

# 開発成果報告書

## 放射能分析用 土壌認証標準物質

JSAC 0471  
JSAC 0472  
JSAC 0473

2012年5月29日

2012年10月15日改1

(認証値の修正, 添付資料 11 削除, 添付資料 12,13 追加)

2013年12月17日改2

(添付資料 14 「均質性に対する試料充てん量の影響」追加)

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. 試料調製	3
5. 均質性評価	6
6. 報告結果及び特性値の決定	9
7. 不確かさの算出	10
8. 標準物質の利用	14
9. 認証書	14
10. 結語	14
添付資料 1 : 参加試験所が使用した参照標準の概略図	16
添付資料 2 : 調製作業	17
添付資料 3 : 共同実験参加試験所の測定条件など	22
添付資料 4 : 共同実験参加試験所の測定条件など(Lab 7追記)	32
添付資料 5 : 共同実験参加試験所の測定条件など(Lab 14追記)	35
添付資料 6 : 均質性試験など複数の報告値を含めた測定値一覧表とバーチャート	42
添付資料 7 : 報告された $\gamma$ 線スペクトル例	44
添付資料 8 : 計算に基づく方法 (LabSOCS)	53
添付資料 9 : 検出効率の校正における関数フィッティングの不確かさ	54
添付資料 10 : 減弱係数, 試料密度 (比重) 等	57
添付資料 11 : 認証書 (初版削除)	なし
添付資料 12 : 土壌標準物質中の $^{90}\text{Sr}$ , $\text{Pu}$ ( $\text{Pu}$ 同位体, 同位体比) の共同分析	59
添付資料 13 : 認証書 (改1)	61
添付資料 14 : 均質性に対する試料充てん量の影響	66

# 開発成果報告書

## 放射能分析用 土壌認証標準物質 JSAC 0471～0473

### 1. はじめに

東日本大震災にともな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基準値がこれまでの暫定基準値から大幅に引き下げになり、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。

日本分析化学会では、第13回標準物質委員会(2011-05-13)の議事5.6②放射線測定用標準物質について議論がなされた。このなかで、我が国の危急の社会的ニーズに対応するため学会内に設置された震災対応WGの方針を踏まえ、原発事故対応支援を考慮した放射能測定用標準物質の作製の提案がなされた。試料の採取や均質化等に課題はあったが、作製の検討を開始することが承認され、土壌、食品等について検討を進めることとなった。探索的に試料の採取と均質性試験が行われ、標準物質作製の見通しが得られたため、放射能標準物質作製委員会が結成され2012-01-13に第1回会議が開催された。その後数回の委員会において均質性の評価、測定方法の検討、共同実験の企画実行、その結果の評価が行われ、12試験所の結果をもとに次の放射能濃度認証値が決定された。

セシウム 134 : (85.3±5.9) Bq/kg

セシウム 137 : (115±8) Bq/kg

カリウム 40 : (396±25) Bq/kg

本報告は、計画される標準物質の内の一つで、土壌認証標準物質に関する成果をまとめたものである。

### 2. 開発の経緯

標準物質委員会では渋谷委員より震災対応WGの方針を踏まえ、原発事故対応支援を考慮した放射能測定用標準物質の作製の提案がなされ、平井委員が土壌と玄米について調査を行った。環境テクノス(株)にて調製作業を行い、エヌエス環境(株)及び東京都市大学にて均質性を調査した。

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に示した。

表1 参加試験所リスト（順不同）

東京都市大学工学部
東京都市大学原子力研究所
明治大学理工学部
京都大学原子炉実験所
(大共)高エネルギー加速器研究機構放射線科学センター
(財)日本分析センター
(公社)日本アイソトープ協会
(独)放射線医学総合研究所
(独)産業技術総合研究所
(独)日本原子力研究開発機構
エヌエス環境株式会社
株式会社環境総合テクノス

### 3. 計量トレーサビリティ

表2に参加試験所が用いた参照標準とその合成標準不確かさを示した。

表2 参加試験所が用いた参照標準とその合成標準不確かさ

Lab 番号	参照標準	検出効率校正の 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 (該当エネルギー範囲で)
2	Cs-134, Cs-137 : IAEA 444 K-40:U8 容器に KC1 を充填	2.86 (Cs-134) 2.04 (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。 1.0 (K-40)
3	電離箱で校正した放射能標準液（塩酸性）で効率決定	電離箱による校正，検出効率と検出器安定性の不確かさを合成した。K-40については内挿の不確かさも合成。 1.16 (Cs-134) 1.34 (Cs-137) 1.67 (K-40)

4	エネルギー依存性 : AEA Technology plc QCD1 2956QB 測定試料形状依存性 : 日本アイソトープ協会製 CS-050 9903	参照標準と校正式フィッティングの不確かさを合成した。 1.61
5	U8 容器に 9 核種を含む水溶液を充填した体積標準線源	体積標準線源として該当エネルギー範囲で 1.0 以下 ピーク効率の校正值として, 1.62 (Cs-134) 1.33 (Cs-137) 1.49 (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	2.35 (該当エネルギー範囲で)
7	LabSOCS*	4.3
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	2.35 (該当エネルギー範囲で)
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	2.35 (該当エネルギー範囲で)
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	2.5 (該当エネルギー範囲で)
12	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 (該当エネルギー範囲で)
14	Eu-152 線源 (JAERI Eu427) : 不確かさ 4 % (3 $\sigma$ ) 混合核種 $\gamma$ 線源 (DKD 製 GF-ML-M-7601 S/N: 1390-40) : 不確かさ 2.9 % (2 $\sigma$ ) Cs-134 あるいは Cs-137 を含む溶液をそれぞれ土壌と混合し, 2 つの線源 (Cs-134 標準線源, Cs-137 標準線源) を作製	ピーク効率の校正值として, 2.06 (Cs-134) 1.67 (Cs-137) 2.5 (K-40)

\* Canberra 社製 LabSOCS (Laboratory Sourceless Object Calibration Software)

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参照標準の拡張不確かさを 2 で割った値を用いた. Lab8 については一般的に推定される値である. 詳細は 7 節および添付資料 3 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. 試料調製

##### (1) 試料の粉碎及び篩い分け

Cs-134 と Cs-137 を合わせて約 200 Bq/kg (12.7 kg) と 120 Bq/kg (72.8 kg) が準備され, それぞれの試料について, 4 kg 程度に分割しながら熱風循環式定温乾燥器にて 35°C, 1 日 (24 時間) 乾燥した. その後, アルミナボールミルを用いて 3 時間粉碎した. これを篩分けし, 粒径 (63 - 250)  $\mu$ m のものを選別した. 粒径 250  $\mu$ m 以上の試料は, 粉碎・

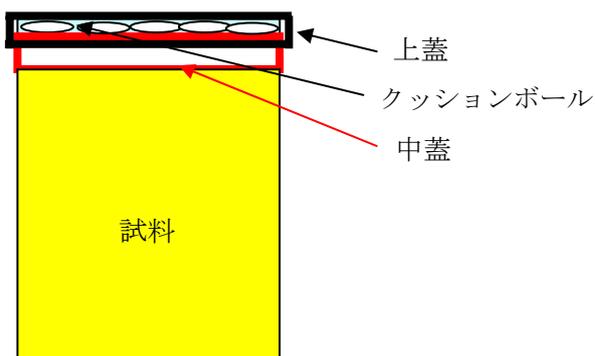
篩いを数回繰り返した。粉碎，篩い分けの後，全試料を拡翼式混合機を用いて混合し，続いてV型混合機で再混合し，試料の均質性を図った。このようにして約56 kgの候補試料を得た。

なお，粉碎，篩い分けについては，試料の一部を用いて事前に各種条件を求めるための検討が行われた(添付資料2参照)。

### (2) 試料瓶詰め

試料をU8容器に入れた後，中蓋とクッションボールを入れ(この時クッションボールは容器の上面より，やや上にする.)，上蓋を閉めて試料を締め付けた(試料が中蓋の上にかからないよう，十分注意する.)。上蓋を薬瓶の要領で透明ビニールテープ止めする。充填した質量と瓶の本数は次の通りである。瓶詰め順で試料には試料番号(1~250+予備1~5，または1~50)ラベルを貼付した。

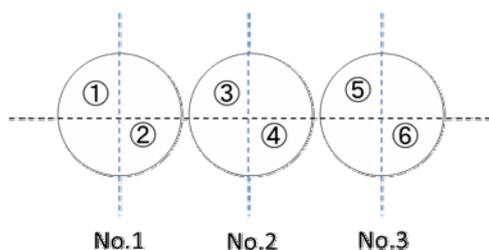
充てん高さ(mm)	充てん質量(g)	瓶数(本)	予備本数
50	135	250	5
30	80	50	
10	30	50	



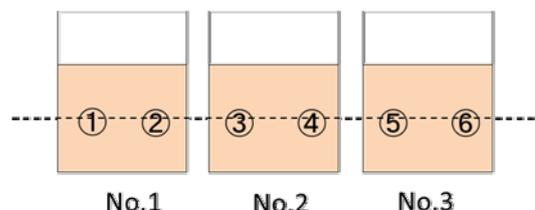
瓶詰め写真(左から10 mm,30 mm,50 mm)

### (3) 均質性試験

一括混合後，3個の容器(No.1, No.2, No.3, ステンレス製，外形，高さ360mm)に保管した試料から下記の図のように6点から均質性確認用試料を採取した。それぞれ試料番号を1-1, 1-2, 2-1, 2-2, 3-1, 3-2とした。各試料Mn, Cu, Znの分析を2回ずつ行った。分析結果を表3に示す。結果よりMn, Cu, Zn成分の均質性に問題は無いと考えられた。



保管容器を上から見た図



保管容器を横から見た図

分析方法：

各試料約 0.5 g を分取し，硝酸，フッ化水素酸，過塩素酸にて酸分解を行った。分解，蒸発乾固後の試料を(1+1)塩酸 5 ml に溶解後，50 全量フラスコにて定容した。Cu と Zn についてはこの溶液を測定溶液とした。Mn はさらに 5 倍希釈(50 ml 定容)したものを測定溶液とした。これらの溶液の ICP-AES 測定を行った。

分析装置 ICP-AES (型式：ICPS-8100) (株)島津製作所製

測定波長：Mn 257.610 nm, Cu 327.396 nm, Zn 213.856 nm

表 3 化学分析による均質性試験結果(μg / g)

成分→	Mn		Cu		Zn	
分析方法→	ICP 発光分光分析法					
位置番号↓	測定1	測定 2	測定1	測定 2	測定1	測定 2
1-1	762.06	756.54	33.11	35.61	75.91	76.12
1-2	789.56	761.58	32.09	32.07	74.30	74.71
2-1	748.28	763.84	33.14	33.26	77.09	75.17
2-2	759.74	744.45	35.13	33.82	79.40	76.37
3-1	762.14	752.26	33.52	31.71	76.48	75.26
3-2	769.69	763.04	33.56	32.74	77.52	75.11
Average	761.10		33.31		76.12	
	s	RSD(CV)	s	RSD(CV)	s	RSD(CV)
$s_f$ (併行標準偏差)注	10.92	1.43%	1.00	2.99%	1.30	1.71%
$s_{bcr}$ (合成標準偏差)注	11.49	1.51%	1.18	3.54%	1.42	1.87%
$s_{bb}$ (瓶間標準偏差)注	3.57	0.47%	0.63	1.90%	0.57	0.74%

注： $s_f$ 、 $s_{bb}$ については5. 均質性評価を参照。 $s_{bcr}$ は両者の合成標準偏差である。

#### (4) 含水率測定

底質調査方法(昭和 63 年 環境庁環水管 127 号)に準じて乾燥減量(水分)を測定した。試料を約 10 g ずつ蒸発皿に秤取り，厚さが 10 mm 以下になるように拡げて質量を測定した(a:湿試料)。これを 105 °C で 2 時間，定温乾燥機で乾燥し，さらに乾燥後デシケーターに移し，約 40 分間放冷した。放冷後デシケーターから蒸発皿を取り出し，速やかに質量測定した(b:乾燥試料)。この試料量から下記の式を用いて含水率を算出した。

$$\text{含水率 (\%)} = (a - b) / a \times 100$$

表 4 含水率測定結果

蒸発皿 No.	風袋 g	試料	試料量 (a) g	乾燥後質量 g	乾燥後試料量 (b) g	減量 g	水分 (%)
27	47.514	No. 1-1	10.016	57.380	9.866	0.150	1.498
32	45.894	No. 1-2	10.018	55.766	9.872	0.146	1.457
37	45.234	No. 2-1	10.028	55.114	9.880	0.148	1.476
61	46.302	No. 2-2	10.093	56.245	9.943	0.150	1.486
87	47.725	No. 3-1	10.047	57.627	9.902	0.145	1.443
88	45.197	No. 3-2	10.124	55.170	9.973	0.151	1.492

平均値	1.48
標準偏差	0.02
RSD %	1.43%

## 5. 均質性評価

### 5. 1 放射能測定による均質性試験

評価用試料は、全試料を U8 容器に詰めた後、試料調製時に化学分析を実施した試料とほぼ同位置から 2 本ずつ、計 12 本分の試料を選んで、それぞれの試料番号を 1-1-1, 1-1-2, 1-2-1 ~ 3-2-2 とし、放射能測定均質性試験用試料とした。

放射能測定は 2 試験所で実施された。

### 5. 2 試験結果

#### (1) エヌエス環境株式会社による均質性試験

- ・測定時間は 4 時間に固定し、2 月 8 日から 2 月 26 日にかけて測定した。
- ・Cs-134 の放射能は 6 本の  $\gamma$  線ピークの加重平均で求められた。用いたピークのエネルギー値は 563.23, 569.32, 604.7, 795.85, 801.93, 1365.15 keV である。

表 5 Cs-134, Cs-137, K-40 測定結果

試料番号	放射能 Cs-134 (Bq/kg)	計数誤差 (Bq/kg)	放射能 Cs-137 (Bq/kg)	計数誤差 (Bq/kg)	放射能 K-40 (Bq/kg)	計数誤差 (Bq/kg)
1-1-1	84.24	1.38	113.78	2.30	453.6	18.79
1-1-2	81.58	1.34	108.17	2.22	441.7	18.48
1-2-1	82.97	1.33	109.24	2.22	426.7	15.15
1-2-2	84.01	1.37	119.47	2.36	408.8	17.89
2-1-1	83.04	1.37	111.96	2.30	444.7	18.80
2-1-2	82.82	1.33	111.37	2.27	433.7	18.12
2-2-1	82.65	1.34	110.53	2.23	384.3	17.09
2-2-2	84.50	1.38	117.11	2.34	447.8	18.80
3-1-1	82.27	1.35	117.08	2.33	478.0	19.36
3-1-2	82.84	1.34	115.26	2.30	431.2	17.83
3-2-1	83.33	1.36	116.97	2.31	422.3	18.20
3-2-2	82.05	1.37	113.75	2.32	427.7	18.34
平均値	83.02	1.36	113.73	2.29	433.4	18.07
標準偏差	0.88		3.55		23.4	

上記の均質性試験について、試料間と繰り返し測定を不確かさ要因と考え、JIS Q 0035 7.8 項の一元配置分散分析による瓶間均質性試験の手順を用いて試料間不均質性の不確かさを算出した。

計算手順の概要は以下のとおりである。

分散分析により瓶間均質性標準偏差 ( $s_{bb}$ ) は次式で表される。

$$s_{bb}^2 = \frac{MS_{\text{among}} - MS_{\text{within}}}{n} \quad (1)$$

ここで、 $n$  は繰返し測定回数 (=2)、 $MS$  は平均平方 (ANOVA) で、**among** はグループ間 (ここでは、瓶間に対応する)、**within** はグループ内 (繰返しに対応) を意味する。

規格では、測定方法の併行精度が不十分な場合、次式に留意することが求められる。

$$\frac{MS_{\text{among}} - MS_{\text{within}}}{n} \leq u_{bb}^2 \leq s_{bb}^2 + \frac{s_r^2}{n} \quad (2)$$

ここで、 $u_{bb}$  は試料間の不均質性による標準不確かさである。また併行精度( $s_r$ )の分散は次のように表せる。

$$s_r^2 = MS_{\text{within}} \quad (3)$$

通常、不均質性による不確かさとしては、(2)式の右辺が用いられるが、併行精度が不十分な場合には、その値が往々にして負の値を持つ。このために、不確かさの下限值として次のような併行精度を用いた評価が行われる。 $\nu$ は自由度である。

$$u_{bb}^* = \sqrt{\frac{MS_{\text{within}}}{n}} \sqrt[4]{\frac{2}{\nu_{MS_{\text{within}}}}} \quad (4)$$

以上から、 $u_{bb}$  を不均質性不確かさとして、次のように決定する。

$$u_{bb} = \begin{cases} \sqrt{s_{bb}^2 + \frac{s_r^2}{n}} & (s_{bb}^2 + \frac{s_r^2}{n} \geq u_{bb}^{*2} \text{ の場合}) \\ u_{bb}^* & (\text{上の場合以外}) \end{cases} \quad (5)$$

3種の核種について、計算結果を表6にまとめた。

表6 均質性試験の分散分析結果

	Cs-134	Cs-137	K-40
$s_{bb}$	-0.6255 <sup>注</sup>	-1.971 <sup>注</sup>	-4.924 <sup>注</sup>
$s_r$	1.0641	4.015	23.87
$s_{bb}^2 + s_r^2 / n$	0.1750	4.174	260.5
$u_{bb}^*$	0.5718	2.157	12.82
$u_{bb}$	0.5718	2.157	16.14
$u_{bb}$ (%)	0.69 %	1.90 %	3.71 %

注 : (1)式の右辺が負の場合に、その絶対値の平方根に負号を付けて  $s_{bb}$  としている。

計算結果では、3種の核種で $s_{bb}$ は負となり、併行標準偏差に比べて不均質性は大きくないことを示唆している。特にK-40の $u_{bb}$ 値は、大きな $s_r$ を反映しているもので、繰り返しの不確かさが主要因と考えられる。これは、表5におけるK-40の計数誤差が他の核種に比べてかなり大きいことに対応しており、この数値をそのまま不確かさとする、過大評価になることが想定される。

(2) 東京都市大学原子力研究所による均質性試験

(1)の測定後6試料について測定された。測定時間は10~18時間である。測定数が小さいため分散分析ではなく通常の統計計算を行った。Cs-134の強度は604.44 keVのピークから求めた。K-40の測定では、(1)の結果と比べて測定時間が長いバックグラウンドの強度が大きかったために、計数誤差は表5と同等程度になっている。

表7 測定された放射能と計数誤差

試料番号	放射能 Cs-134 (Bq/kg)	計数誤差 (Bq/kg)	放射能 Cs-137 (Bq/kg)	計数誤差 (Bq/kg)	放射能 K-40 (Bq/kg)	計数誤差 (Bq/kg)
1-1-1	82.44	1.20	114.53	1.52	429.0	16.4
1-2-2	80.64	1.18	116.47	1.58	428.6	14.5
2-1-1	83.27	1.20	116.52	1.57	410.0	15.6
2-2-2	83.95	1.19	118.71	1.59	439.8	15.4
3-1-1	79.83	1.14	116.92	1.57	415.9	17.5
3-2-2	82.88	1.17	117.88	1.58	411.5	17.4
平均値	82.17	1.18	116.84	1.57	422.46	16.14
標準偏差	1.60		1.42		11.80	
RSD(%)	1.95%		1.22%		2.79%	
68.27% 信頼限界(%)	2.16%		1.35%		3.10%	

均質性試験に供した6本について各1回測定を行ったために6個のデータから標準偏差を求めた。自由度を考慮しt分布を用いて68.27%信頼限界の値を標準不確かさの候補とした。ここでもK-40については計数誤差が標準偏差の主成分で、これを不均質性とする、過大評価になると考えられる。

(3) 不均質性に基づく不確かさの推定

Cs-134, Cs-137の不均質性として、2試験所の値を平均して共通に1.6%とした。

K-40の不均質性について、 $u_{bb}$ や平均値の標準偏差を用いると計数誤差により過大評価と考えられること、及びKは土壌の成分そのものであるため他の核種と比較しても同等か、あるいはより小さい不均質性が予測されることから、化学分析による成分分析の不均質性の平均値とGUM(計測における不確かさの表現のガイド)のH.5.2.5節に記述される平均値の推定標準偏差を比較して大きい方をK-40の不均質性として用いることにした。

表3の化学分析による3成分の $s_{bb}$ を平均すると1.04%、表5のデータからGUMによる

K-40 の平均値の標準偏差を求めると 1.56 %と得られた。このため、K-40 の不均質性不確かさとして 1.6 %を用いる。

#### 6. 報告結果及び特性値の決定

共同実験は土壌を 50 mm 高さに充填した U8 試料で行った。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 8 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) およびロバスト法 (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 ( $0.4713 \times$  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:  $(x - Median) / NIQR$

z スコアによるといづれも 3 を越える報告値はなく、棄却するデータはない。また、ロバスト法による計算値は、試験所数が少ないために参考値として扱い、本共同実験の報告には従来法による平均と標準偏差を用いる。従って、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」にもとづき、次項で述べる不確かさに加え、室間再現標準偏差 (表 8 の *SD*) も「もうひとつの不確かさ」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 8 報告値および z スコア計算値

報告値の単位: Bq/kg

Lab	報告値			z score			報告値			z score		
	Cs-134	Classic	Robust	Cs-137	Classic	Robust	K-40	Classic	Robust	K-40	Classic	Robust
1	83.7	-0.33	-0.66	110.3	-0.94	-1.13	376.1	-1.33	-1.64			
2	79	-1.31	-2.00	118	0.49	0.18	398	0.10	-0.14			
3	90.85	1.17	1.37	118.4	0.57	0.25	407.7	0.74	0.53			
4	87	0.36	0.28	120	0.87	0.52	400	0.24	0.00			
5	86.5	0.26	0.14	116	0.12	-0.16	406	0.63	0.41			
6	86.2	0.19	0.05	116.9	0.29	-0.01	410.4	0.92	0.71			
7	78.4	-1.44	-2.17	107	-1.55	-1.69	362	-2.25	-2.60			
8	80.71	-0.96	-1.51	109.8	-1.03	-1.22	387.5	-0.58	-0.86			
10	82.85	-0.51	-0.90	117.87	0.47	0.16	411.51	0.99	0.79			
11	87.2	0.40	0.33	117	0.31	0.01	400	0.24	0.00			
12	85.85	0.12	-0.05	108.1	-1.35	-1.51	388.6	-0.51	-0.78			
14	95.0	2.04	2.56	124.8	1.76	1.34	409	0.82	0.62			
データ数 <i>p</i>	12			12			12					
<i>Average</i>	85.3			115.4			396.4					
<i>SD</i>	4.78			5.37			15.3					
<i>RSD</i> %	5.6			4.7			3.9					
<i>RSD</i> / $\sqrt{p}$	1.62			1.35			1.11					

<i>Median</i>	86.0			116.95			400.0		
<i>NIQR</i>	3.51			5.87			14.6		
<i>RNIQR %</i>	4.1			5.0			3.7		

表中の測定値では報告値をそのまま記載した。

試験所によっては、均質性試験とかねて複数の試料を測定していただいた。また、別の方法での測定値を報告いただいた試験所もあった。参考のために、上記の表とは別にその結果を添付資料6にまとめた。

また、添付資料7に報告された $\gamma$ 線スペクトルの一部を示した。

Lab 9 のデータは未着。Lab 13 は辞退された。

## 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。従って、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
- ・試料の不均一性 (○)
  - 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試料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。また、計算に基づく方法では Ge 検出器の結晶サイズ等の詳細な幾何学的形状、試料形状等の情報から検出効率を計算する方法がキャンベラ社により LabSOCS として開発されている(添付資料8を参照)。

標準試料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が、

Lab14からはK-40付近のエネルギーでは無視できないかたよりを生じ可能性の指摘があった。添付資料9に記述した。

従って、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）を二乗平均することで求めた。

### (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

Lab 4において参照標準として標準点線源が用いられたが、これはエネルギーに対するピーク効率曲線を求めるためのもので、補正係数に含まれる測定試料とのジオメトリーの違いについては同じU8容器によって測定されている。また、その他の試験所では、すべての測定でU8容器が用いられているため無視できるとした。

- ・ 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 2, Lab 3及びLab 14の3試験所は、Cs-134を標準試料に用いているので補正は不要であった。

また、Lab 1, Lab 12では、サム効果の補正は行わなかった。Lab 1は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。報告によると、検出器に直上に置く場合に比べて、Cs-134の放射能算出値が12 %程度増加したとされる。Lab 12では検出効率の算出は単一の $\gamma$ 線を放出するCe-139 (165.9 keV), Cs-137 (661.6 keV)と複数の $\gamma$ 線を放出するがほとんど514 keVの $\gamma$ 線しか放出しないSr-85を用いた。測定位置は検出器表面から約6 cmの距離で行った。

全ての試験所で適切な処置が取られていると考え、不確かさには合成しないことにした。

- ・ 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物質と異なる場合、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。Lab 14ではこの効果無くするために同一の物質（土壌）を用いて参照標準物質を作製した。ちなみに、土壌の成分をSiO<sub>2</sub>（密度 1.5 g/cm<sup>3</sup>）、参照標準の成分をAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>（密度 1.0 g/cm<sup>3</sup>）と考えて、高さ5cmで充填したU8容器による自己吸収の違いは小さく、必要な試験所はすべて適切に補正している。文献では、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 $\gamma$ 線に対し）とされるので、ここでは1 %とした。

報告された線減弱係数や試料の密度については参考のため添付資料10にまとめた。

- ・ 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

についてはカウント数が小さく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
- ・ $\gamma$ 線放出率による不確かさ

核データは添付資料 3 に報告されているように、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。

結論として、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 9 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	1.62	1.35	1.11
検出効率校正	2.42	2.30	2.32
自己吸収補正	1	1	1
均質性	1.6	1.6	1.6
合成標準不確かさ	3.47	3.27	3.19
拡張不確かさ (k=2)	6.94	6.54	6.38

