

2020年度 第2回 放射能測定分析 技術研究会(RADI研)セミナー

第9回放射能クロスチェック説明会 2021年3月24日

放射能測定分析技術研究会(RADI研)
副委員長 クロスチェックWG長
中外テクノス株式会社 前原裕治

目次

1. 過去のクロスチェック実施内容
2. 第9回放射能クロスチェック実施要領
3. 試料作製方法
4. 均一性試験
5. 有害物質分析
6. クロスチェック結果まとめ
7. 考察
8. 今後のクロスチェック試料

1. 過去のクロスチェック実施内容

年度/回		試験名	申込数	試料の概要
2012	第1回	焼却灰中の放射能濃度	59	汚泥焼却灰を均一混合し、試料とした
2013	第2回	水質の放射能濃度	81	飛灰溶出液を濾過後、希釈し調製した
2014	第3回	模擬地下水の放射能濃度	76	飛灰溶出液を濾過後、希釈し調製した
2015	第4回	調製固体試料(ゼオライト)の放射能濃度	59	飛灰溶出液を濾過後、ゼオライトに吸着させ乾燥した
2016	第5回	懸濁試料の放射能濃度	57	飛灰溶出液を濾過後、ゼオライトに吸着させたものを、pH2に調整した水に分散させた懸濁水溶液
2017	第6回	⁴⁰ Kを含む水質試料の放射能濃度	58	飛灰溶出液に塩化カリウムを添加し調製した
2018	第7回	調製固体試料の放射能濃度	62	飛灰溶出液を濾過後、ゼオライトに吸着させ乾燥した
2019	第8回	調製固体試料の放射能濃度	62	飛灰溶出液を濾過後、ゼオライトに吸着させ乾燥した
2020	第9回	調製水質試料の放射能濃度	56	飛灰溶出液を濾過後、希釈して調整

