NaI (Tl) シンチレーションスペクトロメータを用いて 測定した結果を適切に評価するために(初心者編)

農林水産省消費・安全局消費・安全政策課

1 はじめに

食品中にどのような種類の放射性物質がどのような濃度で入っているかを知るために使われる主な分析機器には、精密測定に使われるゲルマニウム半導体検出器や簡易測定に使われる NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータがあります。これらの機器では、ガンマ線を出す放射性物質の分析が可能です。

NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータは、ゲルマニウム半導体検出器に 比べて値段が安く、重さも軽く、操作が簡単なものが市販されており、飲料水や乳・ 乳製品を除く食品全般の放射性物質について、ゲルマニウム半導体検出器を使って 精密検査をする必要があるかないかを判断するための簡易検査(スクリーニング分 析)に公的に使用することができます。そこで、専門の分析機関以外にも、都道府 県、市町村や食品事業者による導入が進んでいます。

本資料は、NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータを使って放射性物質(特に放射性セシウムとヨウ素)が何ベクレル含まれるかを測定したり、また、その結果を適切に評価するための、基礎的な参考資料として利用していただくことを想定して作成したものです」。

例えば、同じ農場で収穫された同じ農産物の試料(検体)を、NaI(TI)シンチレーションスペクトロメータで測定した後、ゲルマニウム半導体検出器で精密測定する場合があります。この時、ゲルマニウム半導体検出器での測定結果とNaI(TI)シンチレーションスペクトロメータでの測定結果が異なっていた場合には、簡易検査での測定結果について、そもそも信頼できるのかどうかといった疑問が生じるかもしれません。

信頼できる測定結果を得るためには、適切な機器の保守管理、分析者の技能維持などきちんとしたマネジメント体制を作ることが重要です。また、「全く同じ農産物試料を全く同じ条件で測定しても、複数回測定した場合の分析値は同じ値にならず、毎回ばらつく」ことを前提に評価する必要があります。

本資料により、このような点について理解を深めて頂ければ幸いです。

¹ 厚生労働省が食品中の放射性セシウムスクリーニング法(平成23年11月10日付厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課事務連絡)を示していますので、実際の測定方法等はこれに従う必要があります。

2 この資料の対象者

この資料は、都道府県や市町村などで、NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータを用いた放射性物質の簡易測定を新たに担当することになった方や、測定結果を用いて何らかの判断をする行政担当者などを対象者として想定して作成しています。

特に、これまで化学物質の分析をした経験が無い方や、適切な分析結果を得るためには、どういったマネジメントが必要かという知識が不足していると認識しておられる方を想定しています。

3 食品の分析結果についてのポイント(基礎知識)

3.1 食品の分析値はいつも同じとは限らない

食品中に含まれる化学物質の濃度を測ると、その分析値は、分析法、機器、試験者の技能、測定環境(試験室や気象)などによって、様々な値をとります。また、同じ試験者が、同じ試料を、同じ機器、同じ方法で、同じ日に繰り返し分析したとしても、その値は必ずばらつきます。

このことは、放射性物質の分析でも、残留農薬の分析でも、共通して言えることであり、化学物質の種類によりません。<u>分析には、食品を分析に適した状態に調製する前処理や分析機器の操作とその維持・管理が必要</u>ですが、これらには<u>必ず人間の手を介した作業</u>が入ります。分析値はそれらの積み重ねによる誤差や様々な偶然の誤差に左右されるため、ばらつきを完全に避けることはできません。

異なる分析機関で、異なる人が、異なる機器を用いて、異なる日に測定した場合は、同じ試験者が同じ機器を用いて同じ日に測定した時に比べて、ばらつきは大きくなるのが普通です。

液体の食品は良くかき混ぜることによって容易に均一になりますが、液体以外の 農畜水産物は採取する部位の違いなどによって測りたい化学物質の含有濃度が大 きく異なる可能性があり、液体の食品に比べて含まれる化学物質の濃度等の分析値 にばらつきが生じやすいと考えられています。また、食品中に同時に含まれている 多種多様な成分も分析結果に影響を及ぼすことがあります。

一般に、放射性物質の分析結果が正しく得られるかどうかは、試料の均一性や試料の密度が大きく影響します。

放射性ヨウ素や放射性セシウムの測定機器は、試験者が設定した時間(測定時間)の中で、放射性物質の原子核が壊れる(崩壊する)時に出るガンマ線の数をカウントしています。放射性物質には半減期2があります。一方で、1個の原子核に注目したとき、その原子核が「いつ」壊れるのかはわかりません。1秒後かもしれないし、1万年後かもしれません3。このため、放射性物質の測定値には、原子核の壊れる頻度に由来する統計的な誤差が必ず伴うことを知っていなければなりません。

