

開発成果報告書

放射能分析用

大豆認証標準物質(粉末状, 高濃度)

JSAC 0764

JSAC 0765

JSAC 0766

2013年8月30日

公益社団法人 日本分析化学会

目 次

	頁
1. はじめに	1
2. 開発の経緯	1
3. 計量トレーサビリティ	2
4. 候補標準物質の調製	3
5. 均質性の評価	7
6. 共同実験の報告結果及び特性値の決定	11
7. 不確かさの算出	12
8. 標準物質の利用	17
9. 保管上の注意及び認証値の安定性	18
10. 認証書	18
11. 結語	18
添付資料 1 : 共同実験参加試験所が使用した参照標準の概略図	20
添付資料 2 : 共同実験参加試験所の測定条件と結果	21
添付資料 3 : 共同実験参加試験所のその他測定条件	28
添付資料 4 : 共同実験参加試験所からのその他の情報	32
添付資料 5 : Cs-134とCs-137測定値の関係	50
添付資料 6 : 報告された γ 線スペクトル例	52
添付資料 7 : 認証書	60

開発成果報告書

放射能分析用 大豆認証標準物質

JSAC 0764, 0765, 0766

1. はじめに

東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所事故により発生した放射性物質による環境汚染の広がり、国民生活の様々な側面に大きな影響を与えている。土壌表面に降下した放射性物質は、表流水の移動などに伴って分布状態を変え、住環境における外部被ばく線量に影響している。また、農地やその周辺に降下した放射性物質は、農作物などに取り込まれて国民の内部被ばく線量の上昇を招く可能性が指摘されている。土壌などの環境試料や食品中の放射性物質の量を正確に、かつ、迅速に測定する技術の開発は、放射能計測分野に求められている火急の使命である。特に食品分析については、より微弱な放射能を定量することが社会的なニーズとなっている。

分析値の信頼性を確保するには、測定対象物質の分析値を、類似の組成を持ち計量トレーサビリティが取れた標準物質の分析値と比較することが必要である。このため日本分析化学会では、2011年度から標準物質委員会での議論や震災対応WGの方針等を踏まえ、原発事故対応支援を考慮した放射能分析用標準物質の作製を開始し、すでに2012年6月1日に土壌標準物質の供給を行っている。

危急の対応が必要の中、2012年6月に放射能測定用標準物質開発が独立行政法人科学技術振興機構（以下JSTと呼ぶ）の研究成果展開事業（先端計測分析技術・機器開発プログラム）の一つに採択され、武蔵大学 薬袋佳孝教授をチームリーダーとして関連の標準物質開発を継続・促進することとなった。昨年度（2012年度）は、9月の生産時期に間に合うように前期には玄米標準物質、後期には牛肉認証標準物質を開発した。今年度は、大豆、シイタケ等の標準物質の開発を予定している。本報告は、低濃度試料に引き続いて行われた大豆認証標準物質（高濃度）の開発について成果をまとめたもので、放射能濃度の認証値は次のとおりである。特性値は関連分野の熟練試験所による共同実験方式で決定された。

Cs-134	(190 ± 11) Bq/kg	(k=2)
Cs-137	(345 ± 19) Bq/kg	(k=2)
K-40	(613 ± 40) Bq/kg	(k=2)

2. 開発の経緯

（公社）日本分析化学会 標準物質委員会では渋川委員より震災対応WGの方針を踏まえ、原発事故対応支援を考慮した放射能分析用標準物質の作製の提案がなされた。平井委員が候補標準物質の調達を行うとともに、「放射能標準物質作製委員会」が平井委員長を中心に発足し土壌認証標準物質が開発された。その後、JSTの研究成果展開事業（先端計測分析技術・機器開発プログラム）「放射線計測領域」の平成24及び25

年度の開発課題「放射能環境標準物質の開発」として採択され、武蔵大学 葉袋教授をリーダーとし、環境テクノス(株) 岩本氏をサブリーダーとする産学協同の体制が構築された。土壤標準物質の開発を行った放射能標準物質作製委員会も継続し、両者は連絡を密にして、これらの標準物質開発に携わった。これまで、玄米認証標準物質、牛肉認証標準物質及び大豆認証標準物質（低濃度）の開発を終了した。今回は低濃度試料に引き続いて大濃度試料の大豆認証標準物質を開発するもので、環境テクノス株式会社にて候補標準物質の調製が、東京都市大学原子力研究所にて放射能測定による均質性試験が実施された。認証値は熟練試験所による共同実験方式で決定された。

測定方法としては、我が国における放射能分析の代表的な指針である“平成4年改訂文部科学省 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」”によることにした。共同実験に参加した機関のリストを表1に示す。

表1 参加試験所リスト（順不同）

東京都市大学原子力研究所
東京都市大学工学部
明治大学理工学部
京都大学原子炉実験所
東京大学アイソトープ総合センター
(公財)日本分析センター
(公社)日本アイソトープ協会
(一財)日本食品分析センター
(独)放射線医学総合研究所
(独)日本原子力研究開発機構
(独)農業環境技術研究所
エヌエス環境株式会社
株式会社環境総合テクノス
日本ハム株式会社中央研究所

3. 計量トレーサビリティ

表2に参加試験所が用いた標準線源とその相対標準不確かさを示す。

表2 参加試験所が用いた標準線源と校正法に起因する相対標準不確かさ

Lab 番号	標準線源	検出効率校正の 相対標準不確かさ (%)
1	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP	2.35
2	Cs-134 及び Cs-137 : Eu-152 で校正 K-40 : KC1 で校正	2.3 (Cs-134, Cs-137) (校正に用いたエネルギーにおける誤差の二乗平均の平方根) 1.1 (K-40)

4	日本アイソトープ協会製 放射能標準ガンマ線源(混合核種点線源:MX402 53)及び日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 CS 031U8PP (U8 容器)	標準線源と校正式フィッティングの不確かさを合成した。 1. 40
5	日本アイソトープ協会製 9 核種混合放射能標準ガンマ体積線源 (U8 容器)	ピーク効率の校正值として, 1. 75 (Cs-134) 1. 53 (Cs-137) 1. 66 (K-40)
6	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2. 35
8	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2. 35
10	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2. 35
11	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2. 4
12	JSAC 0731 (玄米認証標準物質)	Cs-134 3. 44 Cs-137 3. 35 K-40 4. 83
14	Cs-134 及び Cs-137 : 値付けされた溶液を秤量し, 100 mL の水に滴下して作成 K-40 : 容量分析用水酸化カリウム溶液 100 mL 標準及び候補標準物質共に PE 製広ロビンに充填, ビンの側面を Ge 検出器 (横型) の前面アクリルキャップに密着させて測定	2. 0 (Cs-134) 2. 0 (Cs-137) K-40 については核データの不確かさと計数誤差を合成した。 1. 1 (K-40)
15	日本アイソトープ協会製 9 核種混合標準溶液 (MX010-0017) を, アルミナ粉末と混合し, U8 容器に 50 mm 高さで充填して作成	2. 7
16	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2. 35
17	Cs-134 及び Cs-137 : Eu-152 で校正 K-40 : KCl で校正	2. 3 (Cs-134, Cs-137) (校正に用いたエネルギーにおける誤差の二乗平均の平方根) 1. 1 (K-40)
18	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2. 5

ピーク効率の校正の標準不確かさは、特に記述がない場合は、報告された場合はそのまま、報告されていない場合は用いた標準線源の拡張不確かさを包含係数 ($k=2$) で割った値を用いた。Lab 2 及び Lab 17 は同一の測定システムを用いているので従前の測定を含めて 2 回の平均をとり共通の値とした。詳細は 7 節及び添付資料 2-4 を参照のこと。

添付資料 1 に、共同実験における放射能測定トレーサビリティの概念を、参考のため図示した。

4. 候補標準物質の調製

(1) 調製内容

放射能標準物質（大豆高濃度）の調製において、粉状での試料調製を行った。調製工程は以下の項目にて行った。

- ① 試料乾燥
- ② 粉砕・篩い分け
- ③ 混合
- ④ 瓶詰め
- ⑤ 均質性試験及び共同実験用試料用サンプル抽出、滅菌

(2) 調製試料

内容量 30L 程度のクラフト袋で受け入れた大豆試料 8 袋の各放射能濃度は表 3 のようであった（豆粒のまま U8 容器測定）。試料は下記のように 2 グループに分け低濃度及び高濃度試料として調製を行った。

【低濃度】袋 No.1+2+4+5+7 150 kg, 平均 95 Bq/kg

【高濃度】袋 No.3+6+8 : 90 kg, 平均 508 Bq/kg

表 3 : 試料濃度及び試料量

袋 No	(Cs-134+Cs-137) Bq/kg			質量 kg	
No1	79		79		30
No2	65		65		30
No3	441	441		30	
No4	62		62		30
No5	205		205		30
No6	530	530		30	
No7	64		64		30
No8	553	553		30	
平均値	250	508	95	90	150

(3) 調製工程詳細

① 試料乾燥

本標準物質用に、袋 No.3, 6, 8 の大豆を約 5 kg ずつ定温乾燥機（写真 1）中バットに広げ、105 °C 24 h の条件にて乾燥を行い、順次同一容器に入れて保管した。



写真 1：定温乾燥機

表 4：乾燥前後試料量及び含水率（乾燥減量の割合）

	乾燥前試料量	乾燥後試料量	含水率
高濃度	88.26 kg	79.42 kg	10.02 %

② 粉砕・篩い分け

上記乾燥後試料を後工程の一括混合容量約 130 L 分(約 90 kg)を目標回収量とし、フードミルを用いて 1 回あたり約 75 g ずつ粉砕を行った。最大粒度は 1 mm とし、篩い分けを行った。高濃度試料については粉砕後 1 mm 以上の試料は再粉砕を行い、最終的に下記の量を回収し混合に用いた。

【高濃度】：79.6 kg



写真 2：フードミル
使用条件：連続粉砕 1 分間



写真 3：電磁振動篩い分け器
使用条件：連続振動 5 分間 振動強度

8

試料投入量 約 75 g/回

試料投入量 約 300 g/回

③混合

230 L V型混合機にて1時間一括混合を行った。混合後回収試料は計4袋に小分けに回収し、各々を4つのステンレス管に移しそれぞれA,B,C,Dとした。



写真4：V型混合機
内容量 230 L 回転速度 31 rpm (実測値)

④瓶詰め

試料はPP製U8容器、100ml褐色ガラス瓶、1L褐色ガラス瓶にそれぞれ瓶詰めした(写真5)。内容量はU8容器75g、100ml瓶80g、1L容器800gとした。U8容器への瓶詰めは図1に示すよう大豆高濃度試料を入れ押し固めていき、75gを入れた後PS製の中蓋により試料高さを50mmに合わせ上部にクッションボールを入れ蓋をした。

瓶詰め順は図2のようにU8容器2本、100ml瓶1本、U8容器2本、100ml瓶1本、1L容器1本の順に行い、U8容器No.1,2・・・、100ml瓶No.1,2・・・、1L容器No.1,2・・・とナンバリングをした。最終的な瓶詰め本数は表5に示す。



写真5：瓶詰め後
(左: U8 容器、中: 100 ml 瓶、右: 1 L 容器)

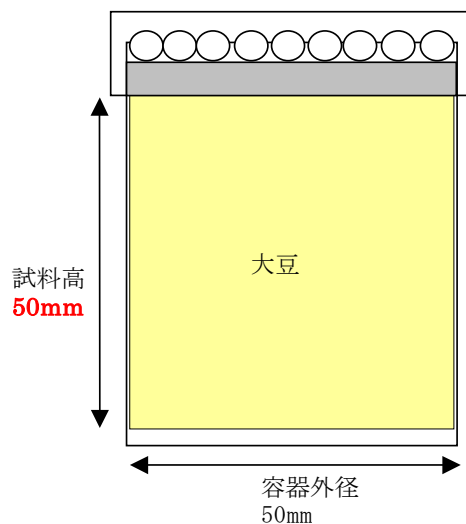


図1：U8 容器瓶詰め

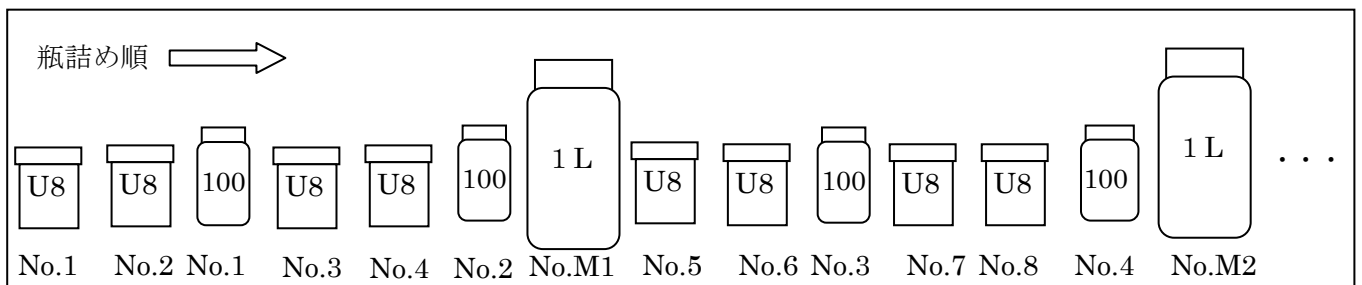


図 2 瓶詰め順

表 5 瓶詰め本数

	U8 容器	100 ml 瓶	1 L 容器
高濃度	252 本	125 本	62 本

⑤滅菌、均質性試験及び共同実験用試料用サンプル抽出

U8 容器への瓶詰め後、Co-60 γ 線10 kGy/h、前面1 時間、後面1 時間、計2 時間、トータル20 kGy の照射条件で滅菌処理を行った。全試料のなかからほぼ等間隔に30 本を抽出し、混合後4つのステンレス管の上部、中部、下部にあたる試料 (No.10(A-上), 35(A-中), 61(A-下), 69(B-上), 95(B-中), 120(B-下), 137(C-上), 163(C-中), 188(C-下), 197(D-上), 222(D-中), 248(D-下)) を均質性試験用試料 (計12 本) とし、その他試料を共同実験用とした。

(4) 乾燥による質量の減少 (含水率) について

6 個の試料について各 2 回、135 $^{\circ}$ C、2 時間の乾燥による質量の減少を測定した。結果を表 6 に示す。平均すると 0.9 %程度の質量の減少が認められた。

表 6 135 $^{\circ}$ C、2 時間の乾燥による質量減少

サンプル	乾燥前質量 (A)/g	乾燥後試料量 (B)/g	減量 (A-B)/g	(A-B)/A (%)
2-1	4.133	4.095	0.038	0.92
2-2	4.136	4.100	0.036	0.87
27-1	4.188	4.153	0.035	0.84
27-2	4.369	4.330	0.039	0.89
52-1	4.061	4.021	0.040	0.98
52-2	4.659	4.606	0.053	1.14
77-1	4.417	4.384	0.033	0.75
77-2	4.243	4.212	0.031	0.73
102-1	4.081	4.048	0.033	0.81
102-2	4.257	4.213	0.044	1.03
125-1	4.188	4.146	0.042	1.00
125-2	4.128	4.089	0.039	0.94

5. 均質性の評価

(1) 概要

放射能測定により均質性評価を行った。U8 容器に充てんした 12 試料を用い、測定順をランダムに選択した（表 7 及び表 8 では、試料番号は測定順に示されている）。測定は東京都市大学原子力研究所において実施された。

(2) 放射能測定による均質性試験結果

Cs-134, Cs-137 及び K-40 の放射能は、それぞれ 604 keV, 661 keV, 1460.8 keV のピークを用いて測定された。測定は 3 月 13 日から 3 月 26 日にかけて実施された。Cs-137 及び K-40 については、コベル法で計算された計数値をそのまま示した。測定時間は 10 時間(36000 秒)である。

均質性試験の解析は十分な併行精度が確保できる場合次のように評価できる。すなわち、 s_{bb} を均質性標準偏差、 s_{b+r} を、複数の試料を測定したときの測定値の標準偏差、 s_r を併行精度（測定の繰返し標準偏差）とすると、 s_{bb} は次式で求めることができる。

$$s_{bb}^2 = s_{b+r}^2 - s_r^2$$

s_{bb}^2 が負になる場合は、便宜上その絶対値の平方根に負号をつけて s_{bb} を表示した。

表 7 に Cs-134 及び Cs-137 の評価結果、表 8 に K-40 の評価結果を示した。ネットカウントの平方根及びベースラインの誤差を含めた計数誤差をそれぞれ計数誤差 1 と計数誤差 2 と表示している。放射能測定の併行精度は計数誤差として測定カウント数の平方根で与えられることが分かっている。ピーク面積はコベル法によって計算されており、測定値計数誤差を表す場合はベースラインカウント数の計数誤差を加えているが、この計数誤差を s_r に用いると均質性を過小評価することが懸念される。計数誤差 1 は測定対象からの信号（カウント数）の理論的な誤差に相当し、推定される最小の併行精度と考えられる。そこでここではベースラインによる計数誤差を含めないで単にネットカウントの平方根から計数誤差を計算し、それを用いて計算した s_{bb} を不確かさとした。 s_{bb}^2 が負になる場合は、絶対値の平方根を求め、 s_{bb} を便宜的に負の値として示した。

また、K-40 については主にバックグラウンドの信号が重複するため、これを含めた解析を行った。バックグラウンドの信号と共に表 8 に示した。

表 7 Cs-134 及び Cs-137 の放射能測定による均質性試験結果

試料番号	Cs-134 ネットカウント	計数誤差 1	計数誤差 2	Cs-137 ネットカウント	計数誤差 1	計数誤差 2
#61	3935.7	62.74	67.30	6451.7	80.32	82.50
#35	3895.4	62.41	67.40	6409.7	80.06	82.50
#69	3819.3	61.80	67.10	6568.0	81.04	82.90
#120	3812.1	61.74	66.00	6367.8	79.80	82.60
#10	3902.9	62.47	67.00	6581.6	81.13	83.50
#95	3827.4	61.87	67.10	6558.2	80.98	83.60
#197	3956.0	62.90	67.40	6583.9	81.14	83.70
#188	3895.0	62.41	67.00	6535.6	80.84	83.40
#163	3865.1	62.17	66.80	6593.3	81.20	83.80
#137	3821.3	61.82	66.00	6359.6	79.75	82.10
#248	3805.2	61.69	65.50	6611.3	81.31	83.40
#222	3780.3	61.48	66.10	6546.4	80.91	83.50
AVERAGE	3859.64	62.13	66.73	6513.93	80.71	83.13
STDEV	56.53			91.24		
$s_{b+r}(\%)$	1.46			1.40		
$s_r(\%)$		1.61	1.73		1.24	1.28
$s_{bb}(\%)$		-0.67	-0.92		0.65	0.58

表 8 K-40 の放射能測定による均質性試験結果

試料番号	N 36000 s	Nb 36000 s	N' 36000 s	Nb' 36000 s	$\sqrt{\frac{N+Nb+N'+Nb'}{(N-Nb)-(N'-Nb')}}}$	ネット カウン ト	計数 誤差 1	計数 誤差 2
#61	774	14.6	47.2	22.7	4.0%	734.9	27.1	29.3
#35	833	23.1	47.2	22.7	3.9%	785.4	28.0	30.4
#69	805	17.6	47.2	22.7	3.9%	762.9	27.6	29.9
#120	802	23.2	47.2	22.7	4.0%	754.3	27.5	29.9
#10	835	19.7	47.2	22.7	3.8%	790.8	28.1	30.4
#95	799	26.6	47.2	22.7	4.0%	747.9	27.3	29.9
#197	763	17.1	47.2	22.7	4.0%	721.4	26.9	29.2
#188	814	21.4	47.2	22.7	3.9%	768.1	27.7	30.1
#163	815	23.2	47.2	22.7	3.9%	767.3	27.7	30.1
#137	782	20.6	47.2	22.7	4.0%	736.9	27.1	29.5
#248	737	21.4	47.2	22.7	4.2%	691.1	26.3	28.8
#222	767	29.7	47.2	22.7	4.1%	712.8	26.7	29.4
AVERAGE	793.8	21.5	47.2	22.7	4.0%	747.8	27.3	29.8
					STDEV	29.77		
					$s_{b+r}(\%)$	3.98		
					$s_r(\%)$		3.66	3.98
					$s_{bb}(\%)$		1.57	0.13

