

Ⅱ. 分 担 研 究 報 告

食品中の放射性物質等検査システムの評価手法の検討

山田 崇裕

平成 29-令和元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)

食品中の放射性物質等検査システムの評価手法の開発に関する研究

分担研究報告書

食品中の放射性物質等検査システムの評価手法の検討

研究代表者 蜂須賀暁子 国立医薬品食品衛生研究所代謝生化学部第一室長

研究分担者 山田崇裕 近畿大学原子力研究所准教授

研究要旨

福島第一原子力発電所事故の影響による食品中の放射性セシウム測定について、近年生産サイドによる出荷前自主検査や住民が自家消費を目的として自家栽培した作物や採取した野生の動植物の測定に試料を破壊せずそのまま測定する非破壊式放射能測定装置が開発され利用されている。このような装置による測定は、設計上想定した試料の配置や放射性物質の分布のばらつきの範囲において測定を行うことが重要となる。本研究では、検査のサンプリング精度の重要因子である濃度分布の評価手法として非破壊式装置を用いた方法を含めて検討を進めた。

平成 29 年度は、(1) 非破壊式放射能測定装置の性能試験として非破壊式放射能測定装置の測定室内における検出効率分布の評価、及び (2) 実際に放射性セシウムで汚染した食品試料を用い、福島県内の市町村測定所に設置された 3 機種 of 非破壊式放射能測定装置による測定と Ge 検出器を用いた公定法による測定結果との比較検討を行った。この測定は測定データ数を確保するため、以後 2 年間継続して実施した。平成 30 年度は、新たに福島県会津農林事務所に設置されている非破壊式装置 1 機種を追加し、(1) の検出効率分布の評価を行うとともに、(2) の比較検討を行った。また、本装置では放射能濃度 100 Bq/kg 以下の福島県内で採取された実試料を用い基準値に対するスクリーニング検査への適用性について回帰直線の予測区間による方法を用いて検討した。令和元年度は、これまで検討に用いた 4 機種 of 装置のうち 3 機種を同一の野生キノコ試料を用いて (2) の検討を行うとともに、放射能濃度 100 Bq/kg 以下の実試料を用い基準値に対するスクリーニング検査への適用性について回帰直線の予測区間による方法を用いて検討した。

本検討により各装置による測定結果と Ge 検出器を用いた公定法による測定結果は良好な相関関係を示すことが実測により明らかになり装置の検出効率の形状依存の特徴を十分に把握し、変化の影響を受けにくい状況で測定を行えば、食品の汚染状況の大まかな把握には、非破壊式装置による測定は十分有効である可能性があることが示唆された。一方、非破壊測定では真度の低下傾向が観測され、さらに有意にばらつきが大きい試料や、Ge 検出器による測定結果と大きなずれがあるものが見られた。前処理を想定した食品中の放射性セシウムスクリーニング法の、非破壊式装置による検査への適用に関する検討

では、評価を行った 3 機種についていずれも適用条件であるスクリーニングレベル下限 50 Bq/kg を満足したものの、本結果は暫定的にそれぞれ回帰直線の傾きを考慮して補正の上評価して得たものであり、このような評価手法の妥当性は、各装置の放射能濃度への換算係数の見積もり手法の信頼性検証に関する今後の更なる詳細な検討により確保されることが望まれた。スクリーニング法の準用にあたっては、検査の信頼性を確保する上で、換算係数（校正定数）にあたるこの傾きの適正評価にあたる真度に与える影響評価、試料中の放射性セシウム不均一分布が測定に及ぼす影響の評価を具体的に適用する試料種を選別し、試料の質量、ジオメトリ等の許容範囲の詳細な決定を行い、試料中の放射性セシウムの不均一度の影響に関し定量的評価を行うことで、試料種別、不均一度に応じた、より効率的なサンプリング手法を含む食品検査手法を本研究成果と今後のより詳細な検討によって科学的根拠に基づき確立することで、モニタリングの加速化につながれることが期待できることが見込まれた。

研究協力者 八戸真弓 農業・食品産業技術総合研究機構 食品研究部門食品安全研究領域
食品安全性解析ユニット長
熊田 淳 福島県林業研究所 副所長
山田寿彦 福島県林業研究所 主任研究員