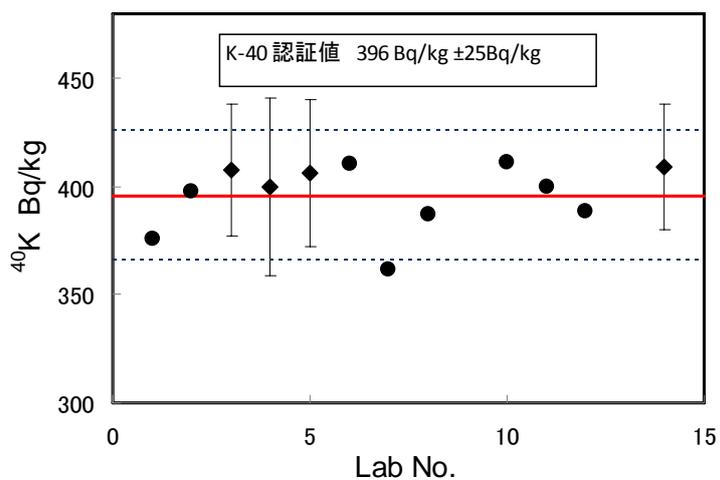
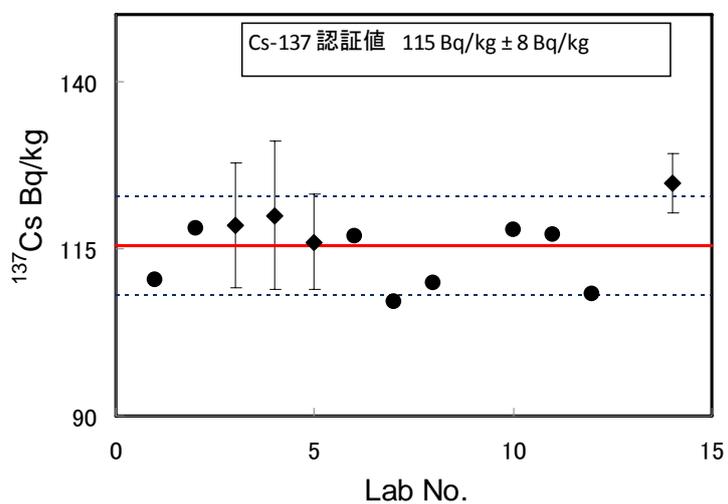
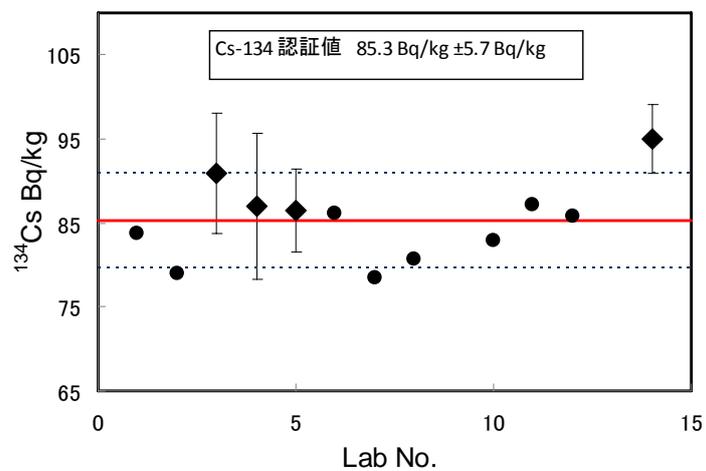
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
拡張不確かさ (k=2)	5.92	7.54	25.3

認証書に記載する拡張不確かさは次の通り。

Cs-134      5.9 Bq/kg  
Cs-137      8 Bq/kg  
K-40        25 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。

以下の図に各核種の認証値と測定値の分布を示す。



一部の測定値に付随するエラーバーは報告された拡張不確かさである。

## 8. 標準物質の利用

この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、本標準物質を測定し、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章あるいは文献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、本報告書との違いは、計数誤差と不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内の一つを測定するので、不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。 $En$  数の絶対値は、1 以下であることが望ましい。

$$En = (x - X) / (U_x^2 + U_X^2)^{0.5} \quad (6)$$

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。

$$z = (x - X) / SD \quad (7)$$

## 9. 認証書

添付資料 1 1 に掲載する。

## 10. 結語

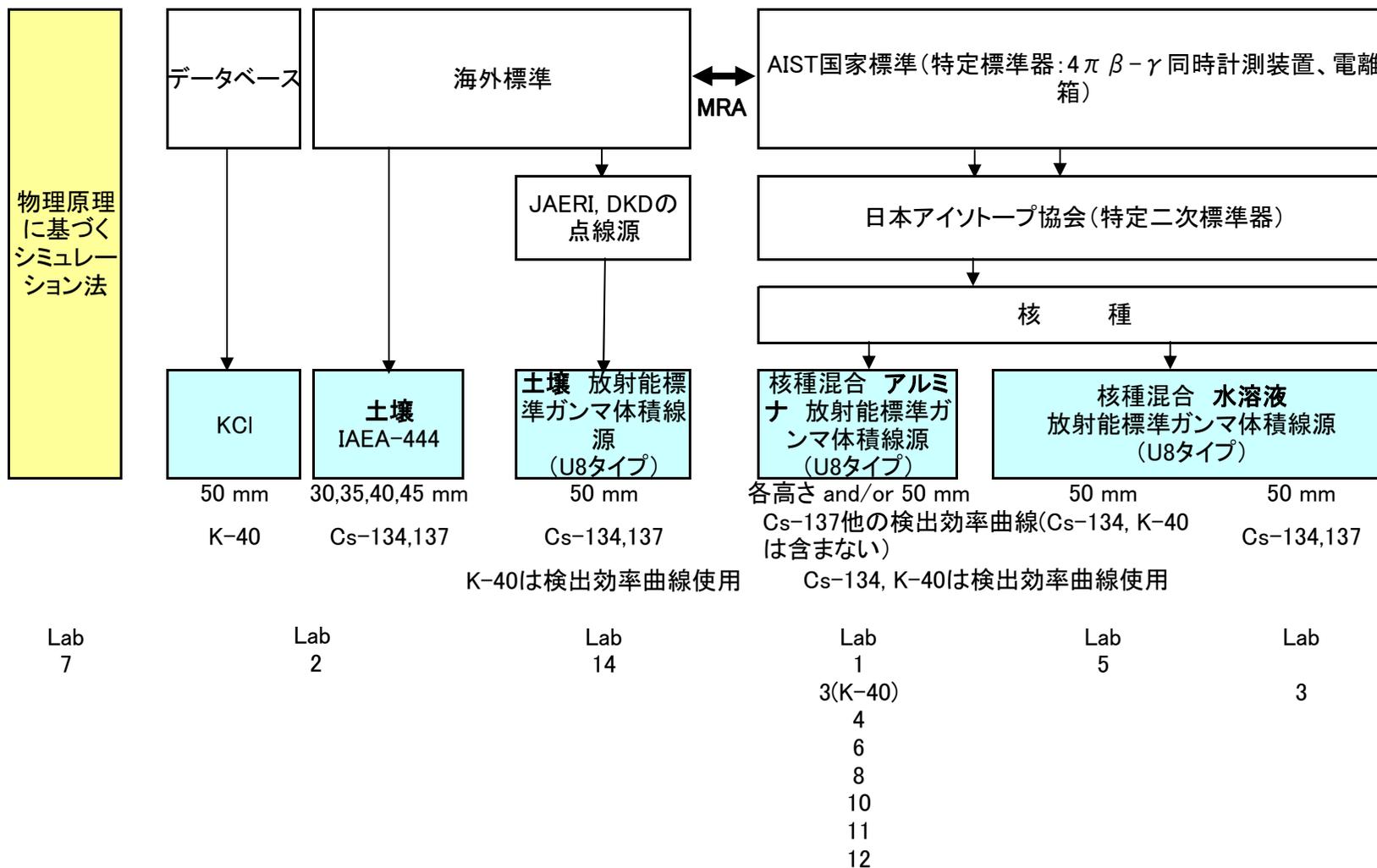
ここに放射能分析用土壌認証標準物質，JSAC 0471～0473 を製作した。

原子力発電所の事故からすでに1年が経過し、放射能汚染の拡大が懸念される中、早急な対応が求められているが、本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頂いた関係者各位に深く感謝する次第である。

## 添付資料

添付資料1 参加試験所が使用した参照標準の概略図



## 放射能土壌試料調製

平成 24 年 3 月 23 日

### (1) 放射能と試料量

平成 23 年 10 月 11 日に下記 3 種の土壌試料を受け取った。放射能と受入重量及び乾燥後重量を以下に示す。

電子ポケット線量計 マイドーズミニ PDM-122-SZ(最小目盛：1  $\mu$ sV)を使って管理をしている。200 Bq/kg の土壌 A 袋に密着させて測定すると、2  $\mu$ sV/(2 日間)であった。

試料名	放射能	受入重量(風袋込)	乾燥後重量
A(H)	200 Bq/kg	12.7 kg	11.8 kg
B(L)	120 Bq/kg	72.8 kg	66.7 kg
C	360 Bq/kg	2.2kg	2.1kg

乾燥条件：各試料ごと 4kg 程度に分割し、熱風循環式定温乾燥器にて 35℃、1 日 (24 時間) 乾燥

### (2) 試料調製及び作製目標

各種土壌試料をアルミナボールミル粉砕，電磁振動篩い分けにより目標粒度の試料を分取し，A 試料及び B 試料については併せて一括混合を行い，標準物質及び技能試験用試料を調製する。

目標粒度：最大粒度:250  $\mu$ m，最小粒度:63  $\mu$ m

試料容器：U8 容器

充填量：技能試験用は 50 mm 高さのみ

標準物質は 50 mm, 30 mm, 10 mm の 3 水準

#### A+B 試料

	作製目標本数			
	標準物質用			技能試験用
高さ mm	10	30	50	50
132 Bq/kg	50 本 (10 本相当)	50 本 (30 本相当)	200 本	50 本
均質性試験	--	--	12 本	

C 試料は将来的に A+B の余り試料と混合し技能試験用として使用予定。

### (3) 乾燥試料の篩い分け (未粉砕)

A 試料及び B 試料について乾燥後試料を未粉砕の状態一端，篩い分けを行った。250  $\mu$ m, 63  $\mu$ m の篩を用い 3 分割した。篩後重量及び割合を以下に示す。

試料名	放射能	篩後重量	割合
A	250 μm 以上	7.6 kg	68%
	63~250 μm	2.4 kg	22%
	63 μm 以下	1.1 kg	10%

試料名	放射能	篩後重量	割合
B	250 μm 以上	47.9 kg	73 %
	63~250 μm	14. 2kg	22 %
	63 μm 以下	3.8 kg	6 %

#### (4) 粉碎及び篩い分け

B 試料においてアルミナボールミル粉碎条件の検討をしつつ作業を行った。詳細結果は 6 ~ 7 ページに示す。粉碎量が多くなるにつれ 250 μm 以上の割合は増え、処理量は低下した。しかし、目標粒度の 63~250 μm と過粉碎の 63 μm 以下の割合を比較すると最も良い傾向が見受けられた。

粉碎時間については、時間が長くなるにつれ処理量は増えるが、過粉碎の 63 μm 以下の割合の増加も見受けられた。粉碎時間は短い方が過粉碎が抑制され良い傾向にはあるが、作業効率も考慮すると、粉碎時間は 1 ~ 3 時間程度が妥当かと考える。

上記より粉碎量 4.5 kg、粉碎時間 3 時間をベースに作業を行った。篩い後 250 μm 以上の試料については、粉碎・篩いを数回繰り返し行った。以下の表に処理後最終重量を示す。

試料粒度	A 試料	B 試料	C 試料
250 μm 以上	1.4 kg	3.4 kg	0.02 kg
63~250 μm	7.6 kg	48.5 kg	1.5 kg
63 μm 以下	2.2 kg	13.6 kg	0.4 kg

#### (5) 試料混合

上記で粉碎・篩い分けした A 試料及び B 試料の粒径 63~250 μm を合わせ、拡翼式混合機で一括予備混合した。さらに V 型混合機で再混合し、試料の均質性を図った。



拡翼式混合機



V 型混合機

#### (6) 均質性試験

一括混合後、3 個の容器 (No.1, No.2, No.3) に保管した試料から下記の図のように 6 点から均質性確認用試料を採取した。それぞれ試料番号を 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, 3-1, 3-2 とした。各試料 Mn, Cu, Zn の分析を 2 回ずつ行った。分析結果を次ページに示す。結果より Mn, Cu, Zn 成分の均質性に問題は無いと考えられる。

上記試料採取時に、ほぼ同位置から 2 本ずつ 計 12 本分の試料を採取して、後述する (7) の瓶詰めに従って U8 容器 50 mm の試料を 12 本作製した。それぞれの試料番号を 1-1

ー 1, 1-1-2, 1-2-1 ~ 3-2-2とし, 放射能測定均質性試験用試料として  
エヌエス環境株式会社へ送付した。

また, (7) 瓶詰め後の残試料の各容器から 2 点ずつ計 6 点の含水率測定を行った。

#### (7) 試料瓶詰め

試料を U8 容器に入れた後, 中蓋を入れてクッションボールを入れ (この時クッションボールは容器の上面より, やや上にする。), 上蓋を閉めて試料を締め付けるようにする (試料が中蓋の上にはかないよう, 十分注意する)。上蓋を薬瓶の要領で透明ビニールテープ止めする。

瓶詰め量 : 50 mm	135.0 g	瓶詰め本数 : 50 mm	250 本+予備 5 本
30 mm	80.0 g	30 mm	50 本
10 mm	30.0 g	10 mm	50 本

保管容器 No.1 から 50 mm 試料 125 本, No.2 から 50 mm 試料 125 本, No.3 から 50 mm 試料予備 5 本, 30 mm 試料 50 本, 10 mm 試料 50 本を瓶詰めした。瓶詰め順で試料には試料番号 (1~250+予備 1~5 or 1~50) ラベルを貼付している。

#### 瓶詰め後残り試料量 (H24.3.23 現在)

試料粒度	A 試料	B 試料	C 試料	A+B 試料
250 μm 以上	1.4 kg	3.4 kg	0.02 kg	—
63~250 μm	—	—	1.5 kg	約 11 kg
63 μm 以下	2.2 kg	13.6 kg	0.4 kg	—

#### (8) 共同実験用試料送付

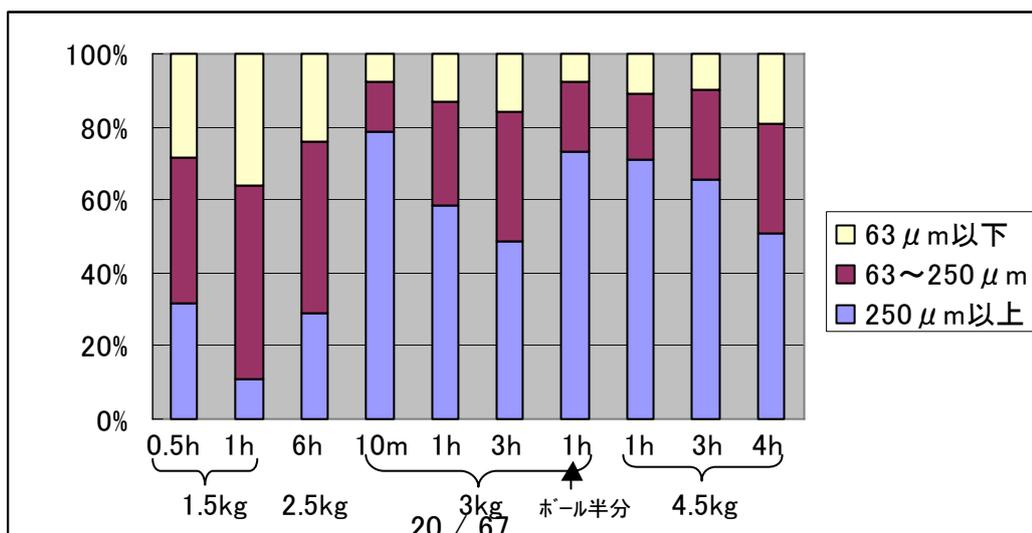
瓶詰め 50 mm 水準試料の No.1, 2, 25, 50, 75, 100, 125, 150, 175, 200, 225, 250 計 12 本を抜き出し, 共同実験用試料として平成 24 年 3 月 2 日に各分析機関へ送付した (後日 2 試験所に 2 本を追加送付した)。

また, Sr, Pu 分析試料として 50 mm 水準試料の予備 1~4 (3 本と 1 本) を 2 分析機関へ平成 24 年 3 月 12 日に送付した。及び予備 5 を産総研 三浦様へお送り頂いた V 型容器 5 個に各 10.0 g ずつ瓶詰めし直し 1 分析機関へ平成 24 年 3 月 16 日に送付した。



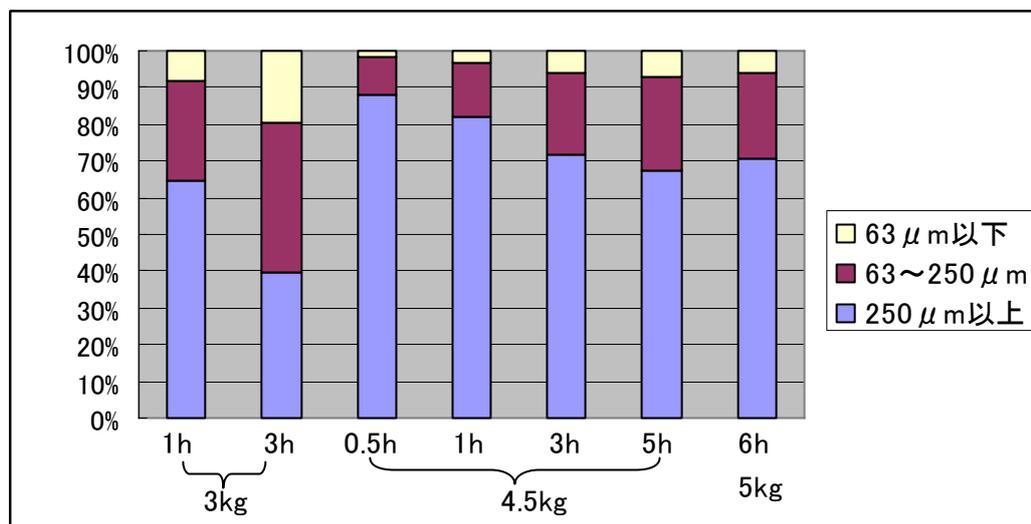
試料 B の篩後 250  $\mu\text{m}$  以上試料の 1 回目粉碎後、篩いデータ

	粉碎量	粉碎時間	ボール数	篩処理量	250 $\mu\text{m}$ 以上	63~250 $\mu\text{m}$	63 $\mu\text{m}$ 以下
試料B 乾燥 後250 $\mu\text{m}$ 以上 篩処理した 1回目	1.5kg	30分	110	500 g	159	200	141
					32%	40%	28%
					170	224	132
					34%	45%	26%
	1.5kg	1時間	110	500 g	55	264	181
					11%	53%	36%
					64	284	156
					13%	57%	31%
	2.5kg	6時間	110	500 g	146	234	120
					29%	47%	24%
	3kg	10分	110	500 g	393	70	37
					79%	14%	7%
	3kg	1時間	110	500 g	285	140	64
					57%	28%	13%
	3kg	3時間	110	500 g	243	178	79
					49%	36%	16%
	3kg	1時間	55	500 g	366	97	38
					73%	19%	8%
					362	94	48
					72%	19%	10%
	4.5kg	1時間	110	500 g	355	90	54
					71%	18%	11%
					354	124	23
					71%	25%	5%
4.5kg	3時間	110	500 g	328	122	49	
				66%	24%	10%	
				340	120	43	
				68%	24%	9%	
4.5kg	4時間	110	500 g	253	151	96	
				51%	30%	19%	
				253	153	105	
				51%	31%	21%	



試料 B の篩後 250  $\mu\text{m}$  以上試料の 2 回目粉碎後，篩いデータ

	粉碎量	粉碎時間	ボール数	篩処理量	250 $\mu\text{m}$ 以上	63~250 $\mu\text{m}$	63 $\mu\text{m}$ 以下
試料B 250 $\mu\text{m}$ 以上の篩処理 2回目	3kg	1時間	110	500 g	323	135	41
					65%	27%	8%
					328	135	37
					66%	27%	7%
	3kg	3時間	110	500 g	198	203	99
					40%	41%	20%
					197	212	90
					39%	42%	18%
	4.5kg	30分	110	500 g	441	52	7
					88%	10%	1%
					447	53	3
					89%	11%	1%
	4.5kg	1時間	110	500 g	411	72	17
					82%	14%	3%
					417	75	13
					83%	15%	3%
	4.5kg	3時間	110	500 g	358	112	30
					72%	22%	6%
					365	111	28
					73%	22%	6%
	4.5kg	5時間	110	500 g	335	130	34
					67%	26%	7%
					331	138	35
					66%	28%	7%
5kg	6時間	110	500 g	351	116	31	
				70%	23%	6%	
				358	121	26	
				72%	24%	5%	



添付資料 3 共同実験参加試験所の測定条件など

供試品作製時での換算放射能濃度(2012-02-01JST00:00:00)

試験所番号	測定条件概要。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。	核種	半減期	エネルギー	放出効率 %	測定時間 live time(秒)	正味カウント数 N-Nb	バックグラウンドカウント数 Nb	ピーク計数率 (カウント数/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)	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'	試料がないときのバックグラウンドカウント数 Nb'	バックグラウンド測定時間* 秒	
1	Ge検出器GEM20P4-70(相対効率20%, 半値幅1.8keV)。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、求めていない。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。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。検出器に直に置く場合に比べて、Cs-134の放射能算出値が12%程度増加した。効率曲線は同じ高さの体積混合線源Co-60,Mn-54,Cs-137の合計4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	2.0648y	604.72	97.62	581750	23446.6		0.040304	10.91	11.29	83.62962963	求め方は報告シート(不確かさ)に記入する。	1017.76		339100	
		Cs-134	2.0648y	795.86	85.53	581750	25614.3		0.04403	10.93	11.31	83.77777778	求め方は報告シート(不確かさ)に記入する。	1069.94		339100	
		Cs-134									10.92	11.3	83.7	求め方は報告シート(不確かさ)に記入する。			
		Cs-137	30.07y	661.66	85.51	581750	16688.5		0.028687	14.86	14.89	110.3	求め方は報告シート(不確かさ)に記入する。	1087.57		339100	
		K-40	1.28E+09	1460.83	10.7	581750	27607		0.047455	50.77	50.77	376.1	求め方は報告シート(不確かさ)に記入する。	13187.1		339100	
	上記項目の出典を記入して下さい WWW Table of Radioactive Isotopes <a href="http://ie.lbl.gov/toi/">http://ie.lbl.gov/toi/</a>																

試験所番号	測定条件概要。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。	HPGe STS12301 Size: U-8 (5 cm)	測定開始日	nuclide	half-life (y)	E(keV)	Live time [sec]	cps	err (1σ)	放出率	weight(g)	eff.	試料測定日の Activity (Bq/kg)	err (1σ)	試料作製日	試料作製日から測定日までの日数	試料作製日の Activity (Bq/kg)	err (1σ)	
2	K-40:和光の塩化カリウム99.9%をU8容器に土壤標準物質と同じ容積になるように密に詰めて測定しています。測定時間:98858秒 Gross: 65349 カウント Net: 63713 カウント これまで岩石試料等で組成を求め、自己吸収の計算をしてきましたが、K-40のγ線エネルギーでは影響がないため今回は補正を行っていません。塩化カリウム中のK-40については同位体存在比と質量より計算を行っています。岩石試料中のカリウムの定量値より算出した放射能濃度と実測値の比較も行っております。		2008/3/26	Cs-134	2.065	604.7	344,222	0.0829	0.0005	0.976	135.0	8.40E-03	74.9	0.5	2008/1/31	55	79	1	
				Cs-137	30.07	661.7	344,222	0.0993	0.0006	0.851	135.0	7.35E-03	118	1	2008/1/31	55	118	1	
				K-40	1.277E+09	1460.8	344,222	0.0207039	0.0003	0.108	135.0	0.0036	0.3977	4.9	2008/1/31	55	398	4.9	
				KCl (K-40) Bq/g	16.3														
				分岐比 (%)	10.8														
				サンプル	Energy / keV	高さ (cm)	KCl 正味の重量 (g)	放射能強度 (Bq)	gps	cps (net)	eff.								
				KCl U-8	1460.8	5	104	1688	182	0.65	0								
				サンプル	サンプル (g)														
				STS12301	135.0														
				サンプル	高さ (mm)	Measurement date	IAEA correction date	Elapsed time (day)	IAEA Activity (2007) (Bq/kg)				λ Cs-134 (day)	λ Cs-137 (day)	Corrected Activity (2011) (Bq/kg)				weight (kg)
		IAEA-444 30mm	30	2007/11/1	2003/10/14	1479	59.4	1.7	68.5	1.4	9.19E-04	6.29E-05	15.3	0.4	62.4	1.3	0.0632		
		IAEA-444 35mm	35	2007/11/3	2003/10/14	1481	59.4	1.7	68.5	1.4	9.19E-04	6.29E-05	15.2	0.4	62.4	1.3	0.0731		
		IAEA-444 40mm	40	2007/10/17	2003/10/14	1464	59.4	1.7	68.5	1.4	9.19E-04	6.29E-05	15.5	0.4	62.5	1.3	0.0772		
		IAEA-444 45mm	45	2007/10/26	2003/10/14	1473	59.4	1.7	68.5	1.4	9.19E-04	6.29E-05	15.3	0.4	62.4	1.3	0.0863		

