

Ⅱ. 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 24-26 年度厚生労働行政推進調査事業費補助金 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 分担研究報告書

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

食品中の放射性物質には成分規格が設定され、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、規格値に照らして判定を行う事が示されている。しかし、サンプリングに関しては、これまで国による明確な規定はない。食品全数の分析が実施できない、特に破壊分析をとまなう検査では、対象となる食品ロットを代表するサンプルを抜き取るためのサンプリングを規定することが不可欠である。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。

平成 24 年度は食品検査に使用される、適正なサンプリング規定の第一歩として、前提となるサンプリングの原理・原則等についてまとめた。また、食品衛生法及び関連文書により、これまでに示されているサンプリング規定の現状をまとめ、問題点等について考察した。さらに、国際的なサンプリングの水準について調査考察すると共に、成分規格との関連についても考察した。これらの結果、明らかとなった問題点を解決しつつ、原理・原則を踏まえ、他国での規定も参考にして、放射性物質検査のためのサンプリングを規定することが必要と考えられた。

平成 25 年度は、サンプリングを規定するにあたってロット中に想定すべき放射性物質濃度の情報を得る目的で、平成 24 年度に実施された放射性物質検査結果を集計し、放射性物質濃度の分布について考察した。また、食品ロット内の濃度に分布を想定しない（想定し得ない）場合に合意されうるサンプリング計画について国際的な規格等を調査し比較した。さらに、ロット内濃度の分布型を仮定し、それらロットを対象に上記合意されうるサンプリング計画を実行した場合の性能についてシミュレーション解析した。その結果、放射性物質検査結果の集計からは、ある特定の食品について、効率的なサンプリング計画を策定するために必要な濃度分布に関する情報を得ることはできなかった。

平成 26 年度は、それら情報の取得を目的として、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は対数正規型であることが明らかとなった。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

食品衛生法の目的は、飲食に起因する衛生上の危害の発生を防止し、もって国民の健康の保護を図ることである。この目的を達成するための方策の一つとして、有害な化学物質等を含有する上限の量が、個々の食品の成分規格として設定される。しかし、成分規格が設定されただけでは目的を達成できず、成分規格に定められた値（規格値）を超える量を含有する食品を排除し、規格値を下回る食品だけを流通させるための実行が不可欠である。検査は、科学的な証拠に基づき、成分規格に適合した食品だけが流通する状態を達成し、維持・管理するための、すなわち法の目的を達成するための実行手段である。

福島第一原子力発電所の事故以後、食品に含まれる放射性物質の上限量を規定する成分規格が設定された。この成分規格の設定に合わせ、現在までもすでに多くの検査が実施されている。検査は、サンプリング、分析、分析結果に基づく判定の3つの要素からなる。食品中の放射性物質の検査でも、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、規格値に照らして判定を行う事が示されている。しかし、サンプリングに関しては、これまで国による明確な規定はない。サンプリングは、統計学による「判定の誤りの確率」の考察を基本とし、実行性や国際的な整合性を踏まえ定められる。

本研究では、平成24年度には、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の策定の第一歩として、前提として踏まえるべ

きサンプリングの原理・原則をまとめた。また、これまでに策定され、他の成分規格項目の検査に用いられている国内外のサンプリング計画を比較し、適正なサンプリングのあるべき姿について考察した。

平成25年度は、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)放射性物質検査結果の解析による食品ロット内の放射性物質濃度分布に関する考察、2)食品ロット内の濃度に分布を想定しない（想定し得ない）場合に合意されうるサンプリング計画の調査・比較、3)正規型及び対数正規型をロット内濃度の分布型に仮定し、それらロットを対象に上記合意されうるサンプリング計画を実行した場合の性能のシミュレーション解析を実施した。

平成26年度は、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. 方法

1.1 サンプルングの原理・原則

Codex 分析・サンプルング法部会が作成し、2013年7月に開催される総会に承認を諮る予定の「Draft Proposed Principles for the Use of Sampling and Testing in international Food Trade」(REP13/MAS Appendix II)に記載された原理・原則について考察した。

1.2 食品衛生法によるサンプルングの規定

食品衛生関係法規集を使用し、食品衛生法、食品衛生法施行規則、食品衛生法施行令、及び関係する厚生労働省令、また通知等を対象に、「検査」、「サンプルング」、「検体採取」等をキーワードに検索した。検索の結果得られた上記キーワードを含む文書を整理の上、食品衛生法によるサンプルング規定の現状を考察した。