A. 研究の背景と目的

食品中の放射性物質の測定は、従来 Ge 検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーによる方法が一般に用いられている。環境中に存在する放射性核種を効率よく、そして正確に分離・定量するための方法として、環境試料等の放射能分析・測定方法の基準となる「放射能測定法シリーズ」[1]が国（文部科学省及び原子力規制庁）により制定され、公定法として我が国において広く用いられている。また、食品中の放射能試験法としては、「食品中の放射性物質の試験法について」[2]が発出され、ここには食品衛生法に基づく食品検査のための測定に関する要件が規定されている。いずれの公定法においても、従来の γ 線スペクトロメトリーによる方法においては、測定試料中の放射性物質が適切な前処理により均一化[3]されていることが、その正確性及び信頼性の確保のため

に重要となる。また、食品の測定では、可食部の放射能濃度を評価する必要がある。さらに、福島第一原子力発電所事故以降、食品検査の迅速化に対応するため、スクリーニング検査として必要とされる性能を規定した「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」[4]が発出され、シンチレーション式スペクトロメータも検査に広く用いられるようになった。このスクリーニング法においても測定試料中において放射性物質が均一に分布していることが前提であり、その均一性の程度が測定に及ぼすばらつきを考慮した設計となっている。国際標準化機構が食品などに含まれる放射性物質の迅速スクリーニング法を定めた規格 ISO19581[5]も同様である。一方で、生産サイドによる自主検査においては、スクリーニングを目的に玄米のように比較的均質化を図りやすい特定の試料を対象とし

て、試料を破壊せずそのまま測定するための装置を用いた出荷前検査が行われるようになった。また、このような非破壊式放射能測定装置(以下、非破壊式装置という。)は、様々な試料の特性に応じた測定器が開発され利用されている。さらに、住民が自家消費を目的として自家栽培した作物や採取した野生の動植物の測定に対応した測定器も開発され、試料を破碎せずそのまま測定できることから広く利用されている。このような試料を破碎して均質化せずそのまま測定する場合には、検出器の複数化、大型化などにより試料の不均質性の影響の低減化が図られているものの、設計上想定した試料の配置や放射性物質の分布のばらつきの範囲において測定を行うことが重要となる。そこで本研究では、検査のサンプリング精度の重要因子である濃度分布の評価手法として非破壊式装置を用いた手法について、その測定の正確性の実態を実試料の実測により明らかにし、検査への適用に対する課題とその科学的な解決方法を明らかにすることでモニタリングの加速化に資することを目的に研究を進めた。

B. 非破壊式放射能測定装置の概要

本研究に用いた非破壊式装置は、自家消費の自家栽培作物や採取した野生の動植物の測定などに用いられている。この装置は、住民から持ち込まれるあらゆる種類の食品の種類、形状、量などを想定した設計であることが特徴である[6][7][8]。本装置では試料の前処理を行わず、比較的大量の試料を一度に測定できる、試料を出荷形態のまま測定できる、といった利点から、検査の効率化・合理化、出荷前の全数検査を目的と

した装置の利用も試みられている。

γ 線スペクトロメトリーにより食品中の放射能の測定を行うには測定対象となる核種の γ 線のエネルギーに対する検出効率を標準線源によって予め得る必要がある。検出効率は γ 線のエネルギーに依存する他、試料と検出器の幾何学的条件によっても変化する。即ち、検出効率は試料の形状や測定位置に依存するため、標準線源と同じ形状の容器に、標準線源と同じ容量の試料を充填し、標準線源で校正した位置と同じ位置で測定する必要がある。また、体積状の試料は、体積中の線源位置によって検出効率が異なり、体積状の標準線源によって得られる見かけの検出効率はいわば各点の検出効率の平均値であることから、体積中の放射能の分布は均一であることが前提となる。非破壊式装置であっても測定の基本原理に変わりはないが、一般に非破壊式装置では複数の検出器配置、大型化や複数検出器の利用による高効率化が図られている。このことは非破壊式装置による測定の信頼性を確保する上で極めて重要となる。つまり、測定試料に対して、検出器が十分に大きい場合、線源と検出器との立体角はほぼ 2π となり、線源の位置による検出効率の変化が少なくなる。先にも述べたように γ 線スペクトロメトリーによる放射能測定の場合は、標準線源と同じ形状の容器に同じ容量の試料を詰めて測定することで、標準線源により得た検出効率が適用でき、標準線源一検出器間の幾何学的条件と異なる測定条件になることが誤差となる。しかしながら、大型検出器を用いることで幾何学的効率を高め、線源位置による検出効率の変化を少なくすることが出来れば、試料の形状の違いや試