試験所番号	測定条件概要。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。	核種	半減期	エネルギー	放出効率 %	測定時間 live time(秒)	正味カウント数 N-Nb	バックグラウンドカウント数 Nb	ピーク計数率 (カウント数/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)	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'	試料がないときのバックグラウンドカウント数 Nb'	バックグラウンド測定時間* 秒	
3	Cs-137及びCs-134の塩酸溶液の放射能をそれぞれ電離箱で測定した後、希釈してU-8容器に入れたものを自作して、それぞれCs-137及びCs-134に対するゲルマニウム半導体検出器の校正に使用した。また日本アイソトープ協会が販売している放射能標準ガンマ体積線源(9核種)を用いて効率曲線を作成しK-40に対する効率を内挿により求めた。Cs-134の標準線源で配置を合わせて効率校正しており、サム効果は織り込み済み。自己吸収はEGSで計算評価して補正した。	Cs-134	2.1年	96 + 802 keV	2.74%	8万秒と20万秒の加重平均	77282と59203						2.74%				
		Cs-134	2.1年	605 keV	3.15%	8万秒と20万秒の加重平均	30379と77282						2.44%				
		Cs-137	30.2年	662 keV	3.64%	8万秒と20万秒の加重平均	37813と94835										
		K-40		1461 keV	2.44%	8万秒と20万秒の加重平均	11712と29926										
			上記項目の出典を記入して下さい														

*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 %	測定結果
Cs-134		2.74%	Cs-137 1.184E-01 Bq g <sup>-1</sup> 相対拡張不確かさ 7.9% (k=2) Cs-134 9.085E-02 Bq g <sup>-1</sup> 相対拡張不確かさ 7.0% (k=2) K-40 4.077E-01 Bq g <sup>-1</sup> 相対拡張不確かさ 7.5% (k=2) 参照日: 2012年2月1日 JST 00:00
Cs-137		3.64%	
K-40		2.44%	
*定量に使用した感度係数(cps/Bq)			
Cs-134		2.74%	
Cs-137		3.64%	
K-40		2.44%	

試験所番号	測定条件概要。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。	核種	半減期 (年)	エネルギー	放出効率 %	測定時間 live time(秒)	正味カウント数 N-Nb	バックグラウンドカウント数 Nb	ピーク計数率 (カウント数/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)	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'	試料がないときのバックグラウンドカウント数 Nb'	バックグラウンド測定時間* 秒
4	測定試料形状依存性は <sup>137</sup> Cs容積線源を、エネルギー依存性は混合核種線源を、それぞれ測定して求めた。なお、 <sup>57</sup> Co、 <sup>60</sup> Co及び <sup>86</sup> 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、 <sup>134</sup> Csはサム効果の影響を補正した。	Cs-134	2.06	795.8	85.4	75814	7583.1	498.9	0.100022	11	12	87	8.7	19.8	284.2	145812
		Cs-137	30.14	661.6	85.1	75814	12984.3	524.7	0.171265	16	16	120	11	13.4	252.6	145812
		K-40	1277000000	1460.8	10.7	75814	2960.7	123.3	0.039052	54	54	400	41	27.7	142.3	145812
			上記項目の出典を記入して下さい Atomic Data and Nuclear Data Tables (1983年)													

試験所 番号	Ge検出器とγ線スペクトロメトリ検出効率に関する情報を記載する。		
1	・感度係数(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源名	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源Co-60,Mn-54,Cs-137等線源コードMX033U8PP, 線源番号0211	
	・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 %	
	Cs-134	感度係数は求めていない, 以下同じ	605KeV 0.3503
	Cs-137		796keV 0.2732
	K-40		0.3229
			0.1577
	・定量に使用した感度係数		
Cs-134		605KeV 0.3503	
Cs-137		796keV 0.2732	
		0.3229	
		0.1577	

試験所 番号	2
-----------	---

Corrected Activity (2011) (Bq)				count						time (sec)	count/sec.					
Cs-134	error	Cs-137	error	Cs-134(605)	error	Cs-137(662)	error	Cs-134(796)	error	Cs-134(605)	error	Cs-137(662)	error	Cs-134(796)	error	
0.96	0.03	3.94	0.08	1,639	57	6,028	88	1,380	53	174,670	0.00938	0.00032	0.03451	0.00050	0.00790	0.00030
1.11	0.03	4.56	0.09	2,752	76	10,068	113	2,293	66	265,868	0.01035	0.00029	0.03787	0.00042	0.00862	0.00025
1.19	0.03	4.82	0.10	1,644	56	5,938	87	1,419	52	165,141	0.00996	0.00034	0.03596	0.00053	0.00859	0.00031
1.32	0.04	5.39	0.11	3,014	78	10,729	177	2,474	69	270,979	0.01112	0.00029	0.03959	0.00065	0.00913	0.00025

Efficiency					
Cs-134(605)	error	Cs-137(662)	error	Cs-134(796)	error
9.74E-03	4.37E-04	8.75E-03	2.20E-04	8.20E-03	3.54E-04
9.30E-03	3.69E-04	8.30E-03	1.94E-04	7.75E-03	2.75E-04
8.34E-03	3.71E-04	7.46E-03	1.88E-04	7.20E-03	3.02E-04
8.40E-03	3.25E-04	7.35E-03	1.93E-04	6.90E-03	2.37E-04

試験所 番号	3
-----------	---

不確かさ	Cs-137	Budget	Cs-137	Budget	Cs-134	Budget	K-40
	1.184E-01 Bq g-1	Counting	0.26%	Counting	0.33%	Counting	0.51%
	7.8% u(k=2)	Background	0.02%	Background	0.02%	Background	0.11%
	9.085E-02 Bq g-1	Repeatability	0.09%	Repeatability	0.11%	Repeatability	0.62%
	6.9% u(k=2)	Sampling	0.00%	Sampling	0.00%	Sampling	0.00%
	4.077E-01 Bq g-1	Dilution	0.35%	Dilution	0.35%	Dilution	0.35%
	7.4% u(k=2)	IC Calb.	0.80%	IC Calb.	0.60%	IC Calb.	0.80%
		Half life	0.01%	Half life	0.01%	Half life	0.02%
		E. Rate	0.23%	E. Rate	0.45%	E. Rate	1.03%
		weiging	0.01%	weiging	0.01%	weiging	0.01%
		time	0.10%	time	0.10%	time	0.10%
		Ge Stability	0.22%	Ge Stability	0.22%	Ge Stability	0.22%
		Ge Calibration	1.03%	Ge Calibration	0.85%	Ge Calibration	1.03%
		Density Corr.	2.45%	Density Corr.	1.85%	Density Corr.	1.60%
		Compound Corr	0.58%	Compound Corr	0.58%	Compound Corr	0.58%
		充填高さ	2.63%	充填高さ	2.57%	充填高さ	2.63%
						Efficiency tracing	0.58%
		Square Sum	3.91%	Square Sum	3.45%	Square Sum	3.71%
		U(k=2)	7.82%	U(k=2)	6.91%	U(k=2)	7.41%

試験所 番号	4
-----------	---

・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: AEA Technology plc QCD1 2956QB	
・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	
エネルギー依存性(9核種混合点線源)		
Cd-109	0.00153	0.0424
Co-57	0.0358	0.0419
Ce-139	0.0284	0.0355
Hg-203	0.0184	0.0226
Sn-113	0.0103	0.0160
Sr-85	0.0123	0.0124
Cs-137	0.00845	0.00992
Y-88(898keV)	0.00713	0.00758
Y-88(1836keV)	0.00401	0.00403
Co-60(1173keV)	0.00595	0.00596
Co-60(1333keV)	0.00535	0.00535
測定試料形状依存性( <sup>137</sup> Cs水容積線源)		
6.37mm	0.0268	0.0315
10.94mm	0.0236	0.0278
21.54mm	0.0197	0.0232
30.79mm	0.0170	0.0199
40.96mm	0.0147	0.0173
50.22mm	0.0132	0.0155
・定量に使用した感度係数(cps/Bq)		
Cs-134	0.00887	0.0104
Cs-137	0.0110	0.0129
K-40	0.000727	0.00680

工程	不確かさの要因	記号	標準不確かさ(%)		
			300keV未満	300keV以上	
試料調製	秤量	$u_1$	0.01	0.01	
	厚さの測定	$u_2$	0.45	0.45	
	校正用線源	$u_3$	3.1	2.0	
	検出条件	—			
	不感時間	—			
	測定系の変動	—			
	エネルギー依存性	計数誤差	$u_4$	0.260	0.249
		放出比	$u_5$	2.77	0.320
		校正式フィッティング	$u_6$	1.4	0.63
		ヤム効果補正	—		
自己吸収補正		—			
減衰補正		$u_7$	0.03	0.02	
校正		秤量	$u_8$	0.29	0.29
		厚さの測定	$u_9$	0.51	0.51
		校正用線源	$u_{10}$	1.5	1.5
		検出条件	—		
	不感時間	—			
	測定系の変動	—			
	試料形状依存性	計数誤差	$u_{11}$	0.30	0.30
		放出比	$u_{12}$	0.235	0.235
		校正式フィッティング	$u_{13}$	0.57	0.57
		自己吸収補正	—		
減衰補正		$u_{14}$	0.004	0.004	
測定		検出条件	—		
		不感時間	—		
		測定系の変動	$u_{15}$	2.89	2.89
		計数誤差	$u_{16}$	0.21	0.44
		放出比	$u_{17}$	2.77	2.65
	ヤム効果補正	—			
	自己吸収補正	—			
	減衰補正	$u_{18}$	0.008	0.01	
	合成標準不確かさ	$u_c$	6.22	4.84	

試験所番号	測定条件概要。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。	核種	半減期(日)	エネルギー(keV)	放出効率 %	測定時間 live time(秒)	正味カウント数 N-Nb	バックグラウンドカウント数 Nb	ピーク計数率 (カウント/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) 均質性を評価した場合	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'	試料がないときのバックグラウンドカウント数 Nb'	バックグラウンド測定時間* 秒
5	本結果は指示書に基づきサンプルを一回測定した結果です。試料を開封し、充てん及び測定を数回繰り返し、試料の均質性の調査を行いました。不確かさはこの均一性評価を含むものと、含まないもの(顧客との協定により均質と仮定した評価)の2種類を提出します。いずれを選択するかはお任せ致します。均質性については、U8タイプの容器(PP製)に4回詰め替えて測定し、その実験標準偏差で評価した。密度は、U8タイプの容器へ充填する都度測定した。密度は、充填質量を充填容量で除することにより求めた。 *Cs-134 サム効果補正有 自己吸収補正有 *Cs-137 サム効果補正無 自己吸収補正有 *K-40 サム効果補正無 自己吸収補正有 *ピーク効率校正時の各種補正 (Cs-134及びK-40では、ピーク効率を求めるために他の核種の効率を用いているため、サム効果が発生する核種についてはサム効果補正を行った。自己吸収補正は必要な全ての核種で行った。)	Cs-134	754.3	605	97.62	200000	25843	2142	0.129	11.21	11.68	86.5	4.9	-11	606	200000
		Cs-137	10975.5	662	84.99	200000	30975	1413	0.155	15.66	15.71	116	7.2	38	421	200000
		K-40	4.6E+11	1461	10.55	200000	7452	284	0.037	54.87	54.87	406	34	573	166	200000
		上記項目の典拠を記入して下さい Cs-134 : Evaluated Nuclear Structure Data File, NNDc, Brookhaven National Laboratory (2004年10月) Cs-137, K-40 : TABLE DE RADIONUCLIDES 2007														
		核種	放射能濃度 (Bq/g)	相対拡張不確かさU(k=2) (%)												
		Cd-109	22.733	3.1												
		Co-57	1.527	2.1												
		Ce-139	1.618	2.1												
		Cr-51	37.954	2.3												
		Sr-85	1.922	2.1												
		Cs-137	1.917	2.0												
		Mn-54	2.137	1.9												
		Y-88	2.285	1.9												
		Co-60	2.511	1.8												
		上記の水溶液をU8容器に充填し、標準線源とした。 標準線源は、複数の充填高さのものを製造して用いた。														
		keV	質量減弱係数(cm <sup>2</sup> /g)	線減弱係数(/cm)												
		605	8.94E-02	8.94E-02	標準線源の媒質 : 水											
		662	8.58E-02	8.58E-02	密度 : 1.00g/cm <sup>3</sup>											
		1461	5.81E-02	5.81E-02												
		keV	質量減弱係数(cm <sup>2</sup> /g)	線減弱係数(/cm)	測定試料の媒質 : 土壌											
		605	7.92E-02	1.15E-01	密度 : 1.45g/cm <sup>3</sup>											
		662	7.60E-02	1.10E-01												
		1461	5.04E-02	7.30E-02												

試験所番号	測定条件概要。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。	核種	半減期	エネルギー	放出効率 %	測定時間 live time(秒)	正味カウント数 N-Nb	バックグラウンドカウント数 Nb	ピーク計数率 (カウント/秒)	測定時の放射能 Bq/g	供試品作製時の放射能 Bq/g	供試品作製時の放射能濃度 (Bq/kg)	拡張不確かさ (k=2) (Bq/kg)	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'	試料がないときのバックグラウンドカウント数 Nb'		
6	Canberra GX2019 (S/N 03036329), Canberra の Gamma explorer(ソフト)を用いて、定量分析を行った。Cs-134は検出されたピークを「10.3.2 荷重平均の計算」、放射能測定法シリーズ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(H4改訂)、p.156を参照	Cs-134	Y	475.35	1.47	100000	353.52	51.11	1852.06	0.0035352	1.10208E-01	1.59328E-02	1.14917E-01	1.66135E-02	1.149E+02	1.661E+01	
		Cs-134	Y	563.26	8.38	100000	1247.11	53.23	1536.6	0.0124711	8.10270E-02	3.45814E-03	8.44889E-02	3.65890E-03	8.449E+01	3.659E+00	
		Cs-134	Y	569.29	15.43	100000	2205.92	61.5	1247.26	0.0220592	7.86849E-02	2.18119E-03	8.20460E-02	2.27438E-03	8.205E+01	2.274E+00	
		Cs-134	Y	604.66	97.56	100000	14788.44	127.47	1080.54	0.1478844	8.39576E-02	7.23659E-04	8.75447E-02	7.54577E-04	8.754E+01	7.546E-01	
		Cs-134	Y	795.76	85.44	100000	9988.15	104.52	498.08	0.0998815	8.16893E-02	8.54854E-04	8.51794E-02	8.91378E-04	8.518E+01	8.914E-01	
		Cs-134	Y	801.84	8.73	100000	929.05	39.24	430.77	0.0092905	7.60390E-02	3.21181E-03	7.92881E-02	3.34904E-03	7.929E+01	3.349E+00	
		Cs-134	Y	1167.86	1.81	100000	227.04	25.45	364.17	0.0022704	1.06335E-01	1.19180E-02	1.10878E-01	1.24271E-02	1.109E+02	1.243E+01	
		Cs-134	Y	1365.13	3.04	100000	305.22	21.62	158.65	0.0030522	9.24080E-02	6.54541E-03	9.63561E-02	6.82506E-03	9.636E+01	6.825E+00	
		Cs-134				100000								8.620E+01	5.419E-01		
		Cs-137	Y	661.64	85.1	100000	17818.29	137.39	716.4	0.1781829	1.163533E-01	8.985700E-04	1.168670E-01	9.011430E-04	1.169E+02	9.011E-01	
		K-40	Y	1460.75	10.7	100000	4012.8	67.04	148.9	0.040128	4.104080E-01	6.856420E-03	4.104080E-01	6.856420E-03	4.104E+02	6.856E+00	
		上記項目の典拠を記入して下さい 関数適合法   関数適合法   積算法 γ線解析プログラム(キャンベラジャパン、平成15年)															
		γ線解析プログラム(キャンベラジャパン、平成15年)を用いて計算。別紙-1:放射能換算係数一覧表															

γ線解析プログラム(キャンベラジャパン、平成15年)の関数適合法を用いて計算。

(\*)表-1:放射能換算係数一覧

核種	エネルギー	放出効率	ピーク効率	近似効率	自己吸収補正	サム補正	一カウン	ピークカウント誤差	γ線放出比	ピーク効率	測定ライブタイム	感度係数	測定時の放射能		
	keV	%	cps/γps	ε <sup>*</sup>			N	σN	Iγ	ε	T	Iγ*ε	A	σA	
Cs-134	475.35	1.47	1.62194E-02	2.18149E-02	8.11012E-01	9.16756E-01	353.52	51.11	0.015	1.62194E-02	100000	2.43291E-04	1.10208E-01	1.59328E-02	
	563.26	8.38	1.36049E-02	1.85988E-02	8.22287E-01	8.89587E-01	1247.11	53.23	0.084	1.36049E-02	100000	1.14282E-03	8.10270E-02	3.45814E-03	
	569.29	15.43	1.34586E-02	1.84140E-02	8.22996E-01	8.88084E-01	2205.92	61.15	0.154	1.34586E-02	100000	2.07262E-03	7.86849E-02	2.18119E-03	
	604.66	97.56	1.33739E-02	1.74025E-02	8.27010E-01	9.29254E-01	14788.44	127.47	0.976	1.33739E-02	100000	1.30529E-02	8.39576E-02	7.23659E-04	
	795.76	85.44	1.06005E-02	1.34663E-02	8.45218E-01	9.31339E-01	9988.15	104.52	0.854	1.06005E-02	100000	9.05279E-03	8.16893E-02	8.54854E-04	
	801.84	8.73	1.03669E-02	1.33712E-02	8.45719E-01	9.16756E-01	929.05	39.24	0.087	1.03669E-02	100000	9.01923E-04	7.60394E-02	3.21181E-03	
	1167.86	1.81	8.76232E-03	9.43729E-03	8.69965E-01	1.06726E+00	227.04	25.45	0.018	8.76232E-03	100000	1.57722E-04	1.06335E-01	1.19180E-02	
	1365.13	3.04	8.04828E-03	8.17369E-03	8.79637E-01	1.11939E+00	305.22	21.63	0.030	8.04828E-03	100000	2.41448E-04	9.24080E-02	6.54541E-03	
	Cs-137	661.64	85.1	1.33249E-03	1.59963E-03	8.33001E-01	1.00000E+00	17818.29	137.39	0.850	1.33249E-03	100000	1.13262E-03	1.16533E-01	8.98570E-04
	K-40	1460.75	10.7	6.78788E-03	7.68084E-03	8.83742E-01	1.00000E+00	4012.80	67.04	0.107	6.78788E-03	100000	7.26303E-04	4.10408E-01	6.85642E-03

ε\*: 近似効率x自己吸収補正xサム補正

試験所番号
5

・Ge検出器の相対効率	23%
・検出効率(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源名	9核種混合 放射能標準ガンマ体積線源(U8タイプ) 媒質: 水
・検出効率(cps/Bq)を求めるために使用した全ての核種の検出効率(cps/Bq)	
Cs-134	省略
Cs-137	省略
K-40	省略
・定量に使用した検出効率(cps/Bq)	
Cs-134	1.154E-2(605keV)
Cs-137	9.877E-3(662keV)
K-40	6.268E-4(1461keV)

不確かさの要因	Type	相対標準偏差(%)		
		Cs-134 (605keV)	Cs-137 (662keV)	K-40 (1461keV)
計数統計	A	0.70	0.61	1.38
ピーク効率校正	B	1.62	1.33	1.49
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	0.11	0.24	0.95
均質性	B	1.97	2.61	3.50
自己吸収補正	B	0.81	0.72	0.50
カスケードサム効果補正	B	0.70	0.00	0.00
相対合成標準不確かさ(k=1)		2.9	3.1	4.2
相対拡張不確かさ(k=2)		5.71	6.18	8.36

不確かさの要因	Type	相対標準偏差(%)		
		Cs-134 (605keV)	Cs-137 (662keV)	K-40 (1461keV)
計数統計	A	0.70	0.61	1.38
ピーク効率校正	B	1.62	1.33	1.49
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	0.11	0.24	0.95
自己吸収補正	B	0.81	0.72	0.50
カスケードサム効果補正	B	0.70	0.00	0.00
相対合成標準不確かさ(k=1)		2.1	1.6	2.3
相対拡張不確かさ(k=2)		4.1	3.3	4.6

試験所番号	バックグラウンド測定時間* 秒
6	1300000
	1300000
	1300000
	1300000
	1300000
	1300000
	1300000
	1300000
	1300000

・感度係数(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源名	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	
・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 %	
Cs-134	表1:放射能換算係数一覧表(*)を参照	1.622(475.35keV), 1.360(563.26keV), 1.346(569.29keV), 1.337(604.66keV), 1.060(795.76keV), 1.037(801.84keV), 0.876(1167.86keV), 0.805(1365.13keV)
Cs-137	0.001132619	1.332
K-40	0.000726303	0.679
・定量に使用した感度係数(cps/Bq)	表1:放射能換算係数一覧表(*)を参照	
Cs-134	0.001132619	
Cs-137	0.001132619	
K-40	0.000726303	

試験所 番号	測定条件概要。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。 キャンベラISOCSによる効率計算の前提は添付資料11を参照。
7	RI協会のU8標準線源(9核種混合線源)で校正。こちらではCo-60とY-88のサム効果の補正もしていないので、1MeV以上では計数効率曲線が落ちていられると思われる。したがって、定量結果は高くなる可能性がある。K40は塩化カリウムで求めるのが最適だと思われる。添付資料4に検出器(Ge-P6:キャンベラGC-2518)について、U8線源で求めたものと、ISOCS/LabSOCSで計算した効率曲線を比較して示す。

使用検出器：Ge-P6:キャンベラ GC-2518 (11037695)  
 NBG 測定日：2012年3月4日 16:30:08 LT: 86401.8sec、RT: 86410.8sec  
 試料測定日：2012年3月5日 16:33:06 LT: 82706.1sec、RT: 82727.5sec  
 効率計算：キャンベラ ISOCS  
 試料重量：138g  
 土壌試料比重：1.53  
 サム効果補正  
 バックグラウンド差し引き  
 2/1に減衰補正  
 定量結果 (Bq/kg)  
**Cs-134： 78.4 ± 0.6**  
**Cs-137： 107 ± 1**  
**K-40： 362 ± 7**

} 共同実験結果として採用

使用検出器：Ge-P6:ORTEC GEM-13190-P  
 NBG 測定日：2012年3月7日 15:52:27 LT: 100,000sec、RT: 100,009sec  
 試料測定日：2012年3月8日 19:43:51 LT: 100,000sec、RT: 100,018.4sec  
 定量結果 (Bq/kg)  
**Cs-134： 604keV:72.6 ± 0.9、795keV 77.2 ± 1.1**  
**Cs-137： 106 ± 1**  
**K-40： 438 ± 11**

試験所 番号	測定条件概要。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。	核種	半減期	エネルギー	放出効率 %	測定時間 live time(秒)	正味カウント数 N-Nb	バックグラウンド カウント数 Nb	ピーク計 数率 (カウント 数/秒)	測定時の放射能 Bq	供試品作製時 の 放射能 Ba	供試品作製時の 放射能濃度 (Bq/kg)	拡張不確かさ (k=2) (Bq/kg)	試料がないと きの正味バック グラウンドカ ウント数 N'	試料がないと きのバックグラ ウンドカウント 数 Nb'	バックグラウンド 測定時間* 秒	
8	<ゲルマニウム半導体検出器> GC2018(CANBERRA社) <校正方法> 校正方法は以下の通り。 ・2L体積標準線源を用い、エネルギー校正を実施する。 ・高さ別の体積標準線源を用い、効率校正を実施する。 ・校正の際、自己吸収補正及びサム補正を実施する。 (自己吸収補正項、サム補正項は、既知のデータを用いる) <測定方法> 放射能濃度の計算方法は以下の通り。 ①求めるピークを含むスペクトルを「ベース関数」及び「ガウス関数」に近似させる。 ②「ガウス関数」の近似式より、ピーク面積を算出する。(ピークがガウス関数に適合しない場合は、ピークを積算し面積を求める) ③以下の式により、放射能濃度を算出する。 放射能濃度=ピーク面積÷(放出効率×検出効率×測定時間×試料重量×自己吸収補正項×サム効果補正項)	Cs-134	2.062Y	個々のエネルギーを記入する 569.32keV	個々に記入する 15.43	36000	814.5	450.9	0.022625	10.41	10.66	78.94	6.842	12.2	73.8	24000	
		Cs-134	2.062Y	個々のエネルギーを記入する 604.70keV	個々に記入する 97.60	36000	5236.8	443.6	0.145467	10.64	10.90	80.71	2.352	12.9	78.1	24000	
		Cs-134	2.062Y	個々のエネルギーを記入する 795.85keV	個々に記入する 85.40	36000	3728.1	159.7	0.103558	11.11	11.38	84.28	2.85	-4.8	57.8	24000	
		Cs-134	2.062Y	個々のエネルギーを記入する 801.93keV	個々に記入する 8.73	36000	373	133.8	0.010361	11.13	11.40	84.41	10.83	12.6	50.4	24000	
		Cs-134		高濃度(平均値など)を記入する。求め方の詳細は表紙のコメント欄へ記載する。 604.70keV									80.71	2.352	12.9	78.1	24000
		Cs-137	30.00Y	661.66keV	85.21	36000	6334.2	329.0	0.17595	14.80	14.83	109.8	2.842	17	68.0	24000	
		K-40	1.277×10 <sup>9</sup> Y	1460.75keV	10.67	36000	1479.1	36.9	0.041086	52.31	52.31	387.5	24.14	76.2	15.8	24000	
上記項目の出典を記入して下さい 標準物質 試料番号1-1-2													*拡張不確かさについては、分析工程全般における不確かさが未定であるため、暫定的に計数率の誤差の2倍値(2σ)を記載した。なお、拡張不確かさについては、4月中に社内で検証し算定する予定であり、必要であれば追加での提出は可能。				

試験所 番号
7

試験所 番号	・感度係数(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源名	放射能標準ガンマ体積線源
	・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 %
8	Cs-134	別表に示す。
	Cs-137	別表に示す。
	K-40	
	・定量に使用した感度係数(cps/Bq) *	
	Cs-134	$1.367 \times 10^{-2}$
	Cs-137	$1.189 \times 10^{-2}$
	K-40	$7.242 \times 10^{-4}$
*別表に示す標準線源の測定結果を関数化した効率校正式により、近似値を求めた。		

