

平成 24 年度  
第 1 回放射能クロスチェック  
報告書

平成 24 年 12 月

(一社) 日本環境測定分析協会  
放射能測定分析技術研究会

## 目 次

1. クロスチェックの実施概要.....	1
1.1 実施機関.....	1
1.2 試験項目および実施期間.....	1
1.3 試験方法.....	1
1.4 参加状況.....	1
2. 試料.....	2
2.1 試料の調整.....	2
2.2 均質性試験.....	2
3. 試験結果.....	4
3.1 試験結果記載要領.....	4
3.2 参加機関概要.....	4
3.3 測定結果.....	5
3.3.1 測定結果概要.....	5
3.3.2 統計解析結果概要.....	5
4. 考察.....	11
4.1 方法、装置による結果への影響.....	11
4.2 測定時間の影響.....	12
4.3 試料の前処理（見掛け比重）の影響.....	13
資料.1 参加機関.....	14
資料.2 アンケート結果.....	16

はじめに

平成 23 年 3 月 11 日に発生した東日本大震災に伴う原子力発電所の事故により放出された放射性物質の対策が行われる中、その測定における技術や精度管理の確立が重要であると考えられ、(一社)日本環境測定分析協会では、「放射能測定分析技術研究会」を立ち上げました。その活動の一環として第 1 回放射能クロスチェックを実施しました。

## 1. クロスチェックの実施概要

### 1.1 実施機関

一般社団法人 日本環境測定分析協会

放射能測定分析技術研究会 (RADI 研)

〒134-0084 東京都江戸川区東葛西 2 丁目 3 番 4 号

TEL 03-3878-2811

FAX 03-3878-2639

### 1.2 試験項目および実施期間

試験番号 : RADI2012-01

試験名 : 平成 24 年度第 1 回放射能クロスチェック

試験項目 : セシウム 134 及びセシウム 137

申込受付 : 平成 24 年 8 月 1 日から 9 月 7 日

試料配布 : 平成 24 年 10 月 1 日から 10 月 2 日

結果報告期限 : 平成 24 年 10 月 19 日

### 1.3 試験方法

$\gamma$ 線を測定することにより、セシウム 134 及びセシウム 137 を測定する。

試験方法は、文部科学省の放射能測定シリーズ 7 「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」平成 4 年改訂 に準拠