3.2 食品に含まれる本当の濃度は誰にもわからない

食品に含まれている分析目的物質の本当の濃度を「真の値」と言います。この真の値は実は誰にもわかりません。いわば、"神のみぞ知る値"なのです。

² 放射性物質が元の量の半分になるのに必要な時間を半減期と言います。すなわち、壊れないで残っている原子核の数が半分になるまでにかかる時間のことです。

³ これを確率的現象といい、詳しくは物理学における量子論という理論で説明されます。

確立された精度が高い分析法を用いて、熟練した試験者が測定を行っても、必ず ばらつきが存在し、どんなに分析技術が進歩したとしても、その分析値が真の値と 一致することを証明することはできません。分析値とは、真の値の理論上の推定値 に過ぎないのです。

この分析値に対して、<u>真の値が存在すると考えられるばらつきの範囲のことを「不確かさ」</u>といいます。一般的に、測定しようとする濃度が低いほど分析値のばらつきは大きくなるため、不確かさも大きくなることが知られています。

国際的には、「測定値±不確かさ」というように、分析結果に「不確かさ」を表記して報告することが当たり前になってきていますも。

3.3 「科学的に信頼できるデータ」とは?

信頼できるデータは、食品の規格・基準に適合しているかどうかの評価だけでなく、対策の検討など適切な行政判断を行うために必要なものです。

国際的には、食品安全の政策決定の基礎となる重要なデータ作成のための分析を行うにあたって、試験所や検査所が認定・認証を受けたり、試験所の中で分析担当者や測定日が変わっても適切な分析結果を出せているか定期的にチェックしたり、そもそも分析法が文献どおりの性能を有しているか検証するなど、分析値の信頼性を客観的に保証するためのシステムを導入していることが当然のこととされています。

3.4 なぜ科学的に信頼できる分析データが必要なのか?

科学的に信頼性の低いデータを用いると、どのような不都合があり得るでしょうか? 例えば以下のようなことが考えられます。

基準に適合しているかどうかを評価する際に、真の値よりも大きな分析値を用いた場合には、本当は基準に適合しているのに食品を廃棄することになり、生産者や製造者に損害が生じる可能性があります。

また、真の値よりも小さい分析値を用いた場合には、適切に管理されず基準に適合していない可能性がある食品が流通することになり、最悪の場合には消費者に健康被害が生じる可能性もあります。

法令に基づいて取り締まりを行う規制行政では、分析日や試験所によって結果が 大きく異なると、その都度判断が異なることになります。そのため、いつでも、ど

⁴ コーデックス委員会のガイドライン GUIDELINES ON MEASUREMENT UNCERTAINTY (CAC/GL 54-2004) や GUIDELINES FOR SETTLING DISPUTES OVER ANALYTICAL (TEST) RESULTS (CAC/GL 70-2009) を参照

こでも、一定の技能をもった試験者が分析した場合には、許容できる範囲内の不確かさをもつ分析値が得られることが確認された適切な分析法を採用する必要があります。

不要なコストをかけずに食品の安全性を向上させ、円滑に食品の流通を行うためにも、行政機関や食品事業者は、分析を委託する際には信頼性を客観的に保証できるシステムや体制を整えた分析機関において分析値を得ることが必須です。自ら分析する際には内部管理システムを整え、信頼できる科学的データに基づいて行動しなければなりません。

3.5 信頼出来る分析値を得るためには適切なマネジメントが必要

食品中の化学物質の分析を行う際には、日々の試験室内での一連の操作や分析結果が正常に保たれているかどうかを確認し、異常や疑わしい点があれば適宜改善を行い、一定の品質を維持すること(精度管理)が大切です。なかでも、自らの試験室内で日常的に行う精度管理を内部精度管理といいます。

食品に含まれる化学物質の分析に関しては、厚生省(当時)の「食品衛生検査施設等における検査等の業務の管理の実施について」(平成9年4月1日付け衛食第117号)等に準拠して内部精度管理を実施し、日常的に分析値の信頼性を検証することが必要です。

ただし、内部精度管理は1つの試験室内で行われるため、自らの分析結果を客観的に評価できません。そこで、基準となる値と比較して、自らの試験室の位置づけ や傾向を確認する取組(外部精度管理)が行われています。

食品分析の外部精度管理のため実施されるプログラムとしては、英国の FERA (Food and Environment Research Agency) が実施している FAPAS などの技能試験が有名です。環境中の放射性物質については国際原子力機関(IAEA) などで技能試験が行われています。

技能試験では、実施機関から配付された試料を、多数の分析機関が日常の管理の下で分析した結果を報告することで、自らの分析値が、参加分析機関の平均値等とどれだけ一致しているかを検証することができます。

3.6 国際的に通用する分析機関とは

分析機関における品質保証に関する国際規格として ISO/IEC 17025: 2005 があります。ISO/IEC 17025: 2005 の認定を受けると、分析に関する品質管理が適切に実施されていることや技術的に的確で妥当な結果を出す能力があることを示すことができます。

