

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 4 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生化学部主任研究者

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 3 年及び 4 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、まつたけ及び皮付きたけのこ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 24 種 84 検体を比較測定した。これら野生キノコの 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、本年度を含む過去 4 年間（令和元年～4 年）のデータを用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、むきたけ、なめこ、ならたけについて、すでに非破壊式検査の適用種となっているまつたけと同等レベルのスクリーニングレベルが確保可能であることが分かった。

本研究成果により令和 5 年 3 月にむきたけ、なめこ、ならたけが「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[6][7][8]。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、破碎等の前処理をしない非破壊式装置について異なる機種 of 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[10]。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。これにより「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」が改正され、皮付きタケノコについて本手法による検査が可能となった。

令和4年度は非破壊検査が適用可能な野生キノコの種類のさらなる拡大について検討を進めた。

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—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、2 機種の非破壊式装

置を用いて福島県などで採取された実試料を用いて、破碎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。対象とする野生キノコの品目は、これまで検査ニーズを考慮し重点品目としてきたマイタケ、ムキタケ、ナラタケ及びナメコに加え、同様に検査ニーズの高い、シロシメジ、ヒラタケ、アミタケ、コウタケ、チチタケとした。ただし、その他の品目についても排除することなく測定比較の対象とした。

表 1 に野生キノコの測定に用いた非破壊式装置（形式：FF1 及び AFT-NDA2）を示す。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 2 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。試料の測定は 1 回の測定時間を 300 s とし、1 試料につき 4 回の繰り返し測定を行った。この際、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 1 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) 非破壊式放射能測定装置による野生キノコ測定における不確かさの要因分析

非破壊式装置による測定の場合、試料が

不定形状であることから一般的な容器に試料を詰めた測定では想定されない試料の形状変化等に起因した不確かさを見込む必要があると考えられる。一方で、一般的な手法と同様に試料の放射能に依存する計数統計による不確かさは、基準値の 100 Bq/kg 程度またはそれ以下の試料では支配的要因になりうると考えられる。そこで本研究では、放射能既知の線源の測定により計数統計に起因する不確かさを求め、野生キノコ試料の測定における測定結果のばらつきと比較検討した。

本研究では、NDA2 及び FF1 の 2 種非破壊式放射能測定装置を用いた。試料は、放射性セシウムを含む杉の葉から抽出した溶液を純水で希釈し、25~1000 Bq/kg の範囲の異なる濃度の溶液を調整し 250 mL ポリビンに充填した。測定する線源の放射能は 25、50、75、100、250、500、750 及び 1000 Bq とした。各線源は配置を固定したまま 4 回繰り返し測定し、4 回の平均と標準偏差から変動係数 C.V.を得た。

D. 実験結果及び考察

令和 4 年度は図 2 に示す野生キノコ全 24 種 84 検体を収集した。図 3 に本研究において過去 4 年間（令和元年度～4 年度）に収集した試料の種別と検体数を示す。検体数は 560 であり、そのうち 86 検体について放射性セシウムは検出されなかった（ND）。図 4 に試料種別ごとの濃度分布を示す。全数のうち 10 Bq/kg 超は 419 検体、50 Bq/kg を超えるものは 271 検体であった。さらに 260 Bq/kg 未満の検体数の種別分布を図 5 に示す。令和 3 年度の重点対象品目のうちマツタケ、マイタケを除くムキタケ、ナラタ

ケ及びナメコについて 20 検体を超える試料が 4 年間で確保できた。

(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

本検討に用いた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 6（FF1）及び図 7（NDA2）を示す。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。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。図 8 に 20 Bq/kg 超試料の 4 回測定の変動係数を示す。ここでは検体数 5 以上の品目について示した。ここに示す通り変動係数の平均値は 0.1~0.2 程度あった。このような避けざるばらつきの要因としては、計数の統計による不確かさも依然として見込まれるものの、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

る可能性があると考えられた。

図 8 に示した品目の各非破壊式装置と Ge 検出器による測定結果の比較を図 9 に示す。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。図 9 に示すように、クリタケを除き NDA2 では非破壊式による結果が Ge 検出器による結果より 7~30 %程度過小評価する傾向が確認された。FF1 による結果は、NDA2 と比較し高めに評価される傾向であったが、オオイチョウタケ、クリタケ、ナラタケ、マツタケ及びムラサキシメジで 6~10 %程度過小評価される傾向にあった。本研究における非破壊式装置での測定は、品目にかかわらず同一の条件によった。すなわち、いずれの非破壊式装置でも、試料品目に対応した放射能濃度換算係数を得るための試料量に対応した関数は共通のものを使用しているため、ここに示された差は、品目によって試料の嵩比重が系統的に異なることによる可能性があることが考えられた。

このことを踏まえ、マツタケ、ナメコ、ムキタケ及びナラタケについて試料の写真から嵩密度を推定した。この結果を図 10 に示す。ここでは各品目について 5~9 個の試料を解析に用いた。この結果により嵩密度は同一品目であっても幅があり、かつ品目間でもその違いがあることが確認出来た。一方で、ムキタケとナメコでは嵩密度に大きな違いがないものの、非破壊式の測定結果ではムキタケは過小評価されているのに対し、ナメコではそのような傾向はみられなかった。各品目別の試料の写真を図 11 に示す。これらによるとマツタケ及びムキタケでは試料底部に大きな空隙がみられること

がわかる。検出器直上の試料底部は計数効率が高いことから、この空隙も過小評価の要因となりうると考えられる。

(2) スクリーニング検査への適用への検討

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。

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

ここに、

- m_{UL} : 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
- V_e : 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
- $\bar{x}$: 回帰に用いた放射性セシウム濃度の平均
- S_{xx} : 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、測定に用いた試料のうち検出限界超～260 Bq/kg 程度の範囲試料の測定結果を用いた。ナラタケ、ムキタケ及びナメコの検討結果を図 12-1、2 及び 3 それぞれに示す。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、非破壊式の指示値相当のスクリーニングレベルは、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、44 Bq/kg を超えるスクリーニングレベルの設定が可能であり、すでに非破壊式装置による検査の対象品目となっているマツタケと同等の性能での検査が可能であることを示唆する結果が得られた。一方で、従来重点品目としていたマイタケは十分な試料数を確保できず、その検査への適用性の評価には至らなかった。

本試験で用いた試料の質量分布を図 13-1、2 及び 3 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付属書に収載する。

(3) その他の野生キノコ品目への適用に関する検討

本年度は、令和 2 年度より重点品目として

いたシロシメジ、ヒラタケ、アミタケ、コウタケ及びチチタケの検査への適用性について、同様の検討を行った。本年度確保した品目別の試料数は図 1 に示す通り、シロシメジ 10 検体、ヒラタケ 2 検体、アミタケ 0 検体、コウタケ 4 検体及びチチタケ 5 検体であった。これらに過去 3 か年に収集した検体を加えたすべての試料について、品目別の試料中の放射性セシウム濃度分布を得た結果を図 14. に示す。シロシメジはスクリーニングレベルの評価に供する濃度範囲の試料が収集出来たが、検体数の不足により適用性の評価には至らなかった。ヒラタケは検体数が 10 を超えたが、非破壊式装置により検出されたものは 4 件にとどまった。ヒラタケの濃度分布は多くが 20 Bq/kg であった。田上らの調査においてヒラタケは放射性セシウム濃度の低い品目であり[11]、これまでの同様の手法による適用性評価を行うには、適切な濃度の試料の収集が必要である。一方、コウタケは同文献においても高濃度の品目とされ、本研究により収集された試料も高濃度のものが多数を占め、適用性の評価には至らなかった。アミタケ、チチタケは検体数が十分確保出来ず適用性の評価が行えなかった。

(4) 非破壊式放射能測定装置による野生キノコ測定における不確かさの要因分析

図 15. に放射能既知の線源(25~500 Bq)の測定により得た 変動係数 (C.V.) の放射能との関係を示す。放射能の増加と共に C.V. は減少し、このばらつきはほぼ計数統計の不確かさに起因するものと推察された。一方で 2 機種を比較すると、NDA の方が顕著に 変動係数が相対的に大きい結果とな

った。これは装置のハードの違いだけでなく、スペクトル解析のアルゴリズムの違いも反映されている可能性があると考えられ、その要因分析にはさらなるスペクトル解析による分析が必要であることが見込まれた。図 16-1 (FF1) 及び-2 (NDA 2) に 2019~2021 年度に福島県等で採取された野生キノコ (マツタケ、ムキタケ、ナラタケ、ナメコ、コウタケ) 試料の 4 回の繰り返し測定により得た 変動係数との図 15 で示した変動係数の比較を示す。この時の繰り返し測定は測定の都度、試料を攪拌し設置している。すなわち試料の形状は測定のとおり異なり計数統計による不確かさ以外に、形状の変化等の試料に起因する不確かさも含まれていると考えられる。図の通り、野生キノコ測定で得られた変動係数は放射能既知試料で得られた変動係数と同等又はそれ以下で、放射能に起因する不確かさにそのばらつきが包含される試料が多い一方、これを超える試料も多数見られた。これらについて試料の品目別に分析し、野生キノコ試料の実測時の変動係数が標準試料測定における変動係数を超える試料数の割合を求めた。結果を図 17 に示す。ここに示す通り、この割合は試料の品目に応じて異なり、キノコの種類に応じて試料放射能に依存する計数統計の不確かさ以外に起因する不確かさの程度が異なる可能性があることが示唆された。

(5) 検査法の提案

以上の検討結果より、これまでのマツタケ、タケノコに加え、ムキタケ、ナラタケ及びナメコについても非破壊式検査法の対象品目とすることを提案し、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5年3月30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る。

E. 結論

本研究では、異なる機種の子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、品目や装置の種類によって差はあるものの、多くの野生キノコに対して子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子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 40～70 Bq/kg 程度の範囲にあった。

以上の結果から、ムキタケ、ナメコ及びナラ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、「子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。

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。子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。本結果に示した品目別の子破壊式装置による結果の Ge 検出器による結果との差の傾向は、それが可能であることを示唆するものといえる。これには今後、さらに試料数が不足する品目については試料数を増やし評価に足る統計精度を確保する、加えて、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及び4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 [12][13]。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

る測定のは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.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] 文部科学省・原子力規制庁 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.adfutech.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

[10] 厚生労働省 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、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(令和3年3月26日付け厚生労働省医薬・生活衛生局食品監視安全課事務連絡)

[11] 田上恵子、内田滋夫 自然環境下において放射性セシウム濃度が低いキノコの種類の推定 RADIOISOTOPES, 66, 277–287 (2017)

[12] 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

[13] 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徑 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

F. 研究発表

1. 論文発表

Takahiro Yamada, Katsumasa Furutaka,
Mayumi Hachinohe, Akiko Hachisuka
Applicability of non-destructive
equipment for radioactivity
measurement to screening radio-
cesium in foods
Applied Radiation and Isotopes 194
110671-110671 2023 年 1 月

2. 学会発表

- [1] Takahiro Yamada, Katsumasa
Furutaka, Mayumi Hachinohe, Akiko
Hachisuka
UNCERTAINTY DETERMINATION
FOR SCREENING OF
RADIOCESIUM IN FOODS
WITHOUT SAMPLE PREPARATION
PROCEDURE
the ICRM-LLRMT 2022, the 8th
international conference on radionuclide
metrology - low level radioactivity
measurement techniques 2022 年 5 月 4 日
- [2] Takahiro Yamada, Katsumasa
Furutaka, Naoto Yamashita, Mayumi
Hachinohe, Akiko Hachisuka
RESEARCH PROJECT ON THE
DEVELOPMENT OF EVALUATION
METHODS FOR INSPECTION
SYSTEMS OF RADIOACTIVE
MATERIALS IN FOODS
the ICRM-LLRMT 2022, the 8th
international conference on radionuclide
metrology - low level radioactivity
measurement techniques 2022 年 5 月 4 日
- [3] 古高 克昌, 山田 崇裕

食品中の非破壊式放射能測定における計数
効率の不確かさに関する検討
第 59 回アイソトープ・放射線研究発表
会 2022/7/6
[4] 古高克昌, 崎山翔弥斗, 山田崇裕
非破壊式放射能測定装置による野生キノコ
測定における不確かさの要因分析
第 4 回日本保健物理学会日本放射線安全
管理学会合同大会 2022/11/25

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

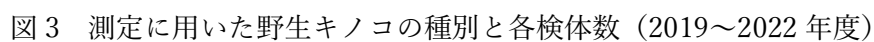
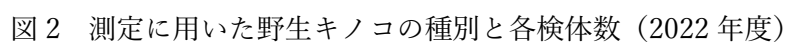
装置名	形式	検出器の種類 及びサイズ	しゃへい 体	製造元
非破壊式放射能 測定装置	FF1	NaI(Tl) ϕ 5.08x5.08cm 7本	鉛 50mm	日栄工業(株)
そのままはかる NDA2	AFT- NDA2	NaI(Tl) ϕ 12.7x12.7cm	鉛 35～ 50mm	(株)アドフューテック

表2 非破壊式装置のスクリーニングレベル評価結果

	試料種別	FF1	AFT-NDA2
スクリーニングレベル指示値 Bq/kg	ムキタケ	65	34
	ナメコ	68	47
	ナラタケ	64	46
スクリーニングレベル指示値 の濃度換算値 Bq/kg	ムキタケ	66	44
	ナメコ	63	53
	ナラタケ	71	60



図1 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))



Distribution of activity concentration (2019-2022)

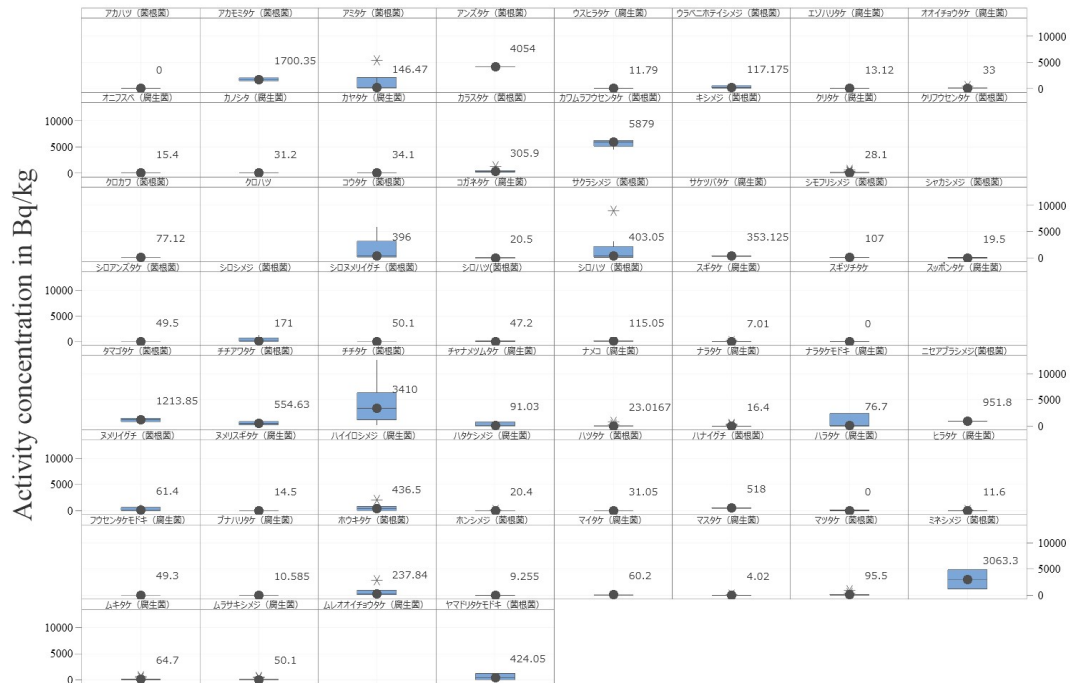


図4 測定に用いたキノコの種別毎の濃度分布(個別値のプロット) 数値は中央値

<260 Bq/kg

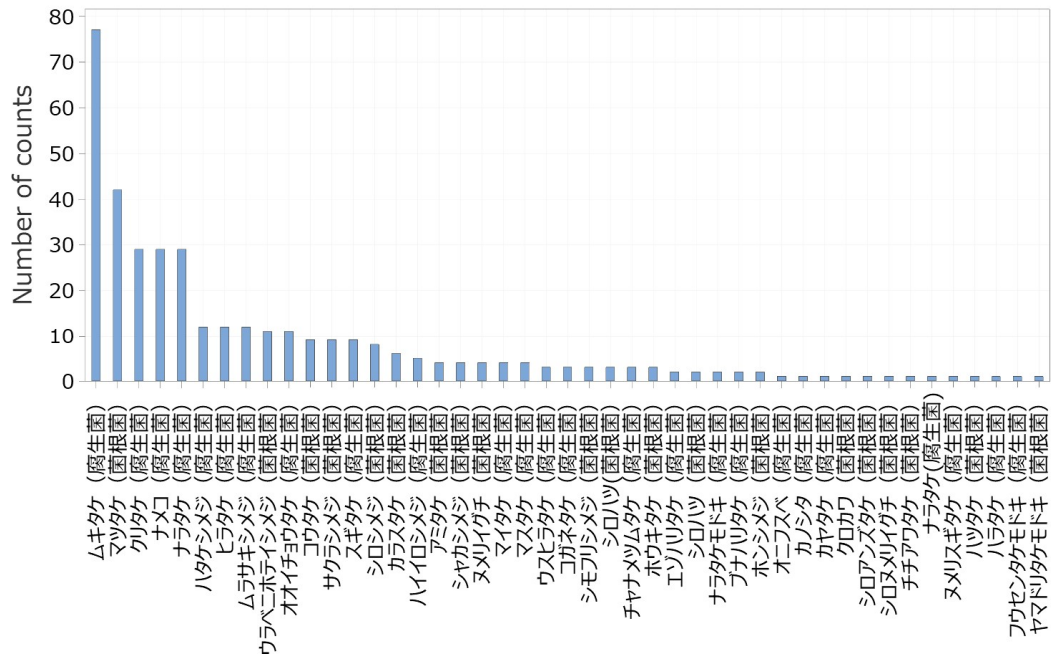


図5 測定に用いた 260Bq/kg 未満の野生キノコの種別検体数 (2019～2022 年度)