2. 第9回放射能クロスチェック実施要領

2.1 試験項目および実施期間

試験番号：RADI2020-01

試験名：第9回放射能クロスチェック

試験試料：調製水質試料（飛灰溶出液をろ過後、希釈して調整）

（試料1，試料2。3Lポリ容器で配布）

試験項目：セシウム-134（Cs-134）及び
セシウム-137（Cs-137）

申込受付：2020年8月7日（金）から9月18日（金）

試料配付：2020年10月1日（木）

結果報告期限：2020年10月19日（月）

2. 第9回放射能クロスチェック実施要領

2.2 試験項目および実施期間

容器充填: 配付試料を各機関で測定容器へ充填

測定機器: ゲルマニウム半導体検出器またはNaIシンチレーション
スペクトロメータ

試験結果: 測定装置により以下の放射能濃度(単位: Bq/L)を報告

ゲルマニウム半導体検出器: Cs-134及びCs-137

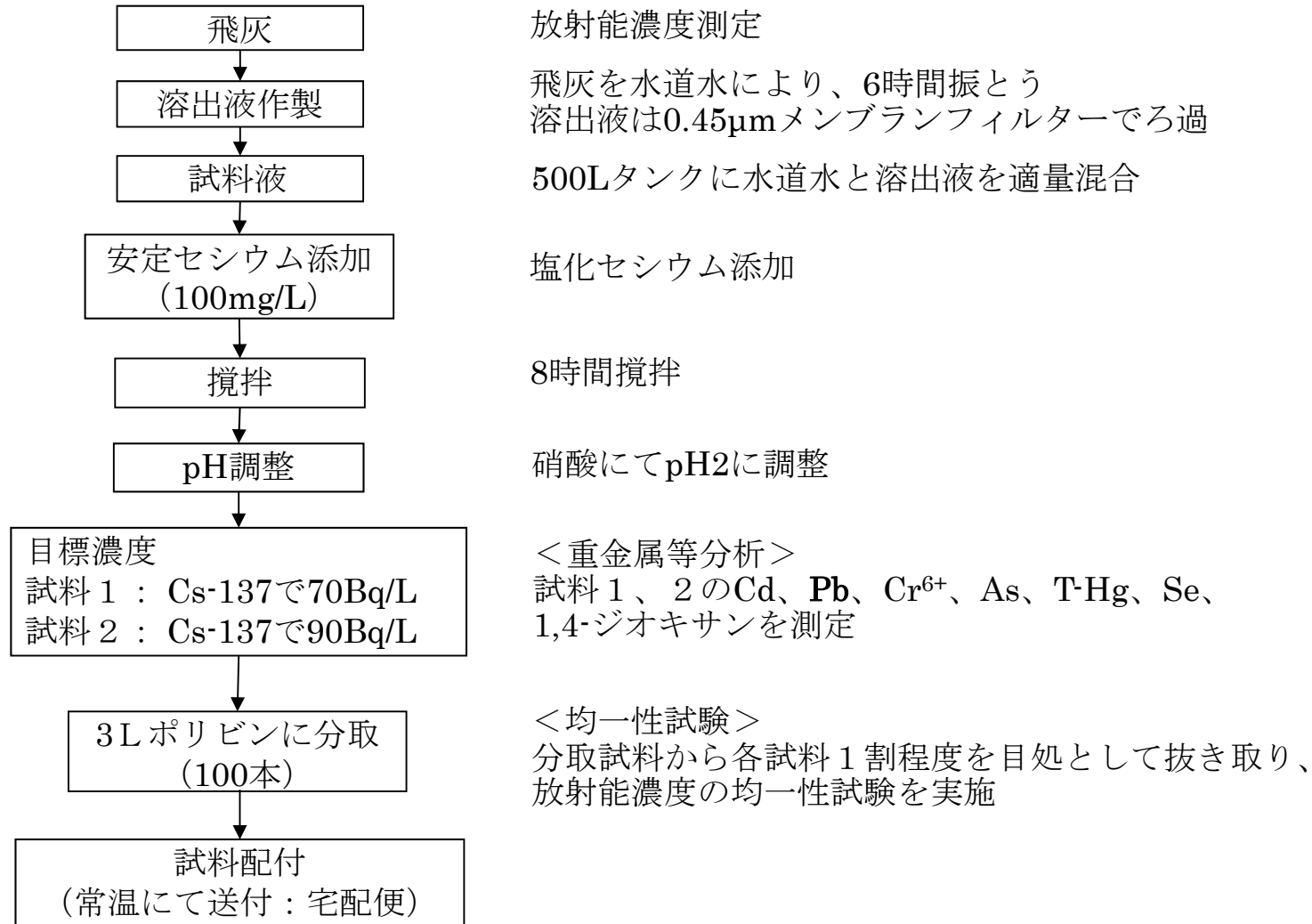
NaIシンチレーションスペクトロメータ: Cs-134及びCs-137の合計

試験方法: ゲルマニウム半導体検出器: 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」(令和2年9月改訂 原子力規制庁監視情報課)

NaIシンチレーションスペクトロメータ: 放射能測定法シリーズ6 「NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法」(昭和49年文部科学省) **現在は改訂され、ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメトリー (原子力規制庁 令和2年)**

上記以外の方法による場合は結果報告書に分析方法の記載を求めた

3. 試料作製方法



4. 均一性試験

4.1 均一性試験試料

均一性試験は100試料のうち、13試料について実施した。

緑色試料：中外テクノス株式会社実施（3600秒測定）

橙色試料：株式会社いであ実施（7200秒測定）

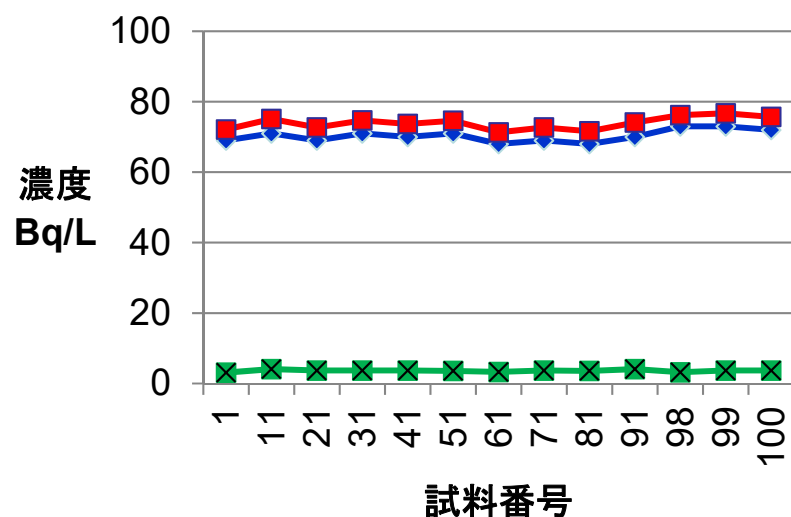
試料No.

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
21	22	23	24	25	26	27	28	29	30
31	32	33	34	35	36	37	38	39	40
41	42	43	44	45	46	47	48	49	50
51	52	53	54	55	56	57	58	59	60
61	62	63	64	65	66	67	68	69	70
71	72	73	74	75	76	77	78	79	80
81	82	83	84	85	86	87	88	89	90
91	92	93	94	95	96	97	98	99	100

4. 均一性試験

4.1 均一性試験結果 (試料1)

試料No.		1	11	21	31	41	51	61	71	81	91	98	99	100
1	Cs-134	3.1	4.1	3.7	3.7	3.7	3.6	3.3	3.7	3.6	4.1	3.2	3.7	3.7
	Cs-137	69	71	69	71	70	71	68	69	68	70	73	73	72
	Cs合計	72.1	75.1	72.7	74.7	73.7	74.6	71.3	72.7	71.6	74.1	76.2	76.7	75.7

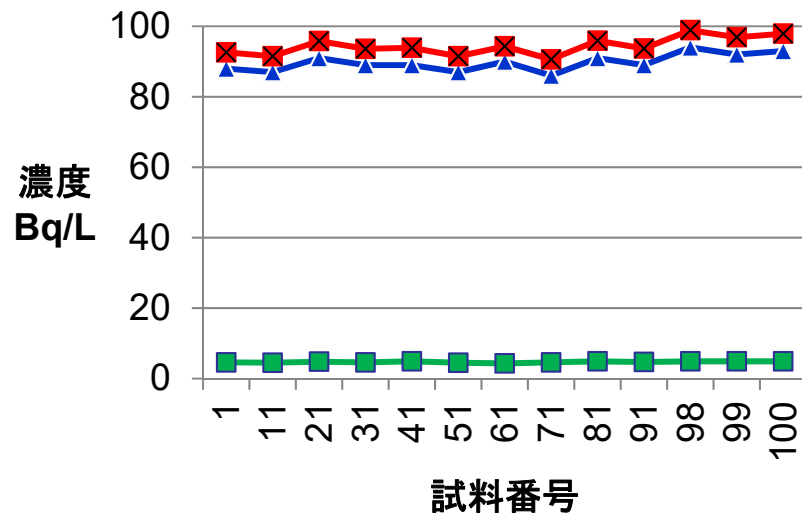


	平均値 (Bq/L)	標準偏差 (Bq/L)	変動係数 (%)
Cs-134	3.6	0.3	8.1
Cs-137	70.3	1.7	2.4
Cs-134+Cs-137	73.9	1.8	2.4

4. 均一性試験

4.2 均一性試験結果 (試料2)