これ以外の分析方法またはゲルマニウム半導体検出器ではない場合は、分析方法を記載

### 1.4 参加状況

参加試験所 60 機関

報告試験所 60 機関

参加試験所名を資料 1 に示す。

## 2. 試料

### 2.1 試料の調整

下水処理場の焼却灰を約 20kg 採取し試料とした。

試料は 100  $\mu$  m のフルイでフルイ分けした後、混合機で攪拌混合した。

約 180 g を分取し、袋詰めし測定試料とした

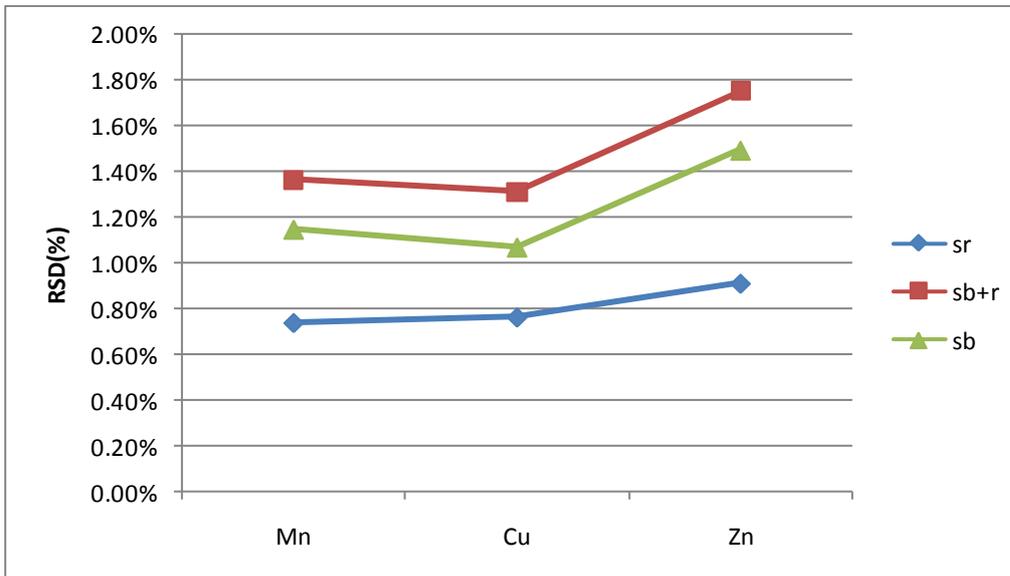
### 2.2 均質性試験

試料の均質性確認試験手順

- 1) 混合した灰試料 180 g ずつを 80 袋ビニール袋につめ、ナンバリングされたラベルをはる。
- 2) 袋詰めされた試料から任意の箇所計 12 カ所から試料をとり、各々を 3 試料にわけ
- 3) 合計 36 点について金属成分分析を行う。分析成分は Mn、Cu、Zn とする。なお試料の測定順序はランダムにより行う。
- 4) 合計 36 点のうち 30 点を選び、平均値及び標準偏差（併行、袋間）を求め変動係数を算出する。
- 5) 求めた変動係数が全て基準値である 3 % 以内であれば均質化されたと判断する。但し、1 項目だけ 4 % を超えないで基準値 3 % を超えている場合でも均質化は十分であると判断する。

表 2.1 均質性試験結果

袋番号	Mn(mg/kg)			Cu(mg/kg)			Zn(mg/kg)		
	測定1	測定2	測定3	測定1	測定2	測定3	測定1	測定2	測定3
5	1292.11	1247.87	1259.82	848.28	842.50	846.67	2893.18	2892.71	2882.05
9	1223.22	1248.05	1256.38	804.74	823.62	843.78	2792.22	2898.85	2843.73
21	1248.59	1258.83	1250.29	829.75	849.11	829.71	2845.10	2849.36	2786.75
23	1244.67	1276.22	1286.03	823.14	849.10	856.65	2805.83	2884.47	2934.21
25	1267.35	1269.96	1254.67	833.34	840.65	831.82	2920.04	2899.72	2839.06
29	1263.40	1294.14	1245.02	834.10	846.43	841.01	2848.98	2980.20	2842.01
44	1247.19	1259.70	1261.39	840.51	830.03	832.22	2831.41	2868.56	2888.28
57	1248.51	1237.31	1255.83	830.93	822.68	837.14	2798.10	2802.45	2843.54