1.3 他国における成分規格設定とサンプルング規定の関係

既存の成分規格と検査で実施する事が規定されているサンプルングとの関係について、各種欧州文書を整理した。米国農務省が策定しているサンプルングのためのハンドブック、Codex ガイドラインである CAC/GL33 「Recommended methods of sampling for the determination of pesticide residues for compliance with MRLs」も参照した。これら文書の整理に基づき、成分規格設定とサンプルング規定との関係及び、現実を踏まえたサンプルング計画の策定について考察した。

2.1 放射性物質検査結果の解析

厚生労働省のHP上の平成24年度の放射性物質検査の結果をデータとし、食品種別に検査結果として報告された分析値の頻度を解析し

た。一定数以上の検査結果が報告されていることも考慮しつつ、食品種には、野菜、果実、穀類、きのこ類、海水魚、淡水魚を選択し、全国の検査結果と原子力発電所の事故の影響を強く受けていると考えられる福島県とを分けて解析した。

2.2 食品ロット内の濃度分布を想定しない(想定し得ない)場合に合意されるサンプルング計画

物質濃度を取り扱うサンプルング計画の策定には、対象となる食品ロット内での対象物質濃度の分布に関する情報が不可欠である。しかし、必ずしもその情報が得られるとは限らない。そのため、食品ロット内の物質濃度に特定の分布型が想定できない場合に、合意に基づき用いる事が指示されたサンプルング計画を Codex ガイドライン並びに規格(CAC-GL33 並びに CAC STA 193) 及び EC Commission directive 2002/63EC から抜粋し、比較した。

2.3 食品ロット内に特定の濃度分布を想定し得ない場合に用いるサンプルング計画の性能

Codex ガイドライン等の比較により明らかにした、食品ロット内に特定の濃度分布を想定し得ない場合に合意に基づき用いるサンプルング計画の性能を評価した。

3.1 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10kg(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つの試験室試料を調製した。各ロットから 40~53 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。

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。

3.2 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。

C. 結果及び考察

1.1 サンプリングの原理・原則

Codex 委員会では、消費者の健康危害の防止と、国際的な食品取引の公平性の確保を目的に、様々な規格やガイドラインを策定し、各国政府に公開している。本研究で考察したサンプリン

グの原理・原則を示すガイドライン「食品の国際的な取引におけるサンプリングと試験の使用原則」は 2011 年に、Codex 分析・サンプリング法部会において検討が開始されたもので、2013 年の Codex 総会において承認が諮られ、Codex ガイドラインとして発行されれば、サンプリングと試験の使用の原則に関して理解すべき内容の指標となり、少なくとも Codex 加盟国にとっては、検査において踏まえるべき前提となる (注：CAC/GL83-2013 として発行された)。そこで、この文書に含まれる 7つの原理・原則を取り上げ、補足する。なお、検査の理想は「誤りなく判定をすること」であり、サンプリングの理想は、「誤りのない判定を可能とするサンプルを提供する事」である。しかし、現実には不可能であることをまずは理解し、①許容できる誤りの確率を決めること、有害物質が対象の場合には、②許容できる誤りの確率をより小さくできるよう、可能な実行内容を決めること、が命題となる。

1.2 食品衛生法によるサンプリングの規定

現在の食品衛生法に関連する文書に示されたサンプリングの規定には、一部を除き、1)検査対象がロットであることが明示されていない、2)「検体」、「試料」等サンプリングを規定する上で用いる技術用語が定義されておらず、整合していない、3)ロットからの一次試料の抜き取り数 (サンプルサイズ) が決められていない、4)縮分やコンポジットの指示が不明など、多くの問題がある。1.1 で考察したサンプリングの原理・原則を踏まえ、定義した適切な用語により明示的にサンプリングを規定することが必要である。その

際には、サンプルの取扱いなど、サンプリングに伴う注意事項をあわせて示すことも有効である。食品と有害物質等との組み合わせごとにサンプリングが明示的に規定され、体系的にとりまとめられることにより、サンプリング実施者間で実施内容が不一致となる事態が回避される。運用上は、検査の実施に先立ち、二者（二国）が使用するサンプリングに合意することが大事である。このような問題点や注意点を踏まえ、食品衛生法に基づくサンプリングが規定され、体系化され、さらには周知されることが必要である。放射性物質の検査に使用されるサンプリングについても同様である。

