# 行政院原子能委員會放射性物料管理局 委託研究計畫研究報告

# 建立低放射性廢棄物量測不確定度評估規範與追溯體系草案

計畫編號:101FCMA006

報告編號:101FCMA006-02

執行單位:核能研究所

計畫主持人: 周鼎

子項工作負責人: 武及蘭

報告作者: 黃玶吉、葉俊賢、武及蘭

報告日期:中華民國 101 年 12 月

Establishing Standards to the Evaluation of Measurement Uncertainty and Traceability for the Low-Level Radwaste

by

Huang Ping-Ji, Chin-Hsien Yeh and Jyi-Lan Wuu

<u>Abstract</u>

The identification of radionuclide and radioactivity for radioactive waste is an important basis for waste classification. The reliability of radioactivity measurement techniques and the precision of measurement data depend on the operation of sound accreditation system. By following the requirement of ISO-17025, the Taiwan Accreditation Foundation (TAF) requests the shall evaluate measurement laboratories the uncertainties of their measurement quantities. This report established a traceability system for low-level radioactive waste measurement techniques and also studied the methods to evaluate the measurement uncertainties for the low-level radwaste measurement by following the "Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement" published by ISO. The evaluation of uncertainty includes A type uncertainty, B type uncertainty, and expanded uncertainty. The procedure of evaluation of uncertainty was explained in detail in this report, following the applicable examples.

Keywords: uncertainty, low-level radwaste, traceability system

Institute of Nuclear Energy Research

i

# 建立低放射性廢棄物量測不確定度評估規範與追溯體系草案

黄玶吉、葉俊賢、武及蘭

## 摘 要

放射性廢棄物之核種及活度是廢棄物分類的重要依據,而核種活度量測技術之可靠度與量測數據精確度有賴良好的認證制度之運作維持。財團法人全國認證基金會(Taiwan Accreditation Foundation, TAF),依據ISO-17025文件,要求量測實驗室應評估其量測不確定度。本文除了初步建立適合我國低放射性廢棄物活度量測之追溯體系,並且依據國際標準化組織(International Organization of Standards, ISO)出版的量測不確定度表示方式指引(Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement),說明評估量測不確定的方法,如A類不確定度、B類不確定度、擴充不確定度等,其次再逐項說明低放射性廢棄物量測之不確定度評估方法,並附上相關之範例。

關鍵字:不確定度、低放射性廢棄物、追溯體系

核能研究所 保健物理組

# 錄

1.	前言.		1
2.	量測:	追溯體系	2
3.	不確	定度評估	5
	3.0	名詞定義	5
	3.1	不確定度概述	7
		3.1.1 誤差與修正	7
		3.1.2 不確定度之來源	8
		3.1.3 不確定度之分量	8
		3.1.4 組合標準不確定度	9
		3.1.5 擴充不確定度	10
	3.2	不確定度評估之方法與程序	10
	3.3	量測結果之表示	14
		$3.3.1$ 以 $u_c(y)$ 表示量測結果之不確定度	14
		3.3.2 以U表示量測結果之不確定度	15
		3.3.3 量測結果之有效位數	16
4.	低放:	射性廢棄物量測系統不確定度評估	18
	4.1	移動式加馬活度量測系統(ISOCART)量測不確定	度評估18
5.	結語.		25
6.	參考:	文獻	26

# 圖 目 錄

圖 1	低放射性廢棄物量測追溯體	系	示	意圖	<u> </u>	4
-----	--------------	---	---	----	----------	---

# 表目錄

表	1	實驗室認證領域分類	3
表	2	加馬能譜量測不確定度來源與範圍值	18
表	3	能量校正用標準點射源不確定度	19
表	4	混合射源能量效率校正數據	22
表	5	ISOCART對低放射性廢棄物中 <sup>137</sup> Cs量測不確定度評估	24

# 1. 前言

行政院原子能委員會放射性物料管理局於 2002 年 12 月 25 日發佈「放射性物料管理法」(1),其中第 21 條規定所訂定之「低放射性廢棄物最終處置及其設施安全管理規則」(2)第三章中規定,低放射性廢棄物處置、貯存必須說明廢棄物來源及核種與活度,依核種與活度分為A、B、C及超C類,再依類別處置。由此可知廢棄物之核種及活度是廢棄物分類的重要依據,而核種活度量測技術之可靠度與量測數據精確度有賴良好認證制度之運作維持。放射性廢棄物量測追溯與認證對於廢棄物產生單位量測能力與公信力的展現、主管機關的有效管制及增進民眾對於廢棄物處置的接受度,扮演舉足輕重的角色,因此在國際上也漸漸地受到注視。由於各國的法規制度及社會民情之不同,如何配合我國現有量測標準追溯體系建立符合本土化的認證制度,實有賴政府主管機關的立法規範,以作為相關業者遵循之依據,並化解民眾對於低放射性廢棄物處置之疑慮。

財團法人全國認證基金會(Taiwan Accreditation Foundation,簡稱TAF),依據國際標準化組織(International Organization of Standards,簡稱ISO) ISO-17025 文件,要求參與認證的分析實驗室對量測不確定度的評估與表示,需採用ISO的量測不確定度指引所述方式<sup>(3)</sup>;同時也要求應將量測不確定度評估說明書面化<sup>(4)</sup>,以能展現對量測不確定度評估的正確性。該項政策已於1999年1月1日實施。

