

ALPS処理水第三者分析の取り組み

～透明性及び信頼性の高い分析に向けて～

相田 玲奈

大熊分析・研究センター
分析課

大熊分析・研究センターでは、東京電力福島第一原子力発電所(1F)の廃止措置に向けた固体廃棄物及び燃料デブリの性状把握等を通じた研究開発並びにALPS処理水の第三者分析を行う放射性物質分析・研究施設を整備/運用している

○施設管理棟(2018年3月から運用中)

居室及び分析のモックアップ等を行うワークショップを有する施設

○第1棟(2022年10月からホット運用中)

ガレキ類、伐採木、焼却灰、汚染水処理に伴い発生する二次廃棄物等の低中線量試料の分析及びALPS処理水の第三者分析を行う施設

○第2棟(建設準備中)

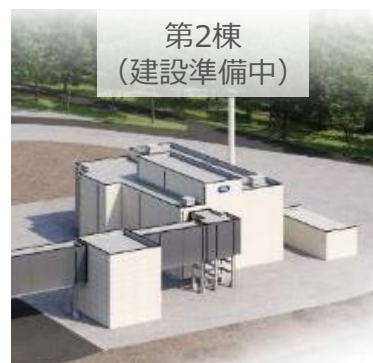
燃料デブリ、炉内構造物等の高線量廃棄物等の分析等を行う施設



施設管理棟
(2018年運用開始)



第1棟
(2022年運用開始)



第2棟
(建設準備中)



1F敷地全体配置図

放射性物質分析・研究施設

放射性物質分析・研究施設第1棟(第1棟)

- ガレキ類、伐採木、焼却灰、汚染水処理に伴い発生する二次廃棄物等の放射性廃棄物における処理処分の方策とその安全性に関する技術的な見通し等を得るため、低中線量($\leq 1\text{Sv/h}$)の固体廃棄物試料の分析等を実施
- ALPS処理水の海洋放出に関し、2021年8月24日の閣僚会議で示された政府方針を踏まえ、東京電力HDと独立した**第三者の立場で放出前のALPS処理水分析を実施**

○ 2022年6月24日竣工、2022年10月1日管理区域等設定

○ 放射性物質及びALPS処理水の分析について、放射性模擬試料等を用いた試験(ホット試験)を実施したのち、**2023年3月末に実試料に対する分析を開始**



第1棟の全景(2022年6月)



第1棟完成式後の内覧会
(2022年9月25日)