試料No.		1	11	21	31	41	51	61	71	81	91	98	99	100
2	Cs-134	4.6	4.5	4.8	4.6	4.9	4.5	4.3	4.6	4.9	4.7	4.9	4.9	4.9
	Cs-137	88	87	91	89	89	87	90	86	91	89	94	92	93
	Cs合計	92.6	91.5	95.8	93.6	93.9	91.5	94.3	90.6	95.9	93.7	98.9	96.9	97.9



	平均値 (Bq/L)	標準偏差 (Bq/L)	変動係数 (%)
Cs-134	4.7	0.2	4.3
Cs-137	89.7	2.4	2.7
Cs-134+ Cs-137	94.4	2.6	2.7

5. 有害物質分析

試料の安全性、廃棄の方法を確認するため、有害物質の分析を実施した。

排水基準を超過する有害物質は確認されなかった。

試料1 (単位 : mg/L)

試料No	分析項目	濃度	定量下限値
1	Cd	検出せず	0.001
	Pb	検出せず	0.01
	Cr ⁶⁺	検出せず	0.02
	As	検出せず	0.005
	T-Hg	検出せず	0.0005
	Se	検出せず	0.005
	1,4-ジオキサン	検出せず	0.05

試料2 (単位 : mg/L)

試料No	分析項目	濃度	定量下限値
2	Cd	検出せず	0.001
	Pb	検出せず	0.01
	Cr ⁶⁺	検出せず	0.02
	As	検出せず	0.005
	T-Hg	検出せず	0.0005
	Se	検出せず	0.005
	1,4-ジオキサン	検出せず	0.05

6. クロスチェック結果まとめ

6.1 測定結果概要

ゲルマニウム半導体検出器 52機関 52報告値

NaIシンチレーションスペクトロメータ 7機関 7報告値

	項目	単位	Cs-134	Cs-137	Cs-134+Cs-137
試料1	報告値	個	52	52	59
	平均値	Bq/L	3.5	71.3	74.6
	最大値	Bq/L	4.3	75.2	80.6
	最小値	Bq/L	2.6	66.1	64.7
	標準偏差	Bq/L	0.3	1.9	2.7
試料2	報告値	個	52	52	59
	平均値	Bq/L	4.4	89.3	93.5
	最大値	Bq/L	4.9	94.1	98.7
	最小値	Bq/L	4.0	80.1	84.1
	標準偏差	Bq/L	0.2	2.7	2.9

- ・Cs-134+Cs-137の結果にはNaIシンチレーションスペクトロメータ測定7機関を含む。
- ・Cs-134で検出下限値未満の報告はなかった。

6. クロスチェック結果まとめ

6.2 Cs-134+Cs-137のzスコア

試料1: $2 < |z| < 3$ Ge 2機関 NaI 3機関

$3 \leq |z|$ NaI 1機関

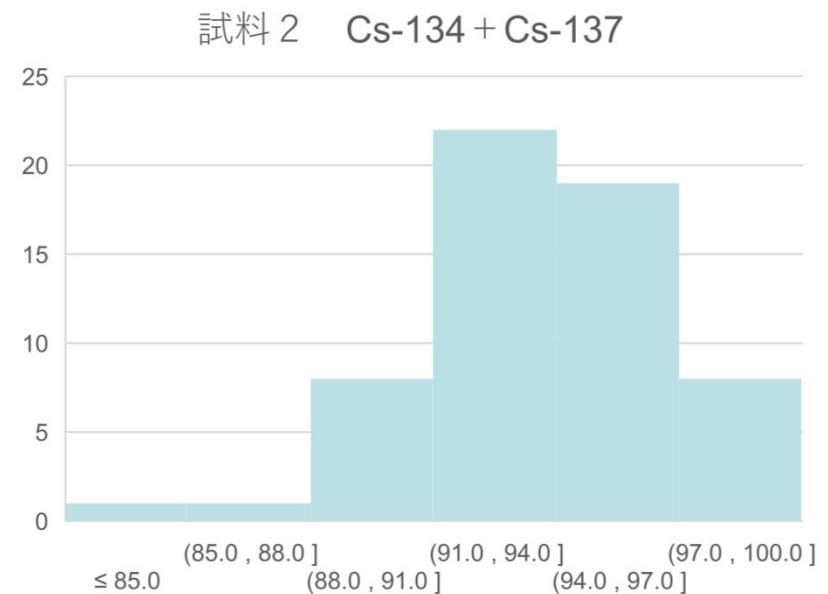
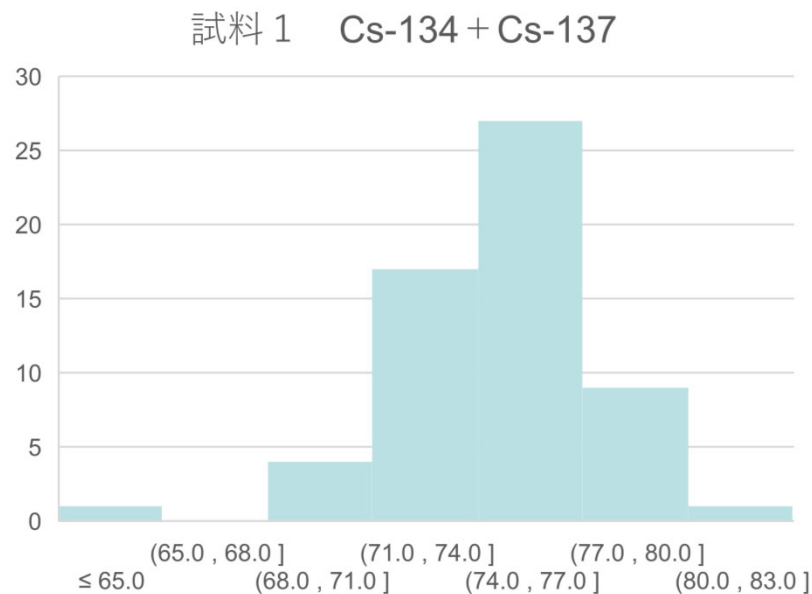
試料2: $2 < |z| < 3$ NaI 1機関

