

# 開発成果報告書

## 放射能分析用

牛肉認証標準物質(フレーク状, 低濃度)

JSAC 0753

JSAC 0754

2013年12月17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	4
5. 均質性の評価	8
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. 認証書	18
10. 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	31
添付資料 5 : 測定条件と測定値との関係についての考察	47
添付資料 6 : 報告された $\gamma$ 線スペクトル例	49
添付資料 7 : 認証書	54

# 開発成果報告書

## 放射能分析用 牛肉認証標準物質 JSAC 0753, 0754

### 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、昨年度に開発したCs-134及びCs-137を合わせて約500 Bq/kgの高濃度の牛肉標準物質に引き続き、規制値に近い濃度、約150 Bq/kgの牛肉認証標準物質（低濃度）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	(63 ± 6) Bq/kg	(k=2)
Cs-137	(106 ± 9) Bq/kg	(k=2)
K-40	(283 ± 54) 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。土壌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・高濃度)の開発を終了した。今回は低放射能濃度の牛肉認証標準物質を開発するので、日本ハム株式会社中央研究所にて候補標準物質の調製と放射能測定による均質性試験が実施された。

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
京都大学原子炉実験所
(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合成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合成標準不確かさ

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
4	日本アイソトープ協会製 混合核種点線源 (MX402 53) (U8 容器) 及び日本アイソトープ協会製 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。 2.35

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)	ピーク効率の校正値として, 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 0751 (牛肉認証標準物質)	Cs-134 3.45 Cs-137 3.37 K-40 8.28
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 については学術的核データの 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
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. 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) 候補標準物質の概要

標準物質用試料として放射能濃度が異なる 4 ロット準備したが、一部はすでに牛肉認証標準物質 (JSAC0751 及び JSAC0752) の開発に用いられた [牛肉認証標準物質 (フレーク状) 開発成果報告書 (2013 年 3 月 8 日) を参照]。今回は表 3 に示すように、4 ロットのうち LOT1 と LOT4 の残材から合計 8 kg を使用し、25 kg の非汚染の牛肉<sup>注)</sup>を混合し、目的の濃度が得られるように適切に混合した。試料は、ミートチョッパーを用いてミンチ状にした後、ロット毎に凍結乾燥し、続いて、粉碎、篩、混合、小分け (必要に応じて再粉碎) して候補標準物質を得た。前回の低濃度候補標準物質も含め、候補標準物質の調製過程の概要を図 1 に示した。今回の高濃度候補標準物質については、図 1 の点線の枠内に示す。

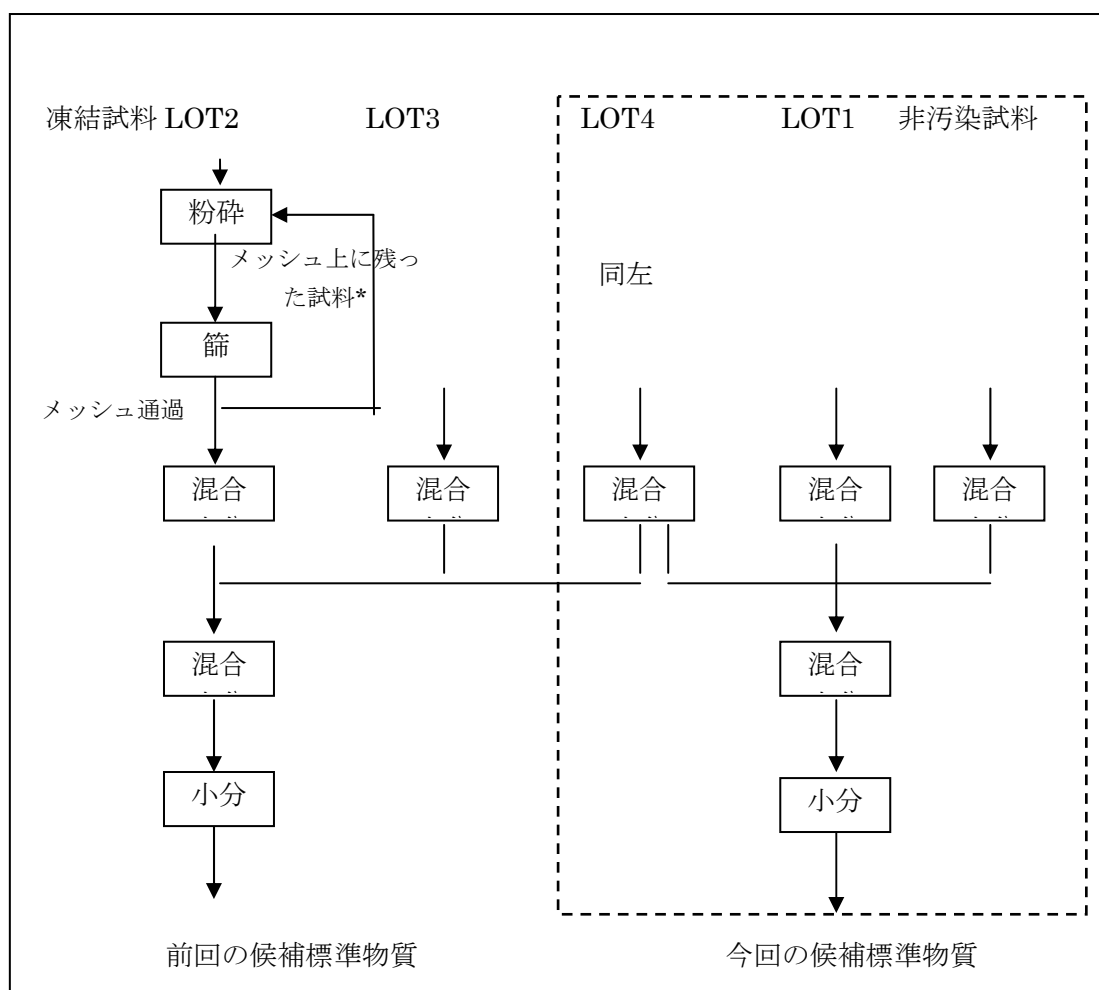
調製過程の詳細は (2) から (5) に記載する。これらは日本ハム株式会社中央研究所において実施された。

注) アメリカ産で K-40 は 344 Bq/kg (2012-11-19 日本ハムにて 10 時間測定)

表 3 ロット毎の粉碎後の放射能濃度, 比重, 収量, 及び使用量

	LOT1	LOT2	LOT3	LOT4
Cs-134	287.7 Bq/kg	91.4 Bq/kg	195.4 Bq/kg	277.7 Bq/kg
Cs-137	455.0 Bq/kg	146.6 Bq/kg	361.3 Bq/kg	451.1 Bq/kg
Cs-134+Cs-137	742.7 Bq/kg	238.0 Bq/kg	556.7 Bq/kg	728.8 Bq/kg
比重	0.39	0.46	0.44	0.34
収量	16 kg	12 kg	17 kg	12 kg
前回使用量	0 kg	12 kg	17 kg	8 kg
前回製造後残量	16 kg	0 kg	0 kg	4 kg
今回使用量	4 kg	-	-	4 kg
残量	12 kg	0 kg	0 kg	0 kg

図1 試料調製過程の概要



\*注：粉碎→篩→混合→小分けの過程で必要に応じて再粉碎。

(2) 候補標準物質の均質化

凍結乾燥，混合，ふるい分けの様子を図2～4に示す。



図2 凍結乾燥（アサヒライフサイエンス製凍結乾燥機）



図 3 縦型ミキサーMT-90SH ((株) 愛工舎製作所)



図 4 電磁式ふるい分け振とう機

凍結乾燥後、粉碎，4メッシュ(目開きは約4.75 mm)の篩を用いて分級し混合した後，小分けして候補標準物質を得た。

粉碎後のロット毎の収量や混合に使用された量を表3に示した。前回に製造した候補標準物質の残り8 kg (LOT1：4 kg, LOT4：4 kg) と候補標準物質と同様の方法で作製した非汚染牛肉25 kgを混合し，縦型ミキサーで140 rpm，1時間の条件で混合を行った。凍結乾燥肉は，約33 kgを投入し刃にこびり付いたもの等を差引いた収量が30 kgであった。

### (3) 袋詰めと滅菌処理

得られた候補標準物質30 kgを約50 gおよび約500 gずつPEチャック付ラミネート袋(多層フィルム，内層PE)に入れた後，シールをし，電子線による殺菌を行った。最終的な出来高は，50 g入りは300袋，500 g入りは30袋であった。50 g入りは12袋を均質試験用に，13袋を共同実験用に使用した。

50 g 候補標準物質の写真を図5に示す。





図 5 梱包された候補標準物質

電子線照射条件は、以下の通りである。

- ・線量：20 kGy
- ・加速電圧：4.8 MV
- ・電流：20.0 mA
- ・カート速度（外周）：13.5 m/min
- ・照射方法：片面 1 回

滅菌後、さらにアルミニウムラミネートポリエチレン製袋に入れ、頒布する。

(4) 乾燥による質量の減少について

均質性試験に用いる試料のうち 10 個について乾燥前後の質量を測定し、約 4.4 %の質量減少認めた。乾燥は 135 °C、2 時間の条件で行った。結果を下記表 4 に示す。

表 4：含水率測定結果

試料番号	乾燥前重量 g	乾燥後重量 g	差分 g	質量減少 (%)
ML-1	50.9	48.7	2.2	4.3
ML-27	53.9	51.6	2.3	4.3
ML-34	53.5	51.2	2.3	4.3
ML-74	50.6	48.4	2.2	4.3
ML-102	51.4	49.2	2.2	4.3
ML-124	53.7	51.4	2.3	4.3
ML-218	52.6	50.3	2.3	4.4
ML-246	52.1	49.9	2.2	4.2
ML-255	52.1	49.7	2.4	4.6
ML-274	55.0	52.5	2.5	4.5
			平均 (%)	4.4

## 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。12 試料を用いて、測定時間は 12 時間とした。放射能測定は日本ハム株式会社中央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

小分けした候補標準物質からランダムに 12 点抜き取り、均質性評価に用いた。測定前に 135 °C で 2 時間乾燥した後、U8 容器に充填してゲルマニウム半導体検出器を用いて放射能測定を実施した。測定時間は Cs-134 及び Cs-137 に対して十分な併行精度が期待される 12 時間(43200 秒)と一定とした。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 9 月 30 日から 10 月 15 日にかけて測定された。

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  $s_{bb}$  を表示している。

表 5 に Cs-134 及び Cs-137 の評価結果、表 6 に K-40 の評価結果を示した。 $s_{b+r}$  (%) の計算では、これまでは測定で得られたカウント数の相対標準偏差を用いていたが、今回の測定では採取した質量に無視できないばらつきがあったので、測定した放射能濃度の相対標準偏差を用いた。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。ピークの面積は関数適合法によって計算されており、測定値の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。

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十分な併行精度が得られていない。このためバックグラウンドの信号と共に別表（表 6）に示した。

表 5 Cs-134 及び Cs-137 の放射能測定による均質性試験結果

単位：カウント数

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
ML-1	1482.8	38.51	42.17	2981.2	54.60	56.81
ML-27	1339.1	36.59	40.34	2732.8	52.28	54.36
ML-34	1495.9	38.68	42.23	2951.3	54.33	56.21
ML-74	1341.4	36.63	40.79	2736.7	52.31	54.58
ML-102	1434.6	37.88	41.16	2947.4	54.29	56.51
ML-124	1464.6	38.27	41.50	2985.9	54.64	56.72
ML-218	1399.6	37.41	41.39	2824.5	53.15	55.21
ML-246	1463.4	38.25	42.30	2848.8	53.37	55.49
ML-255	1387.4	37.25	41.18	2702.7	51.99	53.98
ML-274	1462.5	38.24	42.30	2971.8	54.51	56.70
ML-281	1325.5	36.41	39.85	2744.8	52.39	54.71
ML-315	1523.8	39.04	42.39	2935.5	54.18	56.20
AVERAGE	1426.72	37.77	41.47	2863.62	53.51	55.63
STDEV	66.72			110.92		
$s_{b+r}(\%)$	<b>4.68</b>			<b>3.87</b>		
$s_r(\%)$		<b>2.65</b>	2.91		<b>1.87</b>	1.94
$s_{bb}(\%)$		<b>3.85</b>	3.66		<b>3.39</b>	3.35