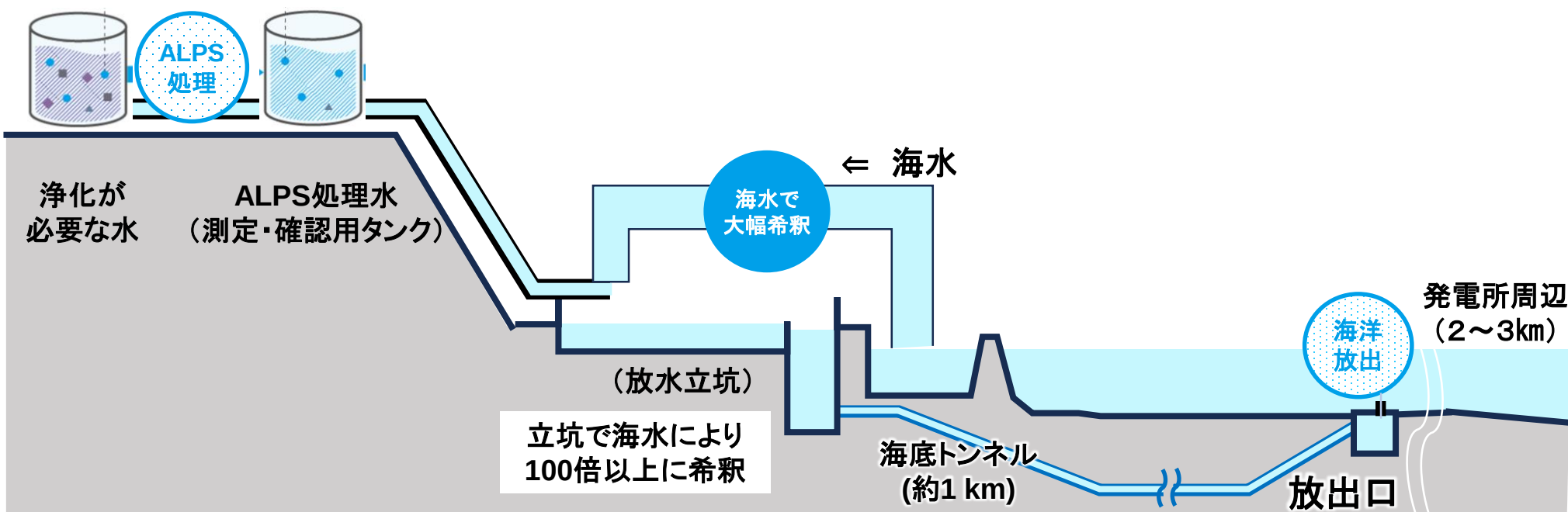


第1棟内でのホット試験

大熊分析・研究センター

東京電力とは独立した第三者の立場で分析を実施

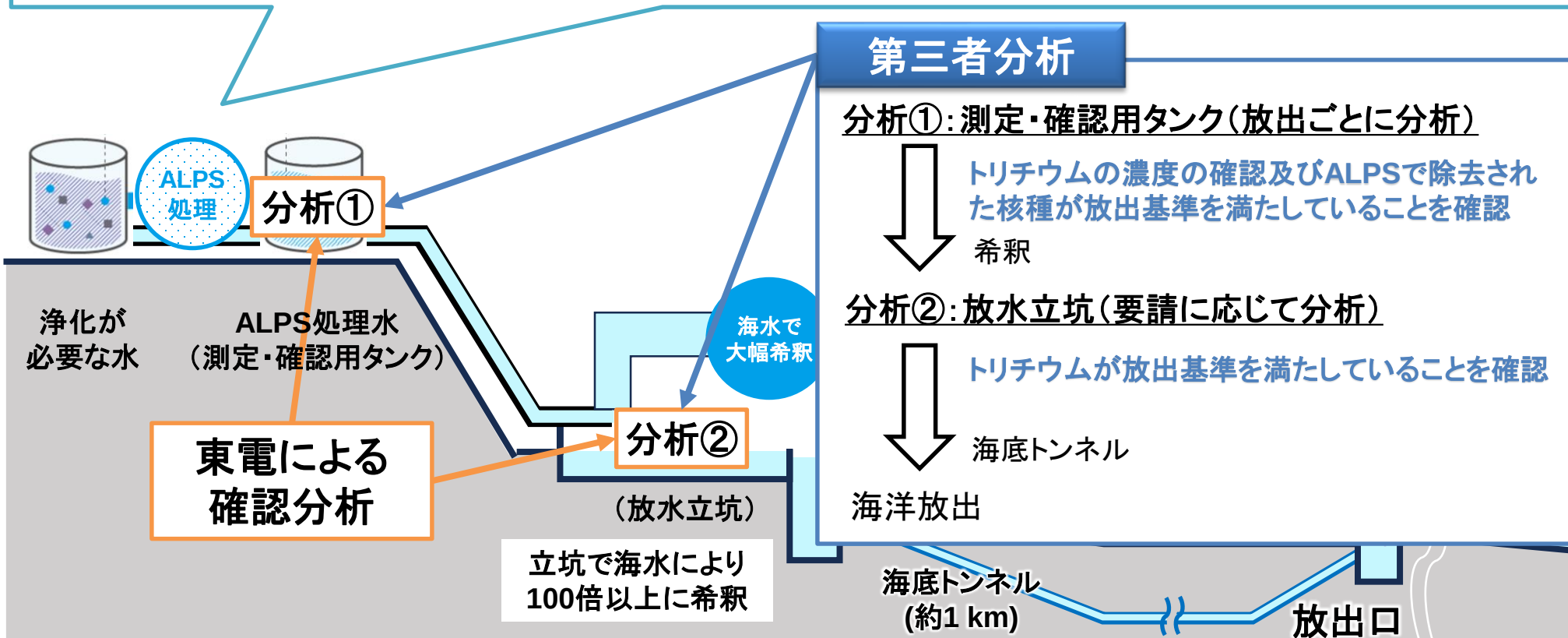
多核種除去設備（Advanced Liquid Processing System）・・・トリチウム以外の放射性物質（核種）を国の安全基準を満たすまで取り除くための設備



大熊分析・研究センター

東京電力とは独立した第三者の立場で分析を実施

多核種除去設備（Advanced Liquid Processing System）・・・**トリチウム以外の放射性物質（核種）**を国の安全基準を満たすまで取り除くための設備



合計69核種の放射能分析

- ◆ トリチウム濃度が放出基準を満たしていることを確認
- ◆ 30核種※¹については、放出基準(告示濃度比総和が1未満)を満たしていることを確認
- ◆ 38核種※²については、有意に存在していないことを確認