ウラベニホテイシメジ

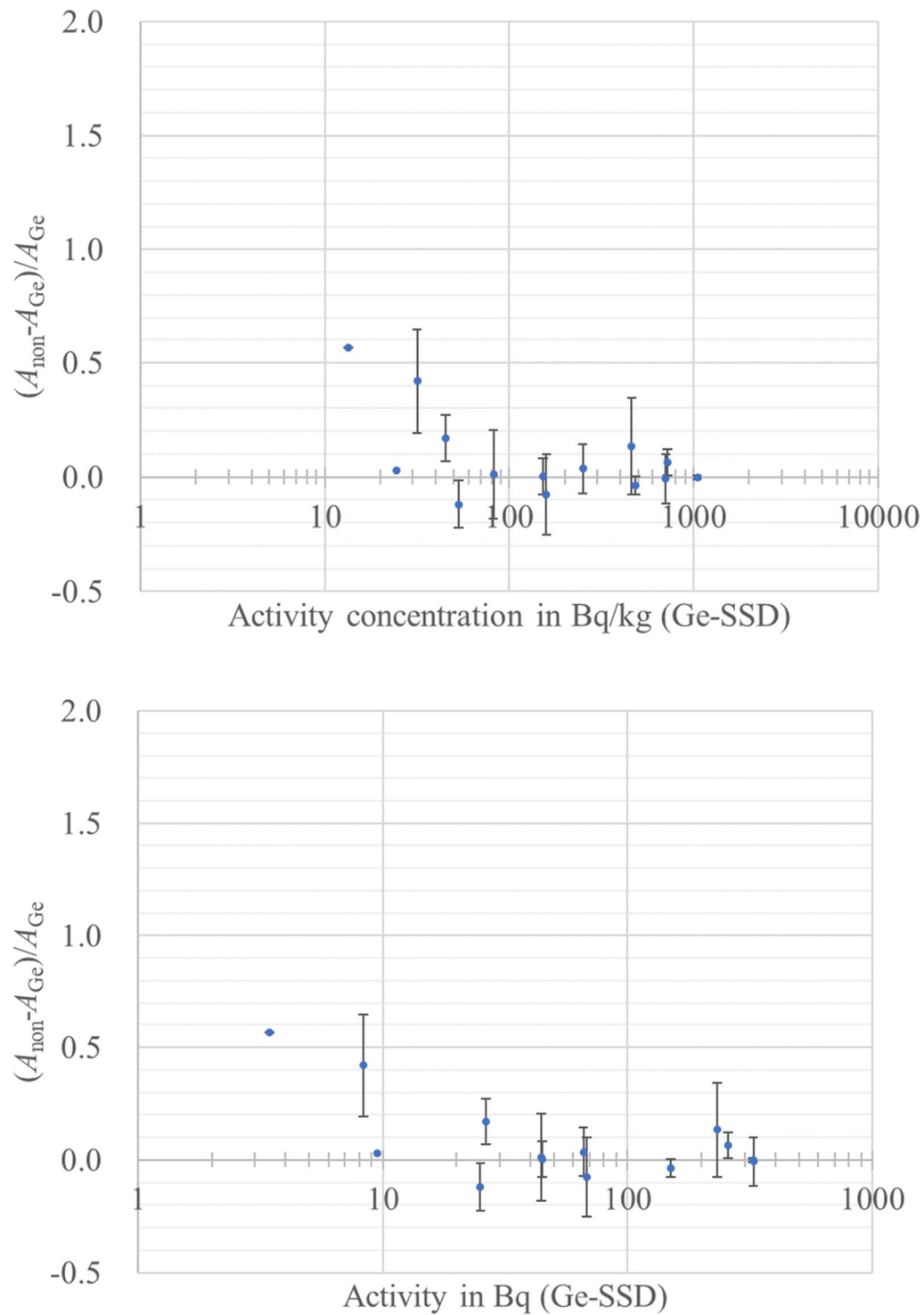


図6 非破壊式装置（FF1）による測定結果のGe検出器の結果
（上段：放射能濃度 下段：放射能）との差

オオイチョウタケ

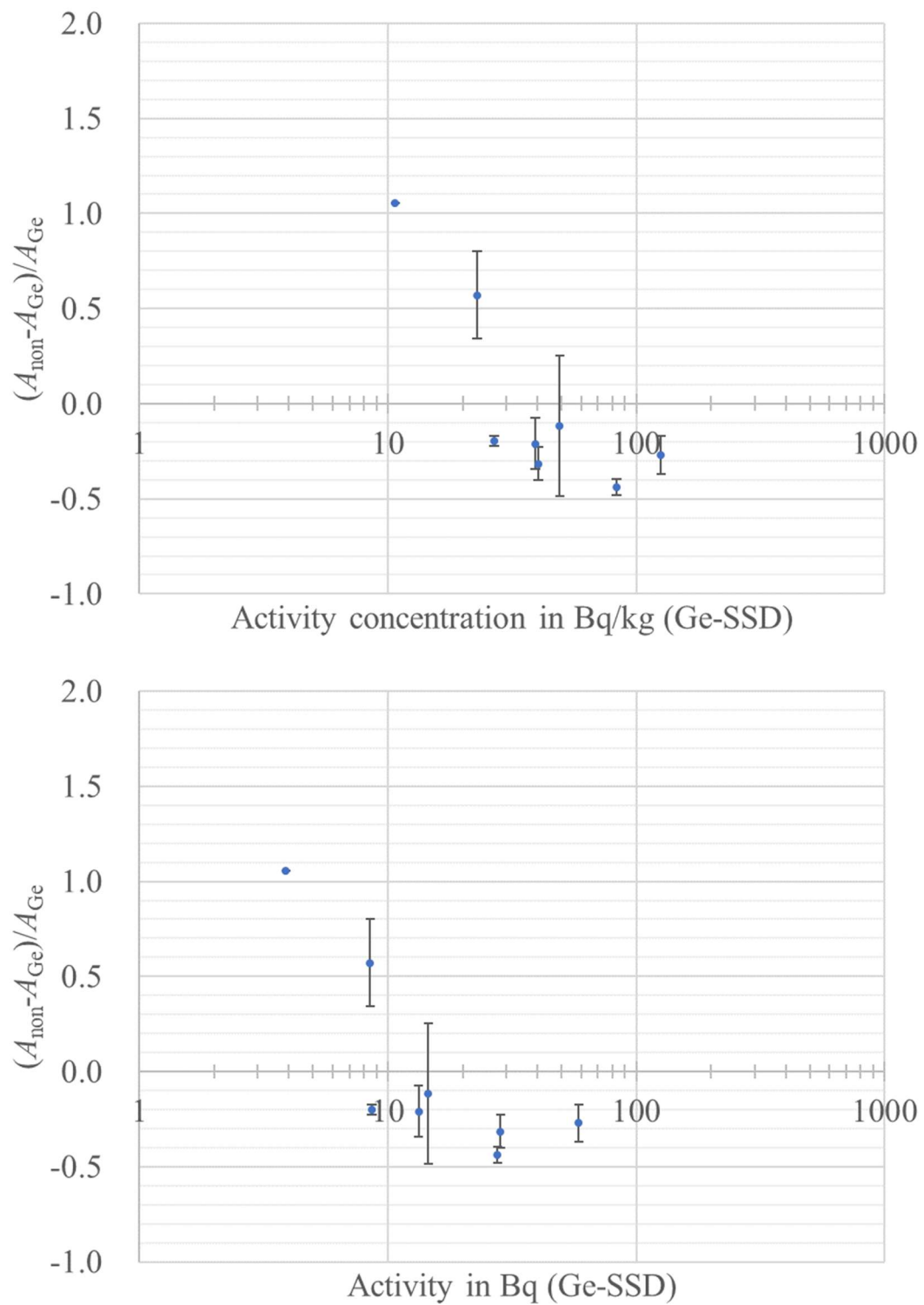


図 6 続き

クリタケ

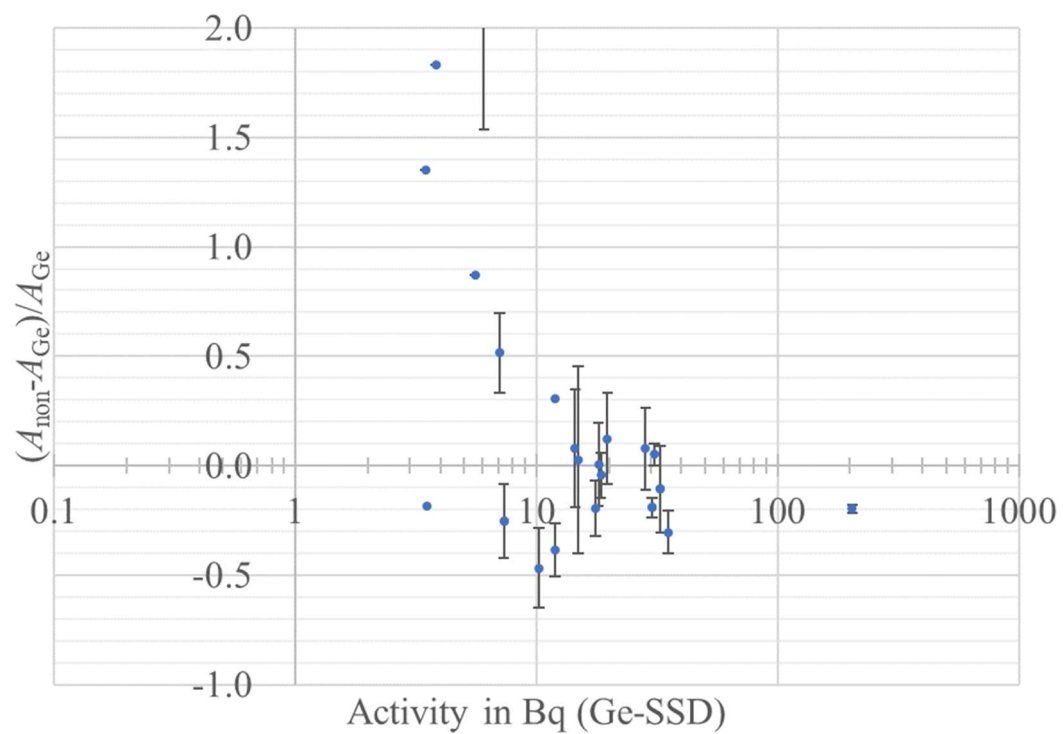
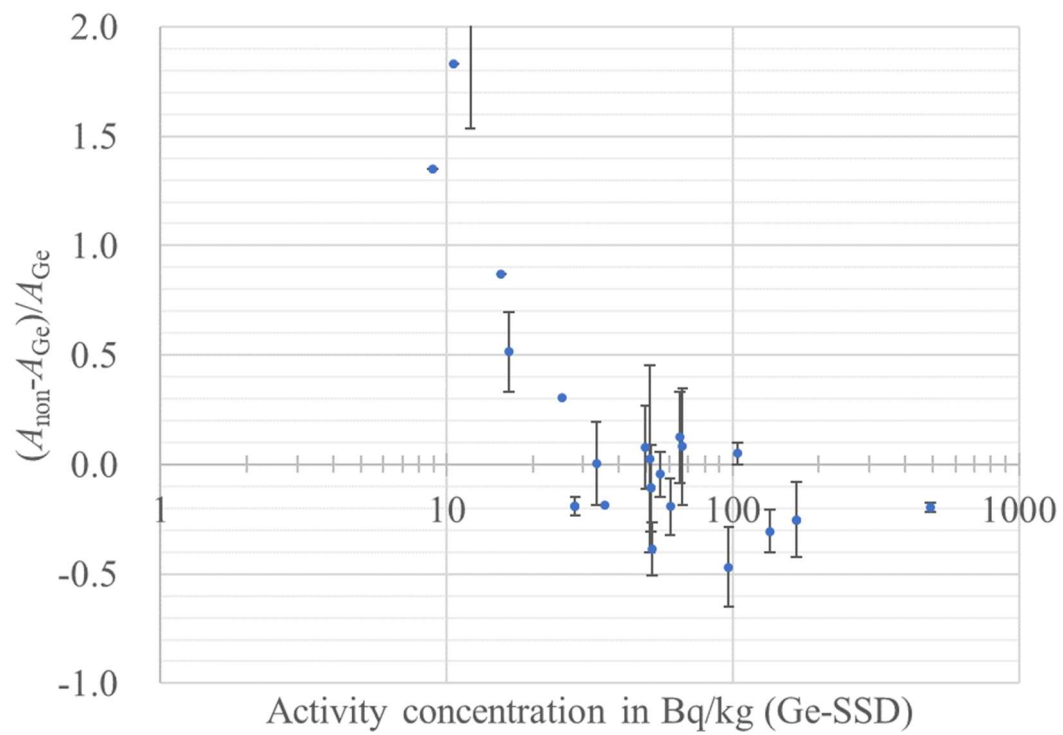


図 6 続き

スギタケ

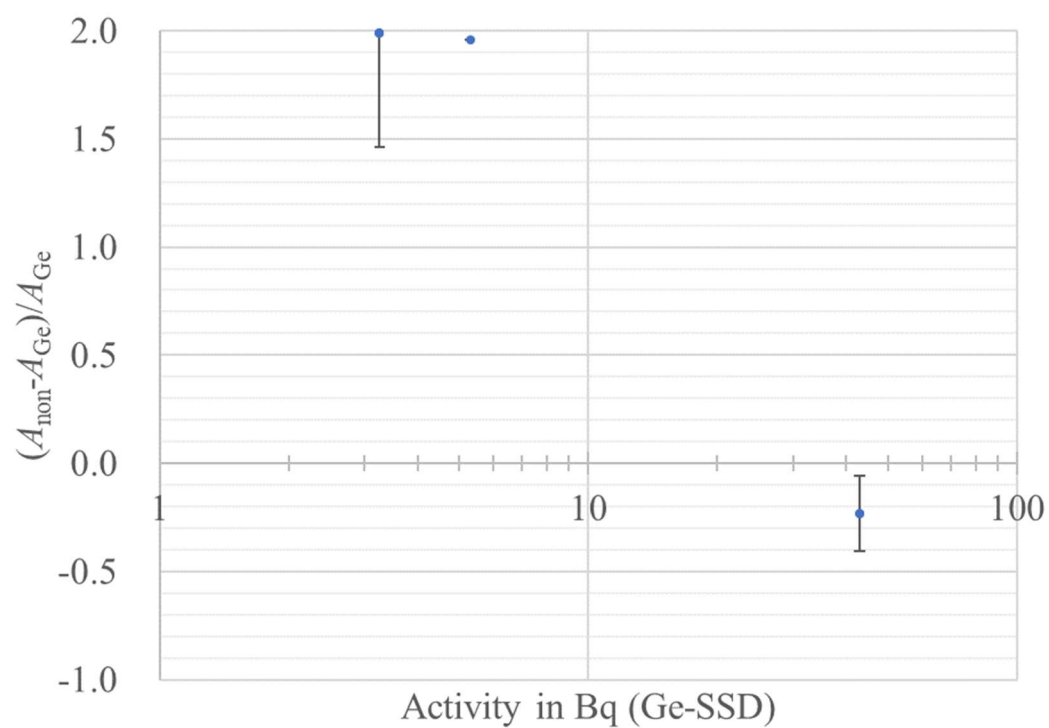
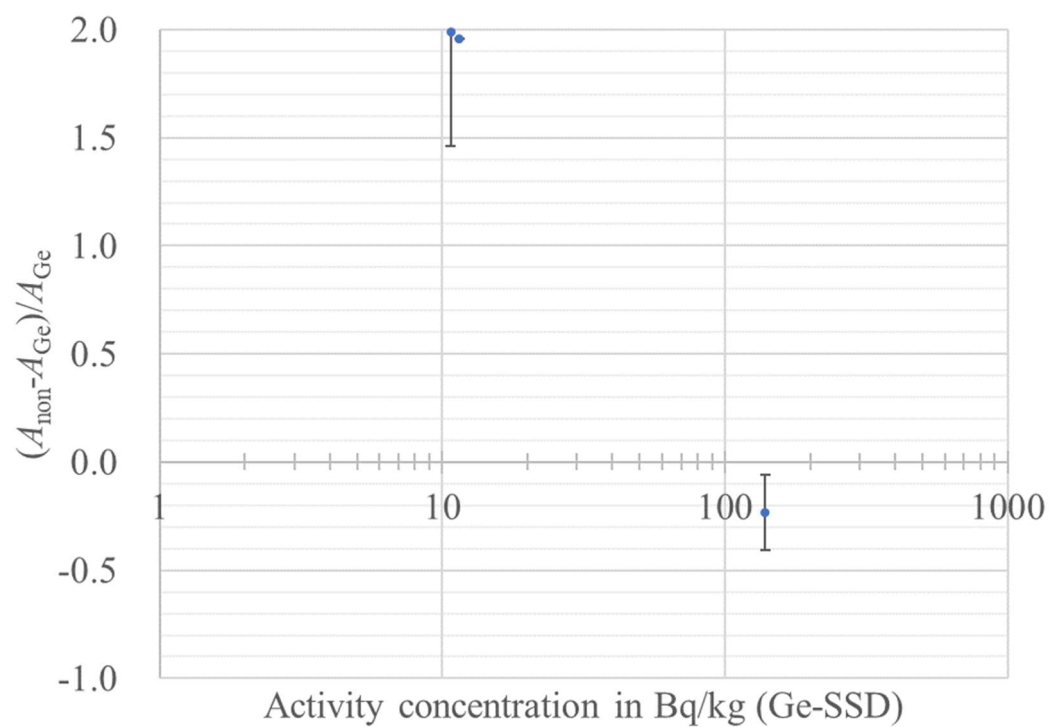


図 6 続き

ナメコ

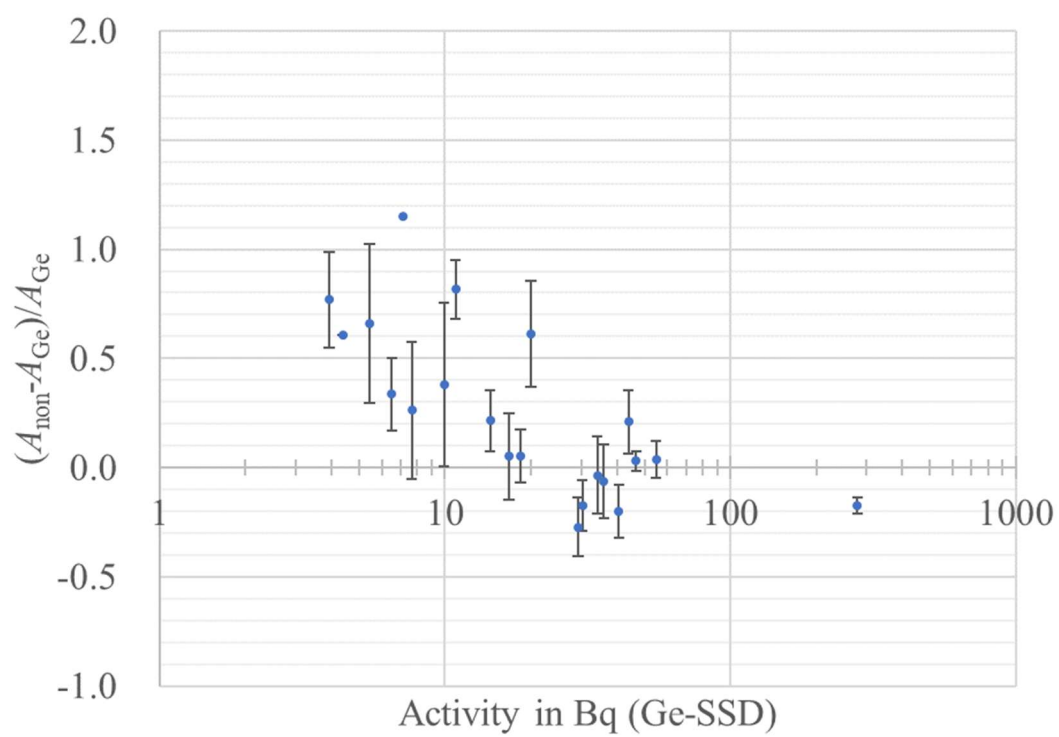
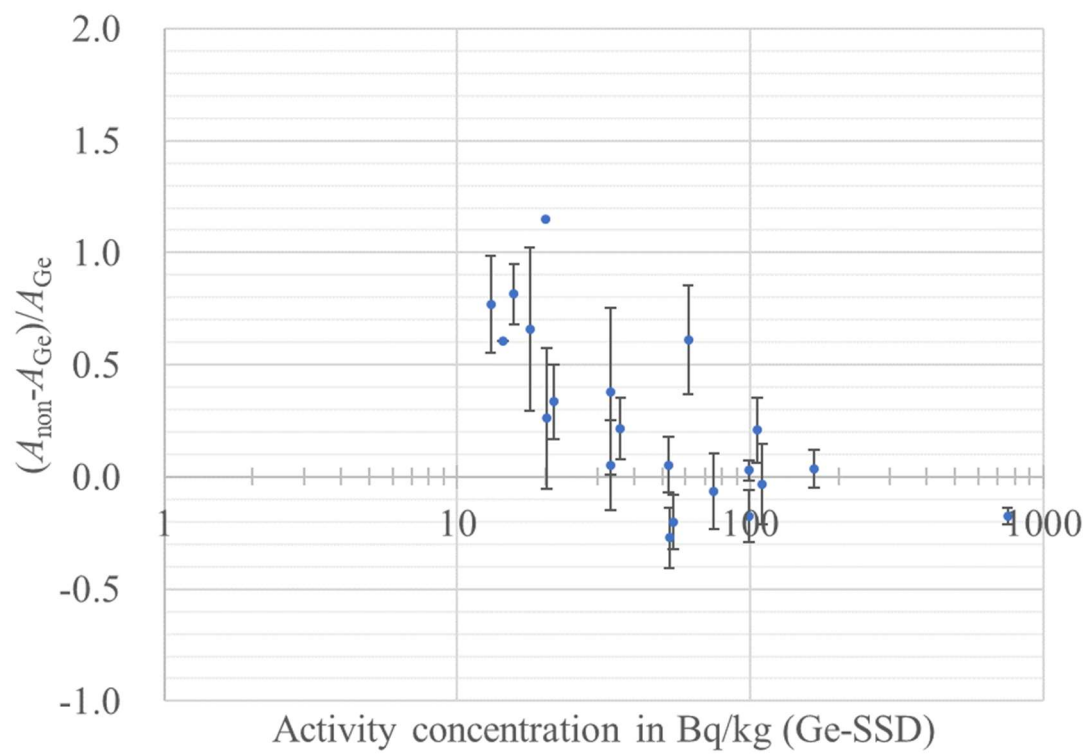


図 6 続き

ナラタケ

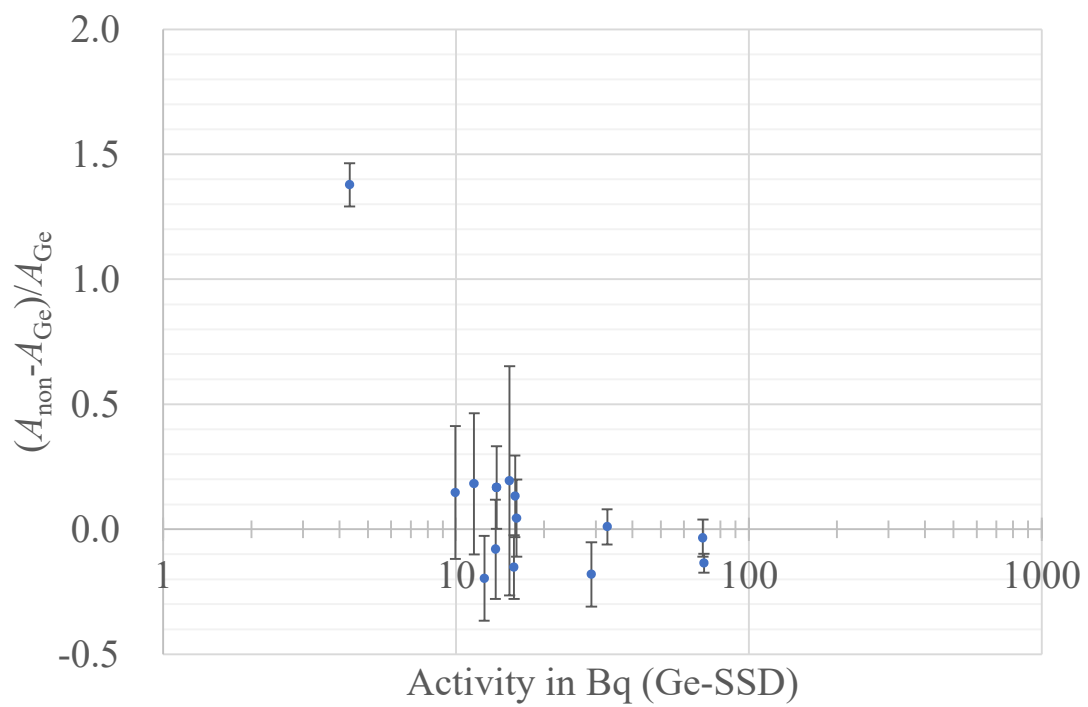
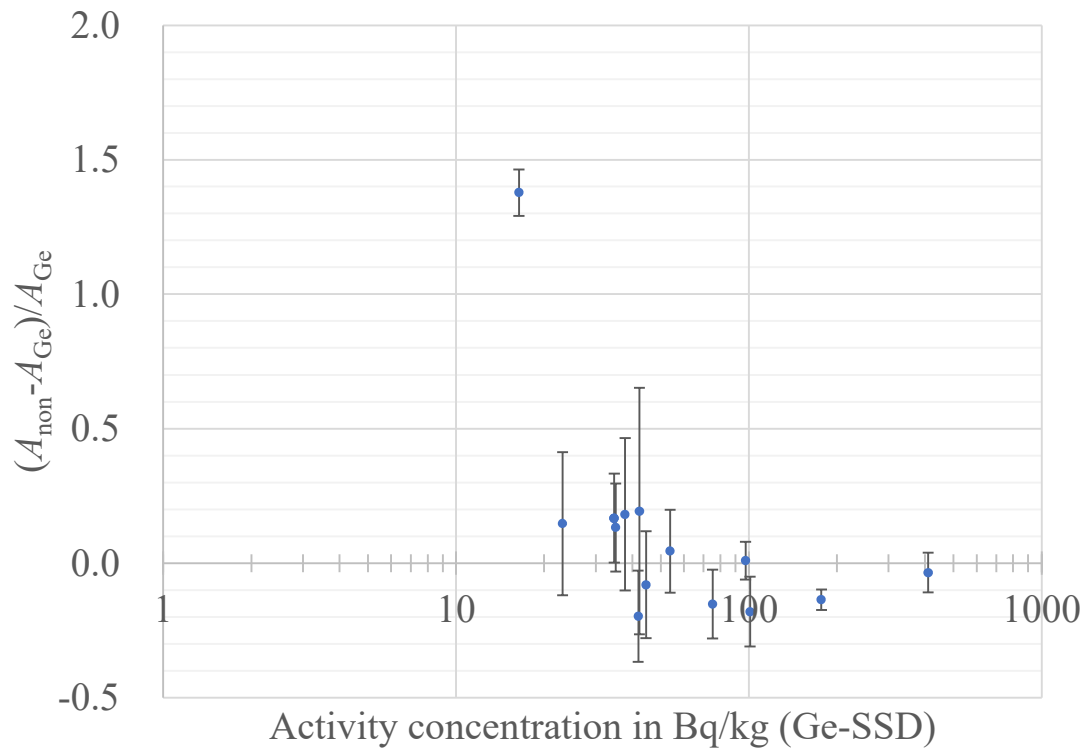