表 8 の N, N_b は、それぞれ試験試料のベースラインを含むピークのカウント数及びベースラインのカウント数で、N', N_b' は別途測定された測定環境におけるバックグラウンドによる信号の全体及びベースラインのカウント数である（添付資料 3 を参照）。

K-40 の測定値の相対計数誤差は一般に次式で表され、計数誤差 2 と同等である。

$$K-40 \text{ の相対計数誤差} = \sqrt{(N+Nb+N'+Nb') / ((N-Nb)-(N'-Nb'))}$$

表 8 に計算した結果を示すが、約 1.57 % 程度の値が得られ s_{b+r} よりかなり小さく、これまでに開発した物質と異なり K-40 の放射能濃度が高いため、併行精度がほぼ確保されていると考えられる。

(3) 均質性試験に基づく不確かさの推定

表 7 に示すように Cs-134 では計数誤差 1 及び計数誤差 2 で計算した値はいずれも負となったが、Cs-137 では計数誤差 1 及び計数誤差 2 による計算値が近い値でそれぞれ 0.65 と 0.57 となった。Cs-134 及び Cs-137 の均質性は同じと考えられるので、Cs-137 に対して計数誤差 1 を用いて得られた最大の値 0.65 % を均質性の相対標準不確

かさとする。

K-40 については、計数誤差 1 及び計数誤差 2 を用いて計算した結果はかなり異なるが、Cs の場合と同様にこれを越えない最大の値として 1.57 % を均質性の相対標準不確かさとする。

6. 報告結果及び特性値の決定

共同実験においては、U8 容器に充てんした試料を 4. (3) ⑤に示すように選び参加試験所に配付した。参加試験所の測定値と測定条件をまとめて添付資料 3, 4, 5 に示す。表 9 に、報告値と z スコア計算結果をまとめた。 z スコアは従来法 (Classic) 及びロバスト法 (Robust) により求めた。ここで

Average : 平均値

SD : 室間再現標準偏差

RSD : $100 \times SD / Average$

Median : 中央値

NIQR : 標準化四分位範囲 (0.4713 × 四分位範囲で、ロバストな室間再現標準偏差)

RNIQR : $100 \times NIQR / Median$

Classic z score : $(x - Average) / SD$

x は各試験所の報告値

Robust z score : $(x - Median) / NIQR$

従来法及びロバスト法による z スコアで 3 を超えるデータがなかったためデータの棄却は行わなかった (Cs-134 と Cs-137 の報告値の分布状況は添付資料 6 のユーデン図を参照)。添付資料 3, 4, 5 に見るように測定条件で技術的に問題と思われる試験所はなく、平均値と中央値に標準偏差を超える違いがみられないので、本共同実験の報告値の評価には従来法による平均と標準偏差を用いる。したがって、大豆認証標準物質の特性値は平均値とした。

JIS Z 8404-1:2006 (ISO 21748:2010) 「測定の不確かさ—第 1 部：測定の不確かさの評価における併行精度、再現精度及び真度の推定値の利用の指針」に基づき、次項で述べる不確かさに加え、室間再現標準偏差 (表 9 の *SD*) も「もう一つの不確かさ」として認証書に記載する。

注：JIS Z 8404-1 は現 ISO の旧版 ISO/TS 21748:2004 の翻訳規格。

表9 報告値及びzスコア計算値

報告値の単位: Bq/kg

lab	核種	z score		核種	z score		核種	z score	
	Cs-134	classic	robust	Cs-137	Classic	robust	K-40	classic	robust
1	197.16	0.95	1.03	359.16	1.30	1.94	645.30	1.07	1.14
2	186	-0.55	-0.32	327	-1.65	-1.70	644	1.03	1.10
4	180	-1.44	-1.12	340	-0.47	-0.25	570	-1.41	-1.71
5	188.9	-0.21	-0.01	348.4	0.30	0.71	613.7	0.03	-0.05
6	185.22	-0.71	-0.46	341.32	-0.35	-0.10	591.88	-0.69	-0.88
8	181.8	-1.19	-0.89	340.9	-0.39	-0.14	616.6	0.13	0.05
10	193	0.37	0.51	338	-0.65	-0.47	598	-0.49	-0.65
11	193.7	0.47	0.60	346.4	0.12	0.48	608.9	-0.13	-0.24
12	200.7	1.45	1.48	367.8	2.10	2.93	546.6	-2.18	-2.59
14	201	1.49	1.51	343	-0.19	0.10	623	0.34	0.30
15	187	-0.47	-0.24	338	-0.65	-0.47	601	-0.39	-0.54
16	199	1.21	1.26	357	1.10	1.69	623	0.34	0.30
17	182	-1.18	-0.88	333	-1.11	-1.03	638	0.84	0.87
18	189	-0.19	0.01	351	0.54	1.01	658	1.49	1.62
データ数 p	14			14			14		
Average	190.34			345.09			612.74		
SD	7.18			10.85			30.36		
RSD	3.77			3.14			4.95		
SD/ \sqrt{p}	1.92			2.90			8.11		
RSD/ \sqrt{p}	1.01			0.84			1.32		
Median	188.93			342.16			615.16		
NIQR	7.99			8.78			26.44		
RNIQR	4.2			2.6			4.3		

表中の試験所の報告値は小数点一桁で示したが、計算では報告値をそのまま用いている。試験所番号(Lab)について一部不連続となっているのは、既開発の放射能標準物質の共同実験参加試験所番号を引き継いでいるためである。

試験所によっては、均質性試験とかねて複数の候補標準物質を測定していただいた。その場合は、事前に特定した試料の結果を共同実験用に採用した。

添付資料6に、Cs-134とCs-137の相関をユードン図で示した。

添付資料7には、報告された γ 線スペクトルの一部を示した。

7. 不確かさの算出

共同実験のデータ解析では多くの場合に測定方法に関する室間のかたよりは無視される。しかし、JIS Z 8404-1A.2.2において述べられるように、共同実験で推定されるかたよりの不確かさが無視できないときは不確かさのバジェット表に含む必要がある。したがって、ここでは、考えられる不確かさの要因を整理し、かたよりを与えると考

えられる要因に対して不確かさを推定し、これを合成することにした。

文献によると、測定用試料調製、Ge 半導体検出器のエネルギー及び検出効率校正、測定試料の測定、核データなどの要因が挙げられ、下記の(1)から(4)に示すように詳細な成分が議論されている。今回の共同実験において考慮が必要と考えた要因については(○)で示し説明を加えた。不確かさ要因の詳細については、文献参照のこと(C. Dovlete, P. P. Povinec: “Quantifying uncertainty in nuclear analytical measurements”, IAEA-TECDOC-1401, pp.103-126 (2004))。

(1) 測定試料の調製

- ・分析種の損失及び/又は汚染
- ・試料質量又は容量
- ・試料の均質性 (○)
 - 5. 均質性評価において考察した。
- ・前濃縮操作

(2) エネルギー及び検出効率校正

- ・測定時間内における機器の不安定性
- ・エネルギー校正
- ・検出効率校正 (○)

信頼性の高い放射性核種の定量を行うためには、測定に用いる Ge 半導体検出器の検出効率を正しく校正する必要がある。Ge 半導体検出器の検出効率校正法として、点線源測定法、体積線源測定法、計算に基づく方法がある。点線源測定法、体積線源測定法ではそれぞれに対応した標準線源を用いることで国家標準との計量トレーサビリティが確保された校正が実現できる。K-40 の測定においては、放射性天然同位体の存在量が信頼できる国際的データベースとして知られているため、それを利用して校正することも可能である。

標準線源は複数の核種を含み、広いエネルギー範囲で関数フィッティングすることにより検出効率の校正を行う。これによる不確かさは通常小さくここでは無視した。この根拠については土壌認証標準物質の開発成果報告書の添付資料9に示したので参考にされたい(開発報告書は次のホームページからダウンロードできる。<http://www.jsac.or.jp/srm/srm.html>)。

したがって、検出効率校正における不確かさは、各参加試験所の校正法に起因する合成標準不確かさ(表2に示した)を二乗平均し、その平方根とすることで計算した。

(3) 測定試料の測定

- ・試料と標準間の測定ジオメトリーの違い
 - すべての試験所においてピーク効率の校正や比較校正に用いる標準線源と同じタイプの試料容器が用いられているのでジオメトリーの違いによる不確かさは無視できるとした。
- ・偶発同時計数
- ・サム効果(真の加算同時計数) (○)
 - 今回の対象核種では Cs-134 が該当する。多くの試験所では、ソフトウェアに含まれる機能を用いて補正を行っている。

Lab 14 の試験所では、Cs-134 を標準線源に用いているので影響は小さく本来であれば不要であるが、ここでは自己吸収による差 (0.41~0.65%) を補正した。Lab 1 では補正はせずに、サム効果の影響を減らすため試料と標準線源は検出器から 5 cm の距離をとって測定された。

このようにサム効果のかたよりは適切に補正されているためばらつきは共同実験の不確かさに含まれると考え、ここでは不確かさの要因に含めない。

- 不感時間の影響
- 壊変時間 (サンプリングから測定までの冷却期間及び測定期間) の影響
- 試料の自己吸収 (○)

もし測定される試料の組成と密度が計数効率校正用標準線源と異なる場合、検出効率に対する自己吸収補正が必要となる。それらの補正は、試料のジオメトリー、組成及び密度、そして検出器パラメータに依存する。この補正は大容量、高原子量、高密度試料、そして低エネルギー光子に対して大きくなる。多くの機関では、測定対象物質として水、土壌、寒天等と異なる物質が選択されているが、自己吸収の補正量における材質による違いは大きくない。文献によると、試料マトリックスの主成分元素が既知の場合、自己吸収補正係数の相対不確かさは 1 % 以下 (エネルギー 60 keV 以上の γ 線に対し) とされるので、ここでは 1.0 % とした。

- ピーク面積計算
- 計数の統計 (○)

計数による不確かさは主要な要因の一つである。特に検出効率が小さい K-40 核種については環境によるバックグラウンドの信号が不確かさの大きな要因となっている。この要因による不確かさが他の要因と重複して観測されるが、ここでの共同実験では報告値の標準偏差に含まれるものとしてかたよりとは考えないため直接に合成する要因には含めない。

(4) 核データ

- 半減期による不確かさ
- γ 線放出率による不確かさ

核データは 3 桁~4 桁の精度を持っているため不確かさの要因としては無視した。

(5) 共同実験の不確かさ

報告値の標準偏差としては、室間再現標準偏差と NIQR による標準偏差が候補となるが、参加した試験所数が限られるのでここでは単純な標準偏差である室間再現標準偏差を用い、これを参加試験所数の平方根で割り、平均値の標準偏差として不確かさに合成する。

結論として、本大豆認証標準物質の合成標準不確かさは、共同実験の平均の標準不確かさ、参加試験所が用いた検出効率の校正の標準不確かさの二乗平均、自己吸収補正に含まれるかたより、均質性試験から推定された標準不確かさを合成して算出した。拡張不確かさを算出する包含係数として $k=2$ を用いた。

表 10 不確かさの要因と算出値

不確かさ要因	Cs-134 (%)	Cs-137 (%)	K-40 (%)
共同実験	1.01	0.84	1.32
検出効率校正	2.37	2.35	2.37
自己吸収補正	1.00	1.00	1.00
均質性	0.65	0.65	1.57
合成標準不確かさ	2.84	2.77	3.29
拡張不確かさ($k=2$)	5.68	5.53	6.58
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
拡張不確かさ($k=2$)	10.81	19.09	40.32

認証書に記載する拡張不確かさは次の通り。

Cs-134 11 Bq/kg
Cs-137 19 Bq/kg
K-40 40 Bq/kg

ここで、拡張不確かさは、合成標準不確かさに信頼の水準約 95 %に相当する包含係数 $k=2$ を乗じた値である。

図 3, 図 4, 図 5 に各核種の認証値と測定値の分布を示す。一部の測定値に付されたエラーバーは報告された拡張不確かさである。拡張不確かさを計数誤差の 2 倍で報告した試験所の拡張不確かさは含まれていない。

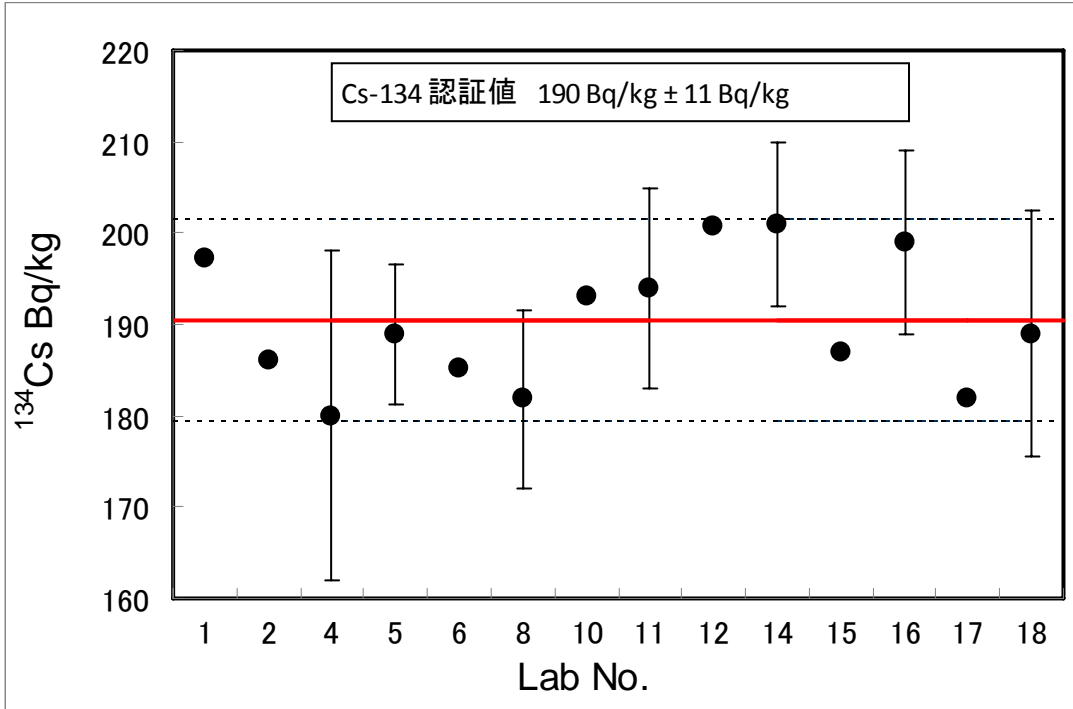


図3 Cs-134の認証値と測定値の分布

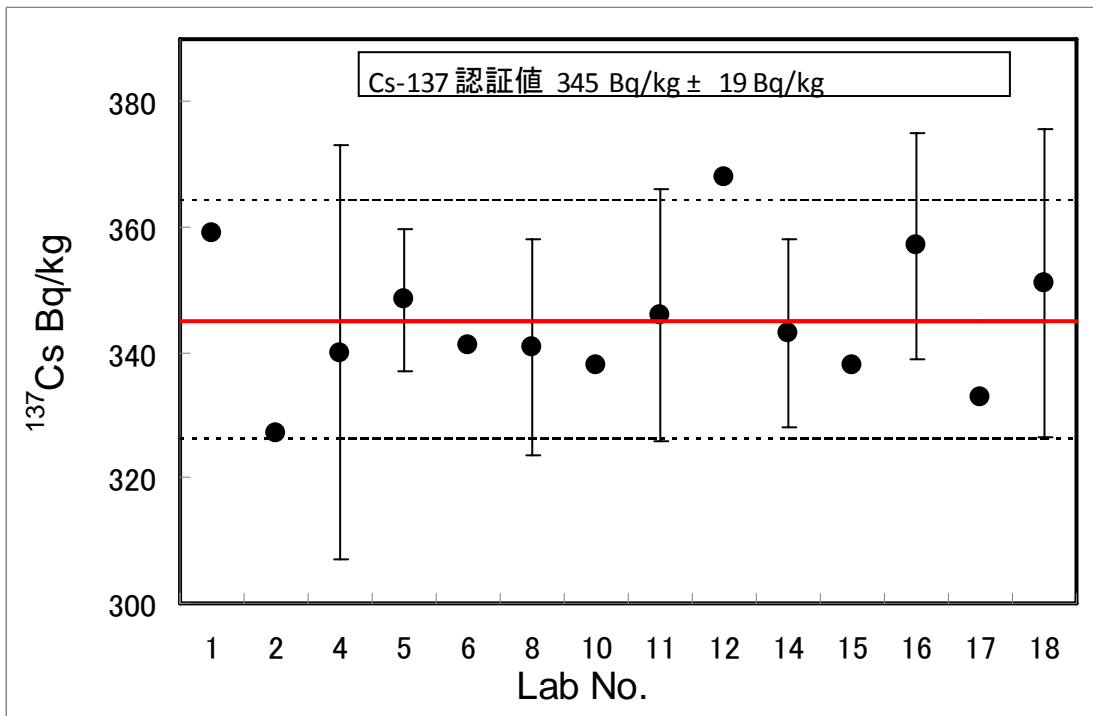


図4 Cs-137の認証値と測定値の分布

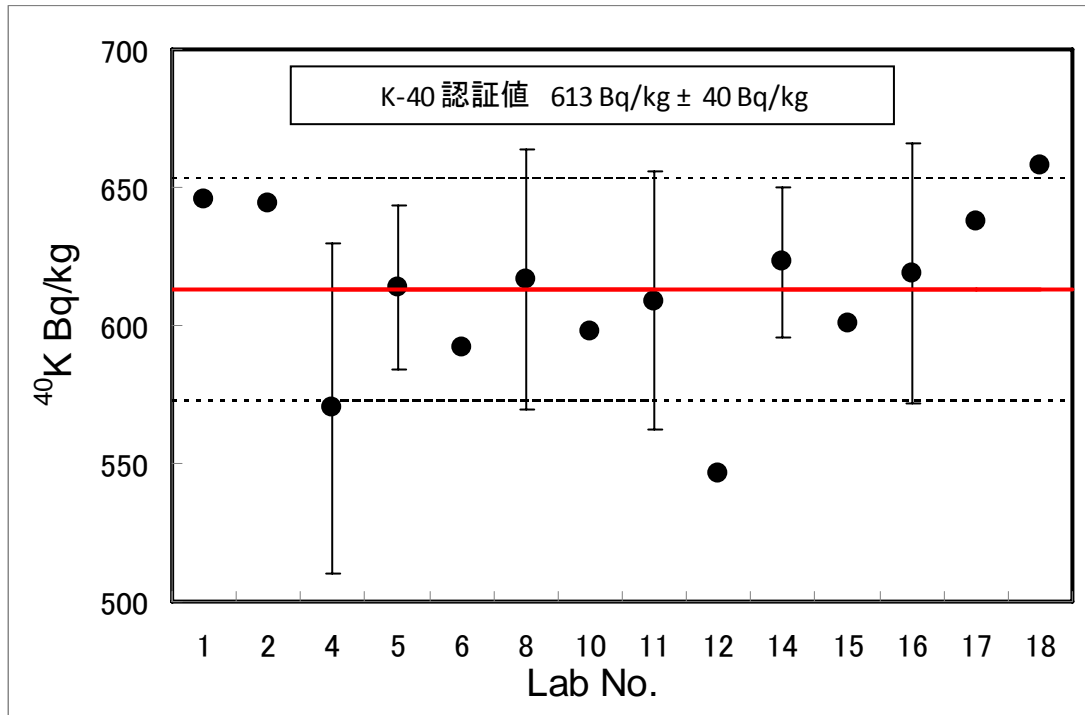


図5 K-40 の認証値と測定値の分布

8. 標準物質の利用

8. 1 標準物質の利用の目的

γ線スペクトロメトリーによる放射能分析の妥当性確認，測定器の精度管理などに用いることができる。

8. 2 使用上の注意

JSAC 0764 は，試料 75 g を U8 容器(内径 48 mm)に充てんした後，中蓋を入れ，上蓋で固定されている。容器を故意に振動・転倒させて試料を攪拌することを避ける。

U8 容器に充てんした試料の高さは 50 mm であるが，必要に応じて高さを測定することを推奨する。

JSAC 0765 及び JSAC 0766 は適切な放射能測定用の容器に詰めかえて用いる。採取量は 75 g 以上とする。

測定容器に詰めた標準物質の質量は精確に測定し，記録する。

本標準物質は，放射性核種を含むため取扱いに注意し，廃棄の際には関連法規を遵守する。

8. 3 妥当性確認や測定器の精度管理への利用の仕方

本大豆認証標準物質には認証値の不確かさと所間（室間）再現標準偏差とが記載されている。そのため，認証標準物質の放射能濃度を測定し，次のような手順を利用して分析能力の妥当性確認や測定器の精度管理に用いることができる。