表 6 K-40 の放射能測定による均質性試験結果

単位：カウント数

試料番号	N	Nb	N'	Nb'	$(N+Nb+N'+Nb')^{0.5} / ((N-Nb)-(N'-Nb'))$	ネットカウント	計数誤差 1	計数誤差 2
ML-1	1131.0	48.9	699.6	58.68	10.0%	441.2	21.0	44.0
ML-27	1057.0	50.6	699.6	58.68	11.8%	365.5	19.1	43.2
ML-34	1091.0	51.4	699.6	58.68	10.9%	398.7	20.0	43.6
ML-74	1111.0	51.4	699.6	58.68	10.5%	418.7	20.5	43.8
ML-102	1122.0	56.6	699.6	58.68	10.4%	424.5	20.6	44.0
ML-124	1166.0	45.5	699.6	58.68	9.3%	479.6	21.9	44.4
ML-218	1135.0	48.9	699.6	58.68	9.9%	445.2	21.1	44.1
ML-246	1097.0	42.0	699.6	58.68	10.5%	414.1	20.3	43.6
ML-255	1200.0	62.6	699.6	58.68	9.1%	496.5	22.3	45.0
ML-274	1071.0	51.4	699.6	58.68	11.5%	378.7	19.5	43.4
ML-281	1052.0	51.4	699.6	58.68	12.0%	359.7	19.0	43.1
ML-315	1101.0	40.3	699.6	58.68	10.4%	419.8	20.5	43.6
AVERAGE	1111.2	50.1	699.6	58.7	<b>10.5%</b>	420.2	20.5	43.8
					STDEV	41.90		
					$s_{b+r}(\%)$	<b>9.97</b>		
					$s_r(\%)$		<b>4.88</b>	10.43
					$s_{bb}(\%)$		<b>8.70</b>	-3.05

表 6 の N, N<sub>b</sub> 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<sub>b</sub>' 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 2 を参照）。

K-40 の測定結果は、 $s_{bb}$  は計数誤差 1 を用いて計算すると 7.5 % とかなり大きな値になる。逆に、計数誤差 2 を用いて計算すると負となり、均質性に対して異常な数値を与えていることが分かる。これは均質性試験ではよく見られることで、併行精度が不足しているために均質性評価が上手くできない場合に相当する。

K-40 の測定値の計数誤差は一般に次式で表される。

$$K-40 \text{ の計数誤差} = (N+Nb+N'+Nb')^{0.5} / ((N-Nb)-(N'-Nb'))$$

表 6 に計算した結果を示すが、10.5 % の値が得られ  $s_{b+r}$  と同レベルになり、このことから K-40 については、放射能測定では正確な均質性評価が容易でないことが分かる。

### (3) 均質性試験に基づく不確かさの推定

表 5 から計数誤差 1 を用いた Cs-134 及び Cs-137 の均質性の不確かさはいずれも 3% を超える値を示すが、先に述べたようにこれらを用いると均質性を過小評価することはないと考えられる。したがって、ここでは、Cs-134 及び Cs-137 に対して計数誤差 1 を用いて計算された  $s_{bb}$  値を考慮し、それぞれ 3.85 % 及び 3.39 % を均質性の相対標準不確かさとした。

K-40 については、放射能測定における併行精度が充分でないため計数誤差 1 を用いると均質性不確かさを過大評価する懸念はあるが、これを越えない最大の値としてここでも 8.70 % を均質性不確かさとした。

現在、化学分析による K 総量の分析を実施しているところであり、適切な分析結果が得られた場合は均質性不確かさを変更することも考えられる。

## 6. 報告結果及び特性値の決定

共同実験においては、候補標準物質を各試験所で袋から取り出し、乾燥後、測定容器（主に U8）に詰め替えて行った。参加試験所の測定値と測定条件をまとめて添付資料 2, 3, 4 に示す。表 7 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 (0.7413 × 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 :  $(x - Median) / NIQR$

従来法による  $z$  スコアで 3 を越える報告値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 5 のユーデン図を参照)。添付資料 2, 3, 4 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、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、本牛肉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 7 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 7 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	63.16	0.12	0.35	103.28	-0.44	-0.40	322.3	1.82	1.98
4	62	-0.31	-0.27	100	-1.07	-1.50	270	-0.62	-0.62
5	63	0.06	0.27	104	-0.30	-0.16	298	0.68	0.77
6	62.49	-0.13	0.00	108.6	0.60	1.39	295.6	0.57	0.65
8	58.33	-1.68	-2.23	99.65	-1.14	-1.62	266.2	-0.80	-0.81
10	59.96	-1.07	-1.36	100.73	-0.93	-1.26	252.0	-1.46	-1.52
11	62.5	-0.13	0.00	104	-0.30	-0.16	284	0.03	0.07
12	61.21	-0.61	-0.69	104.9	-0.11	0.16	254.6	-1.34	-1.38
14	66	1.18	1.88	105	-0.10	0.18	288	0.22	0.27
15	61.4	-0.54	-0.59	106	0.09	0.52	281	-0.11	-0.07
16	67	1.55	2.42	114	1.65	3.21	312	1.34	1.47
18	67	1.55	2.42	116	2.04	3.88	276.1	-0.34	-0.32
データ数 p	12			12			12		
Average	62.84			105.52			283.32		
SD	2.68			5.13			21.46		
RSD	4.27			4.86			7.57		
SD/ $\sqrt{p}$	0.77			1.48			6.19		
RSD/ $\sqrt{p}$	1.23			1.40			2.19		
Median	62.50			104.46			282.50		
NIQR	1.86			2.97			20.13		
RNIQR	3.0			2.8			7.1		

表中の測定値では報告値をそのまま記載した。試験所番号(Lab)について一部不連続となっているのは、既開発の土壌、玄米標準物質の際の共同実験参加試験所の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 5 に、Cs-134 と Cs-137 の相関をユードン図で示した。

添付資料 6 には、報告された  $\gamma$  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補正は不要であった。
  - 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。多くの試験所では日本アイソトープ協会のアルミナ媒質の標準を用いており、本候補標準物質では 39~50 g を密度 0.48~0.56 g/cm<sup>3</sup>、高さ 45~50 mm で充填している。自己吸収の補正では、充填物質として、水、土壌、寒天等異なる物質が選択されているが、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  $\gamma$  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
- ・ $\gamma$  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、本牛肉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、自己吸収補正の標準不確かさ、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 8 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	1.23	1.40	2.19
検出効率校正	2.39	2.37	3.19
自己吸収補正	1.00	1.00	1.00
均質性	3.85	3.39	8.70
合成標準不確かさ	4.80	4.48	9.57
拡張不確かさ ( $k=2$ )	9.60	8.96	19.15
	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
拡張不確かさ ( $k=2$ )	6.04	9.46	54.41

認証書に記載する拡張不確かさは次の通り.

**Cs-134      6 Bq/kg**

**Cs-137      9 Bq/kg**

**K-40        54 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 6、図 7、図 8 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。

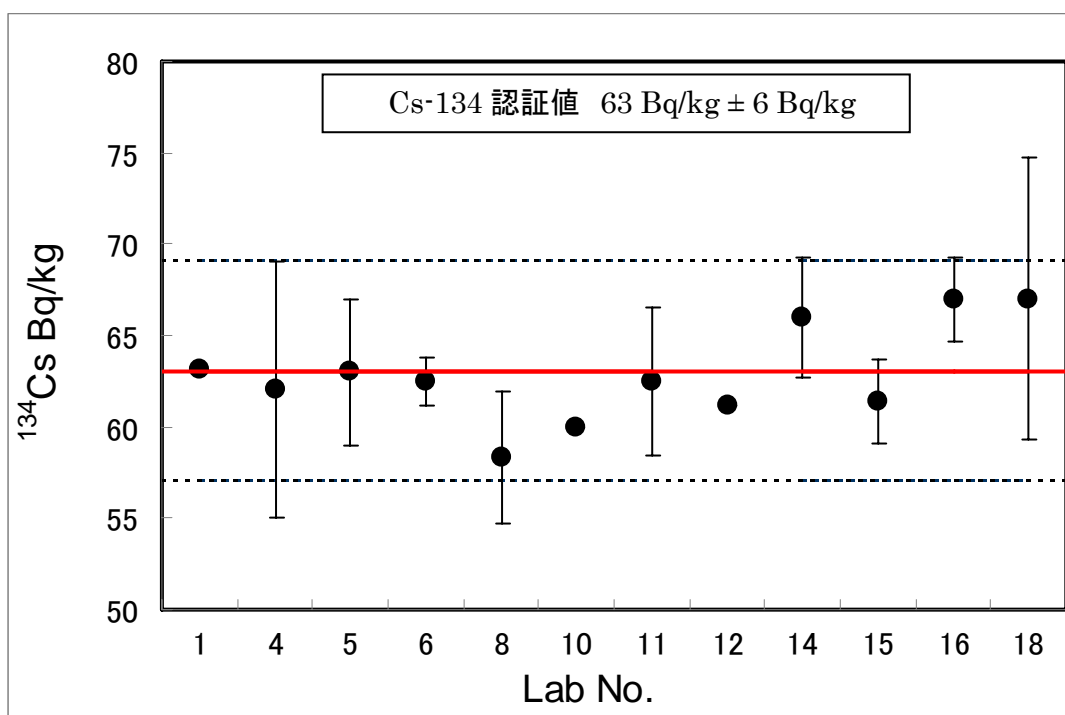


図 6 Cs-134 の認証値と測定値の分布

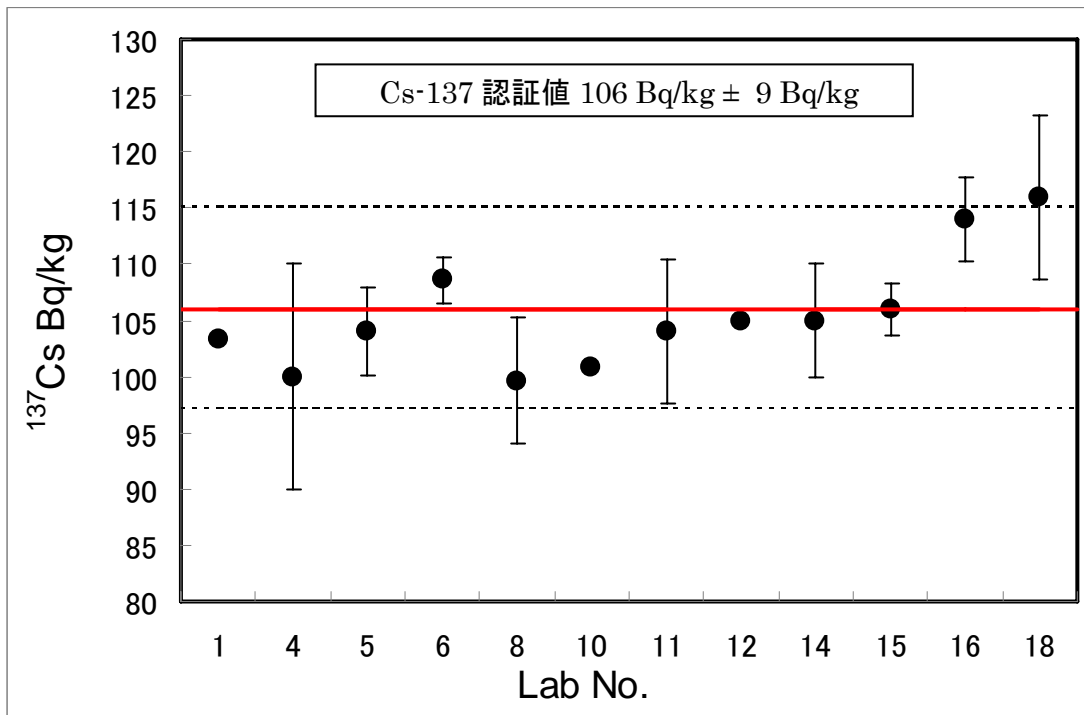


図7 Cs-137 の認証値と測定値の分布

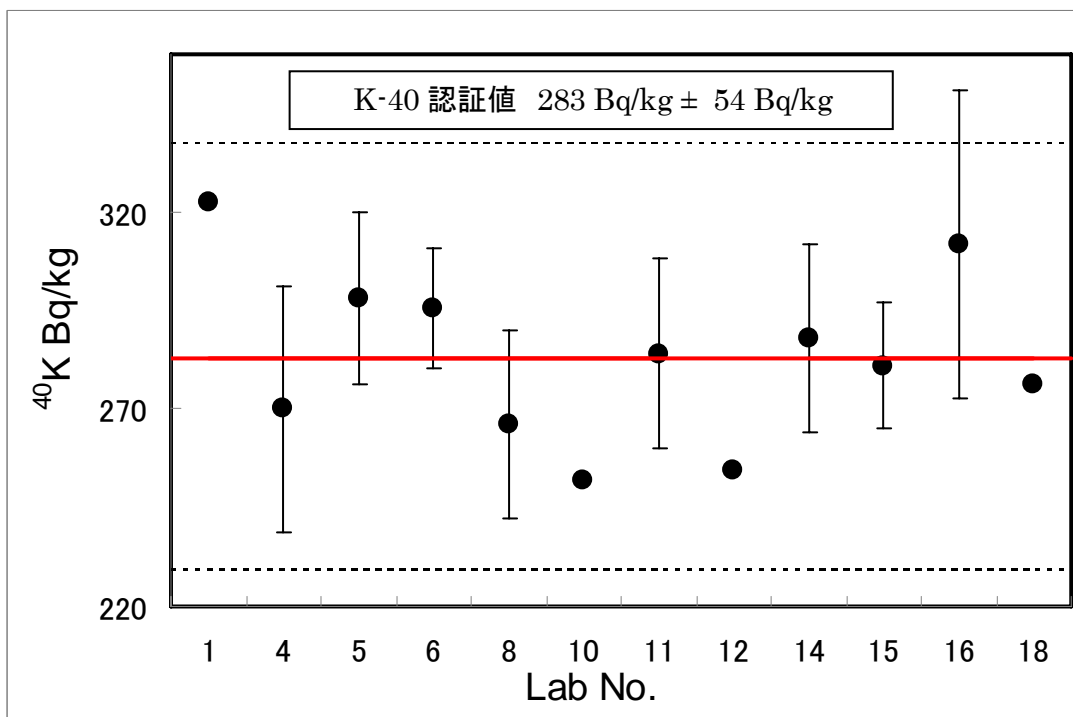


図8 K-40 の認証値と測定値の分布

## 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、及び他の標準物質作製のための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

1. 本標準物質は放射能測定用の容器に詰めかえて用いる。ポリエチレン袋中の標準物質を適切な容器に移し、135℃で2時間乾燥する。JSAC 0753 及び JSAC 0754 は、原則それぞれ U8 容器及び 1L マリネリ容器に移し替えて測定する。
2. 本標準物質の調製時、135℃、2時間の乾燥において約4%の質量減が認められた。
3. 測定容器に詰めかえる際は、あまり強く押し込まないように、例えば JSAC 0753 では 40g~50g を均質に充填する。
4. 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。
5. 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

この牛肉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、本牛肉認証標準物質を測定し、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：

本牛肉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.