図 6 続き

ハタケシメジ

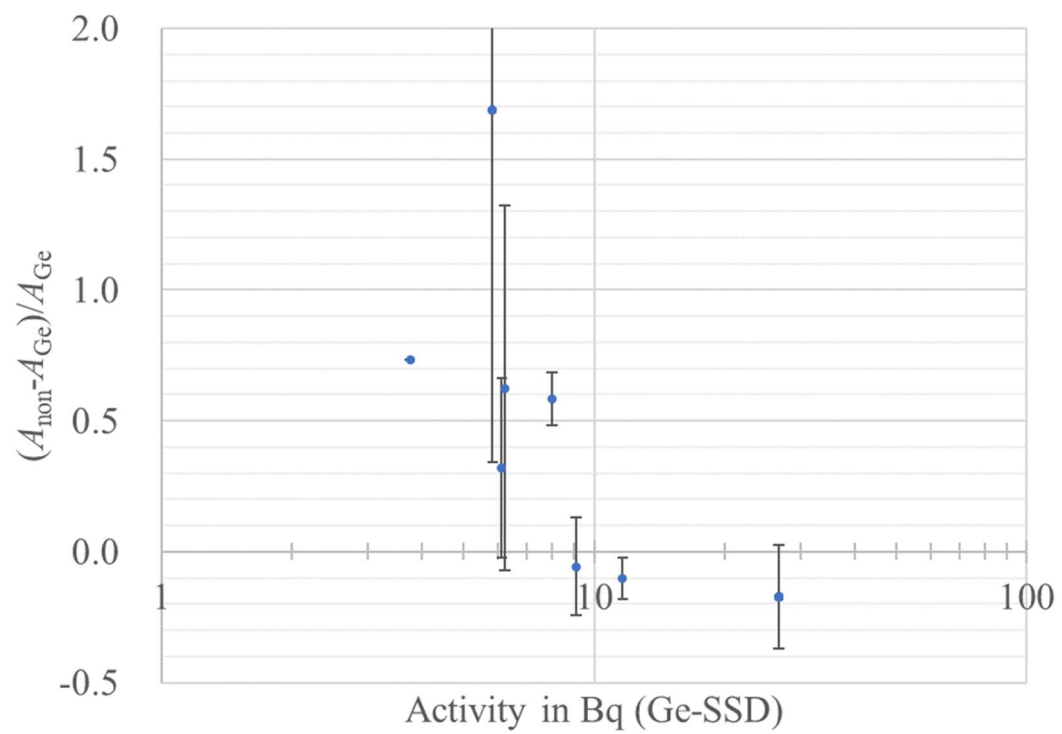
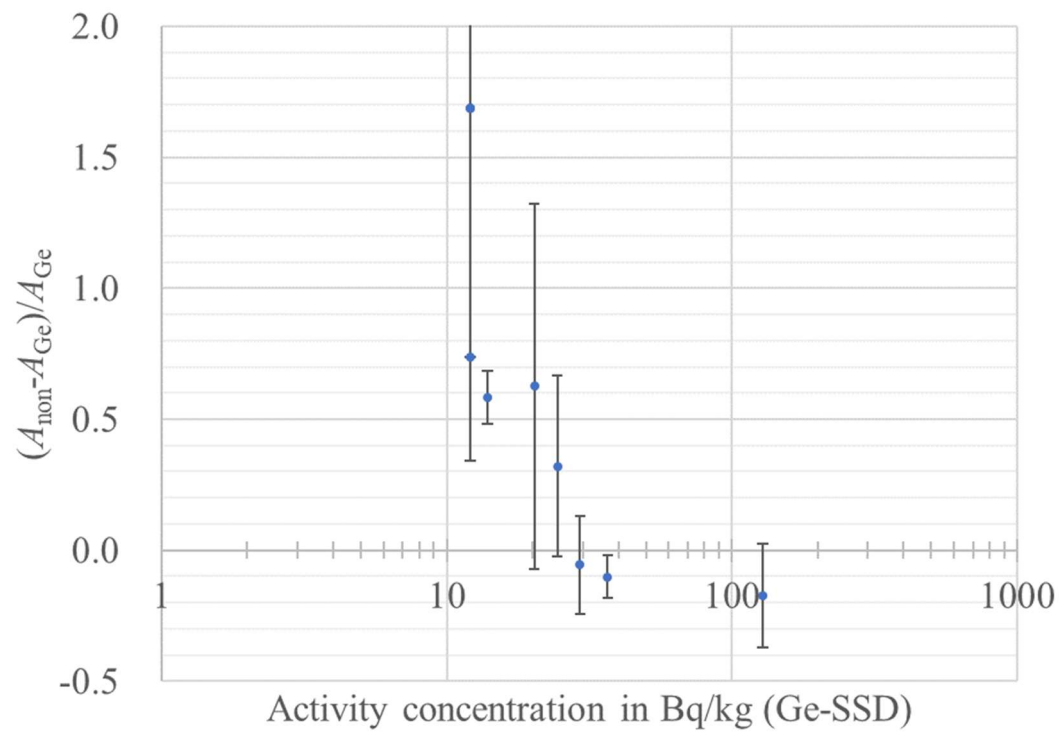


図 6 続き

ヒラタケ

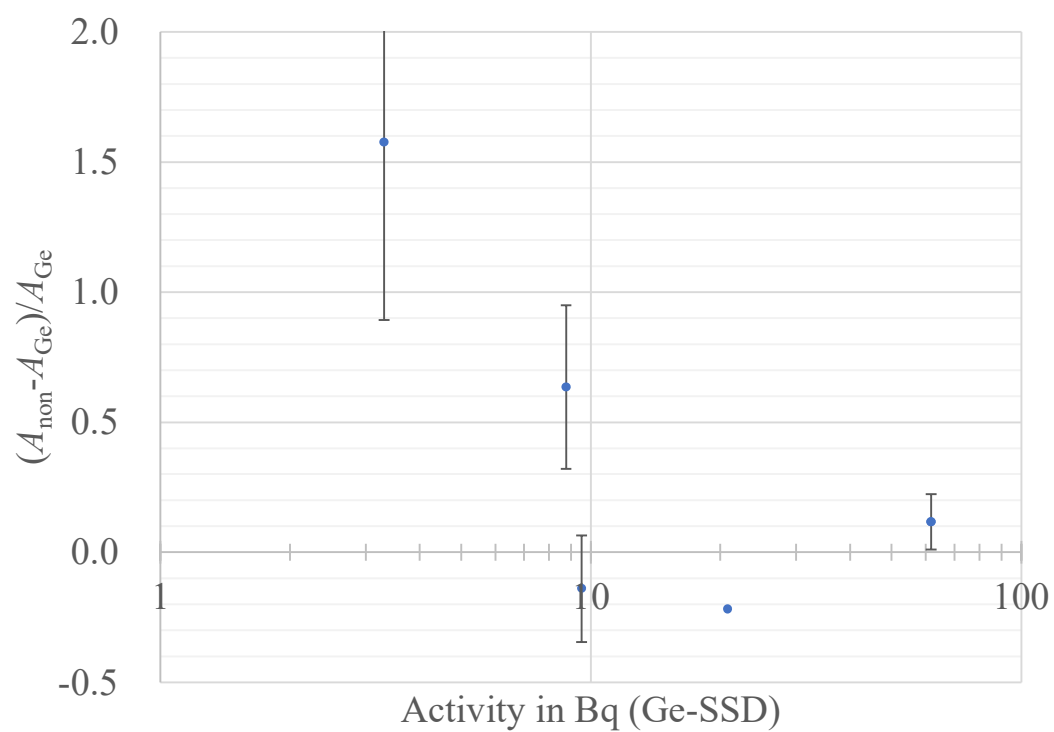
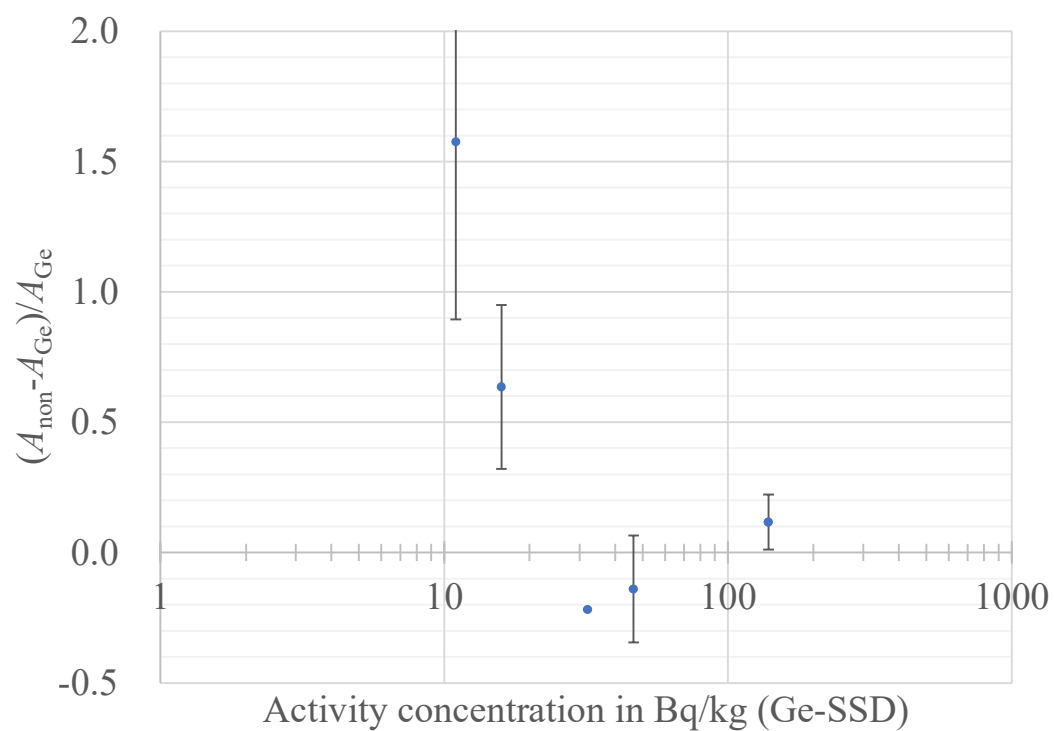


図 6 続き

マツタケ

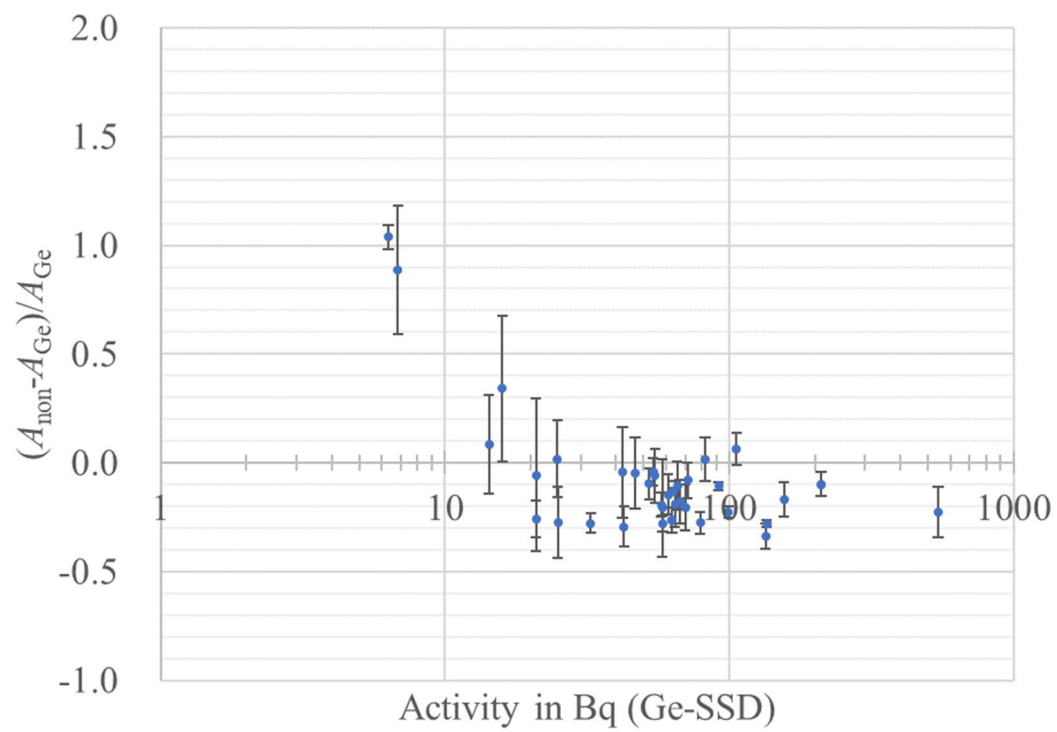
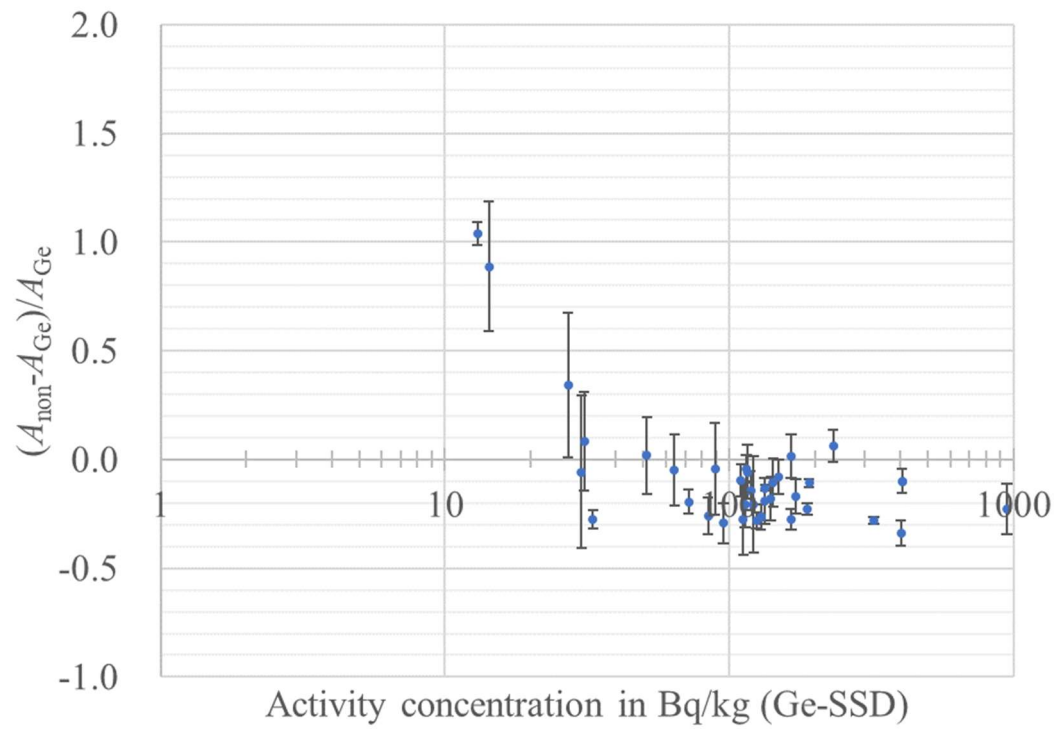


図 6 続き

ムキタケ

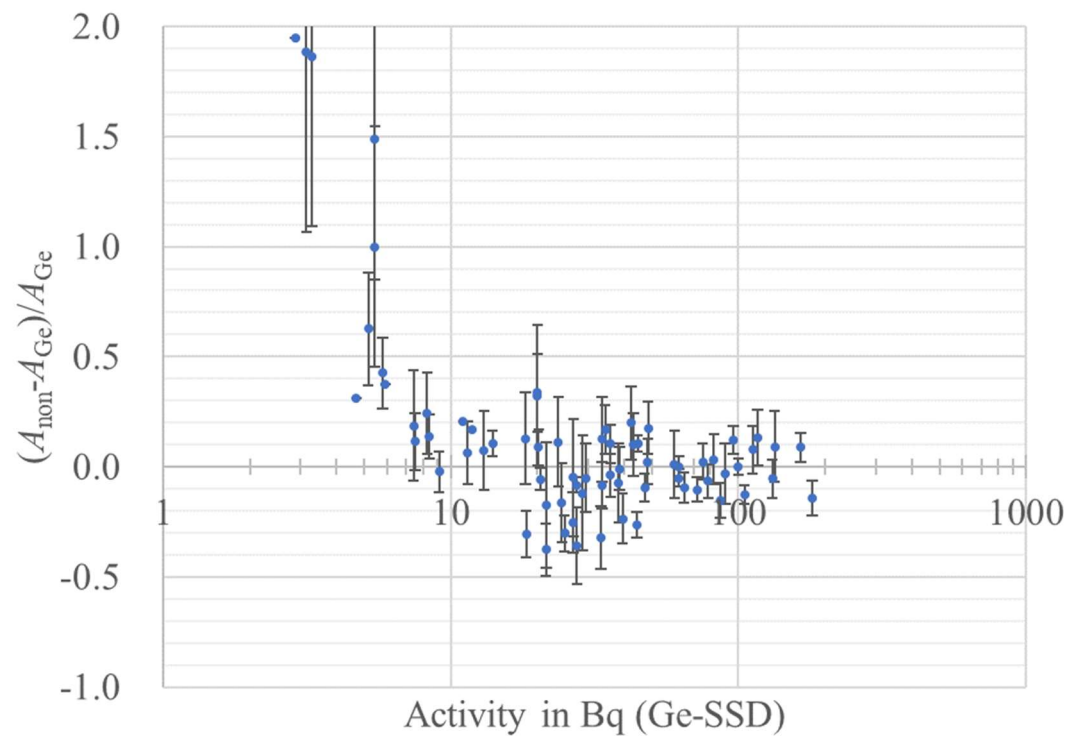
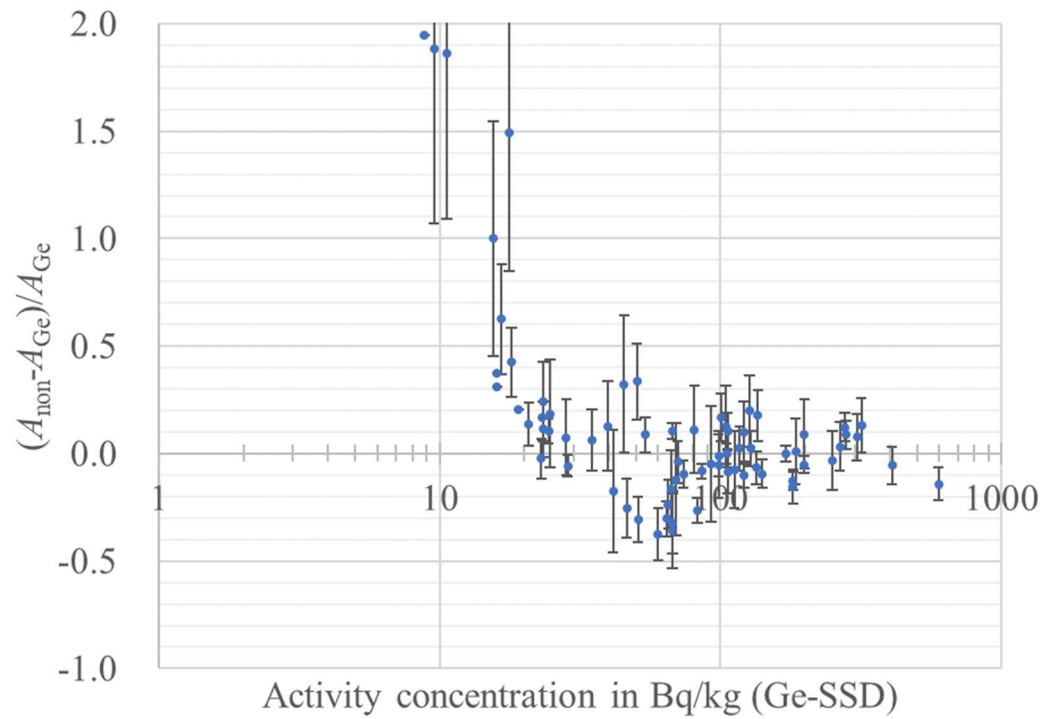