本報告內容為因應 TAF 對於量測不確定度的政策及符合法規的要求,進行低放射性廢棄物量測不確定度評估,並以「移動式加馬活度量測系統-ISOCART」為評估案例,相關之不確定度評估方法與評估結果可作為國內其他相關之放射性廢棄物量測系統之參考。

# 2. 量測追溯體系

財團法人全國認證基金會(TAF)係推動國內各類驗證機構、檢驗機構及實驗室各領域之國際認證,以建立國內驗證機構、檢驗機構及實驗室之品質與技術能力的評鑑標準之非營利組織。另外 TAF 為符合國際規範與維持ILAC 及 APLAC 相互承認協定以及因應未來對能力試驗要求,於各領域定期舉辦多項能力試驗,促使實驗室間相互比對的機會並提昇本身檢測技術能力,並運用外部能力試驗機構,提供評鑑認證實驗室的需求。

目前 TAF 之實驗室認證作業分為校正、測試、土木工程及醫學四個領域,各領域之次領域分類如表 1 所示。在測試之游離輻射領域中,目前已有人員體外劑量評估、環境試樣放射性核種分析、中低活度核種分析、一定活度或比活度以下廢棄物解除管制之加馬量測等認證項目。國內核設施運轉已有數十年的歷史,產生之低放射性廢棄物已有十餘萬桶,目前國內也積極進行低放射性廢棄物最終處置設施場址選址作業,配合低放射性廢棄物處置作業,建立低放射性廢棄物量測追溯體系亦是刻不容緩。量測追溯體系建置規劃為藉由製作校正標準桶、實驗室間比對或能力試驗,推動認證制度,建立低放射性廢棄物量測與國家標準的追溯鏈,再藉由國家標準追溯至國際標準,建置完整之追溯體系,並提昇國內之量測技術水準。

核能研究所近年來致力於發展放射性廢棄物活度量測標準,並與國家游離輻射標準實驗室合作,建立不同密度 55 加侖校正桶,並完成初步均勻性測試與不確定度評估。為建立低放射性廢棄物量測追溯體系,未來將依據 ISO/IEC 17025 測試與校正實驗室認證規範或其他相關規範,與國內其他核設施經營者或研究單位進行能力試驗或實驗室間比對實驗,藉以驗證各單

位之低放射性廢棄物量測能力;進而與 TAF 及各單位合作撰擬認證所需之規範,建置放射性廢棄物量測認證制度,使得我國在低放射性廢棄物量測能力,可追溯至國際間量測標準(如圖 1 所示)。

表1實驗室認證領域分類

領域	次領域
校正	長度、振動量/聲量、質量/力量、壓力量/真空量、溫度/溼度、 電量、電磁量、流量、化學量、時頻、游離輻射
測試	音響、生物、化學、電性、游離輻射、機械、非破壞、溫度與 熱、光學
土木工程	化學、營建
<u></u> 醫學	解剖病理學、臨床生化學、輸血醫學、血液學、臨床免疫血清學、臨床微生物、臨床毒物學、臨床鏡檢學、細胞遺傳學、遺傳學與分子病理學

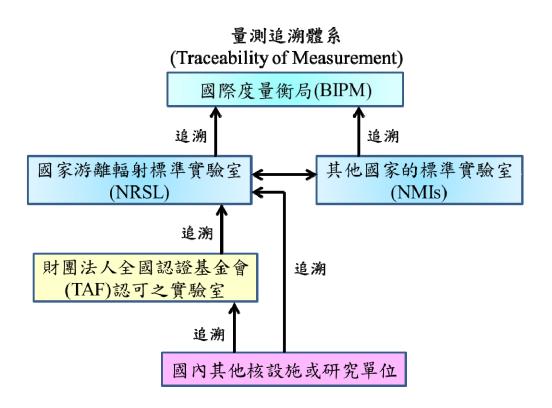


圖 1 低放射性廢棄物量測追溯體系示意圖

# 3. 不確定度評估

為取得TAF中校正與測試實驗室之認證,其中特別要求須對量測結果進行不確定度評估。本章節主要在介紹不確定度之基本概念、評估方法、釐清誤差與不確定度兩種概念及量測結果之表示方式等<sup>(5-6)</sup>。

## 3.0 名詞定義

1 校正(calibration)

在特定條件下,為確立量測儀器或量測系統的量測值(或實物量具、參考物質所代表的值)與對應的計量標準所實現的量值(參考值)之間關係的一組操作。

- 2 參考值(reference value)
  - 受測量於嚴謹定義下之最佳估計值。
- 4 誤差(error)

量測值與受測量之值(真值)的差異。

- 5 (量測的)不確定度[uncertainty (of measurement)] 與量測結果有關的參數,用來表示量測結果的離散程度。
- 6 標準不確定度(standard uncertainty,  $u_i$ )

  量測結果的不確定度,以一倍標準差表示。

7 (標準不確定度之)A 類評估方法[Type A evaluation (of standard uncertainty)]

藉由一系列觀測值的統計分析,計算標準不確定度的方法。

- 8 A 類標準不確定度(Type A standard uncertainty) 以 A 類評估方法所得之不確定度。
- 9 (標準不確定度之)B 類評估方法[Type B evaluation (of standard uncertainty)]

非藉由一系列觀測值的統計分析,計算標準不確定度的方法。

- 10 B 類標準不確定度(Type B standard uncertainty) 以 B 類評估方法所得之不確定度。
- 11 組合標準不確定度(combined standard uncertainty,  $u_c$ )