1.3 他国における成分規格設定とサンプリング法規定との関係

欧州における食品成分及び分析・サンプリング法を規格する文書3編を取り上げた。それらには、成分規格への適合を判定するためには、文書に規定されているサンプリングを実行すること及び、適合判定はサンプリングにより調製された試験室試料中の濃度に基づき行う事が、文書の目的とスコープとして明示されている。また、3つの文書には共通して、サンプリングの規定に必要な技術用語の定義が含まれている。これらの用語は、サンプリングの規定に不可欠であり、その使用に先立ち明確な定義を示し、理解を共有させることが、整合したサンプリング実行の基礎となる。

2.1 放射性物質検査結果の解析

平成24年度に実施された放射性物質検査の濃度のヒストグラムを作成した。

その結果、概観すれば、全国と福島県とで大きくパターンが異なる食品は、米を除いて認められなかった。今回実施した検査結果の解析からは、ある特定ロット内の濃度分布を推測することはできない。個々のロット内の濃度分布を知るためには、ロット平均値の高かった食品を選び、個々のロットから多数のサンプルを抜き取り分析する事を複数のロットに対して繰り返し行い、その結果からの推定が必要である。そのような推定がされるまでは、食品ロット内の放射性物質濃度の分布には想定がない（想定し得ない）として取り扱わざるを得ない。

2.2 食品ロット内の濃度分布を想定しない（想定し得ない）場合に合意されるサンプリング計画

Codex ガイドライン並びに規格及び EC Commission directive 2002/63/EC から、特定の分布型を想定せず合意によって決められているサンプリング計画を抜粋して比較した。端的に言えば、ロットサイズに応じてサンプルサイズを1、3、5、10にすることだけが決められており、この計画の実施による生産者危険や消費者危険は不明である。しかし、このサンプリング計画が合意に基づき使用されることで、検査実施者間での不整合が回避される。

2.3 食品ロット内に特定の濃度分布を想定し得ない場合に用いるサンプリング計画の性能

特定の分布型を想定せず合意によっ

て決められているサンプリング計画（サンプルサイズをロットサイズに応じて 1、3、5、10 とする計画）の性能を、ロット内の濃度分布に一定の幅を持つ正規分布もしくは対数正規分布を仮定した場合をシミュレーションすることにより解析した。その結果、ロット内濃度の分布型が正規分布あるいは対数正規分布であり、その分布の幅が相対標準偏差として 10～30%である場合には、サンプルサイズが 10 以下であっても、ロット平均値の±10%の範囲に、50%以上の確率サンプル平均が含まれることが本シミュレーションにより示された。

3.1 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（ $n=40\sim 53$ ）は、3つのロット間で異なった。また、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た。これらのことから、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た。そこで、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。以上の結果から、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。これらのことから、分布型は対数正規分布とし、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。

3.2 対数正規分布からのサンプリングの性能

ロット平均を 100、RSD がシイタケロットから求められた上述の値となる対数正規分布をもつモデルロット 1～3 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。

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 1 に示す。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。

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 2 に示す。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。

D. 結論

食品衛生法により、放射性物質含有上限量が食品の一般成分規格に定められた。平成24年度は、この成分規格への適合判定を目的とした検査に使用される、適正なサンプリング規定の第一歩として、前提となるサンプリングの原理・原則についてまとめた。また、食品中の放射性物質に係る検査は、食品衛生法に基づき実施されることになるため、同法及び関連文書により、これまでに示されているサンプリング規定の現状をまとめ、問題点等について考察した。さらに、検査は輸出入時にも実施されると考えられることから、他国で用いられているサンプリングについても調査し、国際的なサンプリ

ングの水準について考察すると共に、成分規格との関連についても考察した。その結果、食品衛生法及び関連文書により指示されるサンプリングの規定には、多くの問題が認められた。これらの問題点を解決しつつ、原理・原則を踏まえ、他国での規定も参考にして、放射性物質検査のためのサンプリングを規定することが必要である。適切なサンプリングは汚染物質の分布に依存することから、次年度は、ロット中に想定すべき放射性物質濃度の分布について検討した。