料中の放射性物質の不均質性による検出効率の変化は小さく出来、ある程度のばらつきの幅の範囲内での測定が可能になると考えられる。測定対象とする試料の種類は様々であり、たとえ試料の形状の違いや試料中の放射性物質の不均質性による検出効率の変化を小さく出来たとしても、測定試料の検出効率を如何に正確に決定できるかが測定の信頼性の上で重要となる。これを達成するために、様々な形状の標準試料によって検出効率を求める、試料の種類によって、試料質量から試料の嵩を推定し、試料の種別に決められた検出効率－試料嵩（質量）関数から近似的に検出効率を求める方法などがとられている。ただ、依然として試料中の放射性物質の不均質分布に対しては、その程度に幅はあるにせよ誤差を生む要因となる。例えば大きな誤差要因となりうる極端な放射性セシウムの偏在に対して、多数の検出器を組み合わせた装置により、そのうちの一つの検出器での計数率が他の検出器の倍以上計数があった場合に異常判定を出すように措置される装置もある[6]。

以上のように、非破壊式装置では、装置のハード面においては、検出器の大型化、複数検出器の使用による試料－検出器間の大立体角化によって幾何学的効率を高めることが装置の想定する試料形態及び形状と実際の試料形態及び形状の差に起因する測定誤差の軽減につながる。ソフト面では、解析手法は装置によって様々であるが、いずれの手法もいわば近似的に試料の検出効率を求めることとなり、如何に設計上想定する範囲内で実際の測定が行われるようにするか、ユーザインターフェースの設計も含めて重要となる。

なお、各装置に備わったこのような放射能測定のアлゴリズムはそれぞれ異なり、原則その詳細は公開されていないことから、本研究では各装置の取扱説明書に従った操作と得られる出力値による評価を行った。

C. 実験方法

以下の方法で実験を行った。

(1) 非破壊式装置の測定室内における検出効率分布の評価

非破壊式測定における試料中の放射性物質分布の影響を評価することを目的とし、平成 29 年度及び 30 年度に表 1 に示す装置のうち、市販の非破壊式装置「そのままはかる NDA」(形式：AFT-NDA2)、「レギュームライト」(形式：FD-08Cs1000-1) 及び「簡易検査装置」(形式：Hitz) を用いて、試料測定室内における検出器に対して水平方向(XY 平面)及び検出器に対して鉛直方向(Z 方向)における ^{137}Cs 検出効率分布について測定により検証した。Z 方向については、測定室底面及び鉛直方向に底面からの高さ 0, 30, 60, 90, 150mm における分布を取得した。Z 方向の線源位置決定及び線源配置には、測定室底面の大きさに一致した厚さ 30mm のスポンジ板(密度：約 0.02gcm^{-3}) を重ねて用いた。線源は点状の ^{137}Cs 密封標準線源(日本アイソトープ協会製 放射能ガンマ標準線源 線源コード：CS407, 10mm ϕ \times 6mm) を用いた。

(2) 非破壊式放射能測定装置による測定と Ge 検出器を用いた公定法による比較検討

平成 29 年度より継続して福島県内において自家消費野菜等の放射能検査を行っている市町村測定所に住民から持ち込まれた試料のうち、非破壊式装置による測定結果

が 50Bq/kg 以上であり、かつ持ち込んだ住民から本研究のための試料提供に同意が得られたものを用いた。本研究では、非破壊式装置は市町村測定所に配備されている表 1 の装置のうち Hitz を除く装置を用いた。測定は 3 回、その都度試料を混合、配置換えを行って実施した。配置等の影響について検討するため、測定の都度、試料の配置の様子を写真に記録した。非破壊式装置による測定を行った試料は、福島県内の専門分析機関に設置された校正済み Ge 検出器を用いて、文献[2]に準拠して放射能分析を行った。本研究においては、食品中の放射能測定のための試料前処理は、文献[3]に準じて実施した。

平成 30 年度は福島県会津農林事務所に設置された表 1 の Hitz 装置を用いた同様の比較検討も行った。試料は、測定ニーズの高い福島県内で採取された野生キノコ類 33 検体を検討対象とした。さらに本検討では濃度 100 Bq/kg 以下の試料測定データにより、基準値 100 Bq/kg に対するスクリーニング検査への適用性について回帰直線の予測区間による方法を用いて検討し、予測区間の上限値が 100 Bq/kg の場合の予想される試料の放射能濃度の評価を試みた。