$3 \leq |z|$ Ge 1機関

	試料1	試料2	試験所間	試験所内
試験所の数	59	59	59	59
中央値(median) : Q_2	74.80	93.70	118.72	13.65
第1四分位数 : Q_1	73.31	91.50	116.64	12.90
第3四分位数 : Q_3	76.25	95.40	121.52	14.14
四分位数範囲 IQR= $Q_3 - Q_1$	2.94	3.90	4.88	1.24
正規四分位数範囲 IQR $\times 0.7413$	2.18	2.89	3.62	0.92
ロバストな変動係数 (IQR $\times 0.7413/Q_2$) $\times 100$	2.9	3.1	3.0	6.7
$ z \leq 2$ (%)	89.8 (53)	96.6 (57)	96.6 (57)	79.7 (47)
$2 < z < 3$ (%)	8.5 (5)	1.7 (1)	1.7 (1)	11.9 (7)
$3 \leq z $ (%)	1.7 (1)	1.7 (1)	1.7 (1)	8.5 (5)

6. クロスチェック結果まとめ

6.2 Cs-134+Cs-137のzスコア



6. クロスチェック結果まとめ

6.3 Cs-134のzスコア

試料1: $2 < |z| < 3$ Ge 4機関

$3 \leq |z|$ Ge 5機関

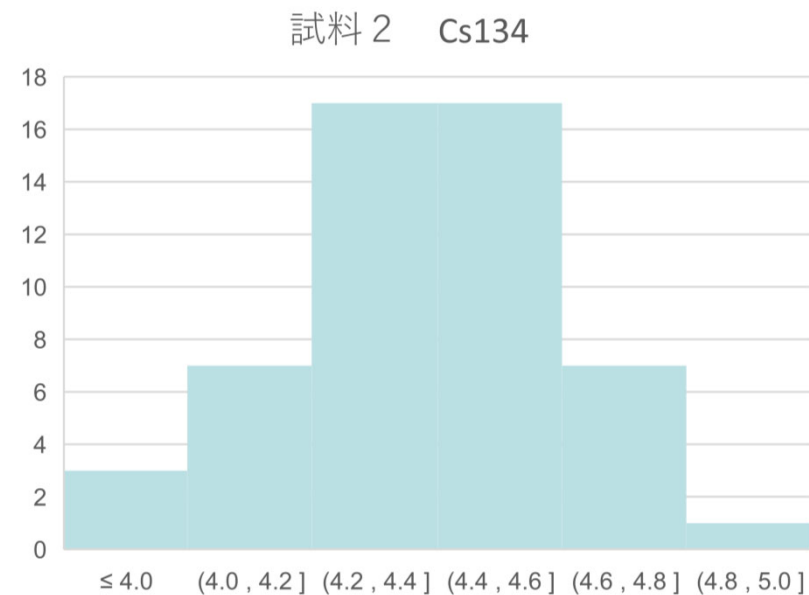
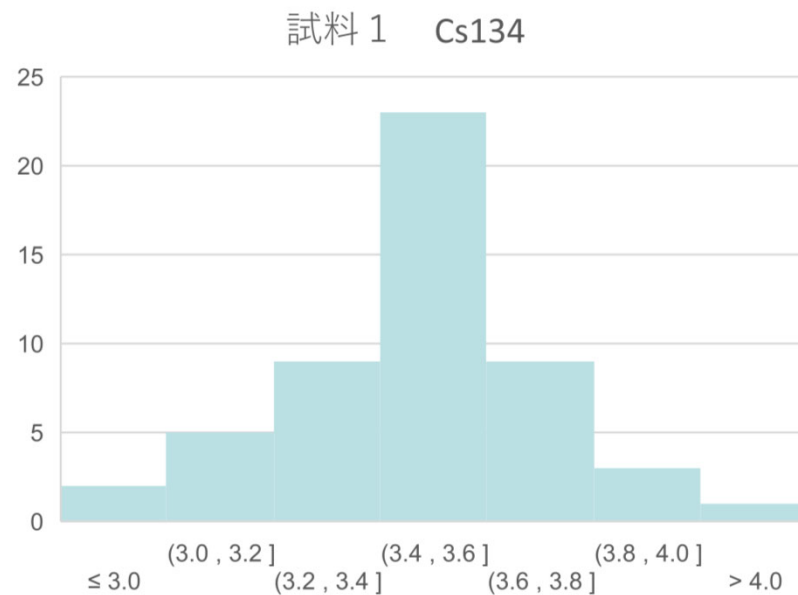
試料2: $2 < |z| < 3$ Ge 9機関

$3 \leq |z|$ Ge 1機関

	試料1	試料2	試験所間	試験所内
試験所の数	52	52	52	52
中央値(median) : Q_2	3.50	4.40	5.66	0.64
第1四分位数 : Q_1	3.40	4.30	5.44	0.57
第3四分位数 : Q_3	3.61	4.50	5.80	0.71
四分位数範囲 IQR= $Q_3 - Q_1$	0.21	0.20	0.35	0.14
正規四分位数範囲 IQR $\times 0.7413$	0.16	0.15	0.26	0.10
ロバストな変動係数 (IQR $\times 0.7413/Q_2$) $\times 100$	4.4	3.4	4.6	16.5
$ z \leq 2$ (%)	82.7 (43)	80.8 (42)	92.3 (48)	71.2 (37)
$2 < z < 3$ (%)	7.7 (4)	17.3 (9)	7.7 (4)	9.6 (5)
$3 \leq z $ (%)	9.6 (5)	1.9 (1)	0.0 (0)	19.2 (10)