図 6 続き

ムラサキシメジ

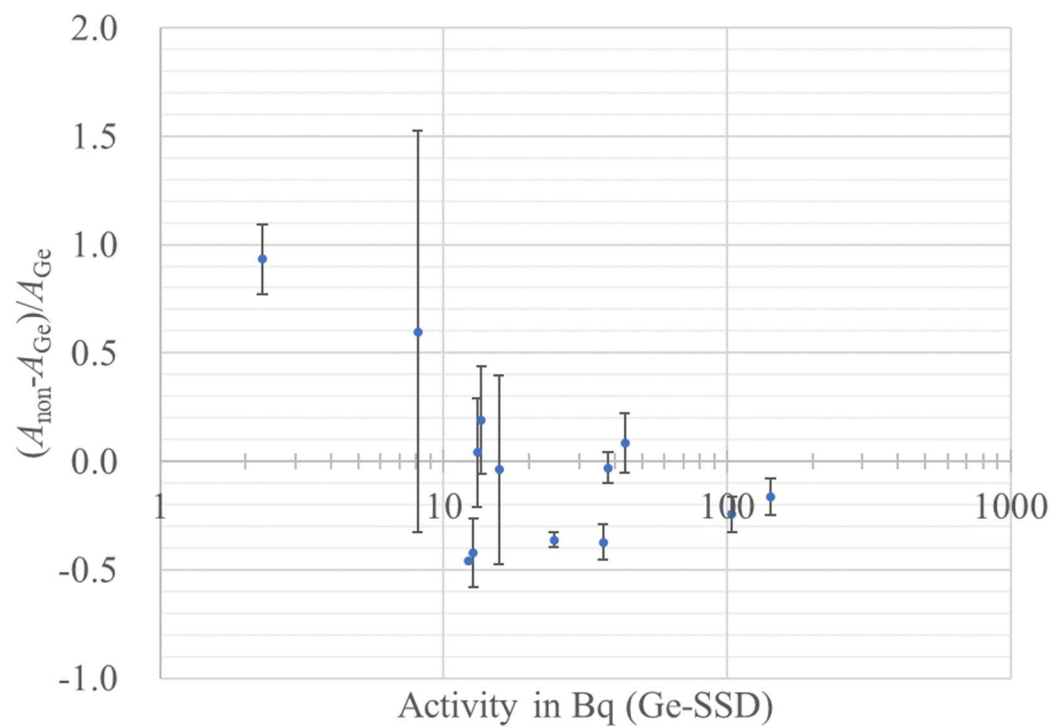
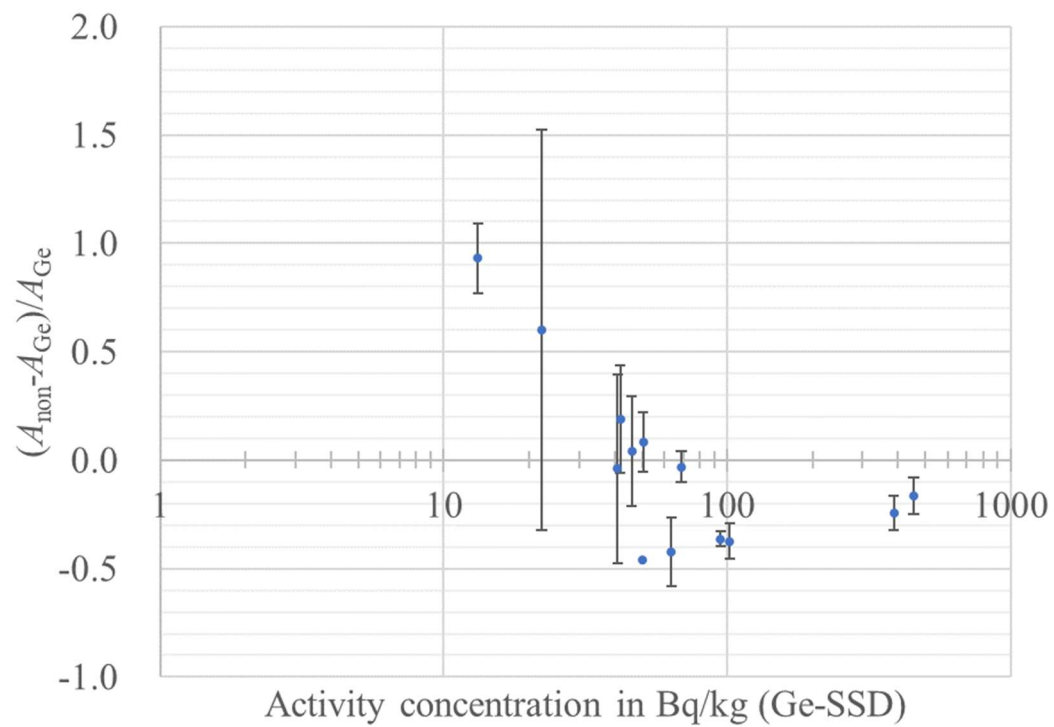


図 6 続き

ウラベニホテイシメジ

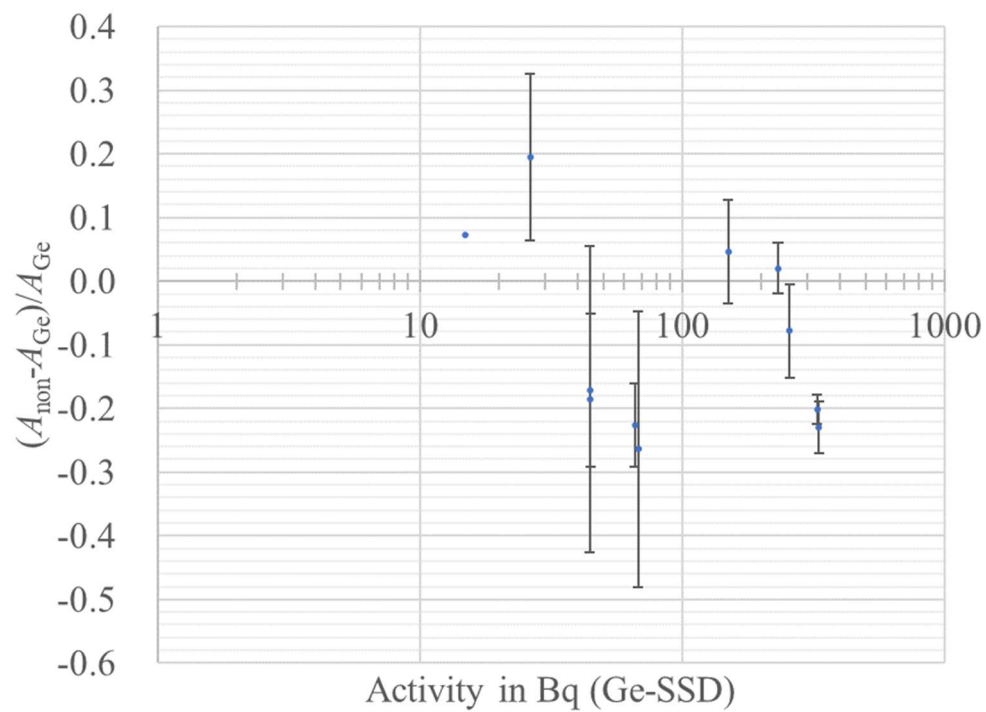
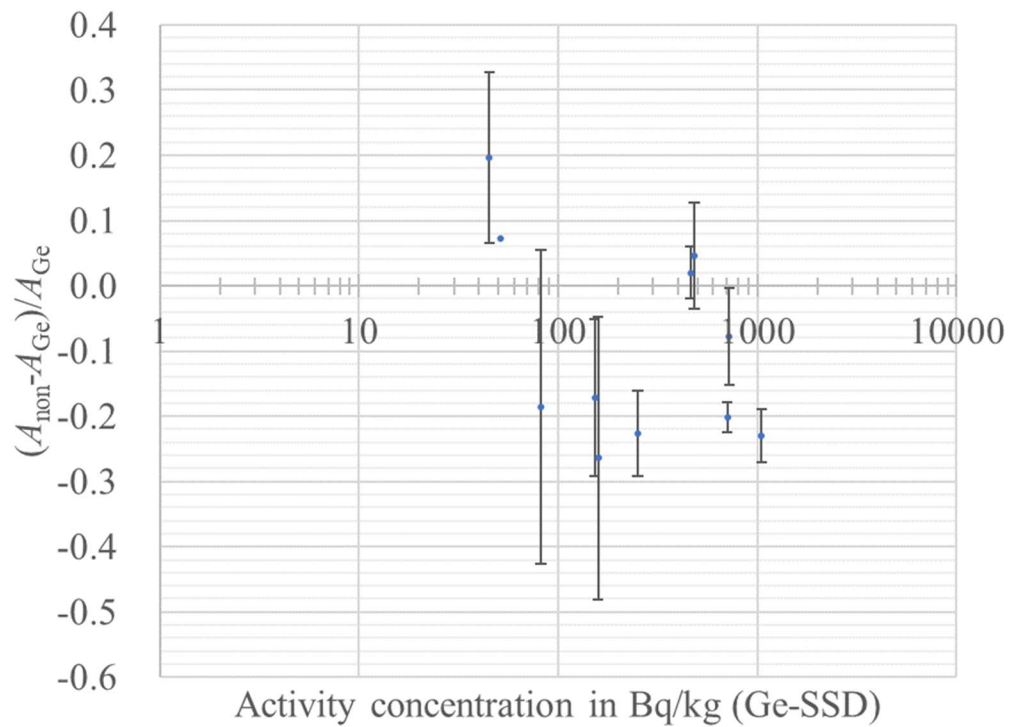
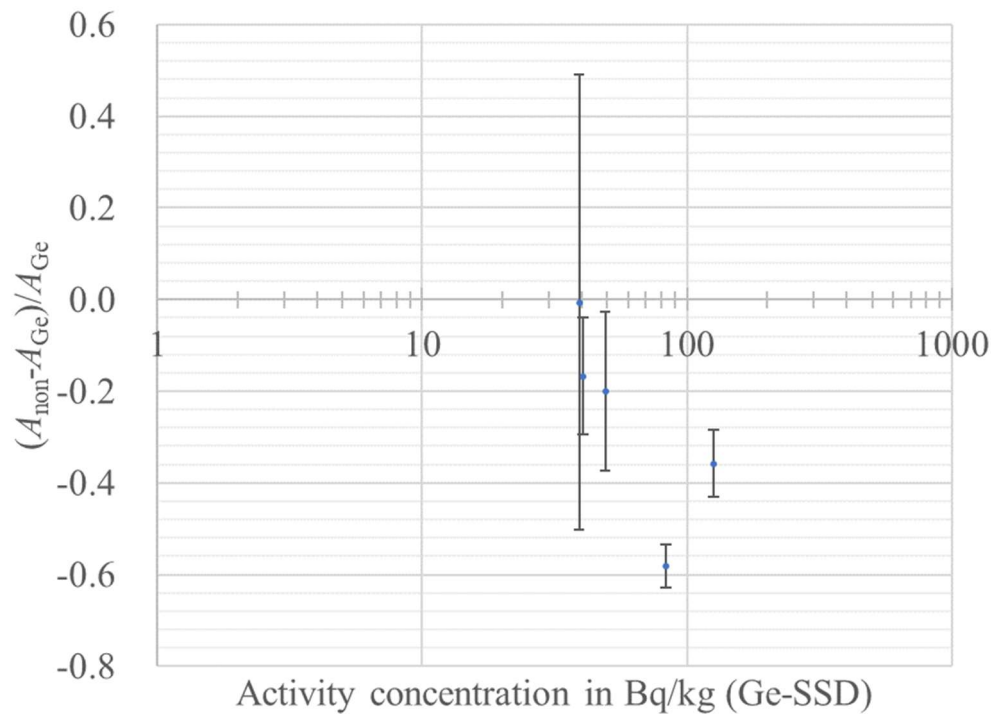


図7 非破壊式装置（NDA2）による測定結果の Ge 検出器の結果
（上段：放射能濃度 下段：放射能）との差

オオイチョウタケ



クリタケ

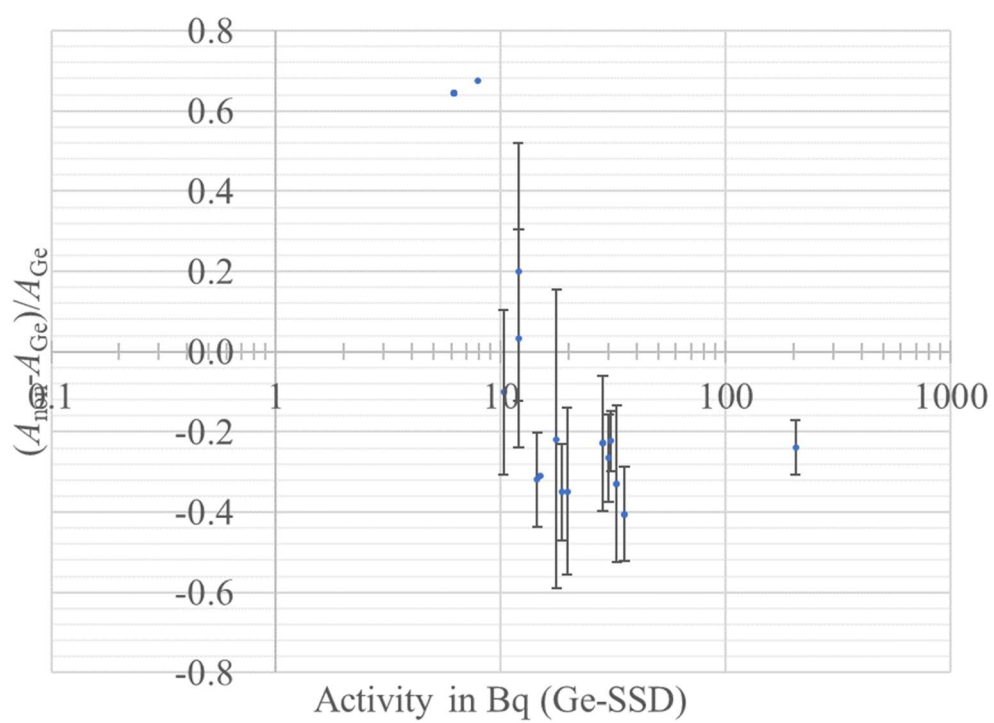
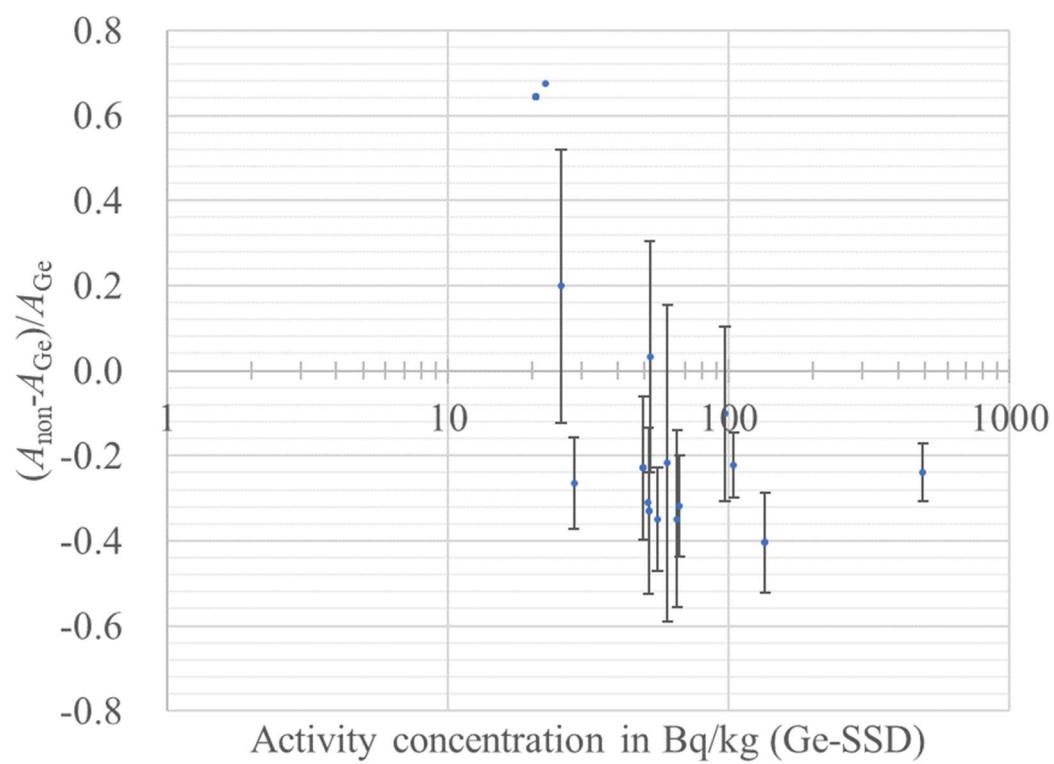


図 7 続き

スギタケ

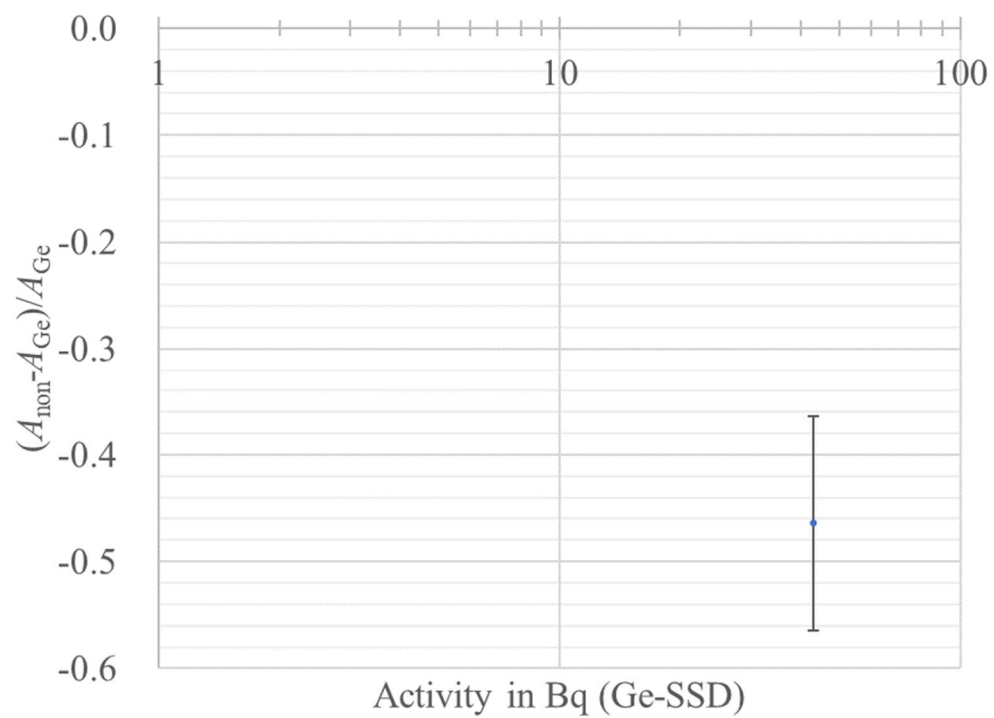
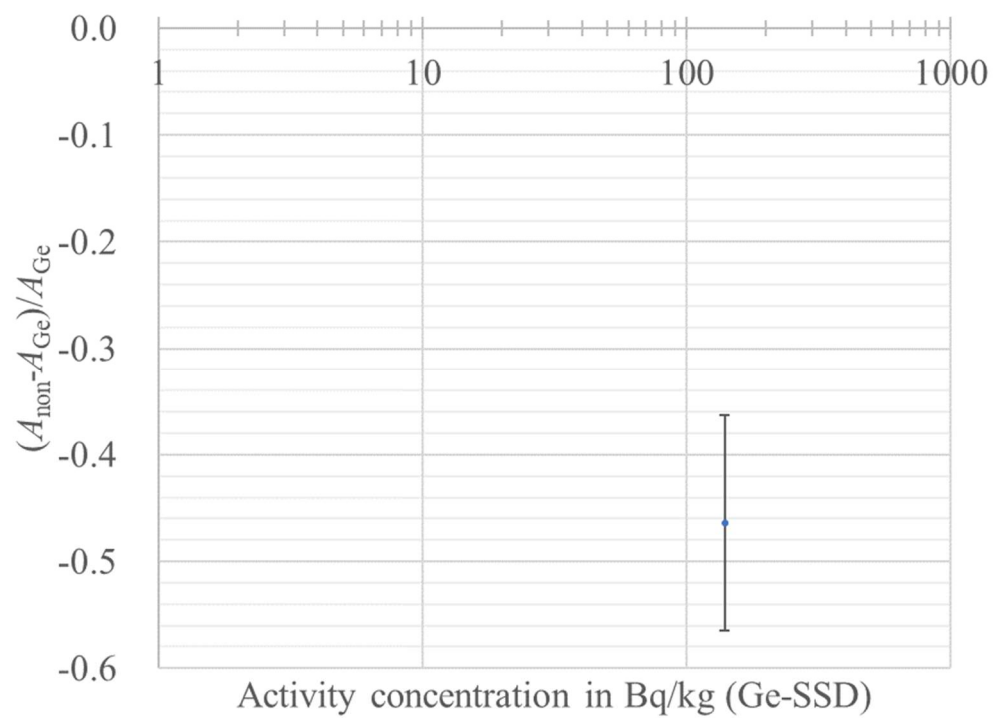