66	1257.12	1237.01	1269.32	830.15	830.26	843.62	2929.53	2846.03	2846.35
69	1276.46	1293.99	1266.85	822.17	828.48	848.82	2961.19	2910.36	2929.31
Average	1259.91			835.71			2869.79		
	s	RSD(CV)		s	RSD(CV)		s	RSD(CV)	
sr	9.317	0.74%		6.382	0.76%		26.19	0.91%	
sb+tr	17.22	1.37%		10.99	1.32%		50.28	1.75%	
sb	14.48	1.15%		8.95	1.07%		42.92	1.50%	



測定の結果、Mn、Cu、Zn とも変動係数が 3%以内であり、試料の均質性について問題がないと判断し、今回のクロスチェック用試料とした。

### 3. 試験結果

#### 3.1 試験結果記載要領

測定結果は、下記の記載要領に従い報告をお願いし、取りまとめた。

##### ①連絡先の記載

測定機関名

担当者氏名及び担当者メールアドレス

電話、FAX

##### ②測定条件

分析方法

型式 P 型、N 型、その他の別を記載してください

型式がわからない場合は、不明としてください

##### ③使用した標準線源名

線源の種類、濃度

##### ④測定日

測定を行った日及び開始時間

⑤充填量 湿重量(g)、小数点 1 位まで

⑥充填高 mm 表示

##### ⑦試料の乾燥減量

##### ⑧測定結果

Cs-134 は、複数のエネルギーの  $\gamma$  線を出しているので、測定に用いた  $\gamma$  線のエネルギー(keV) を記載してください

放射能濃度は、測定の基準日を、平成 24 年 10 月 1 日 12 時とし計算してください

また、測定結果は、水分量を補正し乾泥換算の値を記載してください

有効桁数 3 桁、四捨五入

#### 3.2 参加機関概要

参加機関数： 60 機関

報告件数： 61 件 (1 機関 2 種類の測定器の結果を報告)

測定機器： ゲルマニウム半導体検出器 56 件

キャンベラ社 23 件、セイコーEG&G 社 30 件、

その他 (不明を含む) 3 件

NaI シンチレーションスペクトロメータ 5 件

### 3.3 測定結果

#### 3.3.1 測定結果概要

測定結果の概要を表 3.1 に示した。Cs-134 及び Cs-137 の値については、ゲルマニウム半導体検出器で測定した結果について集計した。

表 3.1 測定結果概要

項目	単位	Cs-134	Cs-137	Cs-134+137
測定数	-	56	56	61
平均値	Bq/kg	194.9	317.1	512.9
最小値	Bq/kg	176	284	397
最大値	Bq/kg	226	378	613
標準偏差	-	10.1	16.9	32.5