核種名	エネルギー (eV)	感度係数(cps/Bq)				検出効率(%)			
		0.6cm	1.3cm	3.3cm	5.0cm	0.6cm	1.3cm	3.3cm	5.0cm
Cd-109	88.03	0.653	0.577	0.403	0.303	0.172	0.152	0.106	0.080
Co- 57	122.06	15.227	13.594	9.315	7.066	0.178	0.159	0.109	0.083
Co- 57	136.47	1.824	1.623	1.103	0.841	0.164	0.146	0.099	0.076
Ce-139	165.85	11.08	9.937	6.979	5.317	0.139	0.124	0.087	0.067
Cr- 51	320.08	0.770	0.678	0.470	0.356	0.075	0.066	0.046	0.035
Sr- 85	514	4.594	4.066	2.715	2.067	0.046	0.041	0.027	0.021
Cs-137	661.64	3.150	2.782	1.853	1.387	0.037	0.033	0.022	0.016
Mn- 54	834.83	2.965	2.648	1.764	1.334	0.030	0.026	0.018	0.013
Y - 88	898.02	2.587	2.240	1.517	1.138	0.028	0.025	0.017	0.012
Co- 60	1173.21	2.142	1.889	1.261	0.927	0.021	0.019	0.013	0.009
Co- 60	1332.47	1.901	1.681	1.118	0.824	0.019	0.017	0.011	0.008
Y - 88	1836.13	1.404	1.231	0.813	0.600	0.014	0.012	0.008	0.006

試験所 番号	測定条件概要。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。	均質性試験結果										
		測定順序		Cs-134		Cs-137		K-40		測定時間sec		
		○-○-1	○-○-2	○-○-1	○-○-2	○-○-1	○-○-2	○-○-1	○-○-2			
10		1-1	⑤		80.31583		114.328		809.5698		44000	
		1-2		③		78.71056		116.2794		809.1691	65000	
		2-1	②		81.35640		116.3298		790.6336		50000	
		2-2		⑥		81.71428		118.4895		820.3404	54000	
		3-1	④		77.85454		116.7236		796.4884		36000	
		3-2		①		81.16382		117.706		792.0969	36000	
				平均値		80.19		116.6		803.0		
				標準偏差		1.57		1.4		11.8		
				RSD %		2.0%		1.2%		1.5%		

試料名	測定日	測定時	基準時からの経過時間(分)	測定値(Bq/kg)	測定値(Bq/kg) Cs-137	測定値(Bq/kg) K-40	減衰補正 Cs-134	減衰補正 Cs-137	減衰補正 K-40
1-1	2012/2/28	20:36	40116	80.31583	114.328	428.9676112	82.40	114.53	428.97
1-2	2012/2/26	14:17	36857	78.71056	116.2794	428.571754	80.58	116.47	428.57
2-1	2012/2/25	18:24	35664	81.3564	116.3298	410.0437957	83.23	116.51	410.04
2-2	2012/2/29	17:26	41366	81.71428	118.4895	439.7569071	83.90	118.70	439.76
3-1	2012/2/27	19:09	38589	77.85454	116.7236	415.9011959	79.80	116.92	415.90
3-2	2012/2/23	9:38	32258	81.16382	117.706	411.5098009	82.85	117.87	411.51

→共同実験結果として採用

基準日 2012/2/1 基準時 0:00 減衰係数 6.38434E-07 減衰係数 4.38038E-08 減衰係数 1.05648E-15  
半減期(年) 2.0652 半減期(年) 30.1 半減期(年) 1248000000  
31680

試料番号	測定時間sec	ピーク面積	Bq/kg	1秒あたりのBG寄与	BG差し引いた正味のピーク面積	<sup>40</sup> K 真Bq/kg
BG	43200	1664		0.038518519		
1-1	44000	3605	809.5698		1910	429.0
1-2	65000	5323	809.1691		2819	428.6
2-1	50000	4000.9	790.6336		2075	410.0
2-2	54000	4483.4	820.3404		2403	439.8
3-1	36000	2902	796.4883		1515	415.9
3-2	36000	2886	792.0969		1499	411.5
平均値						422.46
標準偏差						11.80
RSD %						2.8%

試験所 番号	測定条件概要。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。	核種	半減期	エネルギー	放出効率 %	測定時間 live time(秒)	正味カウント数 N-Nb	バックグラウンドカウント数 Nb	ピーク計数率 (カウント数/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)	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	試料がないときのバックグラウンドカウント数 Nb	バックグラウンド測定時間* 秒	
11	オルテックGMX-60P4-83 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のピークおよび、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。サム効果：Cs-134について実施。  自己吸収補正：全核種について実施。  校正：標準ガンマ体積線源高さ5段階(5, 10, 20, 30, 50mm)を用いて実施。  測定方法：試料の充填高さ、密度、重量及び試料材質の情報を入力し、セイコー イージアンドジー(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)により定量する。	Cs-134	2.062年	604.66	97.56	80000	18066.6	1617.4	0.225833	11.2	11.8	87.2	検討中	0	0	250000	
		Cs-134	2.062年	795.76	85.44	80000	13273.0	836.5	0.165913	11.2	11.8	87.3	検討中	0	0	250000	
		Cs-134								#DIV/0!				検討中			
		Cs-134								#DIV/0!				検討中			
		Cs-134			604.66								87.2	検討中	0	0	250000
		Cs-137	3.0174×10 <sup>1</sup> 年	661.64	85.00	80000	23100.8	1232.2	0.28876		15.8	15.8	117	検討中	0	0	250000
		K-40	1.277×10 <sup>9</sup> 年	1460.75	10.67	80000	5812.2	276	0.072653		54.0	54.0	400	検討中	465	473	250000
	上記項目の出典を記入して下さい 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)																

試験所 番号	測定条件概要。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。	核種	半減期 (Y)	エネルギー (KeV)	放出効率 (%)	測定時間 live time(秒)	正味カウント数 N-Nb	バックグラウンドカウント数 Nb	ピーク計数率 (カウント数/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)	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	試料がないときのバックグラウンドカウント数 Nb	バックグラウンド測定時間* 秒	
12	検出効率の算出はシングルガンマ核種である139Ce(165.9KeV)、137Cs(661.6KeV)とマルチガンマではあるがほとんど514KeVのγ線しかださない85Srを用いた。測定位置は検出器表面から約6cmの距離で行った。なお、検出効率は(Bq <sub>γ</sub> /Bq <sub>0</sub> )で求めている。	Cs-134	2.065	604.7	0.976	199922.7	9536		0.047698	10.93	11.46	84.87	検討中	376		186698	
		Cs-134		795.9	0.854	199922.7	7119		0.035609	11.18	11.72	86.82	検討中	310		186698	
		Cs-134										平均値(JSAC)	85.85	検討中			
		Cs-137	30.07	661	0.851	199922.7	10983		0.054936	14.55	14.60	108.1	検討中	697		186698	
		K-40	1.28E+09	1460.9	0.1067	199922.7	7810		0.039065	48.33	48.33	388.6	検討中	4816		186698	
	上記項目の出典を記入して下さい Table of Isotopes 8th																

試験所番号  
10

分析化学3-2-2. CHN ①

Acquired:2012-02-23 21:09:38 Real Time:36014.6(sec) Live Time:36000.0(sec)

<b>[試料]</b> 試料コード: 採取場所: 前処理形態: 材質:	試料名称 : 2-2-2 分析順1 容器種別 : U-8 密度 : 1.000 (g/cm3) 検出器番号:1	採取者: ecshyama 試料量: 0.135 kg 回収率: 100.000 (%) 充填高: 50.000 (mm) 測定者: okada
<b>[測定]</b> 測定番号: 測定目的: 試料特徴: 測定条件:	福島20km圏内森林測定 土壌 なし	
試料採取開始日時: 試料採取終了日時: 測定開始日時:	:2012年 2月 1日 0時 0分 0秒 :2012年 2月 1日 0時 0分 0秒 :2012年 2月 23日 21時 9分 38秒	
試料採取中の減衰補正: 試料保存中の減衰補正: 測定中の減衰補正:	No Yes Yes	
試料採取時間(秒): 試料保存時間(秒): 測定時間(RT)(秒):	0.0 1976978.0 36014.6	
ピークサーチ方法: ピーク中心計算方法: 検出判定方法: 検出閾値ファクタ: 妨害ピークの判定方法: ピーク位置の固定方法:	:詳細版 平滑化二次微分法ピークサーチ :二次微分係数の3点放物線近似法 :全主要ピークの検出 :3.0 :全定量ピークを妨害基準とする :ピークファクタを変化させて領域設定	サーチ感度 : 3.0 検出閾値 : (F値) × 1.00 妨害閾値 : (F値) × 1.20 低(1.5→1.5→中心) 高(中心→1.5→1.5) ※F値 × F
検出ライブラリ:	:Sample.LIV 登録日:2011年 5月 10日	
基準エネルギー校正: 分析時の再校正: エネルギー校正式: 半値幅校正式:	:ENE_Co57-Co60_ENE 校正日:2011年 4月 15日 :Disable :y = A + Bx <sup>1</sup> : A= 2.7507E-01 B= 4.9986E-01 : y = A + B*SQRT(ENE) : A= 1.9552E+00 B= 5.0320E-02	
効率校正: 効率校正式:	:VS-GroupTakesaReV_EFF 校正日:2011年 7月 5日 : - 分析時に内挿法により算出 - : 1 / Eff = (1/Eff2 - 1/Eff1) * (h - h1) / (h2 - h1) + 1/Eff1	
分析実施日時:	:2012-02-24 09:18:18 分析モード: 環境分析(CA)法主体(定量) 分析領域: 5 - 4091 分析DLL名: 'S:\1.67	

試験所番号	Ge検出器の相対効率	68%
11	検出効率(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源名	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)
	検出効率(cps/Bq)を求めるため	別添の効率校正データの通り(省略)
	検出効率(cps/Bq)を求めるため	別添の効率校正データの通り(省略)
	定量に使用した検出効率	

試験所番号	Ge検出器の相対効率	40%
12	検出効率(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源名	code:MX033SPLU8 混合核種
	検出効率(cps/Bq)を求めるため	
	Cs-134	
	Cs-137	
	K-40	
	定量に使用した検出効率(Bq/Bq)	

試験所 番号	測定条件概要。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。	核種	半減期	エネルギー	放出効率 %	測定時間 live time(秒)	正味カウント数 N-Nb	バックグラウンド カウント数 Nb	ピーク計 数率 (カウント 数/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)	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' *	試料がないと きのバックグラ ウンドカウ ント数 Nb' *	バックグラウンド 測定時間* 秒	
14	Ge検出器は横型を使用し、試料容器の円筒側面を検出器に接触させて測定。容器中の放射性物質の空間分布の不均一性を確認するため、容器を45度ずつ回転させて8方向から測定。最終的にそれら8つのスペクトルを加算して解析に使用。Cs-134,137の定量値は、自作の土壌標準線源との比較測定により決定。Cs-134の定量値は、563, 569, 605, 796keVの4本のγ線を用いて得た値を加重平均して決定。K-40については、上記の土壌標準線源を用いて求めたCs-134,137各γ線の検出効率を指数関数の多項式でフィットしてエネルギー依存曲線を作成し、1461keVにおける検出効率を決定。この用途においてはCs-134の各γ線に対してサム補正が必要であり、全効率の実験値を用いて計算し補正。試料と標準線源の組成と密度の違いに起因する自己吸収等の違いの補正は、実測したγ線吸収係数を用いて計算し補正。添付資料4を参照。	Cs-134	2.0648(10) y	個々のエネルギーを記入する 563.25	個々に記入する 8.36(3)	341307	4189	5810	0.012273	12.33	13.01	96	10	505	2336	250973	
		Cs-134	2.0648(10) y	個々のエネルギーを記入する 569.33	個々に記入する 15.39(6)	341307	7559	6980	0.022147	11.89	12.55	93	6	870	1987	250973	
		Cs-134	2.0648(10) y	個々のエネルギーを記入する 604.72	個々に記入する 97.63(6)	341307	48172	6430	0.14114	12.08	12.75	94.4	4.2	5252	2440	250973	
		Cs-134	2.0648(10) y	個々のエネルギーを記入する 795.86	個々に記入する 85.4(3)	341307	34852	3387	0.102113	12.26	12.93	95.8	4.3	3955	1661	250973	
		Cs-134		定置値(平均値など)を記入する。求め方の詳細は表紙のコマンド欄へ記載する。									95.0	4.1			
		Cs-137	30.07(3) y	661.66	85.1(2)	341307	58427	5776	0.171186	16.79	16.85	124.8	4.5	6566	2227	250973	
		K-40	1.277(8)e+9 y	1460.83	10.67(13)	341307	22532	1161	0.066017	55.22	55.22	409	29	8031	629	250973	
			上記項目の出典を記入して下さい Table of Isotopes 8th 1998 Update (Cs134の放出率のみJAEA核図表2010)														

## 不確かさ

(1) 自作の土壌標準線源中のCs-134,137のBq数の不確かさ(1 $\sigma$ )

Cs-134	2.06%
Cs-137	1.67%

この不確かさは主に  
点線源に対するエネルギー依存検出効率曲線の不確かさ±1.5%と統計誤差による。  
エネルギー依存曲線作成に使用した標準線源の強度の不確かさ(1 $\sigma$ )は±1.3-1.5%

(2) Cs-134,137についてはサム効果と自己吸収の影響はキャンセルされるので、不確かさは加算されない。

(3) K-40についても、サム効果は無視でき、自己吸収の影響が考慮された検出効率曲線を作成するので、これらに起因する不確かさは加算されない。  
しかし検出効率曲線作成の際にCs-134のサム補正が必要であり、その補正による不確かさ(最大1%程度)を考慮して各 $\gamma$ 線の検出効率の不確かさを決定した。  
もっともK-40の1461keV  $\gamma$ 線に対する検出効率の不確かさは、関数フィッティングに起因するところが大きく、実験値とフィッティング曲線との残差から最終的に±3%と評価した。

(4) 最終的なCs-137濃度の不確かさは、(1)のBq数の不確かさと統計誤差のみから算出した。

(5) Cs-134濃度の不確かさは、まず最初に4本の $\gamma$ 線を用いて濃度とその不確かさを各々独立に算出し、それらの加重平均と誤差を求めた。  
ここで、加重平均の際に、各々の $\gamma$ 線で求めた濃度の各不確かさに(1)のBq数の不確かさを加算せず、統計誤差のみから得られた不確かさをを用いて加重平均を行い、その後Bq数の不確かさを加算して、最終的なCs-134濃度の不確かさを決定した。

(6) K-40濃度の不確かさは、検出効率の不確かさと統計誤差により算出した。

(7) これらの3核種では、 $\gamma$ 線強度や半減期の誤差は最終的な濃度の値の不確かさにほとんど影響しない。

(8) 不確かさの加算はすべて誤差の伝播式を用いて行った。

(9) 上記の結果得られた不確かさを2倍して、最終的なk=2の不確かさを決定した。

添付資料 4: Lab 7 補足資料

計算の前提条件

試料  
U8土

使用テンプレート  
SimplifiedBeaker

検出器  
7695 (Ge-P6)

サンプル 比重  
drydirt 1.53

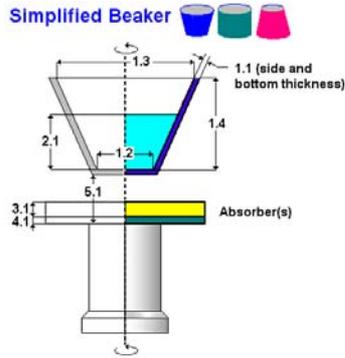
サンプル構成元素 重量%

H	0.36
C	2.14
O	49.62
Na	0.84
Mg	1.6
Al	7.1
DSI	27.38
K	2.37
Ca	4.21
Ti	0.34
Fe	4.04

寸法  
内径 48φ  
外径 51φ  
底面厚 1.5mm  
サンプル高 50mm

アブソーバ 厚さ(cm)  
アクリル 2.0

検出器からの距離(cm)  
3.0



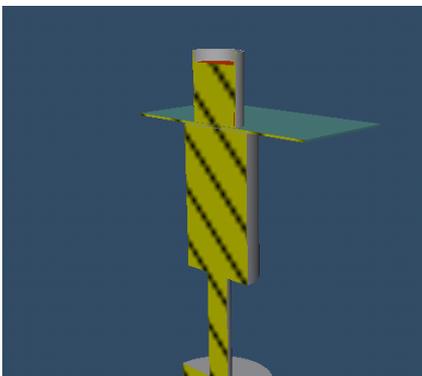
Description:

Comment:

Units:  mm  cm  m  in  ft

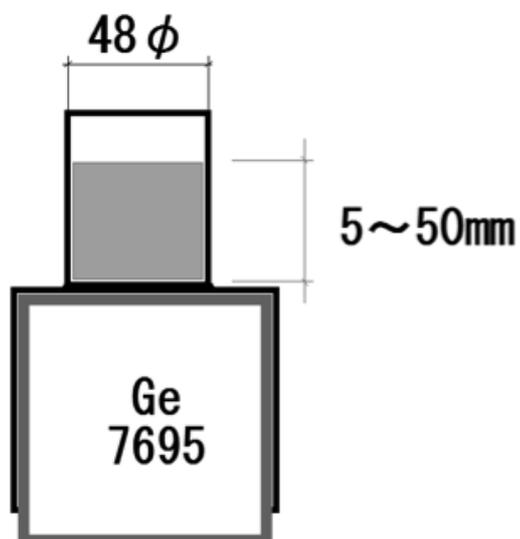
Specify sample by its:  Dimensions  Volume  Weight

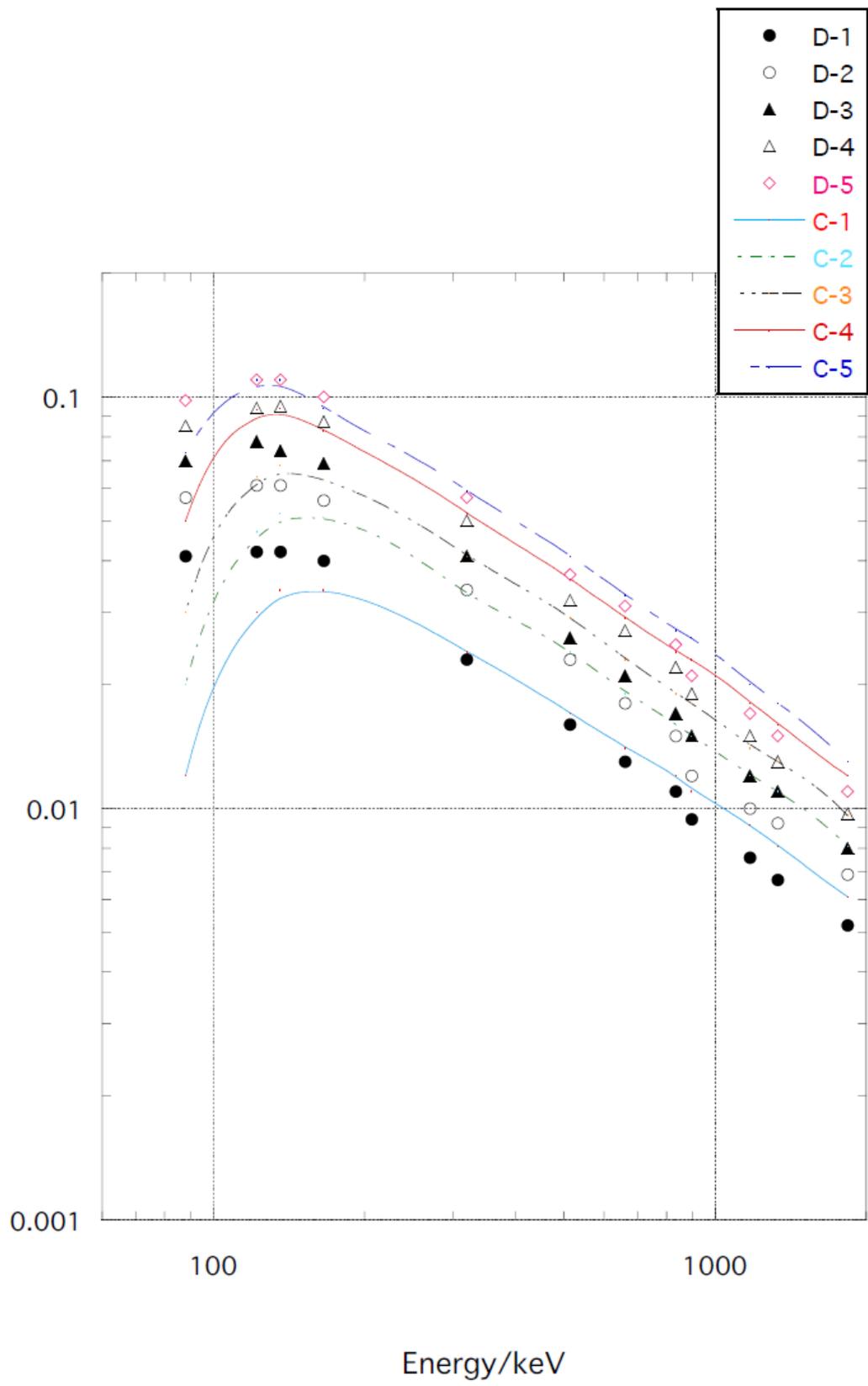
No.	Description	d.1	d.2	d.3	d.4	Material	Density	Volume, ml
1	Beaker	1.5	48	48	60	nnlvstvr	1.06	
2	Sample	50				drydirt	1.53	
3	Absorber 1	2				acrlyic	1.17	
4	Absorber 2	0				(none)	0	
5	Source - Detector	3						



検出器（Ge-P6:キャンベラ GC-2518）について、下記の前提で U8 線源で求めたもの(D)と、ISOCS で計算した効率曲線(C)を比較して示す.

容器 U8  
材質 ポリスチレン  
内径 48φ  
壁厚 1.5mm  
底厚 2mm  
サンプル アルミナ  $\rho=1.0$   
高さ 5, 10, 20, 30, 50mm  
Geカバー アクリル2mm





## 土壤放射能標準物質認証共同実験結果報告書(lab 14 補足資料)

2012年5月2日報告

今回配布試料の定量に使用した標準線源は自作の土壤標準線源で、Cs-134 あるいは Cs-137 を含む溶液をそれぞれ土壤と混合し<sup>注)</sup>、2つの線源(Cs-134 標準線源, Cs-137 標準線源)を作製した。溶液中の放射能濃度は、同じ溶液を用いて点線源を作製し、Ge 検出器から 77 mm の距離で市販の標準 $\gamma$ 線源(点線源)と比較・測定し、決定した。

注) Cs-134 あるいは Cs-137 を含む溶液を、薄く広げた土壤の上に均一に散布して乾燥し、他の土壤と均質に混合した(電話により確認)。

以下に、定量値の不確かさを求める際に考慮した(1)市販の点線源の強度の不確かさ、(2)点線源に対する Ge 検出器の検出効率曲線の不確かさ、(3)作製した土壤標準線源の線源強度の不確かさ、(4)作製した土壤標準線源の不均一性の測定結果、(5)配布試料の不均一性の測定結果、(6)土壤試料中の K-40 の 1461 keV  $\gamma$  線に対する検出効率の不確かさ、(7)配布試料と作製した土壤標準線源の $\gamma$ 線吸収係数の測定結果、(8)吸収係数の違いに起因する自己吸収とカスケードサムの違いの補正、についての補足説明を示す。

## (1) 市販の点線源の強度の不確かさ

使用した標準点線源は2種類あり、線源強度の不確かさは以下の通り。

- ① Eu-152 線源 (JAERI Eu427) : 不確かさ $\pm 4\%$  ( $3\sigma$ )
- ② 混合核種 $\gamma$ 線源 (DKD 製 GF-ML-M-7601 S/N: 1390-40) : 不確かさ $\pm 2.9\%$  ( $2\sigma$ )  
(Am-241, Cd-109, Co-57, Cs-137, Y-88, Co-60 を解析に使用)

以後の計算では、線源強度の不確かさとして  $1\sigma$  の値を採用し、各種不確かさを算出した。

## (2) 点線源に対する Ge 検出器の検出効率曲線の不確かさ

上記2種類の点線源を用いて Ge 検出器の全エネルギーピーク検出効率曲線を作成した(図1)。Cd-109, Cs-137 以外の核種についてはカスケードサムの補正を行った。補正係数の計算には、図1に示した全効率を使用した。全効率曲線は、計算で求めた曲線を実験値に合わせて作成した。補正の不確かさは実験値の不確かさに加算した。

全エネルギーピーク検出効率曲線は、120 keV 以上のエネルギー範囲では実験値を指数関数の多項式で最小自乗フィットすることで作成し、100 keV 以下のエネルギー範囲では $\gamma$ 線吸収係数を用いて曲線を計算し、実験値に合わせた。

得られた全エネルギーピーク検出効率曲線は、実験値を $\pm 1.5\%$ 以内で良く再現しており、 $\gamma$ 線エネルギー240~1400 keV の範囲における検出効率曲線の推定不確かさを $\pm 1.5\%$  ( $1\sigma$ ) と決定した。

なお、2種類の標準点線源から得られた検出効率の値が一本の効率曲線で良く再現された事実は、2種類の標準点線源の線源強度の信頼性を間接的に証明している。

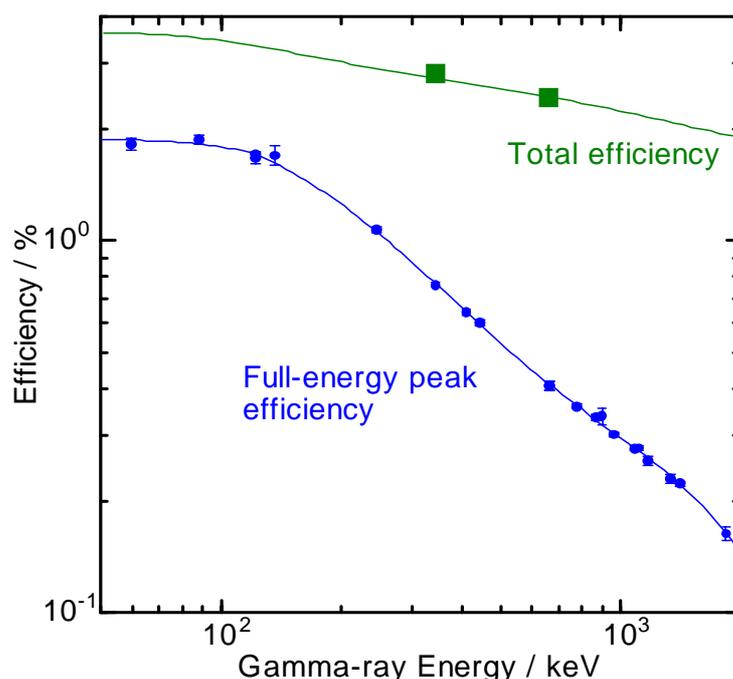


図 1：点線源に対する Ge 検出器の検出効率曲線。線源-検出器間距離 77 mm.