図 7 続き

ナメコ

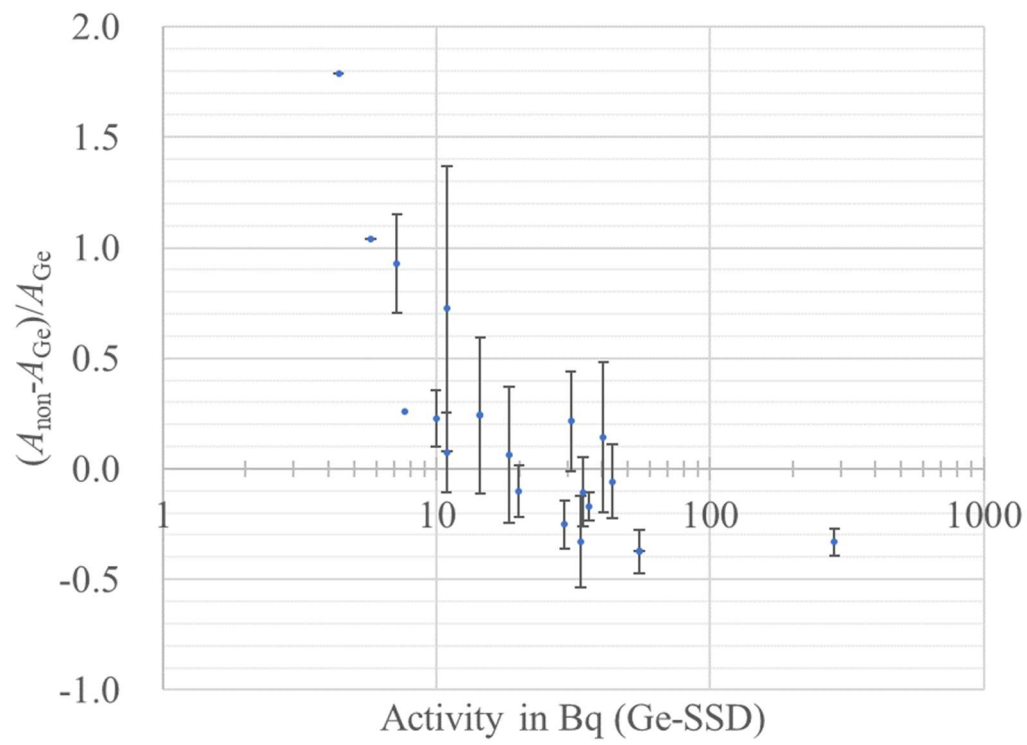
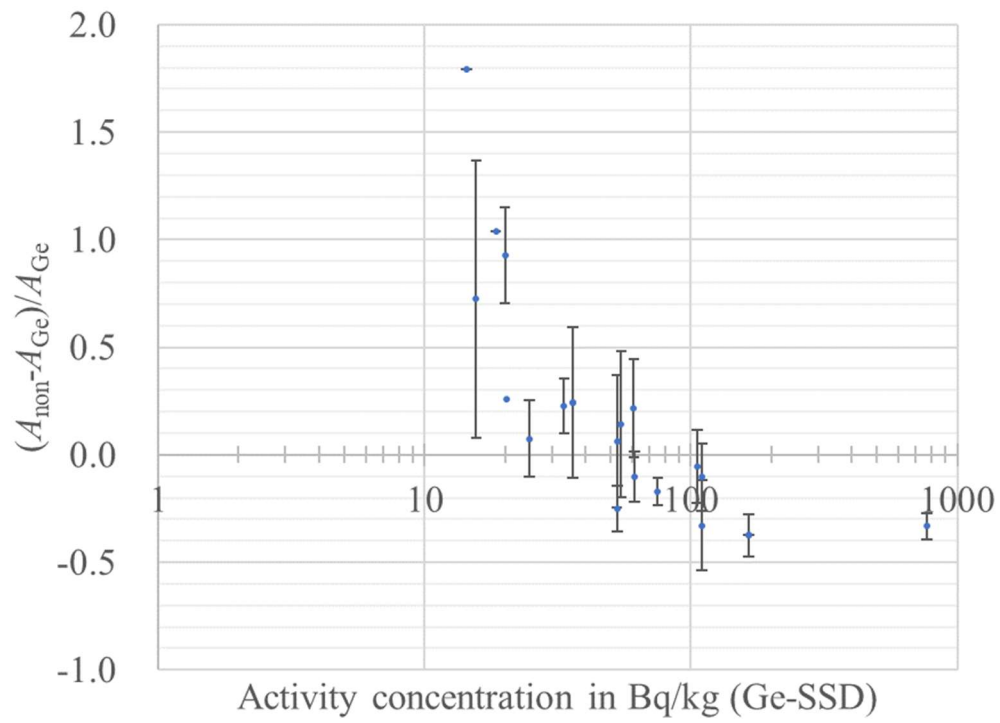


図 7 続き

ナラタケ

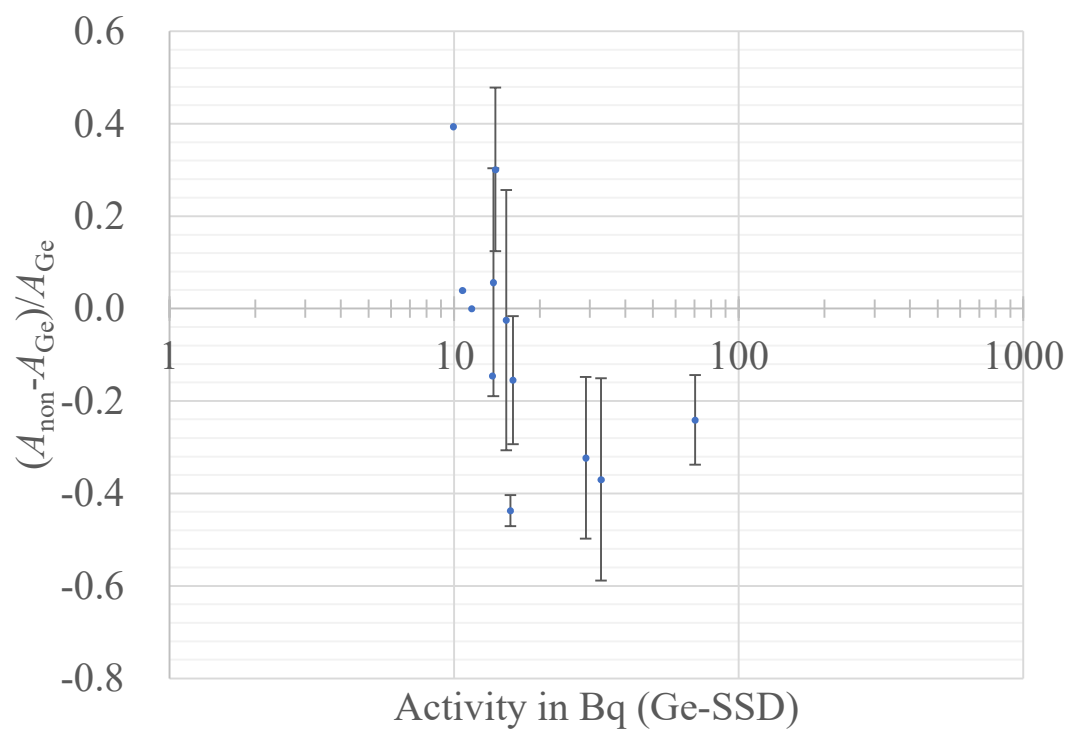
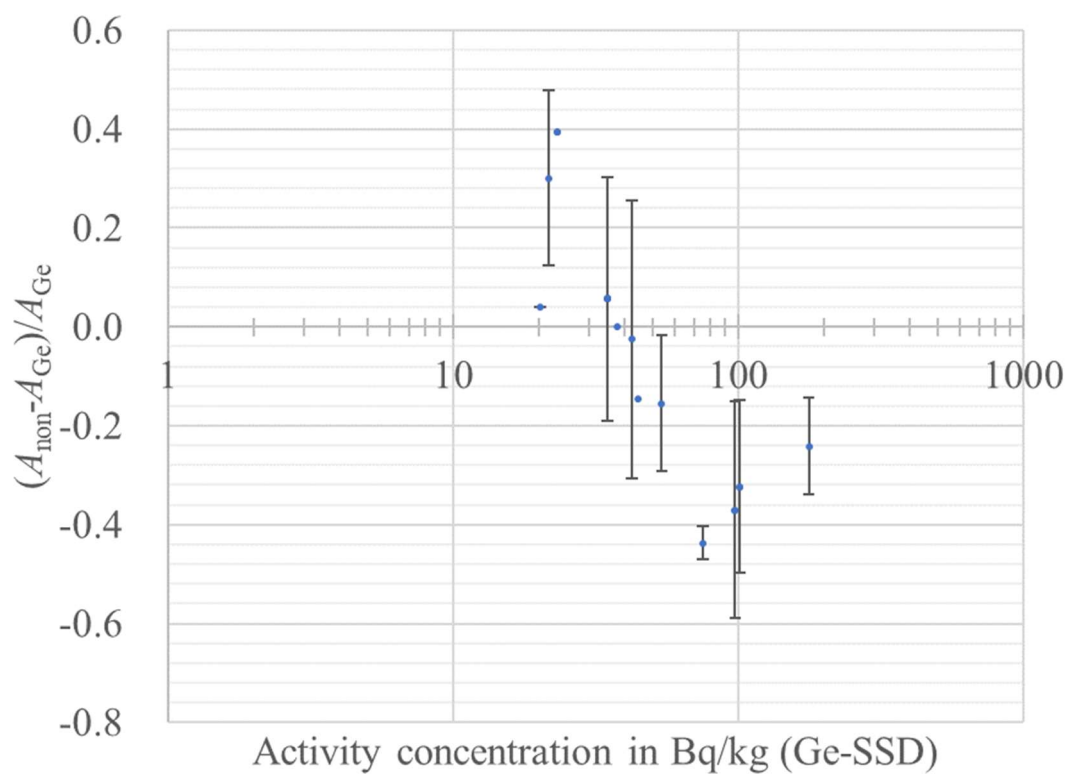


図7 続き

ハタケシメジ

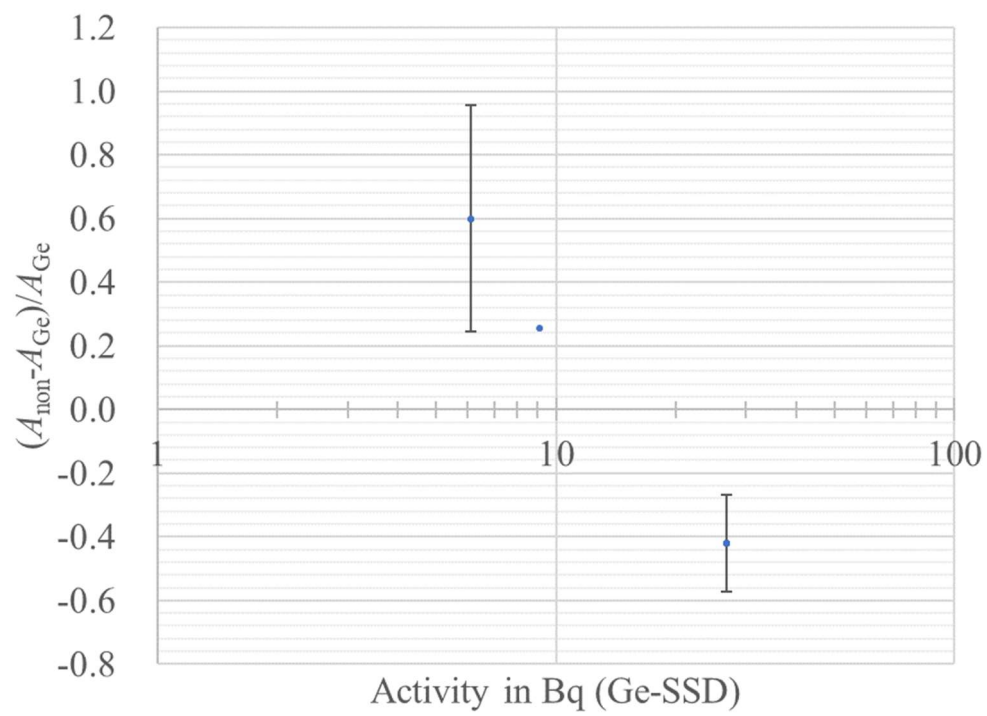
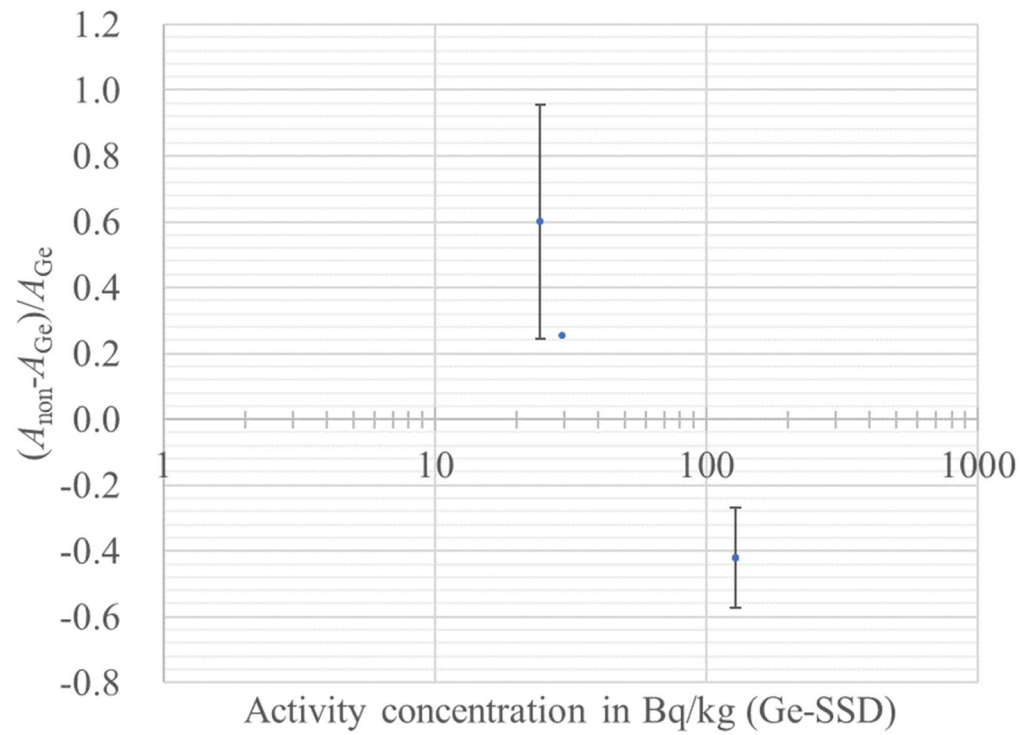


図7 続き

ヒラタケ

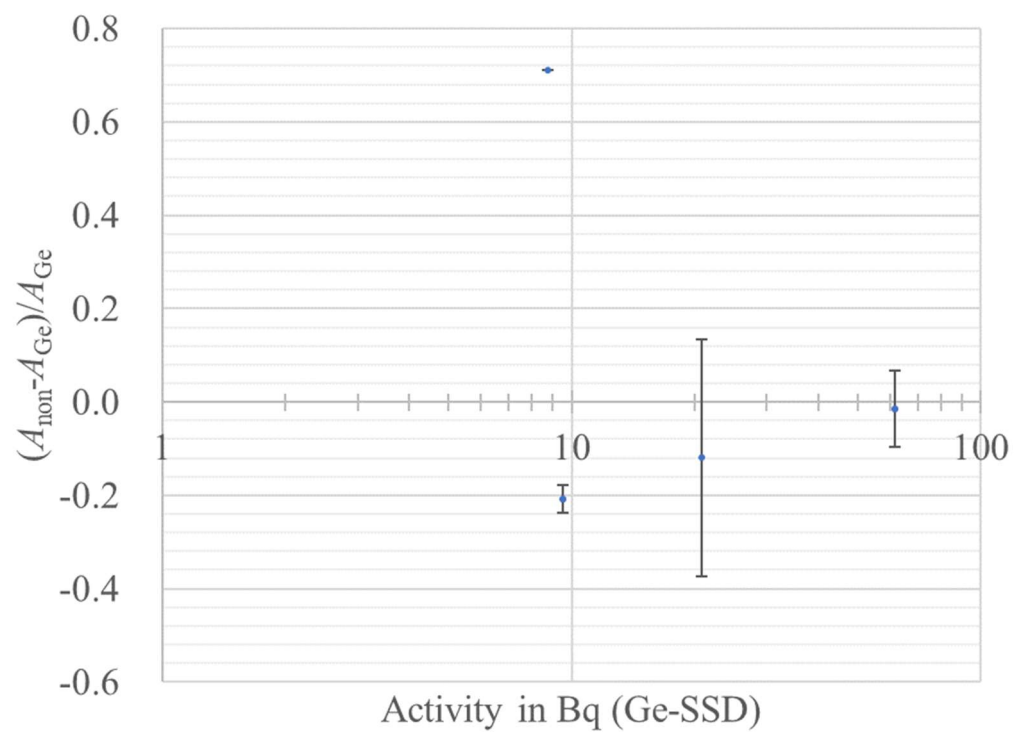
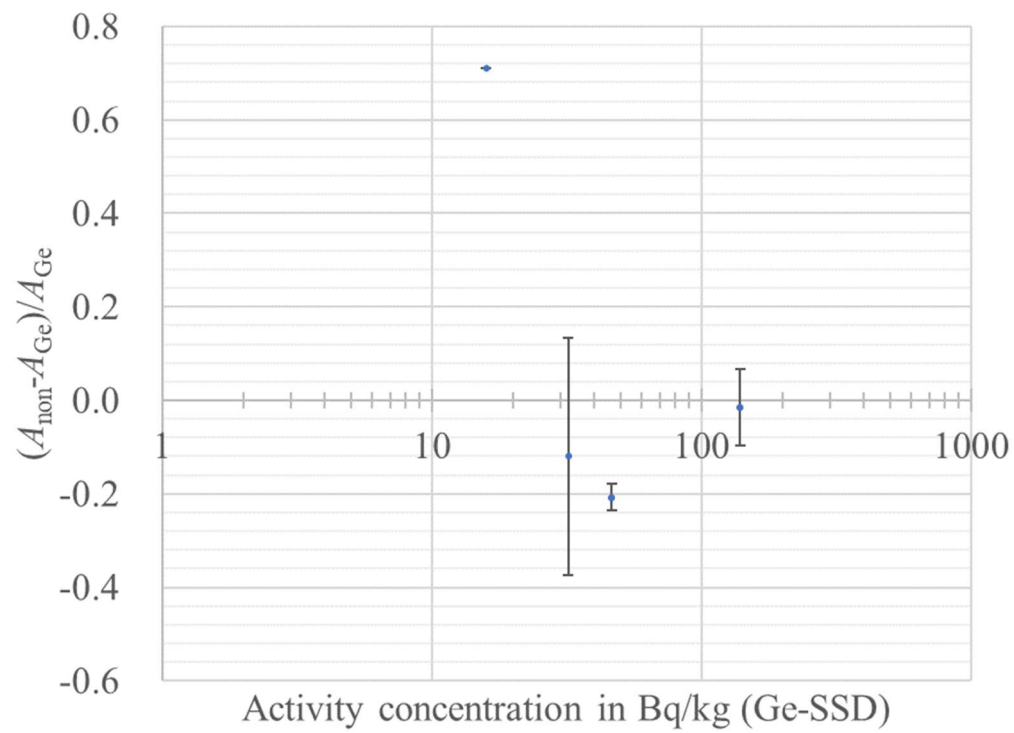


図7 続き

マツタケ

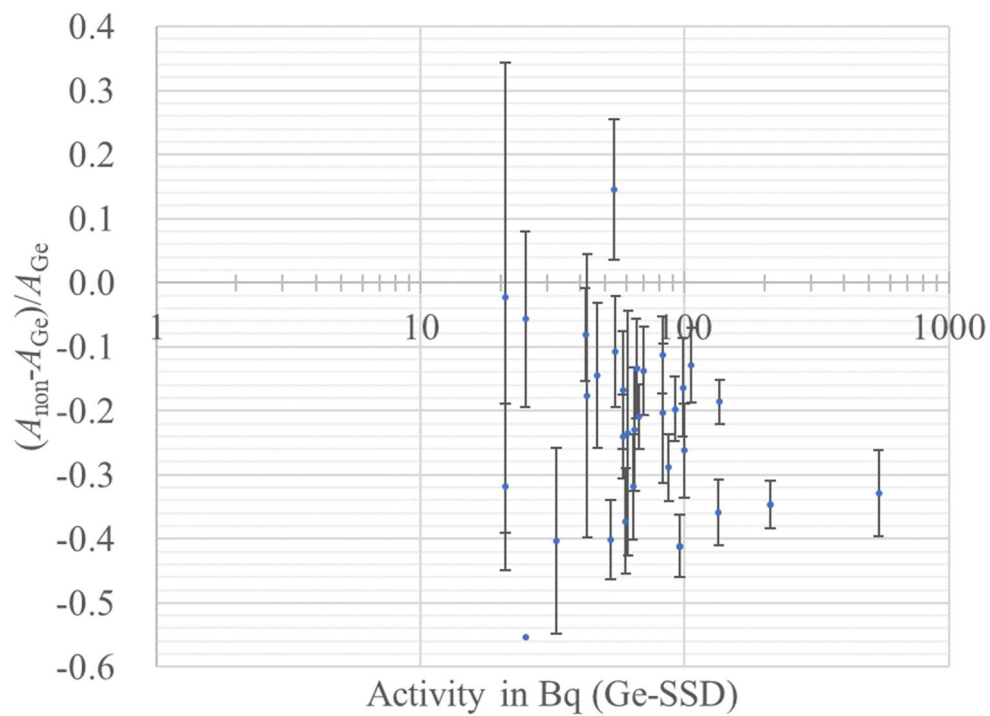
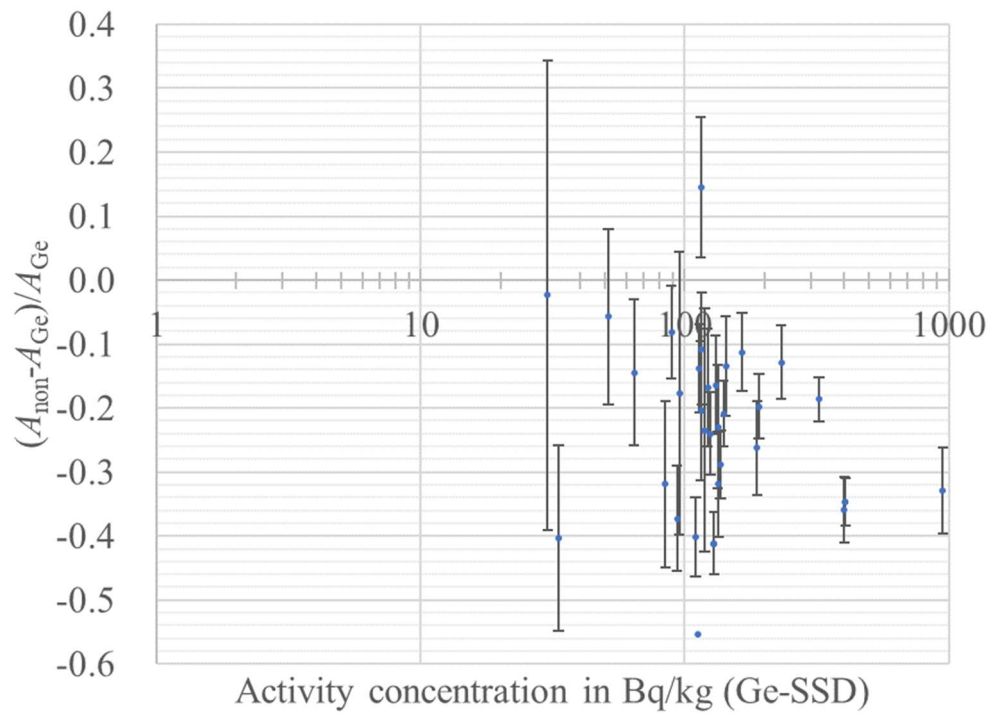