6. クロスチェック結果まとめ

6.3 Cs-134のzスコア



6. クロスチェック結果まとめ

6.4 Cs-137のzスコア

試料1: $2 < |z| < 3$ Ge 5機関

$3 \leq |z|$ Ge 0機関

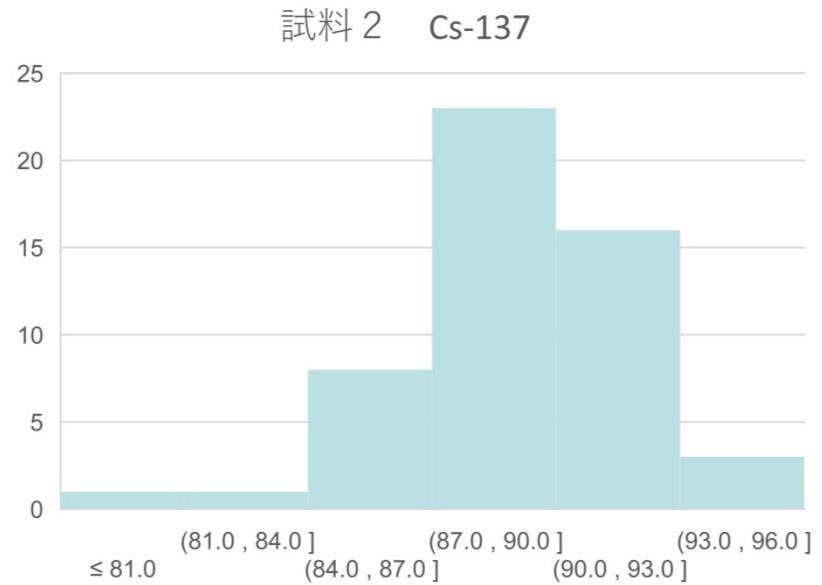
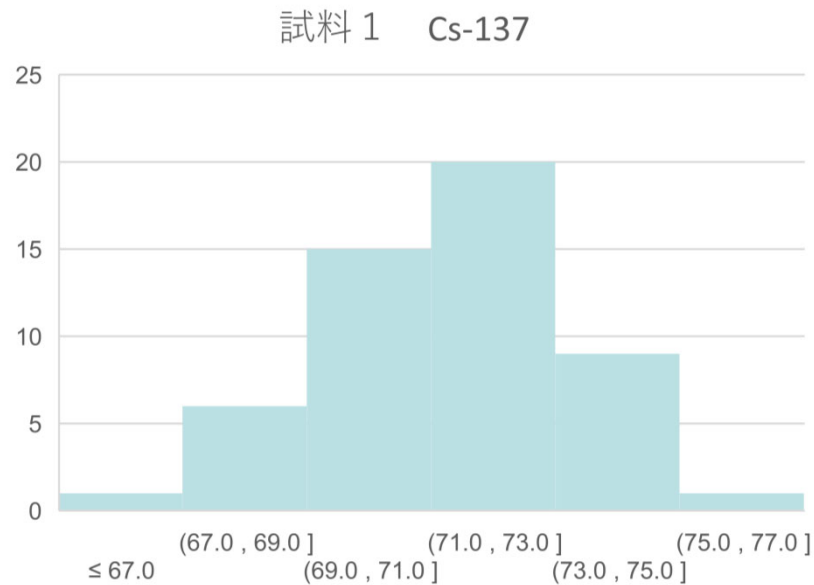
試料2: $2 < |z| < 3$ Ge 1機関

$3 \leq |z|$ Ge 1機関

	試料1	試料2	試験所間	試験所内
試験所の数	52	52	52	52
中央値(median) : Q_2	71.20	89.35	113.46	13.01
第1四分位数 : Q_1	70.25	87.45	111.51	12.37
第3四分位数 : Q_3	72.65	91.03	115.74	13.51
四分位数範囲 IQR= $Q_3 - Q_1$	2.40	3.58	4.22	1.13
正規四分位数範囲 IQR $\times 0.7413$	1.78	2.65	3.13	0.84
ロバストな変動係数 (IQR $\times 0.7413/Q_2$) $\times 100$	2.5	3.0	2.8	6.4
$ z \leq 2$ (%)	90.4 (47)	96.2 (50)	98.1 (51)	82.7 (43)
$2 < z < 3$ (%)	9.6 (5)	1.9 (1)	0.0 (0)	9.6 (5)
$3 \leq z $ (%)	0.0 (0)	1.9 (1)	1.9 (1)	7.7 (4)