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

また, スクリーニング法などにおける測定器の校正や日常管理に用いることが可能である.

## 9. 認証書

添付資料 7 に掲載する.

## 10. 結 語

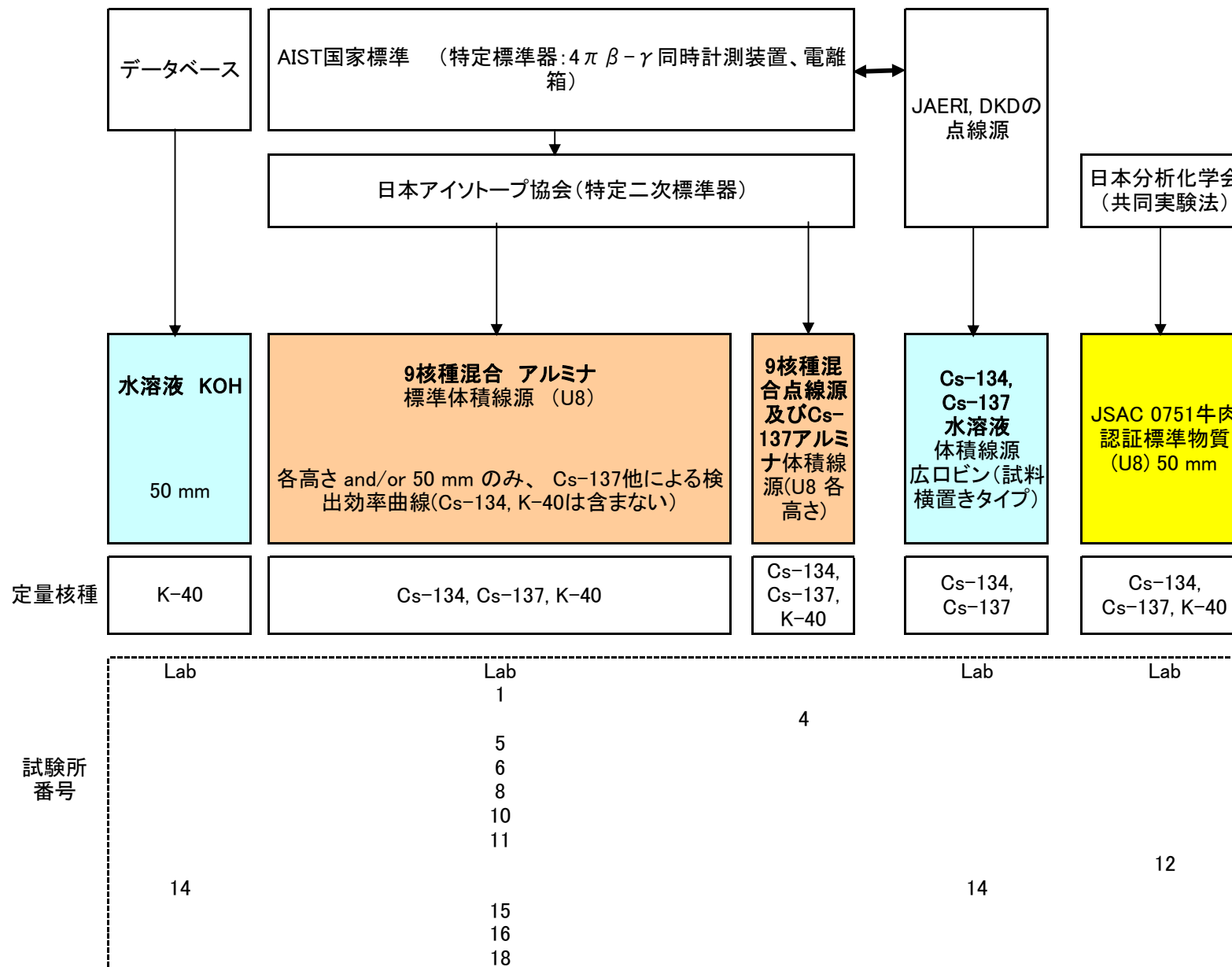
ここに放射能分析用牛肉認証標準物質 JSAC 0753, 0754 を開発・作製した.

原子力発電所の事故による食生活への放射能影響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牛肉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 2012-11-19 JST 00:00:00(高濃度と同じとする)

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/ $\gamma$	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	0.28%	無	無
	Cs-134						
	Cs-137	30.07y	661.66	0.851	0.33%	無	無
	K-40	1.28E+09	1460.83	0.107	0.16%	無	無
出典WWW Table of Radioactive Isotopes <a href="http://ie.lbl.gov/toi/">http://ie.lbl.gov/toi/</a>							
4	Cs-134	2.06	795.8	85.4	0.01268	有	有
	Cs-137	30.14	661.6	85.1	0.016211	有	有
	K-40	1277000000	1460.8	10.7	0.008222	有	有
Atomic Data and Nuclear Data Tables(1983年)							
5	Cs-134	7.54.E+02	605	97.6	1.30.E-02	有	有
	Cs-137	1.10.E+04	662	85.0	1.29.E-02	無	有
	K-40	4.57.E+11	1461	10.6	6.36.E-03	無	有
出典: table de radionucleides 2007							
6	Cs-134	2.06 Y	563.26	8.38		0.866552	0.925249
	Cs-134	2.06 Y	569.29	15.43		0.864965	0.925579
	Cs-134	2.06 Y	604.66	97.56		0.919302	0.931593
	Cs-134	2.06 Y	795.76	85.44		0.916258	0.935789
	Cs-134	2.06 Y	801.84	8.73		0.899556	0.936015
	Cs-134	2.06 Y	1365.13	3.04		1.151294	0.951062
	Cs-134	2.06 Y					
	Cs-137	30.2 Y	661.64	85.0		1	0.930211
K-40	1280000000 Y	1460.75	10.67		1	0.952842	
出典: アイソトープ手帳							
8	Cs-134	2.062Y	569.32keV	15.43	0.01746	有	有
	Cs-134	2.062Y	604.70keV	97.60	0.01758	有	有
	Cs-134	2.062Y	795.85keV	85.40	0.01353	有	有
	Cs-134	2.062Y	801.93keV	8.73	0.01319	有	有
	Cs-134	2.062Y	604.70keV	97.60	0.01758	有	有
	Cs-137	30Y	661.66keV	85.21	0.01785	-	有
	K-40	1.277×109Y	1460.75keV	10.67	0.00841	-	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/ $\gamma$	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		0.951188	0.928112
	Cs-134	753.146D	795.76	85.44		0.95176	0.936194
	Cs-137	30.174Y	661.638	85		1	0.930862
	K-40	1.28E+09Y	1460.75	10.67		1	0.952209
11	Cs-134	$7.531 \times 10^2$ 日	604.66	97.56	0.023203	有	有
	Cs-137	$1.102 \times 10^4$ 日	661.64	85.00	0.024479	無	有
	K-40	$4.664 \times 10^{11}$ 日	1460.75	10.67	0.013956	無	有
12	Cs-134	2.062y	604.66keV	97.56%		牛肉認証標準試料 (JSAC 0751) と 同じであると仮定	
	Cs-137	30.174y	661.638keV	85%			
	K-40	$1.277 \times 10^9$ y	1460.75keV	10.67%			
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)	0.00097	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)	0.00177		有
	Cs-134	2.0648 (12) y	604.72	0.9762 (3)	0.0112		有
	Cs-134	2.0648 (13) y	795.86	0.8553 (4)	0.0078		有
	Cs-134						
	Cs-137	30.07 (3) y	661.66	0.851 (2)	0.0103	無	有
	K-40	$1.277 (8) E9$ y	1460.83	0.1067 (13)	0.00066	無	有
出典：Table of Isotopes 1998							
15	Cs-134	2.0648Y	605	0.976	0.0225	有	有
	Cs-137	30.1671Y	662	0.851	0.0211	無	有
	K-40	$1.251 \times 10^9$ Y	1461	0.107	0.0120	無	有
出典：Table of isotope 7th. Ed.							
16	Cs-134	2.062年	604.66keV	97.56%	0.0182	有	有
	Cs-134	2.062年	795.76keV	85.44%	0.0146	有	有
	Cs-134	2.062年	604.66keV	97.56%	0.0182	有	有
	Cs-137	30.174年	661.638keV	85.00%	0.0185	無	有
	K-40	$1.277 \times 10^9$ 年	1460.75keV	10.67%	0.00963	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	$1.277 \times 10^9$	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。

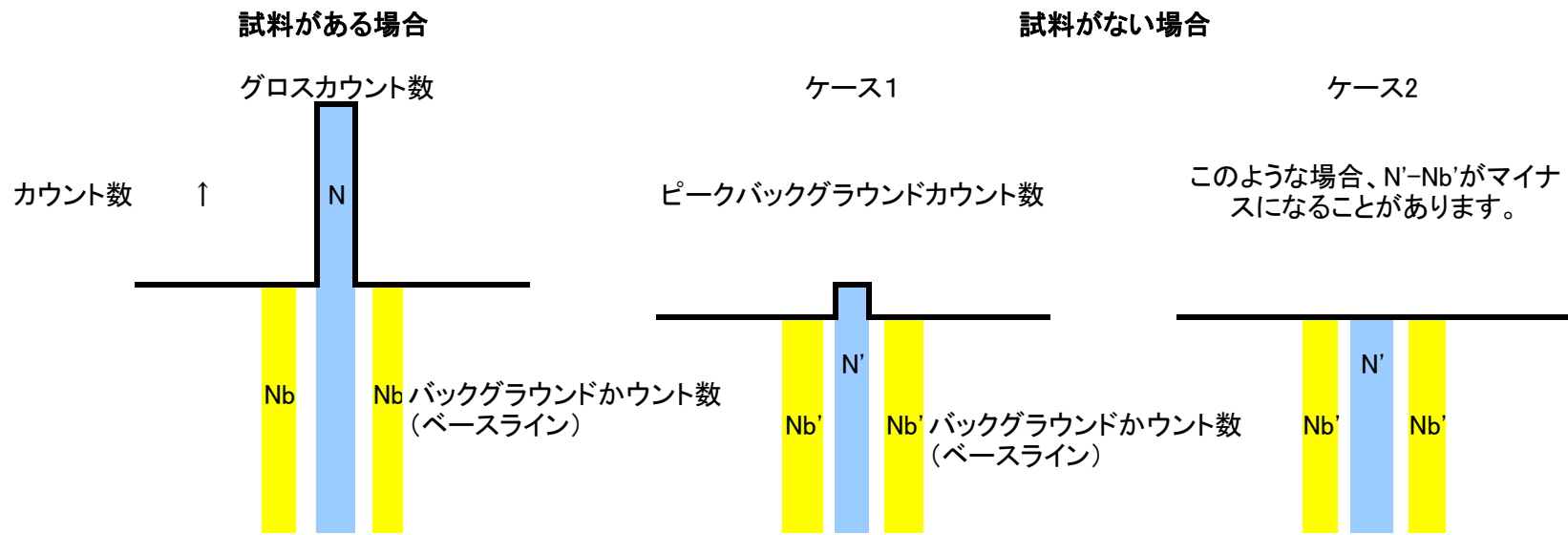
試験所 番号	ピーク面積計算方 法(関数法又はコ ペール法、その 他)	機器ソフト上で選 択した試料材質	測定時間 live time(秒)	グロスカウン 数 N	ベースラインカ ウント数 Nb	正味カウント数 N-Nb	ピーク計数率 (カウント数/秒)	試料がないときの グロスバックグラ ウンドカウント数 N' *
1	関数法		578620	4819.04		4819.04	0.008328506	602.389
	関数法		578620	3425.37		3425.37	0.005919896	484.637
	関数法		578620	8809.89		8809.89	0.015225692	1444.86
	関数法		578620	4714.25		4714.25	0.008147402	4685.6
4	コペール法	灰化物	100247	2601	221.1	2369.7	0.025945914	263
	コペール法	灰化物	100247	6905	297.7	6607.3	0.068879867	286
	コペール法	灰化物	100247	1256	89.1	1166.9	0.012529053	144
5	コペール法	水	200000	6482	668	5814	0.03	2359
	コペール法	水	200000	11750	665	11085	0.06	2352
	コペール法	水	200000	2756	171	2585	0.01	3433
6	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	172800	1582.0	1083.6	5.1080E+02	6.8496E-01	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	172800	1894.0	973.4	9.2600E+02	5.1394E-01	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	172800	10021.2	771.3	6.0554E+03	7.6967E-02	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	172800	4731.0	548.9	4.1594E+03	1.1602E-01	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	172800	834.0	444.2	4.6290E+02	5.3261E-01	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	172800	330.0	184.6	1.3390E+02	5.5939E-01	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	172800	13549.0	1063.3	1.2486E+04	7.8478E-02	
関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	172800	2534.0	204.0	2.1500E+03	8.0505E-02		
8	関数法	水、寒天	95000	1058	506.7	551.3	0.011136842	513
	関数法	水、寒天	95000	4003	552.4	3450.6	0.042136842	481
	関数法	水、寒天	95000	2572	268.1	2303.9	0.027073684	286
	関数法	水、寒天	95000	445	229.1	215.9	0.004684211	309
	関数法	水、寒天						
	関数法	水、寒天	95000	7600	394	7206	0.08	421
	関数法	水、寒天	95000	1555	69.4	1485.6	0.016368421	552