#### 3.3.2 統計解析結果概要

##### 1) Cs-134+Cs-137 の z スコア

ゲルマニウム半導体検出器で測定した Cs-134 と Cs-137 の合計値及び NaI シンチレーションスペクトロメータでの放射性セシウムの値、全 61 測定結果を対象として、z スコア解析を行った結果概要を表 3.2 に示す。また、ヒストグラムを図 3.1 に示した。

各機関の z スコアの結果を表 3.3 に示した。

表 3.2 全放射性セシウム解析結果概要

項目	Cs-134+137
試験所の数	61
中央値(メジアン):Q2	507.00
第1四分位数 :Q1	496.00
第3四分位数 :Q3	524.00
四分位数範囲 IQR=Q <sub>3</sub> -Q <sub>1</sub>	28.00
正規四分位数範囲 IQR×0.7413	20.76
ロバストな変動係数 (IQR×0.7413/Q <sub>2</sub> )×100	4.1
z  ≤ 2 (%)	83.6 (51)
2< z <3 (%)	9.8 (6)
3≤ z  (%)	6.6 (4)

z スコアにおいては、4 測定結果が「3」を超えていたが、異常値の棄却検定を Grubbs の式を用いて行った結果では、最小値のみ危険率 1% で棄却の判定であった。

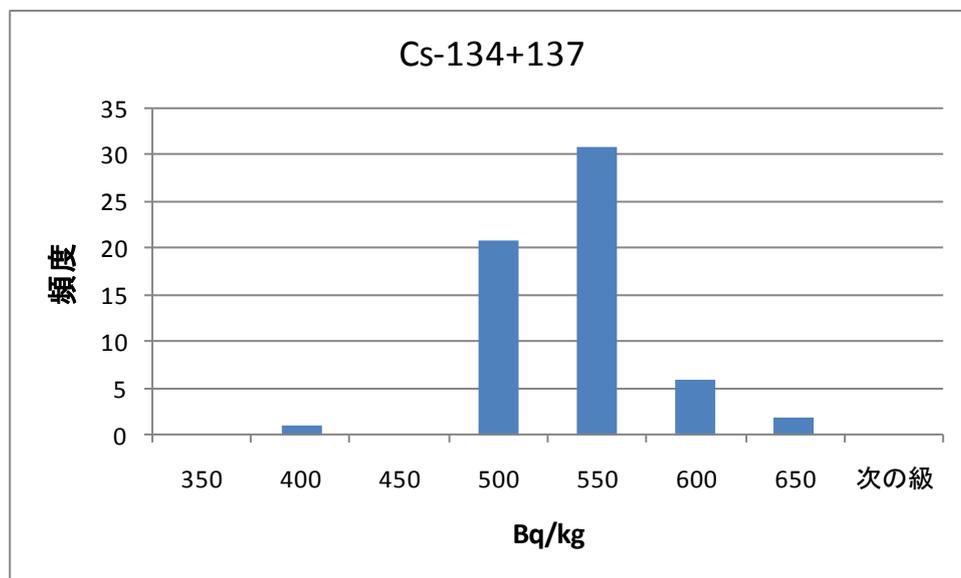


図 3.1 Cs134+137 のヒストグラム

表 3.3 Cs-134+Cs137 の z スコア結果

試験所 番号	Cs-134+137		検出器	試験所 番号	Cs-134+137		検出器
	報告値(Ai)	zスコア			報告値(Ai)	zスコア	
1	496	-0.53	Ge	32	524	0.82	Ge
2	508	0.05	Ge	33	515	0.39	Ge
3	503	-0.19	Ge	34	527	0.96	Ge
4	531	1.16	Ge	35	471	-1.73	Ge
5	561.9	2.64	Ge	36	397	-5.30	§
6	524	0.82	Ge	37	544	1.78	Ge
7	535	1.35	Ge	38	498	-0.43	Ge
8	512	0.24	Ge	39	492	-0.72	Ge
9	518	0.53	Ge	40	495	-0.58	Ge
10	507	0.00	Ge	41	494.52	-0.60	Ge
11	558	2.46	Ge	42	486	-1.01	Ge
12	506	-0.05	Ge	43	604	4.67	§
13	513	0.29	Ge	44	484	-1.11	Ge
14	505	-0.10	Ge	45	498	-0.43	Ge
15	493	-0.67	Ge	46	507	0.00	Ge
16	515	0.39	Ge	47	474	-1.59	Ge
17	499	-0.39	Ge	48	499	-0.39	Ge
18	517	0.48	Ge	49	496	-0.53	Ge
19	530	1.11	Ge	50	499	-0.39	Ge
20	508	0.05	Ge	51	524	0.82	Ge
21	505	-0.10	Ge	52	580	3.52	§
22	509	0.10	Ge	53	512	0.24	Ge
23	492	-0.72	Ge	54.1	504	-0.14	Ge
24	512	0.24	Ge	54.2	521	0.67	Ge
25	503	-0.19	Ge	55	613	5.11	§
26	490	-0.82	Ge	56	517	0.48	Ge
27	470	-1.78	Ge	57	497	-0.48	NaI
28	556	2.36	Ge	58	503	-0.19	Ge
29	549	2.02	NaI	59	482	-1.20	Ge
30	551	2.12	Ge	60	560	2.55	NaI
31	493	-0.67	Ge				

報告値単位: Bq/kg-dry

※54 の機関は、2 種類のゲルマニウム半導体検出器で測定を行い報告した

2) Ge 半導体検出器測定結果の z スコア

ゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した 56 の測定結果において、Cs-134 及び Cs-137 を対象として z スコア解析を行った結果概要を表 3.4 に示す。

Cs-134 のヒストグラムを図 3.2 に、Cs-137 のヒストグラムを図 3.3 に示した。

また、各機関の z スコアの結果を表 3.5 に示す。

表 3.4 統計解析結果概要および z スコアの出現率

項目	Cs-134	Cs-137
試験所の数	56	56
中央値(メジアン):Q2	193.50	312.00
第1四分位数 :Q1	189.75	306.82
第3四分位数 :Q3	198.00	321.25
四分位数範囲 IQR=Q <sub>3</sub> -Q <sub>1</sub>	8.25	14.43
正規四分位数範囲 IQR×0.7413	6.12	10.70
ロバストな変動係数 (IQR×0.7413/Q <sub>2</sub> )×100	3.2	3.4
z  ≤ 2 (%)	82.1 (46)	87.5 (49)
2 <  z  < 3 (%)	10.7 (6)	3.6 (2)
3 ≤  z  (%)	7.1 (4)	8.9 (5)