図7 続き

ムキタケ

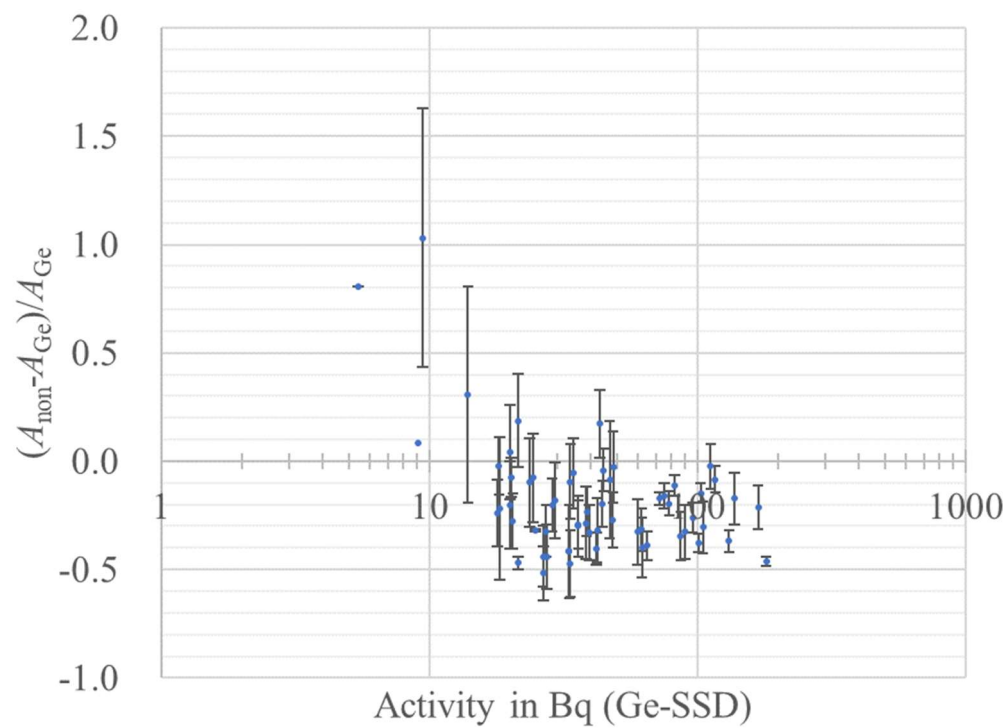
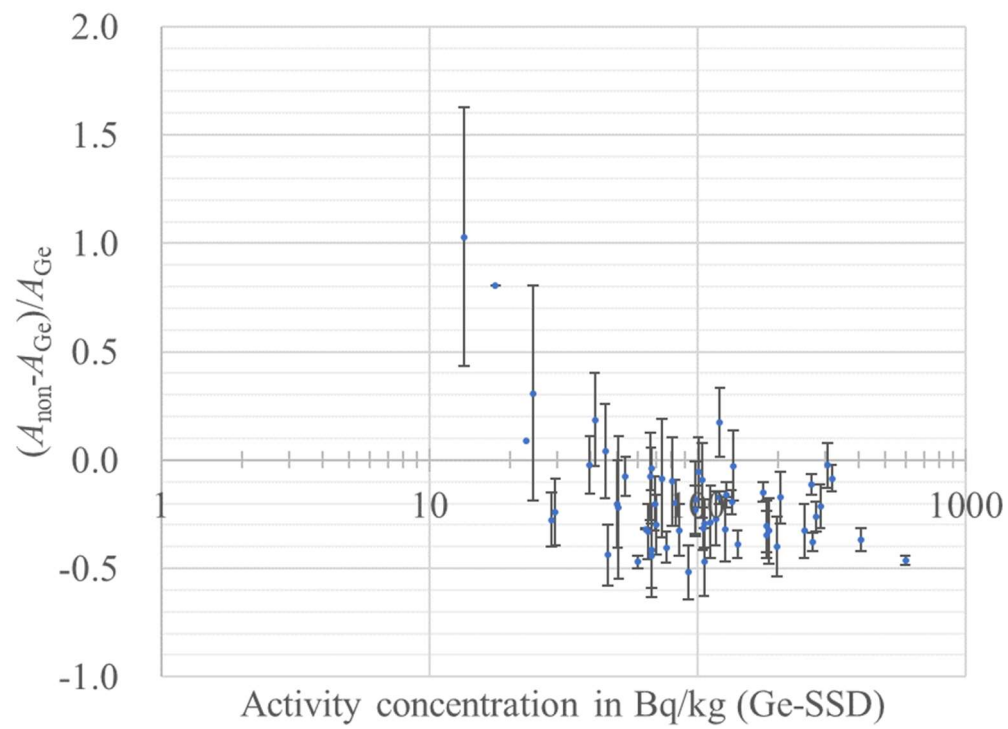


図7 続き

ムラサキシメジ

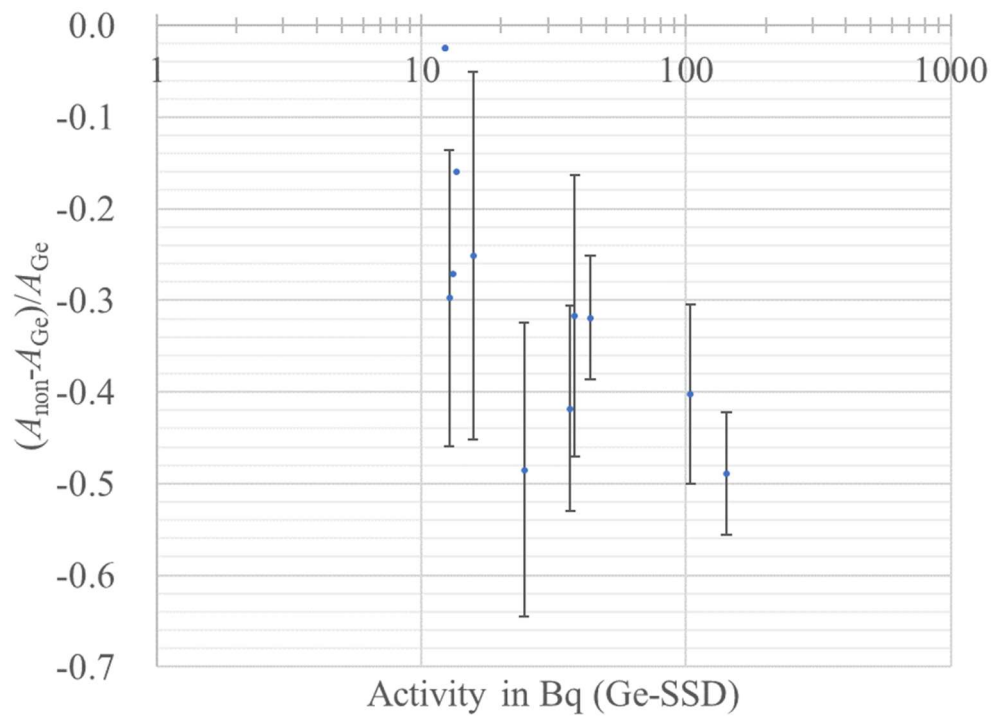
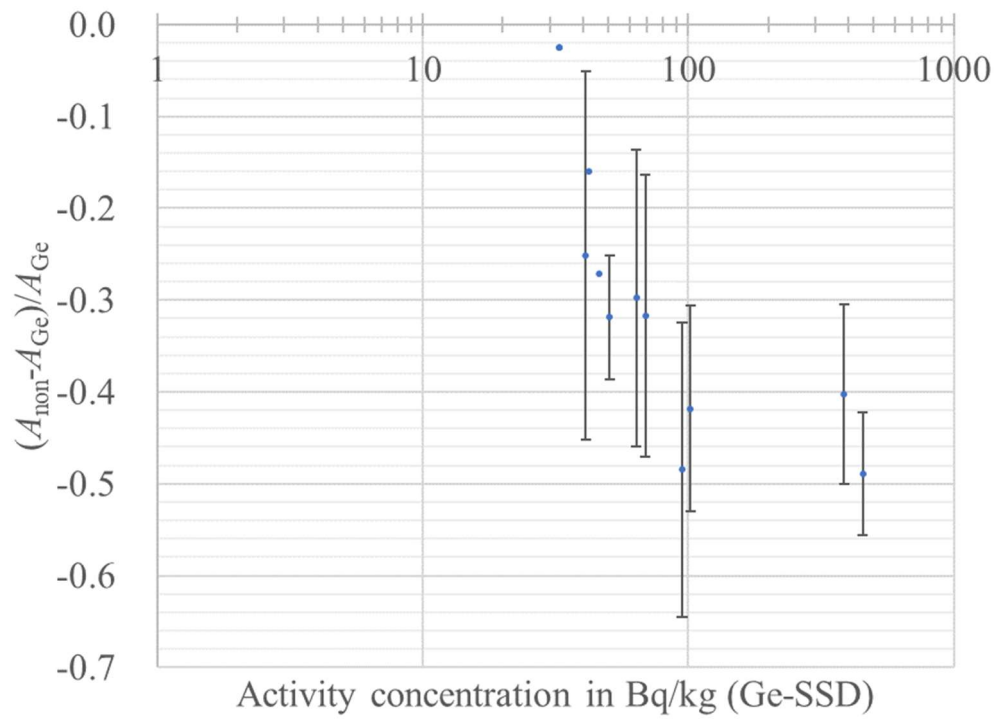


図7 続き

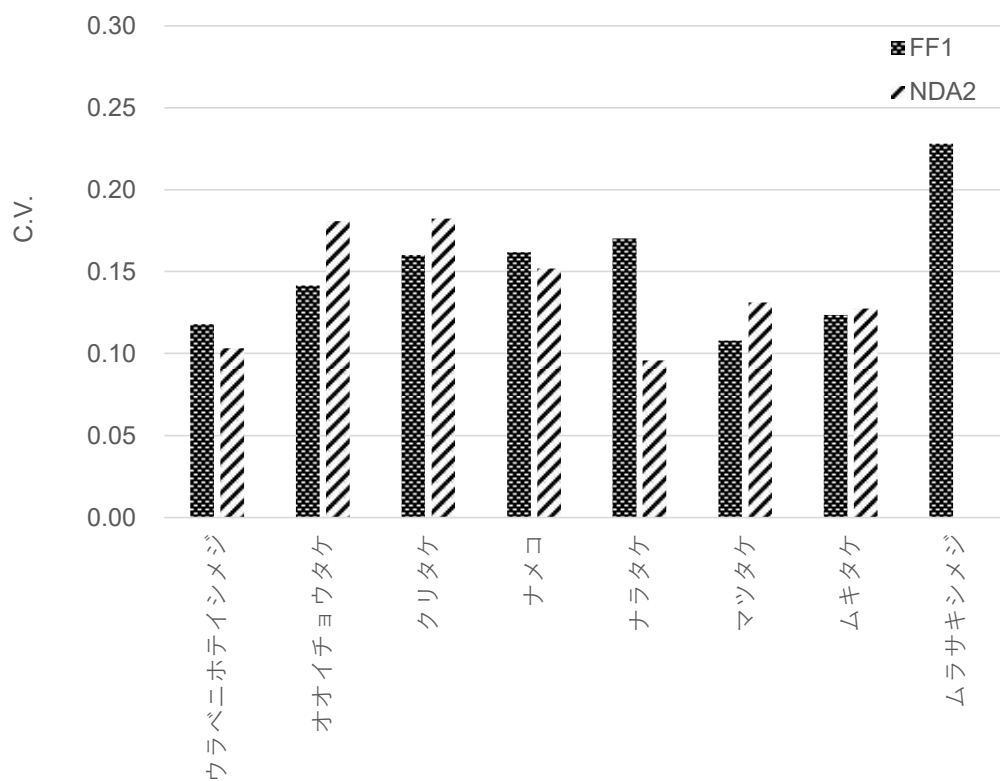


図8 非破壊式装置による 20Bq/kg 超試料の 4 回測定の変動係数

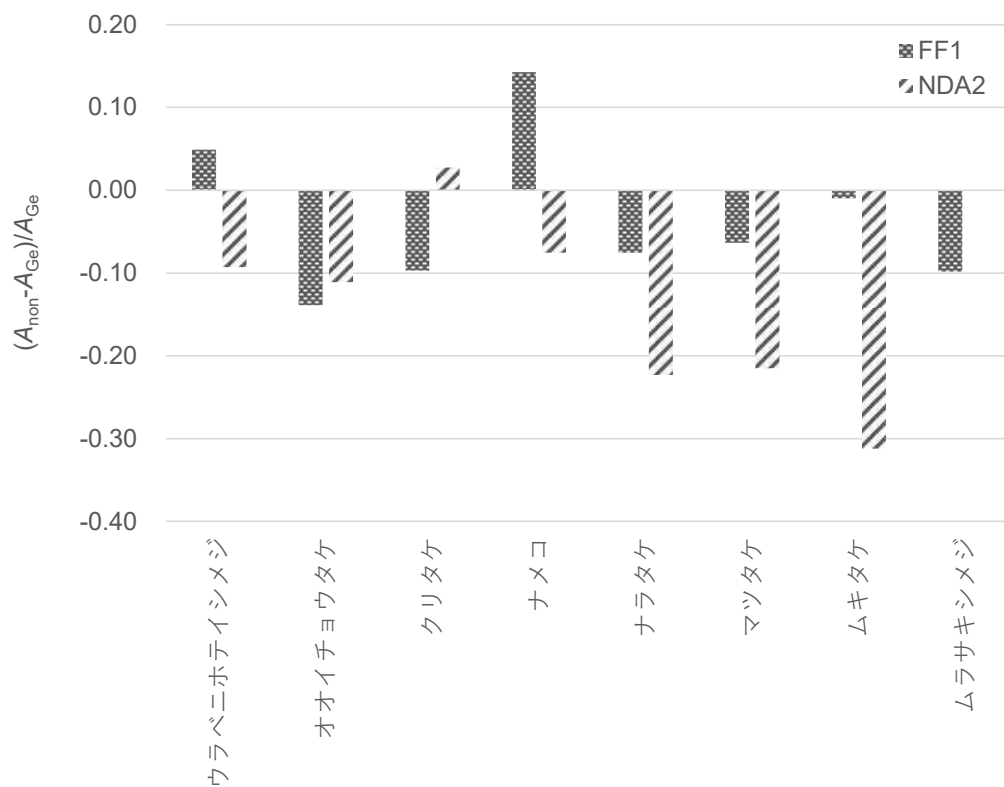


図9 品目別非破壊式による結果の Ge 測定値との差

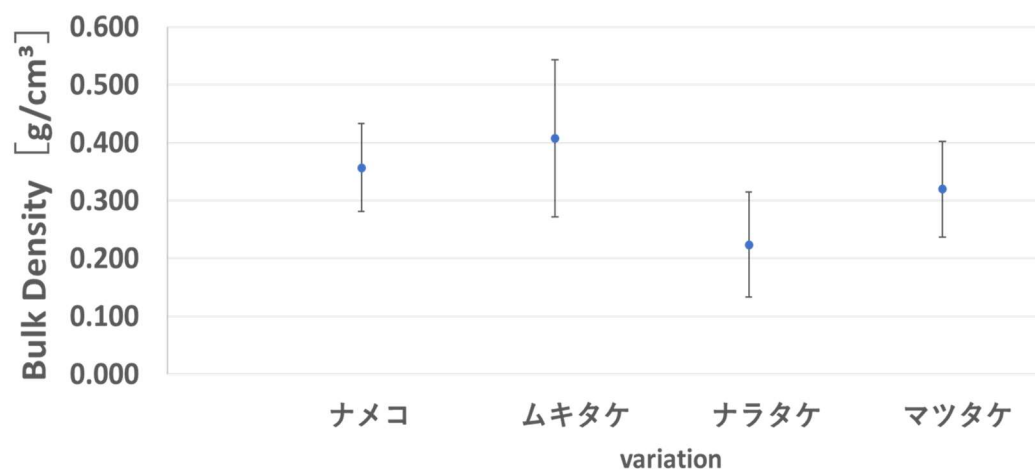


図 10 試料画像から得た各品目の嵩密度

マツタケ



ナメコ



ムキタケ



ナラタケ



図 11 野生キノコ試料写真（黄色塗部は空隙）

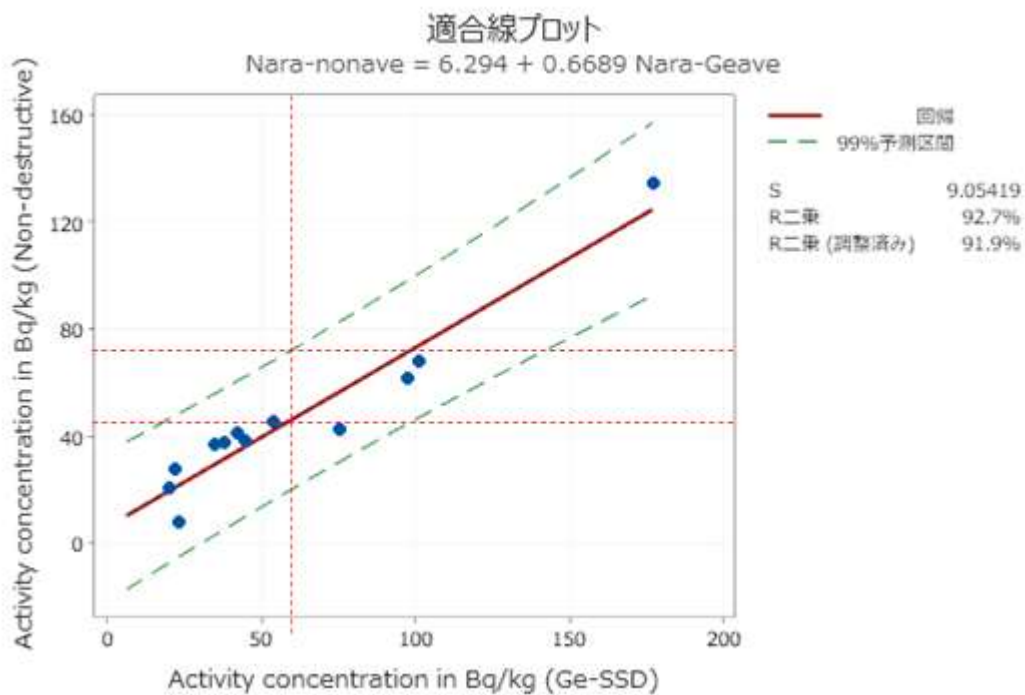
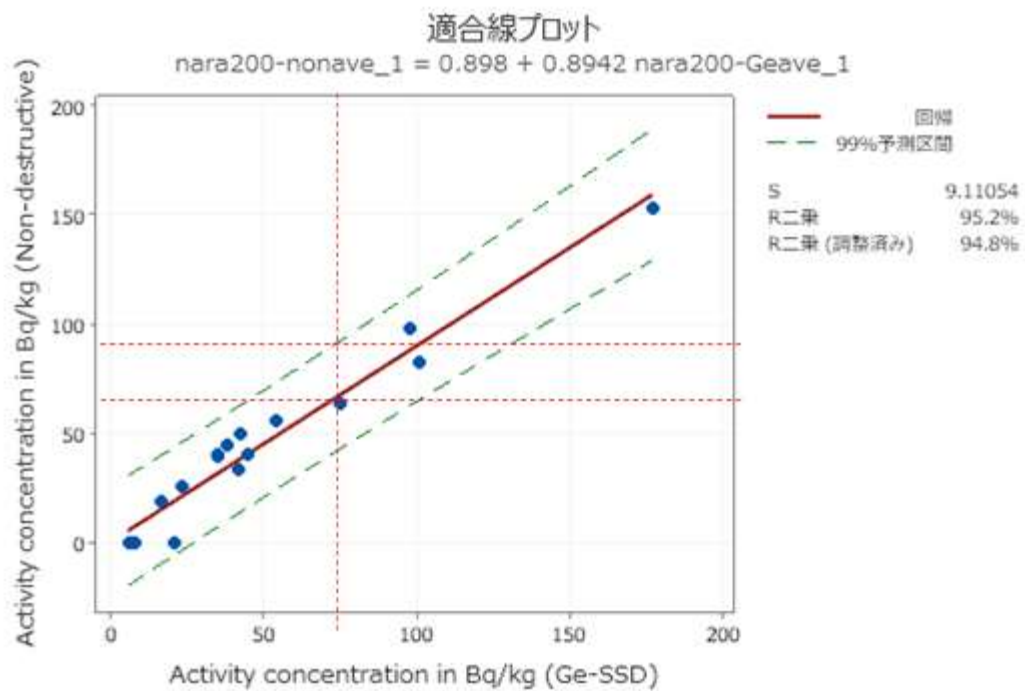


