

開発成果報告書

放射能分析用

しいたけ認証標準物質(粉末状, 低濃度)

JSAC 0771

JSAC 0772

JSAC 0773

2014年3月13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	7
6. 共同実験の報告結果及び特性値の決定	14
7. 不確かさの算出	15
8. 標準物質の利用	20
9. 認証書	21
10. 結語	21
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	23
添付資料 2 : 調製予備実験	24
添付資料 3 : 共同実験参加試験所の測定条件と結果	32
添付資料 4 : 共同実験参加試験所のその他測定条件	39
添付資料 5 : 共同実験参加試験所からのその他の情報	42
添付資料 6 : Cs-134とCs-137測定値の関係について	59
添付資料 7 : 報告された γ 線スペクトル例	60
添付資料 8 : 認証書	68

開発成果報告書

放射能分析用 しいたけ認証標準物質 JSAC 0771, 0772, 0773

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。2012年度前期には、9月の生産時期に間に合うように玄米標準物質を、後期には牛肉認証標準物質を開発した。今年度は、大豆、しいたけ等の標準物質の開発を行った。本報告は、しいたけ認証標準物質（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	(99 ± 9) Bq/kg	(k=2)
Cs-137	(233 ± 20) Bq/kg	(k=2)
K-40	(707 ± 53) 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 薬袋教授をリーダーとし、環境テクノ

ス(株) 岩本氏をサブリーダーとする産学協同の体制が構築された。土壤標準物質の開発を行った放射能標準物質作製委員会も継続し、両者は連絡を密にして、これらの標準物質開発に携わった。これまで、玄米認証標準物質、牛肉認証標準物質（低濃度・高濃度）及び大豆認証標準物質（低濃度・高濃度）の開発を終了した。今回はしいたけ認証標準物質の内、低放射能濃度物質を開発するもので、環境テクノス(株)にて候補標準物質の調製、東京都市大学原子力研究所にて放射能測定、埼玉大学においてカリウム化学分析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リー」”によることにした。

共同実験に参加した機関のリストを表1に示す。

表1 参加試験所リスト（順不同）

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

3. 計量トレーサビリティ

表2に参加試験所が用いた標準線源とその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
2	Cs-134 及び Cs-137 : Eu-152 で校正 K-40 : KCl で校正	2.3 (Cs-134, Cs-137) (校正に用いたエネルギーにおける誤差の二乗平均の平方根) 1.1 (K-40)

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 CS031U8PP	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, 1.62 (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 (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 製広口ビンに充てん, 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 高さで充てんして作成	2.7
16	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2.35
17	Cs-134 及び Cs-137 : Eu-152 で校正 K-40 : KCl で校正	3.0 (Cs-134, Cs-137) (校正に用いたエネルギーにおける誤差の二乗平均の平方根) 1.1 (K-40)
18	日本アイソトープ協会製放射能標準ガンマ体積線源 MX033U8PP (U8 容器)	2.5

ピーク効率の校正の標準不確かさは、特に記述がない場合は、報告された場合はそのまま、報告されていない場合は用いた標準線源の拡張不確かさを包含係数 ($k=2$) で割った値を用いた。詳細は7節及び添付資料3-5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) 概要

乾燥しいたけを用いて調製した。採取された放射性物質で汚染されたいたけは、比較的放射能濃度が高く、また、試料毎に放射能濃度が異なるため、候補標準物質は汚染試料に非汚染試料を希釈用として混合して調製することとした。汚染試料及び非汚染試料ともそれぞれ粉碎、分級され、混合の後、瓶詰、滅菌を得て、候補標準物質が調製された。非汚染試料については、しいたけの形状を保ったもの、スライス状のもの両方を用いたが、区別なしに処理された。以下に各プロセスの要点を記載した。試料調製の詳細については添付資料2を参照してほしい。

(2) 調製工程

①粉砕・篩い分け

粉砕は、1 mm 以下かつ微粉(目安：63 μm 未満)を少なくすることを目標とした。

一般のミキサーや縦型粉砕機、ボールミルを使って粉砕試験を試みたが、試料の形状や状態により大きく粒度が変動したり、目標粒度への制御が困難であった(添付資料2に詳細を記した)。そのため、粒度調整が可能で、ミキサーのようにバッチ式でなく連続粉砕を行える製粉機(宝田工業株式会社 台所用キャビネットスタイル製粉機「こな一番 M-300A」、写真1~3)を検討したところ目標とする粉砕が可能であることがわかった。



写真1：全体像



写真2：ハンドル（上部）



写真3：ハンドル（全面）

※ハンドルを全閉状態から開く方向（左）に
回転させることで粒度を調整可能

※半回転開ければ180°，1回転開ければ360°と表現

この製粉機は上部投入口より試料を投入し、内部の固定歯と回転歯（ハンドルにより位置調節可能）のクリアランスにより粒度を調整し、ハンドル下の口より粉砕試料が排出される構造となっている。空気抜けによる粉砕中の粉体試料の飛散をなくすために、ろ布（材質：テトロン9A）を用いた袋を作成して回収した（写真4）。



写真 4 ろ布袋の取付

粉碎機の調節ハンドルを全閉より 180° , 360° 開けた状態及び粉碎後 1 mm 以上の試料を再粉碎した粉碎結果を下記表 3 に示す。

表 3 : 粉碎後粒度分布 (左 : 180° , 中 : 360° , 右 : 再粉碎 360°)

1 mm以上	8 %	1 mm以上	28 %	→ 1mm以上 試料のみ を再粉碎	1 mm以上	54 %
500 μm ~ 1 mm	28 %	500 μm ~ 1 mm	37 %		500 μm ~ 1 mm	29 %
250 μm ~ 500 μm	30 %	250 μm ~ 500 μm	18 %		250 μm ~ 500 μm	7 %
150 μm ~ 250 μm	18 %	150 μm ~ 250 μm	13 %		150 μm ~ 250 μm	6 %
63 μm ~ 150 μm	14 %	63 μm ~ 150 μm	4 %		63 μm ~ 150 μm	4 %
63 μm未満	2 %	63 μm未満	0 %		63 μm未満	0 %

表 3 の結果のように、ハンドル操作で 63 μm 未満微粉を著しく減少させることができた。1 mm 以上の粉体は、再度粉碎機に掛けることにより 1 mm 未満に粉碎される結果が得られた。粉碎条件として、360° 開の状態での粉碎を基本として、1 mm 以上については繰り返し粉碎を行うこととし試料調製が行われた。

ふるい分けには電磁振動ふるい分け器を用いた。

②混合

粉碎、分級された汚染試料及び非汚染試料、それぞれ 1.75 kg 及び 34.27 kg を混合した。

濃度が大きく異なる試料を混合するため、より均質なものとするために、V 型混合機による一括混合の前に予備混合を実施した。

予備混合は攪翼式混合機 (名称 : パワーフル オート ミキサー, 内容量 : 100 L 株式会社ダルトン製, 写真 5) を用い、容量の都合上、2 回に分けて行った。



写真 5 : 攪翼式混合機

予備混合後、230 L V 型混合機にて 1 時間一括混合を行った (写真 6)。混合後の回収試料は計 4 袋に回収し、各々を 4 つのステンレス缶に移しそれぞれ A, B, C, D とした。混合後回収量は 34.79 kg であった。



写真 6 V型混合機
 内容量 230 L 回転速度 31rpm (実測値)

③瓶詰め

しいたけ試料の特徴は、緩く充てんした場合と押し固めて充てんした場合のかさ密度の差が大きいことで、U8 容器に 50 mm 高さに充てんすると、最小で 25 g、最大で 35 g 程度の試料を詰めることができる。最小の 25 g 程度では振動等の影響で試料が圧縮し、空隙の発生が考えられ、高さ 50 mm を満たさない可能性がある。最大の 35 g 程度を詰める際には少量ずつ高密度に入れていく必要があり、これは作業員の感覚的な要素がより多く、均質性に何らかの影響を及ぼす可能性が高くなる。このような理由より U8 容器への充てんは 30 g で実施した。また、このようにして調製した試料 6 個を用いて東京都市大学において放射能濃度の測定を実施し、均質であることを確認した (添付資料 2 に詳細を記した)。放射性 Cs 濃度 (Cs-134+Cs-137) で 336 Bq/kg という結果が得られ、30 g を充てんした場合、U8 容器は約 10 Bq の放射能を有することになり、この点からも目標とした候補標準物質として適切であると考えられた (図 1 参照)。

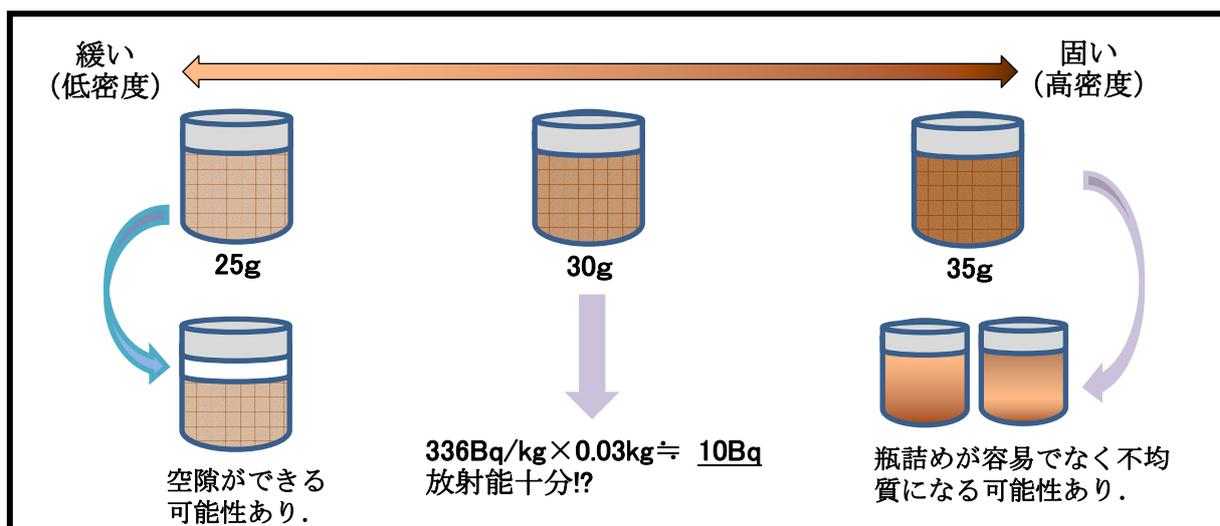


図 1 充てん量決定の概要

U8 容器, 100 mL 容器 (褐色ガラス瓶), 1L 容器 (褐色ガラス瓶) の 3 種に瓶詰めをおおよそ 3 : 1 : 2 の割合で行った。瓶詰めされた試料の写真及び最終的な本数を下記に示

す。



写真 7 瓶詰めされた試料

U8 容器 (30.0 g 入)	: 150 本
100 mL 容器 (約 30 g 入)	: 50 本
1 L 容器 (約 300 g 入)	: 90 本

④滅菌

U8 容器, 100 mL 容器, 1 L 容器への瓶詰め後, Co-60 γ 線 10kGy/h, 前面 1 時間, 後面 1 時間, 計 2 時間, トータル 20 kGy の照射条件で滅菌処理を行った。

(3) 乾燥による質量の減少について

4 試料について各々 2 回, 乾燥による質量の減少を測定した (厚生労働省監修, 食品衛生検査指針理化学編における食品の水分率の公定試験法準拠, 105°C・5 時間)。結果を表 6 に示す。平均すると 9.5 %程度の質量の減少が認められた。

表 4 105 °C, 5 時間の乾燥による質量減少

試料番号	乾燥前質量(A)/g	乾燥後質量(B)/g	減量(A-B)/g	(A-B)/A (%)
1-1	6.017	5.436	0.581	9.66
1-2	6.011	5.445	0.566	9.42
50-1	6.035	5.465	0.570	9.44
50-2	6.017	5.443	0.574	9.54
100-1	6.016	5.454	0.562	9.34
100-2	6.028	5.468	0.560	9.29
150-1	6.044	5.467	0.577	9.55
150-2	6.020	5.451	0.569	9.45

5. 均質性の評価

(1) 概要

放射能測定及び化学分析による均質性評価を行った。均質性評価のための試料は, 全試料からほぼ等間隔にそれぞれ 12 試料をサンプリングしたが, 放射能測定と化学分析では隣り合わせの番号が採取された。放射能測定では測定時間を 48 時間とした。放射能測定は東京都市大学原子力研究所, 化学分析は埼玉大学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ほぼ等間隔に 12 点抜き取り, 均質性評価に用いた。測定にはゲルマニウム半導体検出器を用いた。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 48 時間(172800 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 1 月 11 日から 2 月 2 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} (%) の計算では測定で得られたカウント数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。ピークの面積はコベル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 5）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
1	3026.6	55.01	63.80	6190.6	78.68	85.40
14	2893.2	53.79	64.10	6064.6	77.88	83.90
28	3085.3	55.55	66.80	6499.8	80.62	87.00
41	3063.9	55.35	67.50	6595.4	81.21	87.50
55	3021.2	54.97	63.90	6085.2	78.01	84.90
68	2929.8	54.13	62.50	5953.2	77.16	83.50
81	3043.4	55.17	66.20	6203.0	78.76	85.00
94	3008.5	54.85	66.00	5949.9	77.14	84.10
107	2973.0	54.53	66.30	6151.0	78.43	84.30
121	3073.9	55.44	65.30	6345.2	79.66	85.90
136	2955.0	54.36	66.30	6409.0	80.06	86.70
150	3068.4	55.39	65.10	6246.5	79.03	84.70
AVERAGE	3011.85	54.88	65.33	6224.45	78.90	85.25
STDEV	61.80			205.26		
$s_{b+r}(\%)$	2.05			3.30		
$s_r(\%)$		1.82	2.17		1.27	1.37
$s_{bb}(\%)$		0.94	-0.70		3.04	3.00

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'	$\frac{\sqrt{(N+Nb+N'+Nb')}}{((N-Nb)-(N'-Nb'))}$	ネット カウン ト	計数 誤差 1	計数 誤差 2
1	1667	116	352.1	31.1	3.8%	1230.0	35.1	46.5
14	1615	107	352.1	31.1	3.9%	1187.0	34.5	45.9
28	1696	122	352.1	31.1	3.7%	1253.0	35.4	46.9
41	1639	119	352.1	31.1	3.9%	1199.0	34.6	46.3
55	1715	114	352.1	31.1	3.7%	1280.0	35.8	47.0
68	1583	109	352.1	31.1	4.0%	1153.0	34.0	45.6
81	1541	116	352.1	31.1	4.1%	1104.0	33.2	45.2
94	1642	103	352.1	31.1	3.8%	1218.0	34.9	46.1
107	1707	114	352.1	31.1	3.7%	1272.0	35.7	46.9
121	1674	133	352.1	31.1	3.8%	1220.0	34.9	46.8
136	1609	103	352.1	31.1	3.9%	1185.0	34.4	45.8
150	1759	116	352.1	31.1	3.6%	1322.0	36.4	47.5
AVERAGE	1653.9	114.3	352.1	31.1	3.8%	1218.6	34.9	46.4
					STDEV	59.2		
					$s_{b+r}(\%)$	4.9		
					$s_r(\%)$		2.9	3.8
					$s_{bb}(\%)$		3.9	3.0

表 6 の N, Nb 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', Nb' は別途測定された測定環境におけるバックグラウンドによる信号の全体及びベースラインのカウント数である（添付資料 3 を参照）。

K-40 の測定値の計数誤差（計数誤差 2）は一般に次式で表される。

$$K-40 \text{ の計数誤差 } 2 = \sqrt{(N+Nb+N'+Nb')^0.5} / ((N-Nb)-(N'-Nb'))$$

計数誤差 1 で計算した結果も含めて、表 5 に計算結果を示すが、計数誤差 1 及び計数誤差 2 を用いた計算でそれぞれ 3.9 %、3.0 % という値が得られた。

(3) K 元素化学分析による均質性試験

1) 試薬

硝酸（68 % TAMAPURE-AA-100） 多摩化学工業製
 過酸化水素水（30 % 精密分析用） 和光純薬製
 カリウム標準液（1000 ppm 原子吸光用） 関東化学工業製
 イットリウム標準溶液（1000 ppm 原子吸光用） 関東化学工業製

2) 試料溶液調製法

- ① しいたけ標準物質（粉末）をおよそ 0.1 g 精秤し、加熱分解容器に入れ、硝酸 7 mL と過酸化水素水 1 mL を加える。

- ② マイクロ波加熱分解装置（マイルストーンゼネラル社製 ETHOS PRO）で、以下の温度プログラムにより加熱分解後、分解溶液を PFA 製 100 mL ビーカーに移し、200 °C のホットプレート上で蒸発乾固直前まで加熱する（表 7）。

表 7 マイクロ波加熱分解温度プログラム

Step	時間 (分)	出力 (W)	温度 (°C)
1	2	1000	50
2	3	0	30
3	25	1000	190
4	1	0	160
5	4	1000	190
6	15	1000	190
合計 55 分（終了後の排気 5 分を含む）			

- ③ 1 %硝酸溶液 10 mL を加え、160 °C のホットプレートで 30 分間加熱して残渣を溶かし、内部標準として 10 ppm Y 溶液を 0.05 mL 加え、1 %硝酸溶液で 50 mL 定容とし、メンブランフィルター（OMNIPORE：孔径 0.45 μm，直径 47 mm，メルクミリポア製）を用いて吸引ろ過したものを測定溶液とする。

3) カリウムの測定

上記の方法で調製したしいたけ分解溶液中のカリウム濃度の測定には、ICP-AES（エスアイアイ・ナノテクノロジー(株)製 SPS 3100）を用いた。測定条件を以下に示す。

- ・ RF 出力・・・1.2 kW
- ・ Ar ガス流量
 - プラズマガス・・・15.0 L/min
 - 補助ガス・・・0.5 L/min
 - キャリアガス・・・0.5 L/min
- ・ サンプル導入量・・・2.5 mL/min
- ・ 測定波長 K：766.49 nm
Y：371.03 nm（内標準）