試験所 番号	ピーク面積計算方 法(関数法又はコ ベール法、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' *
10	コベール法	アルミナ	172800	3998	643	3355	0.023136574	
	コベール法	アルミナ	172800	2611	290	2321	0.015109954	408
	コベール法	アルミナ	172800	6960	507	6453	0.040277778	527
	コベール法	アルミナ	172800	1360	96.9	1263.1	0.00787037	510
11	コベル法	寒天	100000	5865	872.1	4992.9	0.049929	1300
	コベル法	寒天	100000	11043	651.8	10391.2	0.103912	949
	コベル法	寒天	100000	2452	208	2244	0.02244	702
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	関数法		329787			6919	0	
	関数法		329787			13813	0	
	関数法		329787			6848	0	
14	コベール法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	256753	2165	1432	733	0.008432229	1155
	コベール法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	256753	2774	1611	1163	0.010804158	1282
	コベール法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	256753	9007	1413	7594	0.035080408	1292
	コベール法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	256753	6284	880	5404	0.024474884	1118
	コベール法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	256753	16892	1348	15544	0.065790857	2004
	コベール法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	256753	5866	328	5538	0.022846861	2743
15	コベル法	C <sub>60</sub> H <sub>94</sub> N <sub>9</sub> O <sub>13</sub> (タンパ ク質+脂肪)	107348	5744	841	4903	0.053508216	1292
	コベル法		107348	11076	549.3	10526.7	0.103178448	1217
	コベル法		107348	2567	176	2391	0.023912881	1003
16	コベル法	灰化物	86400	4018	628.7	3389.3	0.04650463	0
	コベル法	灰化物	86400	2859	430.9	2428.1	0.033090278	0
	コベル法	灰化物						
	コベル法	灰化物	86400	7652	630	7022	0.088564815	0
	コベル法	灰化物	86400	3319	164	3155	0.038414352	3009
						0	#DIV/0!	
18	コベール法	水、寒天	86400	3178	593.5	2584.5	0.036782407	220
	コベール法	水、寒天	86400	5696	423	5273	0.065925926	170
	コベール法	水、寒天	86400	2213	83.1	2129.9	0.025613426	583

\*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	→		↓	拡張不確かさ (k=2) (Bq/kg)
				測定時の放射能 Bq	供試品作製時の 放射能 Bq		
1		602.389	848602	2.199	3.037	63.012	
		484.637	848602	2.209	3.05	63.299	
						63.155	
		1444.86	848602	4.868	4.977	103.28	
		4685.6	848602	15.531	15.531	322.29	
		0					
4	265.8	-30.2	146243	2.2	3.0	62	7
	248	38	146243	4.8	4.9	100	10
	155.4	-14.7	146243	13	13	270	31
5	2327	32	930000	2.3	3.1	63	4.0
	1965	387	930000	5.0	5.1	104	3.9
	628	2805	930000	14.8	14.8	298	21.9
6	939		1300000		2.993571/0.199374	6.066E+01	8.080E+00
	950				2.981727/0.14573055	6.042E+01	5.906E+00
	938		1300000		3.07944/0.044192925	6.240E+01	1.791E+00
	1015		1300000		3.0858555/0.05087985	6.253E+01	2.062E+00
	1015		1300000		3.4470975/0.23436315	6.985E+01	9.498E+00
	267				3.595641/0.4877754	7.286E+01	1.977E+01
						6.249E+01	1.286E+00
	802		1300000		5.35941/0.04969545	1.086E+02	2.014E+00
	379		1300000		14.58786/0.37560285	2.956E+02	1.522E+01
8	481.6	31.4	144000	2.019	2.815	54.88	7.16
	515.6	-34.6	144000	2.146	2.992	58.33	3.61
	285.1	0.9	144000	2.105	2.935	57.22	3.84
	279.6	29.4	144000	2.109	2.942	57.34	12.19
						58.33	3.61
	380.6	40.4	144000	4.996	5.112	99.65	5.60
	82.2	469.8	144000	13.66	13.66	266.2	24.0
		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			59.964	
	360	48	250000			60.906	
	456.3	70.7	250000			100.73	
	141.3	368.7	250000			251.96	
11	1345.4	-45.4	200000	2.21	0.67	13.6	0.88
	958.3	-9.3	200000	4.99	0.91	19	1.13
	363.8	338.2	200000	13.93	1.05	21	1.8
12		0	336070	2.28E+00	3.20E+00	6.12E+01	
		0	336070	5.36E+00	5.48E+00	1.05E+02	
		4219	336070	1.33E+01	1.33E+01	2.55E+02	
14	1115	40	216693	2.61			
	1209	73	216693	2.26			
	832	460	216693	2.33			
	732	386	216693	2.35			
				2.34	3.31	66	3.3
	1007	997	216693	5.15	5.27	105	5
	221	2522	216693	14.4	14.4	288	24
15		0					
	1073.6	218.4	180597	2.158	3.036	61.4	2.26
	858.3	358.7	180597	5.128	5.249	106	2.30
	302.8	700.2	180597	13.90	13.90	281	16.1
16		0	129600	2.38	3.32	67.0	4.1
		0	129600	2.40	3.35	67.5	4.5
						67.0	4.1
		0	129600	5.55	5.68	114	6
		243.7	2765.3	129600	15.5	15.5	312
18		0					
		0					
		0					
18	170.1	49.9	36000	1.80	2.47	68	5.3
	202	-32	36000	4.15	4.24	117	8.5
	48.9	534.1	36000	10.37	10.37	286.1	



添付資料3 : その他測定条件(Ge検出器とγ線スペクトロメト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	乾燥温度と時間	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種類、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ー	セイコーEG&G Ge検出器GEM20P4-70	デシケータ内で72時間乾燥	20%	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2753	質量48.19g U8容器(内径48mm, 高さ50mm) 密度:0.53 g/cm <sup>3</sup> 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の合計6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タ数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線スペクトロメトリー	CANBERRA社製 GC2519-7915-30	135°C 2時間	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:48.77 g 密度:0.638 g/cm <sup>3</sup> 容器:U-8(充填高:42mm)	
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トリー	ORTEC GEM20	135°C 2時間	23%	自己吸収計算に使用したソフト名 Gamma studio	質量:49.6459g 密度:0.5330g/cm <sup>3</sup> 容器:U8タイプ(プラ壺) 充填高さ:50mm	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)	直径20cmのガラスシャーレに移した試料は、恒温乾燥機の温度計が135°Cになってから、乾燥機に入れ、2時間乾燥。30分毎に葉サジでかき混ぜ、塊はできる限り、分けるように努めた。デシケーターで放冷し、秤量する。それをU8容器に移し、測定試料とした。	30%	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	質量:0.0435kg、密度:0.641、容器(充填高さ):4.259cm(8箇所平均)	
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トリー	・メーカー:CANBERRA社 ・型式:GC2018	乾燥温度: 135°C 乾燥時間:2 時間	24.50%	別紙に記載	・質量:51.3g ・密度:0.782g/cm <sup>3</sup> ・充填高さ:3.7cm	
10	Ge検出器	GEM20-70 (ORTEC)	乾燥はできませんでした	20.29%	セイコーEG&G ガマスタジオ RI協会体積線源	質量:51.19g 密度:0.566、 充填高さ50mm	

試験所番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	乾燥温度と時間	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種類、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
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	135℃ 2時間	65.20%	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 イージーアンドジー(株)製「γスタジオ」による	牛肉試料を乾燥機で左記条件で乾燥させ、供試料とした。U-8容器に試料を入れた後、容器の淵を軽く叩き試料の自重により充填した。 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:43.86mm 重量:0.04915kg 密度:0.618g/cm <sup>3</sup>	解析システム:セイコー E G & G (株) Cs-134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(牛肉 高濃度)との比較法	CANBERRA GC4020-7500SL		40%	標準線源:牛肉認証標準物質(フレーク状)JSAC 0751 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。
14	γ線測定	ORTEC GMX25P4	135℃ 2時間	28%	・Cs-134とCs-137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。 ・K-40線源は、容量分析用水酸化カリウム溶液を用いて作製。 ・自己吸収の補正は、牛肉試料、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(5.3-6.3%程度)を補正。	・100mLのPE製広口ビン(内径47.5mm)に試料を充填し(50.07g)、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。 ・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。	Cs-134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牛肉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(0.6-1.0%程度)を計算し補正。
15	乾燥した牛肉フレーク試料をU8容器に50mm高さになるように充填し、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。	SEIKO EG&G社 GEM50	135℃,2時間	58.40%	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、準日2013年11月11日12時)を購入した。	質量 0.04941 kg 密度 0.5461 kg/L 容器(充填高さ) 50mm	

試験所番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	乾燥温度と時間	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種類、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	乾燥温度: 135°C 時間: 2時間	39.40%	標準線源 質量: 97.0g 密度: 1.102 g/cm <sup>3</sup> 容器(充填高さ): U-8(50mm) 検出効率(cps/Bq): <sup>109</sup> Cd(88.032keV): 0.00146 <sup>57</sup> Co(122.058keV): 0.0400 <sup>57</sup> Co(136.471keV): 0.00509 <sup>139</sup> Ce(165.85keV): 0.0348 <sup>85</sup> Sr(514.000keV): 0.0196 <sup>137</sup> Cs(661.638keV): 0.0137 <sup>54</sup> Mn(834.827keV): 0.0138 <sup>88</sup> Y(898.030keV): 0.0114 <sup>60</sup> Co(1173.21keV): 0.00989 <sup>60</sup> Co(1332.47keV): 0.00895 <sup>88</sup> Y(1836.00keV): 0.00687 計算ソフト名: Gamma Studio	質量: 49.6g 密度: 0.564g/cm <sup>3</sup> 容器: U-8(充填高さ50mm)	Cs-134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	135°C × 2時間	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: 36.2448g 密度: 0.468 g/cm <sup>3</sup> 容器: U8 高さ: 43.71mm	