6. クロスチェック結果まとめ

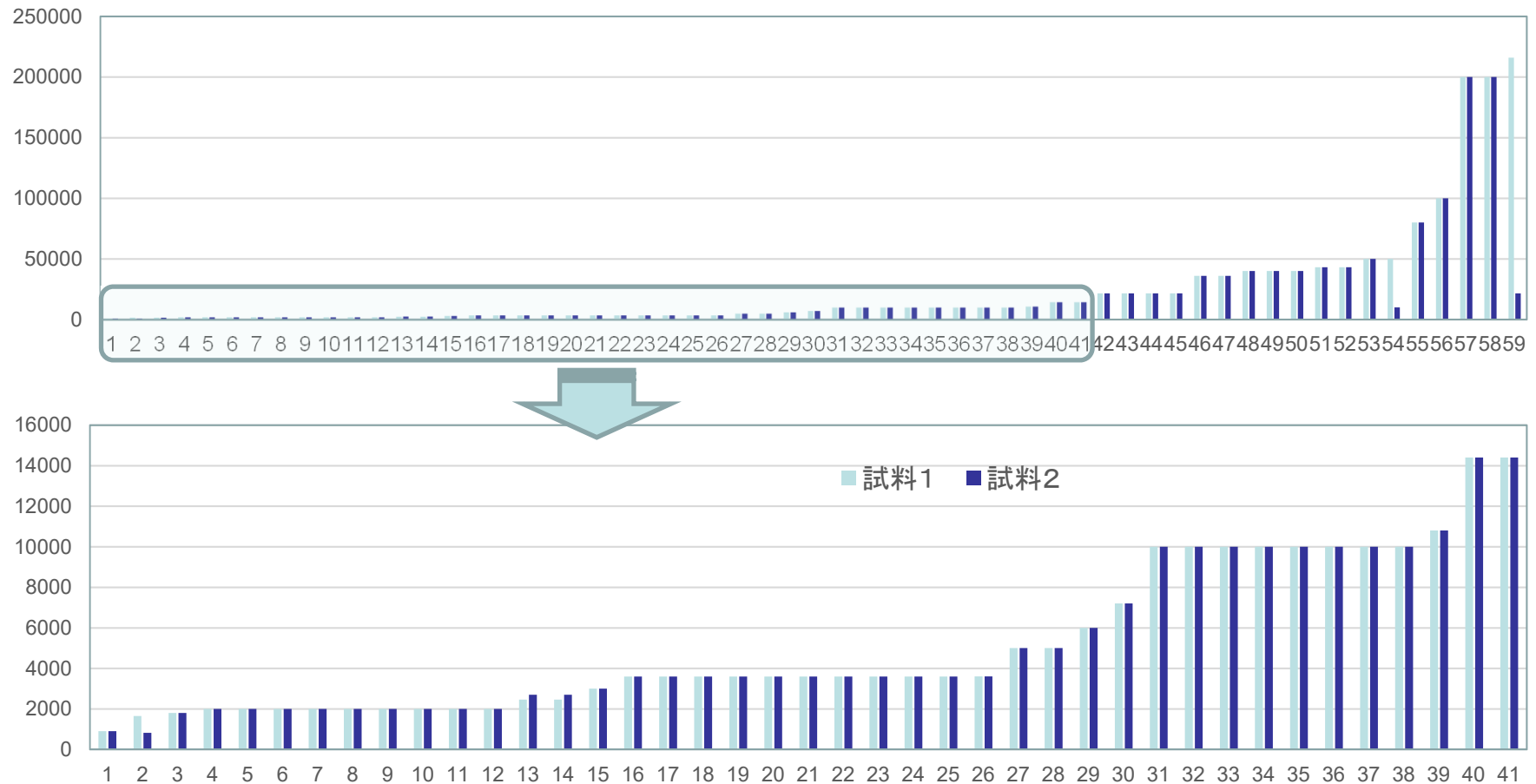
6.4 Cs-137のzスコア



7. 考察

7.1 測定時間

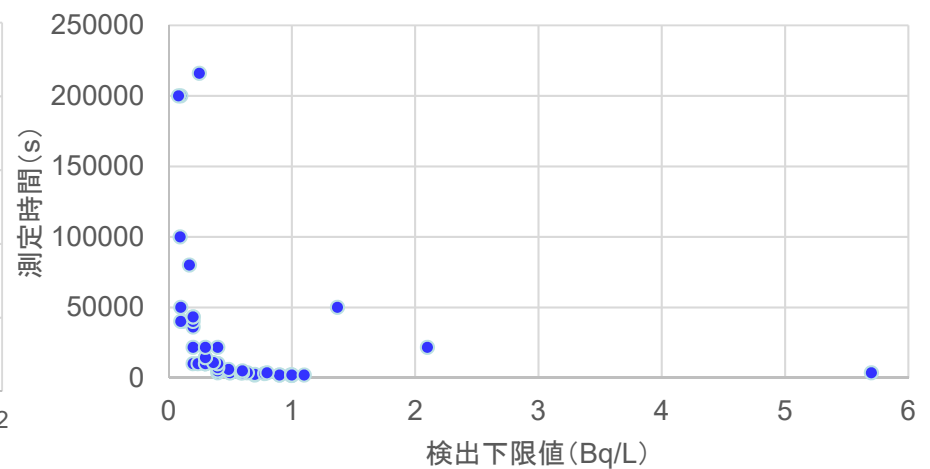
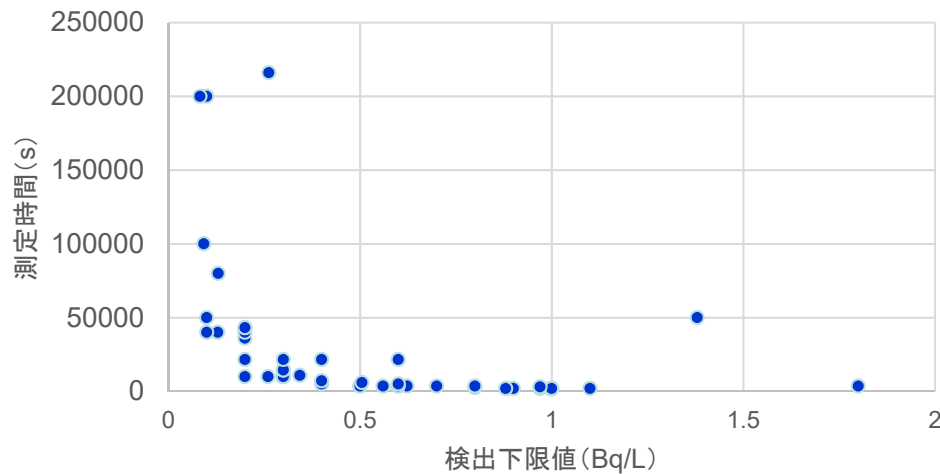
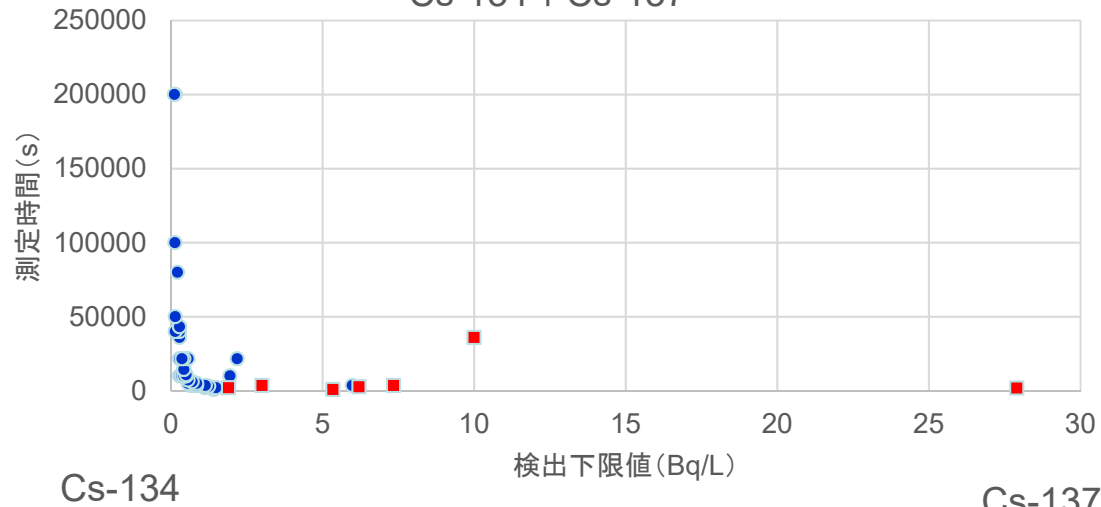
最短900秒（15分）、最長216,000秒（60時間）、3,600秒～5400秒を選択した分析機関が多い。