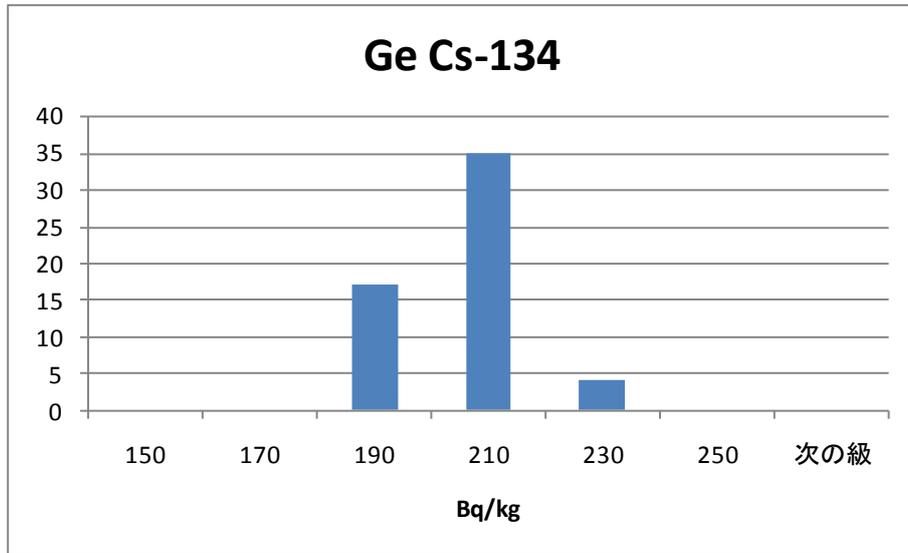


図 3.2 Cs-134 のヒストグラム

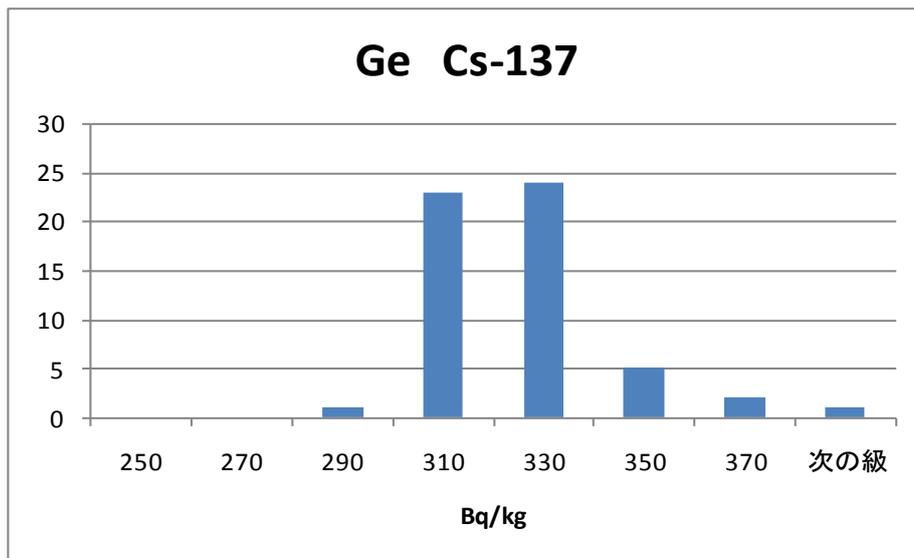


図 3.3 Cs-137 のヒストグラム

$z$  スコアにおいては、Cs-134 で 4 測定結果が、Cs-137 で 5 測定結果が「3」を超えていたが、異常値の棄却検定を Grubbs の式を用いて行った結果では、Cs-137 の最大値のみが危険率 1%で棄却の判定となった。Cs-134 の結果においては、棄却される値は無かった。

表 3.4 Cs-134 及び Cs-137 の z スコア結果

試験所番号	Cs-134			Cs-137		
	報告値 (Ai)	zスコア		報告値 (Bi)	zスコア	
001	187	-1.06		309	-0.28	
002	191	-0.41		317	0.47	
003	194	0.08		309	-0.28	
004	204	1.72		327	1.40	
005	215.9	3.66	§	346	3.18	§
006	202	1.39		322	0.93	
007	206	2.04		329	1.59	
008	197	0.57		315	0.28	
009	199	0.90		319	0.65	
010	197	0.57		310	-0.19	
011	226	5.31	§	332	1.87	
012	197	0.57		309	-0.28	
013	192	-0.25		321	0.84	
014	192	-0.25		313	0.09	
015	188	-0.90		305	-0.65	
016	195	0.25		320	0.75	
017	188	-0.90		311	-0.09	
018	198	0.74		319	0.65	
019	201	1.23		329	1.59	
020	197	0.57		311	-0.09	
021	195	0.25		310	-0.19	
022	191	-0.41		318	0.56	
023	190	-0.57		302	-0.93	
024	192	-0.25		320	0.75	
025	193	-0.08		310	-0.19	
026	190	-0.57		300	-1.12	
027	186	-1.23		284	-2.62	
028	209	2.53		347	3.27	§
030	194	0.08		357	4.21	§
031	189	-0.74		304	-0.75	
032	199	0.90		325	1.22	
033	196	0.41		319	0.65	
034	194	0.08		333	1.96	
035	178	-2.53		293	-1.78	
037	201	1.23		343	2.90	
038	190	-0.57		308	-0.37	
039	187	-1.06		305	-0.65	
040	188	-0.90		307	-0.47	
041	188.24	-0.86		306.28	-0.53	
042	181	-2.04		305	-0.65	
043	226	5.31	§	378	6.17	§
044	184	-1.55		300	-1.12	
045	197	0.57		301	-1.03	
046	192	-0.25		315	0.28	
047	176	-2.86		298	-1.31	
048	191	-0.41		308	-0.37	
049	186	-1.23		310	-0.19	
050	193	-0.08		306	-0.56	
051	205	1.88		319	0.65	
052	218	4.01	§	362	4.67	§
053	194	0.08		318	0.56	
54.1	193	-0.08		311	-0.09	
54.2	196	0.41		325	1.22	
056	198	0.74		319	0.65	
058	192	-0.25		311	-0.09	
059	176	-2.86		306	-0.56	

## 4. 考察

### 4.1 方法、装置による結果への影響

Cs-134+Cs-137 測定結果の z スコアを見ると、NaI シンチレーションスペクトロメータの測定結果が 5 報告値のうち 2 件（最大値及び最小値の値）が「3」を超えており測定装置による差が大きかった。