平成25年度は、前年度に自治体等で実施された放射性物質検査の結果を、食品種また全国と福島県とで区別し集計した。その結果、これまでの検査結果を活用し、規格値を超える蓋然性が高い食品種を選択の上、その食品に対する検査頻度を上げた方が、法律の主旨に叶ったより効率の良い検査になるだろうことが示唆された。しかし、ある特定の食品について、効率的なサンプリング計画を策定するために必要な濃度分布に関する情報を得ることはできなかった。

特定の分布を想定しえない場合に合意により採用するサンプリング計画により指示されるサンプルサイズが、1、3、5、10であることが明らかとなった。このサンプルサイズに従い、仮定した一定の分布をもつロットから抜き取られるサンプル平均をシミュレーション解析した。その結果、仮定した分布型と分布の範囲であれば、得られるサンプル平均がロット平均 $\pm 10\%$ の範囲に50%の確率で含まれるようにするために、十分な性能を有していることが示された。ロット平均値に対し、どの程度の正確な判定を可能とするサンプル平均を必要とするのか、またそのサンプル平均が得られる確率を

どのくらいに設定すべきなのかは、今後の検討課題である。また、今回のシミュレーションはあくまで仮定した分布に対して行われたものである。放射性物質に汚染されたロット内の実際の濃度分布を知ることが、今後不可欠である。

これらの知見を踏まえ、平成 26 年度は濃度分布情報を得るために、放射性セシウムに汚染された干しシイタケを測定し、ロット中の濃度分布が対数正規分布に従っており、その RSD は 50%以上であることを明らかにした。

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。

E. 研究発表

1. 論文発表

1) Takahiro Watanabe, Rieko Matsuda; Effect of the Distribution of Analyte Concentration in Lot, Sample Size, and Number of Analytical Runs on Food-Testing Results. J. Agric. Food Chem. 60(42), 10702-8(2012)

2. 学会発表

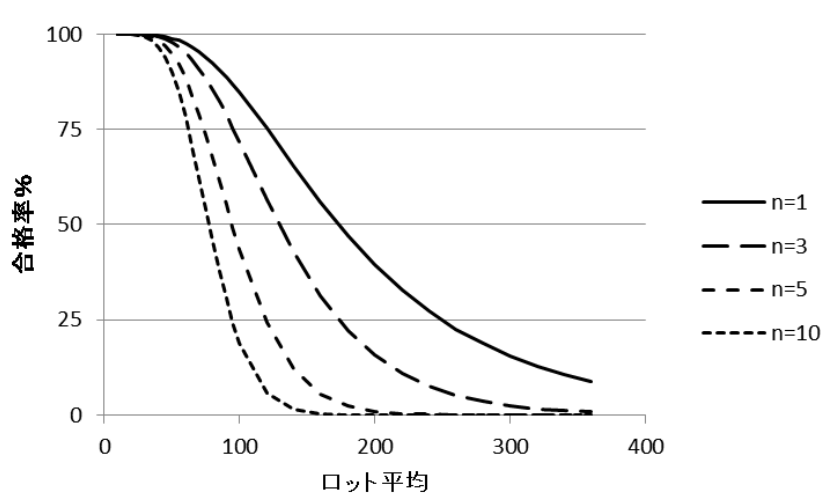
1) 渡邊敬浩、片岡洋平、松田りえ子; 分析用サンプルの均質化が分析結果の変動に及ぼす影響、第 49 回全国衛生化学技術協議

会年会 (2012 年 11 月、高松市)