得られた結果から、以下の式によってしいたけ試料中の K 濃度を算出する。

しいたけ試料中の K(mg/g) = 測定溶液中の K 濃度(mg/L) × 0.05 (L) / 試料質量(g)
結果を表 7 に示した。

表 8 K 元素の化学分析結果

試料番号	試料質量 (g)	しいたけ試料中の濃度 (mg/g)		平均値 (mg/g)	標準偏差 (mg/g)
3	0.1215	22.60		22.256	0.481
	0.1111	21.92			
15	0.1411	23.01		22.376	0.890
	0.1099	21.75			
29	0.1061	22.33		22.092	0.341
	0.1060	21.85			
40	0.1119	21.90	22.21	22.398	0.273
		22.51			
	0.1049	22.59			
56	0.1161	21.88		22.345	0.654
	0.1018	22.81			
69	0.1175	23.01		22.559	0.632
	0.1172	22.11			
80	0.1018	22.07		22.505	0.619
	0.1124	22.34	22.94		
			23.55		
95	0.1132	21.81		22.456	0.920
	0.1090	23.11			
108	0.2970	22.45		23.018	0.602
	0.1046	23.64			
	0.1015	22.97			
120	0.1088	23.49		22.952	0.754
	0.1042	22.42			
135	0.1240	23.44		22.947	0.691
	0.1001	22.46			
149	0.1017	23.70		23.044	0.924
	0.1034	22.39			

※ は、同じ試料溶液を 2 回測定したときの平均値

表 9 には一元配置分散分析による評価結果を示す。なお、同一溶液を 2 回測定したケースについては最初の測定の測定値を、3 溶液の測定を行った時は最初の二つを用いた。

表 9 分散分析結果

採用したデータの平均と分散

試料	標本数	合計	平均	分散
3	2	44.512328	22.256164	0.231013
15	2	44.752067	22.376034	0.792819
29	2	44.184915	22.092457	0.11615
40	2	44.493812	22.246906	0.236958
56	2	44.689736	22.344868	0.427823
69	2	45.11796	22.55898	0.398929
80	2	44.405688	22.202844	0.036691
95	2	44.912221	22.456111	0.846806
108	2	46.090113	23.045056	0.719542
120	2	45.904683	22.952342	0.568314
135	2	45.893062	22.946531	0.47776
149	2	46.087514	23.043757	0.853697
平均値			22.543504	

分散分析表

変動要因	変動	自由度	分散	観測された分散比	P-値	F 境界値
試料間	2.793587	11	0.2539624	0.534048	0.845763	2.717331
試料内	5.706503	12	0.4755419			
合計	8.50009	23				

分散分析表から均質性標準偏差は次式で得られる.

$$s_{bb}^2 = \frac{MS_{among} - MS_{within}}{n} = -0.111$$

ここで、 MS_{among} は試料間分散、 MS_{within} は試料内分散を表す. 計算すると s_{bb}^2 が負になるため、JIS Q 0035 7.9 項の「測定方法の併行精度が不十分な場合」に相当すると考え、 u_{bb} を

次式により計算する.

$$u_{bb}^2 = s_{bb}^2 + \frac{s_r^2}{n} = 0.127$$

従って、 u_{bb} の相対均質性不確かさとして次の値が得られる.

$$\sqrt{0.127} \times 100 / 22.54 = 1.58(\%)$$

(3) 均質性試験に基づく不確かさの推定

放射能測定による均質性評価では過小評価を避けるために計数誤差 1 を用いた s_{bb} の値を用いる. 表 5 から計数誤差 1 を用いた Cs-134 及び Cs-137 の均質性の相対不確かさはそれ

ぞれ 0.94 %， 3.04 %と大きく異なる値が得られたが， Cs-137 に対して得られた値 3.04 % を Cs-134 及び Cs-137 の共通の均質性不確かさとして使用する。

K-40 の均質性不確かさについては放射能測定で 3.9 %となったが， バックグラウンドの影響が大きく均質性評価のための十分な併行精度が得られていないと考えられる。一方， 化学分析ではカリウム元素全体の濃度を測定しているが， 分散分析から得られた s_b は負の値を取り， 化学分析の併行精度を考えると均質性不確かさはかなり小さいことが期待される。ISO Guide 35 で併行精度が十分でない場合に推奨される u_{bb} の相対不確かさを計算すると 1.58 %と求められた。カリウム中の K-40 の天然存在比は一定と考えられるので， この値を K-40 の均質性不確かさとする。

6. 報告結果及び特性値の決定

共同実験においては， 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 3， 4， 5 に示す。表 9 に， 報告値と z スコア計算結果をまとめた。 z スコアは従来法（Classic）及びロバスト法（Robust）により求めた。ここで

Average： 平均値

SD： 室間再現標準偏差

RSD： $100 \times SD / Average$

Median： 中央値

NIQR： 標準化四分位範囲（ $0.7413 \times$ 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： $(x - Median) / NIQR$

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 6 のユードン図を参照）。添付資料 3， 4， 5 に見るように測定条件で技術的に問題と思われる試験所はなく， 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， 本しいたけ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 10 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 6 に， Cs-134 と Cs-137 の相関をユードン図で示した。

添付資料 7 には， 報告された γ 線スペクトルの一部を示した。

表 10 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	107.3	1.34	1.20	254.3	1.65	2.71	772.8	1.96	2.14
2	94	-0.82	-0.98	236	0.20	0.32	702	-0.16	-0.30
4	93	-1.03	-1.19	210	-1.81	-3.03	670	-1.13	-1.40
5	98.7	-0.09	-0.24	236.5	0.25	0.40	705.0	-0.07	-0.20
6	94.6	-0.77	-0.93	230.8	-0.19	-0.33	688.6	-0.57	-0.76
8	100.2	0.16	0.01	234.8	0.12	0.18	735.6	0.85	0.86
10	101	0.30	0.15	224	-0.72	-1.21	725	0.51	0.48
11	100	0.14	-0.01	232	-0.10	-0.18	684	-0.71	-0.93
12	107	1.28	1.14	247	1.06	1.73	716	0.27	0.20
14	104	0.79	0.65	231	-0.17	-0.31	682	-0.77	-0.99
15	104	0.79	0.65	250	1.31	2.15	742	1.04	1.08
16	102	0.46	0.31	240	0.53	0.86	641	-2.00	-2.40
17	85	-2.36	-2.52	211	-1.73	-2.90	723	0.47	0.42
18	98	-0.20	-0.35	228	-0.41	-0.70	718	0.32	0.25
データ数 p	14			14			14		
Average	99.21			233.20			707.47		
SD	6.03			12.80			33.28		
RSD	6.08			5.49			4.70		
SD/ \sqrt{p}	1.61			3.42			8.89		
RSD/ \sqrt{p}	1.62			1.47			1.26		
Median	100.12			233.37			710.70		
NIQR	6.00			7.72			29.05		
RNIQR	6.0			3.3			4.1		

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、結果として不確かさに含めた要因については（○）を記して示した。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。

複数の核種を含む標準線源を用いて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>）。標準線源では含まれる核種毎に不確かさが与えられているが、多くの試験所で用いられている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) では Cs-137 に対して 5.0 %、ないしは 4.7 % と記載されており、該当するエネルギー範囲ではこのこれらの値はほぼ等しい。したがって、標準線源を用いた参加試験所の校正法に起因する相対標準不確かさとしては、Cs-137 核種に与えられた不確かさを包含係数 2 で割った値を用いた。また、カリウム元素を用いて校正を行った試験所の不確かさは核データベースから見積もった。

共同実験における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相対標準不確かさ(表 2 に示した)を二乗平均し、その平方根として見積もった。

(3) 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。Lab2, Lab17 を除いて多くの試験所では、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検出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 30 g を密度 0.33 g/cm³、高さ 50 mm で充てんしている。自己吸収の補正では、充てん物質として、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。これまで開発した認証標準物質と比較して、標準と測定試料間の密度差が大きいことが特徴的である。文献によると、試料マトリックスの主成分元素が既知の場合、自己吸収補正係数の相対不確かさは 1 % 以下（エネルギー 60 keV 以上の γ 線に対し）とされるので、ここでは 1.00 % とした。

- ・ピーク面積計算
- ・計数の統計

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

（４）核データ

- ・半減期による不確かさ
- ・ γ 線放出率による不確かさ

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

（５）共同実験の不確かさ（○）

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

結論として、本しいたけ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 11 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	1.47	1.26
検出効率校正	2.47	2.45	3.01
自己吸収補正	1.00	1.00	1.00
均質性	3.04	3.04	1.58
合成標準不確かさ	4.36	4.29	3.76
拡張不確かさ($k=2$)	8.71	8.58	7.52
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
拡張不確かさ($k=2$)	8.64	20.01	53.21

認証書に記載する拡張不確かさは次の通り.

Cs-134 **9 Bq/kg**
Cs-137 **20 Bq/kg**
K-40 **53 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 2, 図 3, 図 4 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。

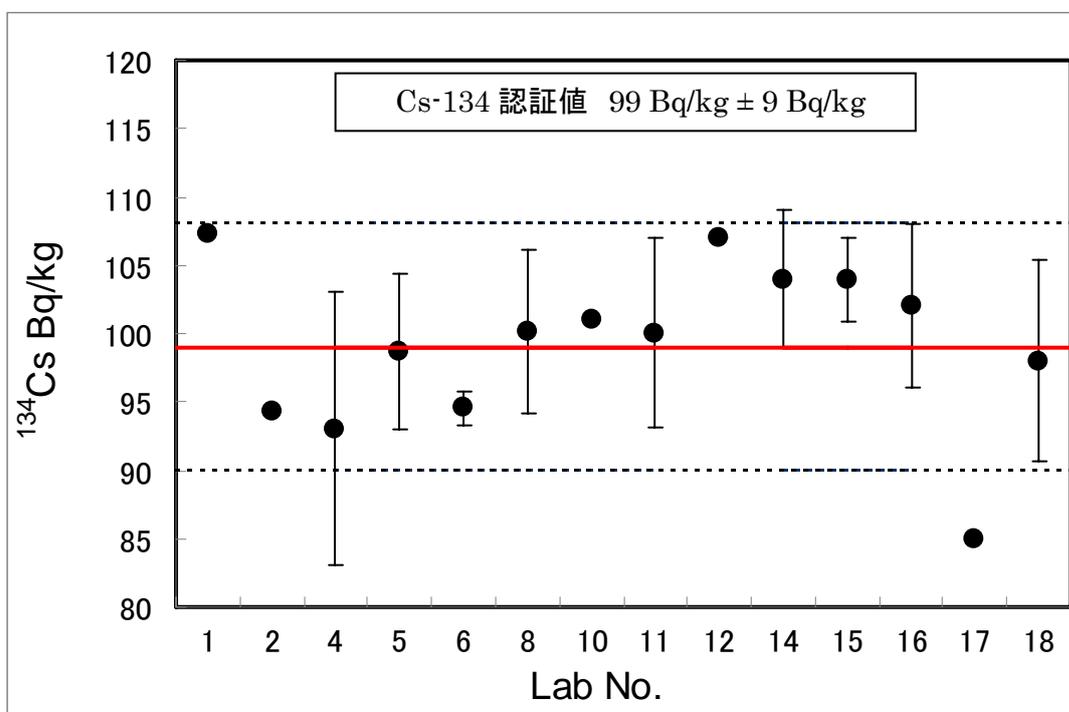


図 2 Cs-134 の認証値と測定値の分布

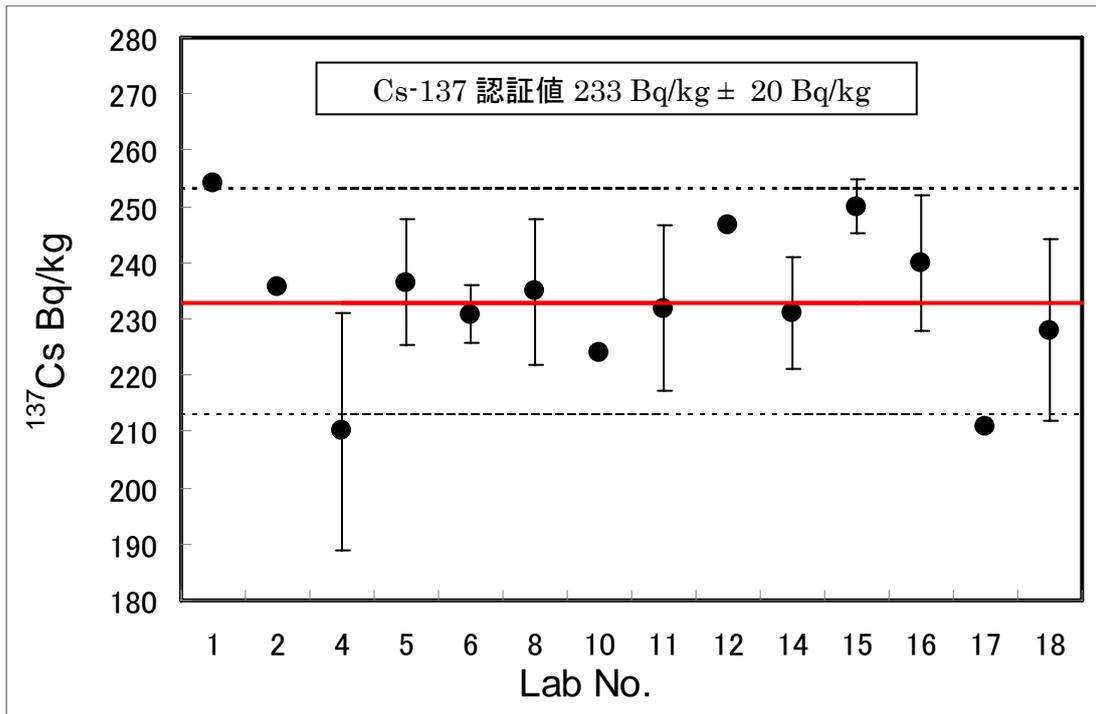


図3 Cs-137 の認証値と測定値の分布

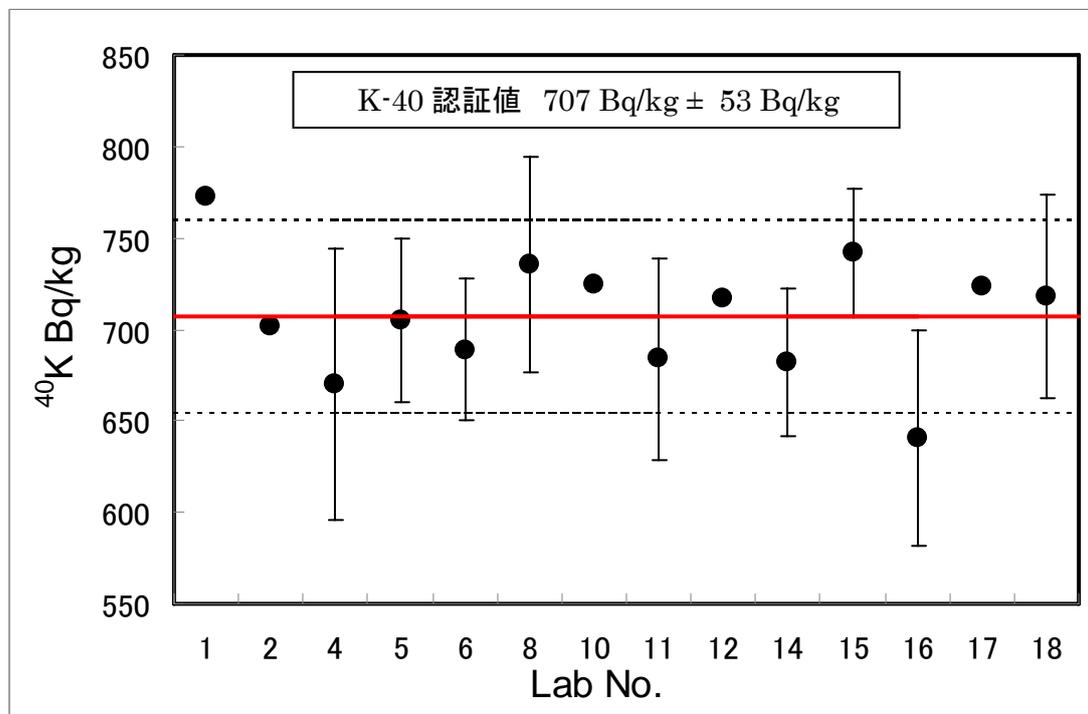


図4 K-40 の認証値と測定値の分布

8. 標準物質の利用

(1) 標準物質の利用の目的

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

(2) 使用上の注意

1. JSAC 0771 は，試料 30.0 g を U8 容器(内径 48 mm)に充てんした後，中蓋を入れ，上蓋で固定されている．容器を故意に振動・転倒させて試料を攪拌することを避ける．
2. U8 容器に充てんした試料の高さは 50 mm であるが，必要に応じて高さを測定することを推奨する．
3. JSAC 0772 及び JSAC 0773 は適切な放射能測定用の容器に詰めかえて用いる．採取量は 30 g 以上とし，測定容器に詰めた試料の質量を精確に測定し，記録する．
4. 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均質に充てんする．
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．

(3) 妥当性確認や測定器の精度管理への利用の仕方

このしいたけ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，本しいたけ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：