食品分析の分野では、コーデックス委員会5のガイドラインで食品の輸出入の規制に関わる試験室の条件として ISO/IEC 17025: 2005 への適合を求めています。 国際的には ISO/IEC 17025: 2005 に適合していない分析機関による分析結果は通用しないことに留意が必要です。

なお、 $\underline{ISO/IEC}$ 17025: 2005 は分析法ごとに認定されるものであることから、分析を発注する際には、分析機関が $\underline{ISO/IEC}$ 17025: 2005 の認定を取得しているとしても、何の分析法で認定を取得しているのかということを分析機関に確認する必要があります。

-

⁵ コーデックス委員会は、消費者の健康の保護、食品の公正な貿易の確保等を目的として、1963年に国際連合食糧農業機関 (FAO) 及び世界保健機関 (WHO) により設置された国際的な政府間機関であり、国際食品規格の策定等を行っています。

4 Nal (TI) シンチレーションスペクトロメータを用いて測定した結果を評価する上での留意事項

以下に、Nal(TI)シンチレーションスペクトロメータを用いて測定した結果を評価する上で留意すべき点を簡単にまとめました。詳しくはデータ編を参考にしてください。

- ・ゲルマニウム半導体検出器と、NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータで の測定結果について、測定値のばらつきが以下の点を配慮して十分見積もられて いる場合、真の値に近い結果が出ると想定されます。
- ・測定値のばらつきの程度には、試料の種類やサンプリング方法が大きく影響し、 特に、測定容器が小さい場合や密度の低いサンプルの測定では測定値のばらつき が非常に大きくなることに留意する必要があります。

放射性セシウム濃度が 100 Bq/kg 程度の農産物試料について、同一試料を 繰り返し分析した場合、容量 1 L のマリネリ容器を用いたゲルマニウム半導 体検出器での測定において相対標準偏差で 10 % 程度、これより測定容器の 小さい NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータの測定では、相対標準 偏差で 20~30 % 程度のばらつきが通常ありえます。

- ・測定を予定している農畜水産物や農業資材等について、実際に測定した場合にそ もそもどの程度ばらつきが生じうるのか、均一性が確認された同一試料を用いて、 繰り返し分析6を行い、ばらつきの程度を事前に評価しておくことが重要です。
- ・測定値のばらつきは測定時間が短いほど大きくなります。100 Bq/kg 程度の放射性セシウム濃度の農産物試料について信頼できる測定結果を得るためには、最低でも10分間以上が必要であり、安定的な結果を得るためには20分間程度測定することが望ましいと言えます。
- ・NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータが正しい値を示しているか確認するためには、どのような標準物質を用いても良いという訳ではありません。 認証標準物質7やそれぞれの機器に適した校正用の標準体積線源8を用いて測定する必要があります。なお、測定値と認証値の一致の程度については計算で定量的

⁶ 農林水産省が有害化学物質の分析を外部の分析機関に発注する際は、通常、1日7回×3日間の繰り返し分析(測定用試料を調製するところから繰り返した独立の分析結果)を求めています。

⁷ 分析の「基準となる物質」を標準物質と言います。国際標準化機構 (ISO) による国際指針に沿って作成され、 測定する化学物質の含有量に関する認証書が付いている標準物質を「認証標準物質」と言います。

⁸ 測定値が正しい値を示しているかどうかを評価するため、適切な容量を持ち、測定の基準となる放射性物質が既知の量入っているもの。

に評価する方法も知られています%。

「ゲルマニウム半導体検出器での測定結果と比較する場合には、単純に1検体 の測定値を比較するのではなく、ゲルマニウム半導体検出器での測定自体も ばらつくことを考慮に入れて評価する必要があります。

・NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータは、他の放射性物質を放射性ヨウ素や放射性セシウムと間違って検出してしまう可能性があります。予期しない高い値が検出された場合には、ゲルマニウム半導体検出器で確認分析することが必要です。

.

認証標準物質を用いて測定値を判定する方法については、European Reference Materials' application note 1
Comparison of a measurement result with the certified value (日本語版も掲載されています。)等が参考になります。
http://www.erm-crm.org/ERM products/application notes/application note 1/Pages/index.asp

(参考) データ編

1 測定値は真の値にどのぐらい近いか

実際に、同一のサンプルを、3種類の異なる機器、異なる測定時間で測定してみた結果について一例を紹介します。ここで、機器 A はゲルマニウム半導体検出器、機器 B 及び機器 C は NaI (Tl) シンチレーションスペクトロメータ (異なるメーカーの機器)です。測定容器の容量には以下の表のように違いがあります。

表:実験に用いた機器の種類

記号	機器の種類	測定容器容量
機器 A	ゲルマニウム半導体検出器	1 L
機器 B	NaI (Tl) シンチレーションスペクトロメータ	約 900mL
機器C	NaI (Tl) シンチレーションスペクトロメータ	約 330mL