図 12-1 非破壊式装置（上段：FF1 下段：NDA2）と Ge 検出器の測定結果による
品目別回帰直線（ナラタケ）

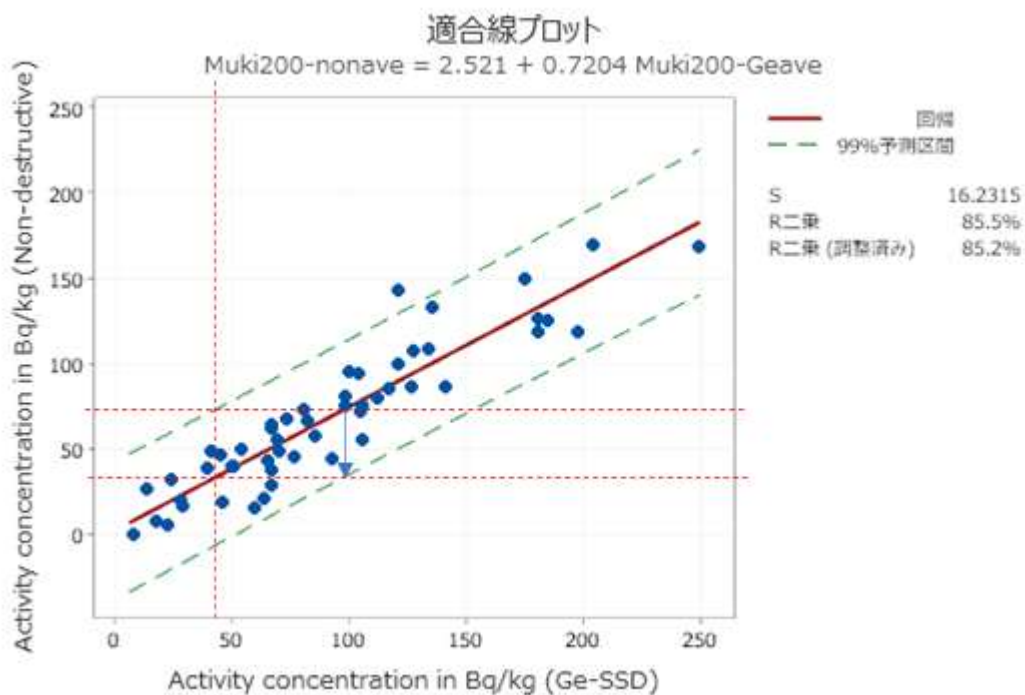
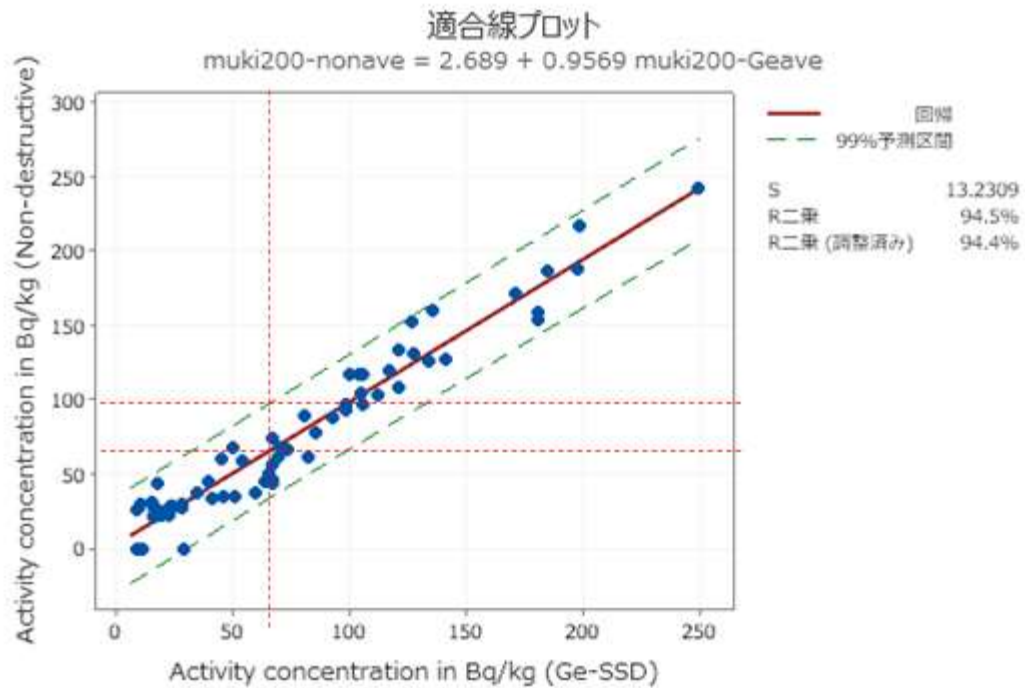


図 12-2 非破壊式装置（上段：FF1 下段：NDA2）と Ge 検出器の測定結果による
品目別回帰直線（ムキタケ）

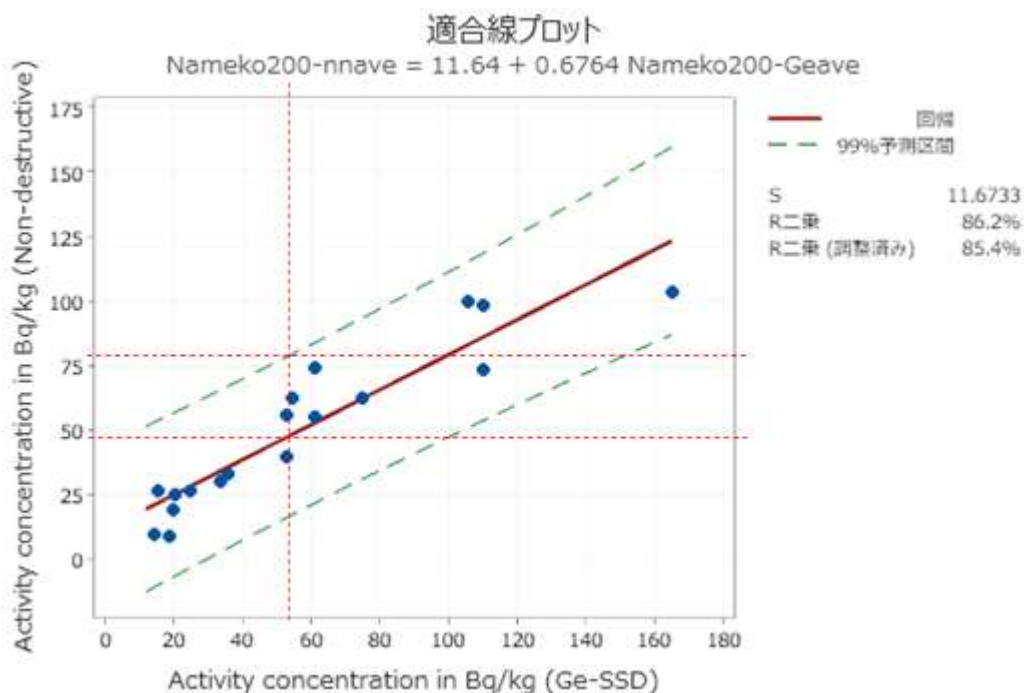
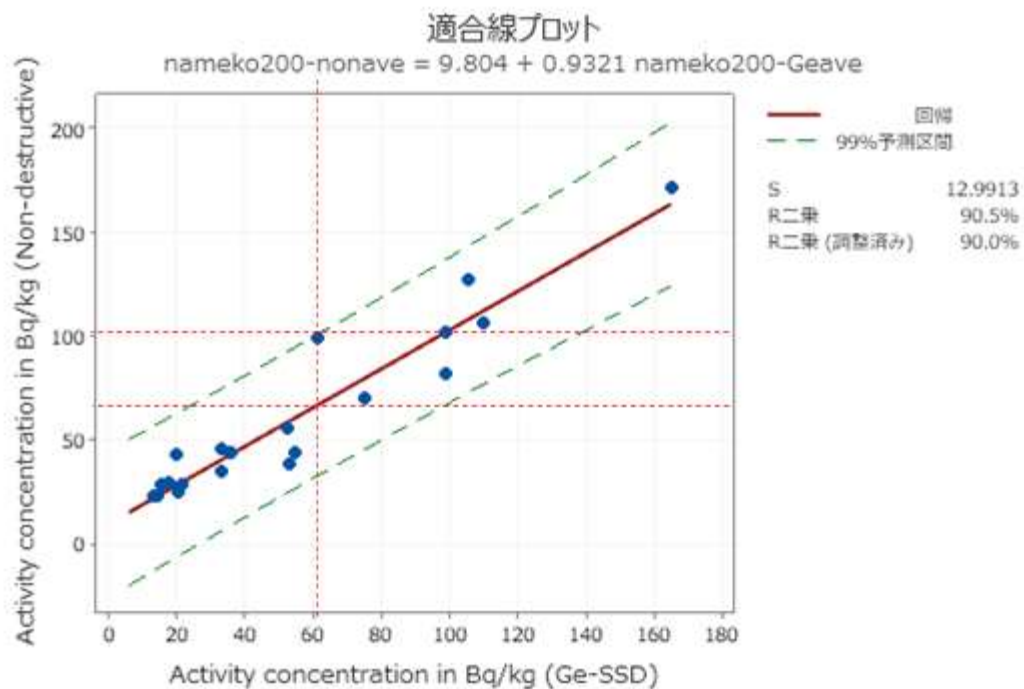


図 12-3 非破壊式装置（上段：FF1 下段：NDA2）と Ge 検出器の測定結果による
品目別回帰直線（ナメコ）

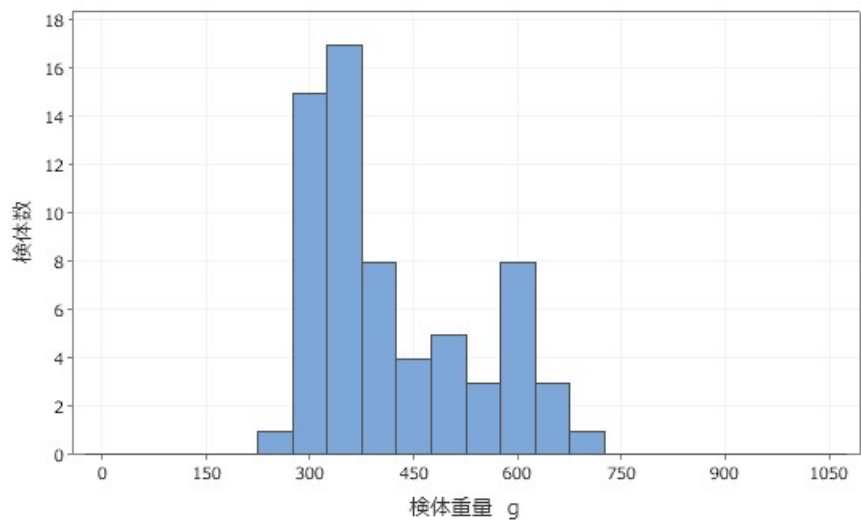


図 13-1 測定に用いたムキタケの重量分布

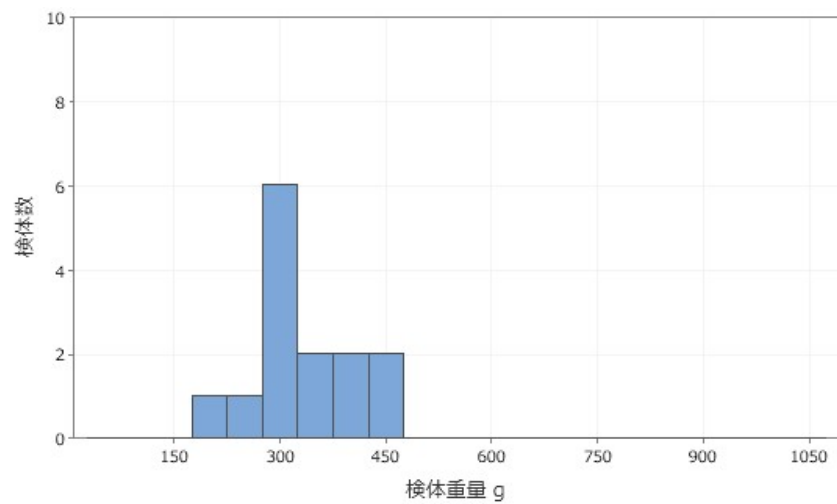


図 13-2 測定に用いたナラタケの重量分布

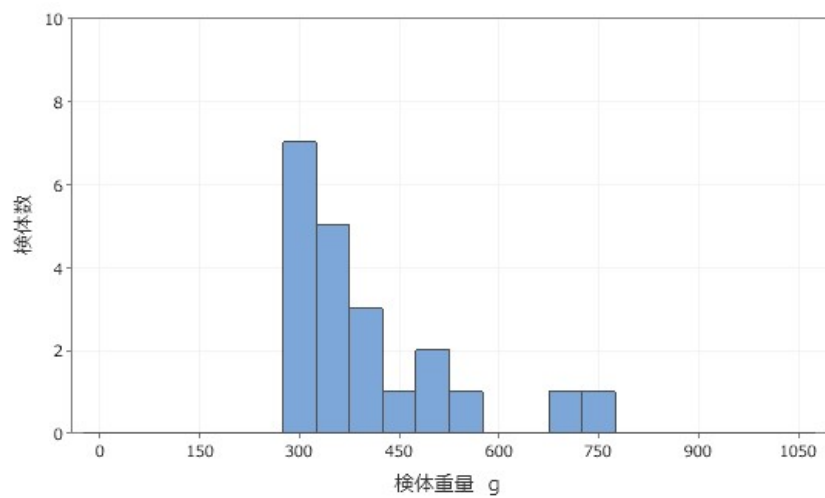


図 13-3 測定に用いたナメコの重量分布

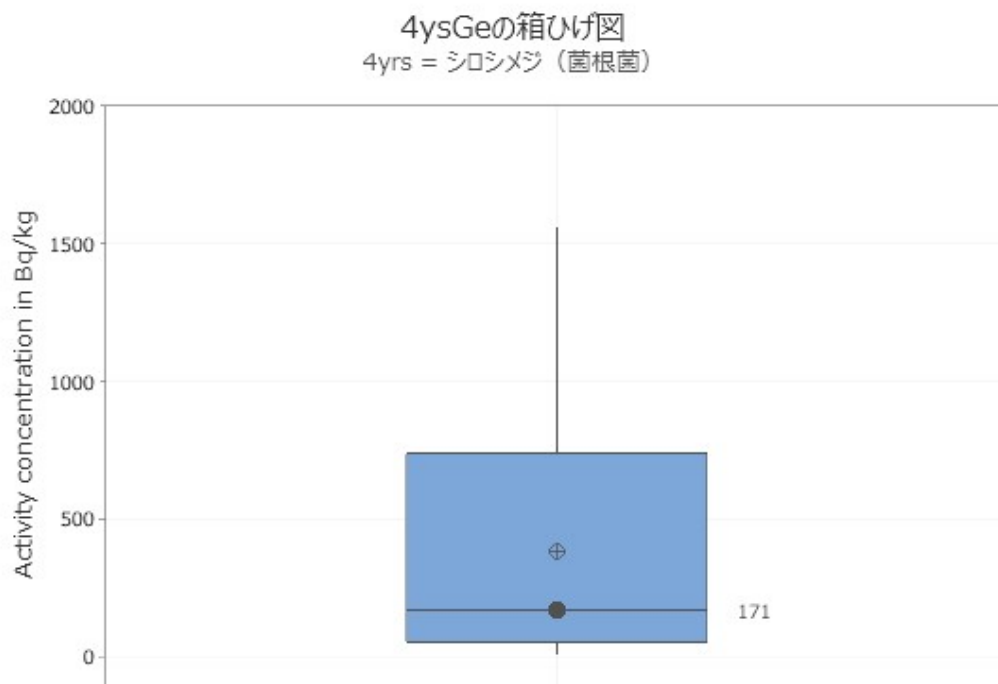


図 14-1 測定に用いた野生キノコの種別毎の濃度分布(個別値のプロット) 数値は中央値
(シロシメジ)

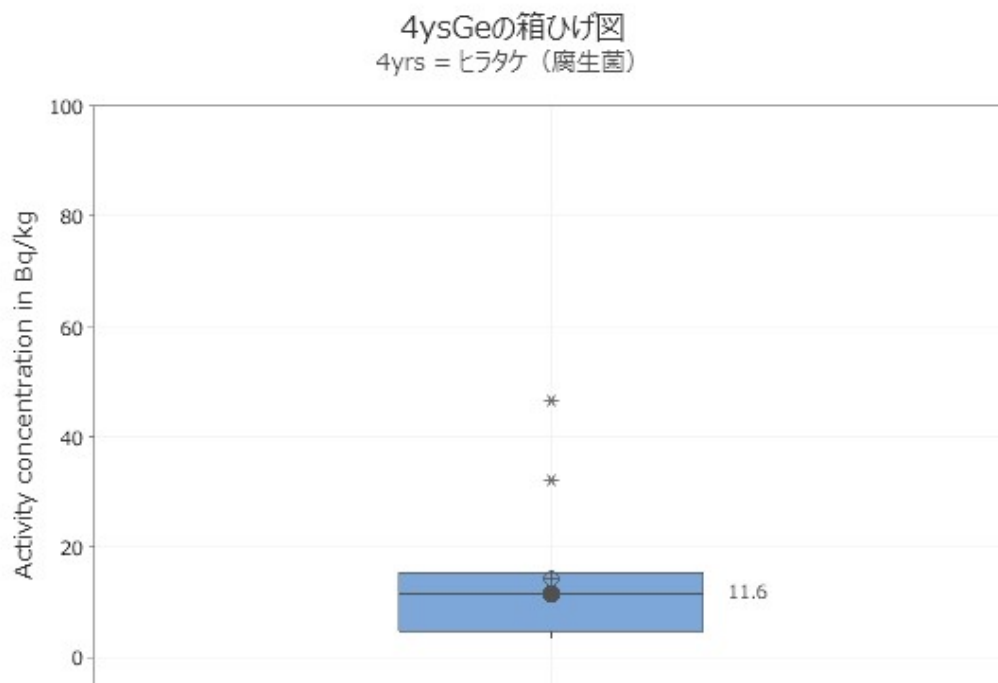


図 14-2 測定に用いた野生キノコの種別毎の濃度分布(個別値のプロット) 数値は中央値
(ヒラタケ)

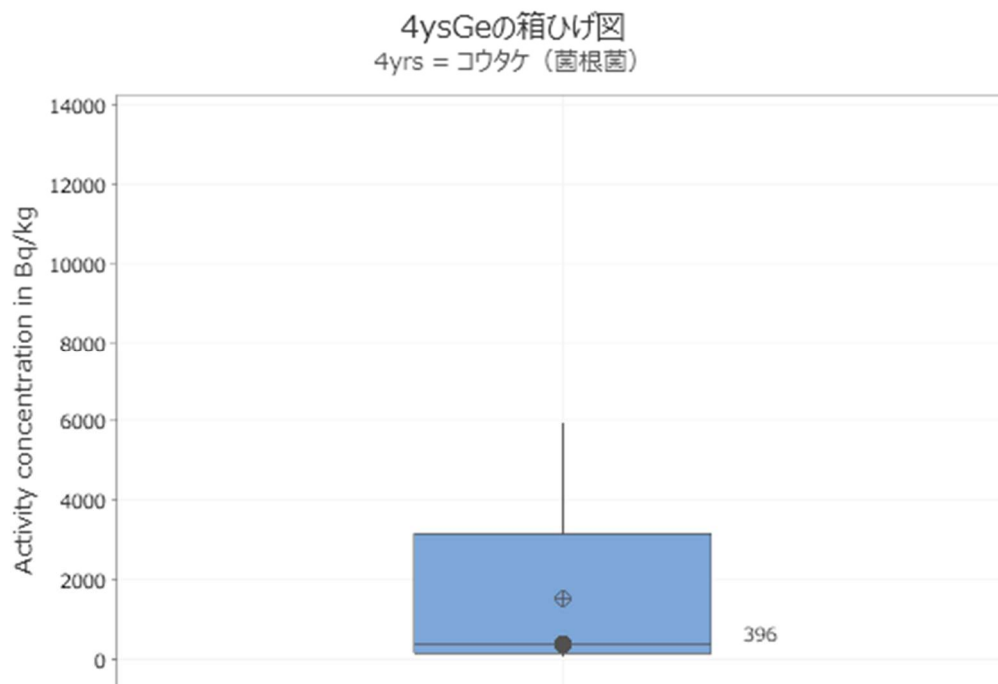


図 14-3 測定に用いた野生キノコの種別毎の濃度分布(個別値のプロット) 数値は中央値
(コウタケ)

