## 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

#### 令和2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)

## 食品中の放射性物質検査システムの評価手法の開発に関する研究(20KA1010) 研究分担報告書

#### 「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、 同一の実試料を用いて異なる機種の非破壊式装置による測定と Ge 検出器を用いた公定 法による測定結果との比較検討を主に進めた。本研究では野生キノコ全 28 種 132 体及び ネマガリタケ 25 検体を用いて測定値を比較した。いずれの機種についても Ge 検出器の 測定結果と比較し、非破壊式装置による測定結果の多くで低めに評価される傾向が見ら れたが、両者間で良好な相関が得られた。また、約 20 Bq/kg を超える濃度範囲では、い ずれの機種でも非破壊式と Ge 検出器の結果との差は+30/-50%程度の範囲にあった。

さらにマツタケ試料について 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、99%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評価した。その結果、スクリーニングレベルは機 種によって異なり、35~50 Bq/kg 程度の範囲にあった。いずれの機種でも Ge 検出器の結 果との相関は良く、ばらつきも一定範囲に抑制されており、今回試験に用いた試料と測定 条件がほぼ同等の範囲にある試料に対してはこれらの装置で試料の前処理を伴う従来の スクリーニング検査とほぼ同等の性能での検査が可能であると考えられた。

なお、これらの研究成果は「非破壊検査法による食品中の放射性セシウムスクリーニン グ法 | に反映された。

研究協力者

八戸	真弓	農業・食品産業技術総合研究機構 食品研究部門食品流通・安全研究領域
		食品安全・信頼性グループ 主席研究員
山田	寿彦	福島県林業研究センター 主任研究員

- 笠原 航 福島県農林水産部林業振興課 主任主査
- 加藤 沙織 福島県農林水産部林業振興課 技師

## 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、食品の試験法としては、「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、試料を破砕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 料を破砕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 平成 29 年度よりこのような非破壊式測定 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に、非破壊式装置の測 定室内における検出効率分布の評価及び実 際に放射性セシウム濃度 50 Bq/kg 超の食 品試料を用いて、破砕等の前処理をしない 非破壊式装置について異なる機種の装置に 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証を行ってきた。そ の結果、これまでの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げら れることが期待できることが見込まれた。

そこで令和2年度は検査ニーズに基づき 優先対象試料5種(マツタケ、マイタケ、ナ メコ、ムキタケ、ナラタケ)を選定し、その 他の種別も含む野生キノコ全28種132体及 びネマガリタケ25検体を用いて非破壊式装 置による測定とGe検出器による公定法の 測定結果を比較した。また、非破壊式装置に よる測定とGe検出器による測定の両者のず れや大きなばらつきの原因解明のための解 析手法の検討を進めた。

## 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 費用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、検出器直上では線源と検出器との立体 角は 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-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あわせた

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一検出器間の大立 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 能測定のアル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

(1) 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

本研究においては、非破壊式装置の特徴 や測定原理を念頭に、3 機種の非破壊式装 置を用いて福島県内で採取した実試料を用 いて、破砕等の前処理をしない非破壊式装 置による測定と Ge 検出器を用いた公定法 による測定結果との比較検討を行った。

非破壊式装置を用いた研究では、福島県 内で採取された野生キノコ類 28 種類 132 検体、ネマガリタケ 25 検体を測定した。図 1 に本研究に用いたキノコ試料の種別と検 体数を示す。表1に用いた非破壊式装置(形

式:FF1、AFT-NDA2 及び Hitz)を示す。 比較性を確保するために同一試料をすべて の機種の装置で測定した。ただし、測定室の 大きさの制限により測定出来ないものは測 定可能な装置でのみ測定した。この制限に よってネマガリタケは Hitz を除く2 機種で 測定した。装置はすべて福島県林業研究所 内の一室に設置した。野生キノコの測定は 令和元年度までの結果を踏まえ4回、ネマ ガリタケの測定は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。 撮影は卓上で試料上面及び側面から書画カ メラを用いて図2のように撮影した。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]に準じて実施することとした。

(2) 試料中の放射性セシウム濃度分布測定 本研究では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、マツタケ試料 についてイメージングプレート(IP)を用 いた分布測定を行った。

試料中の放射性セシウム分布の把握イメ ージングプレート(IP)を用いた分布測定 では、福島県内で採取されたマツタケ試料 及びネマガリタケ試料を用いた。本研究で は試料を凍結乾燥させ個々の試料を、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した。また 部位別の濃度について Ge 検出器による測 定を行い、濃度分布の定量的把握を試みた。

## D. 実験結果及び考察

(1) 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

図3に図1に示した各試料のGe検出器 による測定値(放射能濃度)の分布図を示 す。200 Bq/kg以下の濃度範囲の拡大図(図 3-2)も併せて示した。前項で本検討に用い た試料の種類と検体数を示したが、図3の 通り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 て検出限界以下の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。これら(非破壊式 測定においては4回とも ND のデータ) は 解析の対象外とした。各非破壊式装置と Ge 検出器による測定結果との差の Ge 測定値 との比を図4に示す。ここでエラーバーは 複数回測定(NDを除く)に基づくこの比の 標準偏差を表す。この標準偏差は個別の試 料の重量と濃度に基づく放射能、すなわち 放射性壊変による計数統計の不確かさと試 料中の放射性セシウム分布と検出器の幾何 学的条件の再現性に主に依存することが見 込まれる。計数統計による不確かさは試料 中の放射能に依存し、20Bq/kg 程度以下の 範囲で相対的に標準偏差が比較的大きい要 因は計数統計による不確かさが支配的であ るためであることが見込まれる。この不確 かさは放射能が高くなるにつれ小さくなり、 本結果でもそのような傾向が確認できた。 一方で、放射能が高くても標準偏差が大き いものも観測され、Ge 検出器との差につい

ても濃度が高くなるにつれ必ずしも0に収 束するわけではなく10~20%の一定程度 のばらつきが観測された。このような一定 のばらつきの要因としては非破壊式装置で 想定される試料中の放射性セシウム分布と 検出器の幾何学的条件の再現性に基づく不 確かさの影響であることが見込まれ、計数 の統計による不確かさが無視できるレベル であっても見込む必要がある不確かさであ ると考えられる。