しいたけ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 8 に掲載する。

10. 結 語

ここに放射能分析用しいたけ認証標準物質（粉末状、低濃度）JSAC 0771, 0772, 0773 を開発・作製した。

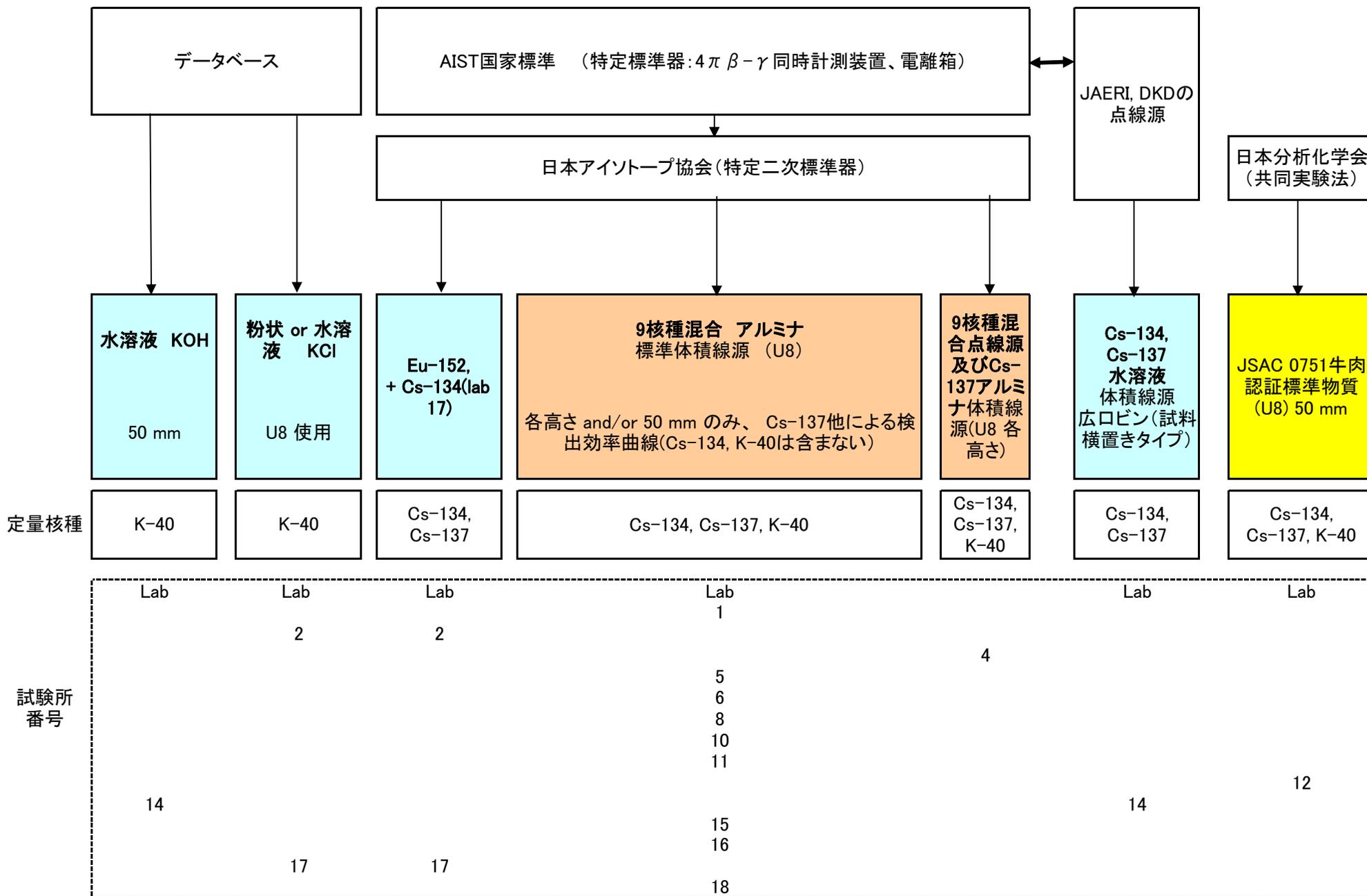
原子力発電所の事故による食生活への放射能影響を未然に防ぐための努力は引き続き必要な状態である。放射能分析の精確さはその基本となるものであり、特に日本人の食生活の安全のため、しいたけ認証標準物質が分析値の信頼性の確保に有効な役割を果たすことが期待される。

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

(原則として試験所より提出のままの表記としています。)

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

しいたけ粉砕及び調製の予備実験について

環境テクノス株式会社

1. しいたけ原料

放射能標準物質調製試料の原料としてしいたけを調達した。これらの試料については京都市大学 原子力研究所において放射能測定がされており、質量及び放射能濃度等の概要を表1に示す。放射能測定はしいたけを大きめな粒状に粉砕して100g単位で測定したものである。

これとは別に、希釈用試料として汚染のないしいたけも入手した。この試料は内容量30L程度のクラフト袋（米袋）にて16袋を入手した（表2）。内容物は、しいたけの形状がそのままのものとスライスされているものがあった。

表1：しいたけ原料の質量及び放射能濃度

試料記号	質量(kg) ビニール袋込み	濃度(Bq/kg)	
		Cs-134	Cs-137
A	3.53	600	1100
B	1.83	700	1300
C	3.35	10	30
D	3.53	10	30

表2：希釈用しいたけ試料の質量及び形状

試料番号	形状	質量(kg) 紙袋込み
1	そのまま	3.42
2	スライス	3.59
3	スライス	3.54
4	スライス	3.4
5	そのまま	3.37
6	そのまま	3.4
7	そのまま	3.55
8	スライス	3.52
9	そのまま	3.5
10	そのまま	3.37
11	そのまま	3.43
12	スライス	3.54
13	スライス	3.42
14	スライス	3.81
15	そのまま	3.62
16	そのまま	3.48
	スライス	24.82
	そのまま	31.14
	合計	55.96

2. しいたけ粉砕テスト

放射能標準物質は粉状での製品化を目標にして調製を行った。粉砕機や粉砕方式による試料形状の確認を行うため、汚染なしのしいたけ試料を用い、ミキサー、堅型粉砕機及びボールミルを用いて粉砕テストを行った。また、粉砕後試料の粒度確認を行った。

2-1. しいたけ試料

今回テストに使用したしいたけ試料の詳細を写真1に示す。傘の直径は大凡3 cm～6 cm程度であった。傘や柄中央部等は人の手や木槌等によっても粗粉砕できる程度の堅さであった。また、2種の条件で乾燥減量を測定した結果を表3に示す。今回のしいたけ試料は大豆試料と異なり含水率も低い状態であり、入手状態のままでの粉砕も容易であったため乾燥工程は行わず、粉砕を行うこととした。



表3：乾燥減量率
測定値（有姿で）

条件	乾燥減量率
105°C 2h	4%
135°C 2h	6%

写真1：左-しいたけ試料サイズ、右-木槌による粗粉砕後

2-2. 粉砕

上記試料をミキサー、堅型粉砕機及びボールミルにて粉砕を行った。使用した機器を写真2に示す。



写真2：左-ミキサー、中-堅型粉砕機、右-ボールミル

2-2-1. ミキサー

ミキサーに試料を約60 g投入し30秒程度の粉砕を行った。下記に粉砕前後の様子を写真3、写真4示す。



写真3：粉碎前



写真4：粉碎後

結果：1回の処理量は少ないものの、ミキサーでの粉碎は短時間で粉碎できるようであった。

2-2-2. 堅型粉碎機

堅型粉碎機に試料を少しずつ投入して粉碎を行った（2mm スクリーン使用）。写真5に粉碎後の様子を示す。



写真5：粉碎後

結果：堅型粉碎機による粉碎テストでは、試料が軽いため粉碎後試料があまり排出されず機内に滞留し投入口側から飛散するため、連続的な粉碎が困難であった。

2-2-3. ボールミル

ボールミルを用いて粉碎テストを行った。条件及び結果を表4、写真6に示す。

表4：ボールミル粉碎条件及び結果

条件	しいたけ	ボール数	混合時間	結果
[1]	100g	60個	10分	柄がそのまま残っている
[2]	300g	100個	10分	傘の破片と柄が少量残っている
[3]	300g	100個	60分	傘の破片は見られないが、柄は切断され残っている



写真6：左-試料投入時 300g、中-60分粉碎後、右-分級後 2mm 篩上

表5：300g、60分粉碎後分級結果

分布表

2mm以上	3%
1mm～2mm	1%未満
500 μ m～1mm	1%未満
250 μ m～500 μ m	1%
150 μ m～250 μ m	5%
63 μ m～150 μ m	41%
63 μ m未満	49%

結果：ボールミルによる粉碎ではしいたけ試料の柄の両端部分が未粉碎のまま一部残っている様子が見受けられた。また、上記条件では9割近くが150 μ m以下の粒度となり微粉碎されているようであった。

2-2-4. 粉碎テストまとめ

以上のテストの結果より、堅型粉碎機では試料のロスの恐れがあり、ボールミルでは柄の両端部分の碎き残しや微粉碎化されることが確認できた。したがって、品質面の観点からも処理量は少ないもののミキサーでの粉碎が現状では最も好ましいと考えられた。

2-3. 粒度確認

H24年度に調製した大豆試料においては1mm以下の粒径試料を製品に使用した。今回のしいたけ試料も使用粒径を決定するため暫定的に2mm以下、1mm以下、0.5mm以下の3種類の区分けにより検討を行った。写真7にそれぞれの粒度範囲の試料の形状を示した。また、写真8に各粒度以下の試料状態を示した。



写真7：左-2mm以上、中-1mm～2mm、右-0.5mm～1mm



写真8：左-2mm以下、中-1mm以下、右-0.5mm以下

表6：テスト試料粒度分布

2mm以上	3%
1mm～2mm	12%
500 μ m～1mm	17%
250 μ m～500 μ m	17%
150 μ m～250 μ m	11%
63 μ m～150 μ m	14%
63 μ m未満	26%

結果：写真に示すように各種粒度以下の混合品となると見た目状には大差はないように見受けられる。しかし、写真7のように各粒度範囲の試料を見ると（感覚的ではあるが）1mm以上の粒径試料は、粉末状ではなく粒状のように感じられ、試料間の違いが見られた。

2-4. 粉砕機器の再検討

以上の実験では、試料投入量・粉砕時間等を変化させ粉砕テストを行ったが、試料の形状や状態により大きく粒度が変動し、目標粒度への制御が困難であった。

そのため、ハンドルによりある程度粒度調整が可能で、ミキサーのようにバッチ式でなく連続粉砕を行える家庭用製粉機（宝田工業株式会社 台所用キャビネットスタイル 製粉機こな一番 M-300A）を購入し、検討を行った（写真9、写真10、写真11）。



写真9：全体像



写真10：ハンドル（上部）



写真11：ハンドル（全面）

※ハンドルを全閉状態から開く方向（左）に回転させることで粒度を調節可能

※半回転開ければ 180°、1 回転開ければ 360° と表現

この製粉機は上部投入口より試料を投入し、内部の固定歯と回転歯（ハンドルにより位置調節可能）のクリアランスにより粒度を調節し、ハンドル下の口より粉砕試料が排出される構造となっている。

当初、排出口にビニール袋を取り付け粉砕を行ったところ、空気の抜け道がなく隙間や投入口から粉体試料の飛散がみられた。本試料において飛散・吸引は作業安全上好ましくないため、改善策として炉布（材質：テトロン 9A）を作製し、ビニール袋の代わりに試料回収袋として取り付けて運転を行った（写真 12、写真 13）。この結果、空気は炉布から抜け、試料は炉布内に確保され、隙間や投入口から粉体試料の飛散は大幅に解消された。



写真 12：炉布取り付け



写真 13：投入口（上から）

2-5. 粉砕テスト結果

粉砕機の調整ハンドルを全閉より 180°、360° 開けた状態及び粉砕後 1mm 以上の試料を再粉砕した粉砕結果を表 7 に示す。

表 7：粉砕後粒度分布（左：180°、中：360°、右：再粉砕 360°）

1mm以上	8%	1mm以上	28%	1mm 以上 試料のみを 再粉砕	1mm以上	54%
500 μm~1mm	28%	500 μm~1mm	37%		500 μm~1mm	29%
250 μm~500 μm	30%	250 μm~500 μm	18%		250 μm~500 μm	7%
150 μm~250 μm	18%	150 μm~250 μm	13%		150 μm~250 μm	6%
63 μm~150 μm	14%	63 μm~150 μm	4%		63 μm~150 μm	4%
63 μm未満	2%	63 μm未満	0%		63 μm未満	0%

表 7 の結果のように、ミキサーで粉砕を行った際の 63 μm 未満 26%と比較すると大幅に微粉は減少し、ハンドルを開けるごとに微粉が減少する結果が得られた。180° 開と 360° 開を比較すると、360° 開は 1mm 以上が多く残ってしまうが、再度 1mm 以上の試料を粉砕機に掛けることにより 1mm 未満に粉砕される結果が得られた。微粉を軽減す

るべく 360° 開の状態での粉砕を基本として、1mm 以上については繰り返し粉砕を行うこととし試料調製を試みた。

3. 本試料調製

上記の検討の結果より、360° 開の状態での粉砕を行い、分級後 1mm 以上については再粉砕し、目標粒度の試料調製を行った。

試料は汚染試料 B 約 1.8kg を全量、汚染なし希釈用試料は 11 袋を使用した。

また、本試料は乾燥しいたけであり試料乾燥工程は省いていたが、一部吸湿により粉砕が困難な状態の試料があった。これについては 40℃に設定した定温乾燥機で 30 分程度乾燥後粉砕した。最終的に下記の量を回収した。

【汚染試料 B】：1.75kg

【非汚染試料】：34.27kg

この処理後の【汚染試料 B】1.75kg 全量と 20 倍希釈する【非汚染試料】33.25kg を後の混合工程に使用した。



写真 14：電磁振動篩い分け器

使用条件：連続振動 5 分間 振動強度 8
試料投入量 約 100g/回

しいたけ試料においては、玄米・大豆試料と違い、濃度が大きく異なる試料を混合するため、より均質なものとするために、V 型混合機による一括混合の前に予備混合を実施した。

予備混合は攪翼式混合機（名称：パワーフル オート ミキサー 内容量：100L 株式会社ダルトン製）を用い、容量の都合上、2 回に分けて行った。



写真 15：攪翼式混合機

予備混合後、230L V 型混合機にて 1 時間一括混合を行った。混合後回収試料は計 4 袋に

小分けに回収し、各々を4つのステンレス管に移しそれぞれA,B,C,Dとした。

【混合後回収量】：34.79kg



写真 16：V型混合機

内容量 230L 回転速度 31rpm (実測値)

3. 予備均質性試験

しいたけ試料を粉碎・分級・混合の工程を経て、低濃度試料約 34kg を調製した。この試料から 6 点をサンプリングし、東京都市大学 原子力研究所にて予備均質性試験を行った。この結果、大豆高濃度試料と同等の均質性を示し、調製試料の均質性に問題が無いことが確認できた。また、濃度については (Cs-134+Cs-137) で 336.0 Bq/kg という結果が得られた。

表 8 予備均質性試験結果

しいたけ予備均質性試験結果			
48時間測定		単位: Bq/kg	
	Cs-134	Cs-137	K-40
A1	110	230	688
A3	104	232	717
B2	108	230	707
C2	107	231	692
D1	106	229	723
D3	106	223	710
ave	106.8	229.2	706.2
SD(sb+r)	2.0	3.2	13.8
RSD(sb+r)	1.91%	1.39%	1.95%
RSD(sr)	1.75%	1.03%	2.73%
RSD(sbb)	0.76%	0.94%	-1.91%
参考: 大豆(高濃度)			
	Cs-134	Cs-137	K-40
RSD(sb+r)	1.40%	1.46%	3.98%
RSD(sr)	1.28%	1.73%	3.98%
RSD(sbb)	0.58%	-0.92%	0.13%

Cs 合計値 336.0 Bq/kg

添付資料3: 参加試験所の測定条件と結果

供試品基準時での換算放射能濃度 2013-12-01 JST 00:00:00

試験所 番号	核種	半減期 (出典を記入する)	エネルギー keV	放出率	ピーク効率cps/ γ	サム効果補正有 無	自己吸収補正有 無
1	Cs-134	2.0648y	604.72	0.9762	0.35%	無	無
	Cs-134	2.0648y	795.86	0.8553	0.28%	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 http://ie.lbl.gov/toi/							
4	Cs-134	2.06	795.8	85.4	0.012941	有	有
	Cs-137	30.14	661.6	85.1	0.016553	有	有
	K-40	1277000000	1460.8	10.7	0.008449	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	2.06y	563.26	8.38		0.87419	0.95535
	Cs-134	2.06Y	569.29	15.43		0.87275	0.95555
	Cs-134	2.06Y	604.66	97.56		0.91973	0.956690
	Cs-134	2.06Y	795.76	85.44		0.92104	0.96178
	Cs-134	2.06Y	801.84	8.73		0.90548	0.96192
	Cs-134	2.06Y	1365.13	3.04		1.144500	0.97102
	Cs-134	2.06Y					
	Cs-137	30.2Y	661.64	85.0		1	0.95838
K-40	1,280,000,000Y	1460.75	10.67		1	0.97209	
出典: アイソトープ手帳							
8	Cs-134	2.062Y	569.32keV	15.43	0.0158	有	有
	Cs-134	2.062Y	604.70keV	97.60	0.01576	有	有
	Cs-134	2.062Y	795.85keV	85.40	0.01205	有	有
	Cs-134	2.062Y	801.93keV	8.73	0.01176	有	有
	Cs-134	2.062Y	604.70keV	97.60	0.01576	有	有
	Cs-137	30Y	661.66keV	85.21	0.01577	-	有
	K-40	1.277×109Y	1460.75keV	10.67	0.00725	-	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 keV	放出率	ピーク効率cps/ γ	サム効果補正有 無	自己吸収補正有 無
10	Cs-134	753.1D	604.66	97.56		0.962983	0.949816
	Cs-134	753.1D	795.76	85.44		0.963352	0.955683
	Cs-137	1.102×10^4 D	661.64	85.00		1	0.951764
	K-40	4.664×10^{11} D	1460.75	10.67		1	0.967593
11	Cs-134	7.531×10^2 日	604.66	97.56	0.023203	有	有
	Cs-137	1.102×10^4 日	661.64	85.00	0.024479	無	有
	K-40	4.664×10^{11} 日	1460.75	10.67	0.013956	無	有
	出典：放射能測定シリーズ7 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー (文部科学省 科学技術・						
12	Cs-134	2.062y	2.062y	604.66keV	9.76E-01	牛肉認証標準試料 (JSAC 0753) と 同じであると仮定	
	Cs-137	30.174y	30.174y	661.638keV	8.50E-01		
	K-40	1.277×10^9 y	1.277×10^9 y	1460.75keV	1.07E-01		
	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)	0.00096	Cs134を含む標準線源な のでキャンセルされる。 ただし密度の違いによ る効率の違いは補正	有
	Cs-134	2.0648 (11) y	569.33	0.1538 (6)	0.00174		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)	0.0079		有
	Cs-134						
	Cs-137	30.07 (3) y	661.66	0.851 (2)	0.0103	無	有
	K-40	$1.277 (8) \times 10^9$ y	1460.83	0.1067 (13)	0.00066	無	有
出典：Table of Isotopes 1998							
15	Cs-134	2.0648Y	605	0.976	0.0286	有	有
	Cs-137	30.1671Y	662	0.851	0.0267	無	有
	K-40	1.251×10^9 Y	1461	0.107	0.0142	無	有
	出典：Table of isotope 7th. Ed.						
16	Cs-134	2.062年	604.66keV	97.56%	0.0181	有	有
	Cs-134	2.062年	795.76keV	85.44%	0.0146	有	有
	Cs-134	2.062年	604.66keV	97.56%	0.0181	有	有
	Cs-137	30.174年	661.638keV	85.00%	0.0185	無	有
	K-40	1.277×10^9 年	1460.75keV	10.67%	0.00966	無	有
	出典：ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー平成4年改訂						
18	Cs-134	2.062	604.66	97.56	0.01588	有	有
	Cs-137	30.174	661.64	85.00	0.01602	有	有
	K-40	1.277×10^9	1460.75	10.67		有	有