・拡張不確かさを推定する場合：

本大豆認証標準物質を測定して測定値の不確かさを求めるには、本開発成果報告書における7節を参照することができる。Cs-134とCs-137が測定対象核種である限り、試験所が必要とする手順での、本開発成果報告書との違いは、計数誤差と均質性の取扱いであろう。試験所は生産された多数の標準物質のうちの一つを測定するので、均質性についての配慮は不要である。

その他の要因については、本開発成果報告書の取扱いに準じて、あるいは必要なら文献値などを用いて算出することが可能であろう。

推定した拡張不確かさをを用いると、次の式から測定値の信頼性を評価することが可能である。 E_n 数の絶対値は、1以下であることが望ましい。

$$E_n = (x - X) / (U_x^2 + U_X^2)^{0.5}$$

ここで x : 試験所の値
 X : 認証値
 U_x : 試験所の値の拡張不確かさ ($k=2$)
 U_X : 認証値の拡張不確かさ ($k=2$)

・拡張不確かさをを用いない場合：

認証書の所間（室間）再現標準偏差（ SD ）を用いることができる。所間再現標準偏差は認証値決定のために共同実験に参加した試験所の測定値の平均値を基準として求めた標準偏差である。

一般に、試験所において標準物質を分析したとき、その結果と認証値との差は所間標準偏差の2倍（ $2SD$ ）以内にあることが望ましい。これは技能試験において次の(7)式で求める z スコアの絶対値が2以下に入ることと同等である。

$$z = (x - X) / SD$$

9. 保管上の注意及び認証値の安定性

本標準物質は、冷暗所に保管する。

日本分析化学会では定期的に安定性試験を行い、その結果から有効保存期間及び有効保存期限を決めて、学会の会誌又はウェブサイト等に公表するので、参照すること。

10. 認証書

添付資料8に掲載する。

11. 結語

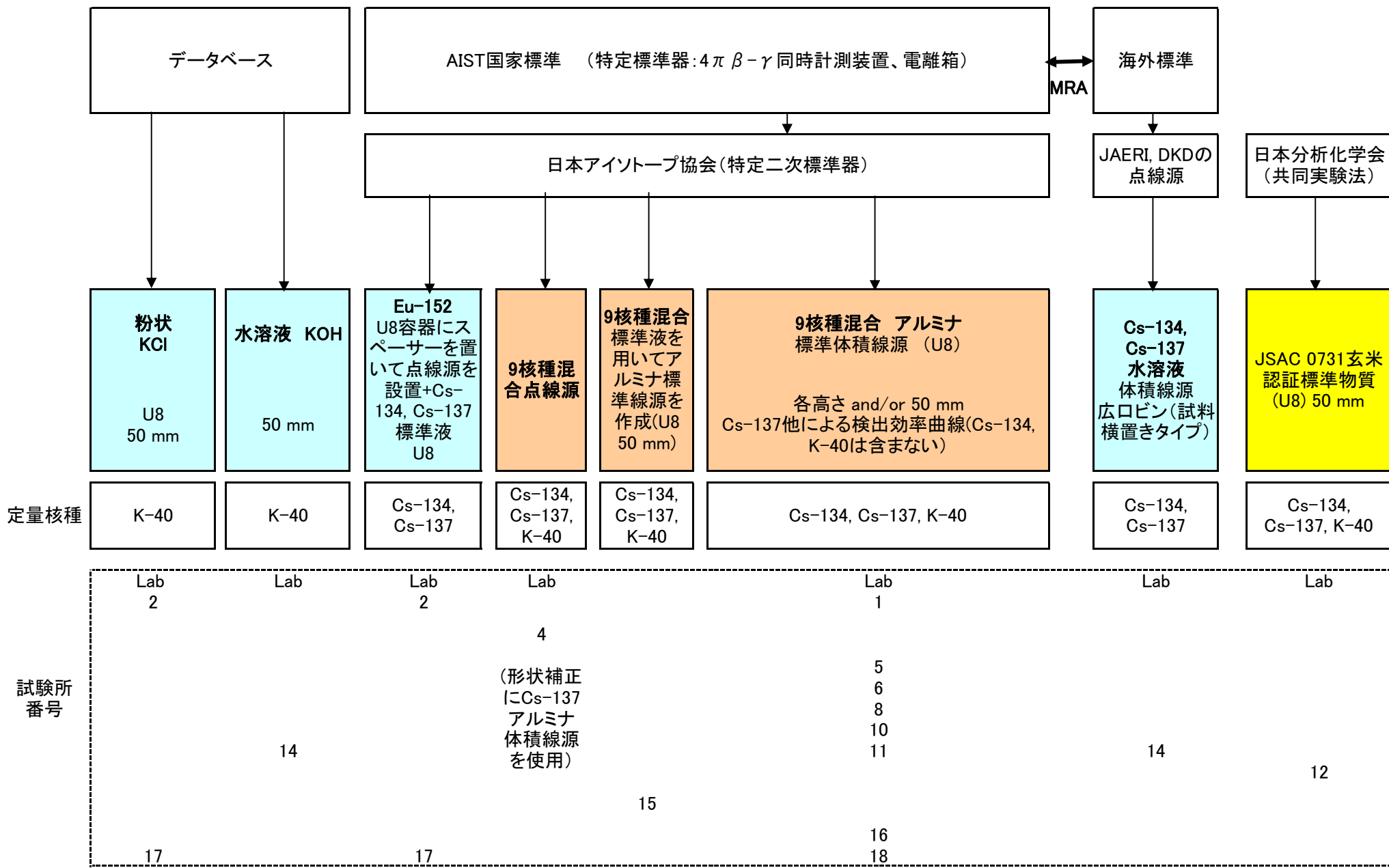
ここに放射能分析用大豆認証標準物質 JSAC 0764, 0765, 0766 を開発・作製した。

原子力発電所の事故からすでに2年が経過しているが、食生活への放射能汚染を未然に防ぐための努力は引き続き必要な状態である。放射能分析の精確さはその基本となるものであり、特に日本人の食生活の安全のために本大豆認証標準物質が分析値の信頼性の確保に有効な役割を果たすことが期待される。

業務計画の立案と検討，製品の試作，そして共同実験への参加，データ解析その他多くの面でこの開発事業を支えていただいた関係者各位に深く感謝する。

添付資料

添付資料1 参加試験所が使用した参照標準(標準線源)の概略図



添付資料2: 参加試験所の測定条件と結果

供試品基準時での換算放射能濃度 2013-02-01 JST 00:00:00(低濃度と同じとする)

試験所 番号	核種	半減期 (出典を記入する)	エネルギー	放出率	ピーク効率cps/ γ	サム効果補正有 無	自己吸収補正有 無
1	Cs-134	2.0648y	604.72	0.9762	0.35%	無	無
	Cs-134	2.0648y	795.86	0.8553	0.27%	無	無
	Cs-134						
	Cs-137	30.07y	661.66	0.851	0.32%	無	無
	K-40	1.28E+09	1460.83	0.107	0.15%	無	無
出典WWW Table of Radioactive Isotopes http://ie.lbl.gov/toi/							
4	Cs-134	2.06	795.8	85.4	0.010937	有	有
	Cs-137	30.14	661.6	85.1	0.013735	有	有
	K-40	1277000000	1460.8	10.7	0.007087	有	有
Atomic Data and Nuclear Data Tables(1983年)							
5	Cs-134	7.54.E+02	605	97.63	1.26.E-02	有	有
	Cs-137	1.10.E+04	662	84.99	1.24.E-02	無	有
	K-40	4.57.E+11	1461	10.55	6.21.E-03	無	有
出典: table de radionucleides 2007							
6	Cs-134	2.06E+00	475.36	1.47		0.910794	0.887151
	Cs-134	2.06E+00	563.26	8.38		0.881438	0.894393
	Cs-134	2.06E+00	569.29	15.43		0.879969	0.894846
	Cs-134	2.06E+00	604.66	97.56		0.924215	0.897405
	Cs-134	2.06E+00	795.76	85.44		0.925899	0.908903
	Cs-134	2.06E+00	801.84	8.73		0.910794	0.909216
	Cs-134	2.06E+00	1038.5	1.00		0.977394	0.91966
	Cs-134	2.06E+00	1167.88	1.81		1.076232	0.924241
	Cs-134	2.06E+00	1365.13	3.04		1.132582	0.93015
	Cs-134	2.06E+00					
	Cs-137	3.02E+01	661.64	85.1		1	0.901209
K-40	1.28E+09	1460.75	10.67		1	0.932643	
出典: アイソトープ手帳							
8	Cs-134	2.062Y	569.32keV	15.43	0.0148106	有	有
	Cs-134	2.062Y	604.70keV	97.60	0.0147359	有	有
	Cs-134	2.062Y	795.85keV	85.40	0.0113663	有	有
	Cs-134	2.062Y	801.93keV	8.73	0.0111016	有	有
	Cs-134		604.70keV	97.60	0.0147359	有	有
	Cs-137	30.00Y	661.66keV	85.21	0.0146959	-	有
	K-40	1.277 $\times 10^9$ Y	1460.75keV	10.67	0.00690287	-	有
出典: 「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」 文部科学省・放射能測定法シリーズ7							

試験所 番号	核種	半減期 (出典を記入する)	エネルギー	放出率	ピーク効率cps/ γ	サム効果補正有 無	自己吸収補正有 無
10	Cs-134	753.146D	604.66	97.56		0.952643	0.89736
	Cs-134	753.146D	795.76	85.44		0.953355	0.908863
	Cs-137	30.174Y	661.638	85.00		1.000	0.901165
	K-40	1460.75Y	1460.75	10.67		1.000	0.932612
11	Cs-134	7.531×10^2 日	604.66	97.56	0.021466	有	有
	Cs-137	1.102×10^4 日	661.64	85.00	0.022460	無	有
	K-40	4.664×10^{11} 日	1460.75	10.67	0.012955	無	有
出典：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 (文部科学省 科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室)							
12	Cs-134	2.062y	604.66keV	97.56%	1.93E-03	玄米標準試料 (JSAC 0731) と同じ であると仮定	
	Cs-137	30.174y	661.638keV	85%	1.75E-03		
	K-40	1.277×10^9 y	1460.75keV	10.67%	6.24E-04		
出典：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							
14	Cs-134	2.0648 (10) y	563.25	0.0835 (4)	0.000965	Cs134を含む標準線源な のでキャンセルされ る。ただし密度の違い による効率の違いは 補正	有
	Cs-134	2.0648 (11) y	569.33	0.1538 (6)	0.00173		有
	Cs-134	2.0648 (12) y	604.72	0.9762 (3)	0.0110		有
	Cs-134	2.0648 (13) y	795.86	0.8553 (4)	0.00767		有
	Cs-134						
	Cs-137	30.07 (3) y	661.66	0.851 (2)	0.0100	無	有
	K-40	$1.277 (8) E9$ y	1460.83	0.1067 (13)	0.000625	無	有
出典：Table of Isotopes 1998							
15	Cs-134	2.0648Y	605	0.976	0.0208	有	有
	Cs-137	30.1671Y	662	0.851	0.0217	無	有
	K-40	1.251×10^9 Y	1461	0.107	0.0122	無	有
出典：Table of isotope 7th. Ed.							
16	Cs-134	2.062年	604.66keV	97.56%	0.0183	有	有
	Cs-134	2.062年	795.76keV	85.44%	0.0146	有	有
	Cs-134	2.062年	604.66keV	97.56%	0.0183	有	有
	Cs-137	30.174年	661.638keV	85.00%	0.0185	無	有
	K-40	1.277×10^9 年	1460.75keV	10.67%	0.00966	無	有
出典：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							
18	Cs-134	2.062	604.66	97.56	0.01588	有	有
	Cs-137	30.174	661.64	85.00	0.01602	有	有
	K-40	1.277×10^9	1460.75	10.67		有	有

カウント数 N, Nb, N',Nb'については末尾(カウント数)の図を参照して下さい。

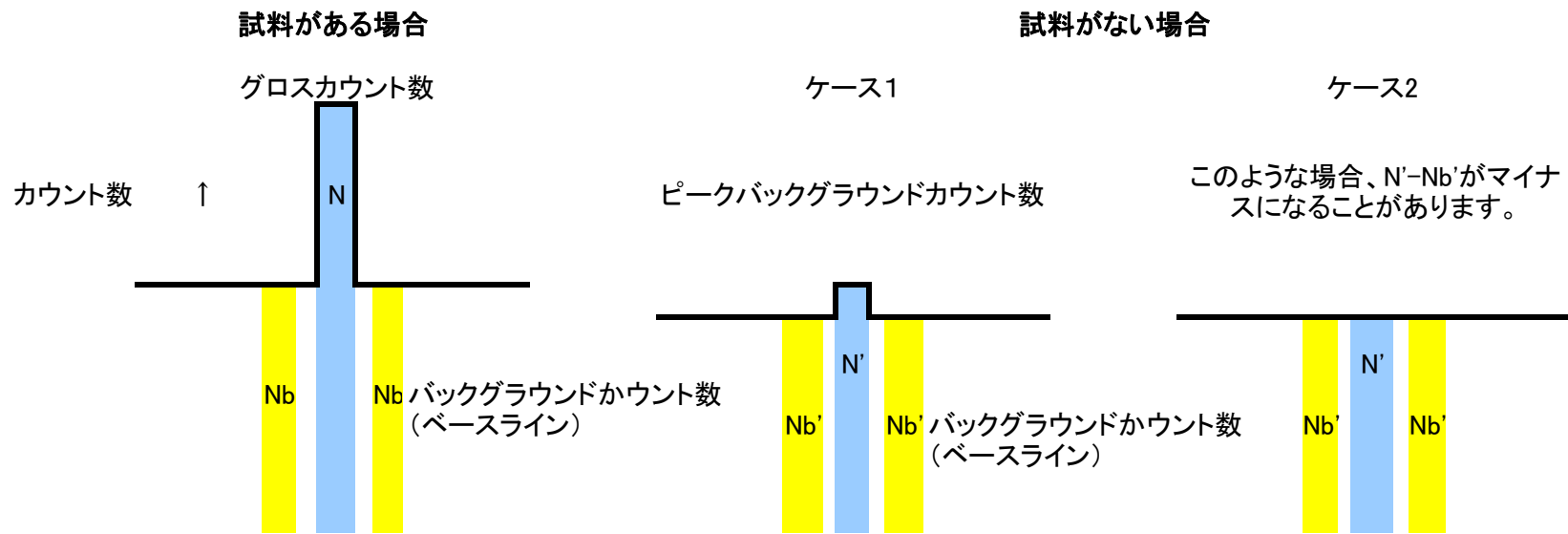
試験所 番号	ピーク面積計算方法 (関数法又はコ ペール法、その 他)	機器ソフト上で選 択した試料材質	測定時間 live time(秒)	グロスカウン ト数 N	ベースラインカ ウント数 Nb	正味カウント数 N-Nb	ピーク計数率 (カウント数/秒)	試料がないときの グロスバックグラウ ンドカウント数 N' *
1	関数法		427000	19074.52		19074.52	0.044671	0
	関数法		427000	13011.37		13011.37	0.0304716	0
	関数法		427000	31085.13		31085.13	0.0727989	0
	関数法		427000	5246.52		5246.52	0.0134579	809.515
4	コペール法	灰化物	76128	9042	273.6	8768.4	0.118773644	244.9
	コペール法	灰化物	76128	22708	478.1	22229.9	0.298287095	245
	コペール法	灰化物	76128	2501	47.4	2453.6	0.032852564	129.6
5	コペル法	水	200000	33278	2086	31192	0.156	2359
	コペル法	水	200000	56072	1313	54759	0.274	2352
	コペル法	水	200000	6847	216	6631	0.033	3433
6	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80,000	2156	1837	319	0.0270	855
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80,000	2180	970.5	1209.5	0.0273	531
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80,000	3333	1094.7	2238.3	0.0417	562
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80,000	14652	849.1	13802.9	0.1832	1096
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80,000	9833	315.4	9517.6	0.1229	643
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80,000	1217	325.1	891.9	0.0152	643
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80,000	320	253	67	0.0040	256
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80,000	376	279.8	96.2	0.0047	178
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	80,000	414	100	314	0.0052	167
8	関数法	水、寒天	41230	1570	504.9	1065.1	0.038079069	214
	関数法	水、寒天	41230	7512	493.3	7018.7	0.182197429	266
	関数法	水、寒天	41230	4864	194.6	4669.4	0.11797235	164
	関数法	水、寒天	41230	595	132.3	462.7	0.014431239	182
	関数法							
	関数法	水、寒天	41230	13396	332	13064	0.324909047	233
	関数法	水、寒天	41230	1579	36	1543	0.038297356	293

試験所 番号	ピーク面積計算方 法(関数法又はコ ベル法、その 他)	機器ソフト上で選 択した試料材質	測定時間 live time(秒)	グロスカウン ト数 N	ベースラインカ ウント数 Nb	正味カウント数 N-Nb	ピーク計数率 (カウント数/秒)	試料がないときの グロスバックグラウ ンドカウント数 N' *
10		土壌	36000	4219	283.3	3935.7	0.117194444	
		土壌	36000	2805	109.9	2695.1	0.077916667	
		土壌	36000	6618	166.3	6451.7	0.183833333	
		土壌	36000	774	14.6	759.4	0.0215	
11	コベル法	寒天	50000	14362	877.9	13484.1	0.28724	1300
	コベル法	寒天	50000	25247	650.8	24596.2	0.50494	949
	コベル法	寒天	50000	3375	134.1	3240.9	0.0675	702
12	コベル法		153964			17747	0	
	コベル法		153964			30676	0	
	コベル法		153964			5945	0	
14	コベル法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	167149	4256	1989	2267	0.025462312	866
	コベル法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	167149	5673	1704	3969	0.033939778	723
	コベル法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	167149	27110	1733	25377	0.16219062	875
	コベル法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	167149	18694	869	17825	0.111840334	510
	コベル法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	167149	46212	1265	44947	0.27647189	1108
	コベル法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	167149	6870	203	6667	0.041101054	1759
15	コベル法	C43H78N4O21(タンパ ク質+脂肪+炭水化物 +水)	82460	16852	1031.9	15820.1	0.204365753	1666
	コベル法		82460	28566	626	27940	0.346422508	1413
	コベル法		82460	3436	94.5	3341.5	0.041668688	1347
16	コベル法	灰化物	43200	9881	702.8	9178.2	0.228726852	0
	コベル法	灰化物	43200	6857	343.6	6513.4	0.158726852	0
	コベル法	灰化物						
	コベル法	灰化物	43200	16709	490	16219	0.386782407	0
	コベル法	灰化物	43200	2944	78	2866	0.068148148	2999
					0	#DIV/0!		
18	コベル法	水、寒天	36000	7758	554	7204	0.2155	174
	コベル法	水、寒天	36000	13444	354	13090	0.373444444	142
	コベル法	水、寒天	36000	2046	52.9	1993.1	0.056833333	477

*事前に測定した値でよい

試験所 番号	試料がないときの ベースラインカウ ント数 Nb' *	試料がないときの 正味バックグラウ ンドカウント数 N'- Nb' *	バックグラウンド測 定時間* 秒	→		↓	
				測定時の放射能 Bq	供試品作製時の 放射能 Bq	供試品作製時 の放射能濃度 (Bq/kg)	拡張不確かさ (k=2) (Bq/kg)
1		0		13.149	14.751	196.684	
		0		13.213	14.822	197.63	
						197.16	
		0		26.725	26.937	359.16	
		809.515	146800	48.397	48.397	645.3	
		0					
4	230.8	14.1	140024	12	14	180	18
	257.7	-12.7	140024	25	25	340	33
	128	1.6	140024	43	43	570	60
5	2327	32	930000	12.69	14.16	188.9	7.6
	1965	387	930000	25.93	26.13	348.4	11.3
	628	2805	930000	46.03	46.03	613.7	29.7
6		855	80,000	1.4516	1.6374	218.32	78.372
			80,000	1.2248	1.3816	184.21	15.1354
		562	80,000	1.2545	1.4151	188.68	9.927
		1096	80,000	1.2274	1.3845	184.6	3.3332
		643	80,000	1.2318	1.3895	185.26	3.913
		643	80,000	1.2475	1.4072	187.62	14.847
		256	80,000	1.3194	1.4883	198.44	70.154
		178	80,000	0.9511	1.0728	143.04	43.304
		167	80,000	1.3757	1.5518	206.9	28.304
					1.3892	185.22	2.3802
		485		2.2694	2.5599	341.32	4.4048
		248		3.9354	4.4391	591.88	24.048
8	237.4	-23.4	72000	11.09	12.75	170	15.084
	283.8	-17.8	72000	11.85	13.64	181.8	9.717
	162.2	1.8	72000	11.66	13.42	178.9	10.123
	143.9	38.1	72000	11.46	13.18	175.7	21.64
						181.8	9.717
	209	24	72000	25.32	25.57	340.9	17.263
	39.4	253.6	72000	46.24	46.24	616.6	46.96
		0					