濃度の測定

H-3
水素-3, トリチウム

γ線測定で評価

β線測定

全αとして評価

ICP-MS測定

X線測定

放出基準(告示濃度比総和が1未満)を満足しているかを確認する核種(30核種)

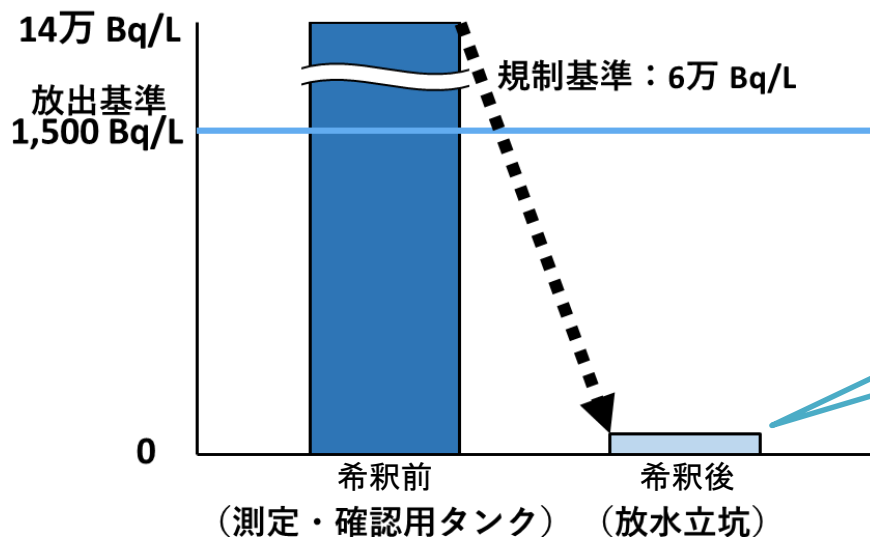
C-14 炭素-14	Y-90 イットリウム-90	Cs-134 セシウム-134	U-234 ウラン-234	Am-241 アメリシウム-241
Mn-54 マンガン-54	Tc-99 テクネチウム-99	Cs-137 セシウム-137	U-238 ウラン-238	Cm-244 キュリウム-244
Fe-55 鉄-55	Ru-106 ルテニウム-106	Ce-144 セリウム-144	Np-237 ネプツニウム-237	
Co-60 コバルト-60	Cd-113m カドミウム-113m	Pm-147 プロメチウム-147	Pu-238 プルトニウム-238	
Ni-63 ニッケル-63	Sb-125 アンチモン-125	Sm-151 サマリウム-151	Pu-239 プルトニウム-239	
Se-79 セレン-79	Te-125m テルル-125m	Eu-154 ユウロビウム-154	Pu-240 プルトニウム-240	
Sr-90 ストロンチウム-90	I-129 ヨウ素-129	Eu-155 ユウロビウム-155	Pu-241 プルトニウム-241	

有意に存在しないことを確認する核種(38核種)

Fe-59 鉄-59	Ru-103 ルテニウム-103	Sn-126 スズ-126	Cs-135 セシウム-135	Pm-146 プロメチウム-146	Am-243 アメリシウム-243
Co-58 コバルト-58	Rh-103m ロジウム-103m	Sb-124 アンチモン-124	Cs-136 セシウム-136	Pm-148 プロメチウム-148	Cm-242 キュリウム-242
Zn-65 亜鉛-65	Rh-106 ロジウム-106	Te-123m テルル-123m	Ba-137m バリウム-137m	Pm-148m プロメチウム-148m	Cm-243 キュリウム-243
Rb-86 ルビジウム-86	Ag-110m 銀-110m	Te-127 テルル-127	Ba-140 バリウム-140	Eu-152 ユウロビウム-152	
Sr-89 ストロンチウム-89	Cd-115m カドミウム-115m	Te-127m テルル-127m	Ce-141 セリウム-141	Gd-153 ガドリニウム-153	
Y-91 イットリウム-91	Sn-119m スズ-119m	Te-129 テルル-129	Pr-144 プラセオジム-144	Tb-160 テルビウム-160	
Nb-95 ニオブ-95	Sn-123 スズ-123	Te-129m テルル-129m	Pr-144m プラセオジム-144m	Am-242m アメリシウム-242m	

