# 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3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 試料を前処理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、令和2年3月に事務連絡「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ついて」が厚生労働省医薬・生活衛生局食品監視安全課より発出 され、まつたけについて非破壊式放射能測定装置を利用した検査が可能となった。本研究 では、この非破壊式装置による検査対象とする試料の適用拡大を検討すべく、野生キノコ 全25種141検体、ネマガリタケ及びモウソウチクのタケノコそれぞれ30検体及び19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。

さらに野生キノコの4種及びタケノコについて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、機種及 び品種によって異なるが、野生キノコ3種で30~70 Bq/kg、タケノコで50 Bq/kg を超え るスクリーニングレベルの設定が可能であった。さらにタケノコについては不可食部を 含む試料の測定が可食部濃度の評価に及ぼす影響を検討し、本検討で用いた試料では可 食部濃度と不可食部を含む試料全体の平均濃度の比はほぼ1であり、不可食部を含む試 料の測定による可食部濃度の評価が可能であることが示唆された。本研究成果によりネ マガリタケ及びモウソウチクの皮付きタケノコが「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」の適用試料種に追加された。

研究協力者

八戸 真弓 国立研究開発法人農業・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

# 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[6][7][8]。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 などにより試料の形状変化や不均質性の影 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。

平成 29 年度よりこのような非破壊式装 置による測定の信頼性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[9]。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、このような 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など 更なる詳細な検討により確保されることが 望まれた。また、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。

平成29年度から3ヵ年の研究成果を踏ま え、令和2年度より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)を選定し適用性に ついて検討を進め、令和3年3月、この研究成 果に基づき「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」が発出 され、マツタケについて本手法による検査 が可能となった。令和3年度は、この非破壊 式装置による検査対象とする試料の適用拡 大を検討すべく、野生キノコ全25種141検体、 ネマガリタケ及びモウソウチクの皮付きタ ケノコそれぞれ30検体及び19検体を用いて 測定値を比較した。また、タケノコは不可食 部を含む試料の測定によって可食部の放射 性セシウム濃度を評価する手法によって検 査が可能かを検討するため、可食部及び不 可食部それぞれの濃度分布評価を行った。 さらに、試料の形状変化が測定の不確かさ に及ぼす影響の評価として計算による評価 手法を含め検討を進めた。

#### 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、主に自 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、試料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 利用による幾何学的効率の高効率化が図ら 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ず れやばらつきの要因となる。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と推察される。 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、5 機種の非破壊式装 置を用いて福島県及び宮城県内で採取され 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、野生キ ノコ全 25 種 141 検体、ネマガリタケ (福島 県産)及びモウソウチク(宮城県産)のタケ ノコそれぞれ 30 検体及び 19 検体を用いて 測定値を比較した。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 野生キノコ及びネマガリタケのタケノコの 測定に用いた非破壊式装置(形式:FF1、 AFT-NDA2 及び Hitz) 及びモウソウチクの タケノコの測定に用いた装置(形式:A01及 び A01S) を示す。野生キノコ及びネマガリ タケのタケノコは比較性を確保するために 同一試料を福島県林業研究センターに設置 した3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 種のみで測定した。モウソウチクのタケノ コは宮城県内2か所に設置された表1に示 すベルトコンベア式の連続個別非破壊放射 能測定システム2機種(A01及びA01S)を 用いた。試料の測定時間は本方式の場合べ ルトコンベアの速度により決まる。本試験 では、測定時間は A01 及び A01S それぞれ で 34 秒及び 72 秒とした。 試料の測定は各 4 回実施した。試料は測定の都度置き換え を行った。測定の実務は各施設の検査員に より行われた。

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、(一社)福島 県環境測定・放射能計測協会又は株式会社 理研分析センターに依頼し、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、イメージング プレート(IP)を用いた分布測定を行った。 特にタケノコについては不可食部を含む試 料全体を検体とするため、そのことによる 可食部濃度の評価への影響が懸念される。 本研究では、可食部濃度評価への影響を定 量的に評価するため、IPを用いた分析に加 え、タケノコの可食部及び不可食部それぞ れの濃度測定を、Ge検出器を用いて行った。