### (3) 作製した土壤標準線源の線源強度の不確かさ

図 1 の検出効率曲線を用いて、作製した Cs-134、Cs-137 点線源の放射エネルギーを決定し、点線源及び土壤標準線源の作製に使用した溶液量の違いを補正した上で、土壤標準線源中の放射エネルギーを決定した。不確かさは、統計誤差と検出効率曲線の不確かさから算出した。Cs-134 についてはカスケードサムの補正を行い、その不確かさも加算した。得られた Cs-134 及び Cs-137 土壤標準線源中の放射エネルギーの推定不確かさは以下の通り。(有効数字は 2 桁だが、3 桁まで表示。)

Cs-134 :  $\pm 2.06\%$  ( $1\sigma$ )

Cs-137 :  $\pm 1.67\%$  ( $1\sigma$ )

### (4) 作製した土壤標準線源の不均一性の測定結果

作製した土壤標準線源中の放射性物質の空間分布の不均一性を確認するため、以下の測定を行った。本実験では横型の Ge 検出器を使用し、U8 容器の円筒側面を Ge 検出器の前面に密着させて測定を行った。U8 容器を回転させて検出器に面する方向を変え、45 度間隔で 8 方向から測定し、U8 容器中の放射性物質の空間分布の不均一性を確認した。図 2 に Cs-137 及び Cs-134 土壤標準線源に対する不均一性の測定結果を示す。Cs-137 の不均一性は、0 度の値が 2%程平均値より大きいものの、他の点の値は  $\pm 0.5\%$  以内で一致しており、非常に均一性が高い。一方、Cs-134 では  $\pm 2\%$  程度の不均一性が観測されたが、これも十分均一であると言える。土壤試料に対する検出効率の決定では、これら 2% の不均一性の影響を排除するため、8 方向から測定したスペクトルをすべて加算して解析に使用した。よって、これらの不均一性に起因する不確かさはゼロとした。

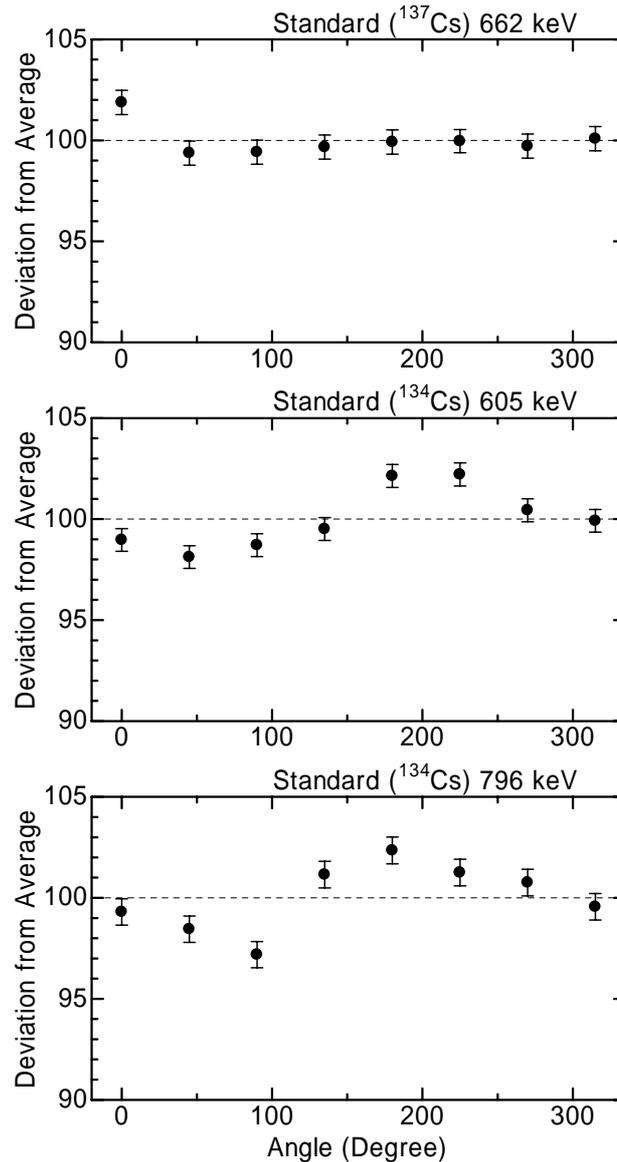


図 2 : 作製した土壌標準線源中の Cs-137 及び Cs-134 の空間分布の不均一性の測定結果。

(5) 配布試料の不均一性の測定結果

(4)と同じ方法で配布試料の不均一性も確認した。(4)に比べて統計精度が悪いためはっきりしたことは言えないが、試料 No.250 中の Cs-137 と Cs-134 の均一性は比較的良さそうである。一方、No.250 中の K-40 は若干不均一性が見られる。試料 No.002 と予備 4 については 90 度毎に 4 点しか測定していないが、Cs-137 と Cs-134 の分布に若干の不均一性が観測された。また、No.250 の平均値と No.002、予備 4 の平均値の間にもそれぞれ 2~3%の違いが見られ、試料間でも若干の不均一性が観測された。試料中の空間分布の不均一性の影響を最小にするため、解析には 8 方向 (あるいは 4 方向) から測定したスペクトルをすべて加算して使用した。解析ではこれらの不均一性に起因する不確かさはゼロとした。

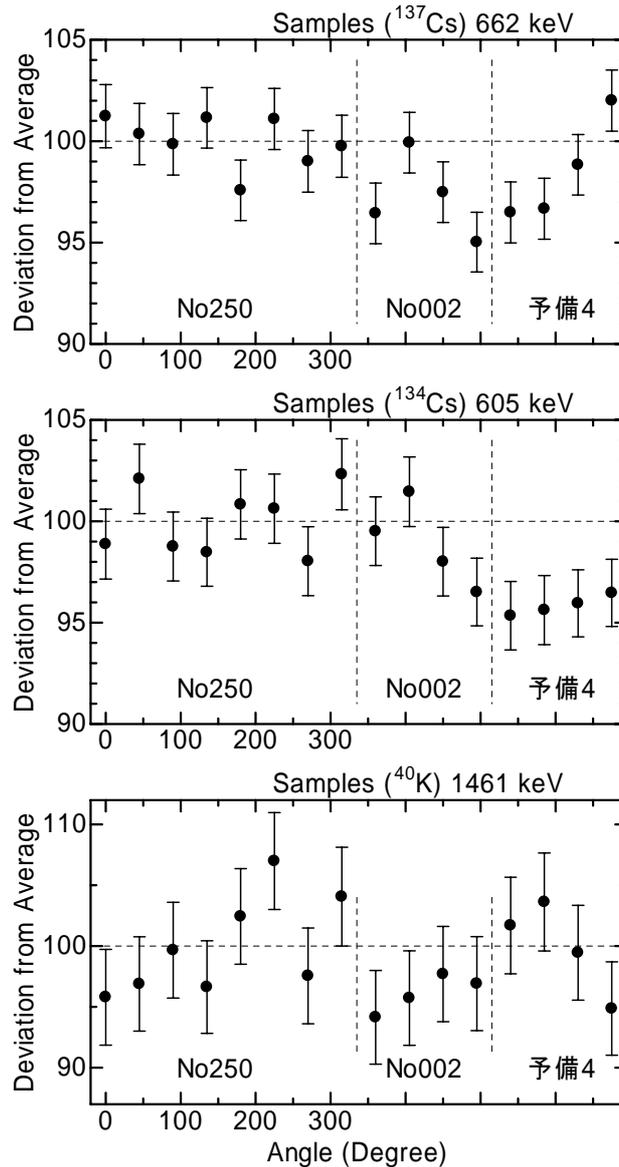


図3：配布試料中のCs-137、Cs-134及びK-40の空間分布の不均一性の測定結果。試料No.250は45度間隔で8方向測定。試料No.002と予備4は90度間隔で4方向測定。試料No.250の平均値を100としてプロット。

(6) 土壤試料中のK-40の1461 keV  $\gamma$ 線に対する検出効率の不確かさ

K-40の土壤標準線源は作製しなかったため、K-40の1461 keV  $\gamma$ 線に対する検出効率を、Cs-137とCs-134の各 $\gamma$ 線に対する検出効率の実験値を使って検出効率曲線を作成することで求めた。検出効率の実験値は、作製した土壤標準線源を測定して決定した。Cs-134の各 $\gamma$ 線についてはカスケードサムの補正が必要であり、平均の全効率を使って簡易的に補正係数を計算し、補正した。補正の不確かさは検出効率の各実験値に加算した。図4にCs-137とCs-134の各 $\gamma$ 線に対する検出効率の実験値をプロットし、指数関数の多項式を最小自乗フィットして得られた全エネルギーピーク検出効率曲線を示す。Cs-137とCs-134の各 $\gamma$ 線に対する検出効率の値は一本の曲線で良く再現されており、2つの土壤標準線源の線源強度の値の信頼性とCs-134に対するカスケードサムの補正の信頼性を間接的に示している。実験値と作成した検出効率曲線との残

差から、1461 keV  $\gamma$  線に対する検出効率の推定不確かさを $\pm 3\%$  ( $1\sigma$ ) と評価した。なお、この検出効率曲線は K-40 の解析にのみ使用し、Cs-137 と Cs-134 の各  $\gamma$  線については計数率を直接比較することで線源強度を求めている。

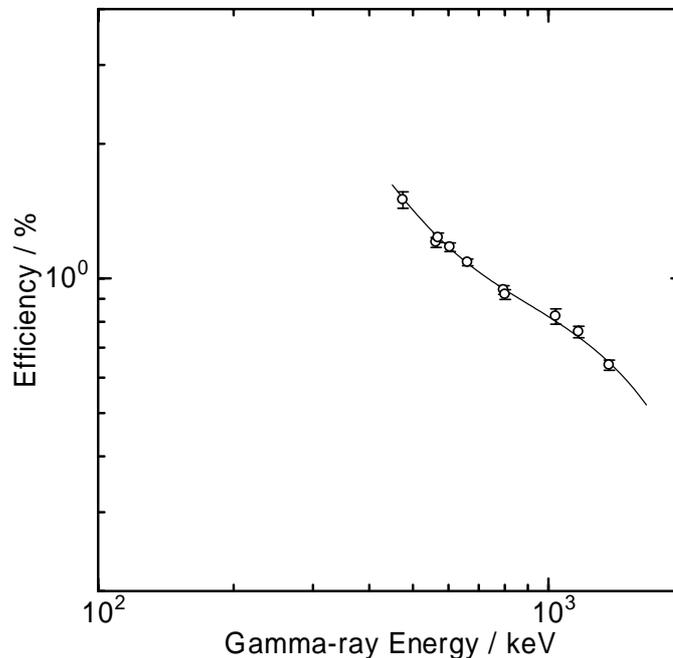


図 4 : Cs-134 及び Cs-137 土壌標準線源を用いて作成した土壌線源に対する Ge 検出器の全エネルギーピーク検出効率曲線。この曲線から K-40 の 1461 keV  $\gamma$  線に対する検出効率を求めた。

#### (7) 配布試料と作製した土壌標準線源の $\gamma$ 線吸収係数の測定結果

容積試料の定量では、試料と同じ形状、組成、密度を持ち、同じ核種を含む標準線源があれば、 $\gamma$  線の自己吸収やカスケードサムの補正はすべてキャンセルされるため補正の必要はない。しかし、今回作製した土壌標準線源と配布試料では、形状は同じだが組成と密度が異なるため、各々の土壌に対する  $\gamma$  線吸収係数を実測し、組成と密度の違いの補正に使用した。

測定は、Eu-152 線源を Ge 検出器から 140 mm の位置に固定し、線源と検出器の間に配布試料、作製した土壌標準線源、空の容器を置いてそれぞれ測定を行い、 $\gamma$  線吸収係数を求めた。図 5 に配布試料 (No.250) と作製した土壌標準線源に対する線吸収係数の値をプロットする。

これらの実験値から線吸収係数のエネルギー依存曲線を作成するため、元素組成を SiO<sub>2</sub> と仮定し、密度をフリーパラメータとして線吸収係数を計算し、実験値を良く再現するエネルギー依存曲線を作成した。試料 No.250 では、密度を 1.50 g/cm<sup>3</sup> としたときに実験値を良く再現した。実際の試料の密度は 1.408 g/cm<sup>3</sup> であり、この違いは SiO<sub>2</sub> 以外の元素が混じっていることに起因すると考えられる。100 keV 以下のエネルギー範囲で計算値が過小評価していることも同様の理由と考えられ、恐らく原子番号が大きい元素が混じっていることが原因と思われる。一方、標準線源では密度を 0.95 g/cm<sup>3</sup> としたときに実験値を良く再現した。標準線源の実際の密度は 0.966 g/cm<sup>3</sup> であり、低エネルギー側で計算値が若干過大評価していることを考えれば、有機物などの軽元素が影響しているとも考えられる。比較のため図 5 に水 (H<sub>2</sub>O : 密度 1.0) の線吸収

係数も示す. 100 keV 以上のエネルギー範囲では H<sub>2</sub>O も SiO<sub>2</sub> もほぼ同じエネルギー依存性を示しており, 補正計算に使用する 600 keV や 1460 keV における線吸収係数を求める場合においては, 組成の違いはほとんど問題とならず, SiO<sub>2</sub> を仮定して作成したエネルギー依存曲線で実用上問題ないと結論できる.

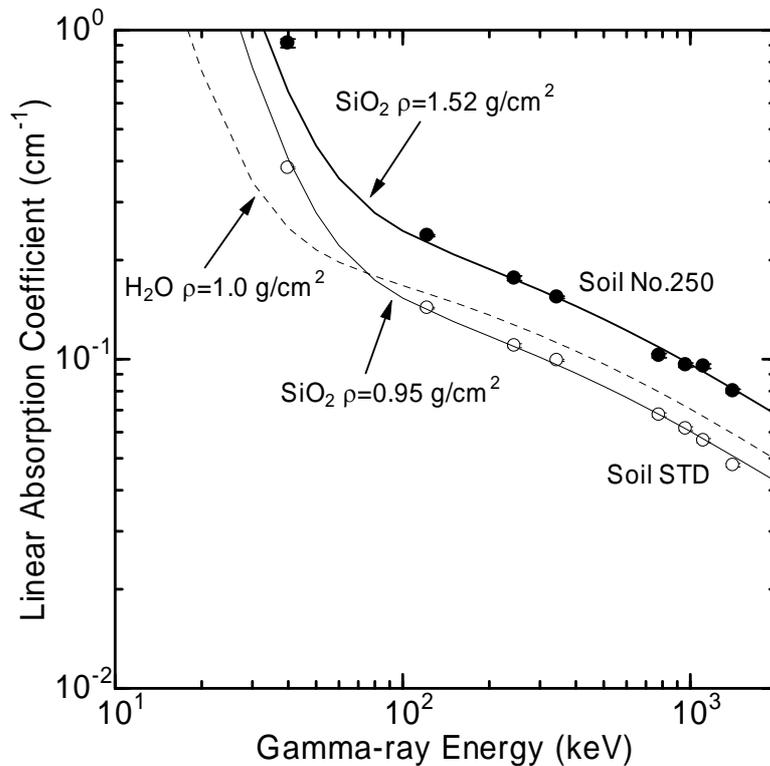


図5：配布試料（Soil No.250）と作製した土壤標準線源（Soil STD）に対する $\gamma$ 線の線吸収係数の実測値. 組成をSiO<sub>2</sub>と仮定して、密度を実験値に合うように調整して計算した線吸収係数のエネルギー依存曲線を実線で示す. 比較のためH<sub>2</sub>Oに対する線吸収係数のエネルギー依存曲線を破線で示す.

(8) 吸収係数の違いに起因する自己吸収とカスケードサムの違いの補正

(7) で求めた線吸収係数を使い, 配布試料と作製した土壤標準線源それぞれに対して, Cs-134, Cs-137, K-40 の各 $\gamma$ 線に対する自己吸収を積分法により計算した. Cs-137 の 662 keV  $\gamma$  線を例として具体的な数値を示すと, 配布試料及び標準線源に対する自己吸収の割合はそれぞれ 0.831, 0.888, それらの比は 0.935 となった. つまり配布試料中の放射能の定量においては, 標準線源を用いて決定した検出効率に 0.935 を掛けた値を検出効率として用いる必要がある. この比を自己吸収の補正係数とし, 最終結果に反映させた. K-40 の 1461 keV  $\gamma$  線に対する自己吸収の補正係数は 0.954 となった.

補正の不確かさは, 使用した線吸収係数の不確かさと自己吸収計算に起因する不確かさが考えられる. 線吸収係数は実測しているため, 不確かさは数%程度と推測される. 自己吸収計算についても, 同じ計算をして比を取っているため, 比の値に対する不確かさは十分小さい. ここでは補正量 = (1 - 補正係数) の 5% を自己吸収補正の不確かさとして, 最終結果の不確かさに加算し

た.

自己吸収が異なると、各試料に対する検出効率の値も変わるので、カスケードサム効果も各試料によって微妙に変化する。(6)において、土壌標準線源中の Cs-134 から放出される 605 keV  $\gamma$  線のカスケードサムによる計数損失は 0.926 と計算された。一方、配布試料については、自己吸収が大きいため検出効率が小さくなり、その分カスケードサムによる計数損失も小さくなる。検出効率が 6% 小さいとしてカスケードサムを計算すると、計数損失は 0.930 となった。これら 2 つの計数損失の比 1.005 を試料の計数率に乘じ、自己吸収の違いに起因するカスケードサムの違いを補正した。補正量(上記の場合  $1.005 - 1 = 0.005$  が補正量)の 10% を補正の不確かさとして、最終結果の不確かさに加算した。

#### (9) 最終的な線源強度の不確かさ

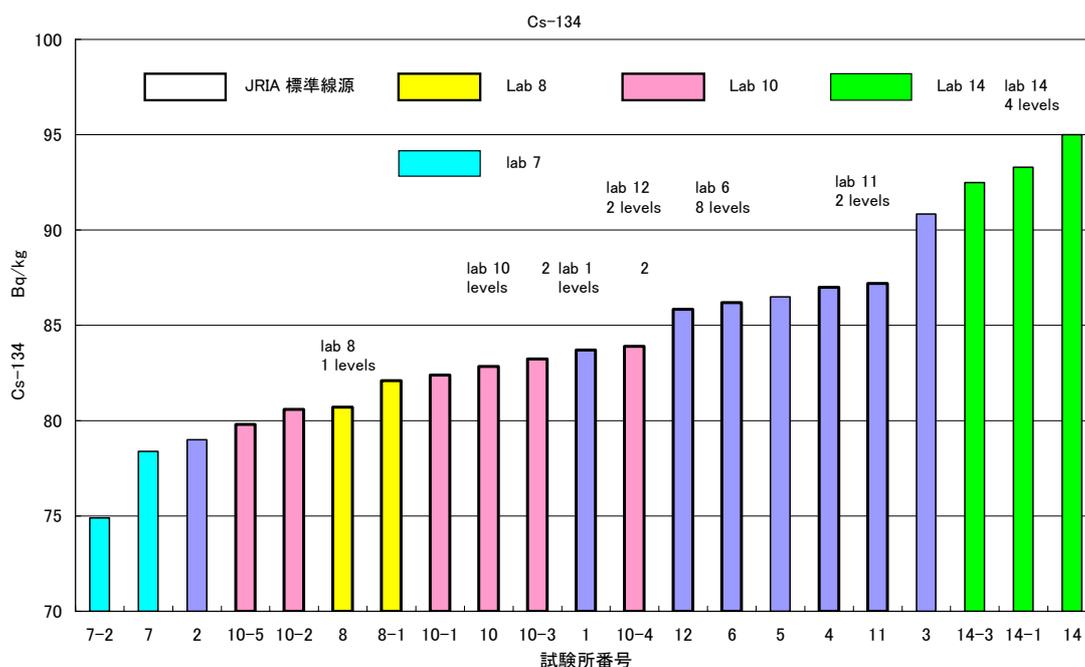
以上の計算において、不確かさはすべて  $1\sigma$  の値を使用し、誤差の伝播式を用いて最終的な線源強度の不確かさ ( $1\sigma$ ) の値を算出した。この不確かさの値を 2 倍して  $k=2$  の不確かさとして報告した。

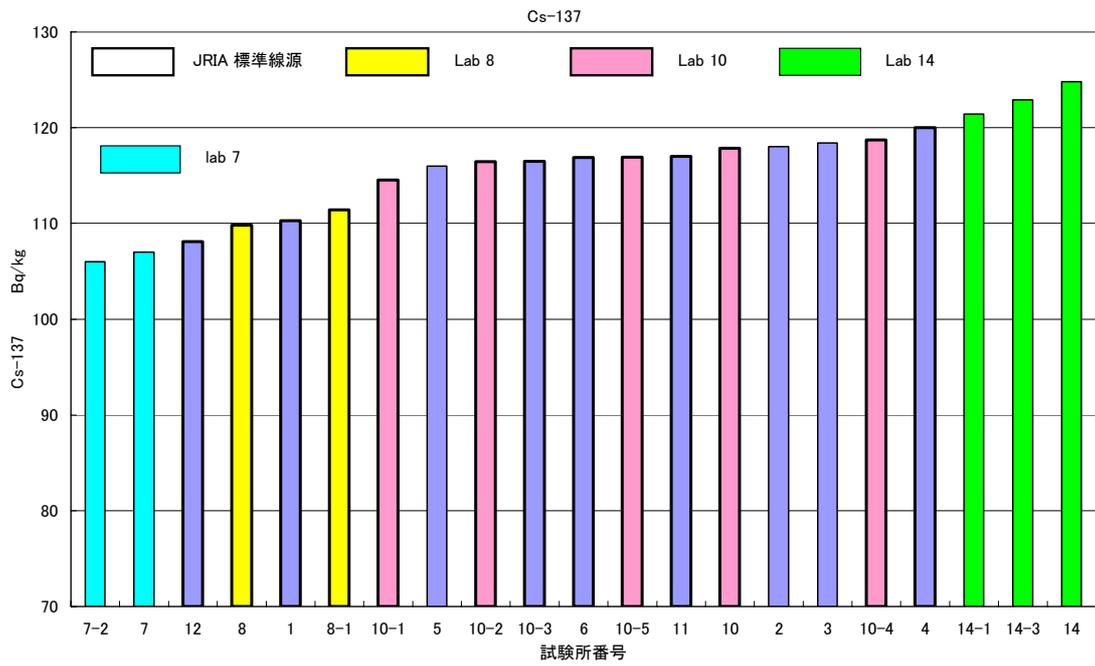
以上

添付資料6：均質性試験など複数の報告値を含めた測定値一覧表とバーチャート  
 子番号のついたものが、均質性試験など他の報告値。

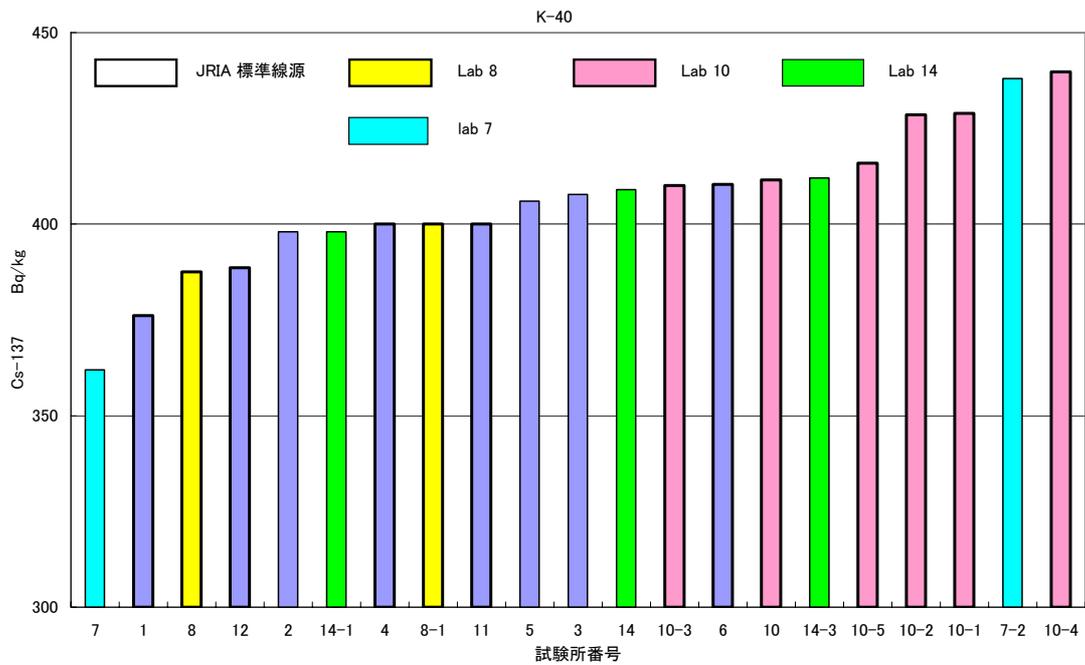
lab	核種	z score		核種	z score		核種	z score	
	Cs-134	classic	robust	Cs-137	classic	robust	K-40	classic	robust
1	83.7	-0.17	0.00	110.3	-1.04	-1.27	376.1	-1.59	-3.04
2	79	-1.07	-1.01	118	0.45	0.21	398	-0.43	-0.93
3	90.85	1.21	1.53	118.4	0.53	0.29	407.7	0.08	0.00
4	87	0.47	0.71	120	0.84	0.60	400	-0.32	-0.74
5	86.5	0.37	0.60	116	0.06	-0.17	406	-0.01	-0.16
6	86.2	0.31	0.54	116.9	0.24	0.00	410.4	0.23	0.26
7	78.4	-1.19	-1.14	107	-1.68	-1.91	362	-2.34	-4.40
7-2	74.9	-1.86	-1.89	106	-1.88	-2.10	438	1.69	2.92
8	80.71	-0.74	-0.64	109.8	-1.14	-1.37	387.5	-0.99	-1.95
8-1	82.1	-0.47	-0.34	111.4	-0.83	-1.06	400	-0.32	-0.74
10-1	82.40	-0.42	-0.28	114.5	-0.22	-0.46	429.0	1.21	2.05
10-2	80.58	-0.77	-0.67	116.5	0.16	-0.08	428.6	1.19	2.01
10-3	83.23	-0.26	-0.10	116.5	0.16	-0.07	410.0	0.21	0.23
10-4	83.90	-0.13	0.04	118.7	0.59	0.35	439.8	1.78	3.09
10-5	79.80	-0.92	-0.84	116.9	0.24	0.00	415.9	0.52	0.79
10	82.85	-0.33	-0.18	117.9	0.43	0.19	411.5	0.29	0.37
11	87.2	0.51	0.75	117	0.26	0.02	400	-0.32	-0.74
12	85.85	0.25	0.46	108.1	-1.47	-1.70	388.6	-0.93	-1.84
14-1	93.3	1.68	2.06	121.4	1.11	0.87	398	-0.43	-0.93
14-3	92.5	1.52	1.89	122.9	1.41	1.16	412	0.31	0.41
14	95.0	2.01	2.42	124.8	1.78	1.52	409	0.15	0.13
データ数 p	21			21			21		
Average	84.57			115.67			406.10		
SD	5.20			5.14			18.87		
RSD	6.2			4.4			4.6		
SD/ $\sqrt{p}$	1.3			1.0			1.0		
Median	83.70			116.90			407.70		
NIQR	4.66			5.19			10.38		
RNIQR	5.6			4.4			2.5		