図 5-1, -2, -3 に各非破壊式装置と Ge 検 出器による測定結果の比較を示す。ここで 非破壊式装置の結果は 4 回平均値とした。 ただし、4回の測定のうち、検出限界以下の 結果であったものは除いて処理した。いず れの機種についても非破壊式装置の結果が Ge 検出器の結果と比較し低めに評価され る結果であったが、良好な相関関係を示す ことが確認できた。全体としていずれの機 種においてもばらつきの程度は前年度デー タと比較し抑制された傾向が見られた。濃 度評価が低めに評価されている結果は 2019年度でも同様の傾向が見られた。これ は各装置が見込む試料の嵩を小さめに評価 し、実際よりも計数効率が高く見積もられ ていることに起因することが要因の一つと して考えられる。この点について、マツタケ 試料に関して測定試料の写真データを用い た検討を行ったところ、装置の見積もる嵩 比重よりも実際の比重が小さく評価されて いる可能性があることがわかった。この検 討結果の概要については、附属書1に示す。 図 6-1, -2, -3 に非破壊式装置における複数 回測定の変動係数と試料の放射能(●)/放 射能濃度(○)との関係を示す。放射性壊変 のランダム性に伴うばらつきは放射能濃度

ではなく個別の試料の重量と濃度から得ら れる放射能に依存するため、本来、濃度では なく放射能に対する評価が望ましいが、こ こでは試料重量の範囲が一定の範囲内にあ ることなどを前提に濃度との比較を○で示 した。これらの図が示すように測定のばら つきは図4でも示した通り放射能にほぼ依 存し、低放射能領域では放射能が高くなる に従いばらつきが小さくなっていることは、 そのばらつきの要因に対しては放射性壊変 の統計変動が支配的であることを示唆する ものであった。一方で比較的濃度が高い範 囲であっても変動係数は 0.1~0.2 程度あり、 このような場合にはこのばらつきは前述の 通り試料に起因する不確かさが支配的であ ることが見込まれた。すなわちこれによる 不確かさは非破壊式測定における系統的な 不確かさと考えられる。

(3) スクリーニング検査への適用への検討(a) 野生キノコ

本研究では、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も回帰直線の予測区 間による次の方法を用いて検討した。

$$m_{UL} = m + \sqrt{V_e \left\{ 1 + \frac{1}{n} + \frac{(x - \bar{x})^2}{S_{xx}} \right\}} \times t_{n-2,0.01}$$

$$z \geq \sqrt{z},$$

mul: 回帰直線の予測区間の 99%上限

- *m*: 回帰直線から予想される濃度 x に おける測定値
- Ve: 回帰直線の誤差分散

- x: 放射性セシウム濃度
- *x*: 回帰に用いた放射性セシウム濃度の平均

# Sxx: 回帰に用いた放射性セシウム濃度の平方和

本研究では適用性について種別毎に検討 するため、野生キノコとして検体数の多か ったマツタケ及びナラタケを対象とし、測 定に用いた試料のうち検出限界超~220 Bq/kg 程度の範囲試料の測定結果を用いた。 マツタケの検討結果を図 7-1, -2, -3 に示す。 各図中の鉛直の赤実践はスクリーニングレ ベル相当の濃度、水平赤破線はスクリーニ ングレベル相当の非破壊式装置指示値を示 し、水平赤実線は予測区間上限100Bq/kg相 当の指示値(上)を示す。予測区間は 99% とした。予測区間 99%上限値が濃度 100 Bq/kg 相当の指示値を下回る各装置におけ るスクリーニングレベル上限指示値とその 濃度換算値を表 2 に示す。ここでは、先に 示したとおりすべての試料の測定結果より 得た回帰直線は、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。ここでは、非破壊式 の指示値相当のクリーニングレベルは、こ のことを考慮し非破壊式で得られる指示値 を回帰式により Ge 検出器による測定値相 当に換算して示した。その結果、換算したス クリーニングレベルは高い順に FF1:50 Bq/kg、Hitz: 47 Bq/kg 、AFT-NDA2: 35 Bq/kg、の結果を得た。本結果では機種によ ってスクリーニング性能に差が見られたが、 一方で図 6 に示す通り非破壊式装置の結果 と Ge 検出器による結果の差のばらつきは いずれの装置でも同等の範囲であり、この ように適切な濃度分布の測定結果を増やす ことが出来ればよりスクリーニング性能が 向上することも期待できる。

なお、本試験で用いたマツタケ試料の濃 度分布及び重量分布を図8に示す。ここで 2019年度分は測定実績の最も多いFF1にて 測定した試料の分布を示した。ここで示し たスクリーニングレベルを実際の検査で適 用する場合には、本試験に用いた試料との 同等と見なせる範囲のものが対象となりう ると考えられる。実際の試料が適用できる かの判断は、ここに示した試料重量の範囲 にあるかが一つの目安となると考えられる。 非破壊式装置での測定の場合、試料に対す る放射能濃度への換算係数は試料の嵩に依 存する。重量と試料の種別のみで想定され る嵩には個体の大きさ、形状によってばら つきがあると想定されるが、今回用いた試 料の嵩密度の範囲であれば検査の信頼性は 確保できることが見込まれる。実際の検査 での個々の試料の検査への適用性の判断に は試験に用いた試料写真は有用であると思 われる。本報告書に参考資料として今回用 いた試料の写真を収載する。