ゲルマニウム半導体検出器での Cs-134、Cs-137 の測定では、四分位数の範囲が小さく、比較的良い精度で測定がなされていた。

また、乾燥減量は 0～2.56%、平均値 1.7%であり、水分量の補正による差は小さいと考えられる。

ゲルマニウム半導体検出器の測定において Cs-134 は、604.66keV（53 件）と 795.76keV（3 件）のエネルギーの  $\gamma$  線で測定されていた。604.66keV は 176～226Bq/kg、平均値 195Bq/kg、795.76keV は 188～192Bq/kg、平均値 190Bq/kg であり有意な差は見られなかった。

型式は、P 型が 54 件、N 型が 1 件、不明が 1 件であり、N 型、不明ともに測定値は P 型の範囲内であり、有意な差は見られなかった。

## 4.2 測定時間の影響

測定時間が結果に及ぼす影響について、測定時間と放射性物質濃度の相関を図 4.1 に示した。

今回の試料が比較的低い濃度であったことから、測定時間が短い測定においては、バラつきが生じており、安定した測定結果を求めるには、測定試料の放射性物質の濃度により、測定時間を調整する必要がある。

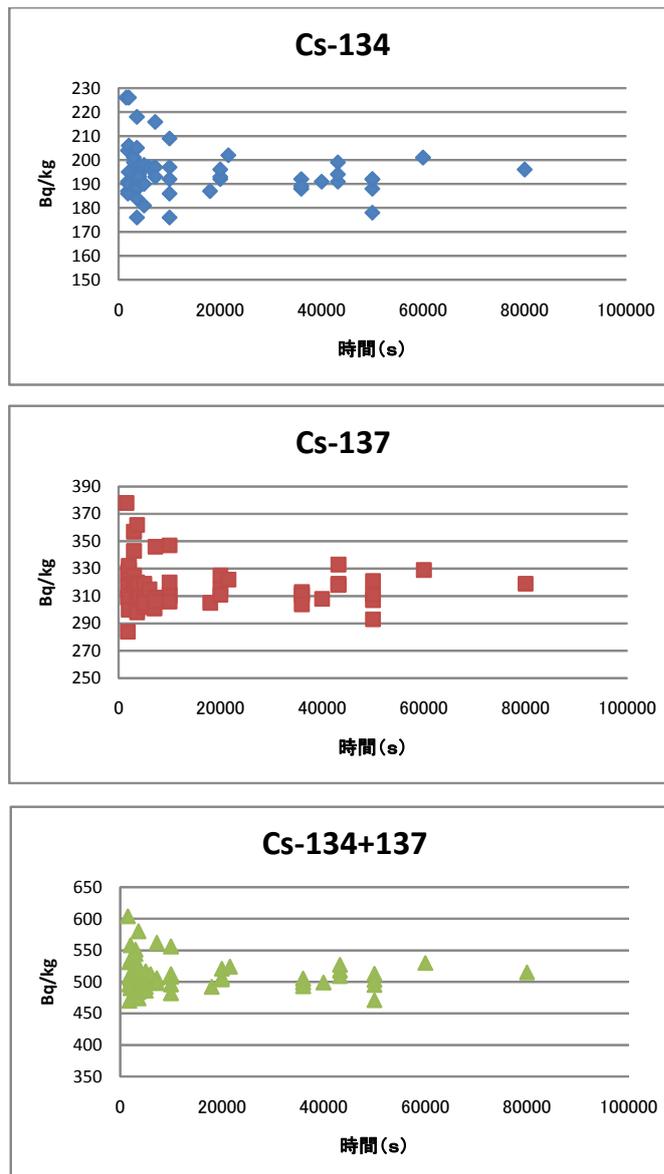


図 4.1 測定時間と結果の相関

#### 4.3 試料の前処理（見掛け比重）の影響

試料の詰め方による測定結果に及ぼす影響を検討した結果を図 4.2 に示した。

試料の採取量と充填高さより見かけ比重を算出し、試料の詰め方による値の違いを検討した。詰め方による差は見られなかった。

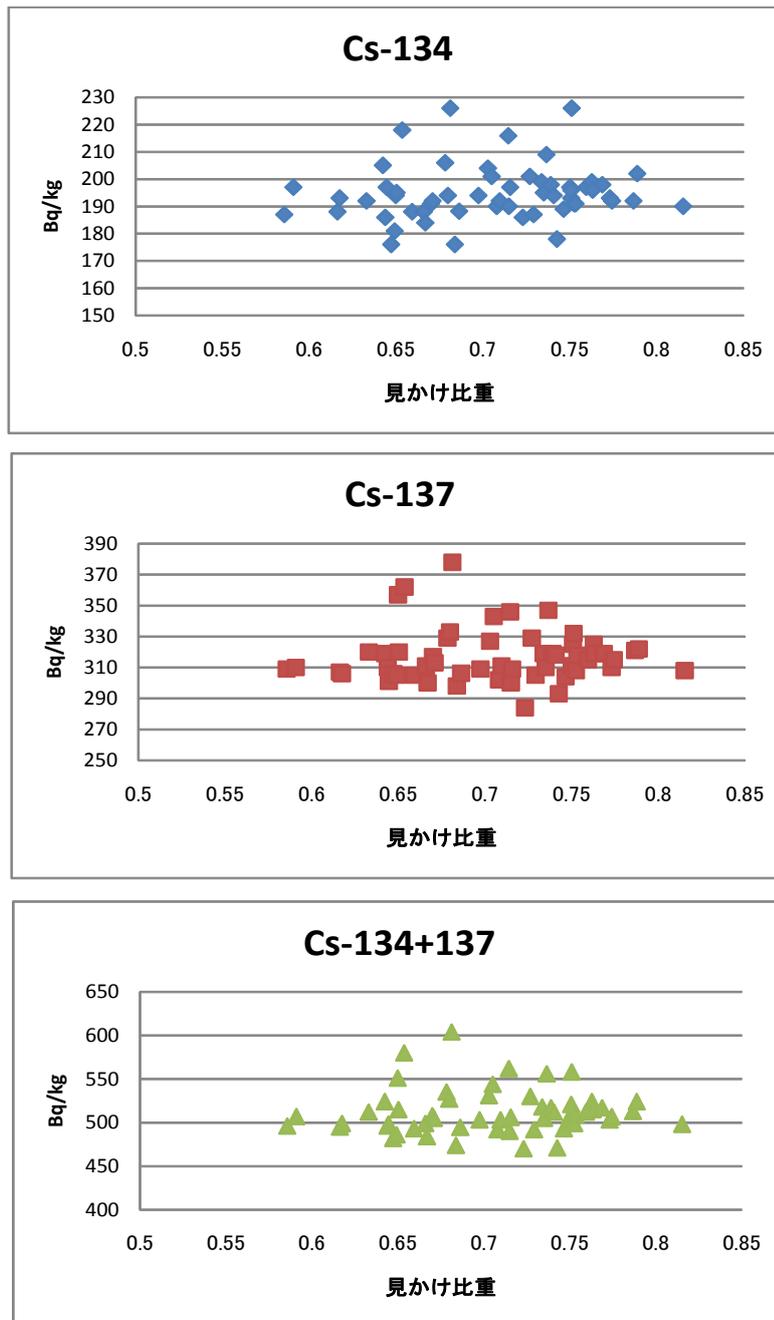


図 4.2 見かけ比重と結果の相関

## 資料.1 参加機関

- DOWAテクノロジーサーチ (株)
- いであ (株)
- エヌエス環境 (株) 東京支社