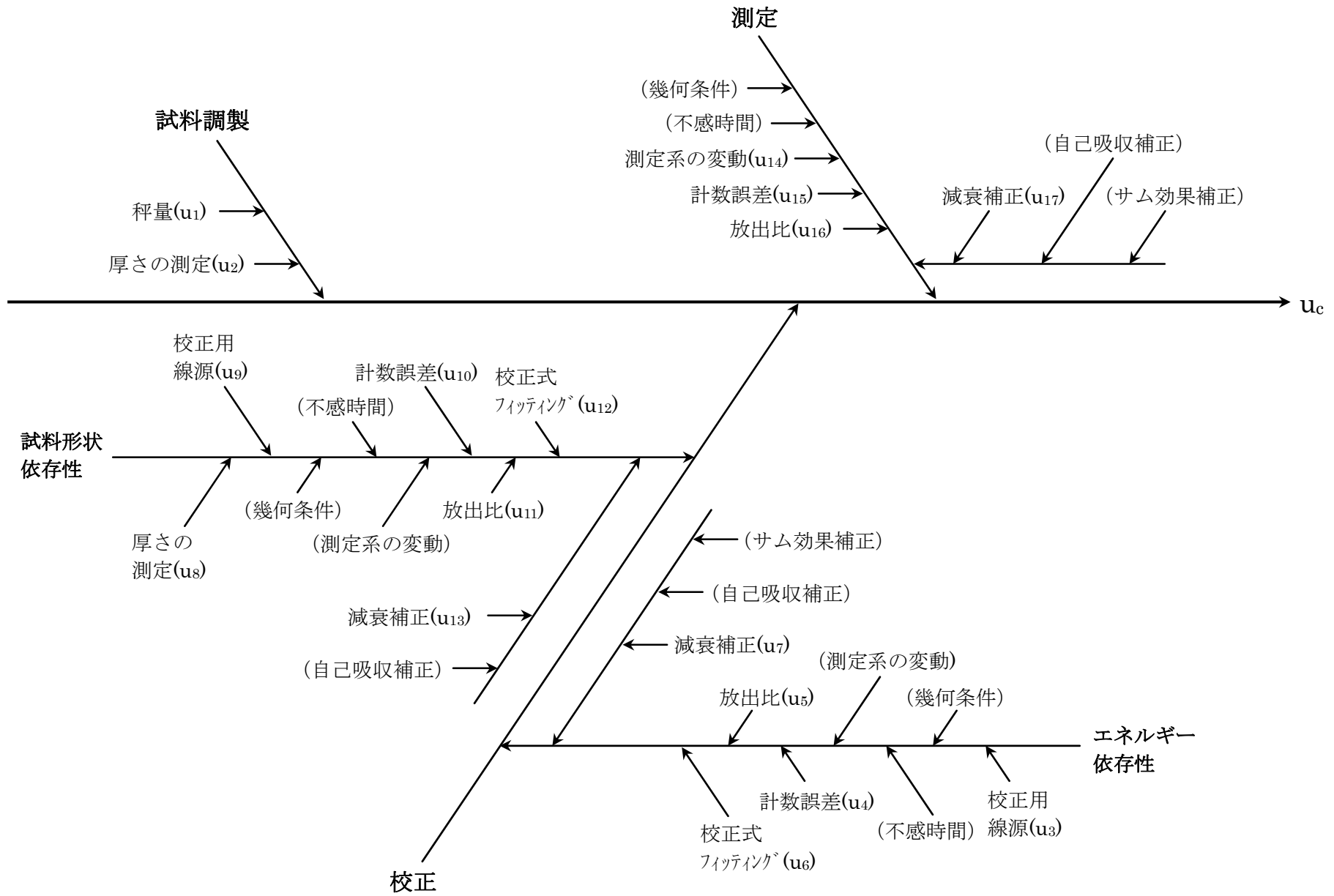
## 添付資料4

## Lab 4

別添

Ge検出器とγ線スペクトロメリー検出効率に関する情報

・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 <sup>137</sup> 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、 <sup>57</sup> Co、 <sup>60</sup> Co及び <sup>88</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。
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( <sup>137</sup> Csアルミナ容積線源)			
重量: 9.5g、密度: 1.044g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(充填高: 5.0mm)	0.0287	0.0337	
重量: 19.0g、密度: 0.994g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(10.5mm)	0.0254	0.0298	
重量: 38.0g、密度: 0.994g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(21.0mm)	0.0206	0.0242	
重量: 57.0g、密度: 1.010g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(31.0mm)	0.0177	0.0207	
重量: 76.0g、密度: 1.018g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(41.0mm)	0.0154	0.0181	
重量: 88.0g、密度: 1.029g/cm <sup>3</sup> 、 容器: U-8(47.0mm)	0.0144	0.0169	



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	1.46	1.02	2.82
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
均質性	B	2.18	0.85	1.51
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)		3.2	1.9	3.7
相対拡張不確かさ(k=2)		6.4	3.8	7.4

# Lab 6

測定コード M120131101182536  
 検出番号 1  
 測定開始日時 2013/11/1 18:25  
 測定時間 ライブタイム(秒) 172800 リアルタイム(分) 172824.9  
 スペクトルコメント 牛肉 標準物質認証共同実験(2013.11) DET#06  
 試料区分 海水  
 試料コメント 牛肉 標準物質認証共同実験(2013.11) DET#06  
 採取開始日時 2012/11/19 0:00 採取開始日時 2012/11/19 0:00  
 試料容器 U-8容器 試料量 0.0494 kg 充填高さ(cm) 4.259 密度 6.41E-01 回収率(%) 100  
 母材 海底土, 土壌, 組成式 \*\*\* AMP比(%) \*\*\*  
 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	チャンネル	エネルギー	核種名	キーライン	判定	放射能 (Bq/kg)(カ ウス)	±誤差(カウ ス)	放射能 (Bq/kg)(積 算)	±誤差(積 算)	放射能 (Bq/kg)(カウ ス 荷重平均)
127	2251.51	563.26	Cs-134	0	*検出	6.07E+01	4.04E+00	5.84E+01	6.51E+00	6.25E+01
128	2275.62	569.29	Cs-134	0	*検出	6.04E+01	2.95E+00	6.01E+01	3.56E+00	6.25E+01
137	2419.87	604.66	Cs-134	1	*検出	6.24E+01	8.96E-01	6.25E+01	9.29E-01	6.25E+01
157	2647.89	661.64	Cs-137	1	*検出	1.09E+02	1.01E+00	1.09E+02	1.07E+00	1.09E+02
201	3185.02	795.76	Cs-134	0	*検出	6.25E+01	1.03E+00	6.25E+01	1.12E+00	6.25E+01
202	3205.88	801.84	Cs-134	0	*検出	6.99E+01	4.75E+00	5.88E+01	5.45E+00	6.25E+01
273	5467.25	1365.13	Cs-134	0	*検出	7.29E+01	9.88E+00	7.91E+01	1.23E+01	6.25E+01
284	5851.05	1460.75	K-40	1	*検出	2.96E+02	7.61E+00	2.98E+02	8.01E+00	2.96E+02

No	±誤差(カウス荷 重平均)	放射能 (Bq/kg)(積算 荷重平均)	±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)	検出限界カウ ント	妨害カウント(カ ウス)
127	6.43E-01	6.24E+01	6.91E-01	1.84E+01	510.81	34.02	492.03	54.85	155.05	6.76E+00
128	6.43E-01	6.24E+01	6.91E-01	9.19E+00	926.03	45.27	920.64	54.61	140.8	---
137	6.43E-01	6.24E+01	6.91E-01	1.45E+00	6055.43	86.91	6069.41	90.16	140.74	---
157	1.01E+00	1.09E+02	1.07E+00	1.40E+00	12486.25	115.74	12474.4	123.29	161.17	---
201	6.43E-01	6.24E+01	6.91E-01	1.76E+00	4159.39	68.59	4158.21	74.57	116.92	---
202	6.43E-01	6.24E+01	6.91E-01	1.44E+01	462.92	31.47	389.82	36.1	95.29	---
273	6.43E-01	6.24E+01	6.91E-01	3.36E+01	133.9	18.16	145.38	22.53	61.77	---
284	7.61E+00	2.98E+02	8.01E+00	1.51E+01	2149.97	55.35	2170.36	58.29	109.71	---

No	±誤差(カウス)	妨害カウント(積算)	±誤差(積算)	検出効率	BGカウント	±誤差	自己吸収	サム補正	採取中	測定まで	測定中
127	1.19E+00	6.38E+00	1.38E+00	1.62E-02	----	----	9.25E-01	8.67E-01	1	1.38E+00	1.00E+00
128	----	----	----	1.61E-02	----	----	9.26E-01	8.65E-01	1	1.38E+00	1.00E+00
137	----	----	----	1.61E-02	----	----	9.27E-01	9.15E-01	1	1.38E+00	1.00E+00
157	----	1.13E+01	1.54E+00	1.62E-02	----	----	9.30E-01	1	1	1.02E+00	1.00E+00
201	----	2.39E+01	5.16E+00	1.26E-02	----	----	9.36E-01	9.16E-01	1	1.38E+00	1.00E+00
202	----	----	----	1.23E-02	----	----	9.36E-01	9.00E-01	1	1.38E+00	1.00E+00
273	----	----	----	9.77E-03	----	----	9.51E-01	1.15E+00	1	1.38E+00	1.00E+00
284	----	2.94E+00	6.35E-01	7.99E-03	1.57E+02	2.36E+01	9.53E-01	1	1	1.00E+00	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 <sup>3</sup> )
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、 $\varepsilon_s$ 、自己吸収のないピーク効率を  $\varepsilon$  とすると、

$\varepsilon_s$ と  $\varepsilon$  の関係式は

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

となる。 $f_{\text{abs}}$ 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)

$\mu$  : 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  $\mu$  については、以下の式によって求める。

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

$\mu$  : 線減衰係数

$\rho$  : 試料密度

M: 試料の原子量(アルミナ=101.96)

$\mu_{\text{Al}}$ : アルミニウム原子の全相互作用断面積

$\mu_{\text{O}}$ : 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

検査品の重量と天秤最小目盛から、下記評価方法にしたがい相対標準不確かさを算出した。

#### <天秤目盛不確かさの評価方法>

種類	検査品重量 (g)	最小目盛 (g)	評価モデル	不確かさ (g)	相対標準 不確かさ
電子天秤	M	0.1	三角分布	$0.1/\sqrt{6}=0.0408$	$0.0408/M$

例) M=100.0gの場合 : 相対標準不確かさ =  $0.0408/100.0 = 0.000408$

M=2000.0gの場合 : 相対標準不確かさ =  $0.0408/2000.0 = 0.0000204$

### 2. 定規目盛不確かさの評価

U8容器を用いて高さ補正を行う場合、検査品の高さとその測定に用いた定規の最小目盛から、下記評価方法にしたがい相対標準不確かさを算出した。

#### <定規目盛不確かさの評価方法>

種類	検査品高さ (cm)	最小目盛 (cm)	評価モデル	不確かさ (—)	相対標準 不確かさ
高さ測定	H	0.1	検出効率の 最小差異に 基づいた 矩形分布	$C/2\sqrt{3}$	$C/(2\sqrt{3} \cdot \text{Eff}_{Hcm})$
	検出効率の最小差異 $\therefore (A+B)/2 = C/2$ $A = \text{Eff}_{H-0.1cm} - \text{Eff}_{Hcm}$ $B = \text{Eff}_{Hcm} - \text{Eff}_{H+1cm}$ $C = \text{Eff}_{H-0.1cm} - \text{Eff}_{H+1cm}$ ( $\text{Eff}_{Xcm}$ : $Xcm$ の検出効率)				

例) H=4.8cmの場合 :  $\text{Eff}_{4.7cm} = 0.01442$ ,  $\text{Eff}_{4.8cm} = 0.01420$ ,  $\text{Eff}_{4.9cm} = 0.01400$

⇒ ※相対標準不確かさ =  $(0.01442 - 0.01400) / (2\sqrt{3} \times 0.01420) = 0.008538$

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

注2)  $^{40}\text{K}$ の不確かさ評価においては、便宜上 $^{60}\text{Co}$ 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	$\sigma$	$\sigma/R$

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

注2)  $^{40}\text{K}$ の不確かさ評価においては、便宜上 $^{60}\text{Co}$ 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。

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

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 <sub>1</sub>	U <sub>2</sub>	U <sub>3</sub>	U <sub>4</sub>	U <sub>5</sub>	$\sqrt{(U_1^2+U_2^2+ U_3^2+ U_4^2+ U_5^2)}$	2 × U

# Lab 11

## 別表1 校正に用いた標準線源

### 高さ5mm

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

### 高さ10mm

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

### 高さ20mm

核種	放射能 <sup>※</sup> (Bq)	相対拡張不確かさ (%)	実測充填高さ (mm)	質量 (g)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )
Cd-109	$1.668 \times 10^3$	5.6	20.65	37.6	1.001
Co-57	$1.104 \times 10^2$	4.6			
Ce-139	$1.111 \times 10^2$	4.7			
Cr-51	$2.776 \times 10^3$	4.8			
Sr-85	$1.387 \times 10^2$	4.7			
Cs-137	$1.380 \times 10^2$	4.6			
Mn-54	$1.506 \times 10^2$	4.6			
Y-88	$1.663 \times 10^2$	4.7			
Co-60	$1.781 \times 10^2$	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 <sup>3</sup> )
Cd-109	$2.502 \times 10^3$	5.6	31.05	56.4	1.001
Co-57	$1.655 \times 10^2$	4.6			
Ce-139	$1.666 \times 10^2$	4.7			
Cr-51	$4.164 \times 10^3$	4.8			
Sr-85	$2.080 \times 10^2$	4.7			
Cs-137	$2.070 \times 10^2$	4.6			
Mn-54	$2.260 \times 10^2$	4.6			
Y-88	$2.495 \times 10^2$	4.7			
Co-60	$2.672 \times 10^2$	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 <sup>3</sup> )
Cd-109	$4.170 \times 10^3$	5.6	51.80	94.0	1.001
Co-57	$2.759 \times 10^2$	4.6			
Ce-139	$2.776 \times 10^2$	4.7			
Cr-51	$6.94 \times 10^3$	4.8			
Sr-85	$3.467 \times 10^2$	4.7			
Cs-137	$3.450 \times 10^2$	4.6			
Mn-54	$3.766 \times 10^2$	4.6			
Y-88	$4.158 \times 10^2$	4.7			
Co-60	$4.453 \times 10^2$	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	<b>0.5740%</b>	<b>0.6038%</b>	<b>1.1719%</b>
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	<b>2.74%</b>	<b>2.75%</b>	<b>2.93%</b>
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	<b>1.67%</b>	<b>1.19%</b>	<b>2.87%</b>
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	1.64%	1.04%	2.60%
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	<b>3.26%</b>	<b>3.06%</b>	<b>4.27%</b>
拡張不確かさ (k=2)	<b>6.5%</b>	<b>6.1%</b>	<b>8.5%</b>