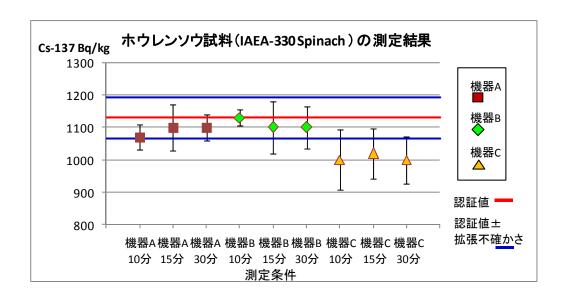
次の図は、 $x \to \nu \nu \nu \nu \nu$ (乾燥物)の測定結果を示しています。このホウレンソウ試料は、国際原子力機関(IAEA)から購入したものであり、IAEA による認証書がついているものです 10 。認証書に記載されているセシウム $^{-137}$ の量(Bq/kg)を「認証値」と呼びます。認証値は、信頼できる複数の分析機関で測定された結果をもとに、IAEA がセシウム $^{-137}$ の濃度(Bq/kg)を計算して値を決めたものですから、その値は十分信頼出来ると考えられます。

赤い線は IAEA による認証値を示しています。しかし、たとえ国際機関からの認証書がついていても認証値自体は真の値ではありません。このため、真の値が 95% の確率でこの範囲の中に存在すると推定される区間 (拡張不確かさ) を青線で示しています。従って青線で挟まれた間に真の値が存在している確率が高いと言うことができます。

図の中で、赤色の四角形、緑色のひし形、黄色の三角形は、各機器・各測定時間条件で、3回の繰り返し分析11した測定値の平均値を示しています。また、上下に伸びる「ひげ」(「エラーバー」とも呼びます)は、各条件下での3回の測定値の

10 このような認証書がついている標準物質(モノを測るときの「基準となる物質」)を「認証標準物質(Certified Reference Material)」と呼びます。認証標準物質については、国際標準化機構(ISO)が発行しているガイド 30 シリーズで国際的な指針が定められています。

 $^{^{11}}$ 一度測定容器に詰めた試料を連続で測定するのではなく(例えば、一度容器に詰めた試料について容器から試料を取り出さず 10 分間× 3 回測定ではない)、測定試料を測定容器に詰めるところから繰り返して独立に測定したもの。



この図をみると、機器 A や機器 B では、青線で挟まれた範囲と測定値とが良く一致していることがわかります。従って、同じホウレンソウ試料を測定した結果について、機器 A のゲルマニウム半導体検出器と機器 B の NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータは、ともに真の値に近い測定値を出すことができたと言うことができます。

では、機器 C での測定結果は、真の値とはかけはなれているということでしょうか?

先の図では、ばらつきの程度について、たった3回の繰り返し分析の結果から計算された標準偏差を図に示したものでしたが、次の図では、このホウレンソウ試料を何度も分析した場合の測定値のばらつきが実際にはその3倍程度はあるであろうと仮定したものです。

このようにばらつきが大きく見積もられていれば、その範囲の中に真の値が含まれる確率は高くなります。

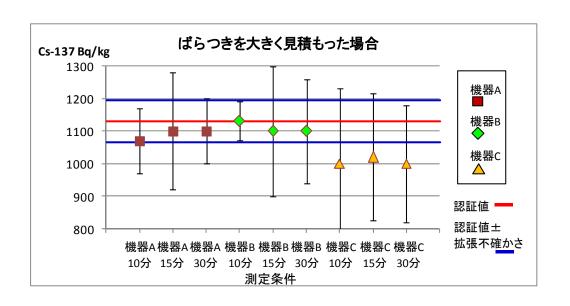
これらの結果からは、<u>ある程度のばらつきが見込まれていれば NaI (Tl) シンチレーションスペクトロメータの測定結果はゲルマニウム半導体検出器での測定結果とあまり変わらない</u>と言えることがわかります。

つまり、測定値を比較するときには、単に1回の分析結果を比較するのではなく、 対象とする農産物や食品などで、測定結果がどの程度ばらつくのか、均一性が確認

繰り返して測定した場合(測定値が正規分布)、約95%が平均値±2×標準偏差の間に入ります。つまり、100個データがあったとして、およそ95個が平均値から標準偏差の2倍の範囲に入ることが知られています。

 $^{^{12}}$ 測定値の散らばりの度合を表す数値で、標準偏差= $\sqrt{\frac{(測定値 - 平均値)^2 の和}{\vec{r} - 9 - 4000}}$ で計算されます。同じ試料を何回も 鍋 12 の表して測定値が正規会をあり、約 12 の表して測定値が正規会をあり、約 12 の表して測定値が正規会をあり、約 12 の表します。 のまり、100 個 デ