Cs-134 は同一試験所の複数の値の差が、比較的に少ない。





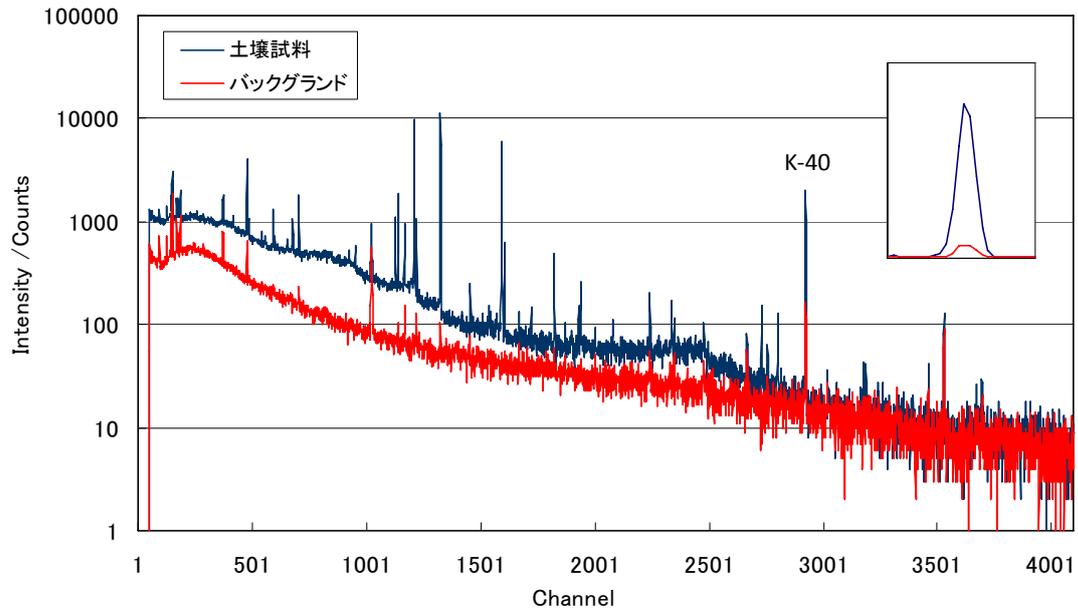
K-40 は同一試験所の複数の値に、比較的差が見られる。



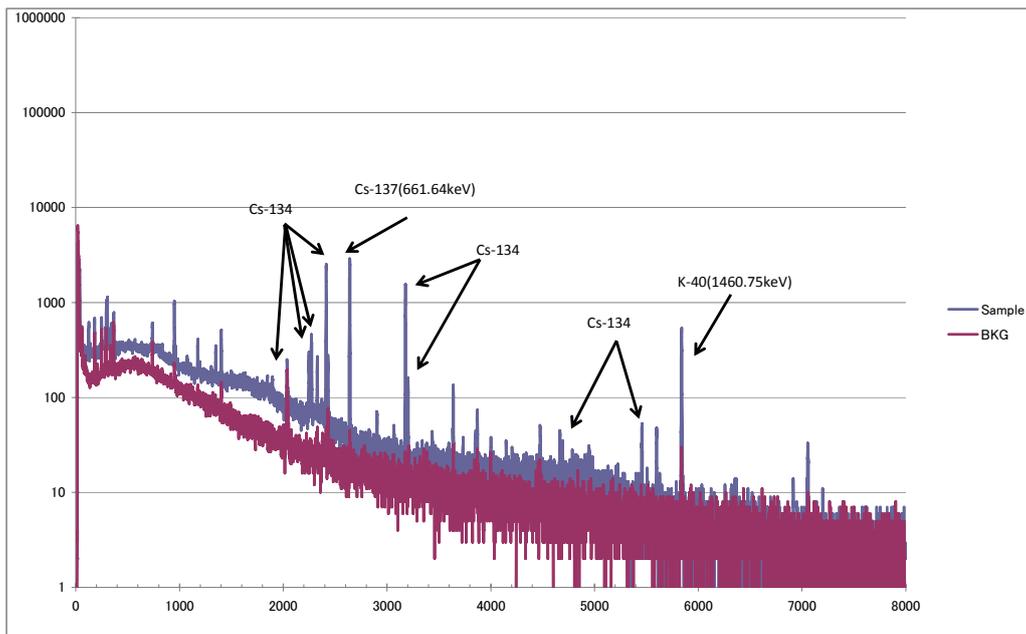
添付資料 7 : 報告された  $\gamma$  線スペクトル例

バックグラウンドを含むもの 2 例と Cs-134, Cs-137, K-40  $\gamma$  線の部分を拡大したいくつかの例を示す。

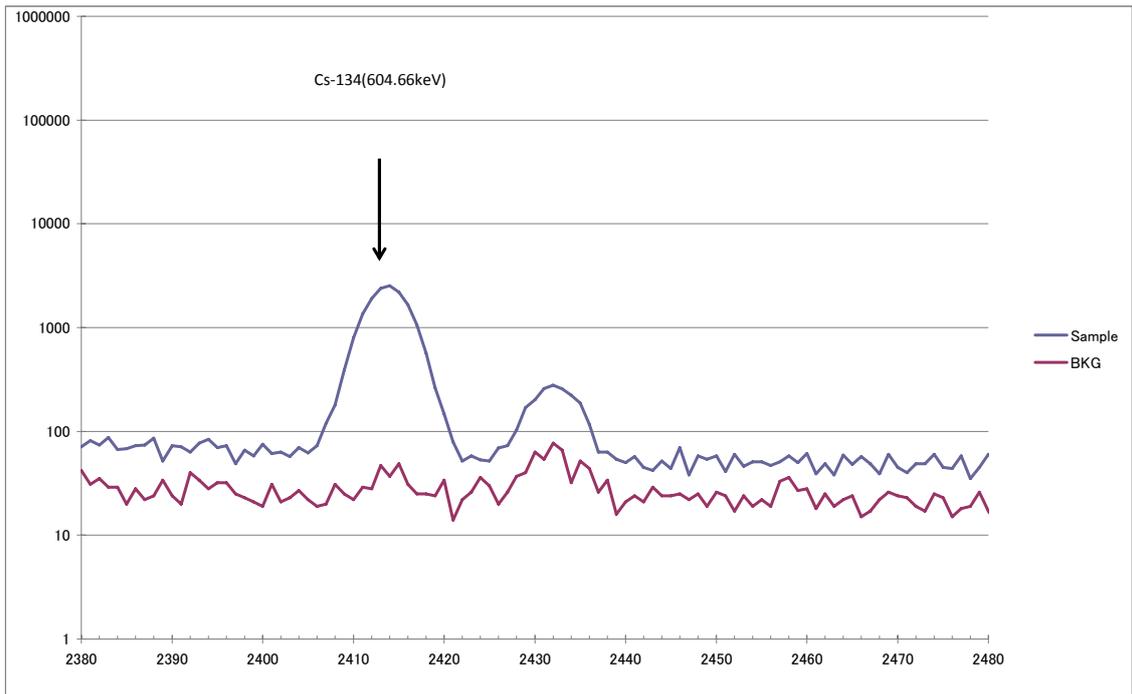
Lab 5 : 測定時間 : 試料, バックグラウンドとも 200000 秒  
チャンネル数 : 4096



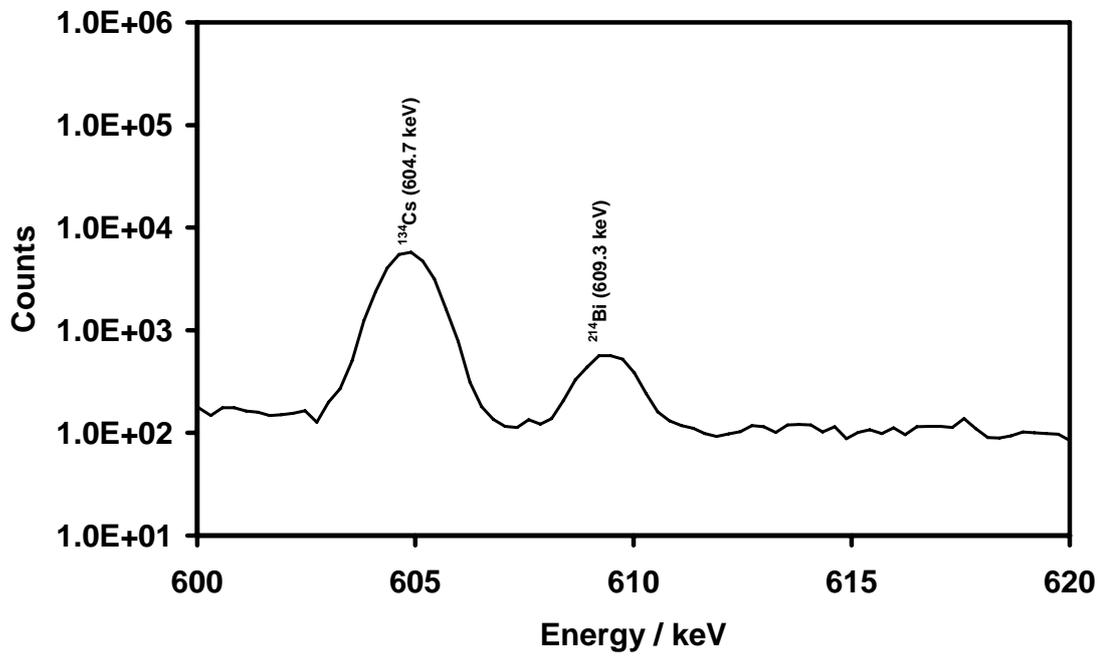
Lab 6 : 測定時間, 試料:100000 秒, バックグラウンド:130000 秒  
チャンネル数 : 8088



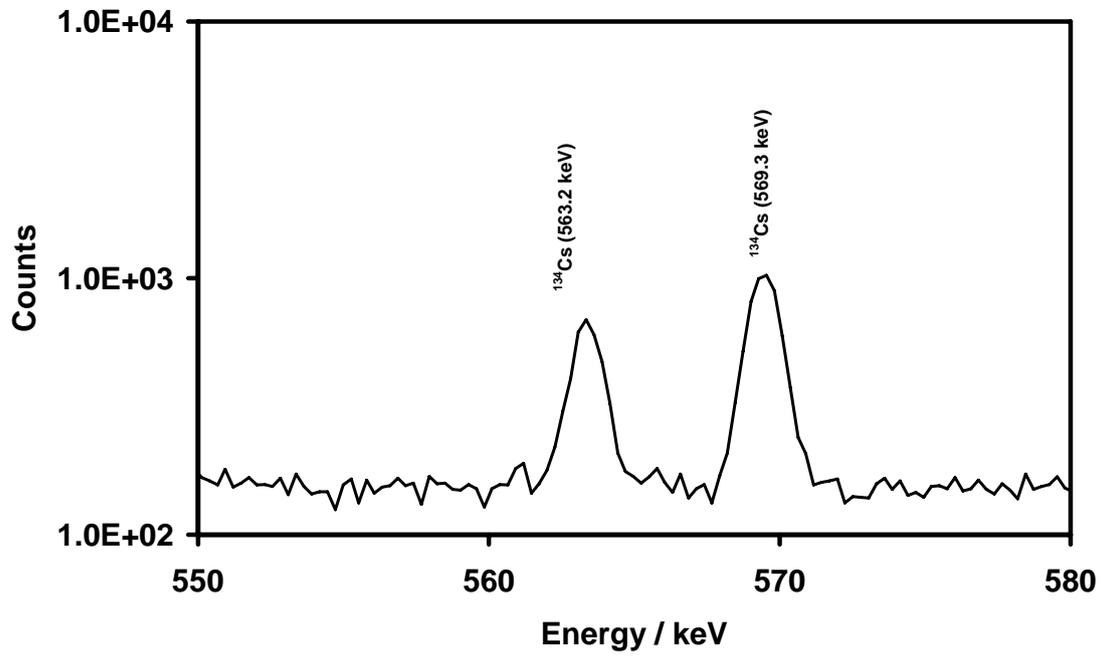
Lab 6 Cs-134 (605 keV)



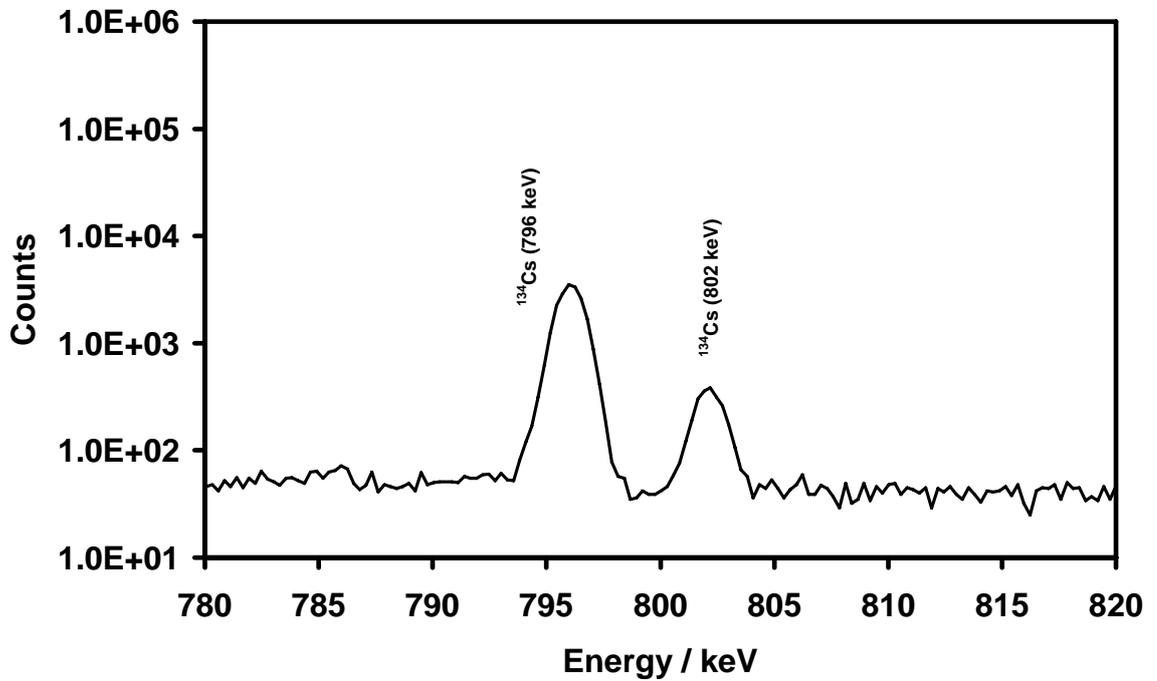
Lab 2 Cs-134 605 keV



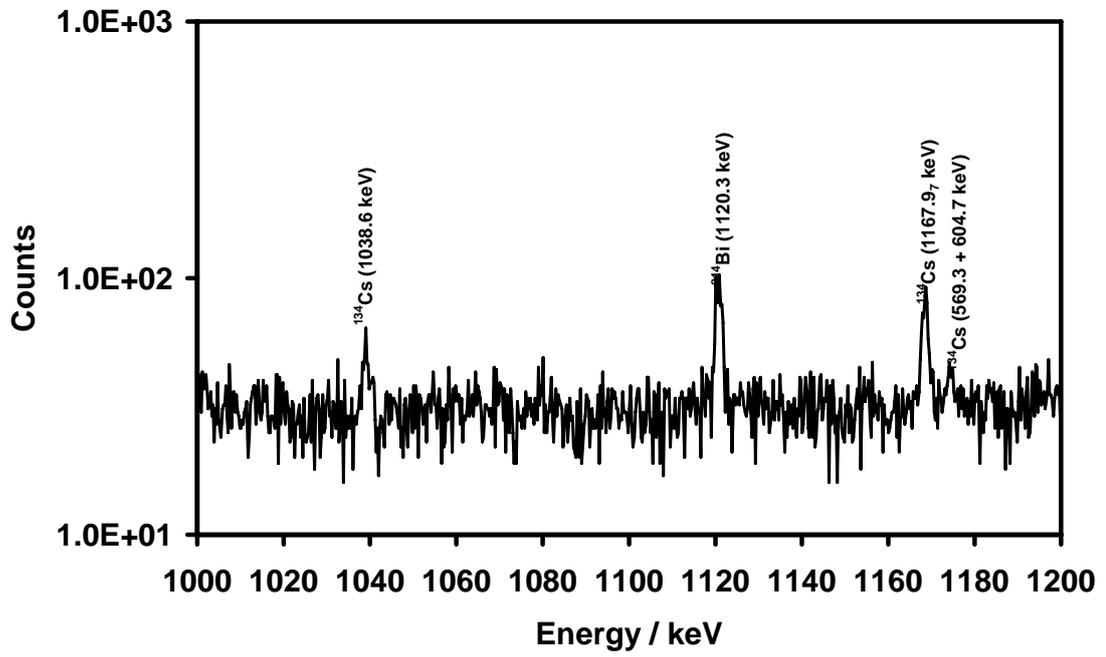
Lab 2 Cs-134 563 keV, 569 keV . . . . . 定量には使用せず.



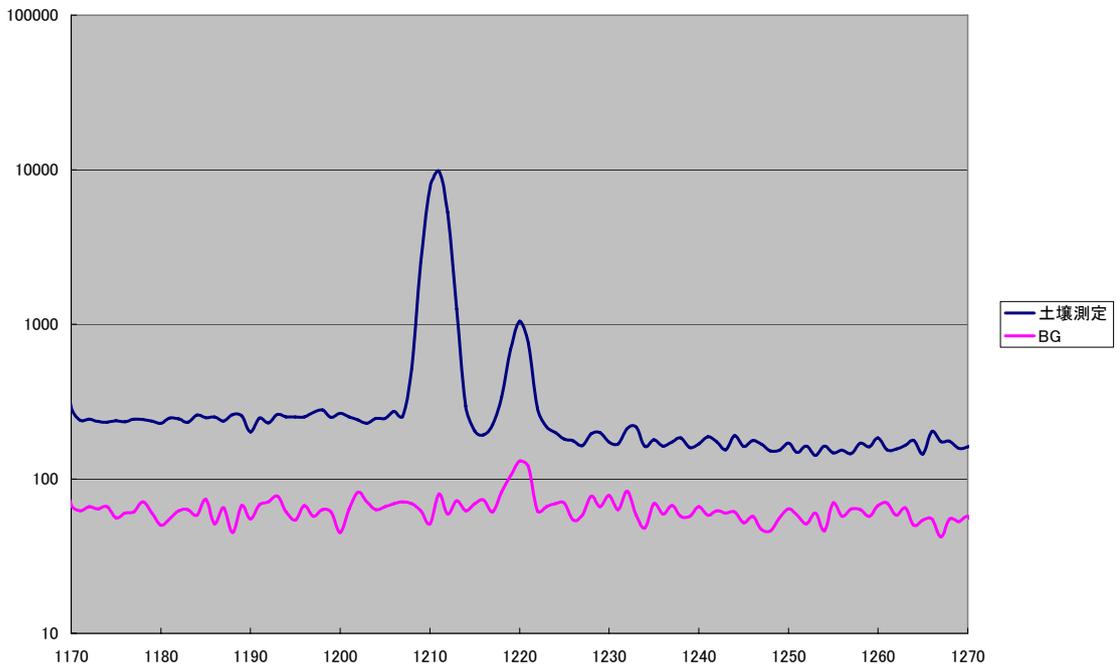
Lab 2 Cs-134 796 keV, 802 keV . . . . . 定量には使用せず.



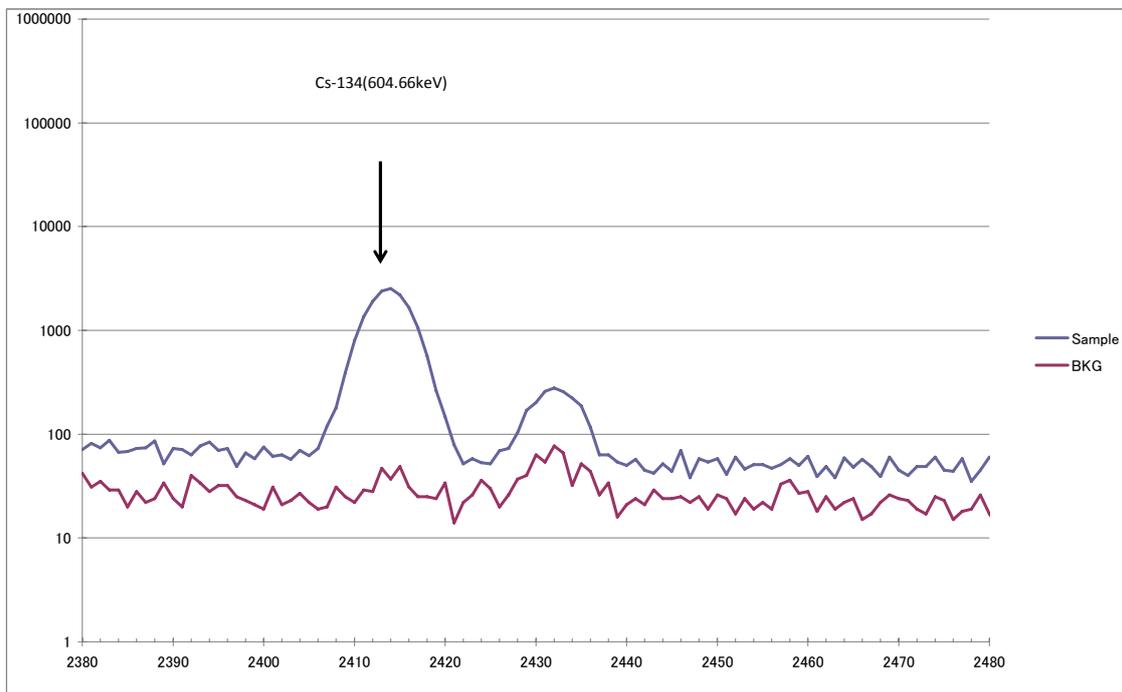
Lab 2 Cs-134 1038 keV, 1168 keV, (563+605) keV . . . . . 定量には使用せず.