令和元年度は、表 1 の装置のうち FD-08Cs1000-1 を除く 3 機種を林業研究所の一室に設置し、実際に検査の対象候補である野生キノコ類を中心に試料収集を進め、想定する実際の検査と同じ条件での測定の比較検証を行った。また、これまでは機器毎に評価に用いる試料が異なっていたが、比較性を考慮して、令和元年度は同一の試料を異なる 3 機種で測定を行った。測定に用いた検体数は FF1、AFT-NDA2 及び Hitz

それぞれについて 171、155 及び 162 であった。測定は各 5 回、その都度試料を混合、配置換えを行って実施した。ただし、この作業は通常の測定作業で起こりうる範囲で林業研究所の測定員が実施した。試料はその全体形状を把握するため写真に記録した。平成 30 年度は装置の測定室内に配置した様子を上面から撮影したが、この場合、検出器と水平な面における試料の広がりや高さの把握は困難であったため、今回は卓上で試料上面及び側面から撮影した。非破壊式装置による測定を行った試料は、福島県農業総合センターに依頼し、校正済みの Ge 検出器を用いて、文献[2]に準拠して放射能分析を行った。本研究においては、食品中の放射能測定のための試料前処理は、文献[3]に準じて実施した。さらに 100 Bq/kg に対するスクリーニング検査への適用性について回帰直線の予測区間による方法を用いて検討し、予測区間の上限値が 100 Bq/kg の場合の予想される試料の放射能濃度を 3 機種について評価した。

(3) 試料固体中の放射性セシウム分布の把のためのイメージングプレート (IP) を用いた手法の検討

平成 31 年度及び令和元年度に非破壊式装置を用いた測定に影響を及ぼすと考えられる試料中の放射性セシウム不均一分布について、試料固体中の分布状況を把握するためのイメージングプレート (IP) を用いた手法について検討した。本検討では福島県内で採取されたシイタケ 7 個を用いた。本研究では試料を乾燥させ個々の試料を、シイタケの笠表面から垂直に約 5~7.5 mm

の厚さにスライスし、試料を IP 上に配置し露光させ、読み取り装置で放射線画像を取得、画像解析ソフトにより放射性セシウム分布の定量化を試みた。

D. 実験結果及び考察

(1) 非破壊式装置の測定室内における検出効率分布の評価

非破壊式装置では、検出器の直上に測定試料を配置するための測定室が設けられている。AFT-NDA2、FD-08Cs1000-1 及び Hitz によって得られた検出器直上の測定室面における検出効率分布を ^{137}Cs 点線源により得た。その結果、直行する X 軸において、すべての装置の検出効率は原点を中心としたガウス関数にほぼ近似でき、良好な対称性が確認できた。3 機種の特徴を比較すると、検出器の種類及びサイズがほぼ同じ FD-08Cs1000-1 と Hitz 装置の特性は一致し、これら 2 機種よりも検出器サイズの大きい AFT-NDA2 は、検出器中心からの距離が大きくなるに従って検出効率が低下する傾向がより他の 2 機種と比較し緩和される上、より高い検出効率が得られることが明らかになった。また X 軸方向 r 、Y 軸方向 0 、高さ h における検出効率 $\eta(r, 0, h)$ については、X 軸上での原点からの正方向への変化が、高さ h が高くなるに従い、各 h における原点における効率に対して変化が緩やかになることが確認できた。FD-08Cs1000-1 及び Hitz のデータを AFT-NDA2 のデータと比較すると、FD-08Cs1000-1 及び Hitz の検出効率の X 方向への変化率はより大きい。このことは検出器サイズの違いによるものと考えられ、同一の試料を両者で測定した場合に、検出器