## Lab 14

・Cs-134, Cs-137溶液の放射能濃度決定に使用した点線源

①Eu-152線源(JAERI Eu427 A-7):不確かさ $\pm 4\%$ ( $3\sigma$ )

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

(Am-241, Cd-109, Co-57, Ce-139, Hg-203, Sn-113, Sr-85, Cs-137, Y-88, Co-60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 $\gamma$ 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 $\pm 2.0\%$ ( $1\sigma$ )と推定。

・Eu-152, Co-57, Ce-139, Y-88, Co-60及びCs-134の各 $\gamma$ 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Cs-137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 $\pm 1.1\%$ ( $1\sigma$ )。K40の同位体比の不確かさが主因。

・牛肉試料中の放射能強度は、自作した標準線源との間で $\gamma$ 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。

Cs-134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 $\gamma$ 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(0.6-1.0%)、補正。

この補正の不確かさは、0.6-1.0%の15%(0.09-0.15%)と推定。

・牛肉試料、Cs溶液、KOH溶液の密度は、それぞれ約0.5, 1.0, 1.16g/cm<sup>3</sup>。

それぞれの試料に対して $\gamma$ 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5.3-6.3%程度異なり、この違いを補正。

補正の不確かさは、この5.3-6.3%の5%(約0.3%)と推定。

・これらの不確かさ( $1\sigma$ )と計数誤差( $1\sigma$ )を誤差の伝播式を用いて合成した値( $1\sigma$ )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Cs-137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Cs-137の相対拡張不確かさ(%)
Cs-134	604.66keV	67.0	1.35	$1.35 \div 67.0 \times 100 = 2.01$	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)(%)  $\sqrt{(2.01^2 + (4.7/2)^2)} = 3.09$

拡張不確かさ( $k=2$ ) (Bq/kg)  $67.0 \times 3.09 / 100 \times 2 = 4.14$



## 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 のみの体積線源を使用しているため区別して表示した。Cs-134 の標準線源を使用した試験所、牛肉標準物質を使用した試験所は別のマークで示した。

高濃度牛肉の共同実験結果と比較して図 5-2 に示した。両者が(Cs137/Cs-134)比率の同一線上にあるのがわかる。

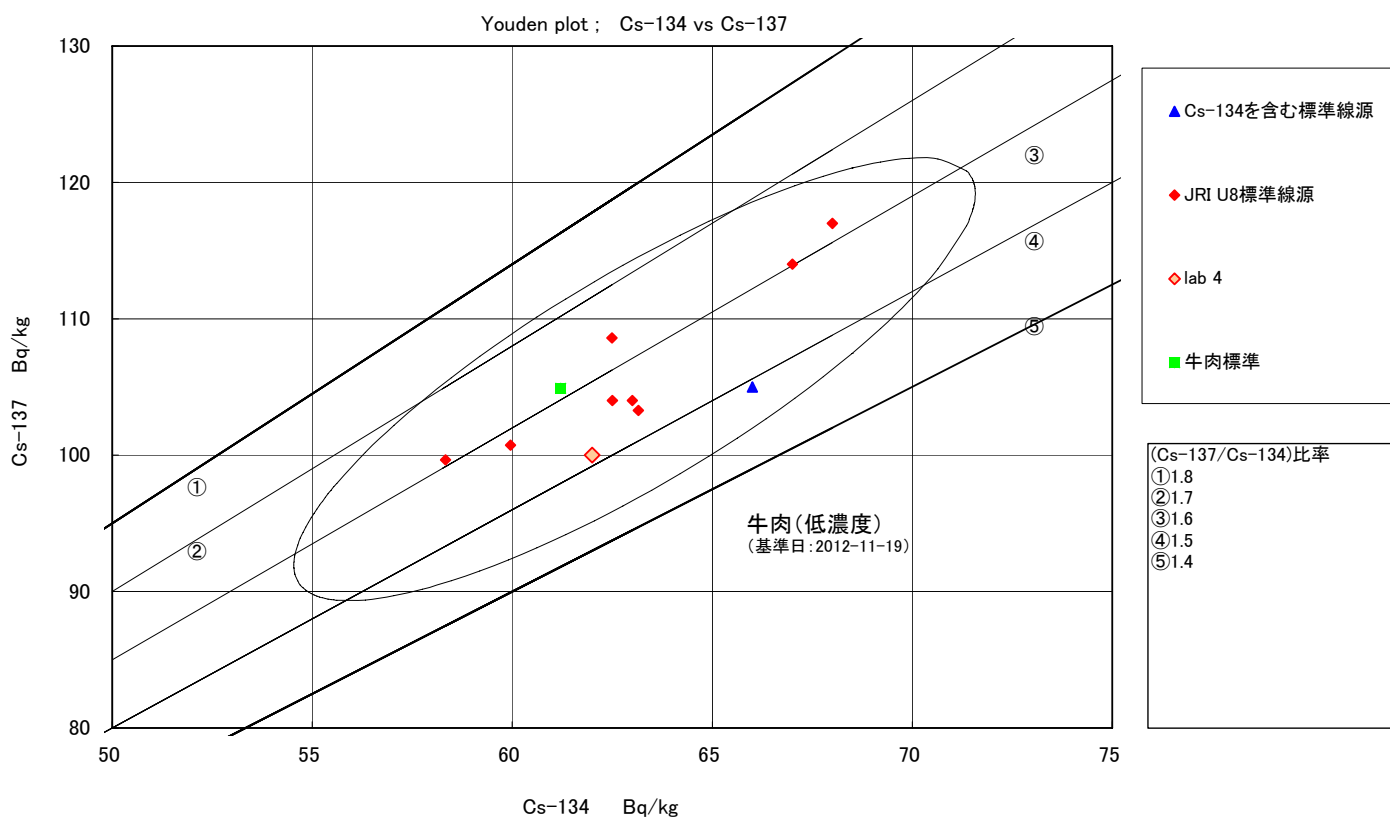


図 5-1 Cs-134 と Cs-137 測定値の比較 (牛肉低濃度)

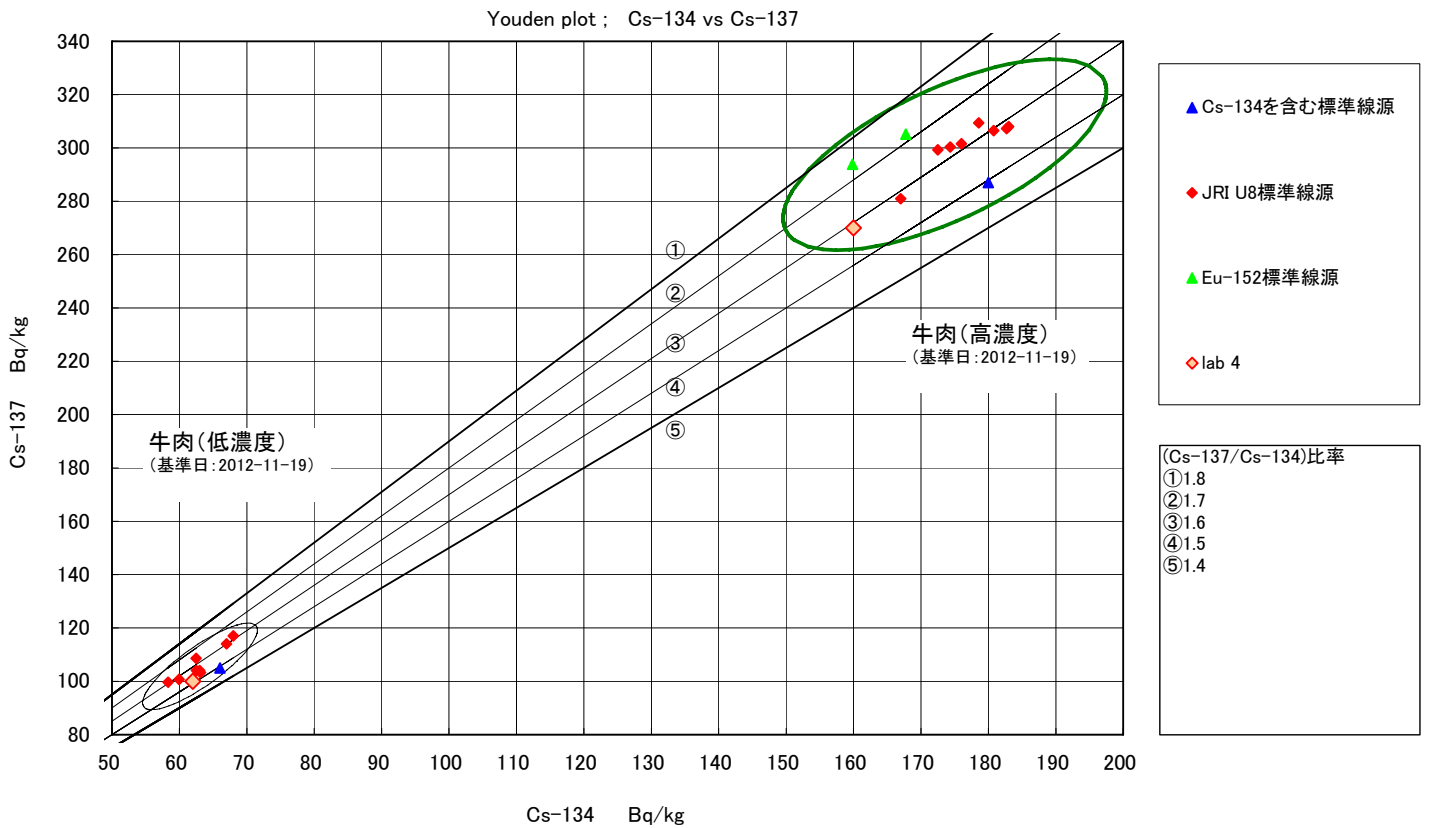


図 5-2 Cs-134 と Cs-137 測定値の比較 (牛肉の低濃度及び高濃度)

試料充填密度について、今回は、従来に比して各試験所間で比較的大きな差が報告された。日本アイソトープ協会の同種のアルミナ放射能標準体積線源を使用した試験所 1,5,6,8,10,11,15,16,18 について密度と Cs-134, Cs-137 の分析値の関係について図 5-3 に示した。

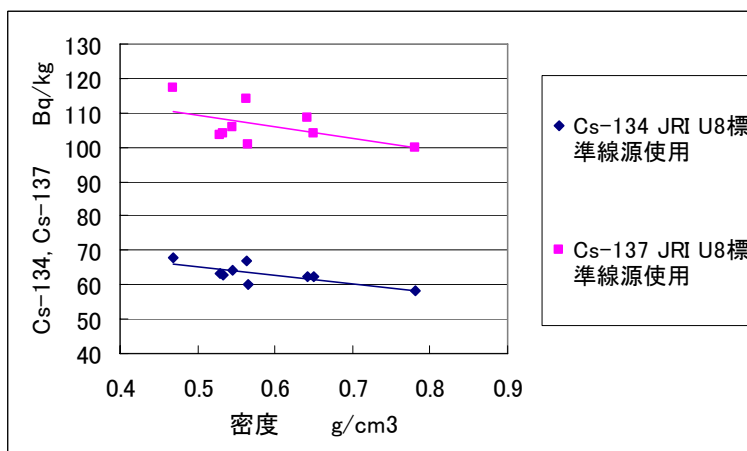
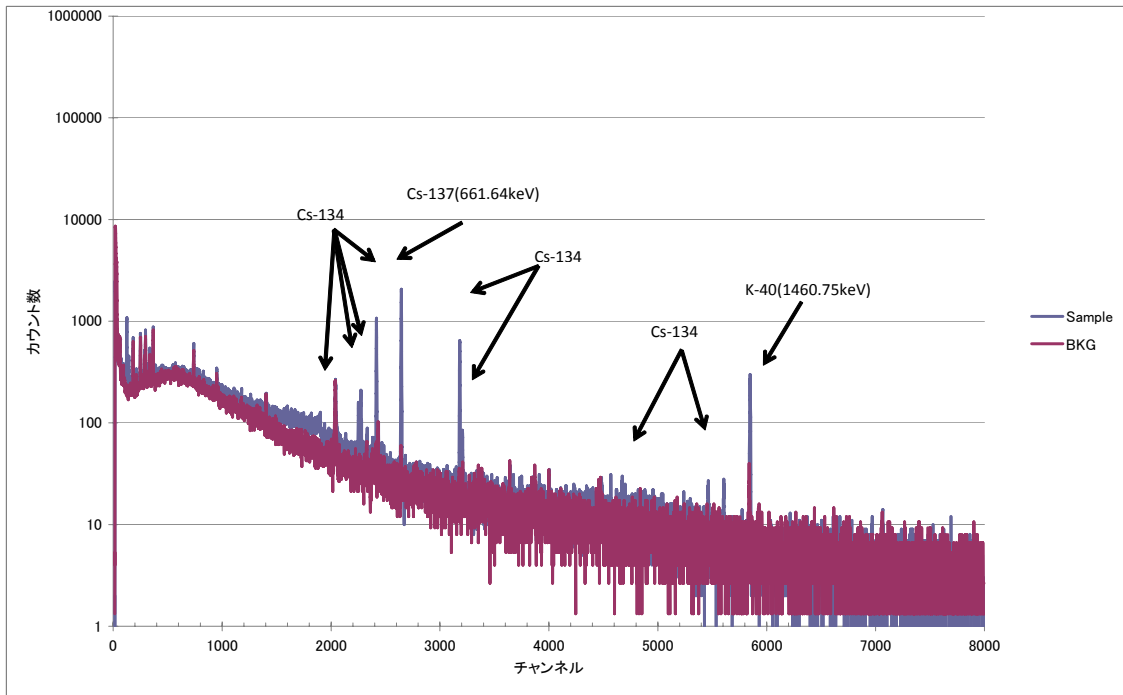


