

論文内容の要旨

申請者氏名 三宅 大輔

現代社会においては様々な事柄が計測され、評価される。食品安全や栄養の分野も例外ではなく、食品や素材中の様々な成分が特定の目的をもって分析され、その結果を基に何らかの決定がなされる。誤った結果は健康被害や経済的損失を引き起こす可能性があることから、分析値が信頼できることは極めて重要である。信頼性のある結果を得るために、ISO/IEC 17025:2017では、認定試験所における品質マネジメントシステムの一部として、分析法の性能評価を要求している。精度は測定におけるばらつきの指標であり、かたよりを表す真度と並んで分析法の最も重要な性能特性の一つである。食品分析の分野では室間再現精度はよく研究されており、その予測値はHorwitzカーブに従うとされている。しかし、併行精度や両者の中間である中間精度(合わせて「室内精度」という)の予測に関する体系的な研究は少ない。これまで広い濃度と試料マトリックスの範囲で包括的に精度を推定するための実践的な方法はなく、試験所にとって分析法の性能評価における課題となっていた。

一方、観測データに確率モデルを適用して現実の現象を解釈又は予測する方法論として統計モデリングがある。近年はコンピュータサイエンスの発展により、マルコフ連鎖モンテカルロ法などの高度な数値演算手法が開発されている。これらの統計学的ソリューションは化学測定にも適用可能であり、適切な確率モデリングにより、実際のテストデータの分布を表現することができる。

そこで、本研究では種々の統計モデリング手法を検討し、試験所の分析システム毎に精度を適切かつ簡便に推定する手法の開発を目指した。データには試験所における実際のテストで得られた二重分析の結果を用いた。

検討においては、先行研究、統計学上の理論及び観測された現象を順次、構造に組み入れながらモデリング手法を拡張し、最終的に階層構造を持つベイズ推定モデルを構築した。回帰にはハミルトニアン・モンテカルロ法を用い、R及びStanにより実装した。統計モデルの基本構造にはカイ二乗分布、予測子の固定効果部分には定数項及び濃度依存項を持つ非線形関数、同ランダム効果の階層事前分布には対数正規分布をそれぞれ想定した。300以上のインスタンスを解析することにより、定義分析である水分を除き、想定したモデルに良好に適合する結果が得られた。同手法は、分光学的測定、ガスクロマトグラフィー、高速液体クロマトグラフィー等、幅広い測定原理に基づいた様々な分析対象物質に対して適用可能であった。推定結果は概ねHorRat(r)の基準の範囲内にあったが、質量分析法等の高感度検出器を用いた幾つかのケースでは同範囲を下回る標準偏差を示した。定数項を表すパラメータはいずれも想定どおり定量限界を下回る推定値が得られ、濃度依存項の指数は殆どが想定どおり1未満だが1に近い推定値が得られた。

以上の結果を基に、試料タイプに関係なく、本研究で確立したモデルで予測した室内精度を実際の分析の現場における内部品質管理や不確かさの推定に利用することを提案した。試験所で内部品質管理として日常的に実施されている二重分析のデータを用い、統計モデリングを実施することで、試験所における個別の分析システムに適合した精度を正確かつ簡便に予測することができる。

論文審査結果の要旨

申請者氏名 三宅 大輔

ベイズ統計学を活用した、研究室間の食品分析精度の新規アルゴリズムを開発した。この方法により、統計モデリングを実施することで、試験所における個別の分析システムに適合した精度を正確かつ簡便に予測が可能になった。博士としてふさわしい研究である。