イメージングプレート (IP) を用いた分布 測定では、タケノコ試料(モウソウチ ク、Phyllostachys edulis)を用いた。本研 究ではタケノコを皮つきのまま縦半分に切 断し、凍結乾燥(FD-20BU/SK02、NTS) させた後、切断面が IP 上(BAS-IP SR 2040、 FUJIFILM)に接するように配置し露光させ、 読み取り装置(FLA7000、 FUJIFILM)で 放射線画像を取得した。また、部位別(皮、 可食部)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 3-1 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 検出器の測定におい 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 4-1、-2 及び-3 に示す。ここで エラーバーは複数回測定(NDを除く)に基 づく標準偏差を表す。データのばらつき傾 向は令和2年度の結果とほぼ同様であった。 ここで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 はなく相対的に~±20 %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 及び-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、令和2年度の結 果と同様に低めに評価される傾向であった が、良好な相関関係を示すことが確認でき た。濃度評価が低めに評価される傾向は各 装置が見込む試料の嵩を低めに評価し、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、計算による評価 を行った。試料には令和2年度のマツタケ 試料の写真を用い測定試料の写真データを 用い形状を近似評価し、計数効率を算出し た。これにより得た放射能濃度は、非破壊装 置で得た結果よりも改善する傾向が一部の 試料で確認出来た[10]。令和2年度の写真 を用いた嵩比重の検討で実際の比重が小さ く評価されている可能性があることを示し たが、本結果から実際にこのことにより、非 破壊装置の想定する試料の形状と実際との 違いが計数効率評価の違いに影響している ことがわかった[11]。ただ、写真による評価 と非破壊装置の評価に違いが見られなかっ たものも確認された。このことは単純な形 状の違いだけでなく検出器付近の空隙の影 響、形状の近似評価上の問題があると推察 される。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 及び-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 比較を〇で示した。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。図 6-3 の Hitz の結果は他の2機種と比較し、低放射 能領域のばらつきが小さい傾向にあるが、 この装置は試料の質量により一定の検出限 界に達する又は 900 秒まで測定時間が最長 延長される機能を有していることから、そ のことにより計数統計によるばらつきが抑 制されていると考えられる。一方で比較的 濃度が高い範囲であっても変動係数はいず れも~0.2 程度の範囲にあり、これは試料に 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避けられない系統的 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。

$m_{UL} = m$	$u + \sqrt{V_e \left\{1 + \frac{1}{n} + \frac{(x - \bar{x})^2}{S_{xx}}\right\}} \times t_{n-2, 0.01}$					
ここに、						
<i>m</i> UL:	回帰直線の予測区間の 99%上限					
<i>m</i> :	回帰直線から予想される濃度 x に					
	おける測定値					
$V_{\rm e}$ :	回帰直線の誤差分散					
<i>n</i> :	回帰に使用したデータの数					
X:	放射性セシウム濃度					
$\bar{x}$ :	回帰に用いた放射性セシウム濃度					
	の平均					
<b>C</b>	同県に用いた故財姓おシウノ濃度					

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、野生キノコとしてマツタケを除 く優先対象4種のうち検体数の多かったム キタケ、ナメコ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。 ムキタケ、ナラタケ及びナメコの検討結果 を図7、8及び9に示す。各図中の鉛直の 赤実線はスクリーニングレベル相当の濃度、 水平赤実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、水平赤破線は 予測区間上限 100 Bq/kg 相当の指示値を示 す。予測区間は99%(片側1%)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 ニングレベルは機種によってスクリーニン グ性能に差が見られたが、AFT-NDA2 によ るムキタケの 27 Bq/kg を除き、40 Bq/kg を超えるスクリーニングレベルの設定が可 能であった。

本試験で用いた試料の質量分布を図 10 に示す。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。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。今回用いた試料の写真を後 述のマニュアルに収載する。