図 5-3 試料充填密度と Cs-134,Cs-137 測定値の関係

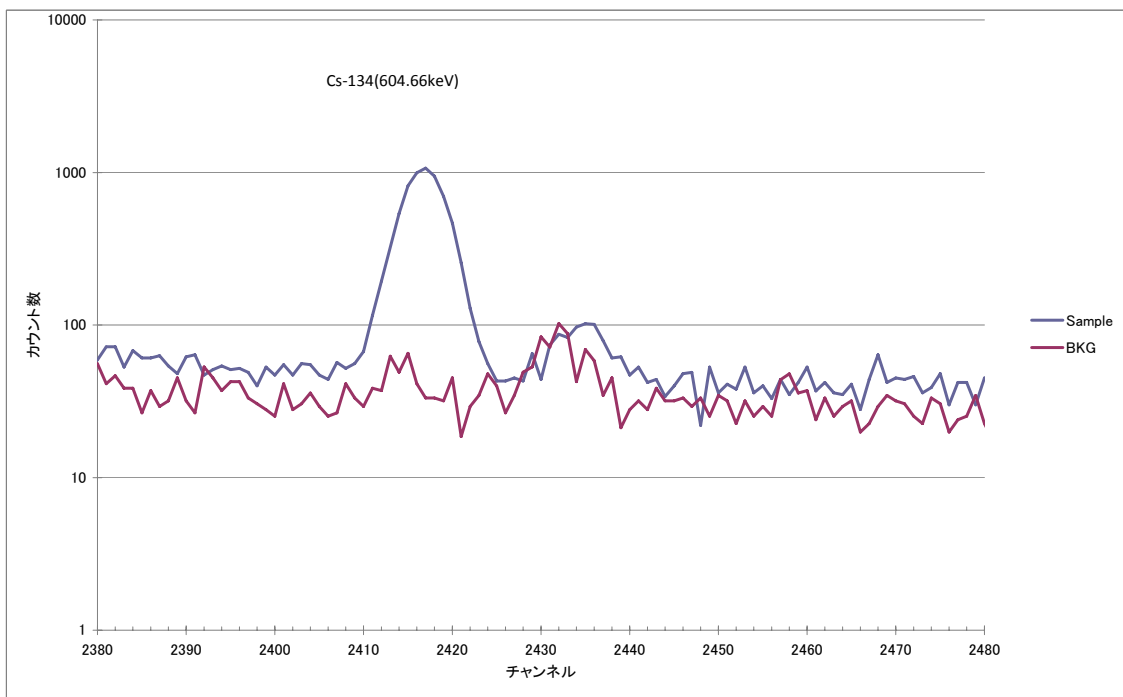
## 添付資料 6 : 報告された $\gamma$ 線スペクトル例

2 試験所について、スペクトル全体と Cs-134, Cs-137, K-40 の部分を拡大した例を示す.

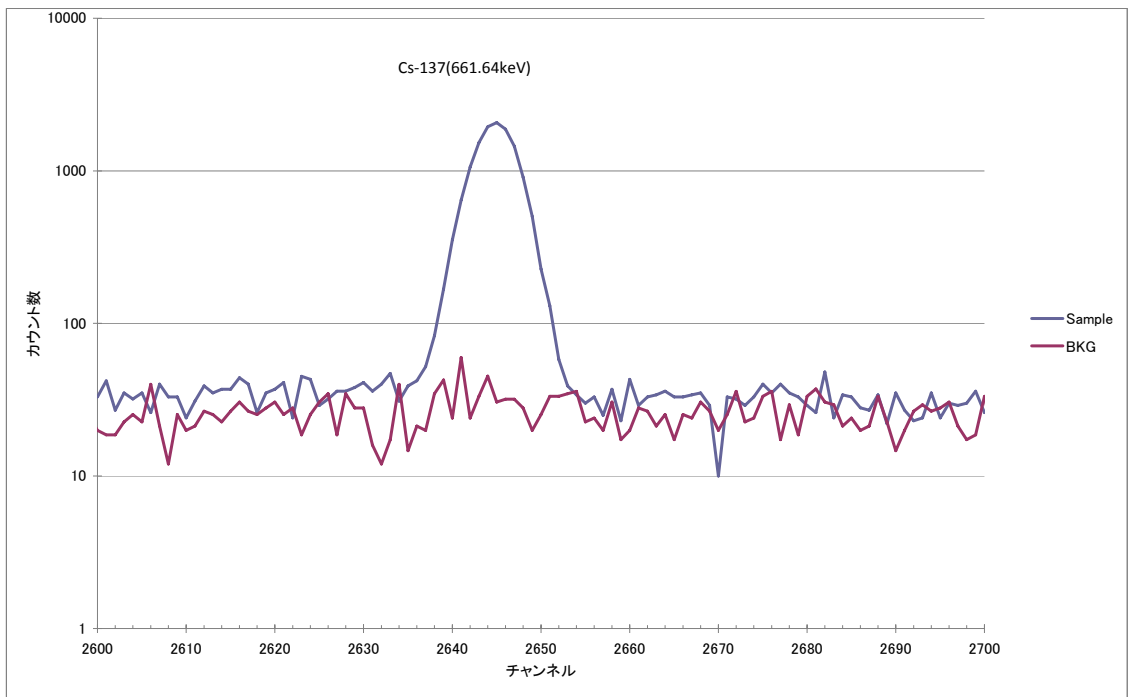
Lab 6 測定時間 試料あり : 172 800 s (2013-11-01)  
 試料なし : 130 000 s (172 800 s に換算表示) (2013-03-19)



