

## 放射性物質検査に係る精度管理調査の試み

石森英樹 皆川真之 村田将<sup>1)</sup> 堤泰規<sup>2)</sup> 吉田加寿子 大越憲幸 笹原賢司  
 衛生研究所 <sup>1)</sup> 三重県防災対策部防災企画・地域支援課 <sup>2)</sup> 福岡県筑紫保健福祉環境事務所

## 要 旨

放射性物質検査に係る精度管理調査を行うため、K-40 を測定対象核種とした検討検体を調製し、精度管理への適用性の評価を行った。小麦粉および超純水に塩化カリウムを添加した検討検体では、安定した測定結果が得られ、精度管理調査に使用可能であると判断した。評価の結果を踏まえ、放射性物質検査を行っている検査機関に食品および飲料水模擬検体を配布し精度管理調査を行った。食品模擬検体では1機関が外れ値を示したが、概ね良好な結果であった。また飲料水模擬検体については、外れ値を示した機関はなく良好な結果であった。

キーワード：放射性物質検査，精度管理調査，K-40

## はじめに

2011年3月の原発事故を受け、県では飲料水及び食品中の放射性物質検査を実施し、食の安全・安心の確保に努めている。放射性物質検査には多種多様な試料を迅速に検査することに加え、分析の精度、正確さも求められる。そのためには試料間の相互汚染防止対策等に加え、機器の校正等、検査の信頼性確保に係る対応が必要となる。

今回、K-40 を測定対象核種として食品および飲料水の精度管理用検体を調製した。これを、ゲルマニウム半導体検出器による放射性物質検査を行っている検査機関に配布して、精度管理調査を試行した。

## 材料及び方法

## 1 検体の調製

精度管理適用の可否を評価するため、市販の小麦粉および超純水に塩化カリウム（以下：KCl）を添加し食品検討検体および飲料水検討検体を調製した。KCl中のカリウム中にはβ線、γ線を放出する半減期12.8億年のK-40が含まれており、これを検査対象核種として、ゲルマニウム半導体検出器により測定を行った。

食品検討検体は、小麦粉約3kgにKClを75g添加し、約5分間攪拌したものを検体とした。カリウム1gあたり30.4BqのK-40が含ま

れており、今回検討に用いた小麦粉には約40Bq/kgが含まれていたため、設定濃度は理論値として約440Bq/kgとなる。検体3kgを約110gずつ26個に分け、その中から5検体を抜き取り、100mL U8容器を用いてゲルマニウム半導体検出器による測定を行った。

飲料水検討検体は、30Lの水にKCl 300gを添加し十分に混和した。設定濃度は、理論値として約160Bq/kgとなる。30Lを約2Lずつ14個に分け、その中から6検体を抜き取り2Lマリネリ容器を用いて測定を行った。

## 2 放射性物質測定精度管理調査

小麦粉約6kgにKClを150g添加し約15分間攪拌したものを食品模擬検体、超純水70LにKCl 700gを添加し十分に混和したものを飲料水模擬検体とした。

設定濃度については検討時と同様に、食品模擬検体が約440Bq/kg、飲料水模擬検体が約160Bq/kgとなる。

検査機関（23機関）に食品模擬検体約150g、飲料水模擬検体約2Lを配布し、各機関で通常行っている測定時間に加え、食品模擬検体については20,000秒、飲料水模擬検体については10,000秒での測定を行い結果について報告を求めた。

結果および考察

1 検体調製の検討

食品検討検体について 2,000 秒の測定を行った結果を表 1 に示す。

表 1 食品検討検体測定結果 (2,000秒)

平均値 (Bq/kg)	標準偏差 (Bq/kg)	変動係数 (%)	最大値 (Bq/kg)	最小値 (Bq/kg)
407	72.3	17.8	497	333

平均値は 407Bq/kg であり設定値よりも若干低い値が得られた。標準偏差が 72.3Bq/kg、変動係数は 17.8 % とばらつきの大きい結果であり、また検出限界値についても約 160 ~ 170Bq/kg と高い値となった。2,000 秒の測定では安定した結果が得られず、測定時間を延長する必要があると判断された。測定時間を 20,000 秒に延ばし測定を行った結果を表 2 に示す。