- エヌエス環境 (株) 東北支社
- (株) オオスミ
- (株) クレハ分析センター
- (株) コーエキ
- 習和産業 (株)
- 常磐開発 (株)
- 中外テクノス (株) 関東環境技術センター
- 東電環境エンジニアリング (株)
- 東邦化研 (株)
- 東北緑化環境保全 (株)
- 東レテクノ(株)
- 内藤環境管理 (株)
- 日本海環境サービス (株)
- 日本空調サービス (株)
- 平成理研 (株)
- 野外科学 (株)
- ユーロフィン日本環境 (株)
- (株) 環境テクノ
- 環境リサーチ (株)
- (株) 環境科学研究所
- (株) 環境管理センター
- (株) 環境技研
- (株) 環境研究センター
- (株) 環境公害センター
- (株) 環境総合テクノス
- 環境総合研究機構 (株)
- (株) 環境総合研究所
- (株) 環境分析研究所
- (一財) 九州環境管理協会
- (株) 熊谷環境分析センター
- (株) 江東微生物研究所
- (社) 埼玉県環境検査研究協会

- 三浦工業（株）
- （財） 三重県環境保全事業団
- 山根技研（株）
- （株） 山梨県環境科学検査センター
- （株） 産業分析センター
- （一財） 上越環境科学センター
- （株） 上総環境調査センター
- （一財） 新潟県環境衛生研究所
- （一財） 新潟県環境分析センター
- （株） 新環境分析センター
- （一財） 千葉県環境財団
- （財） 千葉県薬剤師会検査センター
- （株） 総合水研究所
- （株） 島津テクノリサーチ
- （株） 東海分析化学研究所
- （株） 東信公害研究所
- （財） 栃木県環境技術協会
- （株） 日吉
- 日鉄住金環境（株）
- （株） 日本化学環境センター
- （一財） 日本環境衛生センター
- （株） 日本総合科学
- （公財） 福島県保健衛生協会
- （株） 分析センター
- （財） 北海道薬剤師会公衆衛生検査センター