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

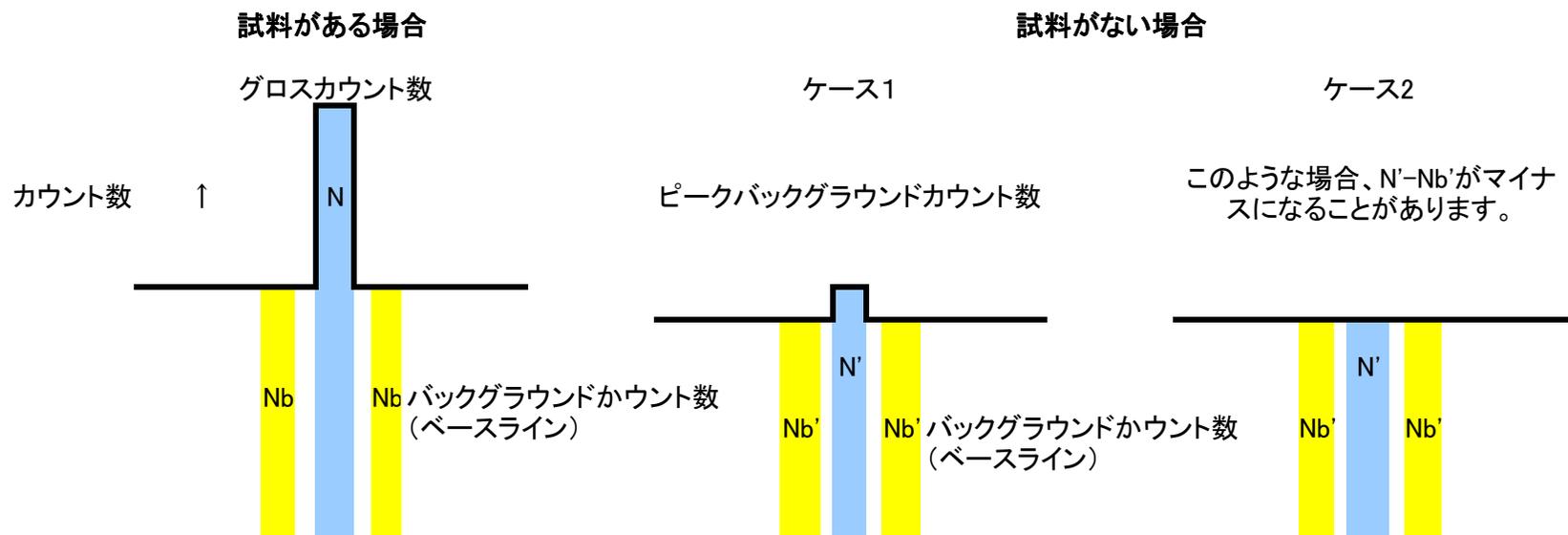
試験所 番号	ピーク面積計算方 法(関数法又はコ ペール法、その 他)	機器ソフト上で選 択した試料材質	測定時間 live time(秒)	グロスカウン ト数 N	ベースラインカ ウント数 Nb	正味カウント数 N-Nb	ピーク計数率 (カウント数/秒)	試料がないときの グロスバックグラウ ンドカウント数 N' *
1	関数法		539570	5594.424		5594.424	0.010368301	60.1686
	関数法		539570	4006.269		4006.269	0.007424929	58.535
	関数法		539570	11628.813		11628.813	0.021552001	188.0548
	関数法		539570	5202.917		5202.917	0.00964271	2263.782
4	コペール法	灰化物	86400	2769	218.3	2537.1	0.032048611	302
	コペール法	灰化物	86400	8043	249.8	7793.2	0.093090278	298
	コペール法	灰化物	86400	1642	69.6	1572.4	0.01900463	190
5	コペール法	水	200000	8505	1010	7495	0.04	2359
	コペール法	水	200000	16761	702	16059	0.08	2352
	コペール法	水	200000	3660	162	3498	0.02	3433
6	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	97200	900.0	536.3	3.3430E+02	5.9589E-01	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	97200	1188.0	539.2	6.5150E+02	4.5387E-01	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	97200	4478.0	554.1	3.9326E+03	1.2374E-01	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	97200	2894.0	210.9	2.6778E+03	7.2875E-02	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	97200	530.0	235.4	2.6760E+02	4.4415E-01	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	97200	159.0	100.6	6.2300E+01	6.3270E-01	
	関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	97200	9019.0	325.6	8.7000E+03	3.6102E-02	
関数適合法	海底土, 土壌, 灰化物	97200	1780.0	90.4	1.5915E+03	5.0787E-02		
8	関数法	水、寒天	86400	1077	442.5	634.5	0.012465278	370
	関数法	水、寒天	86400	4173	443.7	3729.3	0.048298611	373
	関数法	水、寒天	86400	2670	227.6	2442.4	0.030902778	263
	関数法	水、寒天	86400	476	170	306	0.005509259	238
	関数法	水、寒天						
	関数法	水、寒天	86400	8501	342	8159	0.098391204	333
	関数法	水、寒天	86400	1828	99.4	1728.6	0.021157407	401

試験所 番号	ピーク面積計算方 法(関数法又はコ ペール法、その 他)	機器ソフト上で選 択した試料材質	測定時間 live time(秒)	グロスカウン ト数 N	ベースラインカ ウント数 Nb	正味カウント数 N-Nb	ピーク計数率 (カウント数/秒)	試料がないときの グロスバックグラウ ンドカウント数 N' *	
10		土壌, 海底土	172800	3620	647	2973			
		土壌, 海底土	172800	2080.9	317.1	2080.9			
		土壌, 海底土	172800	6597	473	6124			
		土壌, 海底土	172800	1688	126.3	1561.7			
11	コペール法	寒天	100000	5865	872.1	4992.9	0.049929	1300	
	コペール法	寒天	100000	11043	651.8	10391.2	0.103912	949	
	コペール法	寒天	100000	2452	208	2244	0.02244	702	
学術政策局原子力安全課防災環境対策室)									
12	関数法		599747			16970	0		
	関数法		599747			12381	0		
	関数法		599747			35767	0		
14	コペール法	γ線源を用いて線減弱 係数を実測	298986	2971	1917	1054	0.00993692	1266	
	コペール法		298986	3738	1917	1821	0.012502258	1279	
	コペール法		298986	13107	1755	11352	0.043838173	1419	
	コペール法		298986	8954	1085	7869	0.029947891	1065	
	コペール法		298986	26008	1661	24347	0.086987351	1920	
	コペール法		298986	8073	345	7728	0.027001264	3151	
15	コペール法	C ₆ H1005(セルロー ス重合体)	88438	7590	968.6	6621.4	0.074870531	2831	
	コペール法		88438	16185	848.6	15336.4	0.173414143	2858	
	コペール法		88438	4269	151.1	4117.9	0.046562564	4110	
16	コペール法	灰化物	86400	5010	703.1	4306.9	0.057986111	0	
	コペール法	灰化物	86400	3520	501.5	3018.5	0.040740741	0	
	コペール法	灰化物	86400						
	コペール法	灰化物	86400	9874	528.3	9345.7	0.114282407	0	
	コペール法	灰化物	86400	3587	156	3431	0.041516204	2867.5	
18	コペール法	水、寒天	86400	4714	643.1	4070.9	0.054560185	419	
	コペール法	水、寒天	86400	9316	512	8804	0.107824074	438	
	コペール法	水、寒天	86400	2979	109.7	2869.3	0.034479167	1269	

*事前に測定した値でよい

試験所 番号	試料がないときの ベースラインカウン ト数 Nb' *	試料がないときの 正味バックグラウ ンドカウント数 N'- Nb' *	バックグラウンド測 定時間* 秒	測定時の放射能 Bq	供試品作製時の 放射能 Bq	供試品作製時 の放射能濃度 (Bq/kg)	拡張不確かさ (k=2) (Bq/kg)
1		60.1686	395560	2.948	3.188	106.274	
		58.535	395560	3.005	3.249	108.312	
						107.29	
		188.0548	395560	7.587	7.628	254.27	
		2263.782	395560	23.184	23.184	772.8	
		0					
4	290.1	-13.3	145552	2.7	2.8	93	10
	285.9	12.1	145552	6.4	6.4	210	21
	148.6	38.3	145552	20	20	670	74
5	2327	32	930000	2.9	3.0	99	5.7
	1965	387	930000	7.1	7.1	236	11.2
	628	2805	930000	21.2	21.2	705	44.5
6	610		86400		2.767E+00	9.224E+01	1.637E+01
	639		86400		2.963E+00	9.877E+01	1.104E+01
	1116		86400		2.837E+00	9.456E+01	3.256E+00
	328		86400		2.831E+00	9.438E+01	3.914E+00
	435		86400		2.837E+00	9.456E+01	3.230E+01
	147		86400		2.431E+00	8.102E+01	2.906E+01
			86400			9.455E+01	1.200E+00
	537		86400		6.924E+00	2.308E+02	5.090E+00
251		86400		2.066E+01	6.886E+02	3.868E+01	
8	367.2	2.8	108000	3.125	3.333	111.1	12.63
	407.4	-34.4	108000	2.819	3.006	100.2	6.02
	231	32	108000	2.726	2.907	96.91	6.30
	249.5	-11.5	108000	3.281	3.499	116.6	20.0309
						100.2	6.02
	317	16	108000	7.013	7.044	234.8	12.76
	74	327	108000	22.07	22.07	735.6	59.2
	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			250000			101	
			250000			104	
			250000			224	
			250000			725	
11	1345.4	-45.4	200000	2.83	3.00	100	6.90
	958.3	-9.3	200000	6.93	6.96	232	14.84
	363.8	338.2	200000	20.51	20.51	684	54.7
12		0		3.03E+00	3.21E+00	106.9507241	
		0		7.37E+00	7.40E+00	246.7651029	
		8618	6.93E+05	2.15E+01	2.15E+01	716.3663148	
14	1228	38	253460	3.23			
	1209	70	253460	3.08			
	972	447	253460	2.97			
	698	367	253460	2.95			
			Weighted average	2.96	3.1	104	5
	959	961	253460	6.9	6.93	231	10
	253	2898	253460	20.4	20.4	682	40
15		0					
	2393.4	437.6	272054	2.990	3.110	104	3.08
	1831.2	1026.8	272054	7.492	7.512	250	4.68
16	605.5	3504.5	272054	22.26	22.26	742	34.9
	0	0	129600	2.95	3.07	102	6
	0	0	129600	2.92	3.04	101	6
						102	6
	0	0	129600	7.18	7.2	240	12
	212.65	2654.85	129600	19.2	19.2	641	59
18		0					
	364	55	86400	2.79	2.936	98	7.4
	370	68	86400	6.83	6.85	228	16.2
	101.2	1167.8	86400	21.552	21.55	718	56



添付資料4 : 共同実験参加試験所のその他の測定条件

試験所番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	Ge検出器の相対効率	検出効率(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源の種類、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	セイコーEG&G Ge検出器GEM20P4-70	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30g U8容器(内径48mm, 高さ50mm) サム効果や自己吸収の補正は行っていないが, サム効果を減らすため試料と標準線源は検出器から5cmの距離をとった。効率曲線は同じ高さの体積混合線源Co-60,Mn-54,Cs-137,Y-88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 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(20 08))に記載
4	γ線スペクトロメトリー	CANBERRA社製 GC2519	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:30.0 g 密度:0.330 g/cm ³ 容器:U-8(充填高:50mm)	
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	23%	自己吸収計算に使用したソフト名 Gamma studio	質量:30.00g(しいたけ(粉状;低濃度)標準物質認証共同実験-放射能(ガンマ線)測定手順書-による) 密度:0.3237g/cm ³ 容器:U8タイプ(プラ壺) 充填高さ:49.75mm	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)	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:0.03kg、密度:0.332、容器(充填高さ):5cm	
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	24.50%	別紙に記載	・質量:30.0g ・密度:0.339g/cm ³ ・充填高さ:5.0cm	
10	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	Ge検出器GEM 20190 26D1742B		標準線源基準日:2007-02-22 使用した核種: Cs-137 Mn-54 Co-60 1173 keV, 1332 keV	試料高さ:50 mm 試料:30 g 材質設定:土壌 比重:0.33 g/cm ³	自己吸収補正、サム効果補正あり。

試験所番号	測定方法名	検出器のメーカーと型番	Ge検出器の相対効率	検出効率(cps/Bq)を求めるために使用した標準線源の種類、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	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	試料正味重量は本共同実験の測定手順書に記載された重量をそのまま用いた。 試料の充填高さ、重量、密度の情報を入力し、セイコー イージーアンドジー(株)製解析プログラムの登録情報(サム効果補正係数、自己吸収率補正係数)により定量した。 充填高さ:50mm 重量:0.030kg 密度:0.331g/cm ³	解析システム:セイコー E G & G (株) Cs134の定量値について 795.76keVのピークは同核種の801.84keVのピーク及び、Ac-228のピークが重なるため、604.66keV、795.76keV双方の値に大差が無いことを確認した上で604.66keVの値を採用することとする。
12	標準物質(牛肉 低濃度)との比較法	CANBERRA GC4020-7500S	40%	標準線源:牛肉認証標準物質(フレーク状)JSAC 0753 使用ソフト:スペクトロエクスプローラー 質量 52.25 g h = 57 mm ρ = 0.507	質量 30 g h = 50 mm ρ = 0.33	
14	γ線測定	ORTEC GMX25P4	28%	・Cs134とCs137の標準線源は、基になる線源溶液から100-200 μL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。 ・K40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、分析試料、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(7.8-10.3%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。	Cs134を含む標準線源を用いているため、Cs134のサム補正は本来なら必要ないが、自己吸収の違いに起因する効率の違いによって僅かに分析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(1.0-1.6%程度)を計算し補正。
15	送付されたU8容器重点済みの試料をポリエチレン袋に入れた後、Ge半導体検出器のエンドキャップ上に置き、測定。	キャンベラ社 GX5020	54.0%	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U8容器に高さ5cmまで充填された9核種混合体積標準線源(MX033PP-0011JCSS証明済み、準日2013年11月11日12時)を購入し、使用した。	質量 0.03 kg 密度 0.33 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	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	39.40%	標準線源 質量:97.0g 密度:1.102 g/cm ³ 容器(充填高さ):U-8(50mm) 検出効率(cps/Bq): ¹⁰⁹ Cd(88.032keV):0.00146 ⁵⁷ Co(122.058keV):0.0400 ⁵⁷ Co(136.471keV):0.00509 ¹³⁹ Ce(165.85keV):0.0348 ⁸⁵ Sr(514.000keV):0.0196 ¹³⁷ Cs(661.638keV):0.0137 ⁵⁴ Mn(834.827keV):0.0138 ⁸⁸ Y(898.030keV):0.0114 ⁶⁰ Co(1173.21keV):0.00989 ⁶⁰ Co(1332.47keV):0.00895 ⁸⁸ Y(1836.00keV):0.00687 計算ソフト名:Gamma Studio	質量:30.0g 密度:0.341g/cm ³ 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 Cs-134及びCs-137は 2σ以下のためカウン ト数をゼロとした。
18	ゲルマニウム半導体検出器に よるガンマ線スペクトロメトリー	・メーカー:CANBERRA社 ・型番:GC2518	30.345%	標準線源:放射能標準体積線源(ア ルミナ) MX033U8PP 日本アイソトープ協会製	重量:30g 密度:0.339 g/cm ³ 容器:U8 高さ:5cm	

Lab 2

しいたけ (低濃度)

Nuclide	Energy / keV	放出割合 / %	Eff.	Sample weight / kg	測定時間 / sec	cps	1σ	Activity / Bq	1σ	Activity (時間補正後) / Bq	1σ	Activity conc. / Bq kg ⁻¹	1σ	¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs / Bq kg ⁻¹
Cs-134	604.7	0.976	8.91E-03	0.03000	264,454	#####	2.96E-04	2.67	0.03	2.83	0.04	94	1	330
Cs-137	661.7	0.851	8.13E-03	0.03000	264,454	#####	4.29E-04	7.05	0.06	7.07	0.06	236	2	
K-40	1460.8	0.107	3.61E-03	0.03000	264,454	#####	1.83E-04	21.1	0.5	21.1	0.5	702	16	