試験所 番号	試料がないときの ベースラインカウ ント数 Nb' *	試料がないときの 正味バックグラウ ンドカウント数 N'- Nb' *	バックグラウンド測 定時間* 秒	測定時の放射能 Bq	供試品作製時の 放射能 Bq	供試品作製時 の放射能濃度 (Bq/kg)	拡張不確かさ (k=2) (Bq/kg)	
10		0	250000			193		
		0	250000			193		
		0	250000			338		
		44.5	250000			598		
11	1345.4	-45.4	200000	12.88	14.53	194	11	
	958.3	-9.3	200000	25.77	25.98	346	20	
	363.8	338.2	200000	45.67	45.67	609	47	
12		0	10000			200.7350431		
		0	10000			367.8333892		
		120	10000			546.560106		
14	844	22	170000	13.48				
	683	40	170000	13.14				
	624	251	170000	13.26				
	343	167	170000	13.38				
				13.30	15.05	201	9	
	528	580	170000	25.49	25.71	343	15	
	132	1627	170000	46.76	623	623	27	
15		0						
	1524.5	141.5	439113	12.56	14.025	187	3.2	
	1231	182	439113	25.16	25.35	338	4.2	
	339.5	1007.5	439113	45.075	45.075	601	22.8	
16		0	129600	13.3	14.9	199	10	
		0	129600	13.3	14.8	198	11	
						199	10	
		0	129600	26.5	26.8	357	18	
		205.8	2793.2	129600	46.7	46.7	623	47
		0						
18	178.4	-4.4	36000	12.698	14.168	189	13.5	
	128.7	13.3	36000	26.151	26.348	351	24.6	
	35.1	441.9	36000	49.329	49.329	658		



添付資料3 : その他測定条件 (Ge検出器とγ線スペクトロメリー検出効率及び試料など)

試験所番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	Ge検出器の相対効率	検出効率(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源の質量、密度、容器(充填高さ)、核種毎の検出効率(cps/Bq)、できれば自己吸収計算方法やソフト名など	試料測定方法: 報告シート(1)以外の、質量、密度、容器(充填高さ)など	その他のコメント
1	γ線スペクトロメトリ	セイコーEG&G Ge検出器GEM20P4-70	20%		質量75g U8容器(内径48mm, 高さ50mm) サム効果や自己吸収の補正は行っていないが、サム効果を減らすため試料と標準線源は検出器から5cmの距離をとった。効率曲線は同じ高さの体積混合線源Co-60,Mn-54,Cs-137,Y-88,Cr-51の合計7ピークの効率を両対数グラフで線形近似して求めた。	Cs-134の定量は2つのピークの平均値 バックグラウンドカウント数Nb,Nb'はピークフィッティングを行っているので、求めている。解析方法の詳細は文献(鈴木章悟, 伊下信也: Radioisotopes,57,429(2008))に記載
4	γ線スペクトロメリー	CANBERRA社製 GC2519-7915-30	31	検出効率については別添参照 自己吸収補正方法: 文部科学省測定法シリーズに準拠 使用ソフトウェア: SEIKO EG&G社製 ガンマスタジオ	重量: 75.0 g 密度: 0.792 g/cm ³ 容器: U-8(充填高: 52.0mm)	
5	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リー	ORTEC GEM20-70	23%	自己吸収計算に使用したソフト名 Gamma studio	質量: 75.0g 密度: 0.808g/cm ³ 容器: U8型容器(プラ壺3-100) 充填高さ: 49.85mm	特になし
6	同軸型Ge半導体検出器を用いた測定	Canberra GX2019 (S/N 03036329)	35%	放射能標準ガンマ線体積線源(アルミナ)、日本アイソトープ協会	充填高さは5.0cm 重量は75g 密度は0.829	
8	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リー	・メーカー: CANBERRA社 ・型式: GC2018	24.50%	別紙に記載	・質量: 75.0g ・密度: 0.846g/cm ³ ・充填高さ: 5.0cm	

試験所番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	Ge検出器の相対効率	検出効率(cps/Bq)を求めるときに使用した標準線源の質量、密度、容器(充填高さ)、核種毎の検出効率(cps/Bq)、できれば自己吸収計算方法やソフト名など	試料測定方法:報告シート(1)以外の、質量、密度、容器(充填高さ)など	その他のコメント
10	Ge検出器 γ 線スペクトロメトリー	ORTEC Model No. GEM20-70 FWHM at 1.33 MeV Co-60 1.80keV 源解析ソフト: セイコーイー&ジー社:ガ マスタジオ	20	RI 協会 U8体積線源	質量:0.075kg 密度:0.829g/cm ³ 充填高さ:50mm 測定:検出器サンプルチャンジャ用 容器の中に入れて測定	
11	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法	オルテック GMX-60P4-83	65.2%	標準線源:放射能標準ガンマ 体積線源(アルミナ) MX033U8PP((社)日本アイソ トープ協会) 校正:標準ガンマ体積線源高 さ5段階(5, 10, 20, 30, 50mm) 標準線源情報:別表1 校正に用いた核種:別表2 核種毎の検出効率:別表2 自己吸収計算:セイコーイー &ジー(株)製「 γ スタ ジオ」による	受領したU-8容器に充填された試 料は、高さが50mmを超えていたた め、開封し少し圧縮した後、高さをノ ギスで測定した。 試料正味重量は本共同実験の測 定手順書に記載された重量をその まま用いた。 試料の充填高さ、重量、密度の情 報を入力し、セイコー イージーアン ドジー(株)製解析プログラムの登録情 報(サム効果補正係数、自己吸収率 補正係数)により定量した。 充填高さ:48.2mm 重量:0.075kg 密度:0.858g/cm ³	解析システム:セイコー E G & G (株) Cs134の定量値について 795.76keVのピークは同核種の 801.84keVのピーク及び、Ac-228の ピークが重なるため、604.66keV、 795.76keV双方の値に大差が無いこ とを確認した上で604.66keVの値を 採用することとする。
12	標準物質(玄米)との比較法	CANBERRA GC4020- 7500SL	40%	標準線源:玄米認証標準物 質(粒状)JSAC 0731 使用ソフト:スペクトロエクス プローラー		測定位置は検出器表面から約1cm の距離で行った。

試験所 番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	Ge検出器の 相対効率	検出効率(cps/Bq)を求める ために使用した標準線源の 質量、密度、容器(充填高 さ)、核種毎の検出効率 (cps/Bq)、できれば自己吸収 計算方法やソフト名など	試料測定方法:報告シート(1)以外 の、質量、密度、容器(充填高さ)な ど	その他のコメント
14	γ線測定	ORTEC GMX25P4	28%	<p>・Cs134とCs137の標準線源は、基になる線源溶液から100-200μL正確に秤量したものを100mLの水に滴下してそれぞれ作製。基になる線源溶液の放射能濃度は、その溶液で点線源を作製し、市販の点線源と比較測定し決定。</p> <p>・K40線源は、容量分析用水酸化カリウム溶液を用いて作製。</p> <p>・自己吸収の補正は、大豆試料、Cs溶液、KOH溶液それぞれのγ線吸収係数を実測した上で、積分法により自己吸収割合を計算し、各試料間での自己吸収の違い(3.4-4.0%程度)を補正。</p>	<p>・100mLのPE製広口ビン(内径47.5mm)に試料を全量移し替え(75.23g)、ビンの側面をGe検出器(横型)の前面アクリルキャップに密着させて測定。</p> <p>・標準線源も同じ100mLのPE製広口ビンで作成し、同じジオメトリで測定。</p>	Cs134を含む標準線源を用いているため、Cs134のサム補正は本来なら必要ないが、自己吸収の違いに起因する効率の違いによって僅かに大豆試料と標準線源の間でサム補正量が異なるので、その違い(0.41-0.65%)を計算し補正。
15	送付された大豆試料をポリエチレン袋に入れた後、Ge半導体検出器のエンドキャップ上に置き、測定。	キャンベラ社 GX2518	30.29%	SEIKO EG&G γスタジオにより、自己吸収計算、サム効果補正等を行った。標準線源は(社)日本アイソトープ協会より9核種混合標準溶液(MX010-0017JCSS証明済み、基準日2012年2月25日12時)を購入し、アルミナ粉末と混合し、U8容器に50mm高さで充填して作成した。		不確かさについては、解析ソフトによって計算された誤差の値を2倍して求めた。標準溶液自体の相対拡張不確かさ及び標準線源作成時の誤差要因は含んでいない。

試験所 番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	Ge検出器の 相対効率	検出効率(cps/Bq)を求める ために使用した標準線源の 質量、密度、容器(充填高 さ)、核種毎の検出効率 (cps/Bq)、できれば自己吸収 計算方法やソフト名など	試料測定方法:報告シート(1)以外 の、質量、密度、容器(充填高さ)な ど	その他のコメント
16	γ線スペクトロメータ(ゲルマニウム半導 体検出器)法	オルテック社製 GEM35-70	39.40%	標準線源 質量:97.0g 密度:1.102 g/cm ³ 容器(充填高さ):U-8 (50mm) 検出効率(cps/Bq): 109Cd(88.032keV): 0.00146 57Co(122.058keV): 0.0400 57Co(136.471keV): 0.00509 139Ce(165.85keV): 0.0348 85Sr(514.000keV): 0.0196 137Cs(661.638keV): 0.0137 54Mn(834.827keV): 0.0138 88Y(898.030keV):0.0114 60Co(1173.21keV): 0.00989 60Co(1332.47keV): 0.00895 88Y(1836.00keV): 0.00687 計算ソフト名:Gamma Studio	質量:75.0g 密度:0.852g/cm ³ 容器:U-8(充填高さ50mm)	Cs134については放出比が一番高 いエネルギーの値を採用した。 ブランクのカウント数はCs134及び Cs137は2σ以下のためカウント数 をゼロとした。
18	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	・メーカー:CANBERRA社 ・型番:GC2518	30.345%	標準線源:放射能標準体積 線源(アルミナ) MX033U8PP 日本アイソトープ協会製	重量:75g 密度:0.846 g/cm ³ 容器:U8 高さ:50.0mm	

添付資料4 : 参加試験所からのその他の情報

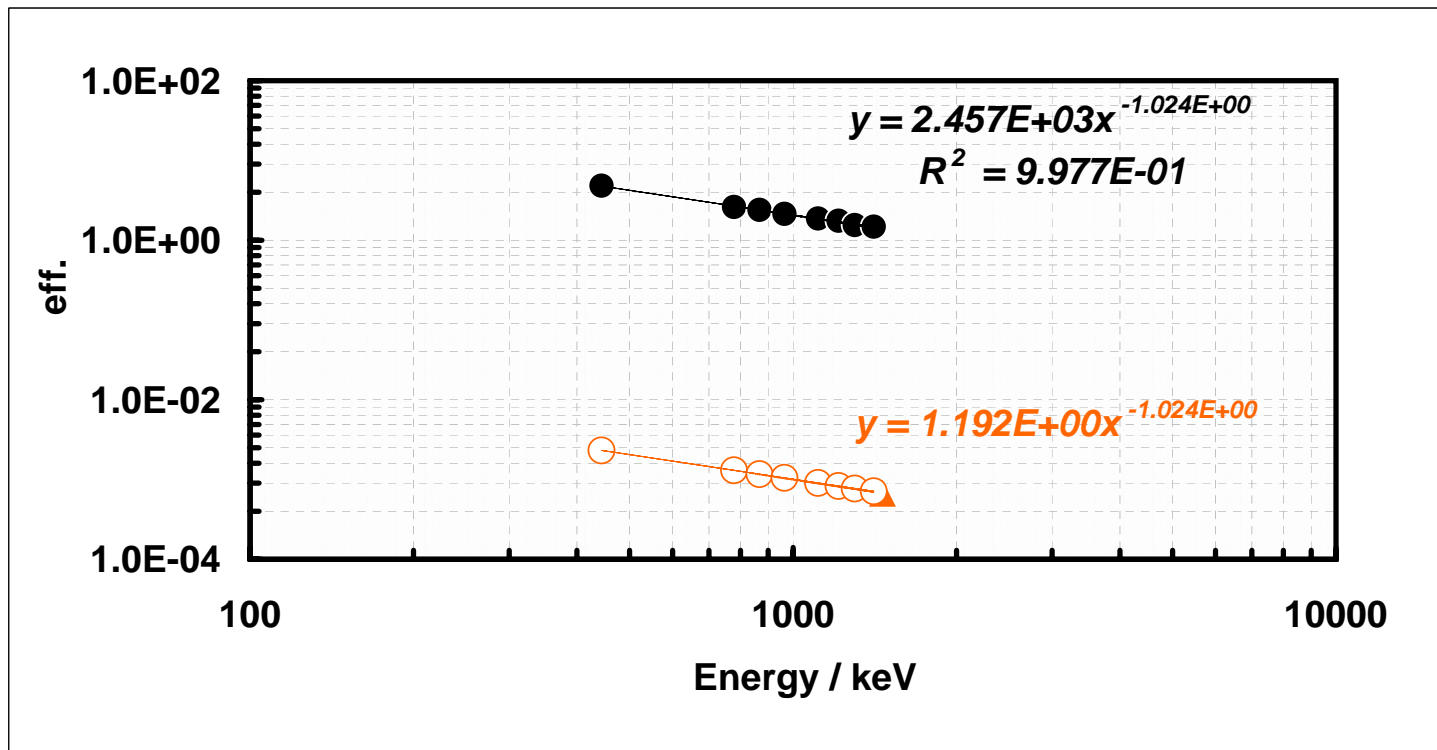
Lab 2

⁴⁰K

サンプル	Energy / keV	高さ (cm)	γ [%]	KCl (g)	Activity (Bq)	gps	cps (net)	eff. (1461 keV)	a	b
KCl (D U-8)	1460.8	5.0	10.67	105	1714	183	0.13	6.85E-04	-1.024	1.192

¹⁵²Eu

Live time	keV	cps	err (1σ)	γ [%]	dps	err (1σ)	err (1σ) / %	a	b	Eff.
39,288	443.9650	0.1507	0.0020	3.125	4.823	0.063	1.30	-1.024	1.192	2.32E-03
39,288	778.9036	0.3393	0.0029	12.97	2.615	0.023	0.87	-1.024	1.192	1.30E-03
39,288	867.3906	0.1015	0.0016	4.214	2.408	0.038	1.58	-1.024	1.192	1.17E-03
39,288	964.0554	0.3132	0.0028	14.63	2.141	0.019	0.90	-1.024	1.192	1.05E-03
39,288	1,112.0876	0.2536	0.0025	13.54	1.873	0.019	1.00	-1.024	1.192	9.06E-04
39,288	1,212.9701	0.0247	0.0013	1.412	1.752	0.089	5.09	-1.024	1.192	8.28E-04
39,288	1,299.1520	0.0252	0.0008	1.626	1.550	0.049	3.18	-1.024	1.192	7.72E-04
39,288	1,408.0220	0.3077	0.0028	20.85	1.476	0.013	0.91	-1.024	1.192	7.11E-04



大豆 (D_U-8)

Nuclide	Energy / keV	放出割合 / %	Eff.	Sample weight / kg	測定時間 / sec	count	1σ	cps
Cs-134	604.7	0.976	1.69E-03	0.07500	149,620	3,091	56	2.07E-02
Cs-137	661.7	0.851	1.54E-03	0.07500	149,620	4,780	69	3.19E-02
<i>Cs-134</i>	<i>795.9</i>	<i>0.855</i>	<i>1.28E-03</i>	<i>0.07500</i>	<i>149,620</i>	<i>2,131</i>	<i>46</i>	<i>1.42E-02</i>
K-40	1460.8	0.107	6.85E-04	0.07500	149,620	613	25	3.54E-03

Nuclide	1σ	Activity / Bq	1σ	Activity (時間補正後) / Bq	1σ	Activity conc. / Bq kg ⁻¹	1σ	¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs / Bq kg ⁻¹
Cs-134	3.72E-04	12.5	0.2	14.0	0.2	186	3	514
Cs-137	4.62E-04	24.4	0.4	24.5	0.4	327	5	
<i>Cs-134</i>	<i>3.09E-04</i>	<i>13.1</i>	<i>0.3</i>	<i>14.6</i>	<i>0.3</i>	<i>194</i>	<i>4</i>	
K-40	1.65E-04	48.3	2.3	48.3	2.3	644	30	

Lab 4

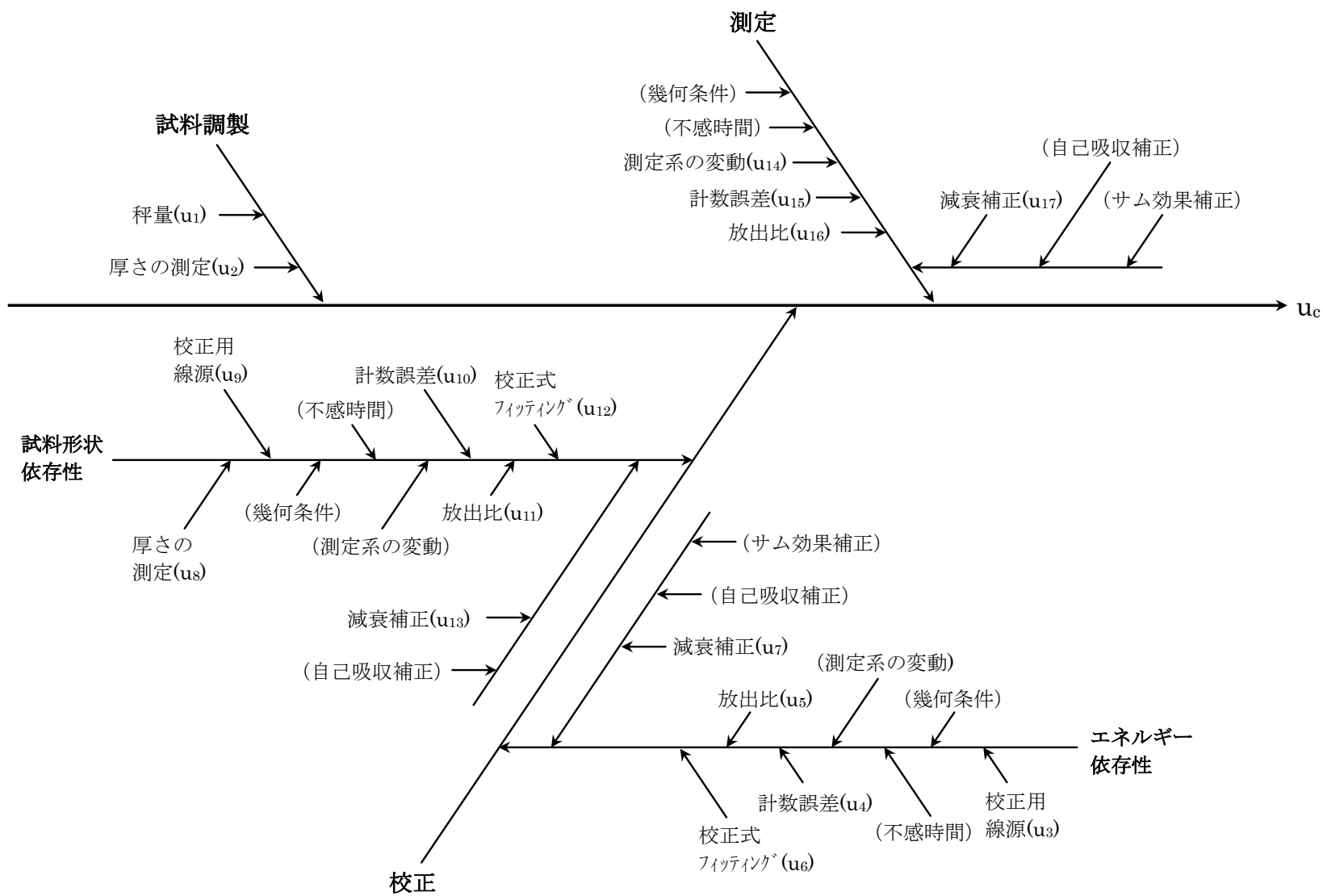
別添

・感度係数(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源名	エネルギー依存性 : 日本アイソトープ協会製 MX402 53		
	測定試料形状依存性 : 日本アイソトープ協会製 CS031U8PP		
・感度係数(cps/Bq)を求めるために使用した全ての核種の感度係数(cps/Bq)		検出効率 (cps/γ)	サム効果や自己吸収補正の有無など、校正・測定方法を付記する。
エネルギー依存性(9核種混合点線源)			
Cd-109	0.00161	0.0446	測定試料形状依存性は ¹³⁷ Cs容積線源を、エネルギー依存性は混合核種点線源を、それぞれ測定して求めた。なお、 ⁵⁷ Co、 ⁶⁰ Co及び ⁸⁸ Yのピーク効率を求める際には、サム効果の影響について補正した。測定試料によるγ線の自己吸収は、試料ごとに計算により補正した。また、 ¹³⁴ Csはサム効果の影響を補正した。
Co- 57	0.0357	0.0418	
Ce-139	0.0281	0.0352	
Cr- 51	0.00191	0.0194	
Cs-137	0.00827	0.00972	
Mn- 54	0.00790	0.00790	
Y-88(898keV)	0.00702	0.00747	
Y-88(1836keV)	0.00391	0.00393	
Co-60(1173keV)	0.00583	0.00584	
Co-60(1333keV)	0.00525	0.00525	