(b) タケノコ (ネマガリタケ)

ネマガリタケのタケノコを用いて野生キ ノコ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。試料は検出限界未満を 除く26検体を用いた。検体の濃度分布及び 質量分布を図11及び図12にそれぞれ示す。 濃度は検出限界未満の4 試料から検出限界 程度の濃度~200Bq/kg 程度の範囲に分布し

ていた。試料の質量は平均約 1200g で 700 ~1300g 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 13-1 及 び-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 *τ* FF1:+5 %/-40 %, AFT-NDA2 : +30 % /-10 %程度の範囲にあり、ばらつきの範囲 幅は同程度であった。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 14-1 及び-2 に示す。 ここでは Ge 検出器による濃度は可食部の 濃度で評価した。図のとおりスクリーニン グレベルは FF1:45 Bq/kg(装置指示値: 38Bq/kg)、AFT-NDA2:61Bq/kg(装置指 示値:72 Bq/kg)となった。

(c) タケノコ (モウソウチク)

モウソウチクのタケノコを用いて試験を 実施した。ここでは表1に示すベルトコン ベア式の連続個別非破壊放射能測定システ ム2機種(A01及びA01S)を用いた。

検体の濃度分布及び質量分布を図 15-1 及 び-2 及び図 16-1 及び-2 にそれぞれ示す。濃 度分布は、2 機種それぞれに用いた検体で 異なり、A01S ではその多くが 25 Bq/kg 以 下であった。検出限界未満の試料から検出 限界程度の濃度~200 Bq/kg 程度の範囲に 分布していた。試料の質量は平均約 1200 g で 700~1300 g 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 17-1 及び-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 40 Bq/kg 超の試 料に対して A01 では+60 %の一点を除き +10 %/-20 %、A01S:+30 %/-0 %程度の

範囲にあり、ばらつきの範囲幅は同程度で 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 18-1 及び-2 に示す。ここでは Ge 検出器による濃度は可食部の濃度で評価し た。図のとおりスクリーニングレベルは A01 において 55 Bq/kg (装置指示値:57 Bq/kg) であった。一方 A01S については見 かけ上 A01S のスクリーニングレベルより 高い72Bq/kg(装置指示値:84Bq/kg)と なった。濃度の低い検体が多いにもかかわ らずこのような結果が得られたのは、A01S で測定した検体の質量は最も少ない質量で 820 g と A01 の検体と比較し大きい傾向に あったことによることが一因と推察される。

(4) 試料個体中の放射性セシウム濃度分布 測定

(a) タケノコ(ネマガリタケ)

C. (1)の試験で用いた検体について、可 食部と不可食部に分け、それぞれの質量と 濃度を測定し、可食部の濃度と不可食部を 含む試料全体の平均濃度との比を求めた。 結果を図 19-1 及び図 19-2 に示す。ここに示 す通り、この比の平均は、外れ値の 1.65 を 除き 0.96±0.07 であり、本試験の検体濃度 の範囲において濃度に依存した変化は見ら れなかった。また、非破壊式測定での1単位 試料について、先端、中間、下部及び皮の部 位別濃度測定を実施した。この結果を図 20 に示す[12]。ここに示す通り、濃度は可食部 の先端が最も高く、中間部の2倍以上の結 果であった。この濃度勾配の傾向は令和3 年度のイメージングプレートによる濃度測 定結果とも整合する結果であった。ただし、 で濃度の高い先端部の質量は全体質量の 5%であり、試料全体の平均濃度に及ぼす影響は限定的であることが分かった。

(b) タケノコ (モウソウチク)