された同一試料を用いて繰り返し分析を行い、ばらつきの程度を予め把握した上で比較する必要があります。



次の2つの図は、測定する試料を別のものに変えた場合の測定値の比較です。

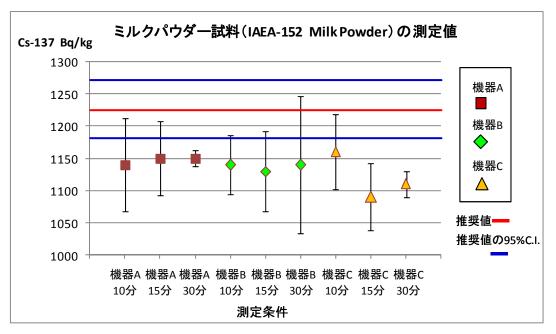
ミルクパウダーの測定値の図では、機器 A、機器 B、機器 C のいずれも、測定値が青線で挟まれた区間からずれていないとは言えないことがわかります。

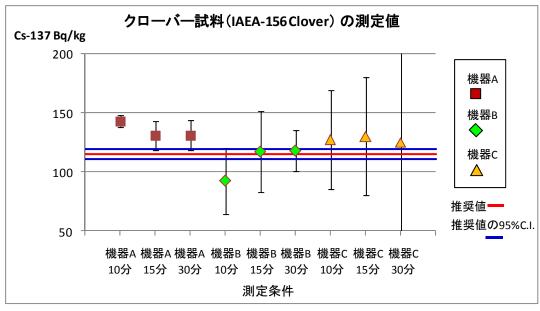
また、<u>クローバー</u>(乾燥物)の測定値の図では、機器 A はばらつきの範囲は小さいものの、ばらつきを考慮しても青線で囲まれた区間にちゃんと入っているとは言えません。一方、機器 B (15 分測定、30 分測定)や機器 C はばらつきの範囲は大きいですが、ばらつきを考慮すれば、測定値は青線で挟まれた区間にちゃんと入っていると言うことができます。

このように<u>測定対象とする食品の種類によっても測定値のばらつきの程度は大</u>きく変わることに注意が必要です。

特に<u>乾燥クローバー</u>の試料を測定した結果は、機器 A や機器 B と比べて、機器 C でばらつきの程度が大きくなっていますが、これは、実は、機器 C の測定容器の大きさが機器 A や機器 B の半分以下であったことが原因と考えられます。<u>重量が軽く、密度が小さい試料での測定では、測定容器が小さいとばらつきの程度が非常に大きくなることに注意が必要です。</u>

各機器、測定対象とする農産物や食品の種類ごとに、均一性が確認された同一試料を用いて繰り返し分析を行い、ばらつきの程度を事前に確認しておくことが重要と言えます。



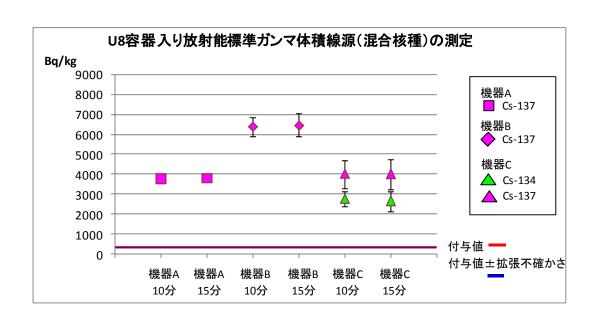


2 Nal (TI) シンチレーションスペクトロメータの特性

次の図は、(財)日本アイソトープ協会が販売している測定の基準となる放射性物質(標準線源)を測定した結果です。この標準線源はプラスチック容器(U8容器)に入っており、複数の放射性核種(カドミウム-109、コバルト-57、セリウム-139、クロム-51、ストロンチウム-85、セシウム-137、マンガン-54、イットリウム-88、コバルト-60)を含み、その含有量の証明書がついているものです。

証明書に記載されている数値から計算すると、セシウム-137 は約 360 Bq/kg 含まれていると推定されます。また、証明書によると、セシウム-134 は含まれていないことが分かっています。

しかし、実際の測定結果をみると、本来含まれているはずの濃度を大幅に上回る値が測定されました。また、機器 C では本来含まれていないセシウム-134 が測定されたとの結果が出ています。



(参考) U8 容器入り放射能標準ガンマ体積線源 左図:上から撮影、右図:横から撮影





これは、ガンマ線エネルギーがセシウム-134 に近いマンガン-54 を、セシウム-134 として誤って検出していると推測されます。

表:測定した U8 容器入り放射能標準ガンマ体積線源に含まれる核種

核種	主なガンマ線	放出割合
	エネルギー KeV	(%)
¹⁰⁹ Cd	22.1	84.2
⁵⁷ Co	122	85.6
¹³⁹ Ce	166	78.9
⁵¹ Cr	320	9.9
⁸⁵ Sr	514	95.7
¹³⁷ Cs	662	85.1
⁵⁴ Mn	835	100
⁸⁸ Y	898	93.7
⁶⁰ Co	1173	99.9
	1333	100

