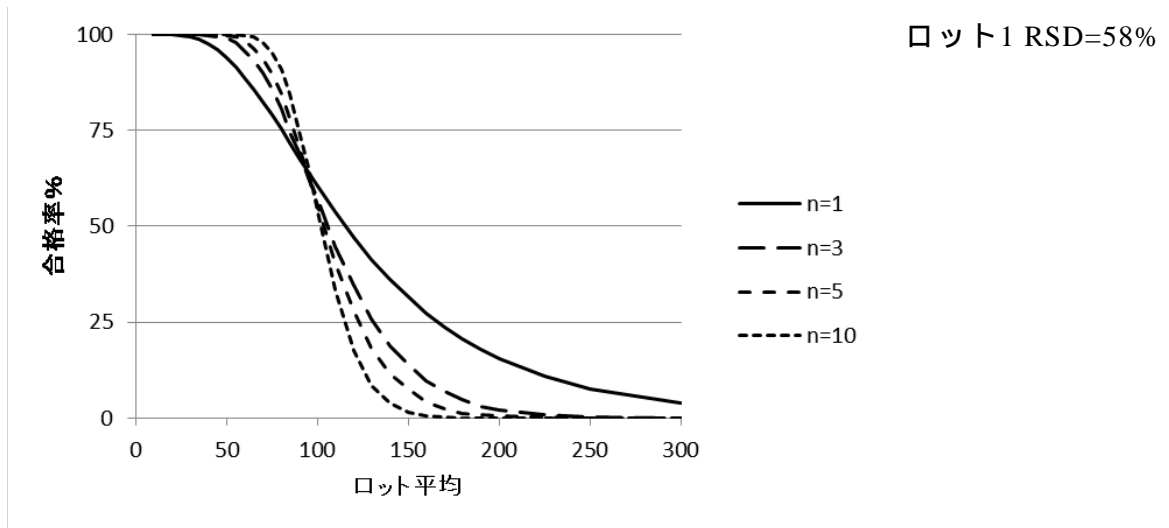


図5 シイタケロットからの計量基準型サンプリングのOC曲線

表2 シイタケロットからの計量基準型サンプリングで95%合格するロット平均(上)と10%合格するロット平均(下)

ロット	RSD%	サンプルサイズ			
		1	3	5	10
1	58	48	60	68	75
2	80	40	55	60	68
3	94	36	50	56	65

ロット	RSD%	サンプルサイズ			
		1	3	5	10
1	58	225	160	145	125
2	80	>300	190	165	142
3	94	>300	220	180	150