次に試料数が多いナラタケについて本研 究で収集されたナラタケ試料の放射性セシ ウム濃度分布を図 9 に示す。この図のとお り、マツタケと比較し濃度の低い試料が多 くを占め、18 検体中 Ge 検出器で検出限界 未満のもの 5 検体、25 Bq/kg 程度の濃度の 試料が6 検体であった。従って各非破壊式 装置によって実際に検出された数は装置に よって異なるが総じて少ない結果であった。 Ge 検出器との測定結果の比較を図 10-1, -2, -3 に示す。ここに示すとおりすべての装 置において比例性は見られたものの、スク リーニングレベルの評価を行うに足るデー タは得ることが出来なかった。例えば FF1 によるデータを例に挙げると、図 11 のよう に仮に 99%予測区間上限が 100Bq/kg 相当 値を超えないレベルでスクリーニングレベ ルを設定したとすると、100Bq/kg における 99%予測区間下限はこのスクリーニングレ ベルを大きく下回り、基準値を上回る試料 が合格となる偽陰性の発生が多くなること が見込まれる。この相関関数の傾きは、濃度 換算係数が適正であるかを示すものでもあ り、この検証にはより放射能が高い試料を 用いる方が有利である。今回の濃度分布と 試料数では十分な評価が困難なため、引き 続きの検討が必要であることが見込まれた。

(b) ネマガリタケ

ネマガリタケを用いてマツタケと同様の 試験を実施した。ただし、Hitz 装置につい ては測定室のサイズが小さくネマガリタケ を収納出来ないため試験の対象機器から除 外した。試料は23検体(検出限界未満を除 く)を用いた。検体の濃度分布及び重量分布 を図 12 及び図 13 にそれぞれ示す。濃度は 検出限界未満の2 試料から検出限界程度の 濃度~180Bq/kg の範囲に分布していた。試 料の重量は平均約 1200g で 900~1500g 程度 の範囲にあり、1検体あたり測定に十分な試 料量が確保された。図 14-1、 -2 に各非破壊 式装置と Ge 検出器による測定結果との差 の Ge 測定値との比を示す。図の通り、結果 は25Bq/kg 超の試料に対して FF1:+15 %/-25%、AFT-NDA2:+30%/-5%程度の範 囲にあった。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も回帰 直線の予測区間による方法を用いて検討し た。結果を図 15-1、 -2 に示す。図のとお りスクリーニングレベルは FF1:27 Bq/kg (装置指示值:34Bq/kg)、AFT-NDA2:72

Bq/kg (装置指示値:81 Bq/kg) となり FF1 のスクリーニングレベルが AFT-NDA2 と 比較を大きく下回る結果となった。今回の 試験では同一の試料を用いているが、AFT-NDA2 では 24 検体中 ND であった検体が 8 検体であったのに対し、FF1 では半分に 相当する 12 検体が ND であった。図 14 に 示す通り測定値との差のばらつき範囲には 大きな差はなく、マツタケと同様に試料数 を増やせば同等性能を示すことも期待でき る。

(4) 試料個体中の放射性セシウム濃度分布 測定

本研究では、試料固体中の放射性セシウ ム分布把握のために、イメージングプレー トを用いたマツタケ及びネマガリタケの測 定を行った。マツタケ試料は、液体窒素で凍 結処理した後、凍結乾燥処理した。乾燥試料 を 5~10mm 厚にスライスし(図 16)測定 した。IP での測定結果を図 17 に示す。図 に示す通り試料内の放射能の不均一分布が 観測された。IP データでは試料の笠部によ り高く局在することが分かった。この傾向 は、令和元年度実施したシイタケ試料でも 同様であった。この結果より、試料を菌傘と 菌柄を分けて Ge 検出器で各濃度の分析を 行ったところ、濃度差は約 1.1~1.8 の範囲 にあった。

ネマガリダケは縦半分に切断後、液体窒 素で凍結処理した後凍結乾燥機にて7日間 乾燥処理した。乾燥後IPにて測定した結果 を図18に示す。この結果可食部先端の濃度 が高い傾向が確認された。図19に部位別の 濃度と質量の分布を示す。この結果非可食 部を含む全体の濃度平均(重量加重平均)が 147 Bq/kg であるのに対し、可食部濃度は 221 Bq/kg となり、その比は 0.66 であった。 また今回 Ge との比較に用いた試料につい て、非可食部の濃度の可食部の濃度に対す る比の分布を図 20 に示す。比の平均は 1.05 で試料によるばらつきが見られた。

(5) ネマガリダケの非可食部の取扱いに関 する考察

図 19 に示した部位別重量に基づき求め た部位別の割合(重量%)を図 21 に示す。 また、図 22 にこの割合を求めた試料の部位 別写真を示す。「日本食品標準成分表」では 廃棄部位は竹皮及び基部とされており、こ れに基づくと本結果では、可食部位 49 %、 非可食部位(廃棄部位)51%となった。日 本食品標準成分表では、タケノコの可食部 重量 50%、はちく、まだけ等の小型タケノ コ可食部 40% (廃棄率 60%)) とされてお り、この割合より可食部の割合が多く、ほぼ 通常のタケノコに一致する割合であった。 可食部と非可食部の濃度がほぼ等しければ、 非破壊式装置によって非可食部も含めて測 定しても問題はないが、本研究における試 料では非可食部と可食部の濃度比にばらつ きが見られた。仮に今回の調査試料に日本 食品標準成分表の小型タケノコに対する廃 棄率 60 %と適用して計算した場合、試料 全体の加重平均濃度は可食部濃度に対して 平均で+3%、最大で+32%の課題評価、-20%の過小評価となる。今回は各部の重量 データが取得できなかったため、引き続き 多数の試料の濃度分布データを取得し、検 査に際して濃度分布の考慮が必要か検討す る必要があると見込まれた。

(6)検査法の提案

以上の検討結果より、マツタケについては 一定の成果が得られたことから、マツタケ の非破壊検査法を規制当局に提案し(附属 書2)、その提案内容は「非破壊検査法に 食品中の放射性セシウムスクリーニング法 について(令和3年3月26日 事務連絡 厚生労働省医薬・生活衛生局食品監視安全 課)」に反映された。非破壊検査法は、今後、 検査条件の精査及び手法の改良の検討を行 うことにより、さらなる信頼性、検査効率性 の改善並びに適用拡大の可能性があると考 えられた。