測定試料形状依存性:放射能標準ガンマ体積線源(アルミナ中 ¹³⁷Cs)

重量: 9.5g、密度: 1.044g/cm ³ 、 容器: U-8(充填高: 5.0mm)	0.0287	0.0337
重量: 19.0g、密度: 0.994g/cm ³ 、 容器: U-8(10.5mm)	0.0254	0.0298
重量: 38.0g、密度: 0.994g/cm ³ 、 容器: U-8(21.0mm)	0.0206	0.0242
重量: 57.0g、密度: 1.010g/cm ³ 、 容器: U-8(31.0mm)	0.0177	0.0207
重量: 76.0g、密度: 1.018g/cm ³ 、 容器: U-8(41.0mm)	0.0154	0.0181
重量: 88.0g、密度: 1.029g/cm ³ 、 容器: U-8(47.0mm)	0.0144	0.0169

Lob 4



Lab 5 : 不確かさの算出根拠

不確かさの要因	Type	相対標準不確かさ(%)		
		Cs-134(605keV)	Cs-137(662keV)	K-40(1461keV)
計数統計	A	0.60	0.44	1.41
ピーク効率校正	B	1.75	1.53	1.66
減衰補正	B	<0.1	<0.1	<0.1
校正位置の再現性	B	<0.1	<0.1	<0.1
ガンマ線放出割合	B	0.08	0.24	1.04
自己吸収補正	B	0.20	0.18	0.13
カスケードサム効果補正	B	0.77	0.00	0.00
相対合成標準不確かさ(k=1)		2.0	1.6	2.4
相対拡張不確かさ(k=2)		4.0	3.2	4.8

Lab 6

測定コード Daizu-RMSTD-DET#06-3
 検出番号 1
 測定開始日時 2009/6/10 9:33
 測定時間 ライブタイム(秒) 80000 リアルタイム(秒) 80008.5
 スペクトルコメント Daizu-STD-DET-#06
 試料コメント Daizu-STD-DET-#06
 採取開始日時 2009/1/31 0:00 採取開始日時 2009/1/31 0:00
 試料容器 U-8容器 試料量 0.075 kg
 充填高さ(cm) 5.0
 密度 8.29E-01
 回収率(%) 100
 母材 海底土, 土壌, 灰化物
 減衰補正モード 試料採取終了〜測定開始、測定中の減衰補正
 核ライブラリ 環境分析用核データ
 エネルギー校正 E120110520141625
 効率校正 F1U820120127112802
 P/T校正 PTT20110520141553
 ピークバックグラント B120120125193436

No	チャネル	エネルギー	核種名	放射能 (Bq/kg)(ガウス)	±誤差(ガウス)	放射能 (Bq/kg)(積算)	±誤差(積算)	放射能 (Bq/kg)(ガウス荷重平均)	±誤差(ガウス荷重平均)	放射能(Bq/kg)(積算荷重平均)
107	1901.74	475.35	Cs-134	2.18E+02	3.92E+01	2.33E+02	4.62E+01	1.85E+02	1.19E+00	1.85E+02
127	2253.45	563.26	Cs-134	1.84E+02	7.57E+00	1.86E+02	9.21E+00	1.85E+02	1.19E+00	1.85E+02
128	2275.63	569.29	Cs-134	1.89E+02	4.96E+00	1.87E+02	5.75E+00	1.85E+02	1.19E+00	1.85E+02
137	2419.85	604.66	Cs-134	1.85E+02	1.67E+00	1.85E+02	1.67E+00	1.85E+02	1.19E+00	1.85E+02
157	2647.81	661.64	Cs-137	3.41E+02	2.20E+00	3.39E+02	2.26E+00	3.41E+02	2.20E+00	3.39E+02
201	3185.2	795.76	Cs-134	1.85E+02	1.96E+00	1.86E+02	1.97E+00	1.85E+02	1.19E+00	1.85E+02
202	3205.88	801.84	Cs-134	1.88E+02	7.42E+00	1.74E+02	7.71E+00	1.85E+02	1.19E+00	1.85E+02
244	4158	1038.5	Cs-134	1.98E+02	3.51E+01	1.34E+02	4.74E+01	1.85E+02	1.19E+00	1.85E+02
258	4676.71	1167.86	Cs-134	1.43E+02	2.17E+01	1.07E+02	2.83E+01	1.85E+02	1.19E+00	1.85E+02
273	5466.97	1365.13	Cs-134	2.07E+02	1.42E+01	2.27E+02	1.63E+01	1.85E+02	1.19E+00	1.85E+02
279	5609.81	1401.5	Bi-214	4.21E+02	3.09E+01	3.97E+02	3.35E+01	4.21E+02	3.09E+01	3.97E+02
284	5850.8	1460.75	K-40	5.92E+02	1.20E+01	5.95E+02	1.21E+01	5.92E+02	1.20E+01	5.95E+02

No	±誤差(積算荷重平均)	検出限界放射能(Bq/kg)	ネット面積(カウス)	±誤差(カウス)	ネット面積(積算)	±誤差(積算)	検出限界カント	妨害カント(カウス)	±誤差(カウス)	妨害カント(積算)
107	1.21E+00	1.36E+02	298.38	53.56	319	63.19	186.4	----	----	----
127	1.21E+00	2.32E+01	1197.94	49.21	1209.52	59.87	150.78	----	----	----
128	1.21E+00	1.29E+01	2234.26	58.77	2213.11	68.12	152.35	----	----	----
137	1.21E+00	1.75E+00	13757.45	124.21	13802.95	124.78	130.71	----	----	----
157	2.26E+00	2.08E+00	24763.7	159.79	24608.8	164.25	150.64	----	----	5.30E+00
201	1.21E+00	1.61E+00	9493.26	100.26	9517.58	100.94	82.42	----	----	----
202	1.21E+00	1.60E+01	959.83	37.98	891.87	39.45	81.97	----	----	----
244	1.21E+00	1.43E+02	99.29	17.55	67	23.72	71.43	----	----	----
258	1.21E+00	8.35E+01	128.26	19.42	96.17	25.38	74.87	----	----	----
273	1.21E+00	3.38E+01	286.61	19.6	314	22.59	46.76	----	----	----
279	3.35E+01	7.32E+01	259.21	19.02	244.85	20.64	45.12	----	----	----
284	1.21E+01	1.33E+01	2700.36	54.86	2712.61	55.31	60.54	----	----	----

No	±誤差(積算)	検出効率	BGカント	±誤差	自己吸収	サム補正	採取中	測定まで	測定中
107	----	1.75E-02	----	----	8.87E-01	9.11E-01	1	1.13E+00	1.00E+00
127	----	1.46E-02	----	----	8.94E-01	8.81E-01	1	1.13E+00	1.00E+00
128	----	1.44E-02	----	----	8.95E-01	8.80E-01	1	1.13E+00	1.00E+00
137	----	1.44E-02	----	----	8.97E-01	9.24E-01	1	1.13E+00	1.00E+00
157	1.32E+00	1.43E-02	----	----	9.01E-01	1	1	1.01E+00	1.00E+00
201	----	1.13E-02	----	----	9.09E-01	9.26E-01	1	1.13E+00	1.00E+00
202	----	1.10E-02	----	----	9.09E-01	9.11E-01	1	1.13E+00	1.00E+00
244	----	9.41E-03	----	----	9.20E-01	9.77E-01	1	1.13E+00	1.00E+00
258	----	9.34E-03	----	----	9.24E-01	1.08E+00	1	1.13E+00	1.00E+00
273	----	8.57E-03	----	----	9.30E-01	1.13E+00	1	1.13E+00	1.00E+00
279	----	7.39E-03	----	----	9.31E-01	1	1	1.00E+00	1.00E+00
284	----	7.13E-03	7.25E+01	1.09E+01	9.33E-01	1	1	1	1

Lab 8

1.標準線源の高さ、重量、密度

高さ(mm)	重量(g)	密度(g/cm ³)
5.0	9.4	1.061
10	18.8	1.061
20	37.6	1.061
30	56.4	1.061
50	94.0	1.061

2.核種ごとの検出効率

核種名	エネルギー(eV)	放出比(%)	感度係数(cps/Bq)					検出効率(%)				
			5.0mm	10mm	20mm	30mm	50mm	5.0mm	10mm	20mm	30mm	50mm
Cd-109	88.03	3.79	0.616	0.539	0.461	0.394	0.306	16.247	14.222	12.177	10.390	8.080
Co- 57	122.06	85.6	14.497	12.633	10.754	9.091	7.014	16.936	14.758	12.563	10.621	8.193
Co- 57	136.47	11.10	1.755	1.506	1.290	1.089	0.824	15.810	13.567	11.620	9.812	7.424
Ge-139	165.85	79.90	10.549	9.244	7.995	6.785	5.254	13.203	11.569	10.006	8.492	6.576
Cr- 51	320.08	10.20	0.729	0.631	0.539	0.457	0.350	7.152	6.185	5.286	4.478	3.433
Sr- 85	514	99.27	4.384	3.793	3.198	2.688	2.078	4.416	3.821	3.221	2.708	2.093
Cs-137	661.64	85.00	2.991	2.557	2.188	1.818	1.394	3.519	3.008	2.574	2.139	1.640
Mn- 54	834.83	100	2.832	2.425	2.057	1.726	1.334	2.832	2.425	2.057	1.726	1.334
Y - 88	898.02	91.29	2.483	2.093	1.770	1.480	1.126	2.720	2.292	1.939	1.621	1.234
Co- 60	1173.21	100	2.045	1.753	1.470	1.236	0.926	2.045	1.753	1.470	1.236	0.926
Co- 60	1332.47	100	1.804	1.559	1.303	1.079	0.820	1.804	1.559	1.303	1.079	0.820
Y - 88	1836.13	99.34	1.349	1.129	0.959	0.795	0.590	1.358	1.137	0.965	0.800	0.594

3.自己吸収計算方法

自己吸収のあるピーク効率を、 ε_s 、自己吸収のないピーク効率を ε とすると、

ε_s と ε の関係式は

$$\varepsilon_s = \varepsilon \times f_{\text{abs}}$$

となる。 f_{abs} は自己吸収係数であり、以下の式により求める。

$$f_{\text{abs}} = \frac{\int \text{Eff}(x) \cdot \exp(-\mu x) dx}{\int \text{Eff}(x) dx}$$

ここに、 $\text{Eff}(x)$: 試料の底面から距離 x における微厚な円板 dx の効率で、 $\text{Eff} = A / (D+x)^2$

A : 定数(先の計算式では分母子により相殺される)

D : 検出器の実効中心から試料の底面までの距離(cm)

μ : 着目エネルギーにおける試料の線減弱係数(/cm)

線減弱係数 μ については、以下の式によって求める。

$$\mu = \rho \times \{0.6023 / M (2 \times \mu_{\text{Al}} + 3 \times \mu_{\text{O}})\}$$

μ : 線減衰係数

ρ : 試料密度

M: 試料の原子量(アルミナ=101.96)

μ_{Al} : アルミニウム原子の全相互作用断面積

μ_{O} : 酸素原子の全相互作用断面積

4.使用ソフト名

Spectrum Explorer及びGamma Explorer(キャンベラジャパン株式会社)

Lab 8

不確かさの算出については、以下の1～5の不確かさの評価における要因ごとの基本的な考え方を参考に算出した。

1.天秤目盛不確かさの評価

既知の値を利用したため評価項目から除外した

2.定規目盛不確かさの評価

既知の値を利用したため評価項目から除外した

3.標準線源不確かさの評価

標準体積線源のJCSS校正証明書における相対拡張不確かさから、下記評価方法にしたがい相対標準不確かさを算出した。

< 標準線源不確かさの評価方法 >

種類	相対拡張不確かさ (%)	評価モデル	不確かさ (%)	相対標準 不確かさ
標準線源	V (包含係数 : $k=2$)	校正証明書 (標準偏差)	V/2 (包含係数 : $k=1$)	(V/2)/100

例) 相対拡張不確かさV=4.7%の場合 : 相対標準不確かさ = $4.7/200 = 0.0235$

注1) ^{134}Cs の不確かさ評価においては、便宜上 ^{137}Cs の相対拡張不確かさを採用した

注2) ^{40}K の不確かさ評価においては、便宜上 ^{60}Co の相対拡張不確かさを採用した

4.効率校正不確かさの評価

効率校正に用いた標準体積線源の測定データより、下記評価方法により相対標準不確かさを算出した。

種類	効率校正に用いた データの計数率 (Bq)	評価モデル	計数誤差 (Bq)	相対標準 不確かさ
効率校正	R	実測データの 標準偏差	σ	σ/R

例) ^{137}Cs の計数率=400 (Bq)、計数誤差=2.0 (Bq)の場合 : 相対標準不確かさ = $2.0/400 = 0.005$

注1) ^{134}Cs の不確かさ評価においては、便宜上 ^{137}Cs のデータを採用した。

注2) ^{40}K の不確かさ評価においては、便宜上 ^{60}Co のデータを採用した。

5. 計数誤差の評価

測定結果における放射能濃度と不確かさから、下記評価方法により相対標準不確かさを算出した。

< 計数誤差の評価方法 >

種類	放射能濃度 (Bq/kg)	評価モデル	不確かさ (Bq/kg)	相対標準 不確かさ
標準線源	$R \pm \sigma$	計数誤差 (標準偏差)	σ	σ / R

例) 放射能濃度が $100 \pm 5.0 \text{ Bq/kg}$ の場合 : 相対標準不確かさ = $5.0 / 100 = 0.050$

6. 不確かさの合成

上記の1~5で算出した要因ごとの不確かさを下記の方法により合成し、合成相対標準不確かさおよび拡張不確かさを求めた。

< 不確かさの合成方法 >

要因ごとの相対標準 不確かさ					合成相対標準不確かさ U ($k=1$)	拡張不確かさ ($k=2$)
U_1	U_2	U_3	U_4	U_5	$\sqrt{U_1^2 + U_2^2 + U_3^2 + U_4^2 + U_5^2}$	$2 \times U$

Lab 11

別表1 校正に用いた標準線源
高さ5mm

核種	放射能 [*] (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm ³)
Cd-109	4.170×10^2	5.7	5.08	9.4	1.002
Co-57	2.759×10^1	4.8			
Ce-139	2.776×10^1	4.8			
Cr-51	6.94×10^2	4.9			
Sr-85	3.467×10^1	4.8			
Cs-137	3.450×10^1	4.7			
Mn-54	3.766×10^1	4.7			
Y-88	4.158×10^1	4.8			
Co-60	4.453×10^1	4.7			

高さ10mm

核種	放射能 [*] (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm ³)
Cd-109	8.34×10^2	5.6	10.28	18.8	1.001
Co-57	5.518×10^1	4.7			
Ce-139	5.553×10^1	4.7			
Cr-51	1.388×10^3	4.8			
Sr-85	6.93×10^1	4.7			
Cs-137	6.90×10^1	4.6			
Mn-54	7.53×10^1	4.6			
Y-88	8.32×10^1	4.7			
Co-60	8.91×10^1	4.6			

高さ20mm

核種	放射能 [*] (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm ³)
Cd-109	1.668×10^3	5.6	20.65	37.6	1.001
Co-57	1.104×10^2	4.6			
Ce-139	1.111×10^2	4.7			
Cr-51	2.776×10^3	4.8			
Sr-85	1.387×10^2	4.7			
Cs-137	1.380×10^2	4.6			
Mn-54	1.506×10^2	4.6			
Y-88	1.663×10^2	4.7			
Co-60	1.781×10^2	4.6			

高さ30mm

核種	放射能 [*] (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm ³)
Cd-109	2.502×10^3	5.6	31.05	56.4	1.001
Co-57	1.655×10^2	4.6			
Ce-139	1.666×10^2	4.7			
Cr-51	4.164×10^3	4.8			
Sr-85	2.080×10^2	4.7			
Cs-137	2.070×10^2	4.6			
Mn-54	2.260×10^2	4.6			
Y-88	2.495×10^2	4.7			
Co-60	2.672×10^2	4.6			

高さ50mm

核種	放射能※ (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm ³)
Cd-109	4.170×10^3	5.6	51.80	94.0	1.001
Co-57	2.759×10^2	4.6			
Ce-139	2.776×10^2	4.7			
Cr-51	6.94×10^3	4.8			
Sr-85	3.467×10^2	4.7			
Cs-137	3.450×10^2	4.6			
Mn-54	3.766×10^2	4.6			
Y-88	4.158×10^2	4.7			
Co-60	4.453×10^2	4.6			

※ 放射能基準日 : 2013年3月1日 12時00分

Lab 11

別表2 効率校正に用いた核種および検出効率

核種	ピークエネルギー (keV)	検出効率				
		5mm	10mm	20mm	30mm	50mm
Cd-109	88.03	1.924492E-01	1.738655E-01	1.437436E-01	1.221906E-01	9.160330E-02
Co-57	122.06	1.744797E-01	1.563458E-01	1.297860E-01	1.095598E-01	8.453304E-02
Ce-139	165.85	1.281078E-01	1.170391E-01	9.910940E-02	8.539072E-02	6.712675E-02
Cr-51	320.11	8.409635E-02	7.568131E-02	6.305284E-02	5.344748E-02	4.169105E-02
Sr-85	514.00	5.750492E-02	5.185898E-02	4.333906E-02	3.697749E-02	2.926135E-02
Cs-137	661.65	4.836597E-02	4.354695E-02	3.664734E-02	3.102503E-02	2.446361E-02
Mn-54	834.83	4.081749E-02	3.680877E-02	3.093735E-02	2.622831E-02	2.052069E-02
Y-88	898.03	3.906507E-02	3.508205E-02	2.946370E-02	2.507333E-02	1.960881E-02
Co-60	1173.21	3.251129E-02	2.886130E-02	2.404333E-02	2.040778E-02	1.586132E-02
Co-60	1332.47	2.956804E-02	2.653931E-02	2.187561E-02	1.859462E-02	1.461974E-02
Y-88	1836.00	2.209875E-02	2.014441E-02	1.677022E-02	1.425686E-02	1.123512E-02

Lab 11

不確かさの算出は下表の通り。

不確かさの要因	合成不確かさ		
	Cs-134	Cs-137	K-40
前処理	0.5740%	0.6038%	1.1719%
秤量	0.06750%	0.06750%	0.06750%
厚さ	0.570%	0.600%	1.170%
均質性	考慮せず	考慮せず	考慮せず
校正	2.74%	2.75%	2.93%
厚さ	0.570%	0.600%	1.170%
校正用線源	2.40%	2.40%	2.40%
幾何条件	考慮せず	考慮せず	考慮せず
不感時間	考慮せず	考慮せず	考慮せず
測定系の変動	考慮せず	考慮せず	考慮せず
計数誤差	0.581%	0.581%	0.581%
放出比	0.588%	0.588%	0.588%
校正式のフィッティング	0.871%	0.871%	0.871%
サム効果補正	考慮せず	考慮せず	考慮せず
自己吸収補正	考慮せず	考慮せず	考慮せず
減衰補正	0.0000%	0.0000%	0.0000%
試料測定	0.98%	0.88%	2.25%
幾何条件	考慮せず	考慮せず	考慮せず
不感時間	考慮せず	考慮せず	考慮せず
測定系の変動	考慮せず	考慮せず	考慮せず
計数誤差	0.92%	0.65%	1.89%
放出比	0.328%	0.588%	1.22%
サム効果補正	考慮せず	考慮せず	考慮せず
自己吸収補正	考慮せず	考慮せず	考慮せず
減衰補正	0.0001%	0.0000%	0.0000%
合成標準不確かさ	2.97%	2.95%	3.87%
拡張不確かさ (k=2)	5.9%	5.9%	7.7%