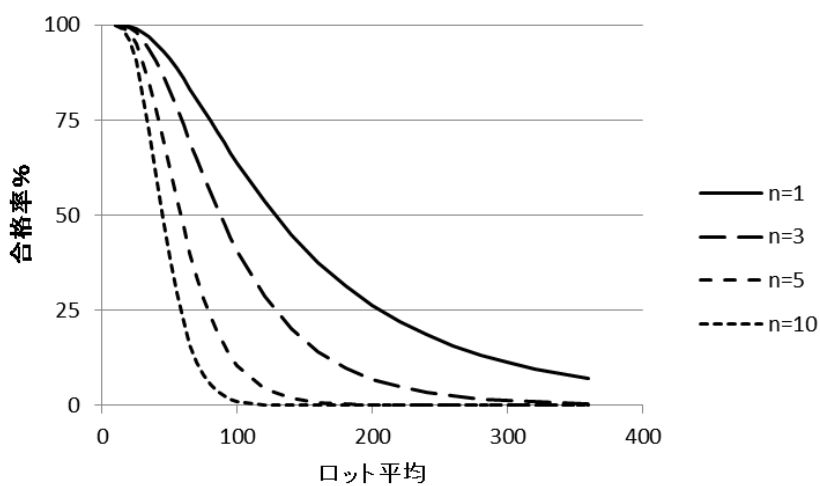
- 2) 渡邊敬浩、松田りえ子; 非対称分布からのサンプリングと検査結果との関係のシミュレーションによる解析、第 49 回全国衛生化学技術協議会年会 (2012 年 11 月、高松市)
- 3) Yoshiki Tsukakoshi, Takahiro Watababe, Satoko Yokota, Takanori Omori, Masataka Satomi, Hiroshi Ono, and Mitsuru Yoshida; Review of some Japanese studies regarding uncertainty arising from sampling from farm to fork. (2013 年 3 月、ハンガリー・ブダペスト)