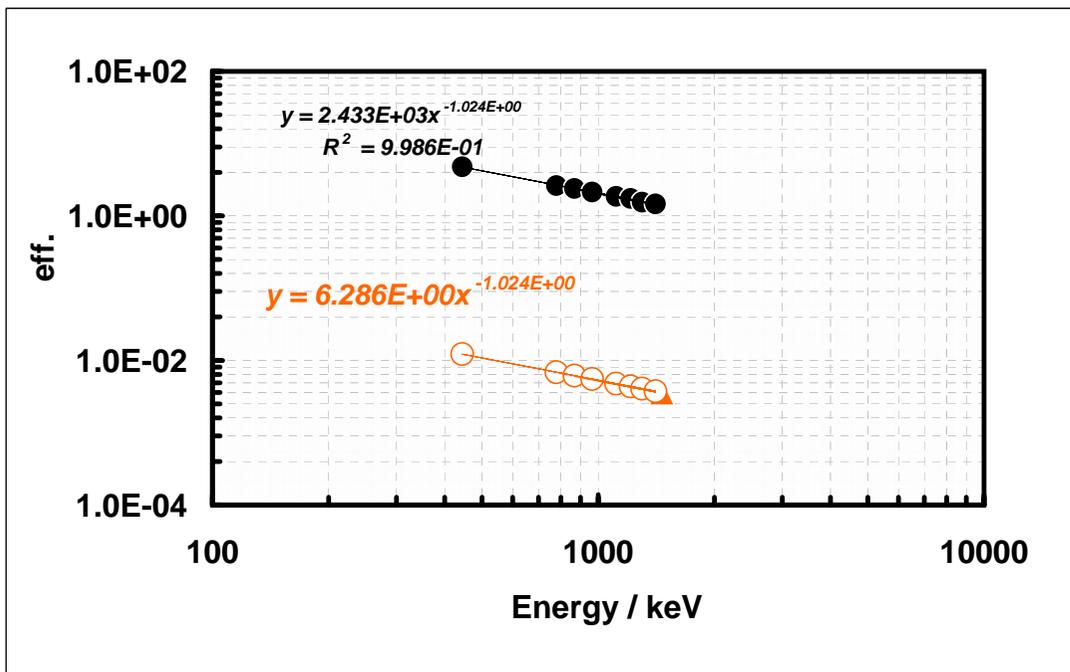
標準

⁴⁰K

サンプル	Energy / keV	高さ (cm)	γ [%]	KCl 正味の重量 (g)	Activity (Bq)	gps	cps (net)	eff. (1461 keV)	a	b
KCL (U-8)	1460.8	5.0	10.67	104	1689	180	0.65	3.61E-03	-1.024	6.286

¹⁵²Eu

Live time	keV	cps	err (1σ)	γ [%]	dps	err (1σ)	err (1σ) / %	a	b	Eff.
39,288	444	0.1507	0.0020	3.148	4.787	0.062	1.30	-1.024	6.286	1.22E-02
39,288	779	0.3393	0.0029	12.94	2.621	0.023	0.87	-1.024	6.286	6.88E-03
39,288	867	0.1015	0.0016	4.245	2.390	0.038	1.58	-1.024	6.286	6.16E-03
39,288	964	0.3132	0.0028	14.61	2.144	0.019	0.90	-1.024	6.286	5.53E-03
39,288	1,112	0.2536	0.0025	13.644	1.858	0.019	1.00	-1.024	6.286	4.78E-03
39,288	1,213	0.0247	0.0013	1.422	1.739	0.089	5.09	-1.024	6.286	4.37E-03
39,288	1,299	0.0252	0.0008	1.623	1.553	0.049	3.18	-1.024	6.286	4.07E-03
39,288	1,408	0.3077	0.0028	21.005	1.465	0.013	0.91	-1.024	6.286	3.75E-03

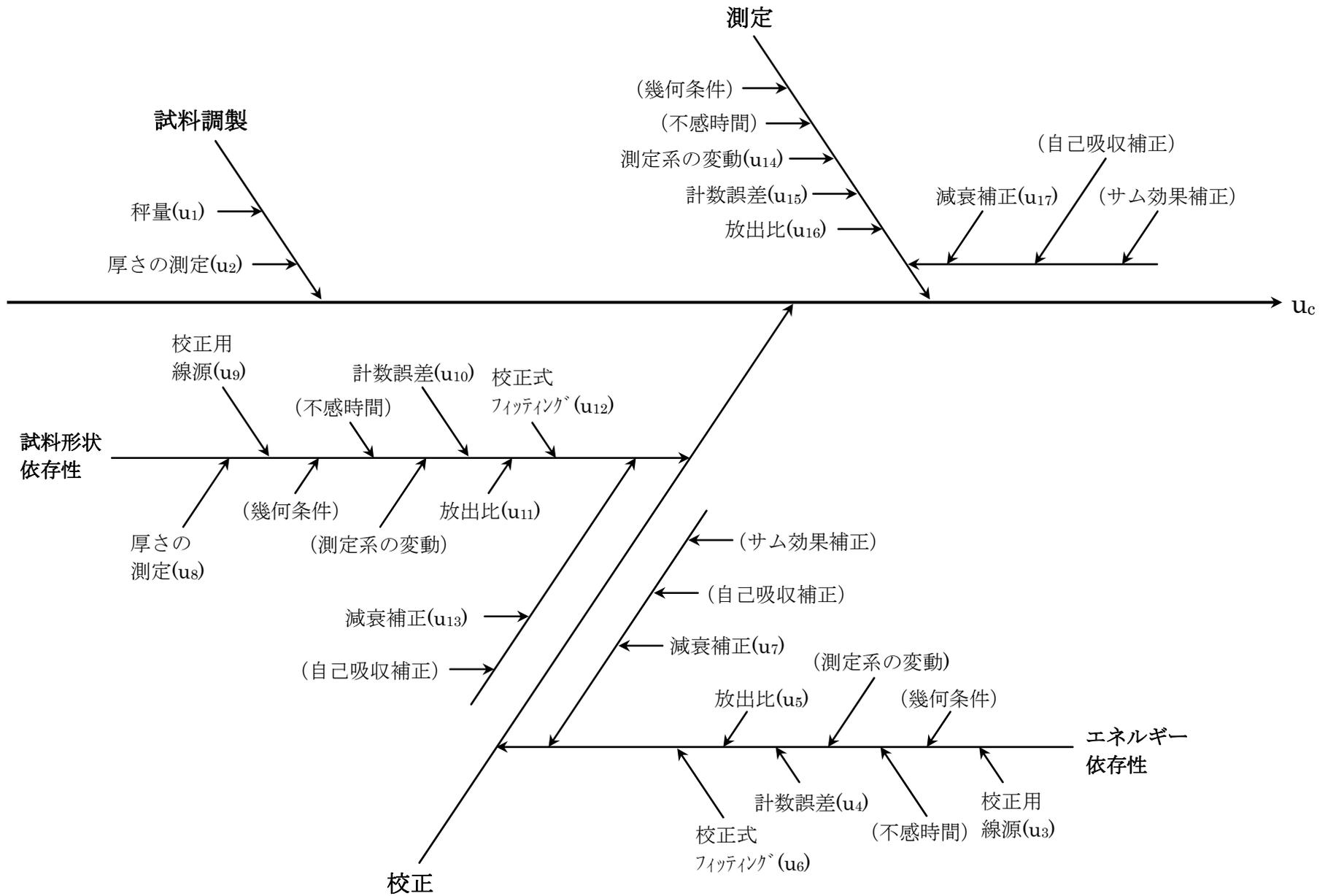


Lab 4

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	0.00162	0.0448	測定試料形状依存性は ¹³⁷ Cs容積線源を、エネルギー依存性は混合核種点線源を、それぞれ測定して求めた。なお、 ⁵⁷ Co、 ⁶⁰ Co及び ⁸⁸ Yのピーク効率を求める際には、サム効果の影響について補正した。測定試料によるγ線の自己吸収は、試料ごとに計算により補正した。また、 ¹³⁴ Csはサム効果の影響を補正した。
Co- 57	0.0373	0.0436	
Ce-139	0.0298	0.0373	
Cr- 51	0.00207	0.0211	
Cs-137	0.00912	0.0107	
Mn- 54	0.00879	0.00879	
Y-88(898keV)	0.00782	0.00832	
Y-88(1836keV)	0.00443	0.00446	
Co-60(1173keV)	0.00650	0.00650	
Co-60(1333keV)	0.00587	0.00587	
測定試料形状依存性(¹³⁷ Cs容積線源)			
重量: 9.5g、密度: 1.044g/cm ³ 、 容器: U-8(充填高: 5.0mm)	0.0306	0.0359	
重量: 19.0g、密度: 0.994g/cm ³ 、 容器: U-8(10.5mm)	0.0270	0.0317	
重量: 38.0g、密度: 0.994g/cm ³ 、 容器: U-8(21.0mm)	0.0220	0.0259	
重量: 57.0g、密度: 1.010g/cm ³ 、 容器: U-8(31.0mm)	0.0189	0.0222	
重量: 76.0g、密度: 1.018g/cm ³ 、 容器: U-8(41.0mm)	0.0166	0.0195	
重量: 88.0g、密度: 1.029g/cm ³ 、 容器: U-8(47.0mm)	0.0155	0.0182	



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	1.31	0.83	2.18
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	1.83	1.76	1.37
ガンマ線放出割合	B	0.08	0.24	1.04
自己吸収補正	B	0.20	0.18	0.13
カスケードサム効果補正	B	0.77	0.00	0.00
相対合成標準不確かさ(k=1)		2.9	2.4	3.2
相対拡張不確かさ(k=2)		5.8	4.8	6.3

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.標準線源の種類、高さ、重量、密度

高さ(mm)	重量(g)	密度(g/cm ³)	種類
5.0	9.4	1.061	U-8容器入りアルミナMIX線源
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
Ce-139	165.85	79.90	10.549	9.244	7.995	6.785	5.254	13.203	11.569	10.006	8.492	6.576
Cr- 51	320.08	10.20	0.729	0.631	0.539	0.457	0.350	7.152	6.185	5.286	4.478	3.433
Sr- 85	514	99.27	4.384	3.793	3.198	2.688	2.078	4.416	3.821	3.221	2.708	2.093
Cs-137	661.64	85.00	2.991	2.557	2.188	1.818	1.394	3.519	3.008	2.574	2.139	1.640
Mn- 54	834.83	100	2.832	2.425	2.057	1.726	1.334	2.832	2.425	2.057	1.726	1.334
Y - 88	898.02	91.29	2.483	2.093	1.770	1.480	1.126	2.720	2.292	1.939	1.621	1.234
Co- 60	1173.21	100	2.045	1.753	1.470	1.236	0.926	2.045	1.753	1.470	1.236	0.926
Co- 60	1332.47	100	1.804	1.559	1.303	1.079	0.820	1.804	1.559	1.303	1.079	0.820
Y - 88	1836.13	99.34	1.349	1.129	0.959	0.795	0.590	1.358	1.137	0.965	0.800	0.594

3.自己吸収計算方法

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

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

となる。 f_{abs} は自己吸収係数であり、以下の式により求める。

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

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

A : 定数(先の計算式では分子子により相殺される)

D : 検出器の実効中心から試料の底面までの距離(cm)

μ : 着目エネルギーにおける試料の線減弱係数(/cm)

線減弱係数 μ については、以下の式によって求める。

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

μ : 線減衰係数

ρ : 試料密度

M: 試料の原子量(アルミナ=101.96)

μ_{Al} : アルミニウム原子の全相互作用断面積

μ_{O} : 酸素原子の全相互作用断面積

4.使用ソフト名

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

Lab 8

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

1. 天秤目盛不確かさの評価

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。

既知の値を利用したため評価項目から除外した

2. 定規目盛不確かさの評価

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	$C/2\sqrt{3}$	$C/(2\sqrt{3}\cdot\text{Eff}_{H\text{cm}})$
	検出効率の最小差異				
	$\therefore (A+B)/2 = C/2$ $A = \text{Eff}_{H-0.1\text{cm}} - \text{Eff}_{H\text{cm}}$ $B = \text{Eff}_{H\text{cm}} - \text{Eff}_{H+1\text{cm}}$ $C = \text{Eff}_{H-0.1\text{cm}} - \text{Eff}_{H+1\text{cm}}$ (Eff _{Xcm} : Xcmの検出効率)				

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

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

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

4. 効率校正不確かさの評価

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

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

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

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

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

5. 計数誤差の評価

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

<計数誤差の評価方法>

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

例) 放射能濃度が 100 ± 5.0 Bq/kgの場合：相対標準不確かさ=5.0/100=0.050

6. 不確かさの合成

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

<不確かさの合成方法>

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

Lab 11

別表1 校正に用いた標準線源

高さ5mm

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

高さ10mm

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

高さ20mm

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

高さ30mm

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

高さ50mm

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

※ 放射能基準日 : 2013年3月1日 12時00分

Lab 11

別表2 効率校正に用いた核種および検出効率

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

Lab 11

不確かさの算出は下表の通り。

不確かさの要因	合成不確かさ		
	Cs-134	Cs-137	K-40
前処理	0.0750%	0.0750%	0.0750%
秤量	0.00066%	0.00066%	0.00066%
厚さ	0.0750%	0.0750%	0.0750%
均質性	考慮せず	考慮せず	考慮せず
校正	3.02%	3.02%	3.02%
厚さ	0.0750%	0.0750%	0.0750%
校正用線源	2.60%	2.60%	2.60%
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	1.06%	1.06%	1.06%
放出比	0.757%	0.757%	0.757%
校正式のフィッティング	0.809%	0.809%	0.809%
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	0.0882%	0.0882%	0.0882%
試料測定	1.57%	1.06%	2.57%
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	1.54%	0.95%	2.26%
放出比	0.328%	0.467%	1.218%
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	0.0134%	0.0009%	0.0051%
合成標準不確かさ	3.41%	3.20%	3.97%
拡張不確かさ (k=2)	6.9%	6.4%	8.0%

Lab 14

・Cs134, Cs137溶液の放射能濃度決定に使用した点線源

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

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

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

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

それらの値を指数関数の多項式で最小自乗フィットして検出効率曲線を作成。

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

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

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

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

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

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

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

ただし自己吸収の違いに起因する効率の違いによって試料間でカスケードサムの補正量が僅かに異なるため、その違いを計算し(1.0-1.6%)、補正。

この補正の不確かさは、1.0-1.6%の15%(0.15-0.24%)と推定。

・分析試料、Cs溶液、KOH溶液の密度は、それぞれ約0.3, 1.0, 1.16g/cm³。

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

自己吸収の割合は各試料間で7.8-10.3%程度異なり、この違いを補正。

補正の不確かさは、この7.8-10.3%の5%(約0.5%)と推定。

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

Lab 16

不確かさの算出根拠

計算シート(1)の拡張不確かさ(k=2)は以下の①～③の式で求められる。

①放射能濃度及び誤差から算出した相対標準不確かさ(%) = 誤差(Bq/kg) ÷ 放射能濃度(Bq/kg) × 100

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

③拡張不確かさ(k=2)(Bq/kg) = 放射能濃度(Bq/kg) × ② / 100 × 2

計算例

	エネルギー	放射能濃度(Bq/kg)	誤差(Bq/kg)	放射能濃度及び誤差から算出した相対標準不確かさ(%)	標準線源のCs137の相対拡張不確かさ(%)
Cs-134	604.66keV	102	1.815	$1.815 \div 102 \times 100 = 1.779$	4.7

相対標準不確かさ(標準線源の不確かさを加味した値)(%) $\sqrt{(1.779^2 + (4.7/2)^2)} = 2.947$

拡張不確かさ(k=2) (Bq/kg) $102 \times 2.947 / 100 \times 2 = 6.01$

Nuclide	Energy / keV	放出割合 / %	Eff.	測定量 / kg	測定時間 (sec)	cps	1σ	計数効率 (%)	γ ps	放射能 (Bq)	放射能 (Bq/1kg)	経過時間減衰補正	補正後 (Bq/kg)	平均	¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs (Bq/kg)
Cs-134	604.7	97.62	1.09E+00	0.03000	330000	0.0267	0.00032	1.09	2.44	2.50	83.41	0.945	88.27	85.33	297
Cs-134	795.9	85.46	9.42E-01	0.03000	330000	0.0188	0.00026	0.94	2.00	2.34	77.86	0.945	82.39		
Cs-137	661.7	85.10	1.045	0.03000	330000	0.0562	0.00043	1.05	5.38	6.32	210.65	0.996	211.49		
K-40	1460.8	10.70	5.62E-01	0.03000	330000	0.0130	0.00020	0.56	2.32	21.68	722.79	1.000	722.79	722.79	723

測定手順

- 1) ”しいたけ標準試料”、KCl水溶液、密度の異なる有機物試料を入れたU8容器の蓋の上に日本アイソトープ協会製のEu-152小線源(現時点 814Bq)を置きEu-152から放出されるγ線についての計数効率を求めた(図1、図2、図3)。
- 2) 図4にCs-134水溶液の計数効率、このU8容器の蓋の上にEu-152線源を置いて求めたEu-152の計数効率を示す。Cs-134水溶液の計数効率曲線の傾きはEu-152の計数効率曲線に比べて低エネルギー領域でやや急になるるのでその分の補正が必要である。
- 3) 空のU8容器の上に置いた場合のEu-152の計数効率の傾きと密度が”0”の溶液の計数効率の傾きは、試料による吸収を無視できるので両者は同じ(比は1)である。各γ線エネルギーにおける試料の密度と計数効率の比のグラフを図5に示す。図5から”しいたけ標準試料”の密度である0.316における補正係数を求め、これをEu-152の”しいたけ標準試料”における計数効率に掛けて”しいたけ標準物質の計数効率”を算出した(図6)。