サイズが試料のサイズに対して小さいほど形状変化や放射性セシウムの不均一分布の影響を受けやすいことを裏付ける結果となった。

(2) 非破壊式装置による測定と Ge 検出器を用いた公定法による比較検討

平成 29 年度の検討において実験に用いた試料は、非破壊式装置による各測定所においてスクリーニングレベルの 50Bq/kg を超えたものを対象とし、用いた試料の延べ数は 91 試料となった。対象とした試料の種類内訳ではキノコ類がその約 65% を占めた。これは、本調査を 9 月～2 月にかけて実施したこと、キノコ類が比較的放射性セシウム濃度が高いと知られていることが要因と考えられた。比較検証の結果、非破壊式装置による測定結果と Ge 検出器を用いた公定法による結果との比は、キノコ類について FD-08Cs1000-1 で 0.98、AFT-NDA2 では 0.92 で両者の結果は良く一致した。ただし、いずれの結果も FD-08Cs1000-1 について 1 点、AFT-NDA2 について 3 点を外れ値として除いた結果である。FF1 については測定データが極めて少なく評価出来なかった。FD-08Cs1000-1 及び AFT-NDA2 の 2 種類の装置では良い相関が得られたが、詳細にデータを見ると、非破壊測定器による 3 回測定のばらつきが、核種の壊変率(放射能)に起因する統計的ばらつきと比較して極端に大きいものや外れ値を含む大きく値がずれているものが確認された。このことは、試料の置き方により検出効率が大きく変化する、あるいは測定への影響が大きい試料中の放射能分布の偏在や不均質があること推定された。これらの試料を写真で確認した

ところ、共通した特徴の一つとして、試料中の個々のキノコの大きさが大きく異なることが確認できた。このことは試料の置き方により検出効率が大きく変化したり、試料中の放射能分布の偏在や不均質性の要因となったりしうることから、本結果の大きなずれやばらつきは試料の特徴に起因するものであることが示唆された。

平成 30 年度は①山菜試料と②キノコ試料について以下のとおり検討した。

①山菜試料

本検討では FD-08Cs1000-1 及び AFT-NDA2 のそれぞれに 12 試料及び 13 試料を用いた。FF1 について得られたデータは 3 試料に留まった。平成 29 年度のキノコ類の結果と同様に FD-08Cs1000-1 及び AFT-NDA2 と Ge 検出器との両者の測定結果は良好な相関が得られ、それぞれの回帰直線 ($y=a+bx$) は、FD-08Cs1000-1 ($a=40.2\pm 87.8, b=1.15\pm 0.06$)、AFT-NDA2 ($a=-15.7\pm 37.7, b=0.97\pm 0.05$) であった。ただし、Ge 測定値との比が 0.7~1.3 を超えるもの及び濃度が 5000Bq/kg を超えるものは相関分析では外れ値として処理した。このような Ge 検出器の測定結果との大きな乖離は平成 29 年度のキノコ類の測定においても観測された。Ge 測定値との比が 0.7~1.3 を超えたものは、FD-08Cs1000-1 及び AFT-NDA2 のそれぞれで、6 試料及び 5 試料に及んだ。これらは特定の種別の試料に見られた訳ではなく、原因究明及び傾向分析には試料の個別的な放射性セシウム分布の分析、さらに多くの試料の分析を要することが見込まれた。検査におけるこのような試料の取り扱い是非破壊式装置を用いた測定における共通的な課題であることが示唆さ

れた。

②キノコ試料

平成 29 年度に FD-08Cs1000-1 及び AFT-NDA2 の測定に用いたキノコ類試料は、FD-08Cs1000-1 及び AFT-NDA2 それぞれに対して 9 件及び 17 件であった。平成 30 年度は新たに Hitz 装置についてキノコ試料 33 検体を用いて Ge 検出器との測定結果の比較を行った。Hitz 装置でも他の 2 機種と同様に良好な相関が得られ、回帰直線 ($y=a+bx$) は、($a=33.5\pm 11.4, b=0.94\pm 0.03$) であった。また、本検討に用いた試料の約半数の 16 検体の 100 Bq/kg 以下の試料によって食品衛生法に定められた基準値 100 Bq/kg に対するスクリーニング検査への適用性について回帰直線の予測区間による方法を用いて検討した。その結果、予測区間の上限値が 100 Bq/kg の場合の予想される試料の放射能濃度は 48 Bq/kg となり、現在の試料の前処理を想定した食品中の放射性セシウムスクリーニング法におけるスクリーニングレベル 50Bq/kg 以上の条件を下回るもののほぼ適用条件を満足する結果となった。ただし、本装置を用いた試験条件は指定の容器に充填した状態によるものであり、実運用において容器に充填しない場合には容器を用いず評価する必要があると考えられる。

令和元年度の検討に用いた試料の種類と検体数を前項で示したが、各試料の放射能濃度分布は様々でこれらの中には実際に Ge 検出器の測定によって検出限界以下となったものも含まれていた。また、検出されても非破壊式装置の検出限界を下回るものも見られた。今回用いた検体のうち、10 Bq/kg を超える試料の種別数は 39 種、総数