※1: 実施計画に定められたフローに基づき東京電力が選定した放出基準(規制基準値未満)を満足していることを確認する核種

※2: 風評抑制の観点から、有意に存在しないことを東京電力が自主的に確認する核種



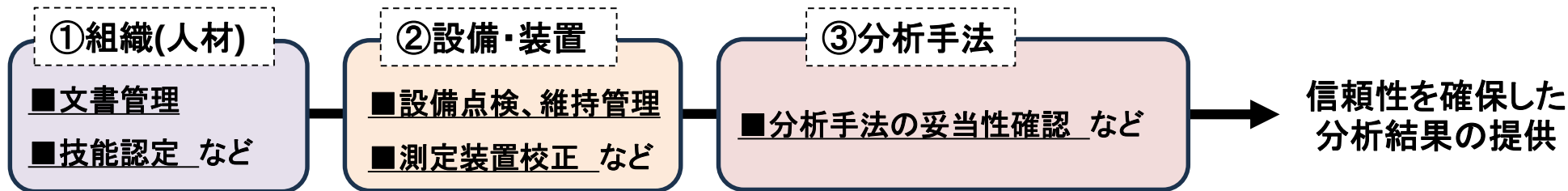
◆**放出基準(1,500 Bq/L)**を下回るまで、
海水で希釈されていることを確認する必要
がある

10(Bq/L)程度のトリチウムを
正確に測定できる能力の証明

ISO/IEC17025の認定を受け、
維持・管理をしている

ISO/IEC17025認定とは？

⇒正確な**測定結果**を生み出す能力があるかどうかを認定する



放出基準(告示濃度比総和が1未満)を
満足しているかを確認する核種

有意に存在しないことを確認する核種

C-14 炭素-14	Y-90 イットリウム-90	Cs-134 セシウム-134	U-234 ウラン-234	Am-241 アメリシウム-241	Y-91 イットリウム-91	Sn-119m スズ-119m	Te-129 テルル-129	Pr-144 プラセオジウム-144	Tb-160 テルビウム-160
Mn-54	Tc-99	Cs-137	U-238	Cm-244 キュリウム-244	Nb-95 ニオブ-95	Sn-123 スズ-123	Te-129m テルル-129m	Pr-144m プラセオジウム-144m	Am-242m アメリシウム-242m
Fe-55 鉄-55	Ru-106 ルテニウム-106	Sr-90 ストロンチウム-90	Np-237 ネプツニウム-237	Fe-59 鉄-59	Ru-103 ルテニウム-103	Sn-119 スズ-119	Te-127 テルル-127	Pr-148 プラセオジウム-148	Tb-160 テルビウム-160
Co-60 コバルト-60	Ni-63 ニッケル-63	Sb-125 アンチモン-125	Pu-238 プルトニウム-238	Co-58 コバルト-58	Rh-103m ロジウム-103m	Sn-117 スズ-117	Te-123m テルル-123m	Pr-148 プラセオジウム-148	Cm-242 キュリウム-242
Ni-63 ニッケル-63	Sb-125 アンチモン-125	Sm-151 サマリウム-151	Pu-239 プルトニウム-239	Zn-65 亜鉛-65	Rh-106 ロジウム-106	Te-123m テルル-123m	Ba-137m バリウム-137m	Pm-148m プロメチウム-148m	Cm-243 キュリウム-243
Se-79 セレン-79	Te-125m テルル-125m	Eu-154 ユウロピウム-154	Pu-240 プルトニウム-240	Rb-86 ルビジウム-86	Ag-110m 銀-110m	Te-127 テルル-127	Ba-140 バリウム-140	Eu-152 ユウロピウム-152	
Sr-90 ストロンチウム-90	I-129 ヨウ素-129	Eu-155 ユウロピウム-155	Pu-241 プルトニウム-241	Sr-89 ストロンチウム-89	Cd-115m カドミウム-115m	Te-127m テルル-127m	Ce-141 セリウム-141	Gd-153 ガドリニウム-153	