表 2 食品検討検体測定結果 (20,000秒)

平均値 (Bq/kg)	標準偏差 (Bq/kg)	変動係数 (%)	最大値 (Bq/kg)	最小値 (Bq/kg)
432	11.1	2.6	448	419

20,000 秒の測定を行った結果、平均値は 432Bq/kg と設定値に近い値が得られた。また標準偏差 11.1Bq/kg、変動係数が 2.6 %、検出限界値が 22 ~ 31Bq/kg となり、2,000 秒測定の結果と比べて良好な結果が得られた。食品検討検体については測定値のばらつきが大きく検出限界値も高い値であるため 2,000 秒測定での評価は困難であると判断し、より安定した結果が得られる 20,000 秒の測定を行い評価することとした。

飲料水検討検体について 2,000 秒間の測定を行った結果を表 3 に示す。

表 3 飲料水検討検体測定結果 (2,000秒)

検体 No.	1	2	3	4	5	6	平均
測定値(Bq/kg)	153	141	155	152	140	163	151

平均値は 151Bq/kg であり、理論値に近い値を得た。標準偏差が 8.7Bq/kg、変動係数は 5.8 % であった。多少のばらつきがみられたため、

最大値および最小値を示した検体について 10,000 秒の測定を行った。その結果それぞれ 158Bq/kg, 157Bq/kg となり、より理論値に近い値を得た。飲料水検討検体については 10,000 秒の測定を行うことにより、概ね正確な結果が得られると考えられた。

さらに食品検討検体では、同一機器による 20,000 秒測定を 5 回繰り返し行い、測定値のばらつきを確認した (図 1)。

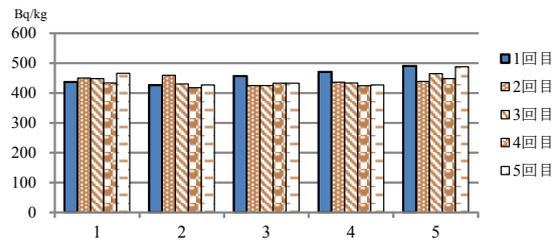


図 1 同一機器による繰り返し測定

それぞれの平均値は 432 ~ 466Bq/kg、標準偏差は 12.7 ~ 23.1Bq/kg、変動係数が 2.8 ~ 5.0 % であり、大きなばらつきはみられなかった。また、測定機器を変えながら 20,000 秒の測定を 5 回行い、機器による測定値のばらつきの確認を行った (図 2)。

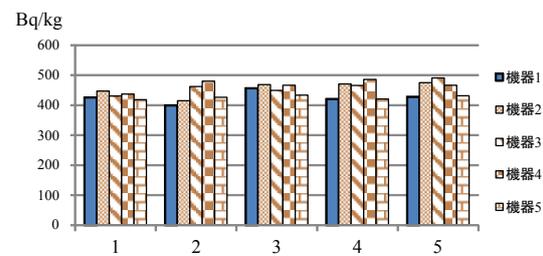


図 2 機器を変えての繰り返し測定

それぞれの平均値は 432 ~ 458Bq/kg、標準偏差は 11.1 ~ 33.6Bq/kg、変動係数は 2.6 ~ 7.7 % であり、こちらも大きなばらつきはみられなかった。

2 放射性物質測定精度管理調査結果

ゲルマニウム半導体検出器による放射性物質検査を行っている 23 機関の検査機関を対象に K-40 を対象核種とした精度管理調査を行った。食品模擬検体について、各機関