#### E. 結論

本研究では、異なる機種の非破壊式放射 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、野生キノコ試 料及びネマガリタケ試料を用いて行った。 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 し、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、 いずれも野生キノコに対して非破壊式装置 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。本研究では、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、99%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 射能濃度を回帰曲線によって非破壊式装置 指示値を Ge 検出器測定値相当に換算して 評価した。その結果、スクリーニングレベル は機種によって異なり、マツタケ試料につ いて 35~50 Bq/kg 程度の範囲にあり、ネマ ガリタケ試料について、FF1:27 Bq/kg、AFT-

NDA2:72 Bq/kg の結果を得た。いずれの機 種でも Ge 検出器の結果との相関は良く、ば らつきも一定範囲に抑制されており、測定 点を増やす、換算係数を適切に調整する等 の措置により、さらなる信頼性、検査効率性 の改善が期待され、実用(スクリーニング) に供する可能性があることが示唆された。 マツタケについては一定の成果が得られた ことから、検討内容に基づく検査法を提案 し、「非破壊検査法による食品中の放射性セ シウムスクリーニング法」に反映された。一 方で、ネマガリタケについては、非破壊式装 置では非可食部も含めた測定となるため、 非可食部が可食部の濃度より低い場合には 濃度は過小評価される恐れがある。検査に 適用するにあたっては、試料個体中の濃度 分布についてさらなる調査を進め、試料固 有の特性を把握するとともに補正の要否や その手法について検討する必要があると考 えられる。

今回用いた回帰直線の予測区間による方 法は、より適切な濃度範囲の試料によって Ge 検出器を用いた測定結果との比較によ りスクリーニング性能の評価を可能とする が、一方で、今回のナラタケのように低濃度 の試料しか採取できない状況も想定される。 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 多いことも考えられる。非破壊式装置によ る測定原理を考慮すると試料に対する感度

(計数効率)は、嵩に依存するため、嵩密度 がほぼ同等の範囲にあると見込まれるもの を同一のグループとして評価することも考 えられる。また、実際の検査への適応性評価 にあたっては、対象試料の範囲を決め、実試 料の実測を基本としつつ、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(附属書3)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 ばらつき範囲を評価する手法も検討の余地 があると考えられる。本研究では、計数効率 の妥当性検証の手法として実験と計算によ る半実験的手法の検討を行った(附属書 4)。 このような手法が確立できれば、実試料の 形状等の特徴を把握することで計数効率の 妥当性評価に用いることも考えられる。

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.h

tml (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ー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.adfutec.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/Co ntributing\_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 [10]古高克昌 写真画像からの試料形状把 握による非破壊式放射能測定装置を用いた 放射性セシウム測定における不確かさ評価 令和2年度近畿大学理工学部卒業論文 [11]三島大輝 計数効率の空間分布マップ を用いた不定形状試料に対する大口径 NaI(Tl)検出器のレスポンス評価 令和2 年度近畿大学理工学部卒業論文

- F. 研究発表
  - 1. 論文発表

- なし
- 2. 学会発表
  - なし
- 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	た市販の非破壊式放射能測定装置
--	-----	---------	-----------------

壮罡々	形式	検出器の種類	しゃへい	制生元
衣胆石		及びサイズ	体	<b></b>
非破壊式放射能	<b>FF</b> 1	NaI(Tl)	<u> </u>	口坐了要座
測定装置	1.1.1	φ 5.08x5.08cm 7本	¥□ JUIIIII	日本上未例
そのままはかる	AFT-	NaI(Tl)	鉛 35~	伊マビフィーテック
NDA2	NDA2	$\phi$ 12.7x12.7cm	50mm	(174) ) ) ) (174)
俗日於木壮罕	TT:	CsI(Tl)	20	日立造船(株)
間勿快宜表直	HITZ	$\phi$ 11.0 x 2.5cm	町 SUMM	

表2 非破壊式装置のスクリーニングレベル及び 99%予測区間上限評価結果(マツタケ)

	FF1	AFT-NDA2	Hitz
スクリーニングレベル指示値 Bq/kg	46	36	46
スクリーニングレベル指示値 の濃度換算値 Bq/kg	50	35	47



図1 測定に用いた野生キノコの種別と各検体数



図2 検体の写真撮影 (上段:書画カメラ(ELMO・L-12W)と撮影スタジオ下段:試料正面写真(左)、同上面写真(右))



パネル変数: 品目名

図 3-1 測定に用いたキノコの種別毎の濃度分布(個別値のプロット)●中央値 ⊗平均値



パネル変数:品目名

図 3-2 測定に用いたキノコの種別毎の濃度分布(個別値のプロット)●中央値 ⊗平均値 (濃度< 200Bq/kgの拡大表示)



図 4-1 非破壊式装置(FF1)による測定結果の Ge 検出器の結果との差(緑:ナラタケ、赤:マツタケ)



図 4-2 非破壊式装置(AFT-NDA2)による測定結果の Ge 検出器の結果との差(緑:ナ ラタケ、赤:マツタケ)



図 4-3 非破壊式装置(Hitz)による測定結果の Ge 検出器の結果との差(緑:ナラタケ、 赤:マツタケ)



図 5-1 非破壊式装置(FF1)のGe検出器との測定結果比較(4回測定の平均)



図 5-2 非破壊式装置(AFT-NDA2)のGe検出器との測定結果比較(4回測定の平均)



図 5-3 非破壊式装置(Hitz)のGe検出器との測定結果比較(4回測定の平均)



Activity in Bq / Activity concentration in Bq/kg





Activity in Bq / Activity concentration in Bq/kg

図 6-2 非破壊式装置 (AFT-NDA2)の複数回測定結果の変動係数 (C.V.)