C. (1)の試験で用いた検体について、可 食部と不可食部に分け、それぞれの質量と 濃度を測定し、可食部の濃度と不可食部を 含む試料全体の平均濃度との比を求めた。 結果を図 21-1 及び図 21-2 に示す。ここに示 す通り、この比の平均は、1.01±0.21であり、 本試験の検体濃度の範囲において濃度に依 存した変化は見られなかった。また、タケノ コ1 試料について、図22 のように皮(内 側・外側)と可食部(先端・中央・下部)に 分け、部位別濃度測定を実施した。この結果 を図23に示す。ここに示す通り、濃度は可 食部の先端が最も高く、中間部の 1.5 倍弱 の結果であった。しかしながら、ネマガリタ ケのタケノコと同様に先端部の質量は全体 の4%程度であった。一方で濃度が最も低い 皮の外側の質量割合が約 55%であった。本 実験での検体の各部位濃度及び質量から求 めた全部位の平均濃度に対する可食部の濃 度は 1.35 倍であり、図 21 に示した結果よ り極端に有意に高い結果となった。成長が 進み極端に廃棄率が高い試料においては全 部位の平均濃度は可食部濃度を過小評価す る可能性があることが示唆された。

図 24 に IP で取得した画像を示す。ここ に示す通り可食部の先端付近に集積傾向が 確認され、先に示した Ge 検出器による濃度 測定の結果とその傾向が一致した。

(5)検査法の提案

以上の検討結果より、不可食部を含む皮 付きタケノコについて非破壊検査法を規制 当局に提案し、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4年3月25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。また、野生キノ コについて令和2年度のマツタケに引き継 き、本年度はムキタケ、ナメコ及びナメコつ いて一定の成果が得られたことから、マツ タケと同様の手法の検査手法が適用できる ことが見込まれる。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 えられる。

(6) マニュアルの提案

非破壊式放射能測定装置を用いた測定・ 検査では、試料の前処理を行う従来手法と 比較し、自由度が高いことから検査従事者 に委ねられるところが多い。装置の取扱説 明書に従うことは最低限必要だが、利用可 能な実証データが少なく、実績も少ないこ とから取扱説明書も想定される事項を必ず しも網羅しているわけではない。特に本研 究成果で得られた実証データを検査に適用 する場合、その制限(適用範囲)について検 査者は理解しておく必要がある。そこで本 研究では、これらの装置を検査に適用する 場合に遵守すべき事項をこれまで得られた 研究成果に基づきマニュアルとして示した。

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、並びにネマガリタケ及びモウソウチク

のタケノコ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 異なるが、野生キノコのうちムキタケ、ナメ コ及びナラタケについて 30~70 Bq/kg 程度 の範囲にあった。また、ネマガリタケのタケ ノコについて、FF1:45 Bq/kg、AFT-NDA2: 61 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いることが示され た。また、モウソウチクのタケノコについて は、ベルトコンベア式の非破壊式装置によ る試験を実施し、50 Bq/kg を超えるスクリ ーニングレベルが設定可能であることが確 認できた。また、いずれのタケノコにおいて も試料中の放射性セシウム濃度分布の測定 結果から、不可食部を含む皮付きでの測定 により評価される試料全体の平均濃度は、 可食部の濃度とほぼ同程度であることが示 された。このことから、皮つきタケノコにつ いてもマツタケに適用されているスクリー ニング法の適用が可能であることが見込ま れた。

以上の結果から、ネマガリタケ及びモウ

ソウチクの皮つきタケノコについては一定 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。さらに、また、野生キノコに ついて令和2年度のマツタケに引き継き、 本年度はムキタケ、ナメコ及びナメコつい て一定の成果が得られたことから、マツタ ケと同様の手法の検査手法が適用できるこ とが見込まれた。

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、試料数の確保が困難、低濃度の 試料しか採取できないなどの状況も想定さ 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。これには今後、実試料の嵩 密度の調査を進め物理的に同等と扱える範 囲を明らかにすることが必要であると考え られる。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 によって評価するなどの手法も考えられる。 これについて令和 2 年度より検討を進め、 令和 3 年度は写真データにより得た形状デ ータから計数効率を半実験的計算手法で評 価する手法を検討した [11]。このような計 算も含めた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。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 他 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

[11]古高克昌 他 不定形状試料に対す る大口径γ線検出器の計数効率評価手法の 検討 第3回日本放射線安全管理学会・日 本保健物理学会合同大会 2021/12/1