  所有變異數或共變數分量與其加權值乘積之總和的正平方根。
- 12 相對組合標準不確定度(relative combined standard uncertainty) 組合標準不確定度 $u_c(y)$ 與量測值(y)之比值,亦即 $u_c(y)/y$ 。
- 13 擴充不確定度(expanded uncertainty, U) 定義量測結果區間的量,期望合理賦予量測值有較高的信賴之水準, 為組合標準不確定度與涵蓋係數之乘積。
- 14 擴充係數(coverage factor, k)

為組合標準不確定度乘數之因子,用以獲得涵蓋係數,通常涵蓋係數k在 $2\sim3$ 之間。

## 3.1 不確定度概述

量測之目的在決定受測量的值,因此依據所要求的準確度,量測從 適度的說明受測量、量測方法及量測過程開始。但通常量測結果僅表 示受測量的近似值或估計值,因此只有附上此估計值或近似值的不確 定度,用以表徵受測量可能存在的區間,此量測結果才屬完整。

#### 3.1.1 誤差與修正

量測方法的不完美,導致量測結果出現誤差(error)。由於待測量的值無法確切得知,因此誤差只是一種理想化的概念,亦無法確切得知。傳統上誤差可視為由隨機(random)誤差與系統(systematic)誤差兩個分量組成。隨機誤差是由未預料到的變化或影響量,隨時間和空間改變所致,這種改變導致受測量之重複觀測值的變異。量測結果的隨機誤差無法藉助修正加以補償,但可藉由增加觀測次數而減小,理論上假設經過無限多次的觀測取樣後,隨機誤差的期望值(expectation or expected value)可趨近於零。在此需注意,一系列觀測值的算術平均之標準差(standard deviation),並非此平均值的隨機誤差,基於誤差之定義與無法確切得知受測量的值,隨機誤差的值亦無法確切得知。在本指引中「誤差」與「不確定度」兩個術語,所代表的是兩個完全不同的概念,而非同義詞,不應將他們混淆或誤用。

系統誤差與隨機誤差同樣無法完全去除,通常只能降低。假設一可被認知且影響量測結果的系統效應,其影響量大於所要求之準確度 (accuracy)時,則可用適當的估計修正值或修正因子予以補償,理論上假設經過修正後,系統誤差的期望值可為零。在此需注意,用以補償系統效應的估計修正值或修正因子的不確定度,並不是通常稱為偏差(bias) 的系統誤差,此不確定度是對系統效應修正值或修正因子不完全瞭解所

造成的量測結果之不確定度的度量。就如同隨機誤差般,系統誤差亦無法確切得知。

## 3.1.2 不確定度之來源

量測結果的不確定度,反應對受測量的值缺乏完整的瞭解,即使對 已確知的系統影響修正後,由於隨機效應與系統效應的不完善修正所帶 來的不確定度,此量測結果仍是一個對受測量的估計值,實物上我們對 於不確定度的來源,可分析如下:

- (1)受測量定義不完全。
- (2)對受測量定義瞭解不完善。
- (3)抽樣的量測結果可能不代表所定義之受測量。
- (4)在量測過程中,對環境條件的影響未充分理解或量測的環境狀況不理 想。
- (5)使用類比式儀器產生的讀取偏差。
- (6)量測儀器解析度或區分低限。
- (7)量測標準源與參考物質的值。
- (8)常數的值與其他來源得到的參數值,及數據簡化演算中所使用的值。
- (9)在實驗方法和過程中所用的假設和近似。
- (10)相同條件下受測量之重複觀察值的變異。

這些不確定度來源之間可能相互關連,如(1)至(9)項可能對(10)項有 影響。在評估量測結果的不確定度時,不會考慮到未被察覺的系統效 應,此時亦將導致誤差的出現。

#### 3.1.3 不確定度之分量

依據ISO的量測不確定度表示方式指引 $^{(1)}$ 之建議,不確定度的分量依其評估的方法分為「A」和「B」兩類;而有別於傳統的依不確定度的

來源,將其分為「隨機」和「系統」兩類,因此「A」和「B」並非「隨機」和「系統」的代用詞。例如用A類評估法得到已知系統效應修正值的不確定度,在其他例子中可能採用B類評估法獲得,同理,隨機效應的不確定度亦可能由A類或B類評估法得到。再則依傳統的分類法分析不確定度時常有含糊不清的狀況,例如甲量測結果不確定度的隨機分量;當使用甲量測結果作為乙量測的輸入數據時,甲量測結果不確定度的隨機分量,可能成為乙量測結果不確定度的系統分量。若依不確定度評估的方法作分類而非依其來源作分類,則可避免這種含糊不清的狀況。

將不確定度分為A類與B類之目的,在於說明評估不確定度分量的兩種途徑,且僅是便於研究而已,並非執意表明兩種評估途徑得到的分量在本質上存有差異,此兩種評估方法的基礎均基於機率分佈,用任一方法得到的不確定度分量,都可用變異數或標準差來量化。

# 3.1.3.1 不確定度之A類評估法

以A類評估法得到的不確定度分量,簡稱為A類標準不確定度, 是計算一系列重複觀測值變異數(variance)的正平方根,亦即根據從觀 測到的頻率分佈 (frequency distribution) 導出的機率密度函數 (probability density function)求得A類標準不確定度。

# 3.1.3.2 不確定度之B類評估法

對於以B類評估法得到的不確定度分量,簡稱為B類標準不確定度,可用已有的知識估計其標準差,亦即根據對事件即將發生的相信程度為依據的假設機率密度,求出B類標準不確定度。