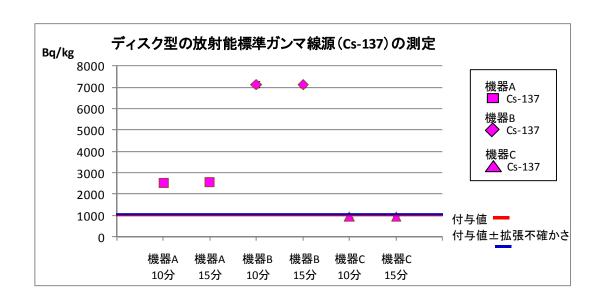
(参考) Cs-134 のガンマ線エネルギー

核種	主なガンマ線	放出割合
	エネルギー KeV	(%)
¹³⁴ Cs	605	97.6
	796	85.5
	802	8.7

この結果からは NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータでは、測定目的とするヨウ素-131、セシウム-134 やセシウム-137 に近いガンマ線エネルギーを持った放射性核種を誤って検出する可能性があることがわかります。

このため、例えば、半減期から考えて不自然な量のヨウ素-131 が含まれているとの測定値が出た場合や、他の農産物の測定結果とセシウム-137 とセシウム-134 の存在比が大幅に違う結果が出た場合など、<u>予想外の結果が出た場合は、放射性物質を区別して定量する能力が高いゲルマニウム半導体検出器で確認することが</u>重要です。

次の図は、先程の上の図とは別のディスク状の形をした標準線源を測定した結果です。機器 A や機器 B では、(財)日本アイソトープ協会の証明書に記載されている数値(約 1000~Bq/kg)を大幅に上回る測定値が得られています。



(参考) ディスク型の放射能標準ガンマ線源

左図:マリネリ容器に入れた状態で上から撮影右図:マリネリ容器に入れた状態で横から撮影





これら2種類の標準線源を測定した結果からは、標準線源であっても測定値が正しいかどうかを判断するための比較を目的とする場合には、どんな形状のものを使用しても良いわけではないことがわかります。<u>測定値が正しい値を示しているかどうかを評価するためには、適切な容量を持った線源(これを「体積線源」</u>と言います。)で測定することが重要です。

標準線源を用いて、機器が正しい値を示していることを担保するためメンテナ ンスを行うことを「機器の校正」と言い、放射性物質の測定機器では、定期的に 行う必要があります。

実際の校正作業は、機器によって方法が異なり、専門的な内容になるので、それぞれ購入したメーカー等の専門の技術者に相談することが重要です。

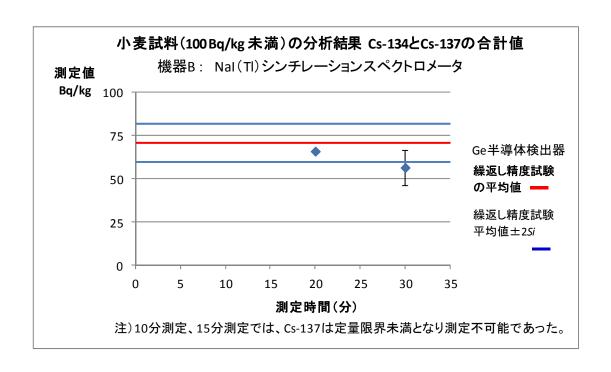
3 実際の農産物試料の測定値を比較してみると

次の図は、放射性セシウム (セシウム-134 とセシウム-137 の合計) 濃度が 100 Bq/kg 未満の小麦試料を測定した結果について、ゲルマニウム半導体検出器での測定値と NaI (Tl) シンチレーションスペクトロメータの測定結果を比較したものです (各機器については 9ページを参照)。

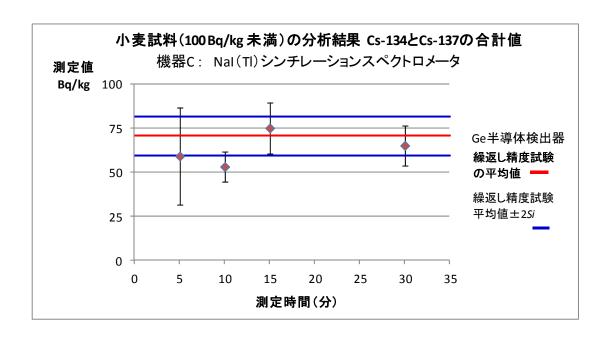
ひし形は3回の繰り返し分析で得られた測定値の平均値です。また、平均値から上下にのびている「ひげ」は各測定条件において3回の繰り返し分析で得られた測定値の標準偏差の2倍の範囲を示しています。