129 検体であった。各非破壊式装置と Ge 検出器による測定結果の比較した結果、AFT-NDA2 及び Hitz 装置については、平成 30 年度までに得られた結果と同様に Ge 検出器と非破壊式との結果は高い精度 ($R^2=97\sim 98\%$) で回帰直線が得られた。FF1 は昨年度までも検証対象の装置としていたが、検証のための十分な試料数が得られていなかった。今回の検証によって FF1 についても他の 2 機種と同様に良好な相関関係を示すことが確認できた。一方で、これまでと同様に Ge 検出器による測定値との比較的大きなずれを示す測定結果も観測され、99% 予測区間を超えるものも見られた。また、全体として濃度が 3000Bq/kg を超える比較的高い領域で相対的なずれのばらつきの程度が大きい傾向が見られた。これは試料全体中の各個体の濃度さがより大きいことが 1 つの要因と考えられる。しかしながら、本検討では個々の試料内の放射性セシウム分布は調査していないため、実際のずれの定量的な検証は困難である。非破壊式装置における複数回測定のはらつきは放射能濃度にほぼ依存し、低濃度領域では濃度が上昇するに従いはらつきが小さくなり、そのばらつきの要因は放射性壊変の統計変動が支配的であることによることを示唆するものであった。一方で全範囲にわたってばらつきの大きい結果が散見された。このような場合にはこのばらつきは試料に起因する不確かさが支配的であることが見込まれ、観測された適合値とのずれの要因は試料の不定形性による検出効率の見積もりの誤差の他に、このような試料に起因する大きなばらつきもその要因の一つであると本結果から明らかになった。また、今回の結果では 3 機

種それぞれの回帰直線の傾きは、FF1、AFT-NDA2 及び Hitz それぞれに対して、0.78、0.68 及び 0.76 といずれの非破壊式装置の結果も Ge 検出器の結果よりも低めの評価となる傾向が見られた。特に AFT-NDA2 は平成 30 年度までの測定で得られた結果 (傾き 0.92 [9]) と大きく異なる結果となった。それぞれの装置では、換算係数は試料の種別や形状の選択及びその質量から見積もられることとなる。従って、個々の測定データで検査者により選択された換算係数に関連するパラメータが適切、かつ各装置のパラメータ設定が適正であれば、本結果の傾きは試料の種別には依存せず一定となることが見込まれる。このような評価傾向の原因解明については、実際に各測定器で見積もられた換算係数及びその評価方法などのより詳細な情報が必要であると考えられる。

令和元年度は 100 Bq/kg 以下の試料のデータによって、食品衛生法に定められた基準値 100 Bq/kg に対するスクリーニング検査への適用性について回帰直線の予測区間による方法を用いた検討も進めた。評価に用いた試料種別数は 22、検体数は 53 であった。その結果、換算したスクリーニングレベル 50Bq/kg に相当するスクリーニングレベルの 99% 予測区間の上限値は、FF1、AFT-NDA2 及び Hitz に対して、90、98 及び 84Bq/kg といずれも 100Bq/kg を下回る結果となり、現在の試料の前処理を想定した食品中の放射性セシウムスクリーニング法におけるスクリーニングレベルの適用条件を満足する結果となった。また、試料毎の検証としてデータ数が 7 で最多であったマツタケについて解析した結果得られた 99% 予測区間上限の換算値は 89 Bq/kg で他の種

別の試料を含めた結果とほぼ同じ結果が得られた。この 7 試料の検体質量は 248 g～800 g の範囲にあった。また、非破壊式測定 of 複数回測定における変動係数 (C.V.) は 0.10～0.23 であった。本結果は、このような条件が測定対象とする試料と合致するものであれば、スクリーニングレベルでの検査を、信頼性が確保された上で成立させることが出来ることが期待されることが見込まれるものであった。

なお、本結果では、いずれの装置においても 100 Bq/kg 超の検体についてスクリーニングレベル以下となるケースは確認出来なかった。このような検証は今回の測定により得た条件での偽陰性の発生が十分に抑制されていることを示す重要なデータとなり、評価の手法として有効であると考えられる。ただし、本研究での結果はすべて回帰関数によって非破壊装置の指示値を Ge 検出器相当値に換算したものであり、各装置の換算係数の正確性の確保については、今後のより詳細な検討が望まれた。