# 3.1.4 組合標準不確定度

量測結果的總不確定度稱為組合標準不確定度,以符號uc表示,是

用不確定度傳播定律計算出的標準差估計值,其等於總變異數(所有變異數和共變數分量的和)的正平方根。

#### 3.1.5 擴充不確定度

為滿足工、商業以及健康和安全領域之要求,用組合標準不確定度  $u_c$ 乘以涵蓋係數k(通常在2至3範圍內),得到擴充不確定度U。其用途是提供量測結果一個區間,使其對受測量的值有較高的涵蓋機率。雖然本指引中提供了不確定度的評估架構,但它仍不能取代縝密的思考、知識上的坦誠和專業技術。不確定度的評估並非一項日常工作,亦非純數學工作;而是與量測性質、方法及過程是否詳盡瞭解有密切關係。量測不確定度的品質與效用,則取決於對所有不確定度貢獻因數的瞭解、分析與整體考量。

# 3.2 不確定度評估之方法與程序

不確定度之評估由定義受測量開始,其方法與程序如下:

## (1)定義受測量 Y

通常Y無法直接量測,但可藉由與各觀察量或輸入量 $X_i$ 構成的函數關係式來獲得,若以Y的估計值y及 $X_i$ 的估計輸入值  $x_i$ 表示,則估計值y可寫成:

$$Y = f(x_1, x_2, x_3, ..., x_n)$$
(3-1)

此處  $x_1, x_2, \dots, x_n$  本身可視為受測量,或其他與系統效應修正相關的量。

## (2)評估各因子 A 類與 B 類標準不確定度

為了對各因子能進行不確定度評估工作,必須先瞭解標準不確定度的 A

類和 B 類評估方法。

#### ● 標準不確定度的 A 類評估法

對一個隨機變化的量 $x_i$ ,在相同條件下重複觀察n次的量 $x_i$ ,此時估計 $x_i$ 期望值最便利的方法,即是計算其算術平均值 $x_i$ ,如下式:

$$\overline{\chi}_i = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \chi_{ij}$$
 (3-2)

在重複觀測實驗中,觀察量 $x_i$ 隨機變化,其試驗標準差 $s(x_i)$ 可以經下式計算而得。

$$\sigma(\mathbf{x}_{i}) = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{j=1}^{n} \left( \mathbf{x}_{ij} - \overline{\mathbf{x}_{i}} \right)^{2}}$$
 (3-3)

則 $x_i$ 平均值之試驗標準差的最佳估計值 $s(x_i)$ ,可以公式(3-4)計算而得,此即估計值 $x_i$ 之A類標準不確定度。

$$\sigma(\overline{x_i}) = \frac{\sigma(x_i)}{\sqrt{n}} \tag{3-4}$$

#### ● 標準不確定度的 B 類評估法

對一個非以重複觀察得到的量x<sub>i</sub>,其不確定度需利用x<sub>i</sub>可能變化的全部資訊進行判斷,這些資訊可能包括以往的量測數據、對材料性質及儀器性能的相關經驗知識、製造說明書、校正與其他證明書的資料與參考手冊對引用資料所附的不確定度等。下面舉幾個例子,用來方便瞭解如何評估B類標準不確定度。

不確定度 $u(M_s)=240\times10^{-6}\,\mathrm{g}$ ,涵蓋三倍標準差。則其B 類標準不確定度為 $(240\times10^{-6}\,\mathrm{g})/3=80\times10^{-6}\,\mathrm{g}$ 。相對標準不確定度 $u(M_s)/M_s=80\times10^{-9}$ 。

「例 3-2」在一電阻量測的校正報告中,其結果有如下之陳述:  $23^{\circ}$ C 下標準電阻值  $10\Omega$ ,不確定度  $129\times10^{-6}\Omega$ ,涵蓋 99%信賴之水準。

則其B 類標準不確定度為 $(129\times10^{-6}\,\Omega)/2.58=50\times10^{-6}\,\Omega$ , 相對標準不確定度 $=5.0\times10^{-6}\,\circ$ 

(註:在未特別指明使用何種分佈表示信賴之水準(level of confidence)時,可直接使用常態分佈評估此信賴之水準相對應的涵蓋係數,例如90%、95%與99%信賴之水準相對應之涵蓋係數分別為1.64、1.96與2.58。)

# (3)組合標準不確定度之導出

若公式(3-1)中所有的觀察量 $x_i$ 皆相互獨立,則依據不確定度傳播定律,可將組合標準不確定度 $u_c(y)$ =寫成下式,

$$\mathcal{U}_c(y) = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial \chi_i}\right)^2 u^2(x_i)}$$
 (3-5)

其中 $u(x_i)$ 為觀察量 $x_i$ 以A類評估法及B類評估法所計算出的標準不確定度。舉例說明如下:

「例 3-3」污染偵檢器對某污染面之活度量測結果可表示成 $A_0 = \overline{m} + \triangle A$ ,其中 $\overline{m}$ 為多次量測之平均值,並依公式(3-4) 計算出標準不確定度為