Lab 14

・Cs134, Cs137溶液の放射能濃度決定に使用した点線源

①Eu152線源(JAERI Eu427 A-7):不確かさ $\pm 4\%$ (3σ)

②混合核種 γ 線源(DKD製 GF-ML-M-7601 S/N: 1560-47):不確かさ $\pm 2.9\%$ (2σ)

(Am241, Cd109, Co57, Ce139, Hg203, Sn113, Sr85, Cs137, Y88, Co60を解析に使用。)

・Ge検出器表面から77mm位置に点線源を置いて各 γ 線に対する検出効率を測定し

それらの値を指数関数の多項式で最小自乗フィットして検出効率曲線を作成。

検出効率曲線の推定不確かさは、実験値のばらつき具合から $\pm 2.0\%$ (1σ)と推定。

・Eu152, Co57, Ce139, Y88, Co60及びCs134の各 γ 線に対しては、カスケードサムによる計数損失を計算し補正。

計算に使用する全効率、積分法で計算したエネルギー依存曲線の絶対値をCs137で測定した実験値に合うように調整したものを使用。

・K40線源の放射能強度の不確かさは $\pm 1.1\%$ (1σ)。K40の同位体比の不確かさが主因。

・大豆試料中の放射能強度は、自作した標準線源との間で γ 線計数率を直接比較することで算出。

よって、体積線源に対する検出効率曲線を求める必要はなく、その不確かさは加算されない。

Cs134に対するカスケードサムの補正も、同じ形状の標準線源との間で γ 線計数率を直接比較しているのでキャンセルされ、不確かさは加算されない。

ただし自己吸収の違いに起因する効率の違いによって試料間でカスケードサムの補正量が僅かに異なるため、その違いを計算し(0.41-0.65%)、補正。

この補正の不確かさは、0.41-0.65%の15%(0.06-0.1%)と推定。

・大豆試料、Cs溶液、KOH溶液の密度は、それぞれ約0.75, 1.0, 1.16g/cm³。

それぞれの試料に対して γ 線吸収係数を実測し、自己吸収割合を積分法で計算。

自己吸収の割合は各試料間で3.4-4.0%程度異なり、この違いを補正。

補正の不確かさは、この3.4-4.0%の5%(約0.2%)と推定。

・これらの不確かさ(1σ)と計数誤差(1σ)を誤差の伝播式を用いて合成した値(1σ)を2倍して $k=2$ の拡張不確かさとした。

Lab 16

不確かさの算出根拠

計算シート(1)の拡張不確かさ(k=2)は以下の①～③の式で求められる。

①放射能濃度及び誤差から算出した相対標準不確かさ(%) = $\text{誤差(Bq/kg)} \div \text{放射能濃度(Bq/kg)} \times 100$

②標準線源のCs137の不確かさを合成して得られた最終的な相対標準不確かさ(%) = $\sqrt{(\text{①})^2 + (\text{標準線源のCs137の相対拡張不確かさ} \div 2)^2}$

③拡張不確かさ(k=2)(Bq/kg) = $\text{放射能濃度(Bq/kg)} \times \text{②} / 100 \times 2$

計算例

	エネルギー	放射能濃度(Bq/kg)	誤差(Bq/kg)	放射能濃度及び誤差から算出した相対標準不確かさ(%)	標準線源のCs137の相対拡張不確かさ(%)
Cs-134	604.66keV	199.0	2.245	$2.245 \div 199.0 \times 100 = 1.12$	4.7

相対標準不確かさ(標準線源の不確かさを加味した値)(%) $\sqrt{(1.12^2 + (4.7/2)^2)} = 2.60$

拡張不確かさ(k=2) (Bq/kg) $199.0 \times 2.60 / 100 \times 2 = 10.3$

Lab 17

大豆 (5cm : スペース_U-8)

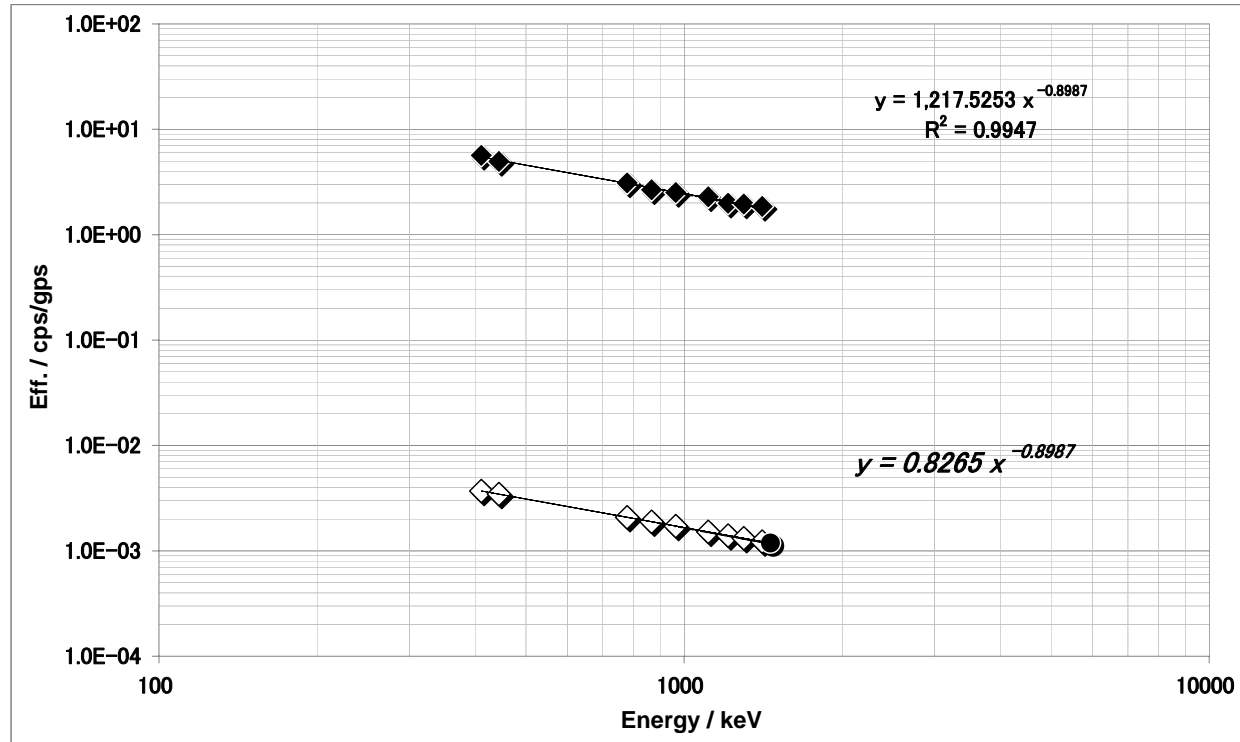
Nuclide	Sample weight / kg	測定時間 / sec	Count	1σ	cps	1σ	Activity / Bq	1σ	Activity (corrected) / Bq	1σ	Activity conc. / Bq kg ⁻¹	1σ ¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs / Bq kg ⁻¹
Cs-134 (605 keV)	0.075	113,468	3,502	59	3.09E-02	5.22E-04	12.1	0.2	13.6	0.22	<u>182</u>	<u>3</u>
Cs-137 (662 keV)	0.075	113,468	5,770	76	5.09E-02	6.69E-04	24.8	0.3	25.0	0.33	<u>333</u>	<u>4</u>
K-40 (1461 keV)	0.075	113,468	688	26	6.06E-03	2.31E-04	47.9	1.8	47.9	1.8	<u>638</u>	<u>24</u>

⁴⁰K

サンプル	Energy / keV	高さ (cm)	γ [%]	KCl 正味の重量 (g)	Activity (Bq)	gps	cps (net)	eff. (1461 keV)	a	b
KCl (スペース_U-8)	1460.8	5.0	10.7	111.5	1813	194	0.230	1.18E-03	-0.8987	0.8265

¹⁵²Eu (スペース_U-8)

Live time	keV	cts	err (1σ)	cps	err (1σ)	γ [%]	dps	err (1σ)	err (1σ) / %	Eff. (D_U-8)
170,186	411.13	21,528	147	0.13	0.00	2.24	5.65	0.04	0.68	<u>3.70E-03</u>
170,186	443.965	26,367	162	0.1549	0.0010	3.13	4.958	0.031	0.62	<u>3.45E-03</u>
170,186	778.904	68,469	262	0.4023	0.0015	12.97	3.101	0.012	0.38	<u>2.08E-03</u>
170,186	867.391	19,153	138	0.1125	0.0008	4.21	2.671	0.019	0.72	<u>1.89E-03</u>
170,186	964.055	62,529	250	0.3674	0.0015	14.63	2.511	0.010	0.40	<u>1.72E-03</u>
170,186	1112.088	52,668	229	0.3095	0.0013	13.54	2.286	0.010	0.44	<u>1.51E-03</u>
170,186	1212.970	4,778	69	0.0281	0.0004	1.41	1.988	0.029	1.45	<u>1.40E-03</u>
170,186	1299.152	5,410	74	0.0318	0.0004	1.63	1.955	0.027	1.36	<u>1.32E-03</u>
170,186	1408.022	65,887	257	0.3871	0.0015	20.85	1.857	0.007	0.39	<u>1.22E-03</u>



添付資料 5 : Cs-134 と Cs-137 測定値の関係について

Cs-134 と Cs-137 の関係を 95%信頼楕円とともに図 5-1 に表示した(楕円は ISO 13528 に述べられたユーデン図の作成方法による)。標準線源について日本アイソトープ協会の核種混合アルミナ放射能標準ガンマ体積線源を使用した試験所を赤マークで示した。Lab 4 は形状依存性用には Cs-137 水容積線源を使用しているので区別して表示した。Cs-134、Eu-152 の標準線源を使用した試験所、玄米標準物質を使用した試験所は別のマークで示した。

比較のために、低濃度大豆の共同実験結果を図 5-2 に示した。

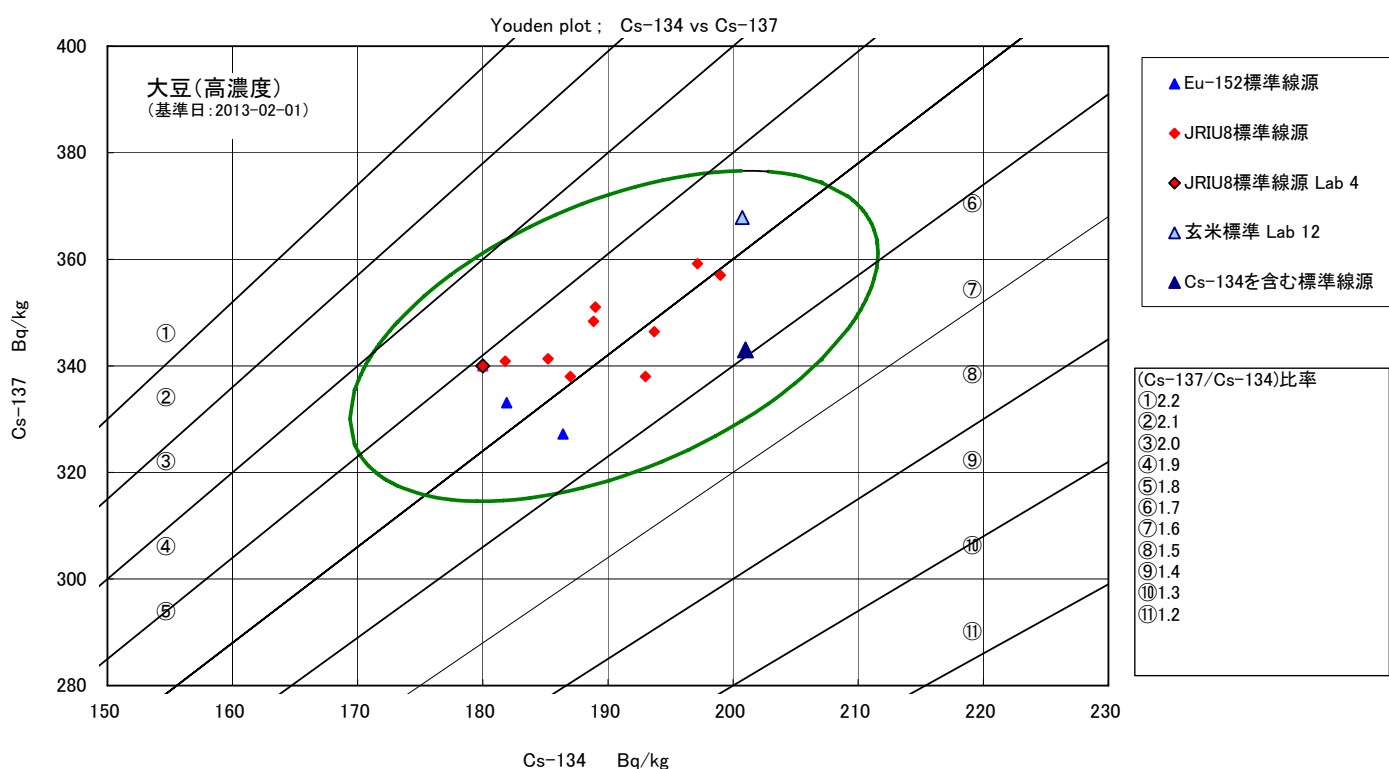


図 5-1 Cs-134 と Cs-137 測定値の比較 (大豆高濃度)

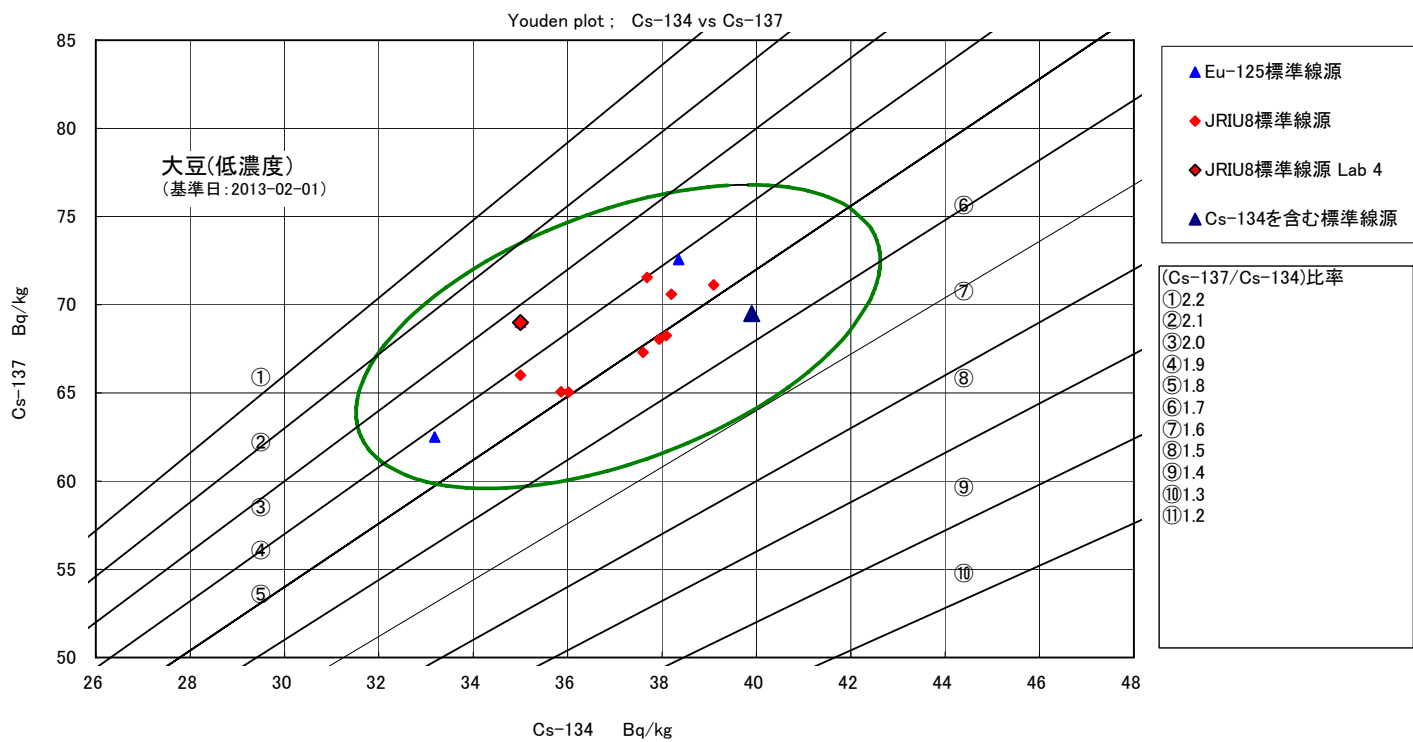
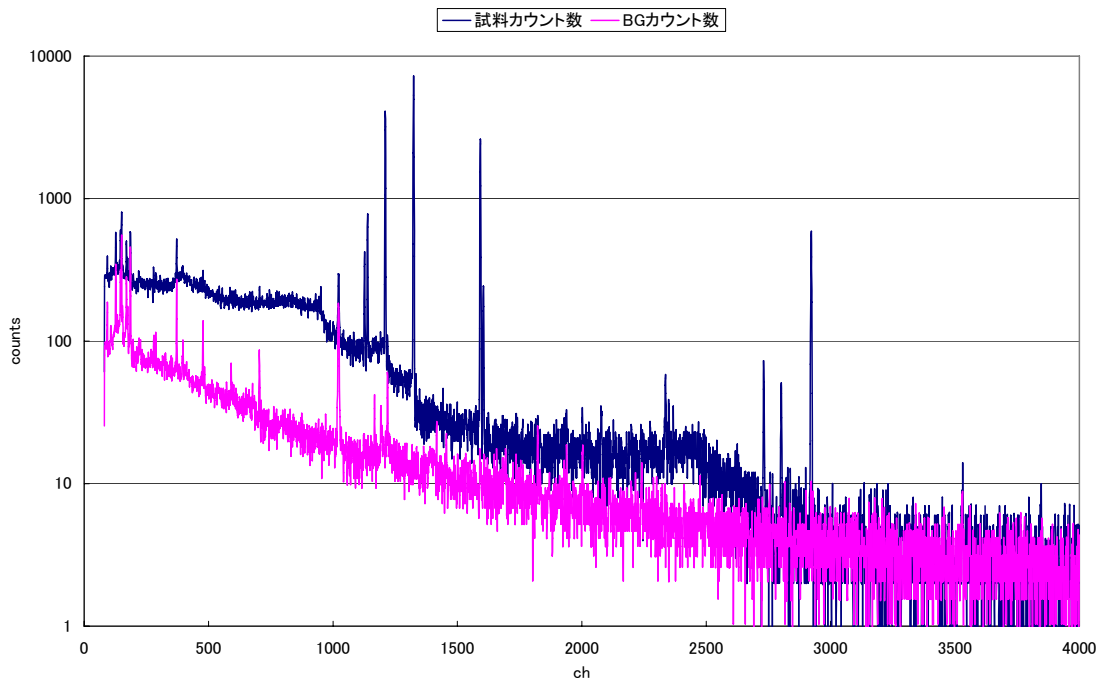


図 5-2 Cs-134 と Cs-137 測定値の比較 (大豆低濃度)