7. 考察

7.2 測定時間と検出下限

Cs-134+Cs-137

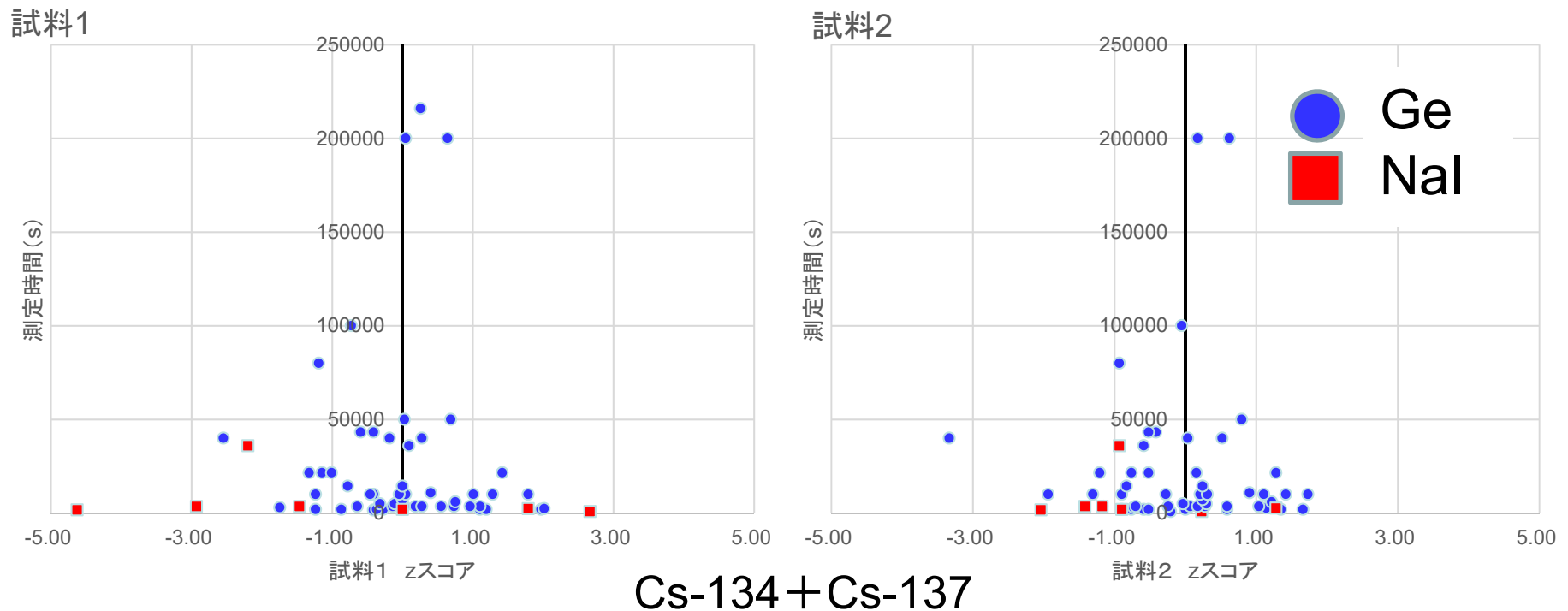


7. 考察

7.3 測定時間と測定精度

総放射性セシウム(Cs-134+Cs-137)におけるCs-134の割合は少なくなってきたおり、総放射性セシウムを測定する場合、Cs-134の値を出すために長時間測定で正確に求める必要性は少ないのではないかと考えられた。