55 Bq (A類標準不確定度), $\triangle$ A為校正報告所附與之修正值其不確定度為 34 Bq(B類標準不確定度),求量測結果 $A_0$ 之組合標準不確定度如下: $\pi$ A<sub>0</sub>之偏微分, $\partial$ A<sub>0</sub>/ $\partial$ m=1, $\partial$ A<sub>0</sub>/ $\partial$ ( $\Delta$ A)=1,

$$u_c(A_0) = \sqrt{u^2(\overline{m}) + u^2(\Delta A)} = \sqrt{55^2 + 34^2} = 65 \text{ Bq}$$

「例 3-4」當待測量y表示為各獨立觀察量 $x_i$ 的連乘積時,如公式(3-6),其中 c為常數, $p_i$  為乘方可為正或負值。以相對標準不確定度 $u(x_i)/x_i$  如公式(3-7)表示組合標準不確定度時,相對組合標準不確定度之 平方即為各分項相對標準不確定度之平方和,會比較簡潔並方便計算。

$$y=c x_1^{P_1}.x_2^{P_2}....x_n^{P_n}$$
(3-6)

$$\frac{u_c(y)}{y} = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left[ \frac{P_i u(x_i)}{x_i} \right]^2}$$
 (3-7)

 $u(x_i)/x_i$  為各觀察量之相對標準不確定度,通常可用百分比(%)表示。

# (4)決定擴充不確定度U

組合標準不確定度u<sub>c</sub>(y)已普遍用於表示量測結果的不確定度,但在某些工業、商業、法規、衛生及安全的應用或領域上,常需要量測結果的不確定度所給予的區間,對受測量之值有一較高且合理的涵蓋比例。為滿足此一需求而對不確定度所做之額外的度量稱為擴充不確定度,並以符

號U表示。擴充不確定度與組合標準不確定度間之關係如下式,

$$U = k \cdot u_{c}(y) \tag{3-8}$$

其中k為涵蓋係數。

則量測結果可簡單表示成 $Y = y \pm U$ 。涵蓋係數 k 為一常數,其值的選擇以區間(y - U)至(y + U)的信賴之水準為依據,通常的值為 2 至 3 之間。從理論上來說人們希望明確說明與該區間有關的信賴之水準,但因需要全面瞭解由量測結果 $(y - Y)/u_c(y)$ 所架構的機率分佈,因此實際上做起來並不容易。在實用上,若假設此分佈為近似常態機率分佈,則定k = 2 時,此區間信賴之水準約為 95;k = 3 時,信賴之水準約為 99。

#### 3.3 量測結果之表示

當報告一個量測結果及其不確定度時,所需資訊的量視其用途而定, 然提供多量的資訊勝於資訊不足,例如提供:

- (1) 由實驗觀測值與輸入數據計算量測結果與其不確定度的方法;
- (2) 列出所有不確定度組成及評估程序;
- (3) 清楚描述數據處理程序,使得報告結果之計算可以重複;
- (4) 列出所有修正因子、常數與他們的來源等。並自問「是否已提供了足 夠的資訊?日後有新的數據可用時,此結果是否可以據此更新?」

# 3.3.1 以 $u_c(y)$ 表示量測結果之不確定度

量測結果的不確定度為組合標準不確定度 $u_c(y)$ 時,需提供下列資訊:

(1) 描述受測量 Y 之定義,

- (2) 提供關係函數 $Y = f(X_1, X_2, X_3, .....)$ ,
- (3) 提供每一輸入估計值 $x_i$ 及其標準不確定度 $u(x_i)$ ,提供 $u(x_i)$  之自由度 與得到的方法,
- (4) 對所有輸入量提供共變數或相關係數及獲得方法,
- (5) 敘述受測量Y之估計值y及其組合標準不確定度 $u_c(y)$ , 並提供其單位,
- (6) 必要時可提供相對標準不確定度,若認為有助於日後涵蓋係數之計 算或有助於了解量測過程,及對使用量測結果者合適的話,可再提 供
- (7) 估計的有效自由度(effective degrees of freedom)  $v_{eff}$ ,
- (8) A類及B類之組合標準不確定度 $u_cA(y)$ 與 $u_cB(y)$ ,及其估計的有效自由度 $v_{effA}$ 與 $v_{effB}$ 。

以組合標準不確定度 $u_c(y)$ 報告量測結果時,其書寫方式可有四種,舉例說明如下:

- (1)  $m_s = 100.02147 \,\mathrm{g}$ ,  $u_c = 0.00035 \,\mathrm{g}$
- $(2) m_s = 100.02147(35) g$
- (3)  $m_s = 100.02147(0.00035)$  g
- $(4) \, m_s = (100.02147 \pm 0.00035) \, \mathrm{g}$  , 其中 0.00035 為 $u_c$  而非信賴區間。

以上四種寫法之表示意義皆是量測結果 $m_s$ 為 100.02147 g的標準砝碼,其組合標準不確定度 $u_s$ 為 0.00035 g。

# 3.3.2 以U表示量測結果之不確定度

當量測結果之不確定度以擴充不確定度U表示時,需提供下列資

訊:

- (1) 描述受測量 Y 之定義,
- (2) 提供關係函數 $Y = f(X_1, X_2, X_3, ....)$
- (3) 提供每一輸入估計值 $x_i$ 及其標準不確定度  $u(x_i)$ ,提供 $u(x_i)$  之自由度 與得到方法,
- (4) 對所有輸入量提供共變數或相關係數及獲得方法,
- (5) 敘述受測量以  $Y=y\pm U$  表示, 並提供其單位,
- (6) 必要時可提供相對擴充不確定度,
- (7) 提供用來得到  $U \geq k$  值,及信賴之水準。