図 7-1 非破壊式装置(FF1)と Ge 検出器の測定結果による品目別回帰直線(マツタケ)



図 7-2 非破壊式装置(AFT-NDA2)と Ge 検出器の測定結果による 品目別回帰直線(マツタケ)



図 7-3 非破壊式装置(Hitz)と Ge 検出器の測定結果による品目別回帰直線(マツタケ)



図8 測定に用いたマツタケの重量分布



図9 測定に用いたナラタケの濃度分布



図 10-1 非破壊式装置(FF1)と Ge 検出器の測定結果による品目別回帰直線(ナラタケ)



適合線プロット onave NT = 26.40 + 0.2619 Geave NT

図 10-2 非破壊式装置(AFT-NDA2)と Ge 検出器の測定結果による 品目別回帰直線(ナラタケ)



図 10-3 非破壊式装置(Hitz)と Ge 検出器の測定結果による品目別回帰直線(ナラタケ)



図 11 非破壊式装置(FF1)と Ge 検出器の測定結果による品目別回帰直線(ナラタケ)に おけるスクリーニングレベル(赤色鎖線)と偽陰性に相当する測定値範囲の関係



図 12 測定に用いたネマガリタケの濃度分布



図 13 測定に用いたネマガリタケの質量分布



図 14-1 非破壊式装置(FF1)による測定結果の Ge 検出器の結果との差(ネマガリタケ)



図 14-2 非破壊式装置(AFT-NDA2)による測定結果の Ge 検出器の結果との差 (ネマガリタケ)



図 15-1 非破壊式装置(FF1)と Ge 検出器の測定結果による 99%予測区間 (ネマガリタケ 5 回測定の平均)



図 15-2 非破壊式装置(AFT-NDA2)と Ge 検出器の測定結果による 99%予測区間



図 16-1 マツタケ試料



図 16-2 凍結乾燥後のマツタケ試料



図 16-3 スライス後のマツタケ試料



図 17 マツタケ試料 IP 画像(上段:光学写真 下段: IP 画像)



図 18 ネマガリタケ試料 IP 画像(上段:光学写真 下段: IP 画像)



図 19 ネマガリダケ重量別濃度分布(オレンジ)及び重量分布(青)



図 20 ネマガリタケの非可食部濃度の可食部濃度に対する比



図 21 ネマガリダケ部位別重量割合



図 22 ネマガリダケ部位別写真

## 非破壊放射能測定装置を用いた 放射性セシウム測定における不確かさの検討[10]

#### 1. はじめに

非破壊式放射能測定装置による測定の場合、試料を破壊せず測定することから種々の形 熊、形状の試料を扱うことから、試料に対する装置の計数効率の評価は容易ではない。本研 究では、このような装置において評価された計数効率の妥当性を検討する手法として、試料 の写真画像から試料の形状を把握し計数効率の評価に及ぼし得る不確かさの検討を試みた。 2. 方法

試料に対する検出器の計数効率は、試料-検出 器の幾何学的条件に依存することから、試料の形 状により異なる。そのため試料の形状を写真デー タから把握する手法を試みた。試料は正面及び上 面から撮影し、解析対象データとした。解析では写 真上で基準とする長さの校正を行った上で、図1の ように解析ソフトを用いて測定対象とする部分の 両端(●部)を決定し寸法測定した。本研究では実 際に非破壊式装置で測定した試料を用いた。形状は



図1 まつたけ試料サイズの測定

楕円体又は楕円錐台状に単純化し体積計算に必要な各寸法を決定した。ここでは形状が不 規則なことから各寸法の取りうる最大・最小値を測定により決定し、体積計算は各部の寸法 が矩形分布と仮定し、ISO/IEC Guide 98-3/Supplement 1 に基づくモンテカルロシミュレ ーションにより体積の平均値と標準不確かさ得てこの結果と各試料の重量から嵩密度の平 均値とその標準不確かさを得た。また、嵩密度の違いが計数効率に及ぼす影響について評価 した。

### 3. 結果および考察

図 2 に評価した嵩密度とその標 準不確かさを示す。本結果は非破壊 式装置 AFT-NDA2(アドフューテ ック(株) が同試料の分析に用いた想 定嵩密度は 0.5 g/cm<sup>3</sup>より低めに評 価される傾向が見られた。今回得ら れた嵩密度を用い、この非破壊式装 置で得られた各試料の放射性セシ ウム濃度評価について再評価した ところ、Ge 検出器との差の平均は-23%から-11%に改善され、系統的 なずれの要因は装置が想定する嵩



図2 マツタケ試料の嵩密度

密度より実際は小さいことが考えられた。 非破壊式の場合は試料嵩を固定しないために、 重 量と想定する嵩密度により計数効率を評価していると考えられる。そのため嵩密度の差は、 単なる自己吸収の差にとどまらず比較的大きな誤差を及ぼし得ると考えられた。 4. 結論

本実験では、写真画像から試料の形状・寸法把握を行い、画像により得た試料の嵩密度を 評価し、嵩密度が計数効率に及ぼす不確かさについて検討した。 その結果、 本検討における 嵩密度及びその不確かさから、装置の想定する嵩密度は実際より高く濃度評価の系統的ず れの一因となっていると推察された。

(別添)

## 非破壊検査法による食品中の放射性セシウムスクリーニング法

## 1. 非破壊検査法による放射性セシウムスクリーニング法

放射性セシウム濃度が基準値よりも低い食品を確実に判別するための、試料の細切や 混和を要しない、いわゆる非破壊検査法によるスクリーニング法を策定した。

一般食品のスクリーニング法である、試料の細切等の前処理を伴ういわゆる破壊検査 法は、放射線計測で重要な放射線源と検出器の位置関係であるジオメトリを試料容器と 試料の均質性によって制御しているが、非破壊検査法はそれらの測定条件を設定しない ため、基本的なスクリーニングの考え方は同じでも、同じような装置、手法であっても 同じ測定精度を望むことはできない。測定上重要な因子群を一定の幅をもって標準作業 手順書で規定し、精度・真度を一定の範囲内に制御することが重要である。

非破壊検査法によるスクリーニング法の性能要件等は以下のとおりとする。従来のス クリーニング法で規定されている要件のいくつかはスクリーニングレベルの検証に含有 させている。

なお、スクリーニングの結果、放射性セシウムが基準値よりも低いと判断できない検体はゲルマニウム半導体によるガンマ線スペクトロメトリーによる試験法等を用いて検査結果を確定するものとする。