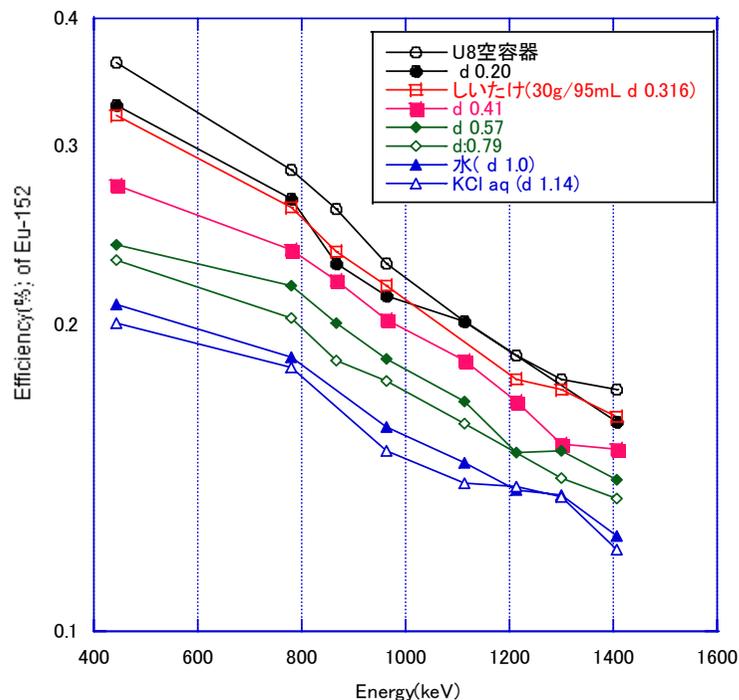


図1 U8容器の蓋の上にEu-152を置いた場合の計数効率

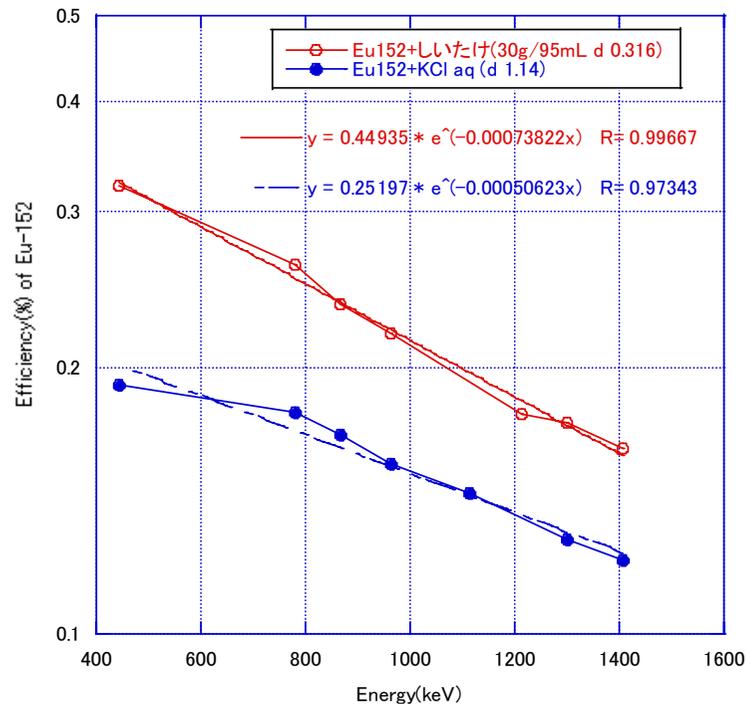


図2 U8容器の蓋の上にEu-152を置いた場合の計数効率

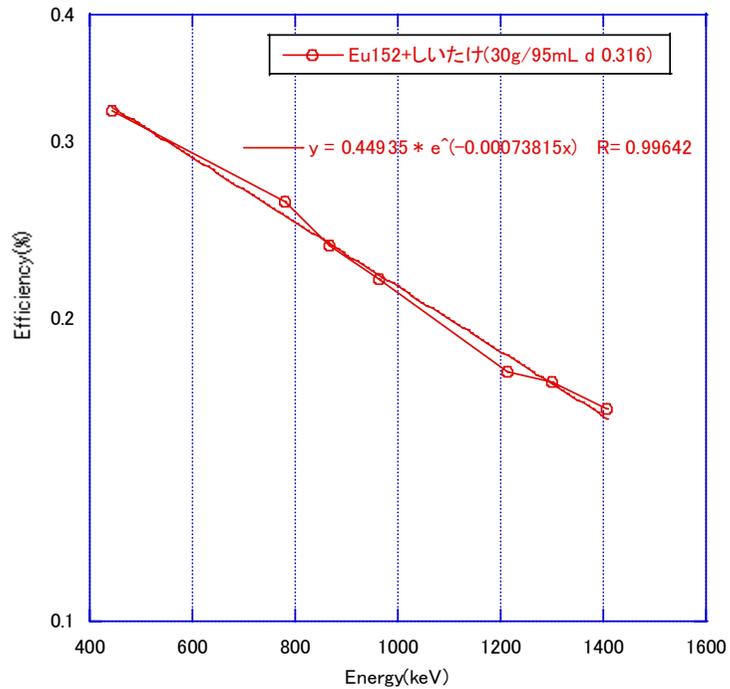


図3 U8容器の蓋の上にEu-152を置いた場合しいたけ標準物質の計数効率

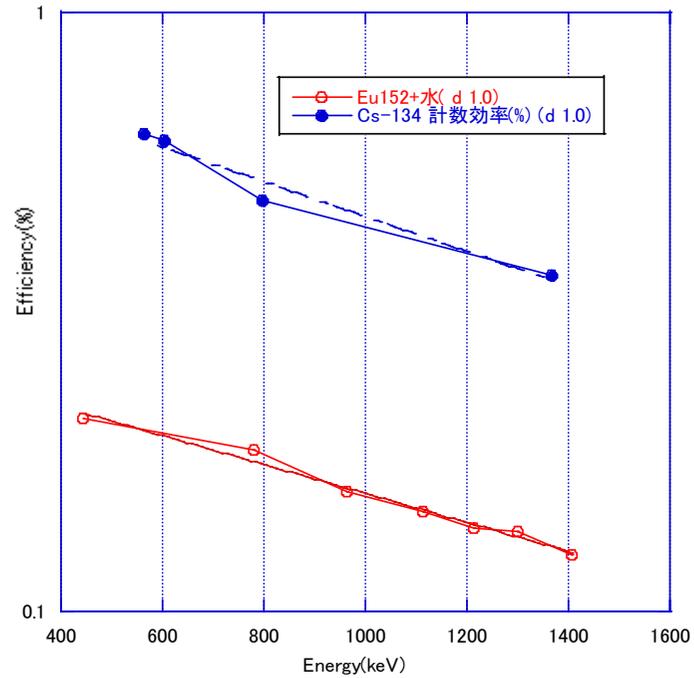


図4 U8容器の蓋の上にEu-152を置いた場合の計数効率とCs-134水溶液の相対計数効率

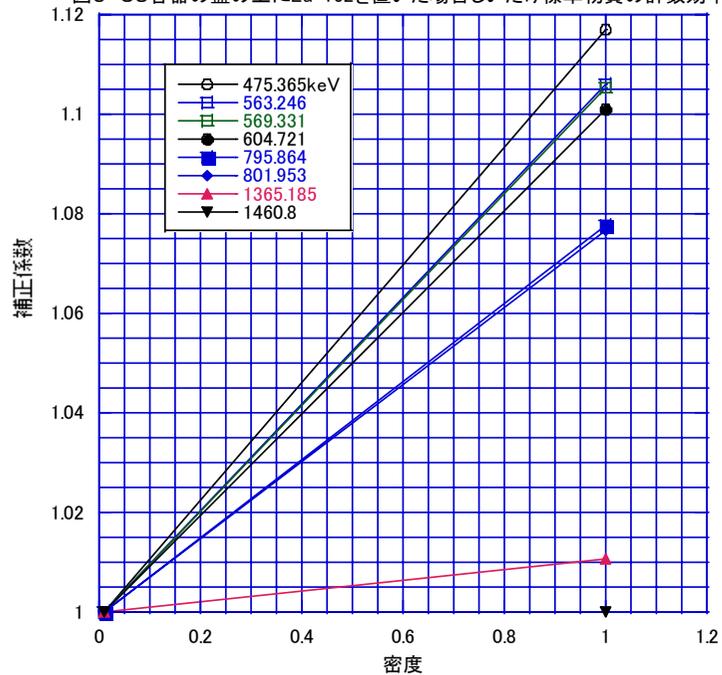


図5 γ 線エネルギーと図3より求めた補正係数の関係

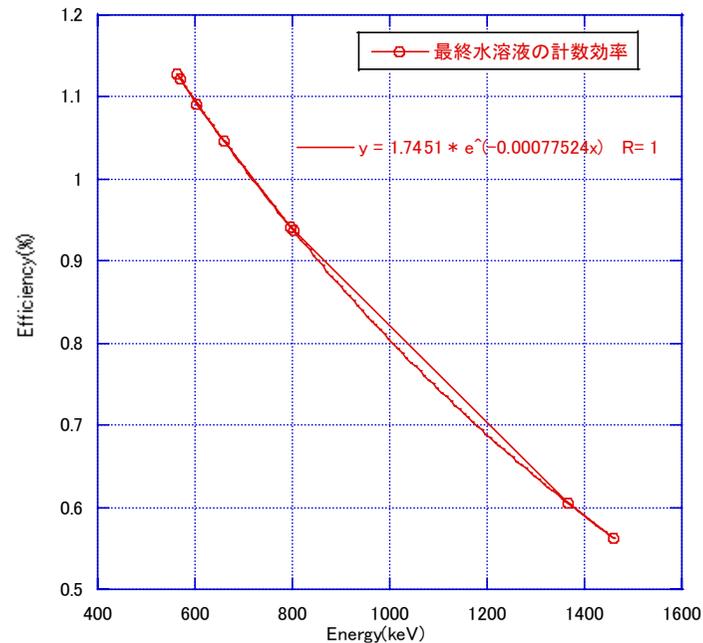


図6 図4の計数効率に補正係数を掛けK-40の1.46MeVの計数効率で補正したしいたけ標準物質の計数効率

添付資料 6 : 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 6-1 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 は点線源と形状依存性用には Cs-137 のみの体積線源を使用しているので区別して表示した。Cs-134 の標準線源を使用した試験所、Eu-152 点線源、牛肉標準物質を使用した試験所は別のマークで示した。

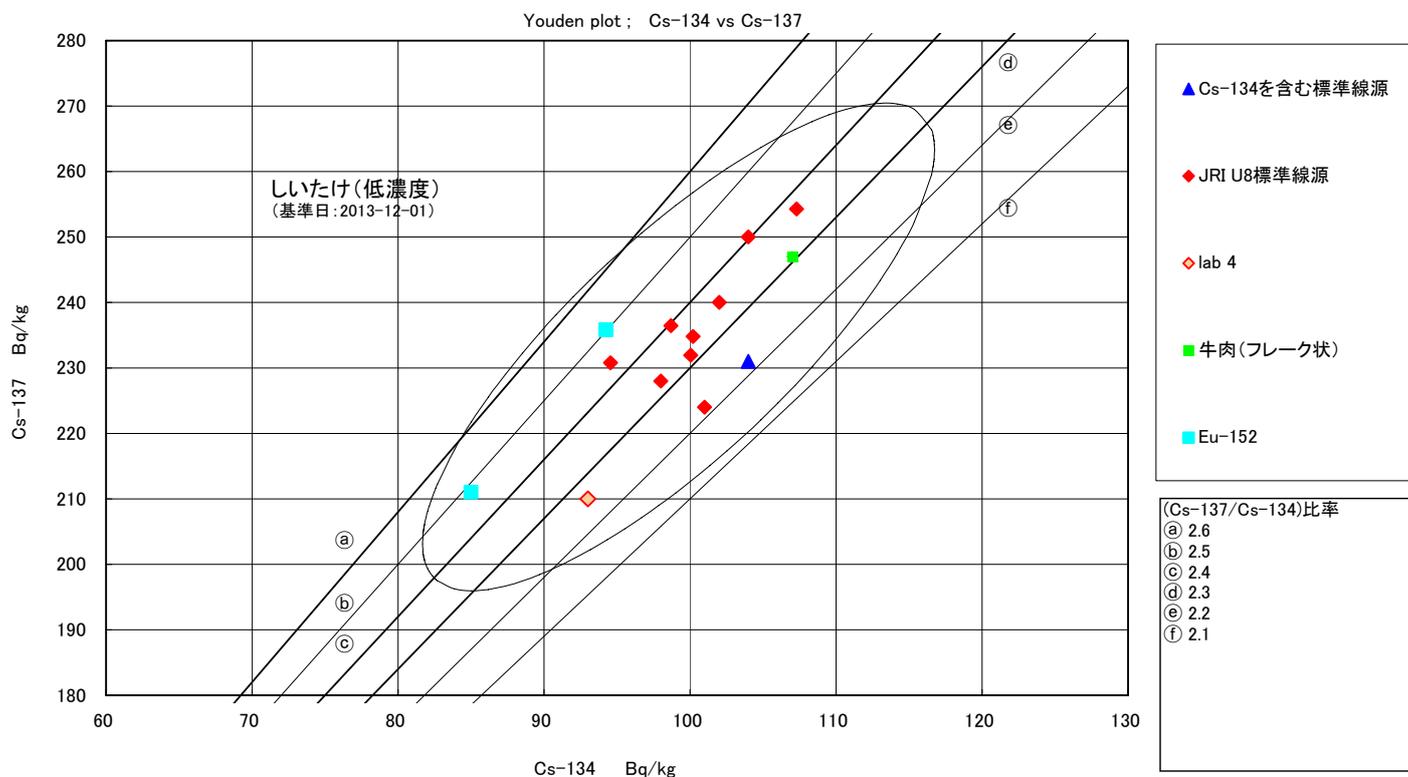
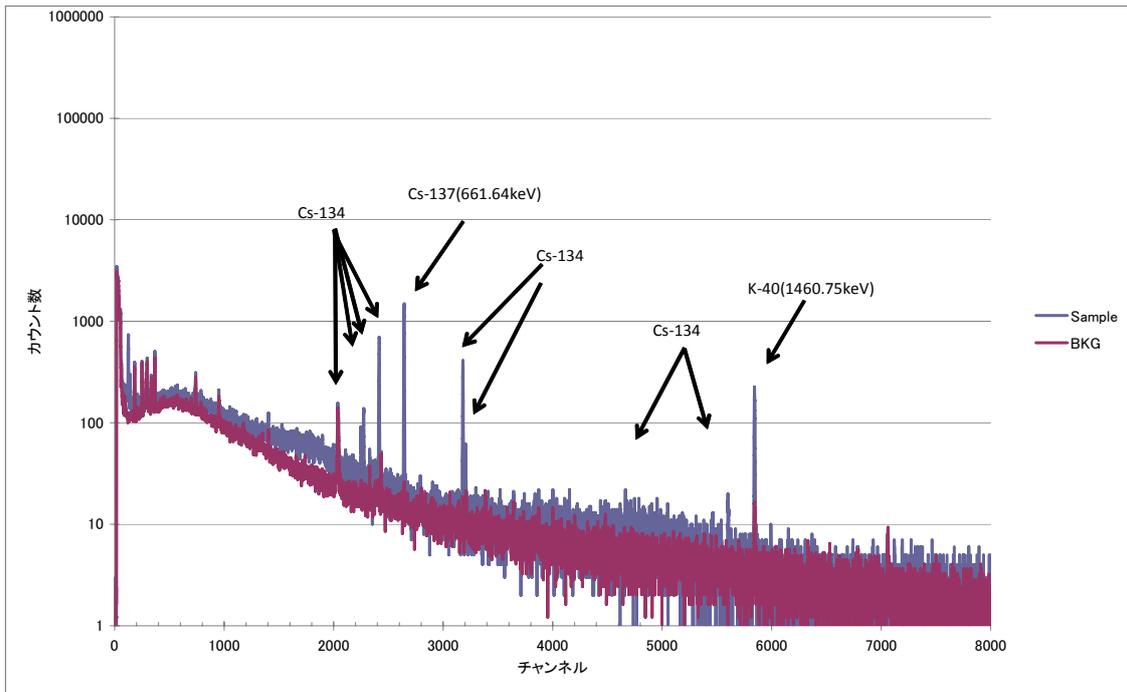


図 6-1 Cs-134 と Cs-137 測定値の比較 (しいたけ低濃度)

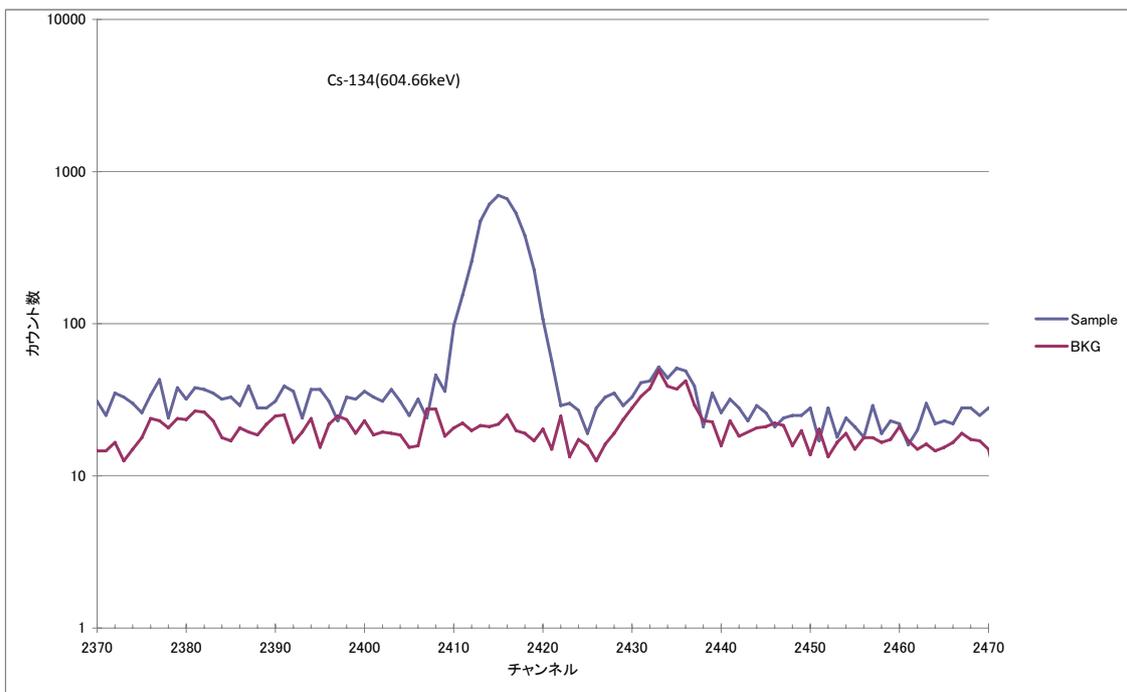
添付資料 7 : 報告された γ 線スペクトル例

3 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.