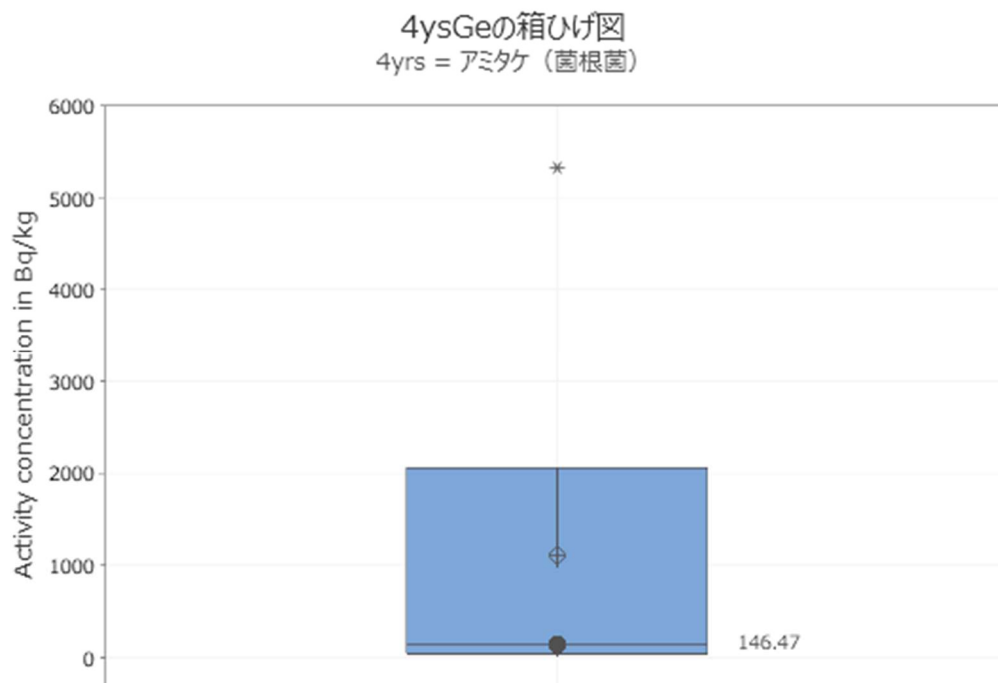


図 14-4 測定に用いた野生キノコの種別毎の濃度分布(個別値のプロット) 数値は中央値
(アミタケ)

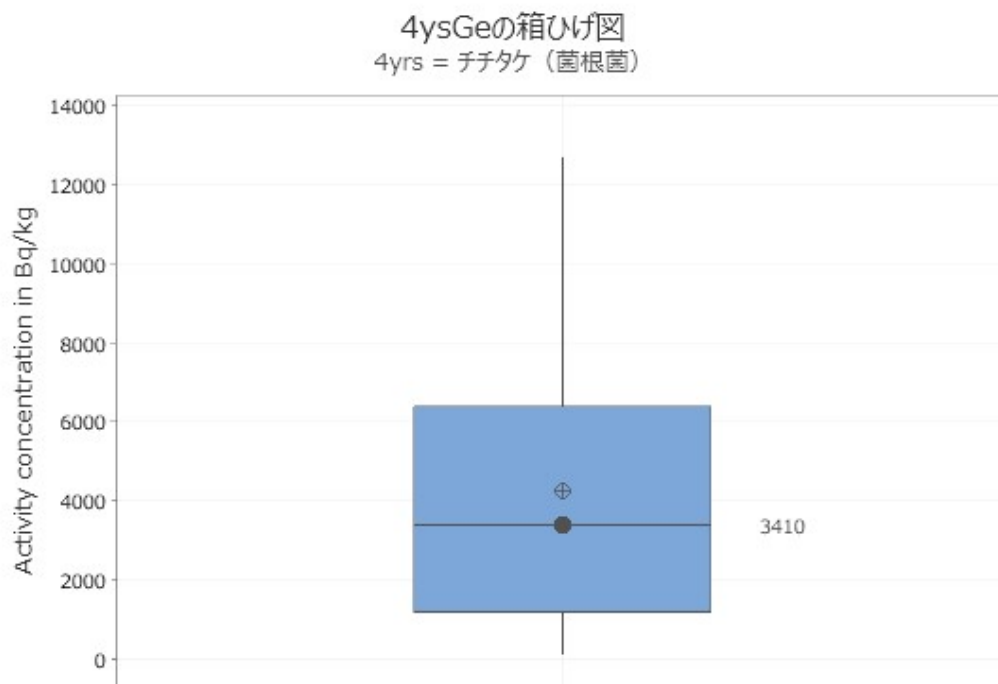


図 14-5 測定に用いた野生キノコの種別毎の濃度分布(個別値のプロット) 数値は中央値
(チチタケ)

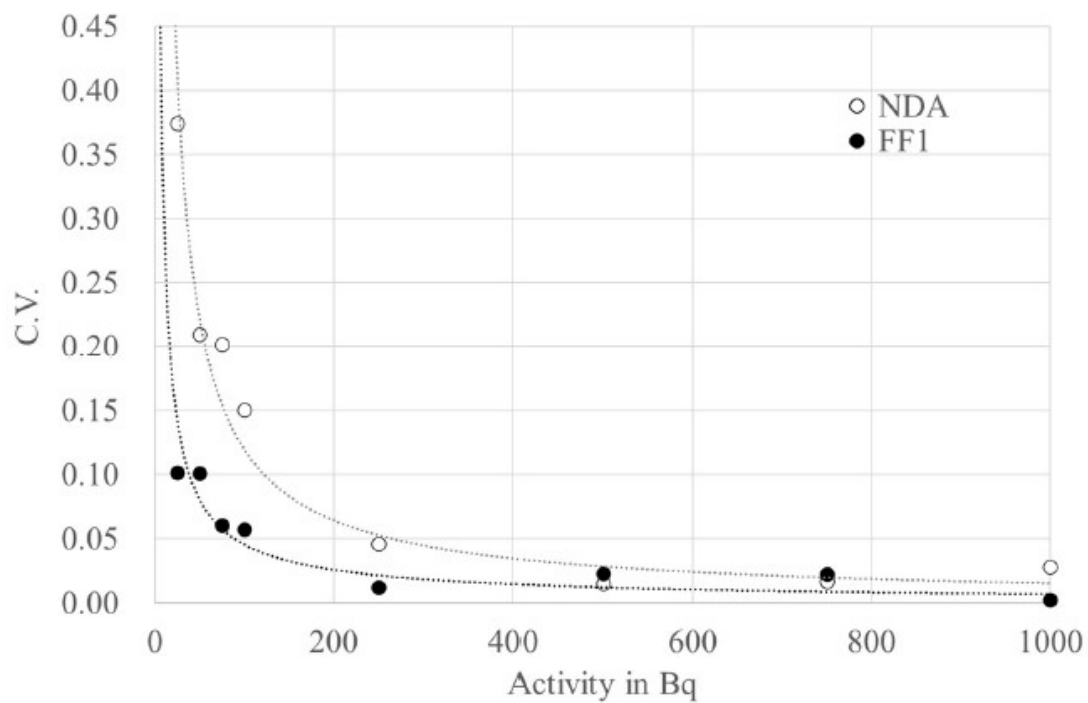


図 15 標準試料の 4 回繰り返し測定における変動係数

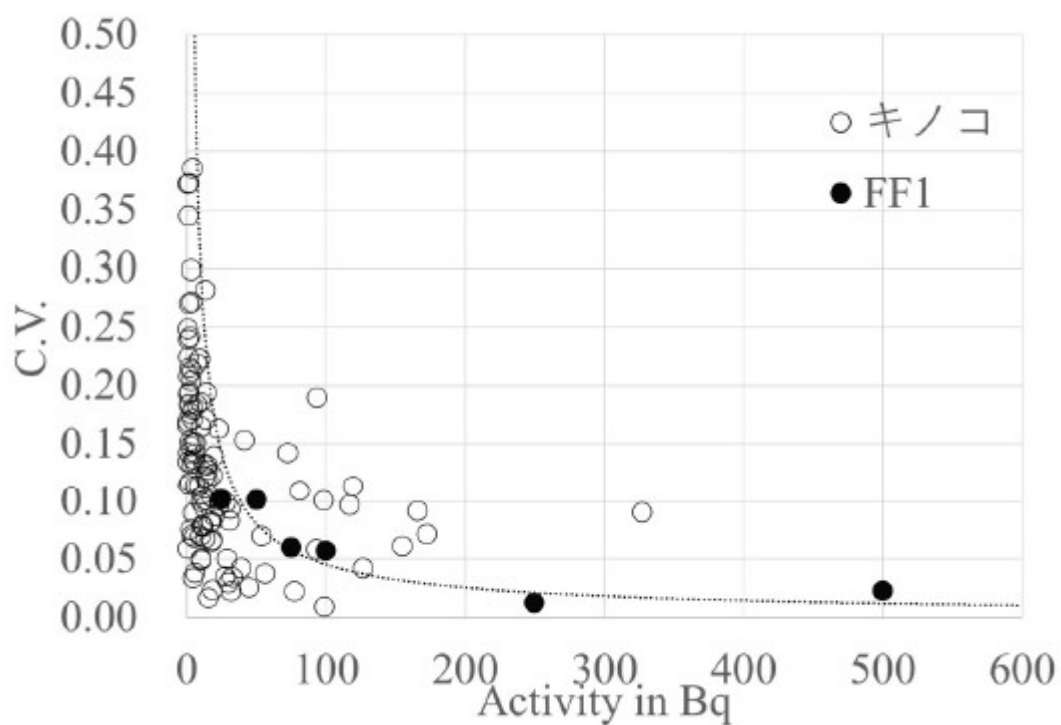


図 16-1 標準試料の 4 回繰り返し測定における変動係数と
野生キノコの測定における変動係数の比較 (FF1)

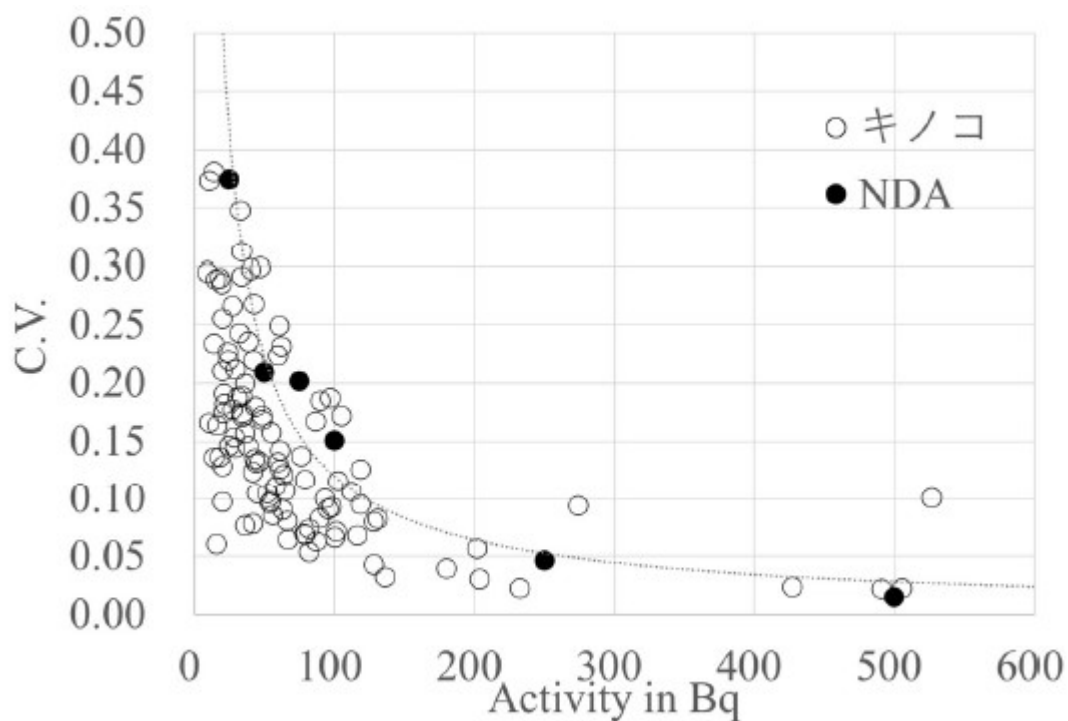


図 16-2 標準試料の 4 回繰り返し測定における変動係数と
野生キノコの測定における変動係数の比較 (NDA2)

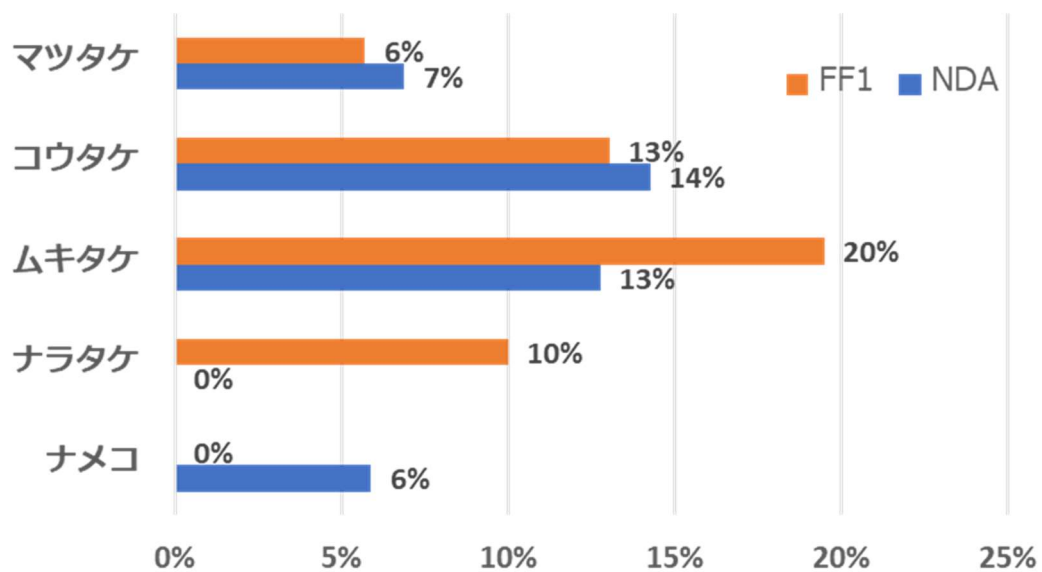


図 17 非破壊式装置による野生キノコ試料の実測時の変動係数が試料の実測標準試料測定における変動係数を超えた試料数の割合

付属書

非破壊式装置による測定に用いた試料写真 (A: 上面, B: 正面)

品目：ムキタケ、ナラタケ、ナメコ





Y798-4-1-Bムキタケ



Y798-4-5-Aムキタケ



Y798-4-5-Bムキタケ



Y798-4-6-Aムキタケ



Y798-4-6-Bムキタケ



Y798-4-54-Aムキタケ



Y798-4-54-Bムキタケ



Y798-4-55-Aムキタケ



Y798-4-55-Bムキタケ



Y799-4-2-Aムキタケ



Y799-4-2-Bムキタケ



Y799-4-128-Aムキタケ



Y799-4-128-Bムキタケ



Y799-900-2-Aムキタケ



Y799-900-2-Bムキタケ



Y887-900-5-Aムキタケ



Y887-900-5-Bムキタケ



Y891-4-36-Aムキタケ



Y891-4-36-Bムキタケ



Y891-4-52-Aムキタケ



Y891-4-52-Bムキタケ



Y892-1-4-17-Aムキタケ



Y892-1-4-17-Bムキタケ



Y892-1-4-18-Aムキタケ



Y892-1-4-18-Bムキタケ



Y892-4-7-Aムキタケ



Y892-4-7-Bムキタケ



Y894-4-35-Aムキタケ



Y894-4-35-Bムキタケ



Y894-4-36-Aムキタケ



Y894-4-36-Bムキタケ



Y900-4-25-Aムキタケ



Y900-4-25-Bムキタケ



Y986-930-2-Aムキタケ



Y986-930-2-Bムキタケ



Y990-900-1-Aムキタケ



Y990-900-1-Bムキタケ



Y991-900-6-Aムキタケ



Y991-900-6-Bムキタケ



Y992-900-1-Aムキタケ



Y992-900-1-Bムキタケ



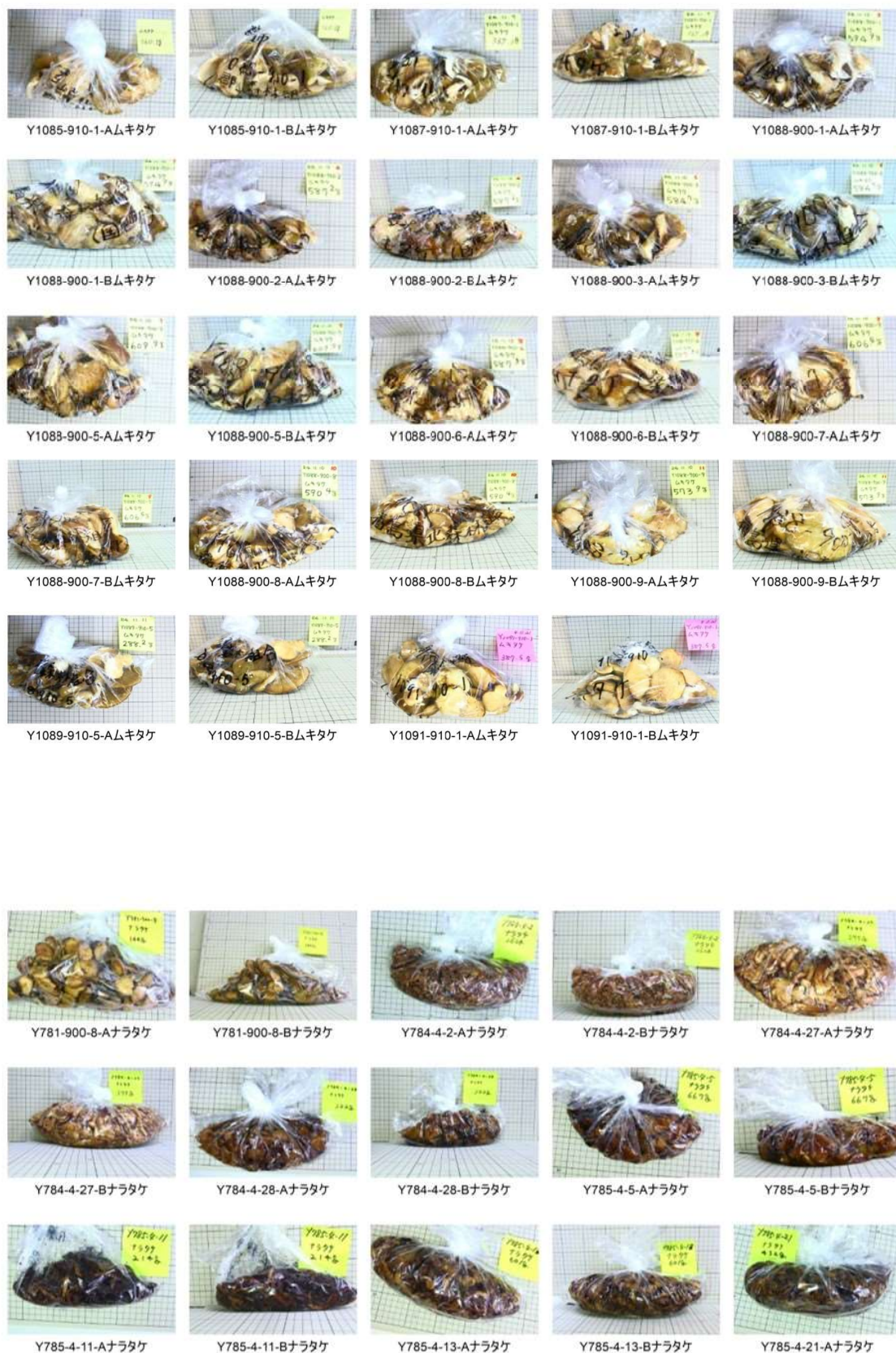
Y992-900-3-Aムキタケ



Y992-900-3-Bムキタケ









Y785-4-21-Bナラタケ



Y786-4-4-Aナラタケ



Y786-4-4-Bナラタケ



Y786-4-16-Aナラタケ



Y786-4-16-Bナラタケ



Y786-4-17-Aナラタケ



Y786-4-17-Bナラタケ



Y786-4-18-Aナラタケ



Y786-4-18-Bナラタケ



Y786-4-20-Aナラタケ



Y786-4-20-Bナラタケ



Y789-4-8-Aナラタケ



Y789-4-8-Bナラタケ



Y791-910-2-Aナラタケ



Y791-910-2-Bナラタケ



Y794-4-2-Aナラタケ



Y794-4-2-Bナラタケ



Y885-4-23-Aナラタケ



Y885-4-23-Bナラタケ



Y886-990-1-Aナラタケ



Y886-990-1-Bナラタケ



Y887-930-3-Aナラタケ



Y887-930-3-Bナラタケ



Y887-930-4-Aナラタケ



Y887-930-4-Bナラタケ



Y891-4-11-Aナラタケ



Y891-4-11-Bナラタケ



Y891-4-49-Aナラタケ



Y891-4-49-Bナラタケ



Y891-4-50-Aナラタケ



Y891-4-50-Bナラタケ



Y891-4-51-Aナラタケ



Y891-4-51-Bナラタケ



Y891-4-54-Aナラタケ



Y891-4-54-Bナラタケ



Y891-4-55-Aナラタケ



Y891-4-55-Bナラタケ



Y891-5-6-Aナラタケ



Y891-5-6-Bナラタケ



Y892-1-4-19-Aナラタケ



Y892-1-4-19-Bナラタケ



Y892-5-8-Aナラタケ







YMG-4-40-Bナメコ



YMG-4-41-Aナメコ



YMG-4-41-Bナメコ



YMG-4-42-Aナメコ



YMG-4-42-Bナメコ



YMG-4-43-Aナメコ



YMG-4-43-Bナメコ



YMG-4-44-Aナメコ



YMG-4-44-Bナメコ



YMG-4-45-Aナメコ



YMG-4-45-Bナメコ



YMG-4-46-Aナメコ



YMG-4-46-Bナメコ



YMG-4-47-Aナメコ



YMG-4-47-Bナメコ



YMG-4-48-Aナメコ



YMG-4-48-Bナメコ



YMG-4-49-Aナメコ



YMG-4-49-Bナメコ



YMG-4-50-Aナメコ



YMG-4-50-Bナメコ



YMG-4-51-Aナメコ



YMG-4-51-Bナメコ



YMG-4-52-Aナメコ



YMG-4-52-Bナメコ



YMG-4-53-Aナメコ



YMG-4-53-Bナメコ



YMG-4-54-Aナメコ



YMG-4-54-Bナメコ



Y1098-900-1-Aナメコ



Y1098-900-1-Bナメコ