参考に、性能要件を満たすことを確認した実例及び分析機器情報も添付するので、非 破壊検査法を行う際には参照されたい。

- 1 分析対象 放射性セシウム (Cs-134 及びCs-137)
- 2 対象食品 まつたけ
- 3 分析方法 以下に示す性能を有する方法とする。

バックグラウンド値 ブランク状態(試料を入れない状態)の測定値とし、下記のス クリーニングレベルを担保できる値であること。

校正 適切な標準線源を用いて計数効率が校正されていること。校正は1年に1回以上実施すること。

真度 下記のスクリーニングレベルを担保できる値であること。

スクリーニングレベル 25 Bq/kg 以上とすること。 設定した測定条件において、スクリーニングレベルにおける測 定値の 99%区間上限が基準値レベルで得られる測定値以下で あること。

- 4 検査結果の信頼性管理
  - 1) 測定日ごとにブランクを測定し、バックグラウンドが高くなっていないこと、

分析系に放射性表面汚染がないことを確認する。

- 2)測定日ごとに標準線源又は濃度既知の試料の測定によって機能確認を行い、真 度が変化していないことを確認する。
- 3) 測定日ごとにエネルギー校正を実施する。
- 4)測定場所の空間線量の変動はバックグラウンドに影響を与え、温度の変化及び 印加電圧の変動はエネルギー校正結果に影響を与えるので、校正を行った測定 環境を維持するように注意する。測定場所の移動等により上記条件が変動した 場合は、エネルギー校正を行い、標準線源を測定して、真度を確認する。
- 5) 試料を検出器にセットする際には、その形状に留意する。(繰り返して測定す る場合は、試料を再分散させるなど検査結果の偏りを小さくするように留意す る。)
- 6)試料による分析系の放射性表面汚染、あるいは試料間の汚染が起こらないよう に留意する。特に検出部位の汚染を防ぐため、検出器をポリエチレン袋で覆う、 袋の外側に試料を付着させない等の措置を講じる。
- 7) 試料の取り違えを防止するための措置を講じる。
- 5 検査結果の記載

スクリーニング法は、放射性セシウム濃度がスクリーニングレベル以下である食品 を、基準値以下と判定できるよう性能要件を設定したものであり、精確な測定値を得 ることを目的としていない。従って、スクリーニング法により得られた検査結果につ いては、上記内容を踏まえ、以下の内容を記載する。

- 1) 測定に使用した機器の種類、型式
- 2)検査結果について
- ・スクリーニングレベル以下である場合は、「<○○Bq/kg」(○○はスクリーニングレベル)とする。</li>
- ・スクリーニングレベルより高い場合は、ゲルマニウム半導体を用いたガンマ線スペクトロメトリー等による試験法により検査結果を確定する。

## 2. 非破壊検査法による食品中の放射性セシウムスクリーニング法例 示

スクリーニング法として使用可能と考えられる非破壊式放射能測定装置(シンチレーションスペクトロメータ)による方法を、例示として示す。性能の求め方及び分析上留意すべき点も記載する。他の方法であっても、1. 非破壊検査法による食品中の放射性セシウム スクリーニング法に示された条件を満たせば、スクリーニング法として使用できる。

#### 1 装置

一般的な説明は、平成23年10月4日付け事務連絡「食品中の放射性セシウムスク リーニング法について」別添2.食品中の放射性セシウムスクリーニング法例示(以下 「食品中の放射性セシウムスクリーニング法例示」という。)と同じである。

以下に、非破壊式放射能測定装置(シンチレーションスペクトロメータ)を非破壊検査 法による食品中の放射性セシウムスクリーニング法として用いる場合の条件について記載 する。

- 1) 測定エネルギー範囲:「食品中の放射性セシウムスクリーニング法例示」11)と同じ。
- 2)校正と真度:「食品中の放射性セシウムスクリーニング法例示」の真度(校正)においては、通常、測定容器と同じ体積標準線源を用いるが、非破壊検査法においては測定容器を設定しないことから、同じ定義は不可能であり、測定試料とは独立した機器性能である校正とスクリーニングレベル設定時の測定試料に依存した機器性能である真度に分けて性能要件としている。ここでの校正は、バックグラウンド及び数え落としが十分無視できる計数率を与える標準線源を、機器の製造者の定める位置に設置して測定する。バックグラウンドを差し引いた正味指示値を試験に用いた標準線源の測定時点の放射能で除し、機器のレスポンスを求める。この試料測定空間におけるレスポンスが規定した時点(例えば、出荷時、納品時、スクリーニングレベル設定時など)から使用の間、継続的に異ならない(許容範囲内である)ことを確認する。許容範囲は真度に影響を及ぼさない範囲とし、許容範囲を逸脱し機器の修理・調整等を行った場合には、再度使用前に校正する。線源としては、Cs-137の標準線源(点線源など)が、入手が容易で扱いやすい。一方、ここでの真度は、測定対象試料に対する濃度換算係数の初回使用前の設定・確認であり、これによりスクリーニングレベルが担保されていることを確保する。
- 3) 測定下限値については、非破壊検査法においては試料形状を規定しないため設定しない。測定感度は、試料形状(不均一性を含む)、機器計数効率、測定時間、バックグラウンド等に依存するが、これらを含めてスクリーニングレベルにおいて規定する。ただし、スクリーニングレベルを満足する試料の供試量(g)の範囲は予め定めるものとする。
- 4)測定環境の維持については、「食品中の放射性セシウムスクリーニング法例示」14)と同じ。

5)測定結果は、試料と検出器のジオメトリ(空間的位置関係)の影響を受けるため、 試料の測定は、スクリーニング法としての性能の確認(真度の確認)における試料 と検出器のジオメトリ条件の範囲内で行う必要がある。(例えば、性能の確認にお ける試料測定時の試料の写真などもこの判断に有効と考えられる。)測定時間や測 定回数も真度確認における条件と同一条件とする。また、試料の前処理を行わない 非破壊式の場合には、試料中の放射性セシウムの不均一分布が結果に影響を及ぼし 得る。この影響を回避するために、試料の特性を考慮して試料を測定の都度再分散 させて繰り返し測定を行い、検査結果の偏りを小さくするようにするなどの措置を 採ることは検査の信頼性を確保する上で重要である。