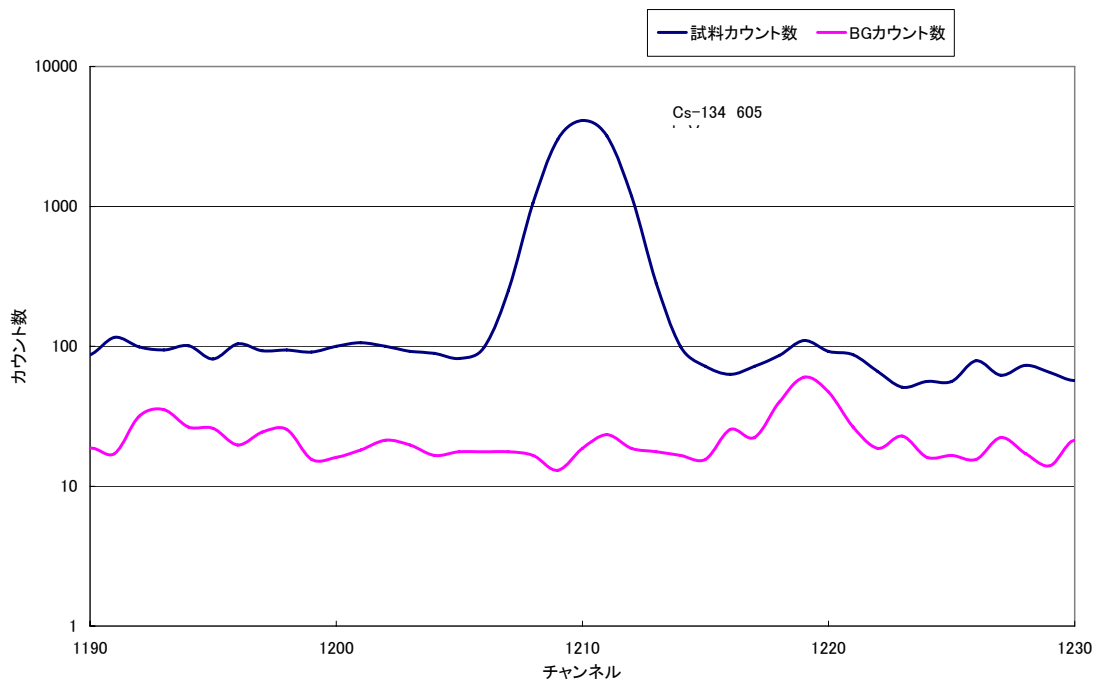
添付資料 6：報告されたγ線スペクトル例

バックグラウンドを含めた全体のスペクトルと Cs-134, Cs-137, K-40 の部分を拡大したいくつかの例を示す。

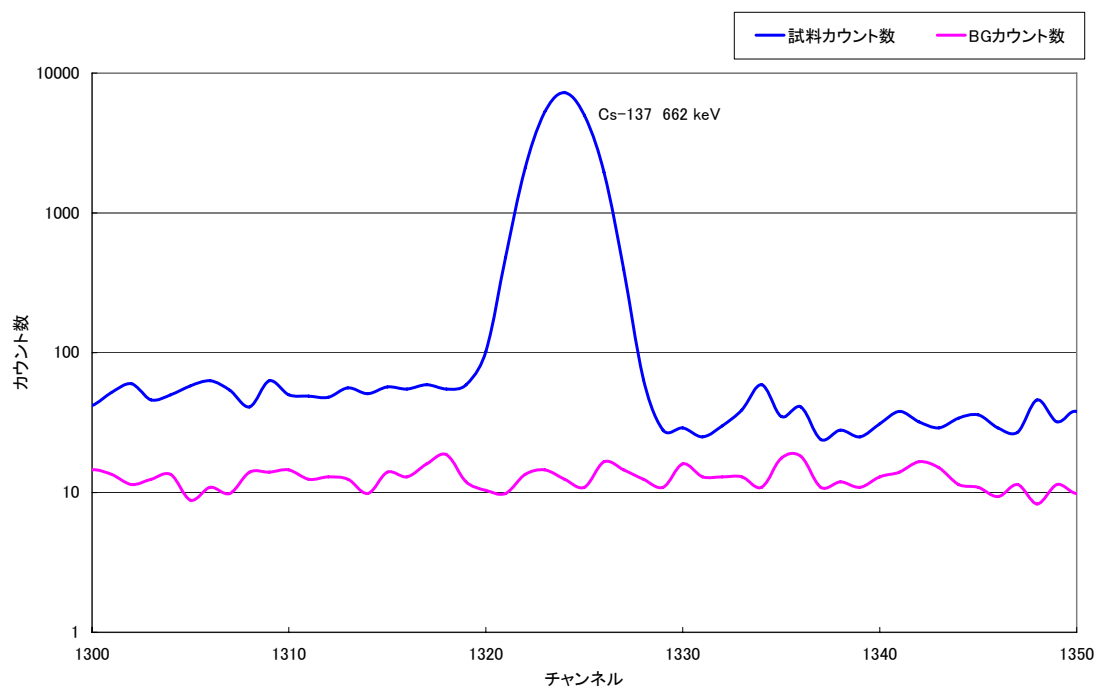
Lab 4：測定時間 試料あり：76 128 s 試料なし：140 024 s (76 128 s に換算表示)



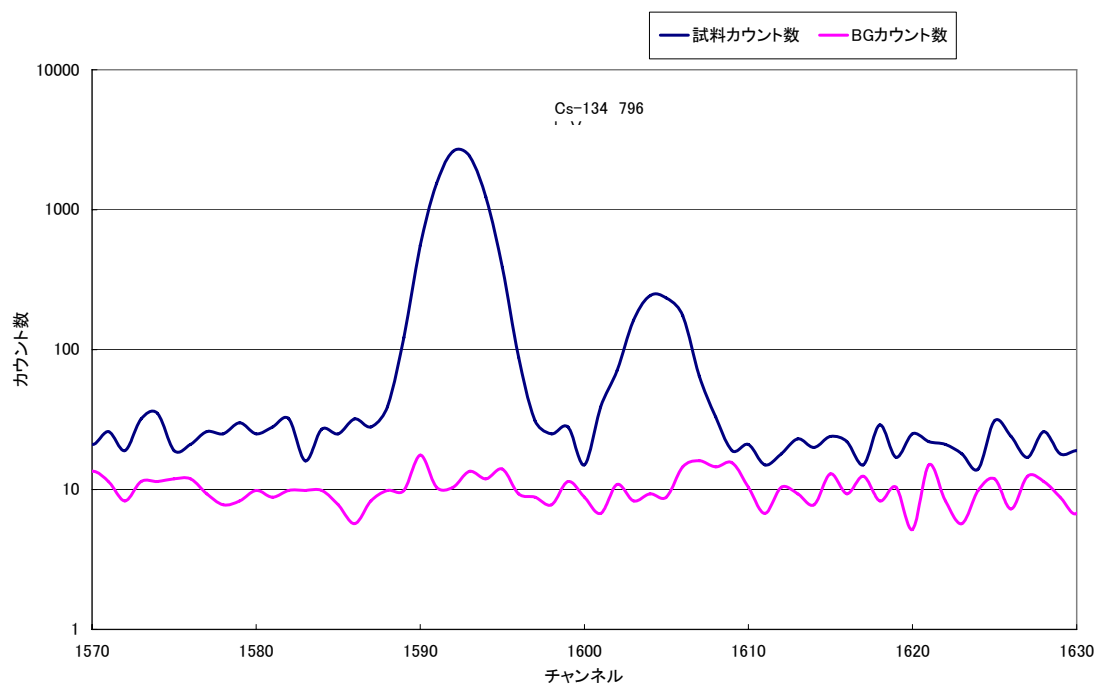
Cs-134 605 keV



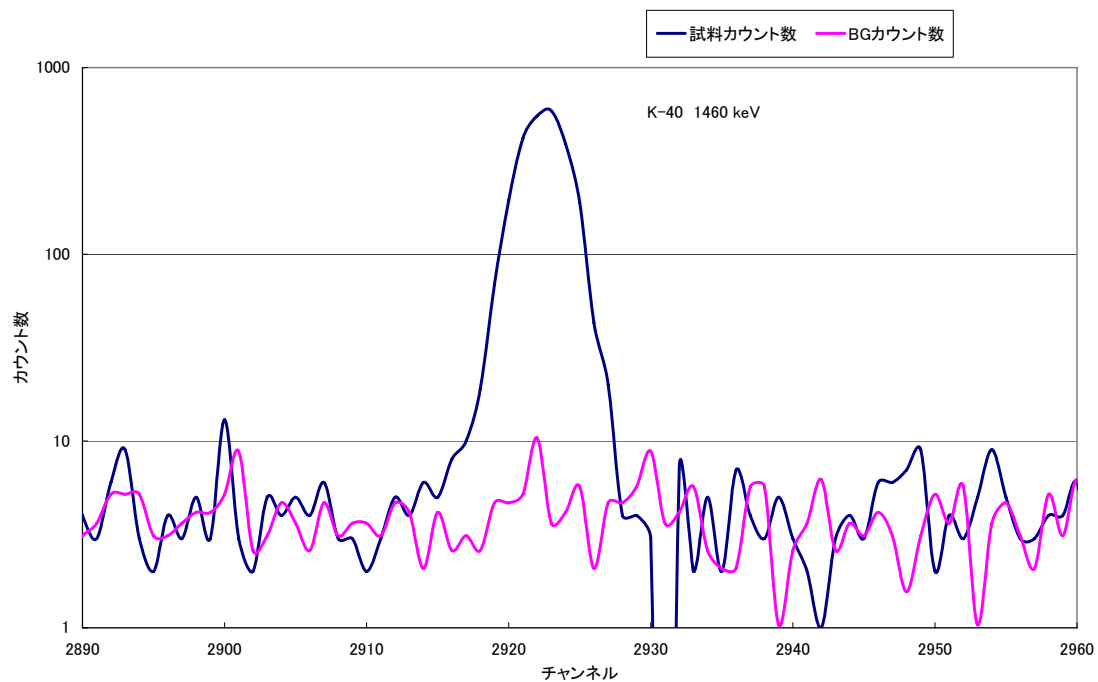
Cs-137 662 keV



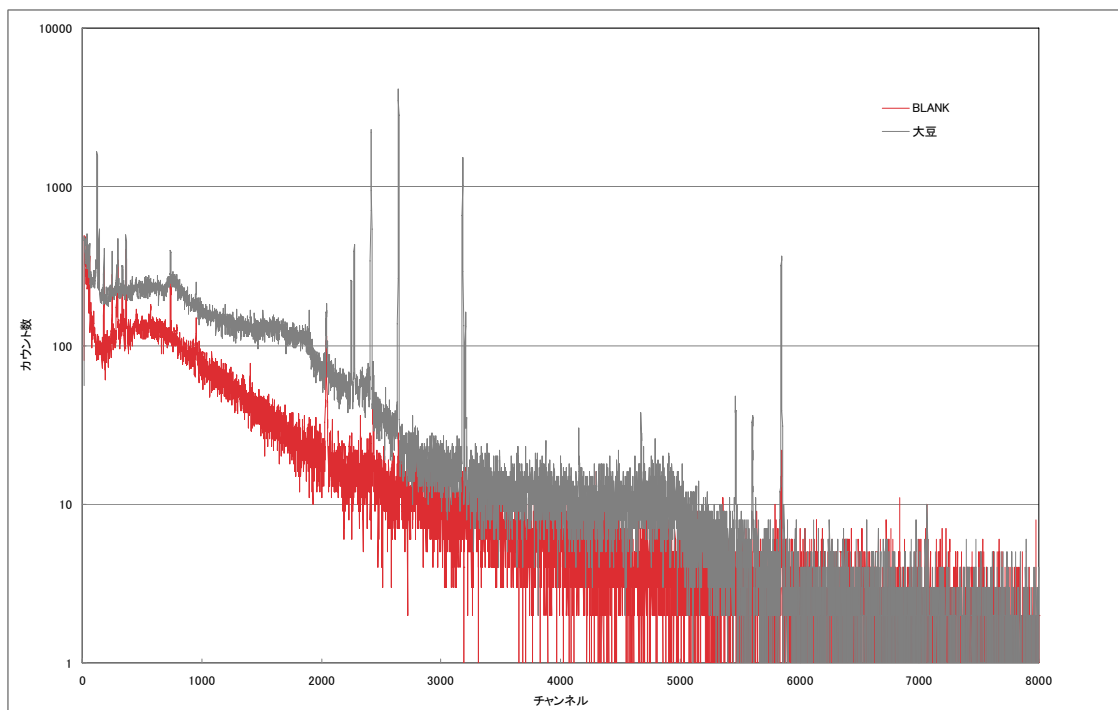
Cs-134 796 keV



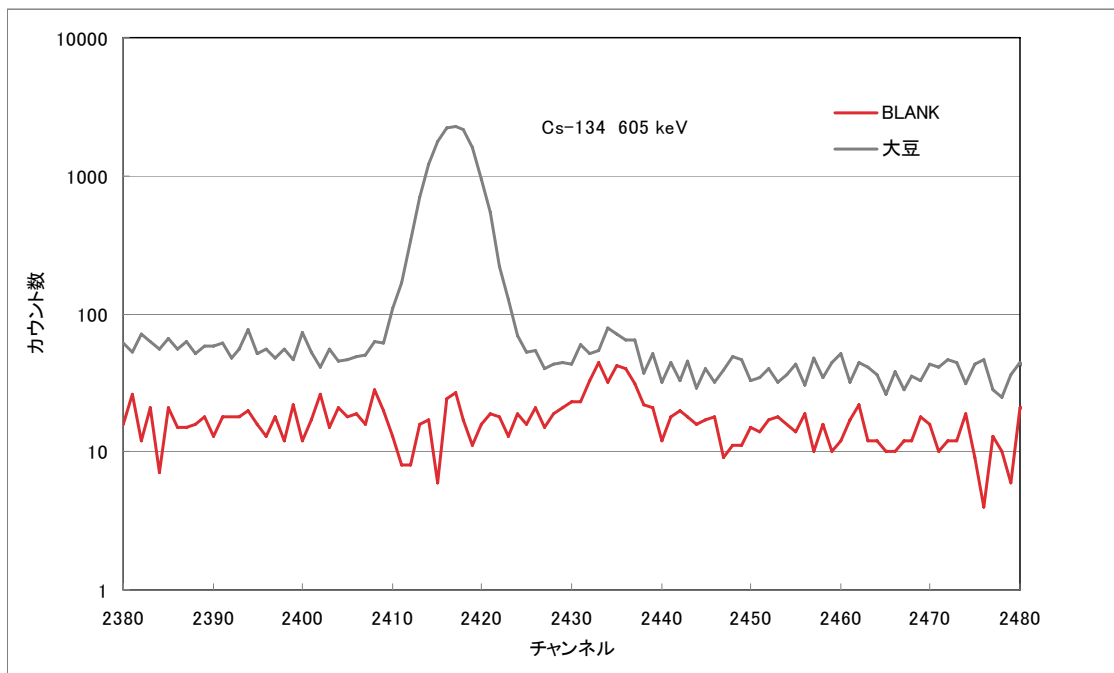
K-40 1460 keV



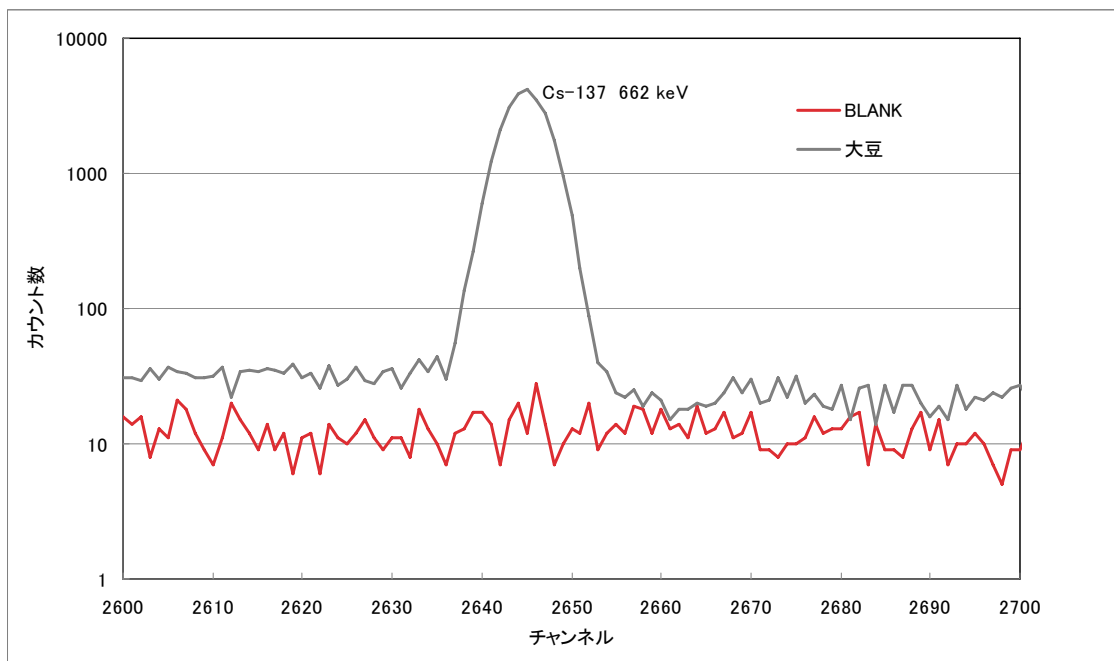
Lab 6 測定時間 試料あり : 80 000 s 試料なし : 80 000 s