また、赤線は同じ試料をゲルマニウム半導体検出器で何度も繰り返し分析した時の平均値、青線は真の値が 95%の確率で含まれると推定される範囲を示しています。具体的には、赤線は、測定容器に試料を詰めるところから繰り返して1日当たり7回の測定を異なる3日間行った結果、すなわち合計 21回の繰り返し分析の結果から得られた平均値(赤線)であり、青線はその 21回の繰り返し分析で求めた標準偏差(室内再現精度 Si)の 2倍の範囲(真の値が約 95%の確率で含まれると推定される範囲)です。

機器 B での測定では、10 分間測定、15 分間測定では測定時間が十分でなく、測定プログラム上では、定量限界未満(機器で定量可能な最低濃度を下回わった)との測定結果になりました。



機器 C での測定では、ゲルマニウム半導体検出器での測定結果と NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータの測定結果が近いと言えますが、5 分間測定の条件では、ばらつきが非常に大きくなっていることが分かります。



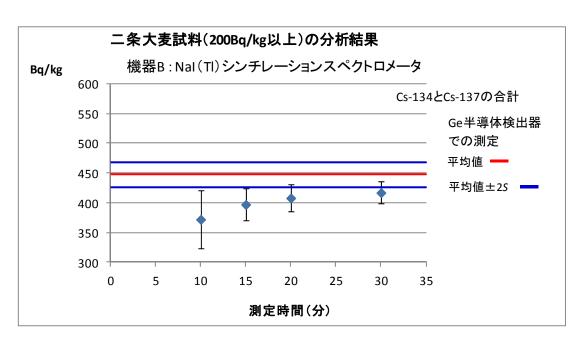
これらの結果からは、小麦試料の測定について、ゲルマニウム半導体検出器での測定結果と NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータの測定結果は近い値が得られることがわかりますが、測定時間は最低でも 10 分間程度、機器によっては 20 分間程度の測定時間が必要であることがわかります。

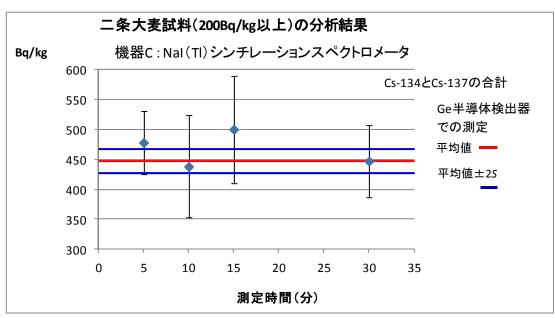
次の2つの図は、二条大麦試料を測定したものです。今度は、放射性セシウム (セシウム 134 とセシウム 137 の合計) 濃度が 200 Bq/kg 以上であるものを測定した結果です。

ひし形は3回の繰り返し分析で得られた測定値の平均値です。また、平均値から上下にのびている「ひげ」は各測定条件において3回の繰り返し分析で得られた測定値の標準偏差の2倍の範囲を示しています。

また、赤線は同じ試料をゲルマニウム半導体検出器で合計 12 回の測定(測定条件は5 分間測定 $\times 3$ 回、10 分間測定 $\times 3$ 回、15 分間測定 $\times 3$ 回、30 分間測定 $\times 3$ 回。各 3 回の測定は測定容器に試料を詰めるところから繰り返し。)を行った結果から得られた平均値であり、青線は12 回の測定結果から求めた標準偏差(S)の2 倍の範囲です。

機器 B は、20 分未満の測定ではゲルマニウム半導体検出器での測定結果とずれていないとはいえませんが、20 分間測定及び30 分間測定では近い結果を出していると言えます。また、機器 C は、測定容器が小さいためばらつきが大きいですが、ゲルマニウム半導体検出器の測定結果と近い結果を出していると言えます。





4 測定値はどの程度ばらつくのか

以下の(1)~(3)の各データは、良く混ぜた麦(小麦又は二条大麦)の山(重量としては約2kg)から測定容器に入る分量だけ麦を入れ、放射性セシウムの測定後に容器中の麦の全量を元の麦の山に戻し、良く混ぜ、きれいに洗浄した測定容器に再び同じ山から麦を採って測定するという作業を繰り返すことにより、同一の麦試料を何度も測定した結果です。

具体的には、9 ページに記載の各機器を用いて、1 日当たり 7 回、日を変えて合計 3 日間の繰り返し分析(すなわち合計 $7\times3=21$ 回測定)を行いました。

同一の麦試料であっても測定するたびに測定値はばらつくということ、また、程度の大小はありますが、ゲルマニウム半導体検出器でも、NaI (Tl) シンチレーションスペクトロメータでも、測定値がばらつくことがわかります。

どの程度ばらつくのかということは、計算により数字で比較評価することができます。この実験からは、あくまで放射性セシウム濃度が 100 Bq/kg 程度の小麦試料を測定した場合という条件がつきますが、測定容器の容量が 1 L 程度のゲルマニウム半導体検出器での測定値でも通常 10% 程度、これより容器の容量が小さい NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータでの測定では通常 20~30%程度のばらつきがあり得ることを念頭に測定結果を評価すべきということがわかります。