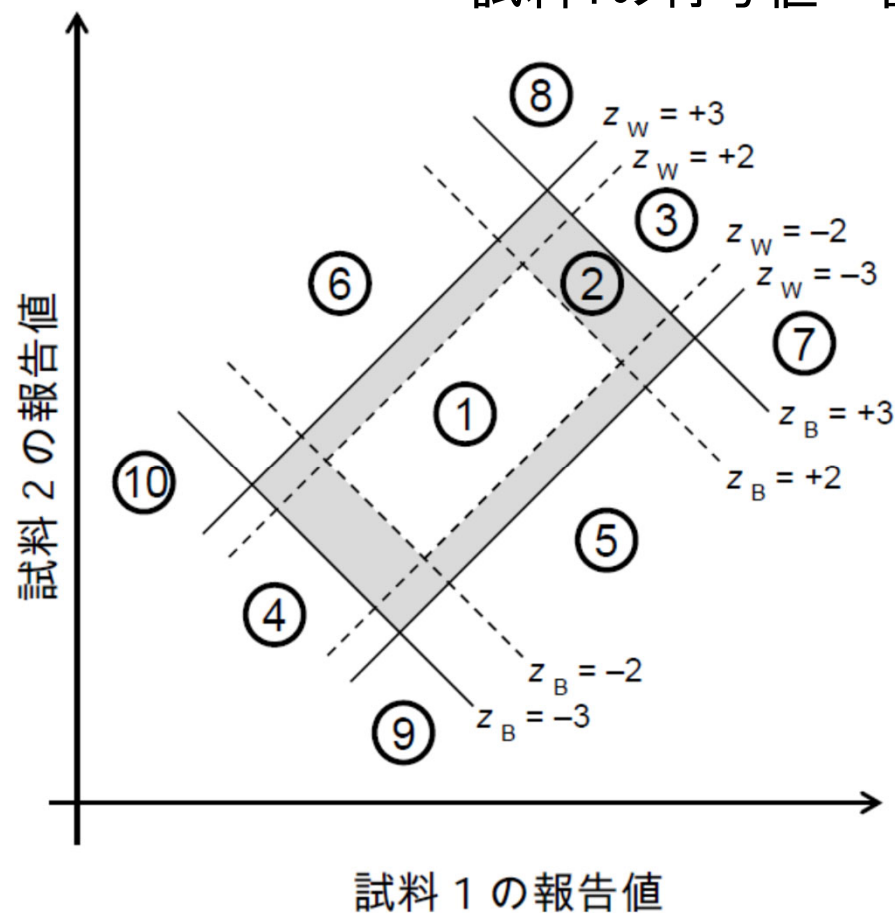
2021年3月24日時点の理論比 Cs-134:Cs-137=1:23



7. 考察

7.4 ユーデンプロットの解説

試料1の付与値 < 試料2の付与値の場合



区画	試験所間 zスコア	試験所内 zスコア	評価
①	$ z_B \leq 2$	$ z_W \leq 2$	かたよりもなく、ばらつきもない。
②	$2 < z_B < 3$ 又は/及び $2 < z_W < 3$		かたよりか、ばらつきのいずれか、 又は両方に疑わしい点がある。
③	$z_B \geq 3$	$-3 < z_W < 3$	大きい方にかたよりがあるが、ばらつきは小さい。
④	$z_B \leq -3$	$-3 < z_W < 3$	小さい方にかたよりがあるが、ばらつきは小さい。
⑤	$-3 < z_B < 3$	$z_W \leq -3$	かたよりはないがばらつきが大きい(A、Bのいずれかが大きく離れている場合もある。)
⑥	$-3 < z_B < 3$	$z_W \geq 3$	
⑦	$z_B \geq 3$	$z_W \leq -3$	大きい方にかたよりがあり、ばらつきも大きい(A、Bのいずれかが大きく離れている場合もある。)
⑧	$z_B \geq 3$	$z_W \geq 3$	
⑨	$z_B \leq -3$	$z_W \leq -3$	小さい方にかたよりがあり、ばらつきも大きい(A、Bのいずれかが大きく離れている場合もある。)
⑩	$z_B \leq -3$	$z_W \geq 3$	

8. 今後のクロスチェック試料

試料	コメント
実試料による実施	実試料(固体試料)は、十分混合しても一部偏析があるため、クロスチェック試料には採用しない。
懸濁物試料	前処理方法の精度管理も必要あるが、難しすぎる試料は結果がばらつきやすい。 クロスチェックの目的は、前処理・測定が正しいかを検証することであり、複雑な前処理は要求しない
調製固体試料 調製液体試料	濃度設定が可能なこと、均一試料の作製ができることから、今後も調製試料を主体で進めていきたい。

9. 質問と回答

No.	質問	回答
①	今後Cs-134の濃度測定は不要となるか	現在Cs-134とCs-137の比は、1:23となり、Cs-134は総Csの4%程度ある。 Cs-134の測定自体は不要とはならないが、測定目的を考慮して検出下限値を決定する必要がある。
②	放射性セシウム(Cs-134、Cs-137)をGe半導体検出器で測定する際、特に注意すべき事項はありますか？(測定媒体、容器への充填、測定位置[試料の置き方]、測定時間、遮へいなど)	第一に効率校正が正しい、ずれていないことを定期的に確認することです。 手段としては、・技能試験、・クロスチェック、・標準物質による確認です。 容器への充填方法や測定位置などは不確かさを求めると分かりますが、大きく寄与しません。 測定時間は長時間ほど精度は良くなりますが、業務効率を考慮して設定してください。 遮蔽の問題は、ブランク試験で検証できます。
③	Cs-134とCs-137のクロスチェックは実施されておりますが、今後I-131などの他の核種で実施する予定などはございますか。	福島第一原子力発電所の事故で放出されたI-131はすべて消滅し、現在検出されるI-131は医療関係に由来するものです。 I-131は半減期が8日と短く、調達が困難なため、現状I-131を含めたクロスチェックの実施は考えていません。K-40は一度実施していますが、検討します。

ご清聴ありがとうございました



Smart Life Engineering
Smart Technology, Smart Future