以擴充不確定度表示量測結果時(若 $U \cdot u_c$  及k已在文件中定義),其數據書寫方式宜以下列方式描述:  $m_s = (100.02147 \pm 0.00079)$  g

# 3.3.3 量測結果之有效位數

量測結果之 $u_c(y)$ 或U [還有輸入估計值之標準差 $u(x_i)$ ]其數值之位數不宜過多,建議取兩位有效數字即可,並採無條件進位方式處理,亦即當第 3 位數字不是 0 時則無條件進位,若為 0 則第 3 位以下全部捨去,例如  $u_c(y)=26.443$  m應修整為 $u_c(y)=27$  m, $u_c(y)=28.051$  kHz 應修整為 $u_c(y)=28$  kHz。

量測結果之數值的位數則依不確定度之位數歸整,例如原始量測結果 $m_s$ =100.02146621 g,U=0.0007835 g,應將結果歸整成U=0.00079 g, $m_s$ =100.02147 g,亦即 $m_s$ =(100.02147±0.00079) g。若相關修整係數之絕對值接近 1 時,建議給 3 位有效數字;例如電量計修正因子C=0.999763,U=0.012435,應修整為 U=0.0125,C=0.9998。

在某些數據處理運算的過程中,宜額外保留足夠的位數,以避免數據於接續計算的狀況下產生四捨五入的誤差。

# 4. 低放射性廢棄物量測系統不確定度評估

為因應 TAF 對於量測不確定度的政策及符合法規的要求,進行低放射性廢棄物量測不確定度評估,本研究則以「移動式加馬活度量測系統-ISOCART」針對低放射性水泥固化桶量測結果進行不確定度評估。

## 4.1 移動式加馬活度量測系統(ISOCART)量測不確定度評估

依前述不確定度評估之方法與程序進行評估,以及參考ANSIN42.14-1991之規範<sup>(7)</sup>所提供項目進行不確定度評估(如表 2 所示)。本加馬活度計測系統對低放射性廢棄物中<sup>137</sup>Cs量測不確定度結果如表 5,其擴充不確定度(k=1)為 11.0%;不確定度評估項目說明如下:

表 2 加馬能譜量測不確定度來源與範圍值

不確定度來源	一般範圍
標準射源活度	0.1-2.0
標準射源分裝	0.1-3.0
樣品能峰淨計數	0.1-30.0
背景變動率	0.0-100.0
不同介質下光子衰減率	0.0-50.0
射源-接受器幾何形狀	0.1-10.0
量測系統計時器	0.0-0.5
脈衝堆疊	0.0-30.0
串級總和	0.0-100.0
標準射源衰變	0.0-5.0
標準射源粒子發射率	0.1-20.0
全能量峰效率	0.5-15.0

# (1) 標準射源

#### • 原廠提供

依據原廠提供混合射源( $^{241}$ Am、 $^{109}$ Cd、 $^{57}$ Co、 $^{139}$ Ce、 $^{203}$ Hg、 $^{113}$ Sn、 $^{137}$ Cs、 $^{88}$ Y、 $^{60}$ Co)參考資料,如表 3 所示。其最大相對標準不確定度為 2.3 %。

表 3 能量校正用標準點射源不確定度

			Master		Unc	ertaint	7.%	
	Gamma-Ray	Half-Life,	Source*	This Source	Ty	be		Calibration
Nuclide	Energy (keV)	Days	yps/gram	ips	u,	Li <sub>E</sub>	U	Method
Am-241	59.5	158007	***************************************	2.018E+03	0.1	1.7	3.5	4n LS
Cd-109	88.0	462.6	1.685E+05	2.828E+03	0.6	2.3	4.8	HPGe
Co-57	122.1	271.8	8.978E+04	1.507E+03	0.6	2.0	4.2	HPGe
Ce-139	165.9	137.6	1.262E+05	2.118E+03	0.5	1.9	3.9	HPGe
Hg-203	279.2	46.61	2.772E+05	4.653E+03	0.4	1.9	3.9	HPGe
Sn-113	391.7	115.1	1.763E+05	2.959E+03	0.4	1.9	3.9	HPGe
Cs-137	661.7	10983	1.143E+05	1.919E+03	0.6	1.9	4.0	HPGe
Y-88	898.0	106.6	4.264E+05	7.158E+03	0.4	1.9	3.9	HPGe
Co-60	1173.2	1925.2	2.107E+05	3.537E+03	0.5	1.9	3.9	HPGe
Co-60	1332.5	1925.2	2.110E+05	3.542E+03	0.5	1.9	3.9	HPGe
Y-88	1836.1	106.6	4.509E+05	7.569E+03	0.4	1.9	3.9	HPGe

<sup>\*</sup> Master Source refers to Analytics' 8-isotope mixture which is calibrated quarterly.

Calibration Methods:  $4\pi$  LS -  $4\pi$  Li Loquid Scintillation Counting, HPGe - High Purity Germanium Gamma-Ray Spectrometer, IC - Ionization Chamber. Uncertainty;  $\dot{U}$  - Relative expanded uncertainty, k=2. See NIST Technical Note 1297, "Guidelines for Evaluating and Expressing the Uncertainty of NIST Measurement Results."