(3) 試料固体中の放射性セシウム分布の把握のためのイメージングプレート (IP) を用いた手法の検討

本検討で得られた IP 画像より 7 つのサンプルすべてで、乾燥シイタケ内の放射能の分布は均一ではなかった。本結果ではシイタケの笠部の端により高く局在することが分かった。画像解析ソフト (ImageQuant TL、GE ヘルスケア) を用いて、放射能が多く局在している端と中央部の強度を分析した結果、個々の椎茸の端部と中央部の放射能差は約 2.8～27 倍の差が見られた。また、試料 1 (DM1) と 5 (DM5) の試料内全体の分布状況の解析結果は乾燥したシイタケ

のそれぞれの放射性セシウムの内部分布パターンが異なる可能性があること示唆するものであった。

E. 結論

本研究では、検査のサンプリング精度の重要因子である濃度分布の評価手法として非破壊式装置を用いた方法を中心に検討を進めた。平成 29 年度より 3 年間、福島県内の市町村測定所に設置されている非破壊式装置を用い、Ge 検出器による公定法による測定結果の比較検証を行い、両者の良好な相関を確認するとともに、前処理を行わずに測定を行う故の試料に起因するばらつきが増大と予期せぬずれが起こりうることを明らかにした。これらの検討を踏まえ、最終年度は 3 種の異なる機種 of 非破壊式放射能測定装置による測定と Ge 検出器を用いた公定法による比較検討を、対象試料を野生キノコ試料に限定し、試料数を増やして実施した。その結果、いずれの機種も Ge 検出器による測定結果と良好な相関が得られた。ただ、それぞれの回帰直線の傾きは、FF1、AFT-NDA2 及び Hitz それぞれに対して、いずれも非破壊式装置の結果が、Ge 検出器の結果よりも低めの評価となる傾向が見られた。試料の前処理を前提としたスクリーニング法においては、負のバイアスは回避する必要がある。従って本結果のように回帰曲線の傾きが 1 を下回ることは許容されない。このことは放射能濃度への換算係数の適正化等の対処が必要であることを意味している。また、回帰式の y 切片が負の値をとることも同様に負のバイアスを意味する。この影響は、放射能濃度が低いほど相対的に影響が大きくなることに注意しなければ

ばならない。本結果ではいずれの装置でもスクリーニング法の性能要件は満足する結果であったが、本法は適切な校正による換算係数が得られていることが前提条件となっており、今回行ったような得られた回帰直線による換算が同法で必ずしも許容されているわけではない。今後、本データなどを基に実際に各装置で評価されている換算係数が検証され適正化されることが望まれる。

従前の結果より、非破壊式の測定では、試料の不定形性、試料中の放射性セシウムの不均一分布に起因する比較的大きなずれやばらつきが観測され、本結果でも同様の傾向がみられる。検査の信頼性を確保するには、このような例について個別的な詳細検討を行い、測定により起こりうるばらつきの範囲を評価する必要があると考えられる。そのためにより多くの試料の測定が求められる一方で、種別毎に多数の試料を取集するのは実際に容易ではない。また、高い優先度で検査対象の候補とされることが想定される試料は、そもそも試料の放射能濃度が低い(検出限界以下を含む)ものが多い実態もあることがわかり、このことは十分な数の実測データ収集を阻害する要因となりうる。従って、実際の検査への適応にあたっては、対象試料の範囲を決め、実試料を実測することを基本としつつ、試料種別固有の放射性セシウム分布特性を本研究で示したイメージングプレートを用いた手法などにより把握し、大きさ、形状の違いの幅を決め、その想定する範囲が装置の検出効率に及ぼす影響を計算や放射能が既知のファントム試料によって評価するなどの手法を取り入れることで実試料測定データの不足を補い、検査で起こりうる測定のばらつき範囲を科

学的に推定し、適用基準を決定することが有用と考えられた。

謝辞

本研究に際しては福島県消費生活課、同林業振興課及び福島県農業総合センターのご理解と多大なるご協力いただきました。一般社団法人福島県環境測定・放射能計測協会菊池美保子氏、朝倉由美子氏には福島県市町村測定所をはじめとする県内の調整・相談対応及び協会員の機器メーカーとの調整に多大なる労を取っていただきました。市町村測定所、林業研究所及び環境分析研究所の測定員の皆様には実作業において多大なるご協力を頂きました。また、多数の市町村住民の皆様から本研究の趣旨をご理解いただき、ご厚意で試料をご提供いただきました。本研究にご協力いただきました皆様にここに心より感謝申し上げます。