表 4 食品模擬検体測定結果

機関 No.	20,000 秒測定			通常測定		
	測定値(Bq/kg)	誤差(±)	Z スコア	測定値(Bq/kg)	誤差(±)	測定時間(秒)
1	440	20	0.4	414	61	1800
2	452	25	1.1	418	81	1800
3	448	26	0.8	448	58	3600
4	623(439)	24	-	-	-	-
5	433	22	-0.1	496	73	1800
6	386	22	-2.9	402	68	2000
7	436	22	0.1	461	80	1500
8	392	20	-2.5	317	98	600
9	435	21	0.1	481	64	2000
10	398	22	-2.2	427	50	3600
11	447	24	0.8	442	74	2000
12	421	20	-0.8	436	48	3600
13	432	24	-0.1	379	77	1730
14	447	22	0.8	342	61	2000
15	416	21	-1.1	433	40	5000
16	453	26	1.1	-	-	-
17	433	18	-0.1	426	36	5000
18	433	23	-0.1	433	45	5000
19	457	26	1.4	382	57	3600
20	438	27	0.2	468	120	1000
21	469	24	2.1	447	69	2400
22	426	34	-0.5	468	78	3600
23	424	27	-0.6	402	57	5000

※括弧内は再解析値

表 5 食品模擬検体統計値 (20,000秒測定)

平均値 (Bq/kg)	標準偏差 (Bq/kg)	変動係数 (%)	最大値 (Bq/kg)	最小値 (Bq/kg)
433	20.3	4.7	469	386

表 6 食品模擬検体統計値 (通常測定)

平均値 (Bq/kg)	標準偏差 (Bq/kg)	変動係数 (%)	最大値 (Bq/kg)	最小値 (Bq/kg)
425	43.9	10.3	496	317

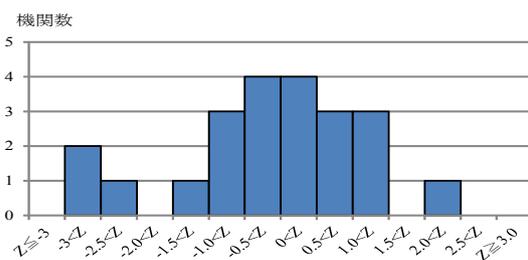


図 3 Zスコアによるヒストグラム (食品)

の 20,000 測定および通常行っている測定時間での結果を表 4 に、それぞれの統計値を表 5、表 6 に示す。また、図 3 に Z スコアによるヒストグラムを示す。各機関の通常測定を行った結果は、平均値 425Bq/kg、標準偏差 43.9Bq/kg、室間変動係数 10.3 % でありばらつきの大きい結果であった。この結果は検討時

のものと一致しており、そのため評価については 20,000 秒測定での結果について行うこととした。結果は、1 機関で Grubbs の検定により外れ値を示した。外れ値を除いた後の平均値は 433Bq/kg、標準偏差が 20.7Bq/kg、室間変動係数は 4.8 % であった。Z スコアについては絶対値が 3 を超える機関はなく概ね良好な結果であ

った。外れ値を示した機関に原因等について回答を求めたところ、バックグラウンド補正を行っていないことが原因であった。今回対象核種とした K-40 は、自然界に多く存在する核種であるため、バックグラウンドの影響を強く受けると考えられる。バックグラウンド補正後に再解析するよう依頼したところ、439Bq/kg と平均値に近い値が得られた。

飲料水模擬検体について各機関の 10,000 秒測定および通常行っている測定時間での結果を表 7 に示し、またそれぞれの統計値を表 8、表 9 に示す。評価については、食品模擬検体と同様、検討時の結果から 10,000 秒測定での結果について行うこととした。Grubbs の検定の結果、外れ値となった機関はなかった。Z スコアによるヒストグラムを図 4 に

示す。2 機関において Z スコアの絶対値が 3 を超える結果であったが、多くの機関が平均値に近い報告値であり、多少の誤差で大きく影響を受けたと考えられたため、原因等についての回答は求めなかった。ただし、1 機関は食品模擬検体の結果で外れ値を示した機関であり、同様にバックグラウンドの補正を行っていなかったため、併せて再解析を依頼した。再解析した結果は 164Bq/kg であり、平均値に近い値であった。全機関の平均値は 161Bq/kg、標準偏差が 5.42Bq/kg、室間変動係数が 3.3 % であり良好な結果であった。以上の結果から、K-40 を対象核種とした精度管理調査が可能であると判断された。また、K-40 は KCl など試薬として入手や取り扱いが容易であり、ゲルマニウム半導体検