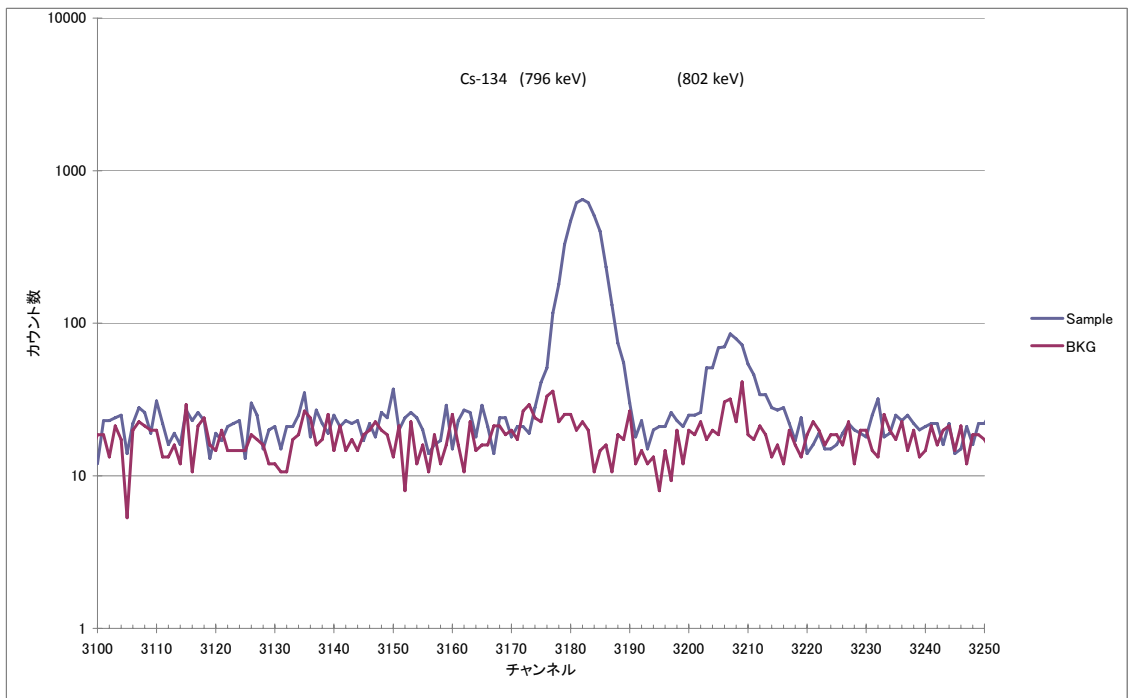
Cs-134 605 keV



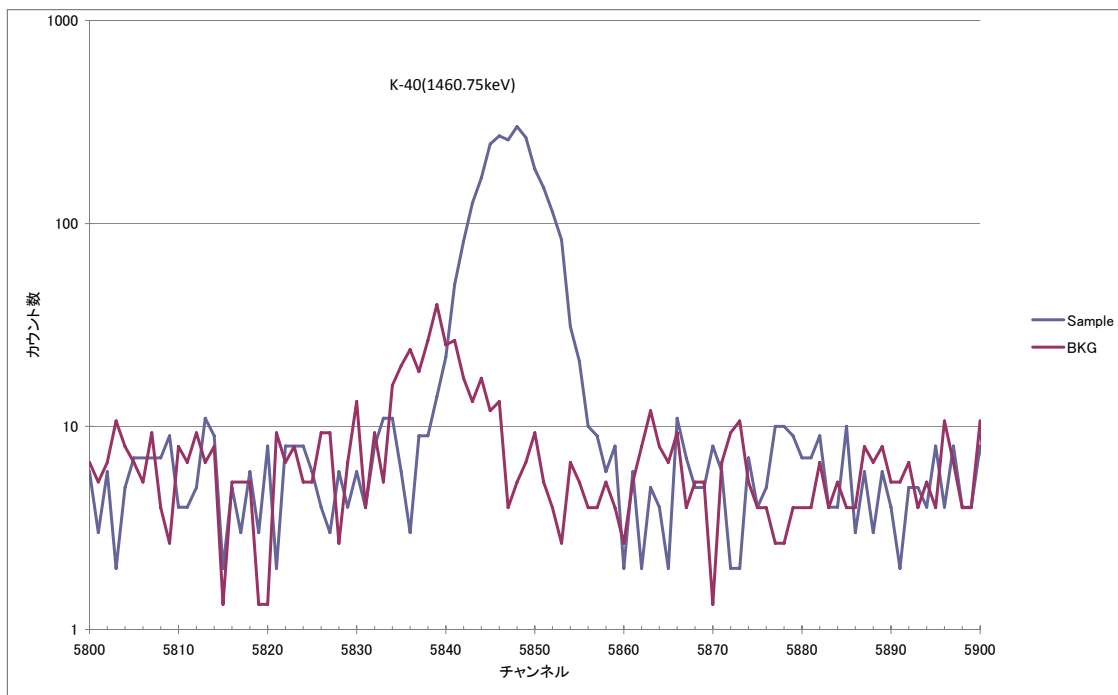
Cs-137 662 keV



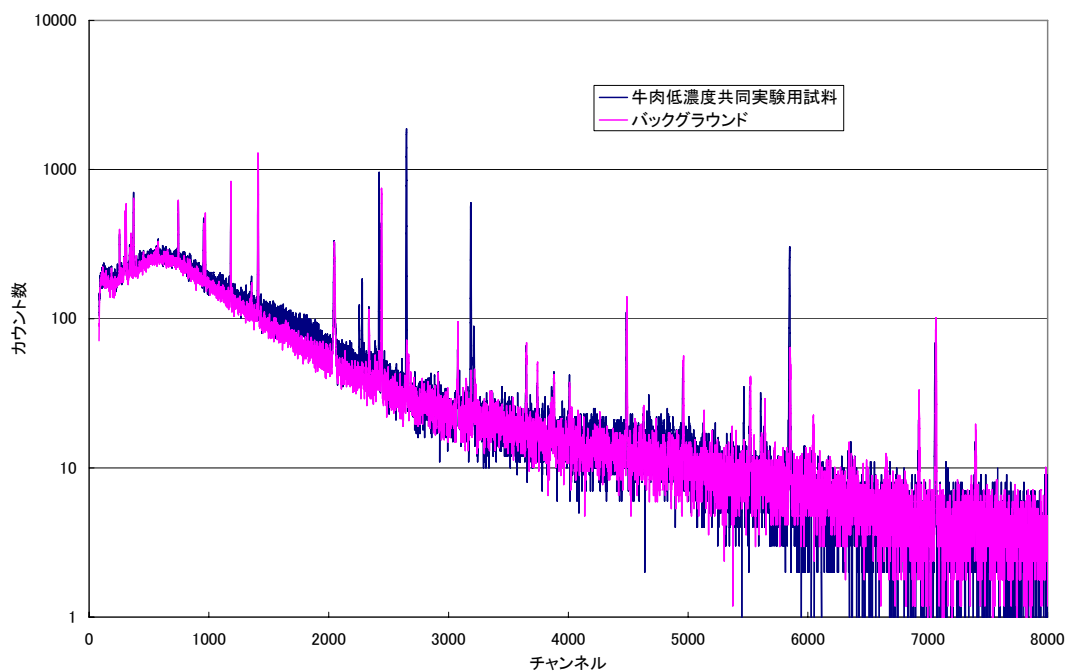
Cs-134 796 keV



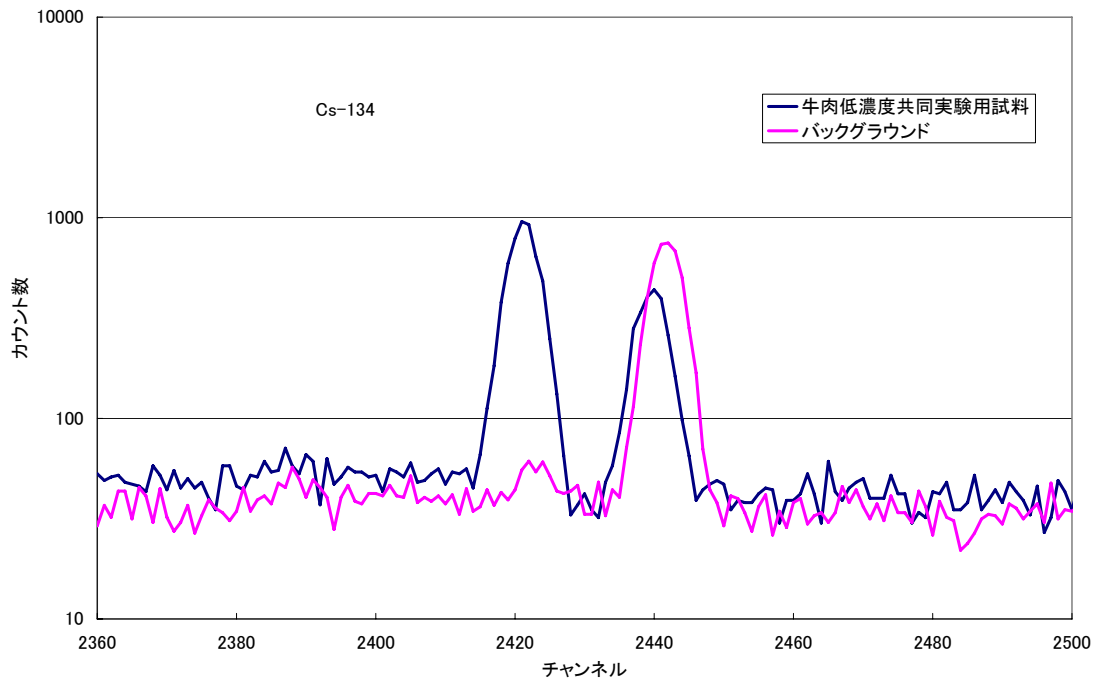
K-40 1460 keV



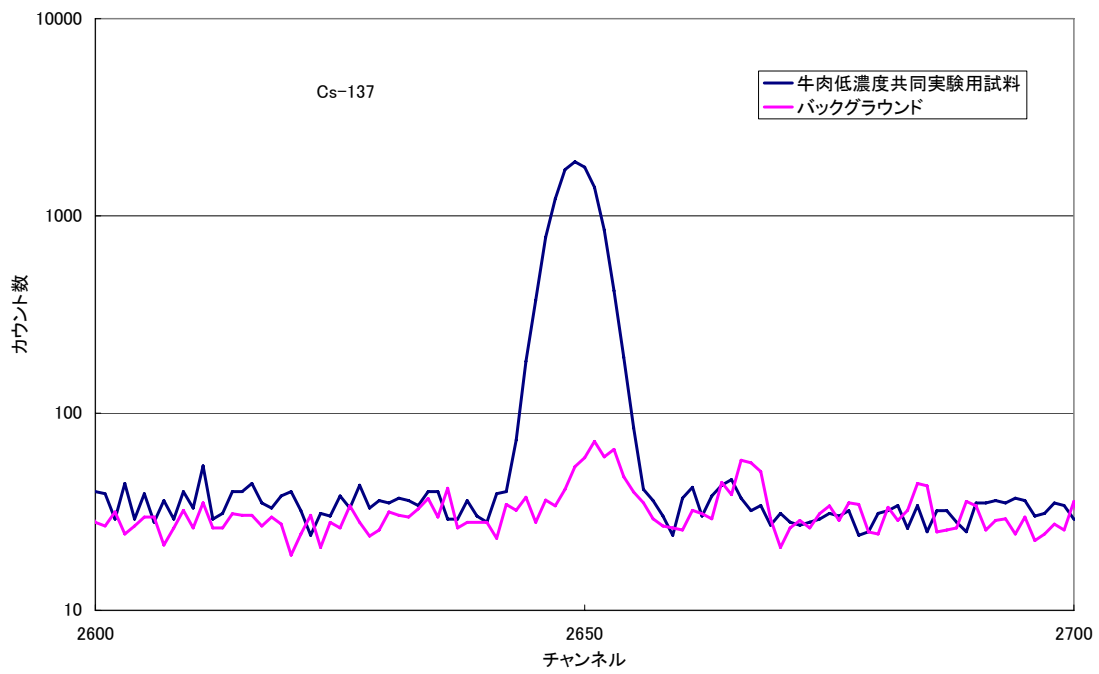
Lab 15 測定時間 試料あり : 107 374 s (2013-11-24)  
試料なし : 180 638 s (107 374 s に換算表示) (2013-10-15)



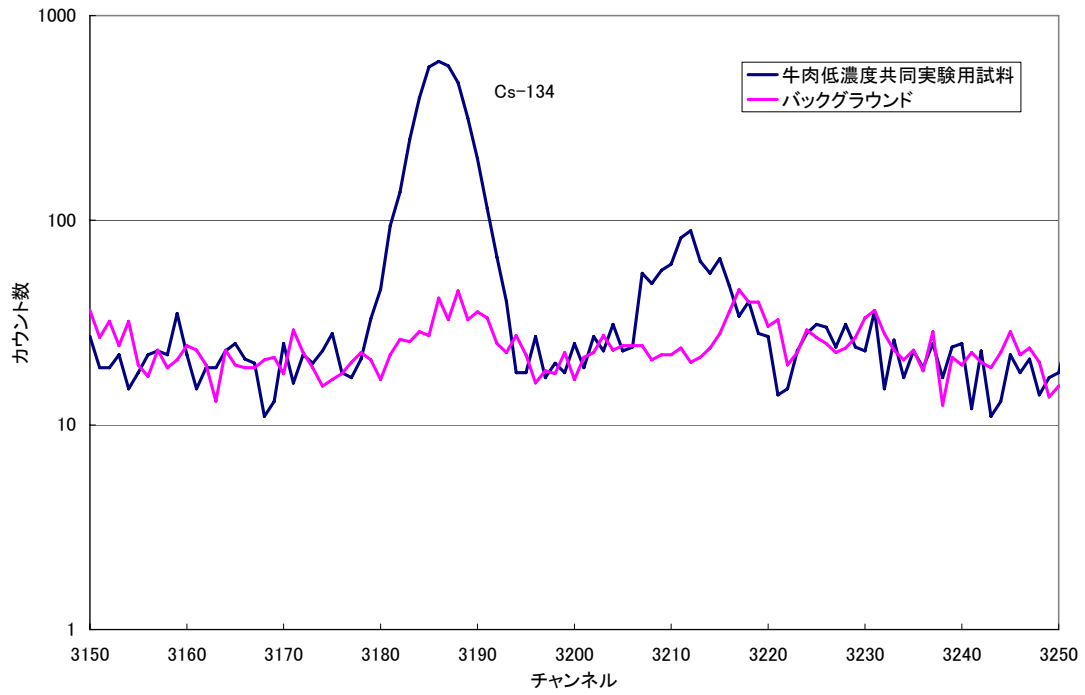
Cs-134 605 keV



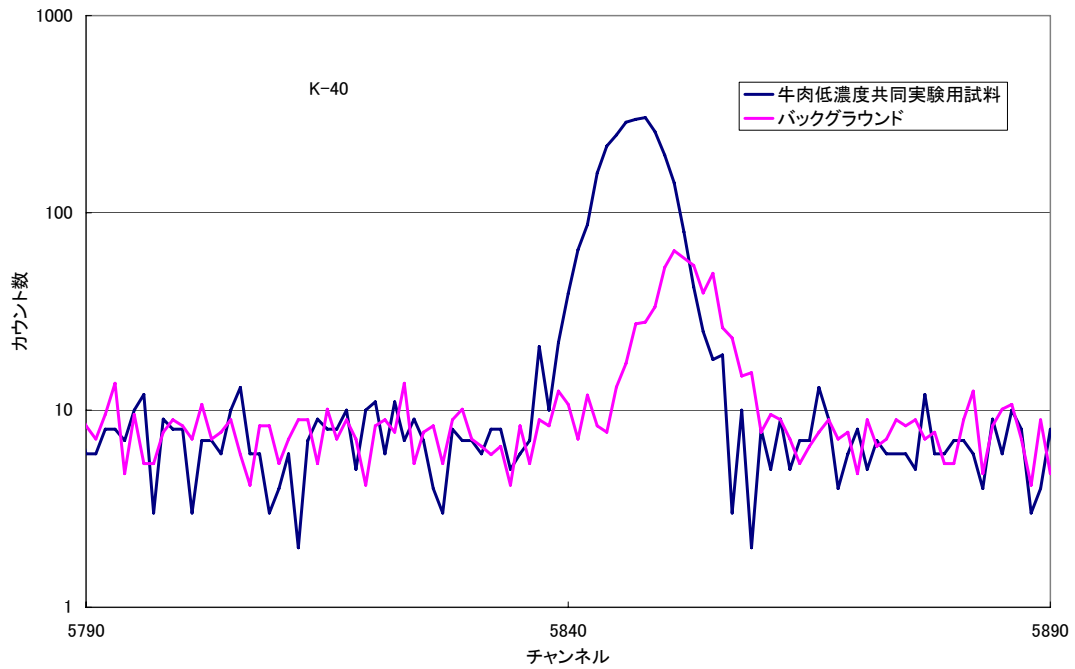
Cs-137 662 keV



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 0753 (50 g, 100 mL 用)

JSAC 0754 (500 g, 1 L 用)

牛肉認証標準物質 (フレーク状, 低濃度)  
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フレーク状の牛肉試料で、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。

$\gamma$ 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)      2012 年 11 月 19 日      0 時 0 分 0 秒

標準物質 番号	成分	放射能濃度 <sup>注1)</sup> Bq/kg	拡張不確かさ ( $k=2$ ) <sup>注2)</sup> Bq/kg	室間再現 標準偏差 ( $SD$ ) <sup>注3)</sup> Bq/kg
JSAC 0753 JSAC 0754	$^{134}\text{Cs}$	63	6	3
	$^{137}\text{Cs}$	106	9	5
	$^{40}\text{K}$	283	54	21

注1) 認証値は、135 °Cで2時間乾燥した後の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. 本標準物質は放射能測定用の容器に詰めかえて用いる。ポリエチレン袋中の標準物質を適切な容器に移し、135 °Cで2時間乾燥する。JSAC 0753 及び JSAC 0754 は、原則それぞれ U8 容器及び 1 L マリネリ容器に移し替えて測定する。



2. 本標準物質の調製時, 135 °C, 2時間の乾燥において約4%の質量減が認められた.
3. 測定容器に詰めかえる際は, あまり強く押し込まないように, 例えばJSAC 0753では40 g ~50 gを均質に充填する.
4. 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.
5. 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, デシケータに入れて冷暗所に保管する.

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

放射性物質で汚染された牛肉試料を, ミートチョッパーを用いてミンチ状にした後, 凍結乾燥し, 同様に処理した汚染の無い試料と混合した後, 粉碎, 篩分け, 混合の後, 大小の二種類のポリエチレン袋に約50 g及び約500 gずつ小分けした. 最後に, 20 kGyの電子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された. 評価された均質性は合成標準不確かさに含めた.

### 認証値の決定方法

認証値は, 12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, 袋詰めした300個の試料から13個をランダムに抜き取り, 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, 検出効率校正, 自己吸収補正, 及び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11月から12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. すなわち, 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, 1試験所では<sup>40</sup>KについてKOHが標準に用いられた.

認証日付      2013年12月24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  
 京都大学原子炉実験所  
 (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 12 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**      日本ハム株式会社中央研究所(つくば市緑ヶ原 3-3)

**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 伸四郎	(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	葉袋 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	真田 哲也	(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

本認証書の詳細については開発成果報告書を参照のこと。

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

**付記:**本認証標準物質は、独立行政法人科学技術振興機構による研究成果展開事業（先端計測分析技術・機器開発プログラム）として受託し、2013年度に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。