F. 知的財産権の出願・登録状況

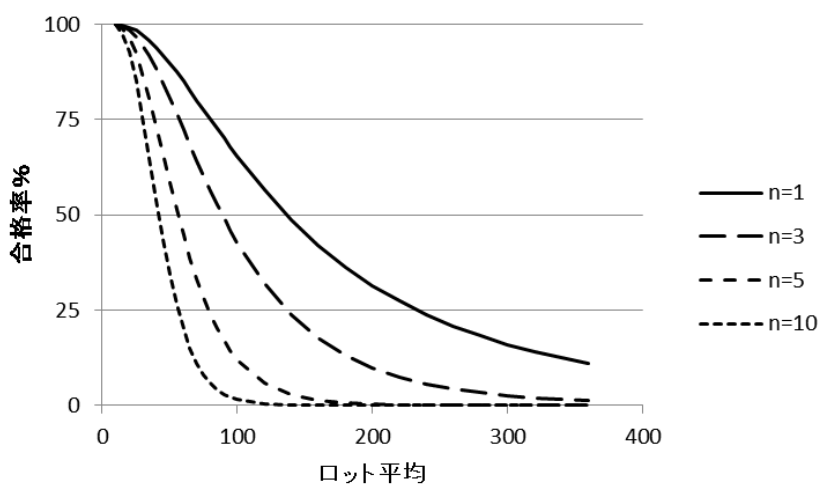
1. 特許取得
なし
2. 実用新案登録
なし
3. その他
なし



ロット1 RSD=58%



ロット2 RSD=80%



ロット3 RSD=94%

図1 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

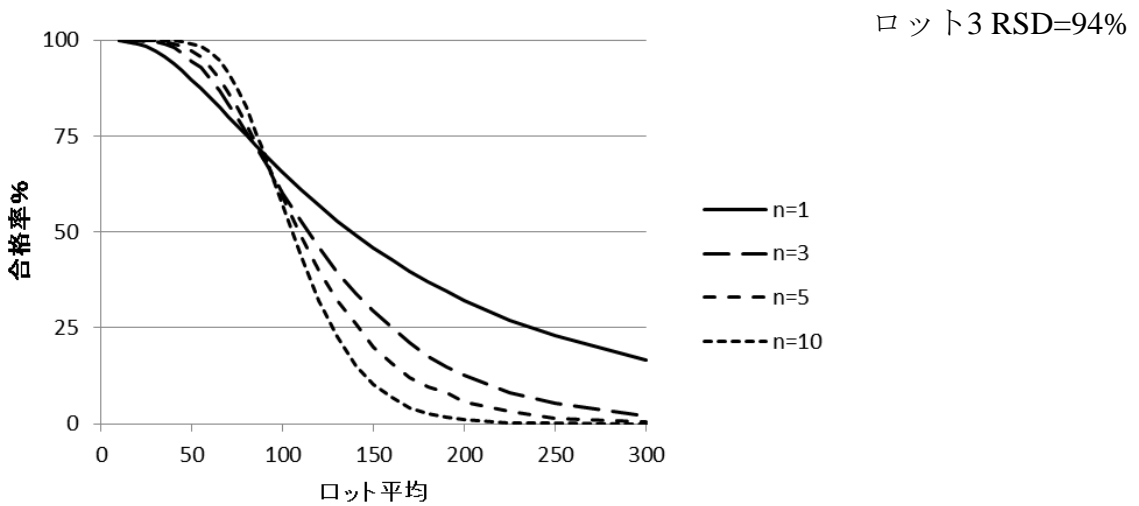
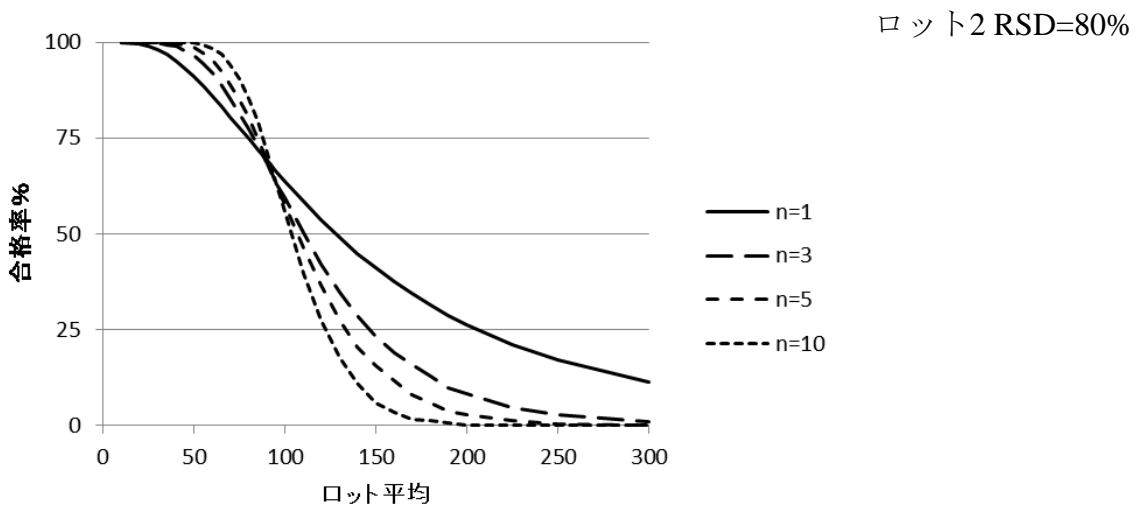
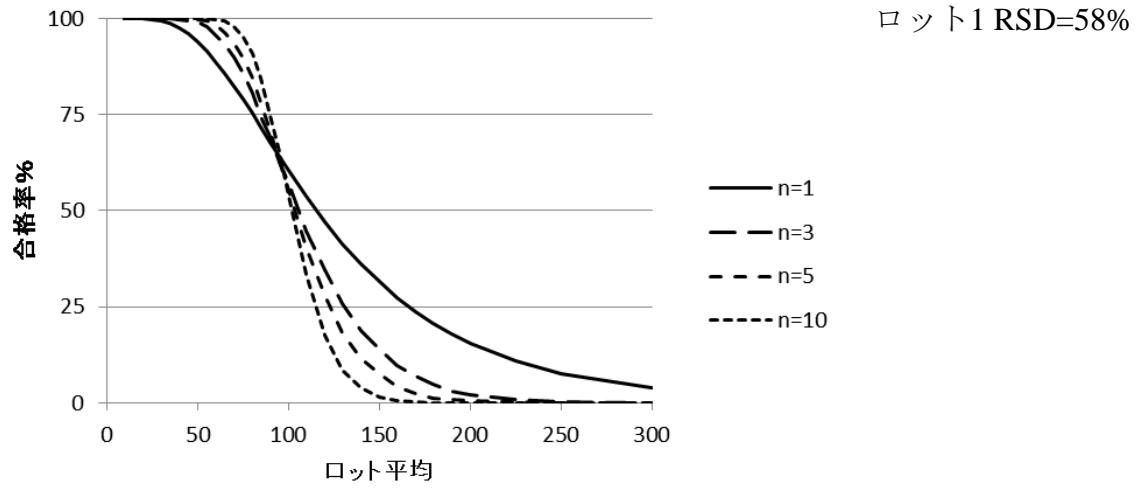


図2 シイタケロットからの計量基準型サンプリングのOC曲線