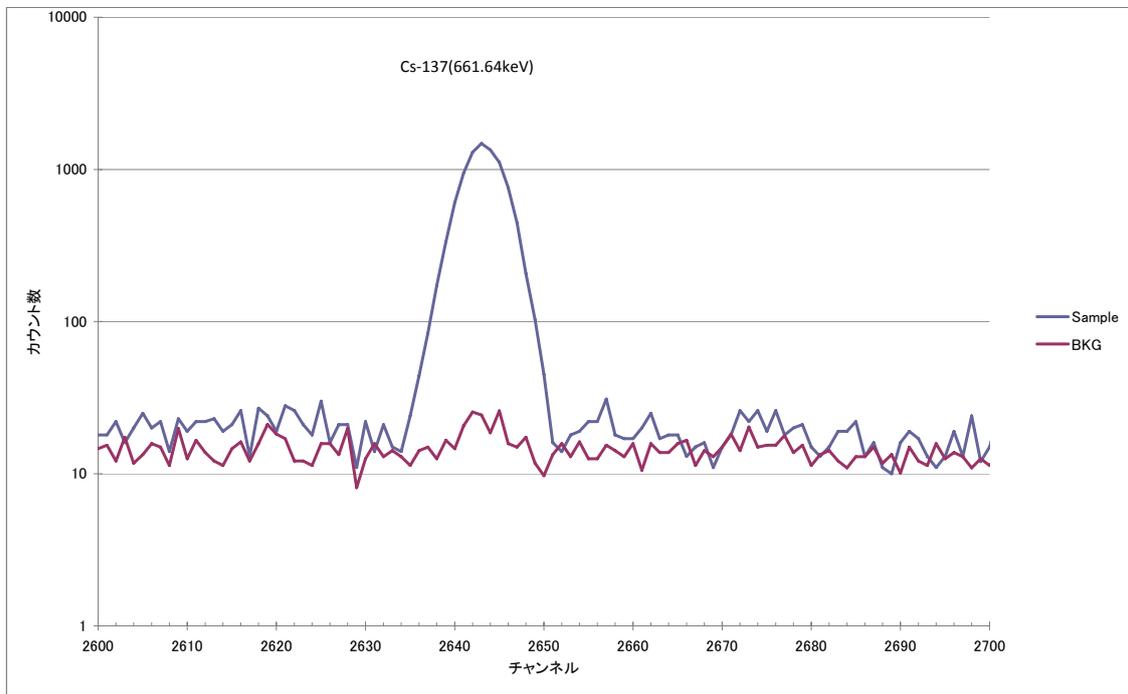
Lab 6 測定時間 試料あり : 97 200 s (2014-01-14)
 試料なし : 240 000 s (97 200 s に換算表示) (2014-01-10)



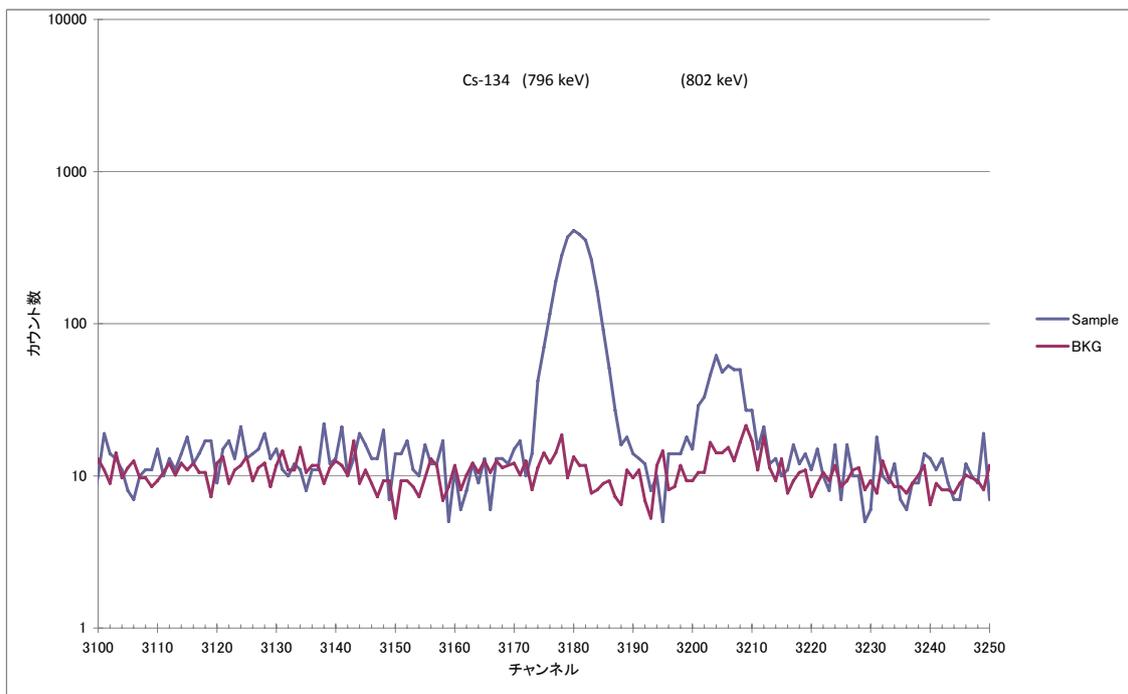
Cs-134 605 keV



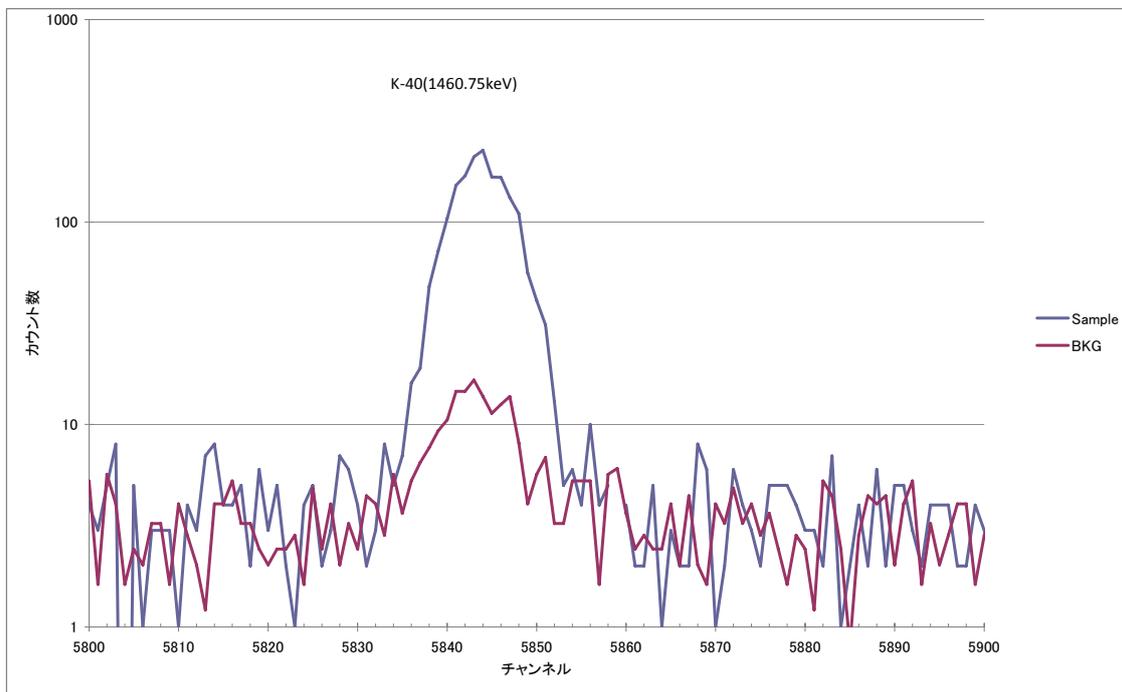
Cs-137 662 keV



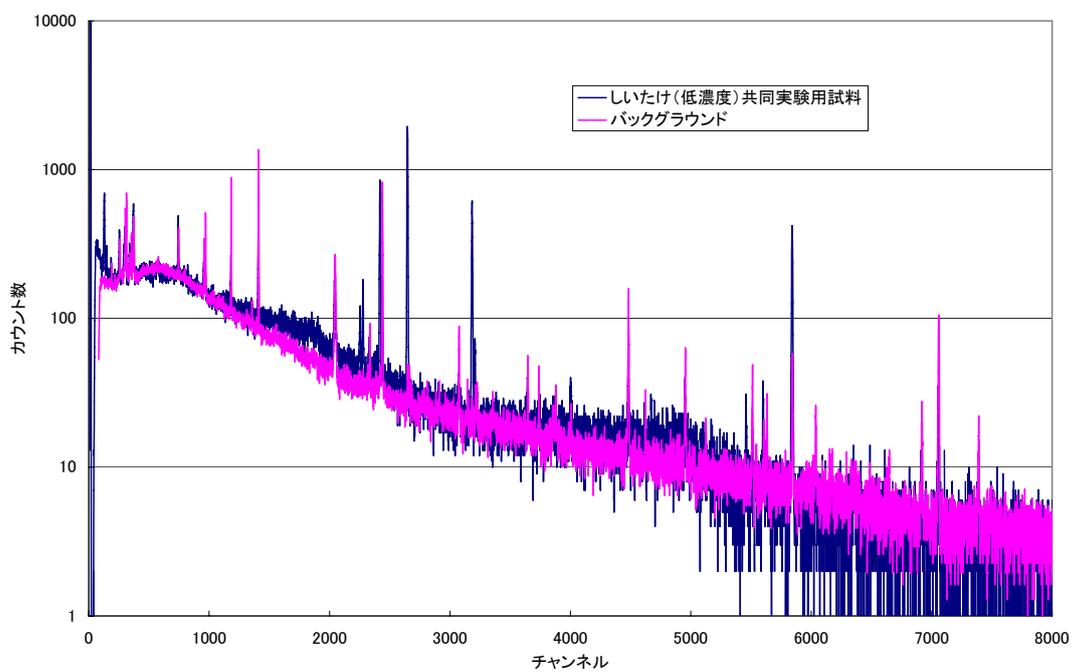
Cs-134 796 keV



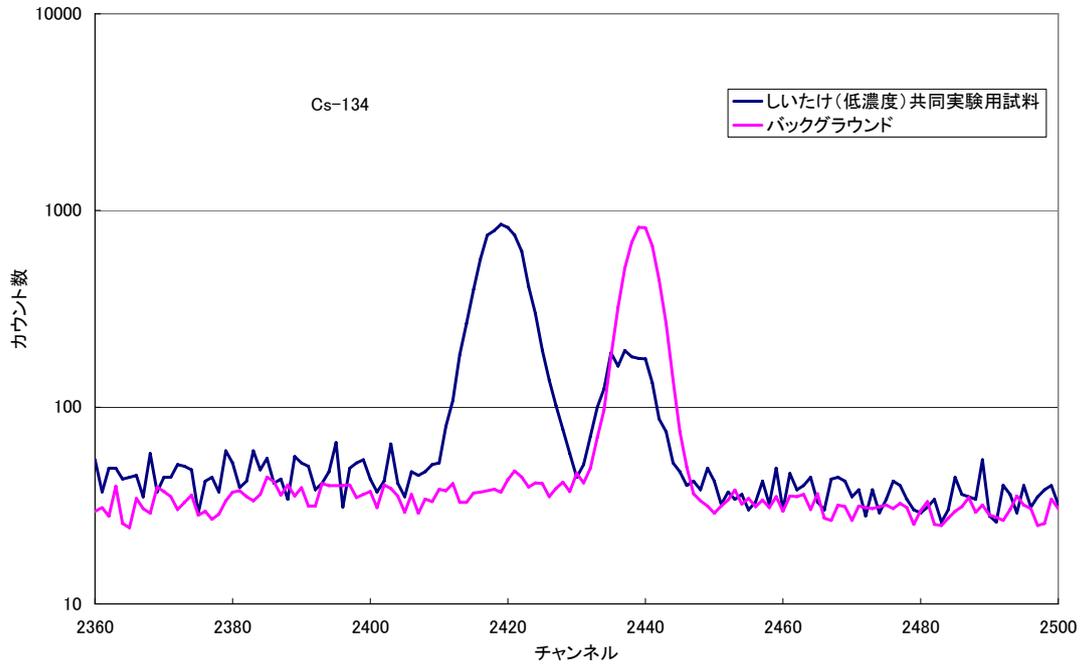
K-40 1460 keV



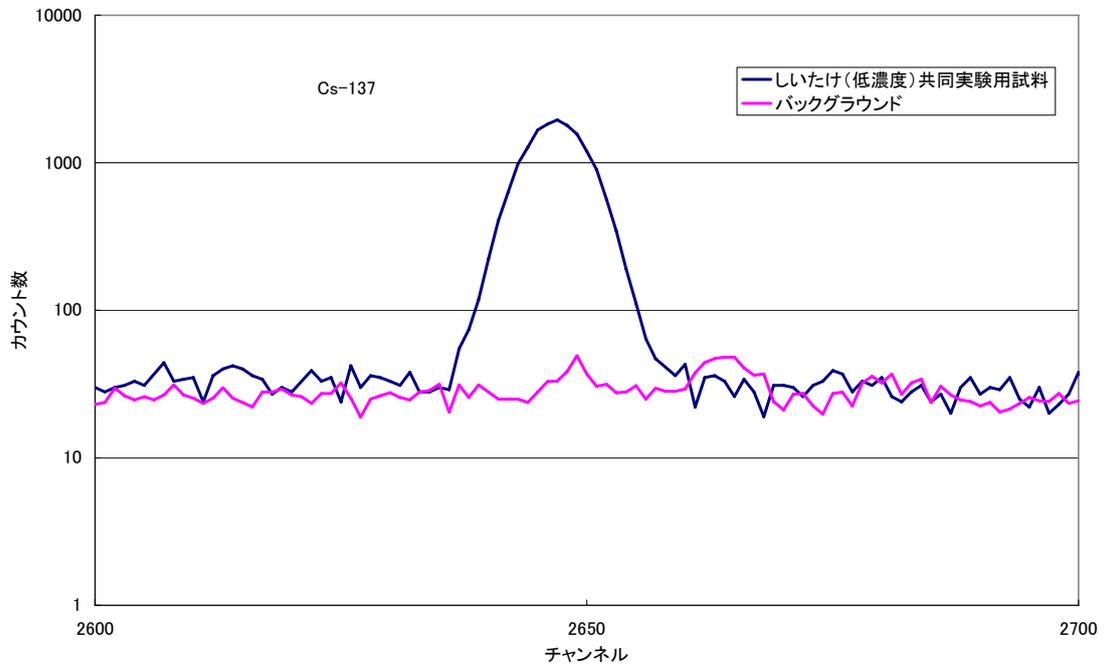
Lab 15 測定時間 試料あり : 88 438 s
試料なし : 272 572 s (88 438 s に換算表示)