[12]烏野沙和、山田崇裕、戸真弓、蜂須 賀暁子ネマガリタケ中の放射性セシウム分 布評価の検討 日本食品衛生学会第 117 回 学術講 2021/10/27

- 1. 論文発表
  - なし
- 2. 学会発表

山田 崇裕、八戸 真弓、蜂須賀 暁子 非 破壊式放射能測定装置のまつたけ試料スク リーニング検査への適用 第58回アイソ トープ・放射線研究発表会 2021/7/7

古高克昌、山田 崇裕、三島 大輝 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の検討 第58回ア イソトープ・放射線研究発表会 2021/7/7

鳥野沙和、山田崇裕、戸真弓、蜂須賀暁子 ネマガリタケ中の放射性セシウム分布評価 の検討 日本食品衛生学会第117回学術講 演会 2021/10/27

古高克昌 三島 大輝、山田 純平、山田 崇裕 不定形状試料に対する大口径γ線検 出器の計数効率評価手法の検討 第3回日 本放射線安全管理学会・日本保健物理学会 合同大会 2021/12/1

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

F. 研究発表

壮罢夕	形式	検出器の種類	しゃへい		
<b></b>		及びサイズ	体	<b></b>	
非破壊式放射能	FF1	NaI(Tl)	<u> </u>	口坐工業曲	
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~		
NDA2	NDA2	$\phi$ 12.7x12.7cm	50mm	(1) 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	
筋巨桧本壮罢	Hitz	CsI(Tl)	約 50	口去生的准	
间勿快且表但		$\phi$ 11.0 x 2.5cm	¥□ JUIIIII	口上迎而你称	
連続個別非破壊		$M_{el}(T1)$			
放射能測定	A01	10a1(11)	鉛 50mm	千葉鉄工所㈱	
システム		φ 5.06x5.06cm 120 4			
連続個別非破壊		NaI(Tl)			
放射能測定	A01S	$\phi$ 5.08x5.08cm	鉛 50mm	千葉鉄工所㈱	
システム		45 ユニット 1 列			

表1 本研究に用いた市販の非破壊式放射能測定装置

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

	試料種別	FF1	AFT-NDA2	Hitz
フカリーニングレベル比三店	ムキタケ	71	27	42
スクリーニンクレベル <sub>相小値</sub> Ba/kg	ナメコ	70	43	66
Dų/ kg	ナラタケ	64	44	60
フカリューングレベル化子店	ムキタケ	67	32	42
	ナメコ	60	58	62
の 仮 欠 沢 昇 胆 D Q/Kg	ナラタケ	66	62	75



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))



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) 数値は中央値



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) 数値は中央値、(濃度< 200Bq/kg の拡大表示)







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



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



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)



図 6-1 非破壊式装置 (FF1)の複数回測定結果の変動係数 (C.V.)



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 6-3 非破壊式装置(Hitz)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(ムキタケ)



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(ム キタケ)



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(ムキタケ)







図 8-2 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 メコ)







図 9-1 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)





図 9-3 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 10-1 測定に用いたムキタケの重量分布



図 10-2 測定に用いたナメコの濃度分布



図 10-3 測定に用いたナラタケの濃度分布



図 11 測定に用いたネマガリタケの濃度分布



図 12 測定に用いたネマガリタケの質量分布



図 13-1 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) 濃度は不可食部を含む平均濃度を表す。



図 13-2 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)濃度は不可食部を含む平均濃度を表す。



図 14-1 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)



図 14-2 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 (ネマガリタケ)



図 15-1 測定に用いたタケノコ (モウソウチク)の質量分布 (A01)



図 15-2 測定に用いたタケノコ (モウソウチク)の質量分布 (A01S)



図 16-1 測定に用いたタケノコ (モウソウチク)の濃度分布 (A01)



図 16-2 測定に用いたタケノコ (モウソウチク)の濃度分布 (A01S)