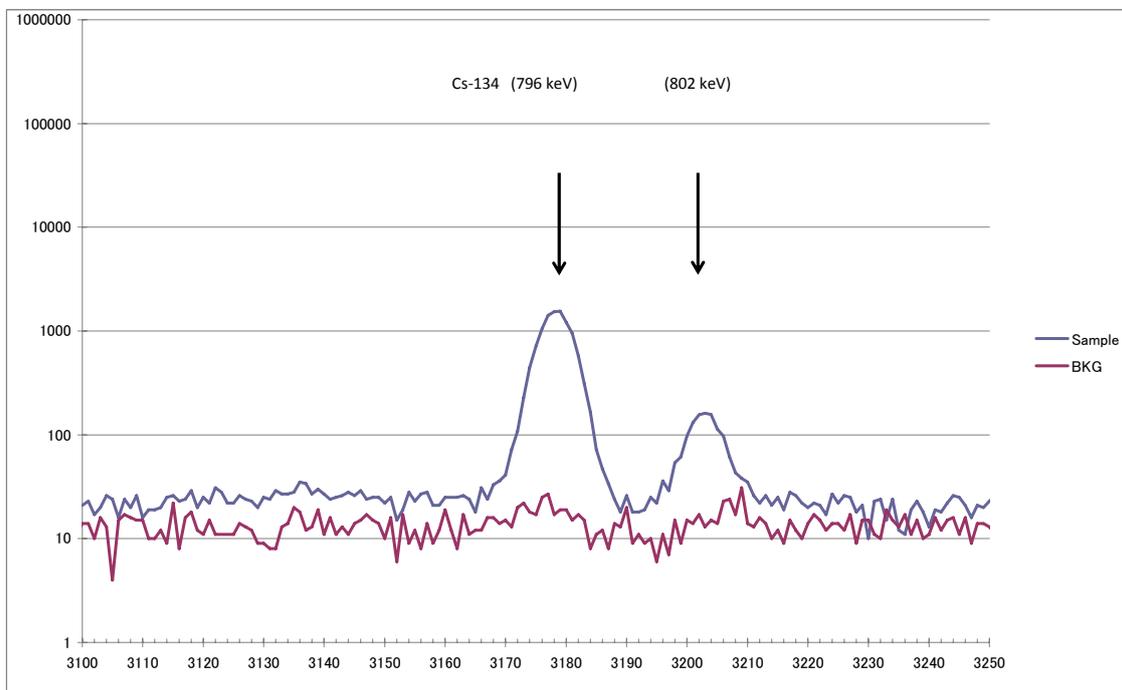
Lab 5 Cs-134 (605 keV)



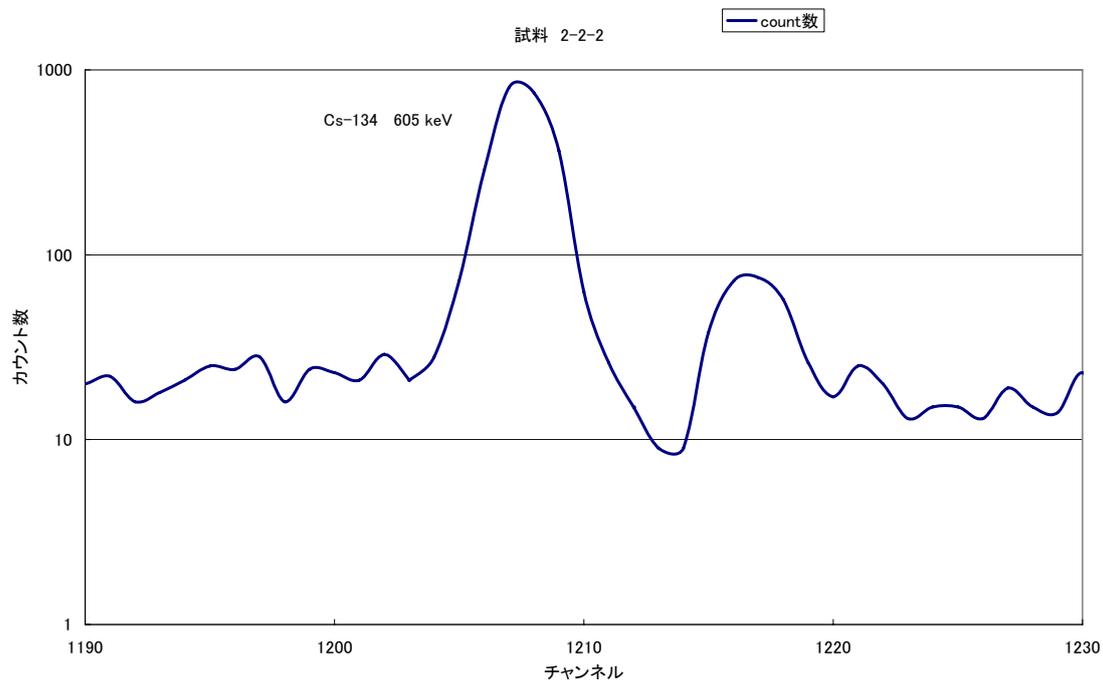
Lab 6 Cs-134 605 keV



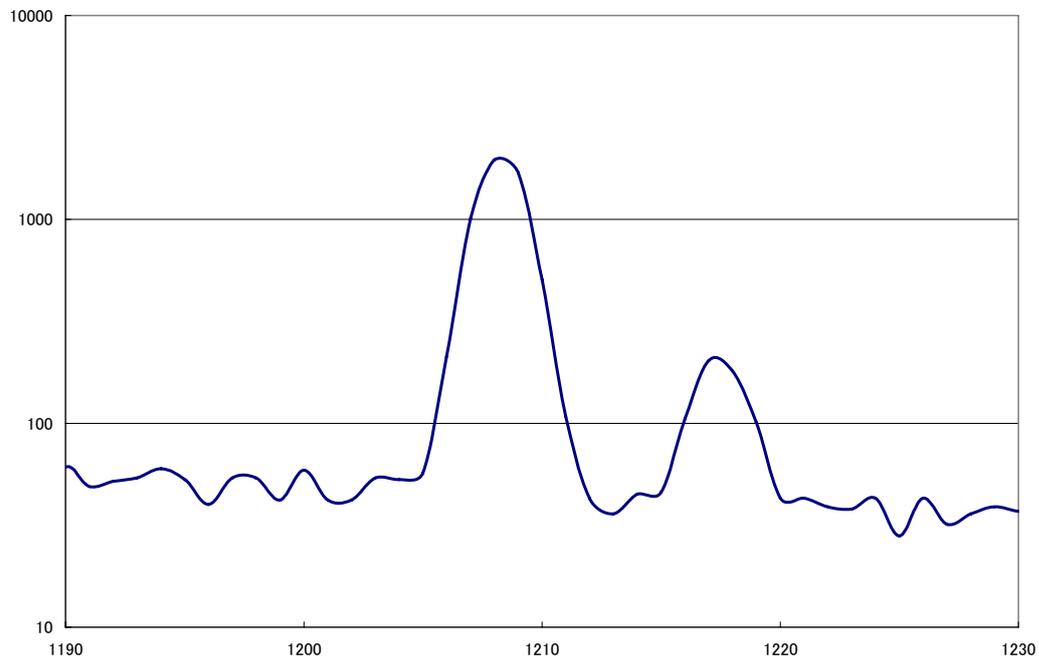
Lab 6 Cs-134 796 keV, 802 keV



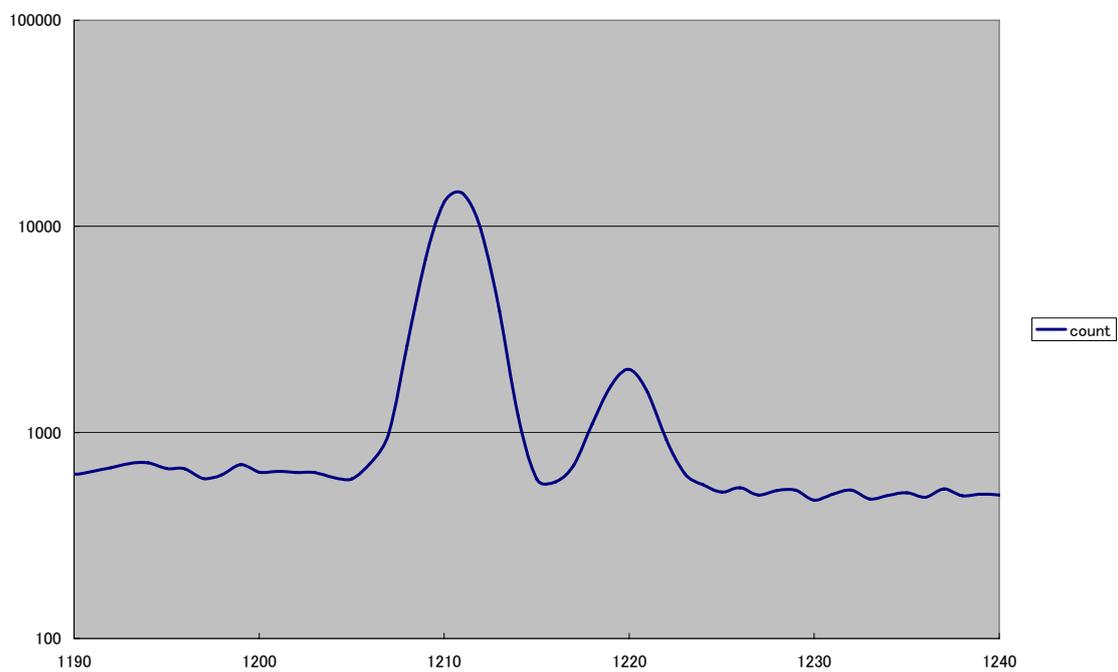
Lab 8 Cs-134 605 keV 均質性試験における4時間測定 (試料 2-2-2)



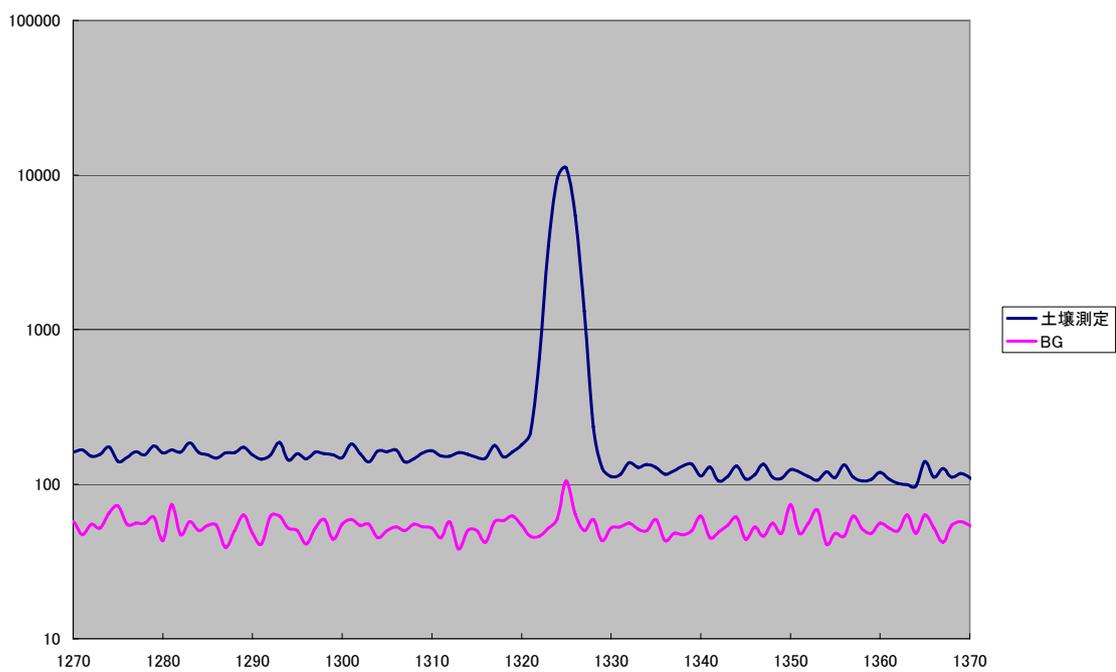
Lab 8 Cs-134 605 keV 共同実験における10時間測定 (試料 1-1-2)



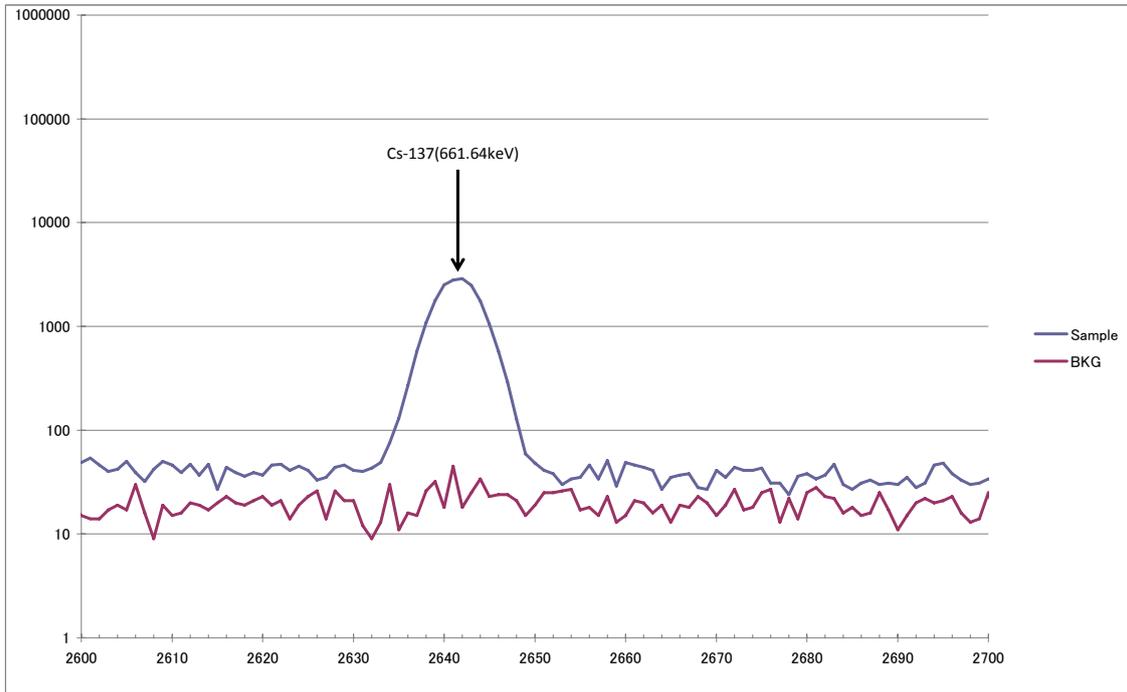
Lab 14 Cs-134 605 keV



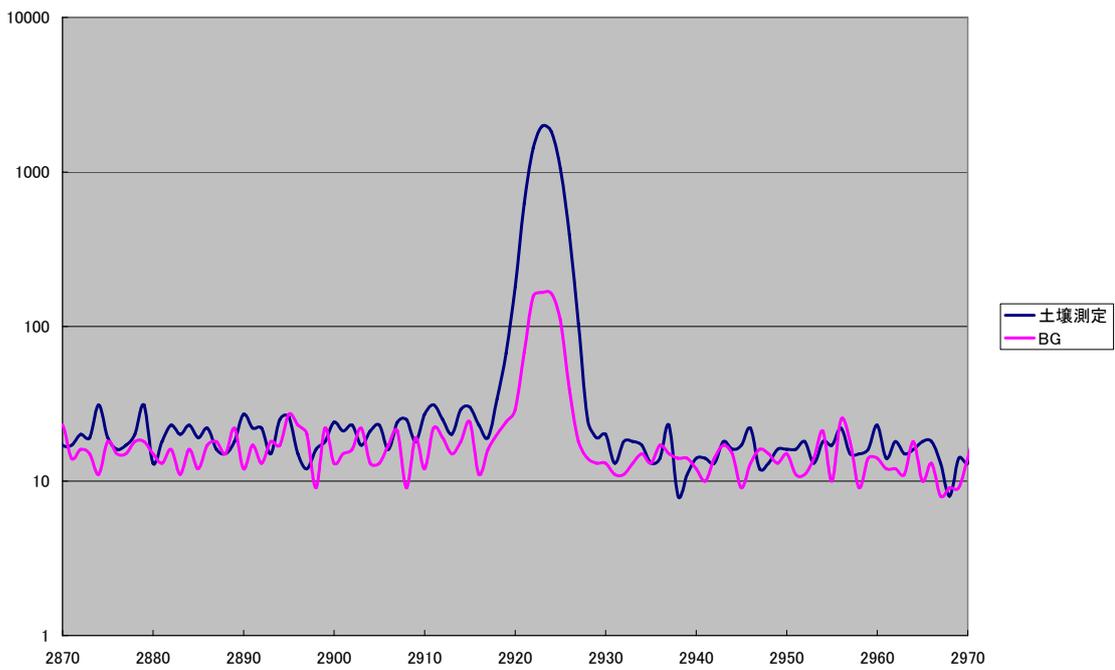
Lab 5 Cs-137 (662 keV)



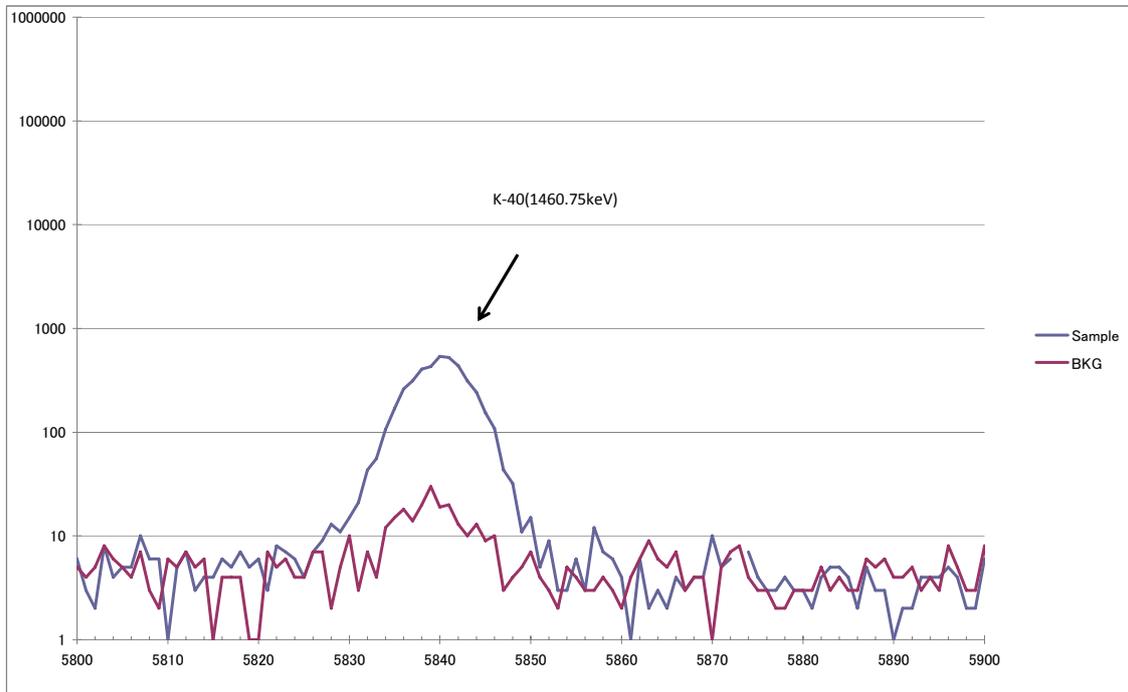
Lab 6 Cs-137 (661 keV)



Lab 5 K-40 (1461 keV)



Lab 6 K-40 1461 keV



## 添付資料 8 計算に基づく方法 (LabSOCS)

Ge 半導体検出器の検出効率の校正方法には、測定試料と同一の条件の標準線源を用いて決定する方法の他に標準線源を用いることなく計算によって効率を決定する手法がある。この手法のうち放射能分析用として Canberra 社が開発、販売しているソフトウェアに LabSOCS (Laboratory Sourceless Object Calibration Software)がある。日本国内で LabSOCS は、100 台程度の Ge 半導体検出器と共に出荷されており相当数の Ge 半導体検出器の校正に活用されている。(情報提供：Canberra Japan)

野口ら(文献 1)によると、LabSOCS によって効率計算ができる Ge 半導体検出器はその検出器まわりにおける検出効率が予めモンテカルロ法で計算されており、三次元座標及びエネルギー(40 keV~7 MeV)に対するレスポンス関数としてソフトウェアに組み込まれている。測定試料に対する検出効率は、試料の位置、形状、マトリックスなどに応じて細分化(1024 個)された微小体積に対する検出効率が計算される。さらに物質中における  $\gamma$  線の減弱が補正されて、積分を行うことで検出効率が決定される。

Bronson ら(文献 2)によるバリデーションにより、LabSOCS で得られる効率の合成標準不確かさは <150 keV が 7.1 %、150-400 keV の範囲が 6.0 %、400 keV を超える  $\gamma$  線エネルギーでは 4.3 %と評価されている。Lab 7 が用いた定量に用いた  $\gamma$  線は全て 400 keV を超える  $\gamma$  線ピークを用いている。そのため、lab 7 における効率校正に起因する合成標準不確かさを 4.3 %とした。

また、文献 1 においても標準線源を用いて決定した検出効率との比較が行われている。その結果、標準線源による検出効率との比は  $\pm 5\%$  以内で一致したものの、長期間室温保存された Ge 半導体検出器の場合、比の中心値が 1.02 を示した。これは長期間の室温保存により製造時と比較して Ge 結晶の不感層が増加したことによると推定されている。

## 参考文献

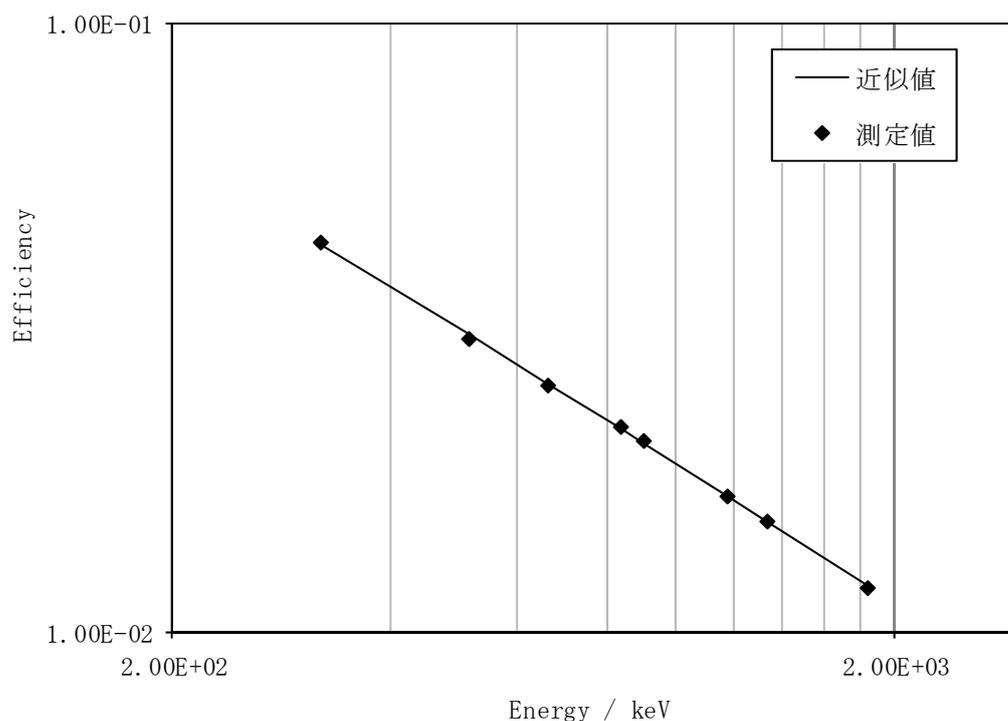
1. 野口正安、鈴木孝宏、酒井国博、村松勇：「線源不要の効率計算法 ISOCS による Ge 検出器の効率の検証」、2p-2、144 頁、第 42 回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集。
2. Frazier L. Bronson, Ram Venkataraman : Validation of the Accuracy of the LabSOCS Mathematical Efficiency for Typical Laboratory Samples, 46<sup>th</sup> Annual Conference on Bioassay, Analytical, and Environmental Radiochemistry, Nov. 12-17, 2000, Seattle, Washington.
3. K. Abbas, F. Simonelli, F. D'Alberti, M. Forte, M. F. Stroosnijder, Reliability of two calculation codes for efficiency calibrations of HPGe detectors, Applied Radiation and isotopes, 56(2002)703-709.