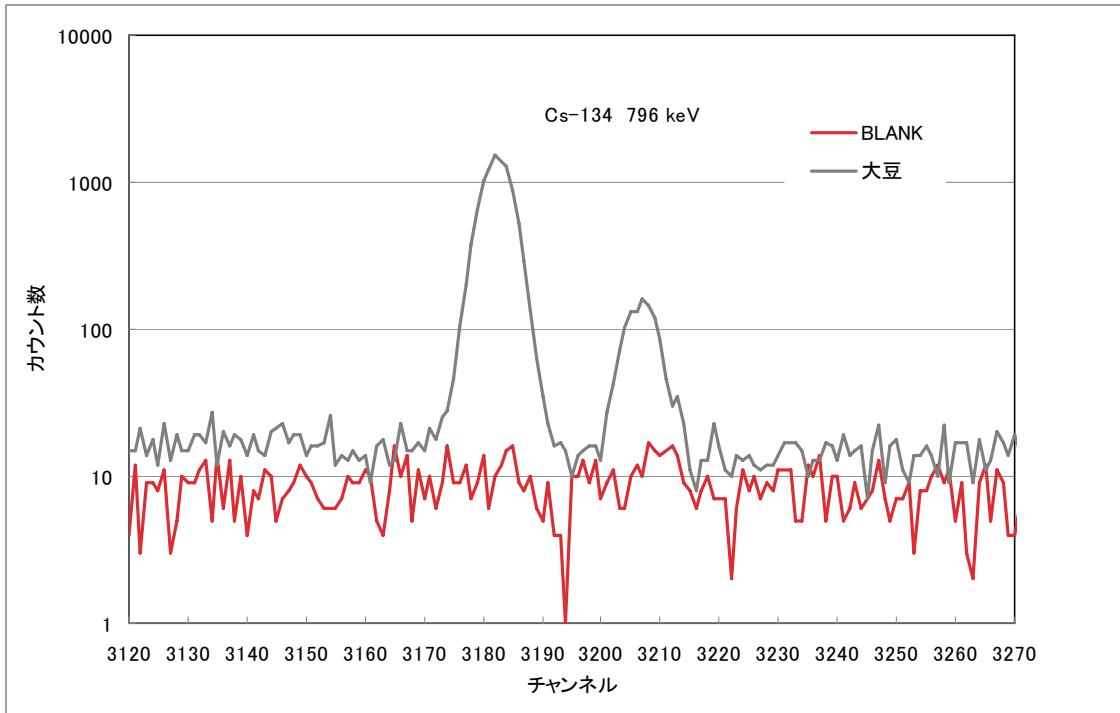
Cs-134 605 keV



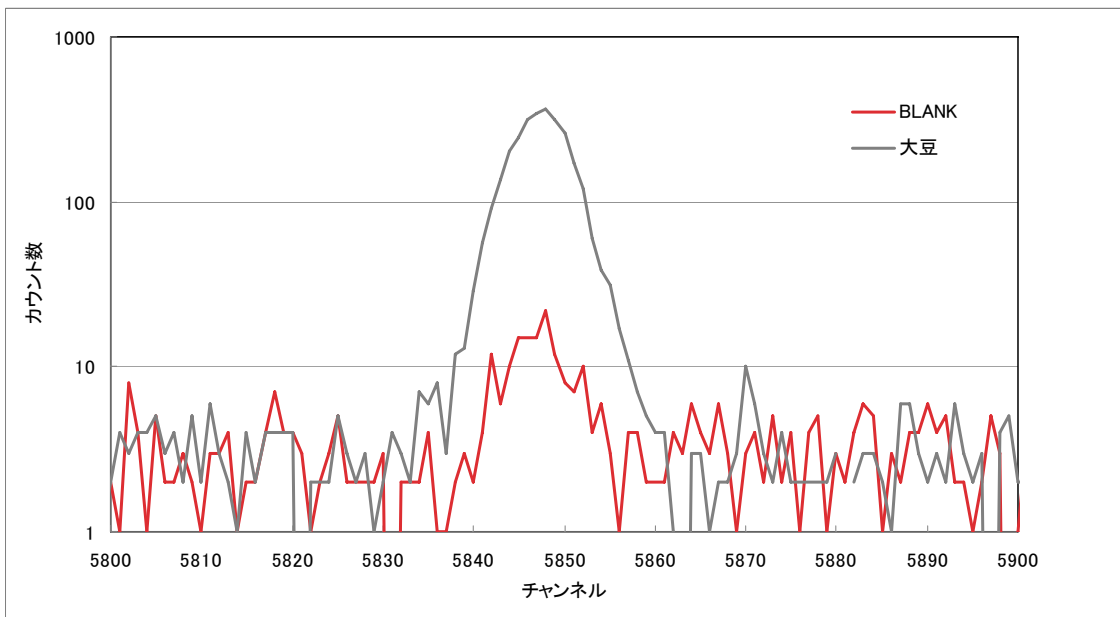
Cs-137 662 keV



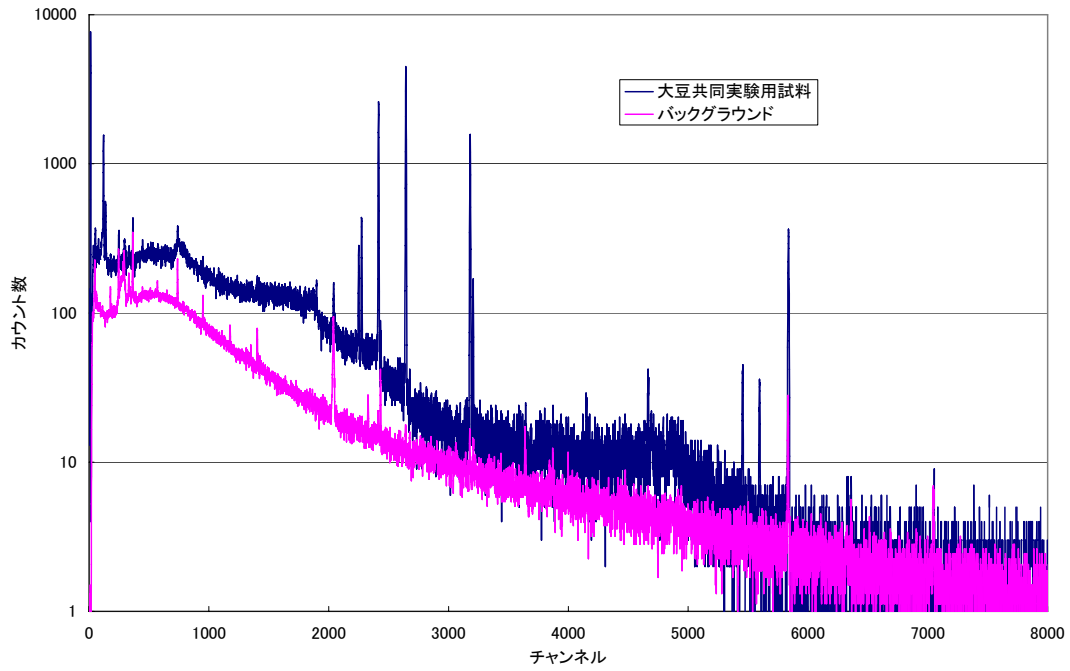
Cs-134 796 keV



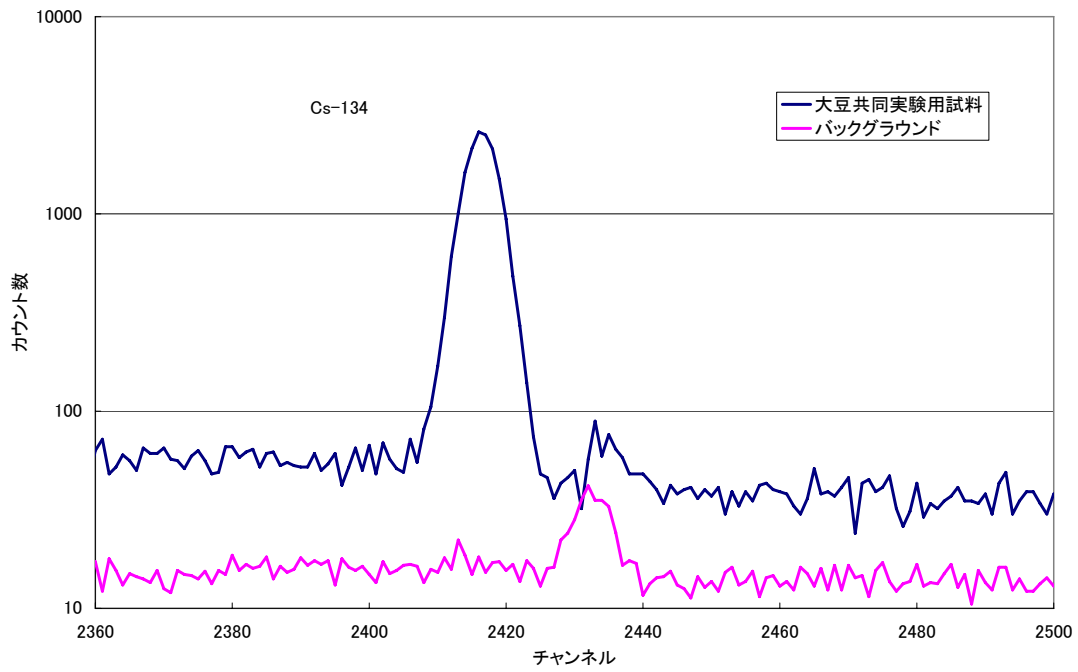
K-40 1460 keV



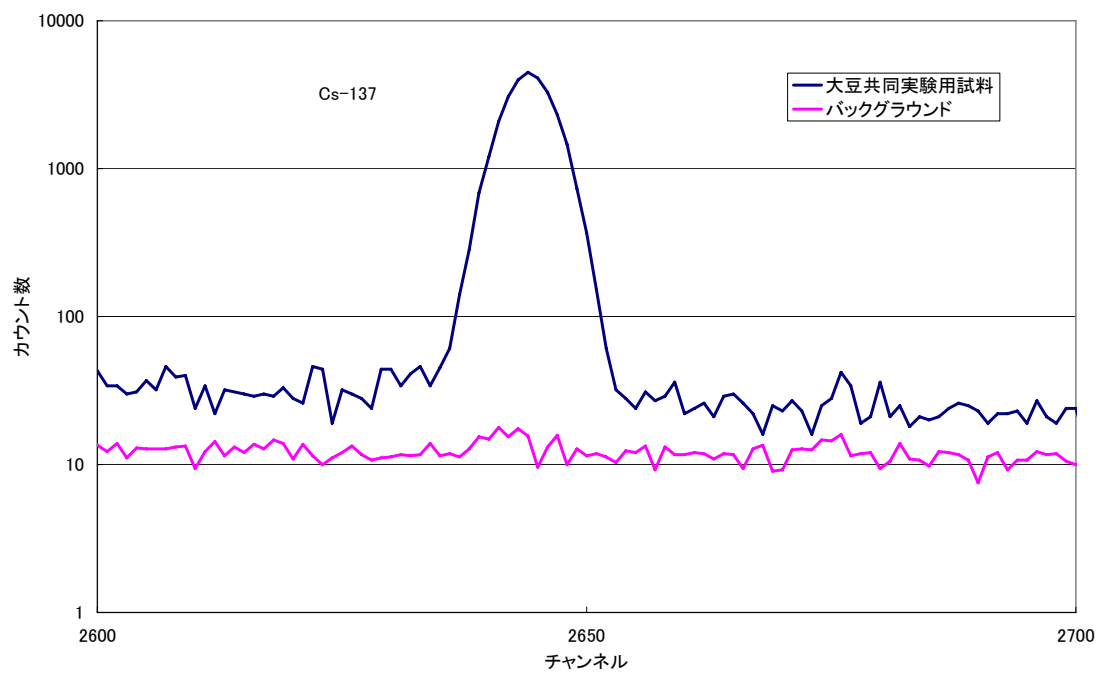
Lab 15 測定時間 試料あり : 82 460 s
試料なし : 439 113 s (82 460s に換算表示)



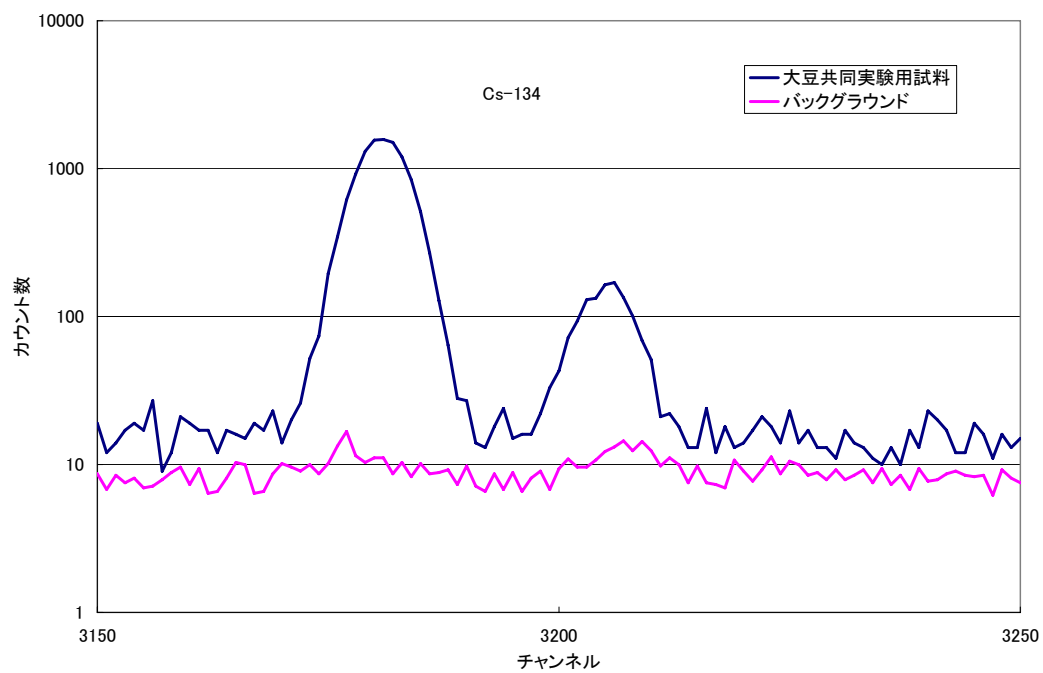
Cs-134 605 keV



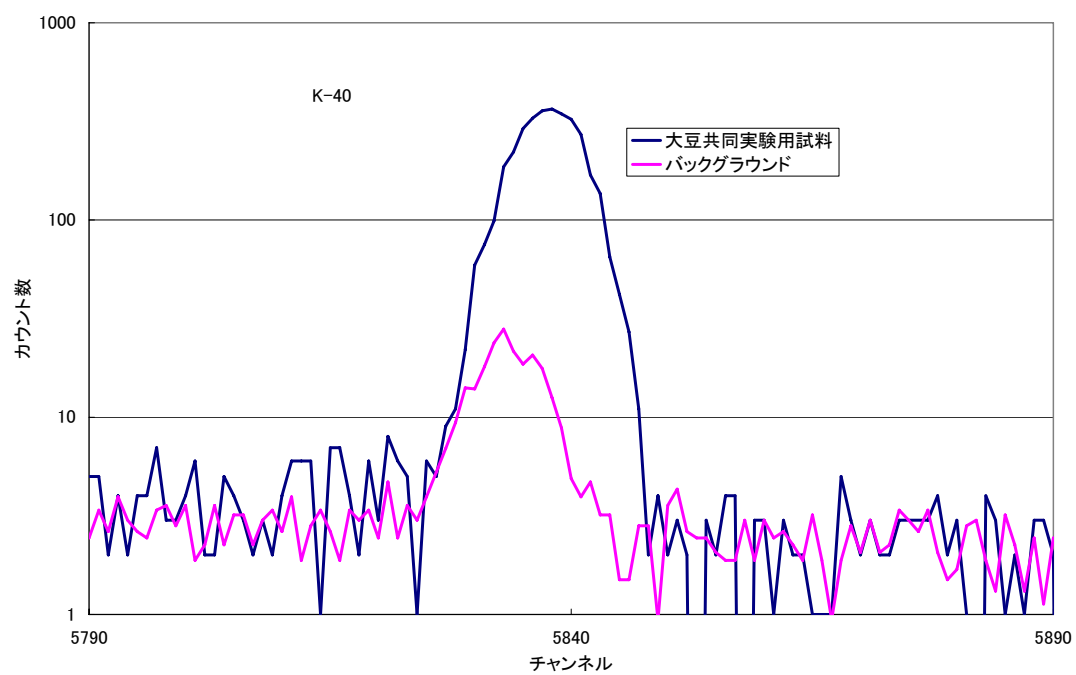
Cs-137 662 keV



Cs-134 796 keV



K-40 1460 keV



The Japan Society for Analytical Chemistry

日本分析化学会

認 証 書

Certified Reference Material

JSAC 0764 (高濃度, U8 容器)
 JSAC 0765 (高濃度, 100 mL 容器)
 JSAC 0766 (高濃度, 1 L 容器)

大豆認証標準物質 (粉末状, 高濃度)
放射能分析用

本標準物質は、セシウム 134 (^{134}Cs)、セシウム 137 (^{137}Cs)、カリウム 40 (^{40}K) の放射能濃度が認証された粉末状の大豆試料で、JIS Q 0035 (ISO Guide 35) に規定される共同実験方式を用いて認証値を決定したものである。

γ 線スペクトロメトリーによる放射能分析の妥当性確認、測定器の精度管理などに用いることができる。

認証値 基準日時 (日本時間) 2013 年 2 月 1 日 0 時 0 分 0 秒

標準物質 番号	成分	放射能濃度 ^{注1)} Bq/kg	拡張不確かさ ($k=2$) ^{注2)} Bq/kg	室間再現 標準偏差 (SD) ^{注3)} Bq/kg
JSAC 0764 JSAC 0765 JSAC 0766	^{134}Cs	190	11	7.2
	^{137}Cs	345	19	11
	^{40}K	613	40	30

注1) 放射能濃度は、水分を含んだ試料質量をもとに計算している。

注2) 拡張不確かさは、合成標準不確かさに包含係数 $k=2$ を乗じたもので、信頼の水準約 95 % に相当する。

注3) 室間再現標準偏差は、認証値決定のために共同実験に参加した試験所の測定値の平均値を基準として求めた標準偏差である。

使用方法と使用上の注意

1. JSAC 0764 は、試料 75 g を U8 容器(内径 48 mm)に充てんした後、中蓋を入れ、上蓋で固定されている。容器を故意に振動・転倒させて試料を攪拌することを避ける。

2. U8 容器に充てんした試料の高さは 50 mm であるが、必要に応じて高さを測定することを推奨する。
3. JSAC 0765 及び JSAC 0766 は適切な放射能測定用の容器に詰めかえて用いる。採取量は 75 g 以上とし、測定容器に詰めた試料の質量を精確に測定し、記録する。
4. 本標準物質は、放射性核種を含むため取扱いに注意し、廃棄の際には関連法規を遵守する。

保管上の注意及び認証値の安定性

本標準物質は、冷暗所に保管する。

日本分析化学会では定期的に安定性試験を行い、その結果から有効保存期間及び有効保存期限を決めて、学会の会誌又はウェブサイト等に公表するので、参照すること。

標準物質の調製方法及び均質性評価

放射能汚染のある大豆試料を、105 °C、24 時間乾燥、フードミルで粉碎、篩分け、混合の後、3 種類の容器に小分けした。充てんした試料の質量は、U8 容器 75 g、100 mL 容器 80 g、1 L 容器 800 g である。最後に、20 kGy の ⁶⁰Co γ 線照射による滅菌を行い候補標準物質とした。

均質性試験は 12 試料の放射能濃度の測定により実施し、評価された均質性を合成標準不確かさに含めた。

135 °C、2 時間の乾燥による試料の質量の減少を測定したところ、約 0.9 %の質量の減少が認められた。

認証値の決定方法

認証値は、Ge 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリー^{文献1)}による 14 試験所の共同実験結果を JIS Q 0035 の手順に沿って統計的に処理して得られたものである。U8 容器に充てんした 252 個の試料から等間隔に 14 個を抜き取り、参加試験所に配付した。認証値は 14 の報告値の平均値であり（棄却したデータはなかった）、拡張不確かさは、共同実験の平均値の標準不確かさ、検出効率校正の標準不確かさ、自己吸収補正に含まれるかたより、均質性試験から推定された標準不確かさを合成して包含係数を乗じて算出した。また、室間再現標準偏差 (*SD*、報告値の標準偏差に等しい) を記載した。

共同実験の実施期間

共同実験は 2013 年 6 月から 7 月の間に行われた。

計量トレーサビリティ

測定器の校正には計量トレーサビリティが確保された手順が用いられた。また、国家標準へのトレーサビリティが取れた標準線源が用いられた。なお、3 試験所では ⁴⁰K について KCl 及び KOH の学術的データが用いられた。詳細は開発成果報告書を参照のこと。

認証日付 2013 年 9 月 13 日

認証値決定に協力した分析機関

東京都市大学原子力研究所
 東京都市大学工学部
 明治大学理工学部
 京都大学原子炉実験所
 東京大学アイソトープ総合センター
 (公社)日本アイソトープ協会
 (公財)日本分析センター
 (一財)日本食品分析センター
 (独)放射線医学総合研究所
 (独)日本原子力研究開発機構
 (独)農業環境技術研究所
 エヌエス環境株式会社
 株式会社環境総合テクノス
 日本ハム株式会社中央研究所
 以上 14 機関

生産及び頒布機関 公益社団法人 日本分析化学会

調製・均質性試験機関 環境テクノス株式会社 (北九州市戸畑区中原新町 2-4)
 東京都市大学原子力研究所 (川崎市麻生区王禅寺 971)

認証責任者 公益社団法人 日本分析化学会
 標準物質委員会
 委員長 上本 道久

作業委員会： 放射能標準物質作製委員会

	氏名	所属
委員長	平井 昭司	東京都市大学
委員	薬袋 佳孝	武蔵大学
委員	岡田 往子	東京都市大学
委員	米澤 仲四郎	(公財)日本国際問題研究所
委員	三浦 勉	(独)産業技術総合研究所
委員	植松 慶生	(公財)日本適合性認定協会
委員	岡田 章	(株) テルム
事務局	柿田 和俊	(公社)日本分析化学会
事務局	小島 勇夫	(公社)日本分析化学会

受託事業 放射能環境標準物質開発委員会

	氏 名	所 属
リーダー	薬袋 佳孝	武蔵大学
サブリーダー	岩本 浩	環境テクノス(株)
委 員	米澤 仲四郎	(公財)日本国際問題研究所
委 員	三浦 勉	(独)産業技術総合研究所
委 員	渋谷 雅美	埼玉大学大学院
委 員	荒川 史博	日本ハム株式会社 中央研究所
アドバイザー	千葉 光一	(独)産業技術総合研究所
アドバイザー	北村 清司	(公財)日本分析センター
アドバイザー	山田 崇裕	(公社)日本アイソトープ協会
事務局	柿田 和俊	(公社)日本分析化学会
事務局	小島 勇夫	(公社)日本分析化学会

文献1) 平成4年改訂 放射能測定シリーズ No.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」

問合せ先

公益社団法人 日本分析化学会

〒141-0031 東京都品川区西五反田1丁目26-2

五反田サンハイツ 304号

Tel. 03(3490)3351

Fax 03(3490)3572

ホームページ : <http://www.jsac.or.jp/srm/srm.html>

e-mail : crmpt@ml.jsac.or.jp

付記:本大豆認証標準物質は、独立行政法人科学技術振興機構による2013年度研究成果展開事業（先端計測分析技術・機器開発プログラム）として受託し、開発されたものである。ただし、当該委託費には、認証した標準物質の保存・頒布等に要する費用（管理費を含む）は含まれていない。