#### 2 スクリーニング法としての性能の確認方法

スクリーニングレベルの確認

スクリーニングレベルの測定値の分布の99%上限が基準値で得られる測定値未満であることを確認する。測定値の分布の99%上限の求め方としては、以下の方法が考えられるが、統計的に正しい他の手法を用いても良い。

1)測定の繰り返しによる方法
 スクリーニングレベルにおける測定を繰り返し、測定値の平均と標準偏差から以

下の式 により 99%上限を求める。測定は実際の試料測定と同じ条件で、測定の変動に影響する要因をできるかぎり含めて行う。繰り返し数は5以上とする。

測定値の分布の 99%上限 =  $m + t_{k-1,0,01} \times s$ 

式1

- *m* 測定値の平均値
- s 測定値の標準偏差
- *k* 測定数
- *tk-1,0.01* 自由度 *k*-1、片側危険率 1%の *t* 値
- 2)回帰直線の予測区間による方法 放射性セシウム濃度がスクリーニングレベル・基準値付近の異なる複数の試料を測 定し、回帰直線の99%予測区間の上限を求める。

回帰直線の予測区間の 99%上限=
$$m + \sqrt{V_e \left\{1 + \frac{1}{n} + \frac{(x-\bar{x})^2}{S_{xx}}\right\}} \times t_{n-2,0.01}$$
 式 2

- *m* 回帰直線から予想される濃度*x*における測定値
- Ve 回帰直線の誤差分散
- *n* 回帰に使用したデータの数
- *x* 放射性セシウム濃度
- **x** 回帰に用いた放射性セシウム濃度の平均
- S., 回帰に用いた放射性セシウム濃度の平方和

<u>計数率から放射能濃度への換算</u>正味計数率(測定試料とバックグラウンドの計数率の差)、 機器換算係数、試料重量から計算する。

$$\frac{(n_s - n_b) \times K}{W} = C$$

式3

*n*<sub>b</sub>:バックグラウンドの計数率 cps

- ns: 試料の計数率 cps
- K:機器換算係数 Bq/cps
- W: 試料の重量 kg
- C: 放射性セシウムの濃度 Bq/kg

ただし、機器換算係数は、スクリーニングレベルを満足する試料の供試量(g)の定格 範囲を網羅できるものとする。機器換算係数は試料重量に対して関数化された濃度換算係 数*f<sub>K</sub>(W)*であってもよい。

 $(n_s - n_h) \times f_K(W) = C$ 

式4

f<sub>K</sub>(W): 試料重量に対して関数化された濃度換算係数

## スクリーニング法としての性能の確認方法実例

例示2.2)に示す回帰直線の予測区間による方法を用いたスクリーニング法としての 性能の確認の実例を以下に示す。

対象装置:表1のとおり

表1 測定に用いた非破壊式放射能測定装置

装置名	形式	製造元
そのままはかる NDA2	AFT-NDA2	(株) アドフューテック
非破壊式放射能測定装置	FF1	日栄工業(株)
簡易検査装置	(Hitz)*	日立造船(株)

\* 装置はプロトタイプで形式の標記がないため、機器識別用に独自に設定した。

測定試料:まつたけ

試料重量及び検体数:下図のとおり(非検出の検体を含む。) 試料形態:複数本のまつたけをビニール袋に詰めた状態



試料測定条件(非破壊式放射能測定装置):表2のとおり

表 2 測定条件

形式	測定時間/回 秒	測定回数*/検体 回
AFT-NDA2	300	4
FF1	300	4
(Hitz)	測定下限值 25Bq/kg** 達成時間 最長 600	4

\* 試験では、測定の都度試料を攪拌し測定し、4回の測定値(ただし、未検出を除く。) の平均値を用いた。

\*\* 製造元推奨条件(破壊式スクリーニング検査法準拠)

試料測定条件(Ge検出器): 食品中の放射性セシウム検査法(平成24年3月15日付け食 安発0315第4号)による。

## 附属書2

測定結果:

(1) 形式:AFT-NDA2
 基準値(100 Bq/kg)相当の
 装置指示値:84 Bq/kg
 スクリーニングレベル:
 35 Bq/kg

## スクリーニングレベル相当の 装置指示値(SL): 36 Bq/kg



(2) 形式:FF1
 基準値(100 Bq/kg)相当の
 装置指示値:87 Bq/kg
 スクリーニングレベル:

## $50 \mathrm{~Bq/kg}$

スクリーニングレベル相当の装置指示値(SL): 46 Bq/kg



放射能濃度 Bq/kg (Ge検出器)

(3) 形式: Hitz
 基準値(100 Bq/kg) 相当の
 装置指示値: 89 Bq/kg
 スクリーニングレベル:

## 47 Bq/kg

スクリーニングレベル相当の装置指示値(SL): 46 Bq/kg



## マツタケファントム試料の試作

放射能測定では通常標準線源と同じ容器に試料を詰めて測定する。これによって標準線 源によって得られた計数効率によって試料中の放射能分析が可能となる。一方で、一般に入 手できる標準線源では測定が困難な測定対象物について、その対象物を模擬したファント ム試料を用いる手法もある。例えば、体内放射能を測定するインビボカウンタの構成には人 体形状を模擬したファントムが用いられる。非破壊式放射能測定装置においても一般に入 手できる標準線源で対処できないことから、試料を模擬するファントム線源の3Dプリンタ を用いた作成を試みた。

今回の試作では実際のマツタケを、3D スキャナ(EinScan-SE)を用いて図1の形状デー タを取得した。このデータを元にミラーリングなどによってマツタケ形状を復元した(図 2)。このデータを元に3Dプリンタを用いて中空状のカプセルを作成した。図3のようにカ プセル内には放射能濃度既知(Ge 検出器を用いたγ線スペクトロメトリーによる)の玄米 を秤量して充填し、濃度と重量からファントムの放射能を決定した。