図 17-1 非破壊式装置(A01)による測定結果の Ge 検出器の結果との差 (モウソウチク)濃度は不可食部を含む平均濃度を表す。



図 17-2 非破壊式装置(A01S)による測定結果の Ge 検出器の結果との差 (モウソウチク)濃度は不可食部を含む平均濃度を表す。



図 18-1 非破壊式装置(A01)と Ge 検出器の測定結果による 99%予測区間 (モウソウチク)



図 18-2 非破壊式装置(A01S)と Ge 検出器の測定結果による 99%予測区間 (モウソウチク)







図 19-2 タケノコの可食部濃度の不可食部を含む試料全体の平均濃度に対する比の分布 (ネマガリタケ)



図 20 タケノコ (ネマガリタケ) 部位別濃度分布 (左) 及び重量分布 (右)



図 21-1 タケノコの可食部濃度の不可食部を含む試料全体の平均濃度に対する比の分布 (モウソウチク)



図 21-2 タケノコの可食部濃度の不可食部を含む試料全体の平均濃度に対する比の分布 (モウソウチク)



図 22 部位別の濃度測定に用いたタケノコ(モウソウチク) 試料



図 23 タケノコ (モウソウチク) 部位別濃度分布 (左) 及び重量分布 (右)



図 24 タケノコ (モウソウチク)の IP 画像

付属書1 不定形状試料に対する大口径γ線検出器の計数効率評価手法の検討

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に対 応した検出器レスポンスを評価するため、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。

#### 【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  $\epsilon_p(E,x,y,z)$ に対して、試料に対する計数効率  $\epsilon_v$ 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<sub>s</sub> 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" q×5" NaI(TI)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、Ep (*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 s1①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 (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 ɛ₂ (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 s1 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を含む溶液を円柱ポリ容器に詰めて実試料に代わるファントムとした。溶 液の充填量 200 g~2000 g に対してレスポンスを求めた。また、このファントムに対するレ スポンスを得られた計数効率の空間分布により式(1)から求め、ファントムの測定で得たレ スポンスと比較した。さらに、本法の不定形状試料に対しての適用の検討として、同形式の 5"φ×5"NaI(TI)シンチレーション検出器 (非破壊式放射能測定装置) で測定したマツタケ試料 の写真から形状を把握し、同様にマップからレスポンスを計算した。図 s2 に試料写真の例 を示す。この写真から形状を楕円錐台に近似し、各寸法を決定した。近似により得た寸法を 用い、式(1)のとおり $\varepsilon_{V}(E)$ を得た。

#### 【結果】

ファントム試料の溶液の各充填量に対する得られたマップデータに基づき計算で求めた レスポンスと実測で得たレスポンスのそれぞれの逆数を図 s3 に示す。図の通り充填量が多 くなるにつれその差が大きくなる結果となったが、その差は 10 %以内で一致した。一方、 マツタケ試料の結果を図 s4 に示す。また、用いた 5 試料の写真を図 s5 ここでは計算で得ら れたレスポンスと試料の測定により得たスペクトルからマツタケ中の放射性セシウム濃度 を求めた。その結果は、試料①④では Ge 検出器との差が少なく、②③⑤は 30%以上低い結 果となった。これは①④の試料形状が楕円錐台に近い形状であったのに対し、②③⑤は楕円 錐台近似が適切でなかったことによると考えられる。また、いずれも低めに評価される傾向 は、非破壊式装置の指示値も同様である。このことは形状の想定が異なることだけではなく、 写真画像からは検出器直上の試料一検出器間の空隙による影響も懸念された。



図 s1 *ε*<sub>p</sub> (E,x,y,z)の空間分布取得測定



図 s2 解析に用いたマツタケ試料の写真の例



図 s3 計算及び実測による 1/ε の比較 ●実測値 ×計算値



図 s4 Ge 検出器による測定値との比較 ●は計算により得たレスポンスを用いた結果 ●は 非破壊式装置で得られた指示値





図 s5 解析に用いたマツタケ試料写真