## 資料.2 アンケート結果

クロスチェック実施前に放射能測定に関するアンケート実施し、クロスチェック実施の参考とした。

### 放射能測定クロスチェックに関するアンケート結果

放射能測定分析技術研究会

クロスチェック WG

アンケートの回収（85 機関中回答 56 機関）

#### ① 使用機器

- |                           |        |
|---------------------------|--------|
| a. ゲルマニウム半導体検出器           | [ 48 ] |
| b. NaI シンチレーションスペクトロメータ   | [ 17 ] |
| c. その他                    | [ 4 ]  |
| ・ NaI シンチレーションサーベイメータ (2) |        |
| ・ GM サーベイメータ (1)          |        |
| ・ HORIBA Radi A-1000 (1)  |        |

#### ② 測定容器

- |                               |  |
|-------------------------------|--|
| a. マリネリ容器 [ 16 ]              |  |
| ・ 使用頻度が高い                     |  |
| ・ 低濃度で使用している                  |  |
| ・ 水試料の場合、U-8 容器では測定時間が長くなるため  |  |
| ・ NaI シンチレーションスペクトルメータ使用予定のため |  |
| ・ 空間的な検出効率を把握するため             |  |
| ・ U-8 容器を所有していないため            |  |
| ・ 食品を対象としており、U-8 では均一性が取れないため |  |
| ・ ISO17025 の試験所間比較に使用したい      |  |
| b. V3 容器 [ 2 ]                |  |
| ・ U-8 及び V-3 を主に使用しているため      |  |
| c. その他 [ 5 ]                  |  |
| ・ V-5 容器：最も汎用的に使用されると思われるため   |  |
| ・ ラストロウェア：信頼性を確認したいため         |  |
| ・ U-8 容器対応ではないため              |  |

③ 測定方法

- a. 一定高さのみで測定 [10]
- b. 必要に応じて高さの変更可能 [41]

④ 対象媒体

- a. 土壌 [36]
- b. 飛灰 [29]
- c. 水質試料 [12]
- d. その他 [5]
  - ・生物試料
  - ・放射能が均一に分散している精度管理試料
  - ・食品
  - ・比重の軽いもの

⑤ 試料濃度

- a. 100Bq/kg 程度 [41]
- b. 1000Bq/kg 程度 [22]
- c. 5000Bq/kg 程度 [11]

⑥ クロスチェックへの参加

- a. クロスチェックに参加する [52]
- b. クロスチェックに参加しない [4]
  - ・NaI シンチレーションサーベイメータのみ所有のため
  - ・装置を保有していないため

⑦ その他クロスチェックに関する要望がございましたら記載してください。

- ・食品放射能測定も多いため、クロスチェックが可能ならば希望します
- ・各機関で試料を容器に詰め測定した方良い
- ・マリネリ容器に充填できる量を欲しい
- ・1回のクロスチェックを複数濃度試料で行ってほしい
- ・あらかじめ測定容器に封入した状態で送ってほしい
- ・回答様式に時間だけでなく、メーカー、様式（P型、N型等）の情報も取れるようにしたら良い
- ・可能であれば試験後に認証標準物質としての認定書を配布してほしい
- ・出来るだけ安価な参加費用にしてほしい

- 鉛、ビスマスが入った試料で数値の変化を確認してみたい
- 測定後の試料は返却したい
- 報告会の時、定量下限値の算出法や結果数値の扱いについて解説をしてほしい
- 1回目であることから、不確かさの要因になる因子は出来るだけ排除した形で実施するのが望ましい
- 測定時間についても、精度的には長時間測定ほど精度は向上しますが不確かさの検討などを含め実施内容について検討されることを望みます
- ISO/IEC17043に基づく技能試験の実施を望む
- マリネリでクロスチェックが出来るよう、水試料も採用してほしい
- 標準的な測定結果の報告フォーマットを作成してはどうか
- 現在、J A Bの技能試験が行われており、その媒体がU 8容器入りの土壤サンプルC s合計2 0 0 B q程度のものですが、これは後日、分析化学会から認証標準として販売されるそうなので、これとは媒体や濃度が異なる試料を採用していただけるとありがたい。
- 試料濃度は選択肢にはありませんが、1 0～2 0 B q程度の低濃度試料も欲しい。