# ● 射源衰變

由放射性物質衰變資料表(Table of Isotopes)  $^{(8)}$ 查得  $^{137}$ Cs之半衰期 為  $30.04 \pm 0.03$  年,因此其相對標準不確定度為  $(0.03/30.04) \times 100 \sim 0.1\%$ 。

#### ● 粒子發射率

光子分率係依據放射性物質衰變資料表(Table of Isotopes)<sup>(8)</sup>,查得

 $^{137}$ Cs中 661.65 keV能峰之分率為 85.1 ± 0.2 %, 因此其相對標準不確定度為  $(0.2/85.1) \times 100 \sim 0.3 \%$ 。

# (2) 樣品能峰淨計數

整桶加馬活度( $^{137}$ Cs)約 10000 kBq之低放射性廢棄物桶之整桶加馬活度量測結果顯示,總計數值( $A_G$ )為 59609 counts、淨計數值( $A_N$ ) 為 55487 counts與背景計數值( $A_B$ )為 4122 counts。各計數值之標準差分別為: $\sigma_G=(59609)^{1/2}$ 、 $\sigma_B=(4122)^{1/2}$ 與 $\sigma_N=(\sigma_G^2+\sigma_B^2)^{1/2}=253$ ,因此可求得其相對標準不確定度為( $\sigma_N/A_N$ ) × 100 = (253/55487) × 100 ~ 1.0%。

# (3) 背景變動率

整桶加馬活度( $^{137}$ Cs)約 10000 kBq之低放射性廢棄物桶之整桶加馬活度量測結果顯示,總計數值( $A_G$ )為 59609 counts、淨計數值( $A_N$ ) 為 55487 counts與背景計數值( $A_B$ )為 4122 counts。各計數值之標準差分別為: $\sigma_G=(59609)^{1/2}$ 、 $\sigma_B=(4122)^{1/2}$ 與 $\sigma_N=(\sigma_G^2+\sigma_B^2)^{1/2}=253$ ,因此可求得其相對標準不確定度為( $\sigma_B/A_N$ ) × 100 = (64.2/55487) × 100 ~ 0.1%。

#### (4) 量測距離

整桶加馬活度( $^{137}$ Cs)約 10000 kBq之低放射性廢棄物桶,於桶表面 105 公分處測得整桶加馬活度為  $2.076\times10^4$  Bq/kg,另外分別在軟體 設定中改變距離為 104 公分與 106 公分(假設最大量測距離誤差為  $\pm 1$  公分),得到整桶加馬活度分別為  $2.071\times10^4$  Bq/kg與  $2.082\times10^4$  Bq/kg,因此其相對標準不確定度為  $[(|2.071\times10^4-2.076\times10^4|+|2.082\times10^4-2.076\times10^4|)/2/2.076\times10^4]\times100\sim0.4\%$ 。

# (5) 長期穩定性

整桶加馬活度( $^{137}$ Cs)約 10000 kBq之低放射性廢棄物桶,於兩週內 共計測 7 次,計數值的標準差為 1654 counts、平均值為 56916 counts,因此其相對標準不確定度為 ( $^{1654/56916}$ ) × 100 ~ 3.0 %。

#### (6) 量測系統計時器

低放射性廢棄物桶量測時間為30分鐘,計時器參考國際公認石英震盪器之時間標準不確定度為一個月約一分鐘,其相對標準不確定度為30/(60×24×30)×100~0.1%

#### (7) 全能量峰效率

影響全能量峰效率之不確定度因素,大致可分為能量效率擬合曲線、介質密度、幾何形狀與活度計算方法。各個影響因子所貢獻不確定度大小,將在下面文章中討論。

對 55 加侖桶而言,整桶加馬活度計算軟體的選擇(例如ISOTOPIC-32)及輸入 ISOTOPIC 軟體中特定某些參數皆會影響全能量峰效率的標準不確定度的大小。下列將分別說明影響全能量峰效率之不確定度評估相關項目:

# (a) 能量效率擬合曲線

原廠利用已知活度之混合射源(<sup>241</sup>Am、<sup>109</sup>Cd、<sup>57</sup>Co、<sup>139</sup>Ce、<sup>203</sup>Hg、<sup>113</sup>Sn、<sup>137</sup>Cs、<sup>88</sup>Y、<sup>60</sup>Co),進行此純鍺偵檢器在不同光子能量下偵測效率量測,結果以多項式方式進行數據擬合、以得到能量效率擬合曲線,結果如表 4 所示。由表中數據顯示該擬合曲線之相對

# 標準不確定度小於 0.5%。

# 表 4 混合射源能量效率校正數據

Efficiency Calibration Fit Uncertainty = 0.4350 % Polynomial Coefficients: -0.275211 -7.879734 0.585786 -0.080732 0.004903 -0.000116

Efficiency Energy	Table Efficiency	Fit	Delta
59.54 88.03 122.06 165.85 279.19 391.69 661.66 898.06 1173.24	1.0834E-003 1.6451E-003 1.7297E-003 1.6477E-003 1.2557E-003 9.6037E-004 6.4700E-004 5.1061E-004 4.3200E-004	1.0835E-003 1.6439E-003 1.7311E-003 1.6503E-003 1.2459E-003 9.6678E-004 6.4608E-004 5.1666E-004 4.2688E-004	-0.00% 0.07% -0.08% -0.16% 0.78% -0.67% 0.14% -1.18%
1332.50 1836.08	3.9124E-004 3.0534E-004	3.8965E-004 3.0685E-004	0.41% -0.49%