表 7 飲料水模擬検体測定結果

機関 No.	10,000 秒測定			通常測定		
	測定値(Bq/kg)	誤差(±)	Z スコア	測定値(Bq/kg)	誤差(±)	測定時間(秒)
1	158	4.1	-0.5	163	9.7	1800
2	166	4.5	1.6	168	10	1800
3	160	4.0	0.0	163	10	2400
4	175(164)	4.2	4.0	-	-	-
5	161	4.2	0.3	168	10	1800
6	170	4.4	2.7	166	10	1800
7	155	4.2	-1.3	160	11	1500
8	157	4.2	-0.8	173	11	1500
9	160	3.5	0.0	147	7.8	2000
10	163	3.8	0.8	150	11	1000
11	162	4.8	0.5	165	11	2000
12	158	3.8	-0.5	158	8.8	1800
13	173	5.6	3.5	167	11	2333
14	165	4.5	1.3	149	9.4	2000
15	159	3.6	-0.3	158	8.1	2000
16	160	5.2	0.0	176	12	2000 ~ 3000
17	159	3.3	-0.3	157	7.3	2000
18	158	4.9	-0.5	158	11	2000
19	156	4.8	-1.1	158	8.1	3600
20	162	5.0	0.5	156	11	1800
21	163	4.6	0.8	188	20	600
22	161	4.9	0.3	167	11	2000
23	153	3.7	-1.9	156	8.7	1800

※括弧内は再解析値

表 8 飲料水模擬検体統計値 (10,000秒測定)

平均値 (Bq/kg)	標準偏差 (Bq/kg)	変動係数 (%)	最大値 (Bq/kg)	最小値 (Bq/kg)
161	5.42	3.3	175	153

表 9 飲料水模擬検体統計値 (通常測定)

平均値 (Bq/kg)	標準偏差 (Bq/kg)	変動係数 (%)	最大値 (Bq/kg)	最小値 (Bq/kg)
162	9.37	5.8	188	147

出器のエネルギーの位置ずれやピーク形状等の確認などが行いやすいことから、内部精度管理等行う際にも利用できると考えられる。

まとめ

K-40 を対象核種とし、KCl を添加した食品検討検体および飲料水検討検体を調製した。前者は 20,000 秒、後者は 10,000 秒の測定を行った。これにより比較的安定した結果を得ることが可能であった。また検体、測定機器によるばらつき等を評価した結果についても、大きなばらつきは認められなかった。

各検査機関から報告された結果は、食品模擬検体で 1 機関外れ値となった機関があったが、その他の機関では良好な結果であった。飲料水模擬検体では、外れ値となった機関はなく良好な結果であった。

今回検討した方法により K-40 を対象核種とした精度管理調査が可能であると判断された。また、試薬として入手、取り扱いが容易であること、エネルギーの位置ずれやピーク形状の確認などが行いやすいことから検査機関内で内部精度管理等行う場合にも利用できると考えられる。

今回調査対象とした検査機関における放射性物質の精度管理調査は、基準値の設定がされている測定対象核種である放射性セシウムとするのが理想であり、既にごく一部の機関等で実施されている。測定対象を放射性セシウムにした場合、測定後の検体の保管や廃棄などの処理が困難となることが予想されるため、特に水検体の検体量 (2L) を想定した精度管理調査は行われていない。さらに実施さ

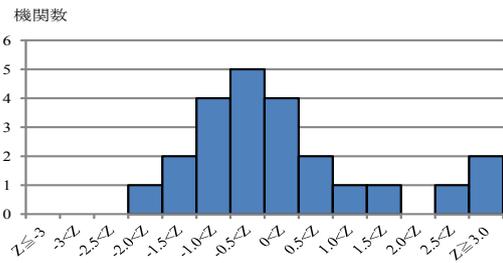


図 4 Zスコアによるヒストグラム (飲料水)

れている方法の多くは、既に測定容器に充填された試料を測定し、結果を報告するものとなる。一方、今回検討した方法は、測定後には試料を廃棄出来ること、充填操作を伴うためより室間精度管理が可能となる等のメリットがある。今後、県内の放射性物質検査における精度管理の一助となるよう、実施方法等についてさらに検討していきたい。