参考文献

- [1] 文部科学省・原子力規制庁 放射能測定法シリーズ
<https://www.jcac.or.jp/site/library/series.html> (2020/3/31 現在)
- [2] 厚生労働省, 食品中の放射性物質の試験法について, 食安発 0315 第 4 号 (2012)
- [3] 文科省編放射能測定法シリーズ 24 緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリのための試料前処理法
- [4] 厚生労働省, 「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」 (2012)
- [5] International Organization for Standardization, ISO19581 : 2017, Measurement of radioactivity -- Gamma

emitting radionuclides -- Rapid screening method using scintillation detector gamma-ray spectrometry (2017)

[6] 石井慶造, 食品中の汚染検査のための放射能非破壊検査装置, *Isotope News* No.729, 21-27 (2015)

[7] アドフューテック株式会社, 「そのままはかるNDA」の特徴・性能について, http://www.adfutek.com/image/pdf/Catalog_160108-2_AFTNDA2.pdf

[8] 科学技術振興機構, 先端計測分析技術・機器開発プログラム 放射線計測領域成果集 2015, 複雑形状食品の放射能検査装置の開発, 4-5 (2015)

https://www.jst.go.jp/sentan/result/pdf/Contributing_through_Innovation_2015.pdf

[9] T. Yamada, Keisuke Soga, Mayumi Hachinohe and Akiko Hachisuka, PERFORMANCE EVALUATION OF THE EQUIPMENT FOR MEASURING RADIOACTIVITY IN WHOLE FOODSTUFFS WITHOUT DESTRUCTIVE SAMPLE PREPARATION DEVELOPED AFTER THE FUKUSHIMA NPP ACCIDENT. *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 184, Issue 3-4, October 2019, Pages 355–358

F. 研究発表

1. 論文発表

[1] T. Yamada, Keisuke Soga, Mayumi Hachinohe and Akiko Hachisuka, PERFORMANCE EVALUATION OF THE EQUIPMENT FOR MEASURING RADIOACTIVITY IN WHOLE

FOODSTUFFS WITHOUT DESTRUCTIVE SAMPLE PREPARATION DEVELOPED AFTER THE FUKUSHIMA NPP ACCIDENT. *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 184, Issue 3-4, October 2019, Pages 355–358

2. 学会発表

[1] 山田崇裕, 蜂須賀暁子, 曾我慶介, 非破壊式食品放射能測定装置を食品中の放射性物質測定手法の評価 第55回アイソトープ・放射線研究発表会, (2018.7) 東京

[2] T. Yamada, K. Soga, M. Hachinohe and A. Hachisuka: Performance evaluation of the equipment for measuring radioactivity in whole foodstuff without sample preparation techniques after the Fukushima Daiichi NPP accident. 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas, (2018.9) Hirosaki, Japan

[3] 山田 崇裕, 蜂須賀 暁子, 曾我 慶介, 非破壊式食品放射能測定装置を食品中の放射性物質測定手法の評価 第56回アイソトープ・放射線研究発表会, 2019/7 東京

[4] T. Yamada, A. Hachisuka, K. Soga and Hachinohe, Adaptability evaluation of the food screening without destructive sample preparation to ISO 19581. 5th International Conference on Environmental Radioactivity, 2019/9

[5] M. Hachinohe, T. Yamada, A. Hachisuka, K. Soga, S. Horii, T. Miura Localization of radioactivity in dried shiitake mushrooms (*Lentinula edodes*). 5th International Conference on

Environmental Radioactivity, 2019/9

[6] 友岡 弓乃, 山田 崇裕, 山西 弘
城, 稲垣 昌代, イメージングプレートを用いたきのこ中の放射性セシウム分布測定とその定量解析に関する検討, 日本保健物理学会第 52 回研究発表会, 2019/12 仙台

G. 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

表 1 本研究に用いた市販の非破壊式放射能測定装置

装置名	形式	検出器の種類 及びサイズ	しゃへ い体	製造元
非破壊式放射能 測定装置	FF1	NaI(Tl) ϕ 5.08x5.08cm 7 本	鉛 50mm	日栄工業(株)
レギューム ライト	FD-08 Cs1000-1	CsI(Tl) ϕ 11.0 x 2.5cm	鉛 50mm	(株)テクノエックス
そのままはかる NDA2	AFT- NDA2	NaI(Tl) ϕ 12.7x12.7cm	鉛 35~ 50mm	(株)アドフューテック
簡易検査装置	Hitz	CsI(Tl) ϕ 11.0 x 2.5cm	鉛 50mm	日立造船(株)