Calibrati Isotope	ion Certi Energy		Table Halflife	Activity	GPS	Error	Date & Time
Am-241 Cd-109 Co-57 Ce-139 Hg-203 Sn-113 Cs-137 Y-88 Co-60 Co-60	122.06 165.85 279.19 391.69 661.66 898.06 1173.24 1332.50	3.60 85.54 79.90 81.50 64.00 85.21 92.66 99.90 99.98	1.58E+005 4.63E+002 2.72E+002 1.38E+002 4.66E+001 1.15E+002 1.10E+004 1.07E+002 1.93E+003 1.93E+003	5652.70 78556.00 1761.70 2650.80 5709.20 4623.40 2252.10 7725.00 3540.50 3542.70	2018.00 2828.00 1507.00 2118.00 4653.00 2959.00 1919.00 7158.00 3537.00 3542.00	3.50% 7/1/2009 4.80% 7/1/2009 4.20% 7/1/2009 3.90% 7/1/2009 3.90% 7/1/2009 4.00% 7/1/2009 3.90% 7/1/2009 3.90% 7/1/2009 3.90% 7/1/2009 3.90% 7/1/2009	12:00:00 PM 12:00:00 PM
Y-88	1836.08	99.35	1.07E+002	7618.50	7569.00	3.90% 7/1/2009	12:00:00 PM

# (b) 介質密度

由 35 桶低放射性廢棄物桶中,挑選整桶加馬活度最小一桶進行介 質密度不確定度評估。由於原廠提供電子磅秤之重量不確定度約 1.0 % (= 4 kg),因此將重量量測不確定度所造成介質密度不確定 度,輸入軟體中進行運算,例如: $D_0 = 400 \text{ kg}/210 \text{ L}, D_1 = (400-4)$ kg/210 L,  $D_2 = (400+4) kg/210 L$ , 分別求得整桶加馬活度為 $A_0 \cdot A_1$ 

與  $A_2$  。 因此其相對標準不確定度為 [( |  $A_1-A_0$  | + |  $A_2-A_0$  | )/2/ $A_0$ ] ×100 ~ 2.5 %。

# (c) 幾何形狀

當描繪物件幾何形狀時,原廠建議其相對標準不確定度為1.5%。

# (d) 計算方法

移動式加馬活度量測系統係利用 ISOTOPIC-32 軟體,推算量測物質之總體加馬活度,由原廠所提供資料得知此理論計算方法之相對標準不確定度為 9.6 %。

表 5 ISOCART對低放射性廢棄物中<sup>137</sup>Cs量測不確定度評估

分析項目	相對標準不確定度 (%			
	A 類	B類		
標準射源:				
a. 原廠提供		2.3		
b. 射源衰變		0.1		
c. 粒子發射率		0.3		
樣品能峰淨計數	1.0			
背景變動率	0.1			
量測距離	0.4			
長期穩定性	3.0			
量測系統計時器		0.1		
全能量峰效率:				
a.能量效率擬合曲線	0.5			
b.介質密度	2.5			
c.幾何形狀		1.5		
d.計算方法		9.6		
組合不確定度 (k=1)	1	1		

# 5. 結語

低放射性廢棄物活度量測過程中通常需經稱重、量測體積、計測等步驟,才能求得廢棄物中放射性核種的比活度,在這些過程中每一步驟都可能引入一些不確定度。評估分析結果的總不確定度就是要針對各別的分項分別評估其不確定度,然後再彙整成為組合不確定度,最後視信賴水平的需求,再乘以涵蓋係數,即可求得擴充不確定度。本報告敘述了不確定度可能的來源及評估的方法,以及移動式加馬活度量測系統之不確定度評估結果;然不確定度評估並非一單純的數學工作,整個評估是否完整與合理,與所從事的量測儀器與方法及每一步驟的過程是否詳細了解有密切的關係。因此實驗室對每一種分析結果的不確定度評估,仍需視其實際的方法與過程謹慎進行之。

另外以低放射性廢棄物核種活度量測技術而言,國內多數放射性廢棄物產生機構、廢棄物貯存/處置場及協助主管機關進行查驗之專業機關皆設置有放射性廢棄物活度量測系統,然而實驗室內部例行之儀器性能測試無法有效證明其量測結果之準確性與可追溯性,若能透過參與外部公正單位所舉辦之比較試驗或能力試驗來證明其量測技術與能力,將有助於有效落實放射性物質處置與安全管理。

# 6. 参考文獻

- 1 原子能委員會放射性物料管理局,放射性物料管理法,2002。
- 2 原子能委員會放射性物料管理局,低放射性廢棄物最終處置及其設施安全管理規則,2003。
- 3 International Organization for Standardization, 1995. Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement, ISO, Switzerland.
- 4 財團法人全國認證基金會(TAF),2005,測試結果量測不確定度評估指引,TAF-CNLA-RG 3(1)。
- 5 袁明程、蘇水華、李振弘、黃文松、逄筱芳、武及蘭、朱健豪、陳俊良、 邱垂煥, "輻射偵測儀器校正之不確定度評估指引",核能研究所保健物理 組,民國89年12月。
- 6 陳坤焙、葉善宏、黃文松、袁明程、李振弘,"人員體外劑量評估之不確 定度評估指引(草案)",國家游離輻射標準實驗室、核能研究所保健物 理組,民國92年5月。
- 7 ANSI N42.14-1991, "American National Standard for Calibration and Use of Germanium Spectrometers for the Measurement of Gamma-Ray Emission Rates of Radionuclides".
- 8 Richard, B. Firestone, "Table of Isotopes", 8th ed., John Wiley & Sons Inc.