3D スキャナによって実際のマツタケを模擬したファントムの作成が可能であることが 分かった。このようなファントムで試料設置時に起こりうる形状の変化が計数効率に及ぼ す影響を評価出来れば実サンプルを用いた測定を補う妥当性検証に用いることも考えられ る。本実験施策にあたっては株式会社データ・デザイン及びリコージャパンの協力を得た。



図1 3Dスキャナ読み取りデータ



図2 ミラーリング後の修正データ



図3 試作したファントム試料

## 計数効率の空間分布マップを用いた不定形状試料に対する 大口径 NaI(Tl)検出器のレスポンス評価[11]

#### 1. 序論

食品中の放射性物質測定に前処理をせずそのまま測る大口径 NaI(TI)検出器を用いた装置が一部の自主検査などで利用されている。このような装置では、通常、試料の種類と質量より推定される嵩から検出器のレスポンスが近似的に決定されているが、試料は不定形状のため、形状の変化がレスポンスにどの程度の不確かさを及ぼし得るかが把握されていなければ、測定の信頼性を確保しがたい。本研究では、このような測定において試料の形状変化が及ぼし得る放射能測定の不確かさを評価するため、検出器上の点線源に対する計数効率の空間分布マップを作成し、体積試料に対するレスポンスの評価を行った。

2. 実験方法

不定形状体積状の試料を微小ボクセルの集合とすると、各(x,y,z)のボクセルにおける $\gamma$ 線 エネルギーEの計数効率  $\varepsilon_p(E,x,y,z)$ に対して、試料に対する計数効率  $\varepsilon_v$ は式(1)で評価で きる。

$$\varepsilon_V(E) = \iiint \varepsilon_p(E, x, y, z) dx dy dz / V \cdot F_s \qquad (1)$$

ここで Vは体積、F。は自己吸収の補正係数を表す。

本研究では、様々な形状の試料に対応した 5"  $\phi \times 5$ "NaI(Tl)シンチレーション検出器に対 する<sup>137</sup>Csのレスポンスを得るため、 $\varepsilon_p(E,x,y,z)$  (*E*=662 kev)の空間分布を取得することと した。線源は図 1 ①を用い、各測定点で得られた計数効率をボクセルサイズ 10×10×10 (mm<sup>3</sup>)における計数効率とみなすこととした。検出器から高さ z (z=0,30,60,90,120,150 mm)の面における  $\varepsilon_p(E,x,y,z)$ の分布は同心円状となる想定で、X 軸正方向のみの各高さ zの面において図 1①のように 10 mm 刻みで測定を行った。実験データより、各面における 検出器中心からの距離と計数効率の関数を求め、図 1 に示す各ボクセルの計数効率を計算 し、空間分布マップを作成した。

次に、Ge 検出器で濃度を求めた<sup>137</sup>Cs を含む玄米を 30 ml プラ壺容器に詰めて実試料に 代わるファントムとした。計 15 個を図 1②のように検出器上に並べて測定し、レスポンス を求めた。

この円柱ファントムに対するレスポンスを *ε*<sub>p</sub>の空間分布マップより算出するためにフ ァントム形状に相当するマップ上のボクセルを各面で特定しファントムの高さを *H*として、 式(2)よりレスポンスを求め、ファントムの測定で得たレスポンスと比較した。

$$\varepsilon_V(E) = \int_0^H \varepsilon_s(E, z) \, dz / H \cdot F_s \tag{2}$$

3. 結果および考察

作成した  $\varepsilon_p(E,x,y,z)$ の空間分布マップ(z=0)を図 2 に示す。同様に z(z=0,30,60,90,120,150mm)のマップも得た。得られたマップデータに基づき式(2)で計算した  $\varepsilon_v(E)$ とファントム測定で得たレスポンスは、共に 0.054 となり一致した。得られた  $\varepsilon_p(E,x,y,z)$ の分布特性から考えると、 $\varepsilon_v(E)$ は検出器に近い部分の影響がより支配的である。 従って今回測定したファントムよりも Hが小さいものではより計算と実測の差が大きくな ると考えられるが、測定対象とされる試料体積を想定すると今回の結果は十分許容できる ことが見込まれた。 4. 結論

 $\varepsilon_p$ の空間分布データをベースとしたファントム試料に対する  $\varepsilon_v$ を計算した。その結果 はファントム測定で得られたレスポンスとよく一致した。これを応用し不定形状試料を円 柱試料で組み合わせた試料とすれば、様々な不定形状試料の  $\varepsilon_v$ を評価ができることが見込 まれる。



図1 計数効率 *ε*<sub>p</sub>(*E,x,y,z*)空間分布マップ(*z*=0~150 mm)評価位置とファントム測定



図2 *ε*<sub>p</sub>(*E,x,y,z*)空間分布マップ(*z*=0 mm)

## マツタケ試料写真





🔁 Y885-4-3-Aマツタケ



🔁 Y885-4-5-Aマツタケ



🔁 Y885-4-7-Aマツタケ













♂ Y885-4-3-Bマツタケ



🔁 Y885-4-5-Bマツタケ



🔁 Y885-4-7-Bマツタケ





🔁 Y885-4-6-Aマツタケ











🔁 Y885-4-2-Bマツタケ





₽ ¥885-4-6-Bマッタケ



♂ Y885-4-8-Bマツタケ









C Y885-4-8-Aマッタク









⊘ Y889-5-8-Bマツタケ











⊘ Y889-990-2-Aマッタケ



















Es .

1000-0-23 1











⊘ Y889-5-8-Aマツタケ







## ナラタケ試料写真



⊘ Y892-940-2-Aナラタケ







⊘ Y892-940-5-Bナラタケ

## ネマガリタケ試料写真































SS855-4-1-B ねまがりたけ



























△ SS855-4-2-A ねまがりたけ







153-4-7-A ねまが







8-4-14-B ねまがりたけ



SS854-4-3-A ねまがりたけ



○ SS854-4-8-A ねまがりたけ



SS855-4-2-B ねまがりたけ

















854-4-3-B ねまがりたけ









△ SS855-4-3-A ねまがりたけ















54-4-1-B ねまがりたけ



4-4-4-A ねまがりた!









△ SS855-4-3-8 ねまがりたけ

