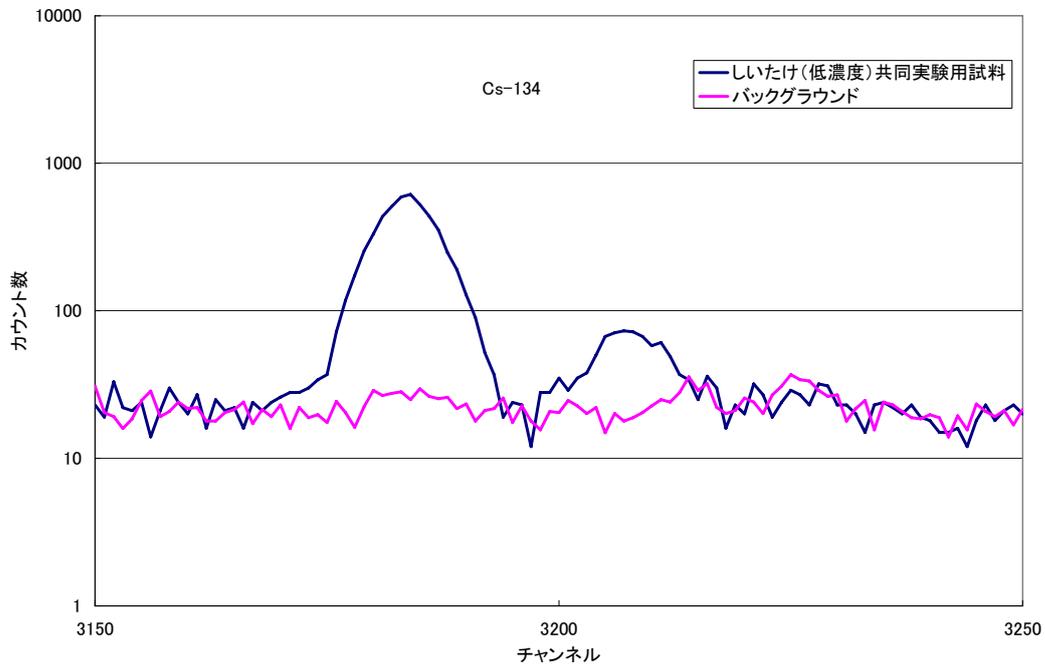
Cs-134 605 keV



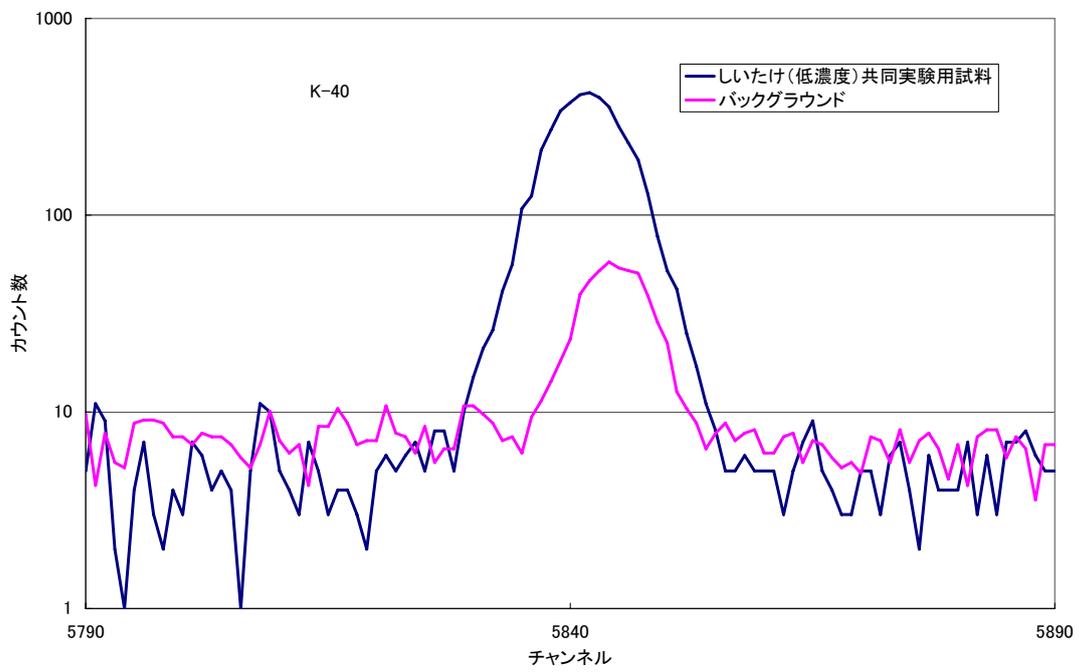
Cs-137 662 keV



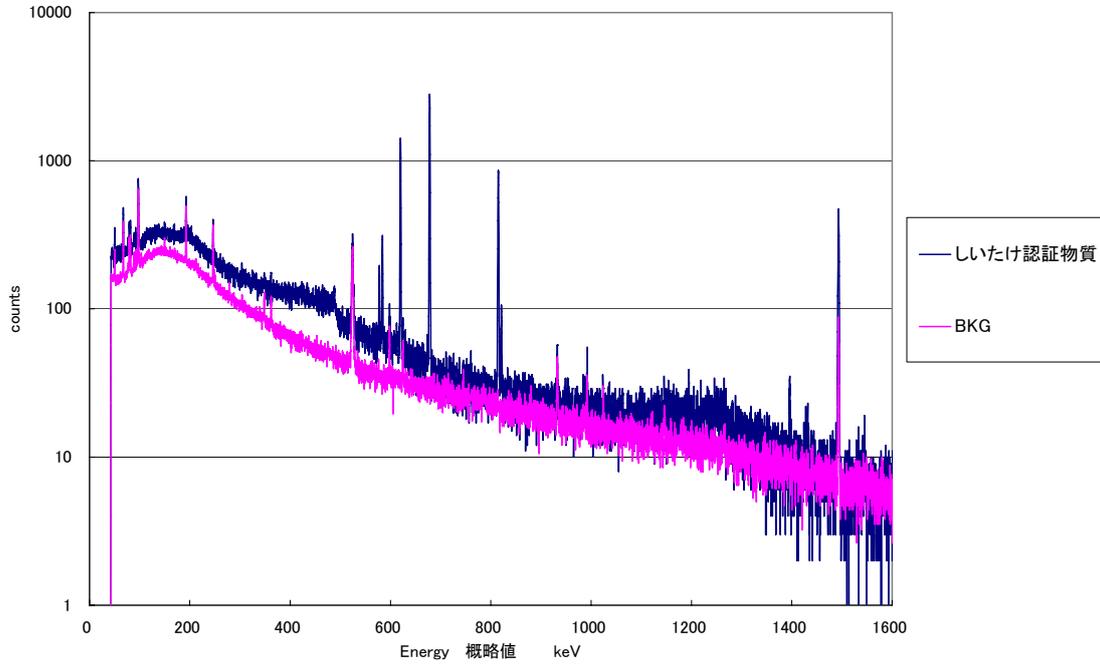
Cs-134 796 keV



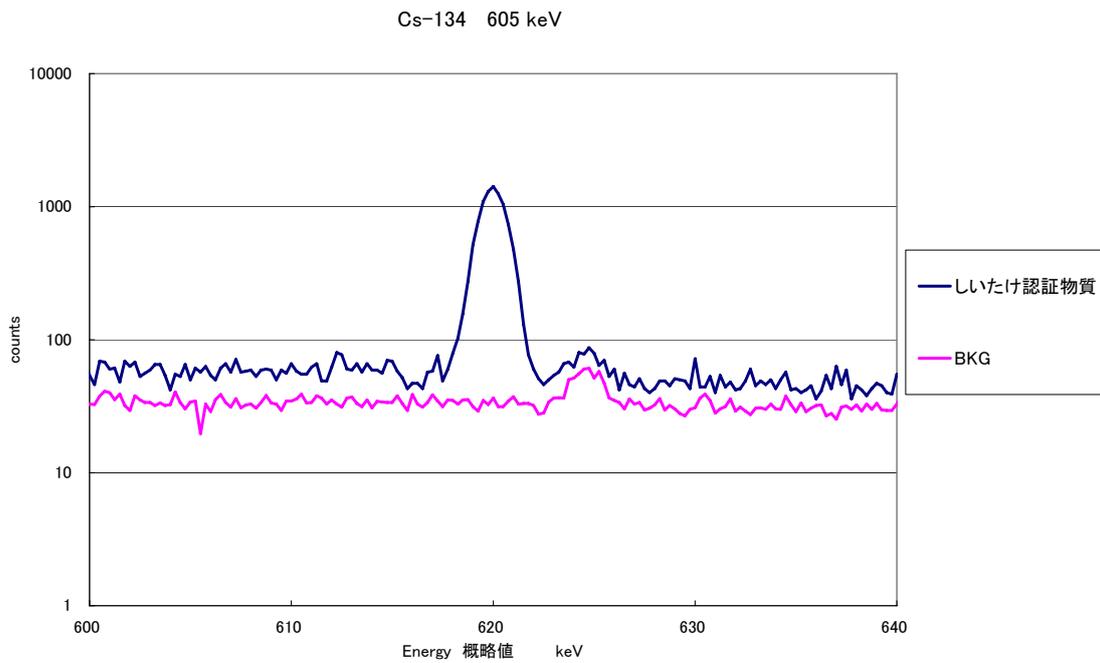
K-40 1460 keV



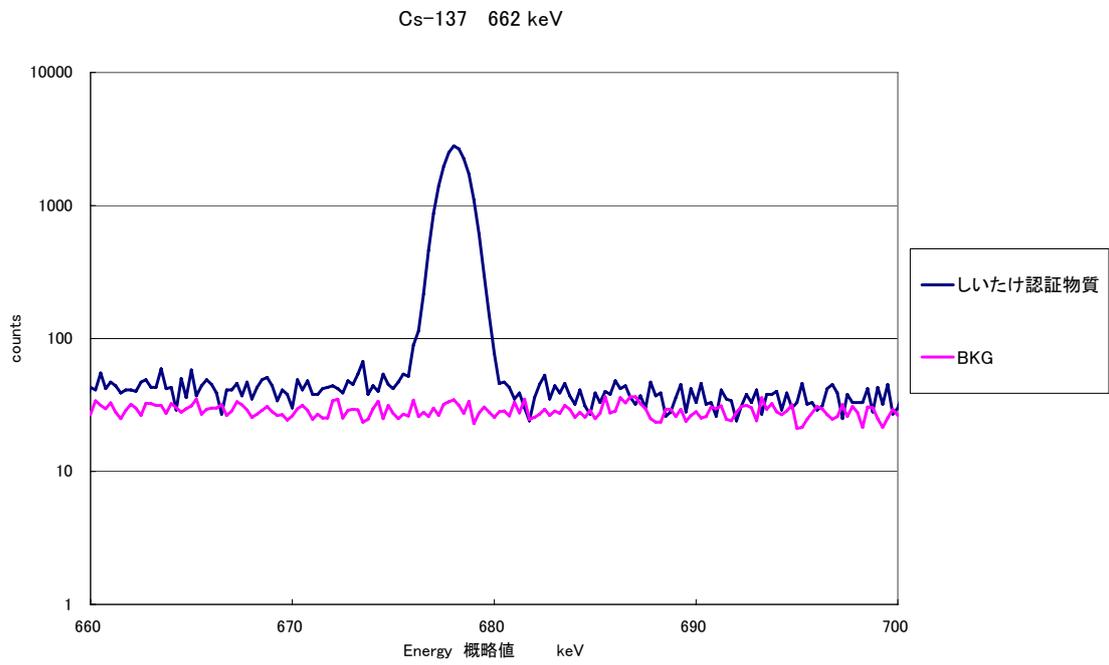
Lab 17 測定時間 試料あり : 330 080 s
試料なし : 1 124 665 s (330 080 s に換算表示)



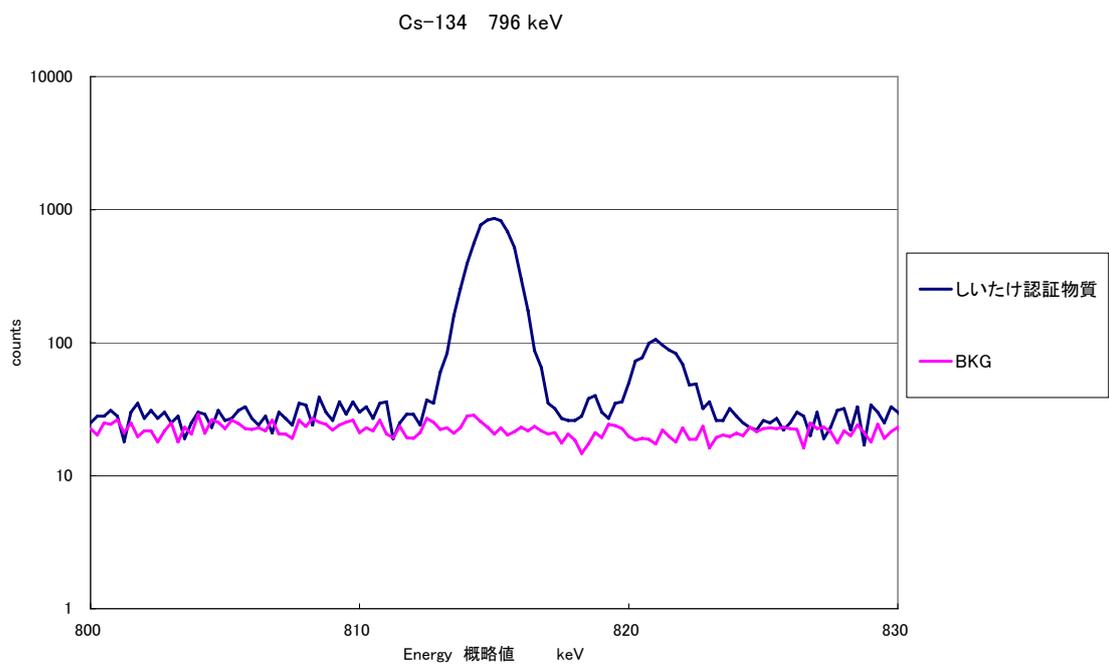
Cs-134 605 keV



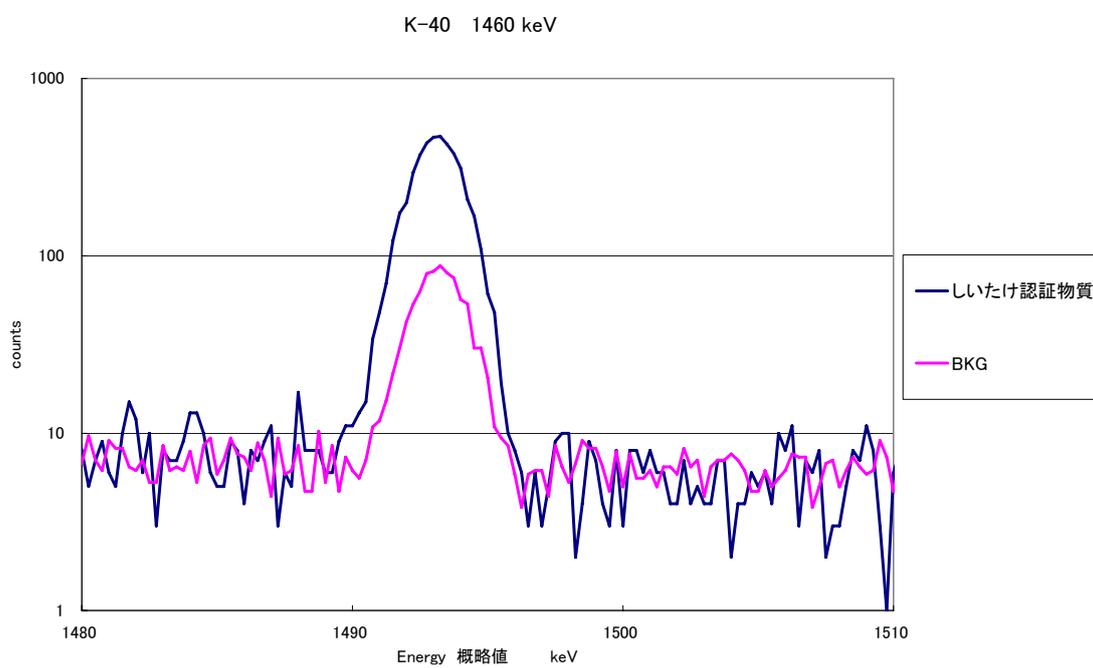
Cs-137 662 keV



Cs-134 796 keV



K-40 1460 keV



The Japan Society for Analytical Chemistry

日本分析化学会

認証書

Certified Reference Material

JSAC 0771 (低濃度, U8 容器)
 JSAC 0772 (低濃度, 100 mL 容器)
 JSAC 0773 (低濃度, 1 L 容器)

しいたけ認証標準物質 (粉末状, 低濃度) 放射能分析用

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

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

認証値 **基準日時 (日本時間)** **2013 年 12 月 1 日 0 時 0 分 0 秒**

標準物質 番号	成分	放射能濃度 ^{注1)} Bq/kg	拡張不確かさ ($k=2$) ^{注2)} Bq/kg	室間再現 標準偏差 (SD) ^{注3)} Bq/kg
JSAC 0771 JSAC 0772 JSAC 0773	^{134}Cs	99	9	6
	^{137}Cs	233	20	13
	^{40}K	707	53	33

注1) 認証値は、水分を含んだ試料質量をもとに計算している。

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

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

使用方法と使用上の注意

1. JSAC 0771 は、試料 30.0 g を U8 容器(内径 48 mm)に充てんした後、中蓋を入れ、上蓋で

- 固定されている。容器を故意に振動・転倒させて試料を攪拌することを避ける。
2. U8 容器に充てんした試料の高さは 50 mm であるが、必要に応じて高さを測定することを推奨する。
 3. JSAC 0772 及び JSAC 0773 は適切な放射能測定用の容器に詰めかえて用いる。採取量は 30 g 以上とし、測定容器に詰めた試料の質量を精確に測定し、記録する。
 4. 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均質に充てんする。
 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乾燥しいたけ及び汚染の無い乾燥しいたけを、それぞれ連続粉碎を行える製粉機及び電磁振動ふるい分け器を用いて粉末状に粉碎、1 mm 以下にふるい分けした後、十分な均質性が得られるように混合し、U8 容器(30.0 g)、100 mL 容器(約 30 g)、1 L 容器(約 300 g)に瓶詰めした。最後に、20 kGy の γ 線照射による滅菌を行い候補標準物質とした。

均質性試験は 12 試料を用いて、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs については放射能濃度の測定により、 ^{40}K については化学分析により実施した。評価された均質性は合成標準不確かさに含めた。

105 °C、5 時間の乾燥による試料の質量の減少を測定したところ、約 9.5 %の質量の減少が認められた。

認証値の決定方法

認証値は、14 試験所による Ge 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリ^{文献1)}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、U8 容器に充填した 150 個の試料からほぼ等間隔に抜き取り参加試験所に配付した。認証値は 14 の報告値の平均値であり(棄却したデータはなかった)、拡張不確かさは、共同実験の平均値、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 2014 年 1 月から 2 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、一部の試験所では ^{40}K について KOH 又は KCl が標準に用いられた。

認証日付 2014 年 3 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
 明治大学 理工学部
 京都大学原子炉実験所
 東京大学アイソトープ総合センター
 (公財)日本分析センター
 (公社)日本アイソトープ協会
 (一財)日本食品分析センター
 (独)放射線医学総合研究所
 (独)日本原子力研究開発機構
 (独)農業環境技術研究所
 エヌエス環境株式会社
 株式会社環境総合テクノス
 日本ハム株式会社中央研究所
 以上 14 機関

生産及び頒布機関 公益社団法人 日本分析化学会

調製・均質性試験機関 環境テクノス株式会社 (北九州市戸畑区中原新町 2-4)
 東京都市大学原子力研究所 (川崎市麻生区王禅寺 971)
 埼玉大学大学院理工学研究科 (さいたま市桜区下大久保 255)

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

作業委員会： 放射能標準物質作製委員会

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

受託事業 放射能環境標準物質開発委員会

	氏 名	所 属
リーダー	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)日本アイソトープ協会
事務局	柿田 和俊	(公社)日本分析化学会
事務局	小島 勇夫	(公社)日本分析化学会

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

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。