添付資料9 検出効率の校正における関数フィッティングの不確かさ

標準試料を用いて関数フィッティングによってピーク効率の校正を行う場合は、その不確かさは用いた参照標準の不確かさと近似効率曲線の差を合成して求めることができる。多くの試験所では何らかの標準物質を用いて計測器の校正をしている。土壌試料の測定では、日本アイソトープ協会製の放射能標準ガンマ体積線を用いると最も簡易に計量トレーサビリティを確保した校正が実現できると考えられ、本共同実験においても半数以上の試験所が利用している。この際、ピーク効率  $EFF$  は数 100keV 以上のエネルギーでは、通常、エネルギーを  $E$  として次のような 2 次関数にフィットさせてから求められている（文科省マニュアルでは直線回帰が用いられている）。Lab 4 の校正曲線の例を下記に示した。

$$\ln(EFF) = A + B \times \ln(E) + C \times \ln(E)^2$$

図 Lab 4 のピーク校正曲線, H=50mm. 200keV 以上の測定値に対してフィッティングした。



一般に、測定値  $x_i$  を次のような二次関数  $y_i$  に当てはめたときの測定のばらつきは  $s_y$  で与えられる。

$$s_y = \sqrt{\frac{1}{N-3} \sum_{i=1}^N (y_i - A - Bx_i - Cx_i^2)^2}$$

上記の校正データを用いて 200keV 以上のエネルギーに対して関数フィットの後で上式

を計算すると、 $s_y = 3.0 \times 10^{-4}$  (Bq/kg)と計算された。このばらつきは通常十分に小さく不確かさ成分としては無視できる程度である。

上の式では自由度が小さすぎると考えられる場合は、同時の実施された高さが異なる試料の測定データや過去の測定データを利用することが可能である。例えば、3本の校正曲線のばらつきを上式から $s_{1y}$ 、 $s_{2y}$ 、 $s_{3y}$ と求めた場合は、平均化したばらつきは分散で表すと次のようになる。

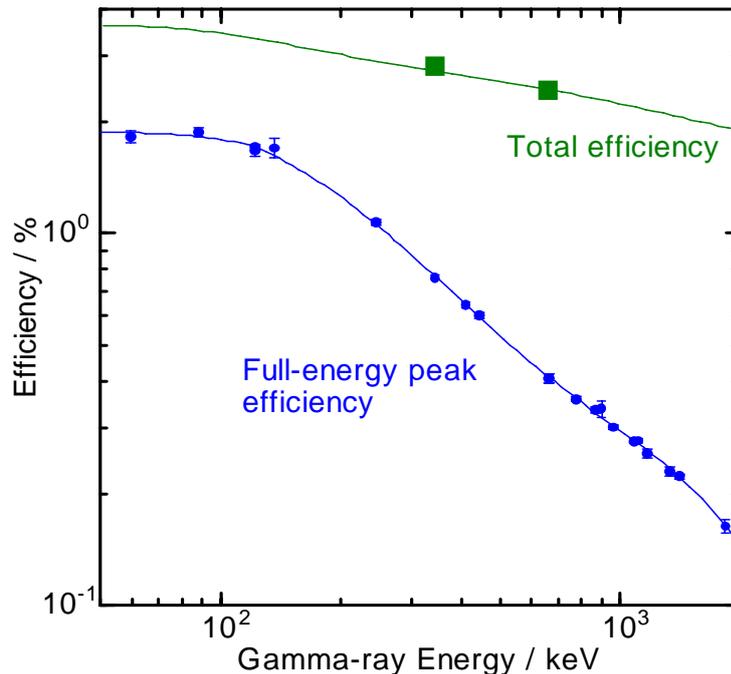
$$s_p^2 = (\nu_1 s_{1y}^2 + \nu_2 s_{2y}^2 + \nu_3 s_{3y}^2) / (\nu_1 + \nu_2 + \nu_3)$$

ここで、 $\nu_i$ はそれぞれの測定の自由度を表し、通常、 $\nu_1 = \nu_2 = \nu_3 = N - 3$ であるので

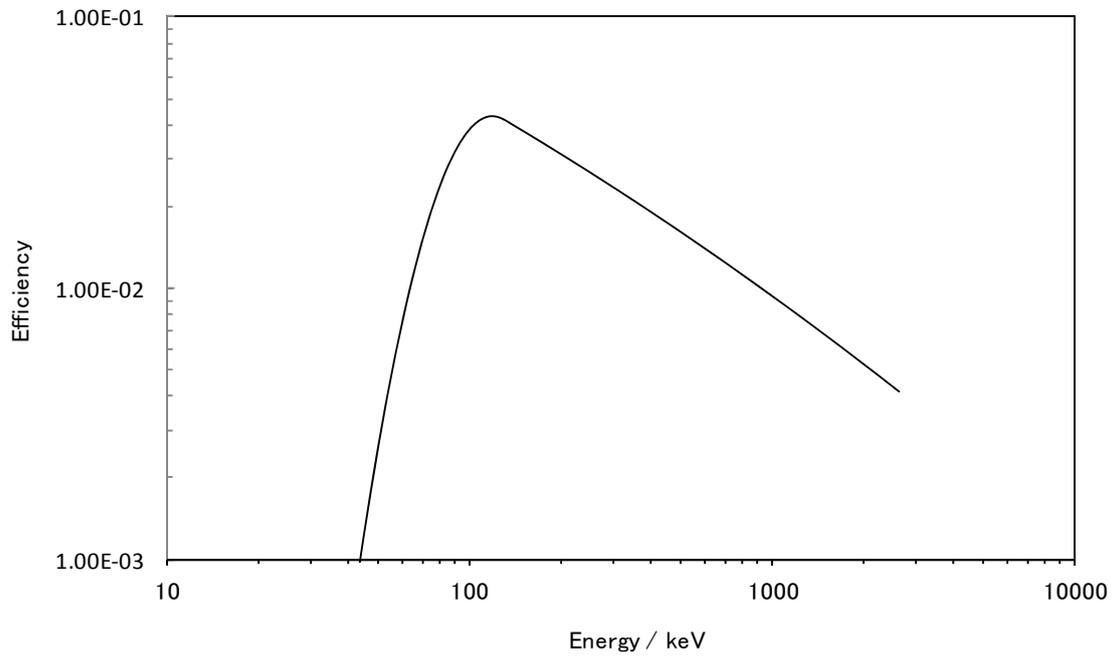
$$s_p^2 = (s_{1y}^2 + s_{2y}^2 + s_{3y}^2) / 3$$

で計算できる。

一方、Lab 14では、点線源を用いて校正するが、線源-検出器間距離を77 mmとして測定して次のような検出効率曲線を得た。上記の例で用いたよりも多くのエネルギーにおいて測定すると、K-40のエネルギー付近で検出効率の増加が認められた。



また、Lab 7ではモンテカルロ法を用いて検出効率曲線を計算した。結果は下図のように示されるが、Lab 14で観測されたK-40付近における上に凸の特徴は見られない。



以上の例から、現状では K-40 付近における検出効率のかたよりについては結論を得るに必要なデータは確認できておらず、Lab 14 の例は検出器の個別の特性とも考えられる。Lab 14 では測定した効率曲線が用いて校正され、フィッティングによるかたよりは発生しないと考えられるので、本報告では、Lab 4 のように個別に報告された場合（表 2 参照）を除いてフィッティングによるかたよりは無視できるものと考え、不確かさの算出には加えなかった。

添付資料 10：減弱係数，試料密度（比重）等

土壌試料では，135.0 g の充填，U8 容器の内径 4.8 cm，充填高さ 5 cm から求めた密度が必要である．密度は質量吸収係数に乗じて，線減弱係数を求めるのに用いられる．

報告データでは，土壌成分や密度の見積もりにより小さな違いはあるがその差はわずかで，試験所によりランダムに求められていると考えられるので吸収補正の不確かさの範囲内に含まれるとした．下記に報告されたデータを示す．

#### Lab 5

・標準線源の媒質：水，密度：1.00 g/cm<sup>3</sup>

	質量減弱係数(cm <sup>2</sup> /g)	線減弱係数(/cm)
605 keV	8.94.E-02	8.94.E-02
662 keV	8.58.E-02	8.58.E-02
1461 keV	5.81.E-02	5.81.E-02

・測定試料の媒質：土壌，密度：1.45 g/cm<sup>3</sup>

	質量減弱係数(cm <sup>2</sup> /g)	線減弱係数(/cm)
605 keV	8.11.E-02	1.18.E-01
662 keV	7.87.E-02	1.14.E-01
1461 keV	6.35.E-02	9.21.E-02

#### Lab 11

・標準線源

核種	エネルギー(keV)	密度(g/cm <sup>3</sup> )	線減弱係数(/cm)
Cs-134	604.66	1.036	0.090885
Cs-137	661.64	1.036	0.087195
Cs-134	795.76	1.036	0.080094
K-40	1460.75	1.036	0.059162

・土壌試料

核種	エネルギー(keV)	密度(g/cm <sup>3</sup> )	線減弱係数(/cm)
Cs-134	604.66	1.508	0.119410
Cs-137	661.64	1.508	0.114582
Cs-134	795.76	1.508	0.104921
K-40	1460.75	1.508	0.075949

#### Lab 8

1. 標準試料の密度及び線減衰係数

核種	エネルギー(keV)	密度(g/cm <sup>3</sup> )	線減衰係数(/cm)
Cd-109	88.03	1.061	0.1873
Co- 57	122.06	1.061	0.1606
Co- 57	136.47	1.061	0.1527
Ce-139	165.85	1.061	0.1406
Cr- 51	320.08	1.061	0.1096
Sr- 85	514.00	1.061	0.0899
Cs-137	661.64	1.061	0.0809

Mn- 54	834.83	1.061	0.0725
Y - 88	898.02	1.061	0.0701
Co- 60	1173.21	1.061	0.0619
Co- 60	1332.47	1.061	0.0580
Y - 88	1836.13	1.061	0.0488

- ・密度は、使用した標準線源(アルミナ)の質量及び高さより算出した.
- ・線減衰係数は、以下の式より算出した.

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

$\mu$  : 線減衰係数

$\rho$  : 試料密度

M : 試料の原子量 (アルミナ=101.96)

$\mu_{Al}$  : アルミニウム原子の全相互作用断面積

$\mu_O$  : 酸素原子の全相互作用断面積

## 2. 土壌試料の線減衰係数

核種	エネルギー(keV)	線減衰係数(/cm)
Cs-134	569.32	0.1265
	604.7	0.1231
	795.85	0.1082
	801.93	0.1078
Cs-137	661.66	0.1182
K-40	1460.75	0.0783

- ・線減衰係数は、以下の式より算出した.

$$\mu = \rho \times \exp[-2.361 - 0.39490 \times \log(E/400) - 0.06914 \times \{\log(E/400)\}^2]$$

$\mu$  : 線減衰係数

$\rho$  : 試料密度

E : 核種のエネルギー

Log : 自然対数を表す

文献: "光子相互作用断面積の近似式と質量減衰係数" 野口正安, RADIOISOTOPES, 36, 49-56(1987)

## Lab 7

- ・比重 1.53 g/cm<sup>3</sup>

- ・土壌試料構成元素: 質量%

H : 0.36, C : 2.14, O : 49.62, Na : 0.84, Mg : 1.6, Al : 7.1, DSI : 27.38, K : 2.37, Ca : 4.21, Ti : 0.34, Fe : 4.04

## 付属資料 12

### 土壤標準物質中の $^{90}\text{Sr}$ , $\text{Pu}$ ( $\text{Pu}$ 同位体, 同位体比) の共同分析

日本分析化学会放射能分析用土壤標準物質で認証値が設定された放射性核種は  $^{40}\text{K}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  であるが, 社会的にはその他の放射性核種, 特に  $^{90}\text{Sr}$ ,  $\text{Pu}$  について関心が高い.  $^{90}\text{Sr}$  は半減期 ( $T_{1/2}$ ) 28.79 年の  $\beta$  線放出核種,  $\text{Pu}$  は質量数 238, 239, 240 の同位体  $^{238}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}$ : 87.7 年),  $^{239}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}$ : 24110 年),  $^{240}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}$ : 6561 年) が  $\alpha$  線放出核種, 質量数 241 の同位体  $^{241}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}$ : 14.290 年) が  $\beta$  線放出核種であり,  $\text{Ge}$  半導体検出器による  $\gamma$  線スペクトロメトリーでは  $^{90}\text{Sr}$ ,  $\text{Pu}$  を定量することは不可能である. これらを定量するためには目的核種を化学的に分離精製した後, それぞれ  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  は  $\beta$  線計測を,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  は  $\alpha$  線スペクトロメトリーにより測定する必要がある. なお,  $\text{Pu}$  同位体のなかで 1000 年以上の比較的長い半減期を示す  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  は質量分析計で測定することも可能である. このように  $^{90}\text{Sr}$ ,  $\text{Pu}$  が分析可能な施設と高度な分析技術を有する機関が限定されているのが現実であり, 共同分析法による認証値算出に必要な機関の協力を得るのは困難であった. 幸いにも  $^{90}\text{Sr}$  測定は 2 機関,  $\text{Pu}$  測定には 3 機関の協力が得られたので, 共同分析を実施した. 実施機関数が少ないため, 認証値ではなく参考値ではあるが分析化学会放射能分析用土壤認証標準物質中の  $^{90}\text{Sr}$ ,  $\text{Pu}$  の測定値を公表することは有意義と考えられる.

#### $^{90}\text{Sr}$ 測定

$^{90}\text{Sr}$  測定を実施した 2 機関は土壤から酸抽出した  $^{90}\text{Sr}$  を化学分離後,  $^{90}\text{Sr}$  の壊変核種である  $^{90}\text{Y}$  ( $T_{1/2}$ : 64 時間) を分離し低バックグラウンドガスフローカウンターで測定した. 報告値を以下に示す.

表 12-1  $^{90}\text{Sr}$  分析結果

Lab	供試料 (g)	$^{90}\text{Sr}$ (Bq/ kg)
A	100	0.20 $\pm$ 0.071
B	10	0.33 $\pm$ 0.23
	10	0.40 $\pm$ 0.23
	10	0.38 $\pm$ 0.24
	10	0.44 $\pm$ 0.23
	10	0.41 $\pm$ 0.32

#### $\text{Pu}$ 測定

$\text{Pu}$  は 3 機関が測定した. 全ての機関は土壤試料から酸抽出した  $\text{Pu}$  を化学分離後, 測定した. 測定方法は全て異なり,  $\alpha$  線スペクトロメトリーが 1 機関 (Lab C), ID-ICP-MS による測定が 1 機関 (Lab D), TIMS による測定が 1 機関 (Lab E) であった. Lab C 及び Lab D は化学分離前に内標準として  $^{242}\text{Pu}$  を既知量添加した. 各機関からの報告値を以下に示す. Lab E は TIMS 測定による  $\text{Pu}$  同位体比の精密な測定を行った.

表 12-2  $\text{Pu}$  分析結果 (Lab C : 陰イオン交換分離/ $\alpha$  線スペクトロメトリー)

Lab	供試料 (g)	$^{238}\text{Pu}$ (Bq/ kg)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq/ kg)
C	50	ND(0 $\pm$ 0)	0.0180 $\pm$ 0.0044

表 12-3 Pu 分析結果 (Lab D : 抽出クロマトグラフィ/ID-ICP-MS)

Lab	供試料 (g)	<sup>239</sup> Pu (Bq/ kg)	<sup>240</sup> Pu(Bq/ kg)	<sup>239+240</sup> Pu(Bq/ kg)
D	50	0.0141 ± 0.0003	0.011 ± 0.001	0.025 ± 0.001

表 12-4 Pu 分析結果 (Lab D : 陰イオン交換分離/TIMS)

Lab	供試料 (g)	<sup>240</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu	<sup>238</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu	<sup>242</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu
E	135	0.1804 ± 0.0092	<0.05	<0.003	<0.005

以上の <sup>90</sup>Sr, Pu の分析結果から, 認証書に表 12-5 の参考値を追記する。

表 12-5 参考値

標準物質 番号	核種	放射能濃度 <sup>注 12-1)</sup> Bq/kg	分析方法
JSAC 0471	<sup>90</sup> Sr <sup>注 12-2)</sup>	0.20 ± 0.07 0.40 ± 0.25	化学分離/低バックグラウン ドガスフローカウンター
	<sup>238</sup> Pu	ND(0±0)	
	<sup>239+240</sup> Pu	0.0180 ± 0.0044	抽出クロマトグラフィ /ID-ICPMS
	<sup>239</sup> Pu	0.0141 ± 0.0003	
	JSAC 0472	<sup>240</sup> Pu	0.011 ± 0.001
JSAC 0473	<sup>239+240</sup> Pu	0.025 ± 0.001	
JSAC 0473	核種	同位体比 <sup>注 12-1)</sup>	分析方法
	<sup>240</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu	0.1804 ± 0.0092	陰イオン交換分離/TIMS
	<sup>238</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu	< 0.05	
	<sup>241</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu	< 0.003	
	<sup>242</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu	< 0.005	

注 12-1) 参考値及び同位体比で±に続く数値は測定 of 標準不確かさ又は実験標準偏差である。

注 12-2) 測定は 2 試験所で独立に実施され、結果は並列に記述した。

共同分析に参加した機関を順不同で以下に示す。御協力に深謝します。

(財) 環境科学技術研究所, (国) 気象研究所, (独) 日本原子力研究開発機構,  
(財) 日本分析センター

The Japan Society for Analytical Chemistry

## 日本分析化学会

### 認 証 書

### Certified Reference Material

JSAC 0471 (U8 容器, 50 mm 高さ)

JSAC 0472 (U8 容器, 30 mm 高さ)

JSAC 0473 (U8 容器, 10 mm 高さ)

### 土壤認証標準物質 放射能分析用

本標準物質は、セシウム 134 ( $^{134}\text{Cs}$ ) , セシウム 137 ( $^{137}\text{Cs}$ ) , カリウム 40 ( $^{40}\text{K}$ ) の放射能濃度が認証された乾燥土壌試料で、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、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーによる放射能分析方法の妥当性の確認、測定器の精度管理などに用いることができる。また、参考値としてストロンチウム 90 ( $^{90}\text{Sr}$ ) , プルトニウム (Pu) の放射能濃度、Pu 同位体比を示した。

**認証値**      **基準日時 (日本時間)**    **2012 年 2 月 1 日 0 時 0 分 0 秒**

標準物質 番号	成分	放射能濃度 Bq/kg	拡張不確かさ ( $k=2$ ) <sup>注1)</sup> Bq/kg	室間再現 標準偏差 ( $SD$ ) <sup>注2)</sup> Bq/kg
JSAC 0471 JSAC 0472 JSAC 0473	$^{134}\text{Cs}$	85.3	5.9	4.8
	$^{137}\text{Cs}$	115	8	5
	$^{40}\text{K}$	396	25	15

注1) 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2) 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。

## 参考値

標準物質 番号	核種	放射能濃度 <sup>注3)</sup> Bq/kg	分析方法
JSAC 0471	<sup>90</sup> Sr <sup>注4)</sup>	0.20 ± 0.07 0.40 ± 0.25	化学分離/低バックグラウンドガスフローカウンター
	<sup>238</sup> Pu	ND(0±0)	陰イオン交換分離/α線スペクトロメトリー
	<sup>239+240</sup> Pu	0.0180 ± 0.0044	
	<sup>239</sup> Pu	0.0141 ± 0.0003	抽出クロマトグラフィ/ID-ICPMS
	<sup>240</sup> Pu	0.011 ± 0.001	
<sup>239+240</sup> Pu	0.025 ± 0.001		
JSAC 0472			
JSAC 0473	核種	同位体比 <sup>注3)</sup>	分析方法
	<sup>240</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu	0.1804 ± 0.0092	陰イオン交換分離/TIMS
	<sup>238</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu	< 0.05	
	<sup>241</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu	< 0.003	
	<sup>242</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu	< 0.005	

注3) 放射能濃度及び同位体比で±に続く数値は測定標準不確かさ又は実験標準偏差である。

注4) 測定は2試験所で独立に実施され、結果は並列に記述した。

## 使用上の注意

1. 試料はU8容器(内径 48 mm)に均質になるように充填した後、中蓋及びクッションボールを入れ、上蓋を閉めて軽く固定されているので、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高さ 50 mm, 30 mm, 10 mm は公証値であり、必要に応じて高さを測定することを推奨する。
3. 本標準物質は、放射性核種を含むため取り扱い及び廃棄には注意する。

## 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、参照下さい。

## 標準物質の調製方法及び均質性評価

採取した土壌試料を、熱風循環式定温乾燥器にて 35 °C, 24 時間乾燥し、その後、アルミナボールミルを用いて粉碎、これを篩分けし、粒径 (63 - 250) μm のものを選別した。この後、全試料を、拡翼式混合機を用いて混合し、続いて V 型混合機で再混合し、試料の均質化を図る。

た。試料は、U8 容器(内径 48 mm)に 50 mm 高さ、135.0 g で 255 本、30 mm 高さ、80.0 g で 50 本、10 mm 高さ、30.0 g で 50 本を瓶詰めした。試料の充填前に 6 カ所から試料を採取し Mn, Cu, Zn 濃度を ICP-AES により測定したところ均質性には問題が見られなかった。また、底質調査方法(昭和 63 年 環境庁環水管 127 号) に準じて乾燥減量(水分)を測定したところ 1.5 %であった。

放射能濃度の均質性は、試料調製時に化学分析を実施した試料とほぼ同位置から 2 本ずつ計 12 本分の試料を採取して、U8 容器に 50 mm の高さで 135 g を充填した試料を用いて評価した。試料中の  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  測定は 2 機関で実施され、不均質性は JIS Q 0035 に記述される手順を用いて評価され、不確かさに合成された。

### 認証値の決定方法

認証値は、下記の 12 の試験所による Ge 半導体検出器を用いた  $\gamma$  線スペクトロメトリー<sup>文献1)</sup> による共同実験結果を 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。すなわち、製作した試料から無作為に 12 個を抜き取り、参加試験所に配付した。認証値は 12 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。なお、認証値は、充てん高さが異なる試料を含めて、充てん高さ 50 mm の試料を用いて決定した。詳細は開発成果報告書を参考のこと。

### 共同実験の実施期間

認証値決定のための共同実験は 2012 年 3 月から 4 月の間に行われた。参考値決定のための共同実験は、2012 年 3 月から 7 月の間に行われた。

### 計量トレーサビリティ

認証値の決定において、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。すなわち、国家標準へのトレーサビリティが取れた参照標準が用いられたほか、1 試験所では  $^{40}\text{K}$  について KCl の学術的データ、1 試験所では妥当性が実証されている計算によって行われた。また、核データや自己吸収補正など、学術的データに基づく補正については不確かさを考慮した。詳細は開発報告書を参照のこと。

### 参考値について

参考値に示した核種については、分析を実施した機関数が少なく、認証値を算出することはできなかったが、本土壌標準物質の性状を理解するために有効と考え参考値として記載した。関連する情報として下記が参考になる。

1)[日本の環境放射能と放射線] [http://www.kankyo-hoshano.go.jp/kl\\_db/servlet/com\\_s\\_index](http://www.kankyo-hoshano.go.jp/kl_db/servlet/com_s_index).

2) K.Hirose *et. al*: [Recent trends of plutonium fallout observed in Japan : plutonium as a proxy for desertification] , J. Environ. Monit., 5 (2003) 302-307.

**認証日付** 2012年5月29日

**認証値決定に協力した分析機関**

東京都市大学工学部  
東京都市大学原子力研究所  
明治大学理工学部  
京都大学原子炉実験所  
(大共)高エネルギー加速器研究機構放射線科学センター  
(財)日本分析センター  
(公社)日本アイソトープ協会  
(独)放射線医学総合研究所  
(独)産業技術総合研究所  
(独)日本原子力研究開発機構  
エヌエス環境株式会社  
株式会社環境総合テクノス  
以上 12 機関

**参考値決定に協力した分析機関**

(財)環境科学技術研究所  
(国)気象研究所  
(独)日本原子力研究開発機構  
(財)日本分析センター  
以上 4 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)
エヌエス環境株式会社	(東京都港区西新橋 3-24-9)
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 久保田 正明

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	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

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」

## 改定履歴

2012年10月15日 認証値及び不確かさを訂正すると共に、参考値を追加した。

## 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](mailto:crmpt@ml.jsac.or.jp)

添付資料 14

均質性に対する試料充てん量の影響

1. 追加試験の背景

JIS Q 0031 に「認証書は、認証標準物質の使用者が採取するサブサンプルの最小の量又は数を記述することが望ましい。これには、それより少ないサブサンプルの採取がその特性の認証値及びそれに関連する不確かさの記述の使用を無効にするという警告を伴うことが望ましい。」と記載されており、認証標準物質にとって最小試料量の記載は欠かせない要件である。

本土壌標準物質 (JSAC0471, JSAC0472, JSAC0473) の開発では、均質性試験を U8 容器に土壌試料 135 g を 5 cm の高さで充填した JSAC0471 で行っており、JSAC0471 と比較して充填量が少ない JSAC0472 (試料充填量 : 80 g, 充填高さ 3 cm) 及び JSAC0473 (試料充填量 : 30 g, 充填高さ 1 cm) に対して、JSAC0471 と同等の均質性が得られているか否かについては未確認であり、最小試料量の評価としては不十分であったことは否定できない。そこで、JSAC0473 (試料充填量 : 30 g, 充填高さ 1 cm) 10 本 (No.67, No.70, No.75, No.80, No.85, No.90, No.95, No.100, No.105, No.110) を用いた均質性試験を実施した。結果は下記に示すように、試料充填量が少ない JSAC0473 と JSAC0471 との間には  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  放射能濃度に均質性に有意な差がないことが確認できた。

2. 測定内容及び結果

土壌 (充填高さ 1 cm, 充填量 : 30 g) 10 試料を東京都市大原子力研究所に設置された Ge 半導体検出器で 2013 年 7 月 3 日から 11 日にかけて 86400 秒測定した。

$^{134}\text{Cs}$ (604 keV),  $^{137}\text{Cs}$ (661 keV),  $^{40}\text{K}$ (1461 keV) の測定結果 (単位 : cps/kg) を以下に示す。測定値は 2013 年 7 月 1 日に減衰補正した。

表 測定結果(単位 : cps/kg)

Sample No	$^{134}\text{Cs}$	計数誤差	$^{137}\text{Cs}$	計数誤差	$^{40}\text{K}$	計数誤差
1cm-No.67	0.8802	2.40 %	1.5541	1.69 %	0.3966	3.25 %
1cm-No.70	0.8837	2.53 %	1.5154	1.73 %	0.3943	3.35 %
1cm-No.75	0.9222	2.35 %	1.6169	1.64 %	0.3693	3.47 %
1cm-No.80	0.8845	2.52 %	1.5406	1.69 %	0.3720	3.44 %
1cm-No.85	0.8472	2.45 %	1.4909	1.74 %	0.3727	3.39 %
1cm-No.90	0.8887	2.41 %	1.5807	1.69 %	0.3835	3.43 %
1cm-No.95	0.8540	2.44 %	1.5606	1.70 %	0.4226	3.18 %
1cm-No.100	0.9055	2.40 %	1.5530	1.68 %	0.3825	3.34 %
1cm-No.105	0.8586	2.46 %	1.5275	1.71 %	0.3718	3.42 %
1cm-No.110	0.8621	2.42 %	1.5851	1.69 %	0.3962	3.36 %
Mean	0.8787		1.5525		0.3862	
Std. Dev.	0.0237		0.0365		0.0167	
RSD/ $\sqrt{n}$	0.85 %		0.74 %		1.36 %	
$s_{b+r}$		2.81 %		2.35 %		4.31 %
$s_r$		2.10 %		1.70 %		3.36 %
$s_{bb}$		1.15 %		1.63 %		2.70 %

ここで、 $s_{b+r}$  は測定値の標準偏差、 $s_{bb}$  は瓶間均質性に基づく標準偏差、 $s_r$  は併行精度である。測定値の標準偏差 ( $s_{b+r}$ ) と  $s_{bb}$ 、 $s_r$  は以下の関係がある。

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

ガンマ線測定における計数誤差を  $s_r$  と考え、 $s_{bb}$  を上式から求めた。今回測定した充填高さ 1cm 試料の均質性の標準不確かさ ( $s_{bb}$ ) は、 $^{134}\text{Cs}$  では 1.15 %、 $^{137}\text{Cs}$  では 1.63 % であり、充填高さ 5cm の試料の測定から求めた標準不確かさ 1.6 % と同等であった。また同様に  $^{40}\text{K}$  の平均値の推定標準偏差 ( $\text{RSD}/\sqrt{n}$ ) は 1.36 %、 $s_{bb}$  は 2.70 % と求められた。 $^{40}\text{K}$  の  $s_{bb}$  は充填高さ 5cm の試料の放射能濃度測定から求めた  $^{40}\text{K}$  の  $s_{bb}$  3.10 % とほぼ同等であった。また、 $^{40}\text{K}$  の平均値の推定標準偏差 1.36 % は、充填高さ 5cm の試料の均質性に基づく標準不確かさ 1.6 % とほぼ同等であった。

以上の結果から、JSAC0473 (試料充填量 : 30 g, 充填高さ 1 cm) においても、均質性に基づく不確かさを拡大する必要はないと考えられる。