これまで述べたように測定対象とする食品等の種類によってもばらつきの大き さは異なるため、測定しようとする食品毎に、均一性が確認された同一試料を用い て繰り返し分析を行い、ばらつきの程度を事前に確認しておくことが重要です。

(1) ゲルマニウム半導体検出器(機器 A)

 \bigcirc Cs-134

試料:小麦	100 Bq/kg5			
測定時間:10分間測定				
				単位 Bq/kg
Cs-134		1日目	2日目	3日目
	1回	32.2	34.7	37.8
	2回	33.7	30.2	37.1
	3回	35.4	33.6	36.9
	4回	35.4	32.5	31.5
	5回	33.0	35.6	28.8
	6回	28.5	28.2	32.9
	7回	34.7	30.6	32.3

②Cs-137

	100 Bq/kg5			
測定時間:10分間測定				単位 Bq/kg
Cs-137		1日目	2日目	3日目
	1回	38.0	31.5	32.6
	2回	43.2	39.9	37.5
	3回	34.1	47.2	41.7
	4回	32.5	38.2	36.5
	5回	33.9	39.9	34.2
	6回	43.2	32.1	30.7
	7回	43.6	38.6	39.1

このデータを用いて一元配置の分散分析¹³を行った結果から、室内再現標準偏差¹⁴について、セシウム-134 は相対標準偏差¹⁵で 8.6%、セシウム-137 は相対標準偏差で 13%のばらつきがあることが計算されます。

(2) Nal(TI)シンチレーションスペクトロメータ (機器 B)

①Cs-134

試料: 二条大麦100 Bq/kg以上200 Bq/kg未満のもの					
測定時間:30分間測定					
				単位 Bq/kg	
Cs-134		1日目	2日目	3日目	
	1回	83.4	78.4	87.0	
	2回	65.8	75.5	70.9	
	3回	78.6	85.1	87.3	
	4回	73.9	79.7	89.1	
	5回	83.5	82.3	67.4	
	6回	68.4	73.5	88.7	
	7回	85.7	74.3	75.0	

②Cs-137

.

試料: 二条大麦100 Bq/kg以上200 Bq/kg未満のもの						
測定時間:30分間測定						
				単位 Bq/kg		
Cs-137		1日目	2日目	3日目		
	1回	100	95.4	93.6		
	2回	86.5	72.4	75.5		
	3回	87.8	90.0	90.1		
	4回	88.8	83.5	95.4		
	5回	93.0	97.3	93.4		
	6回	95.5	89.7	100		
	7回	89.8	91.2	85.5		

¹³ Excel のデータ分析「分散分析: 一元配置」を用います。分散分析の結果から精度指標を計算する方法については、「最新版 食品分析法の妥当性確認ハンドブック (サイエンスフォーラム)」などが参考になります。

¹⁴ 同じ方法を用い、同じ試験室で、異なる日、異なるオペレータ、異なる校正を用いて繰り返し分析して得られた 測定値間の一致の程度を標準偏差で示したもののことです。

¹⁵ 標準偏差を平均値で割ったものを「相対標準偏差」と呼びます。例えば、象の集団の体重の標準偏差が 100 kg, 人の集団の体重の標準偏差が 10 kg であった場合, 単純に比較すると象のほうがバラツキは大きいということになりますが、象と人ではそもそもの体重が違うので、標準偏差をくらべても単純に評価できません。このような場合、標準偏差を平均値で割った「相対標準偏差」を使うと比べやすくなります。

このデータを用いて一元配置の分散分析を行った結果から、室内再現標準偏差について、セシウム-134 は相対標準偏差で 9.5%、セシウム-137 は相対標準偏差で 8.0%のばらつきがあることが計算されます。

(3) Nal(TI)シンチレーションスペクトロメータ (機器 C)

\bigcirc Cs-134

試料:小麦100 Bq/kg未満のもの 測定時間:30分間測定				
				単位 Bq/kg
Cs-134		1日目	2日目	3日目
	10	39.9	19.5	29.4
	2回	16.8	45.4	26.7
	3回	43.0	27.9	44.7
	4回	32.4	33.1	38.5
	5回	41.2	34.6	38.5
	6回	26.3	41.1	36.2
	7回	39.5	45.1	42.8

②Cs-137

	100 Bq/kg 30分間測定			
				単位 Bq/kg
Cs-137		1日目	2日目	3日目
	1回	34.7	42.5	38.3
	2回	42.9	26.0	23.3
	3回	44.6	42.7	41.0
	4回	32.4	30.4	35.2
	5回	36.6	24.3	30.2
	6回	39.2	30.6	26.8
	7回	32.1	24.4	23.7

このデータを用いて一元配置の分散分析を行った結果から、室内再現標準偏差について、セシウム-134 は相対標準偏差で 25%、セシウム-137 は相対標準偏差で 22%のばらつきがあることが計算されます。