30核種

38核種

★ より低い濃度まで分析することを目標に設定 ★

C-14 炭素-14	Y-90 イットリウム-90	Cs-134 セシウム-134	U-234 ウラン-234	Am-241 アメリシウム-241	Y-91 イットリウム-91	Sn-119m スズ-119m	Te-129 テルル-129	Pr-144 プラセオジム-144	Tb-160 テルビウム-160
Mn-54 マンガン-54	Tc-99 テクネチウム-99	Cs-137 セシウム-137	U-238 ウラン-238	Cm-244 キュリウム-244	Nb-95 ニオブ-95	Sn-123 スズ-123	Te-129m テルル-129m	Pr-144m プラセオジム-144m	Am-242m アメリシウム-242m
Fe-55 鉄-55	Ru-106 ルテニウム-106	Ce-144 セリウム-144	Np-237 ネプツニウム-237	Fe-59 鉄-59	Ru-103 ルテニウム-103	Sn-126 スズ-126	Cs-135 セシウム-135	Pm-146 プロメチウム-146	Am-243 アメリシウム-243
Co-60 コバルト-60	Cd-113m カドミウム-113m	Pm-147 プロメチウム-147	68核種			Sb-124 アンチモン-124	Cs-136 セシウム-136	Pm-148 プロメチウム-148	Cm-242 キュリウム-242
Ni-63 ニッケル-63	Sb-125 アンチモン-125	Sm-151 サマリウム-151	Pu-239 プルトニウム-239	Zn-65 亜鉛-65	Rh-106 ロジウム-106	Te-123m テルル-123m	Ba-137m バリウム-137m	Pm-148m プロメチウム-148m	Cm-243 キュリウム-243
Se-79 セレン-79	Te-125m テルル-125m	Eu-154 ユウロピウム-154	Pu-240 プルトニウム-240	Rb-86 ルビジウム-86	Ag-110m 銀-110m	Te-127 テルル-127	Ba-140 バリウム-140	Eu-152 ユウロピウム-152	
Sr-90 ストロンチウム-90	I-129 ヨウ素-129	Eu-155 ユウロピウム-155	Pu-241 プルトニウム-241	Sr-89 ストロンチウム-89	Cd-115m カドミウム-115m	Te-127m テルル-127m	Ce-141 セリウム-141	Gd-153 ガドリニウム-153	

◆トリチウム以外の全68核種について、放出基準(告示濃度比総和が1未満)を満たすまで除去されていることを確認する能力



告示濃度比総和が1未満とは??

「告示濃度」とは、環境中に放出することができる放射性物質の濃度の上限値※

$$\text{告示濃度比} = \frac{\text{ALPS処理水中の放射能濃度 (Bq/L)}}{\text{告示濃度 (Bq/L)}}$$

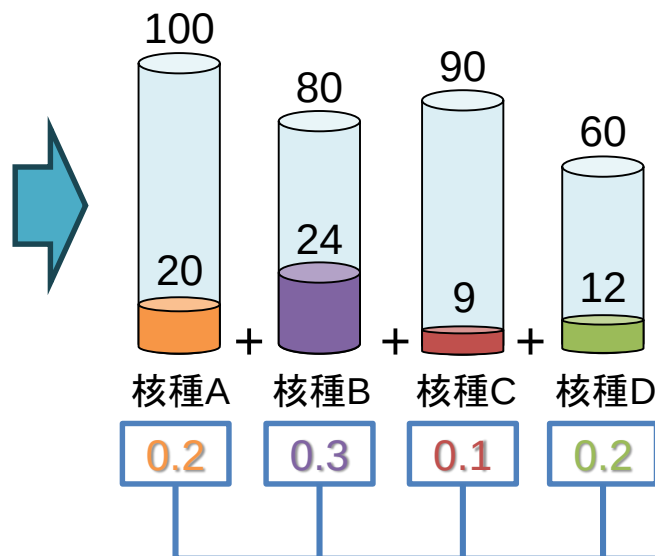
【告示濃度比の計算】

複数核種をまとめて評価する場合

告示濃度
100 (Bq/L)

放射能濃度
20 (Bq/L)

告示濃度比は
 $20 \div 100 = 0.2$



告示濃度比総和

核種ごとの放射能濃度に対する告示濃度に対する割合を足し合わせた値

$$0.2 + 0.3 + 0.1 + 0.2 = 0.8$$

◆放出基準(告示濃度比総和が1未満)を満たすまで除去されていることを確認する

核種1: C-14

核種2: Mn-54

・

・

・

・

・

・

Cs-137
(セシウム-137)

・

・

・

核種68: Cm-243

分析できる放射能濃度

1.8 (Bq/L)

告示濃度

90 (Bq/L)

告示濃度比

=

0.02

+

◆放出基準(告示濃度比総和が1未満)

告示濃度比総和

~~1.36~~

<

1

核種1: C-14

核種2: Mn-54

68核種の濃度がそれぞれの告示濃度の1/100より低いことを確認できれば、告示濃度比総和は1未満となる

分析できる放射能濃度

Cs-137
(セシウム-137)

0.9 (Bq/L)

告示濃度 90 (Bq/L)

告示濃度比

= 0.01

1/100の分析能力

核種68: Cm-243

◆放出基準(告示濃度比総和が1未満)

告示濃度比総和

0.68

 ≤ 1

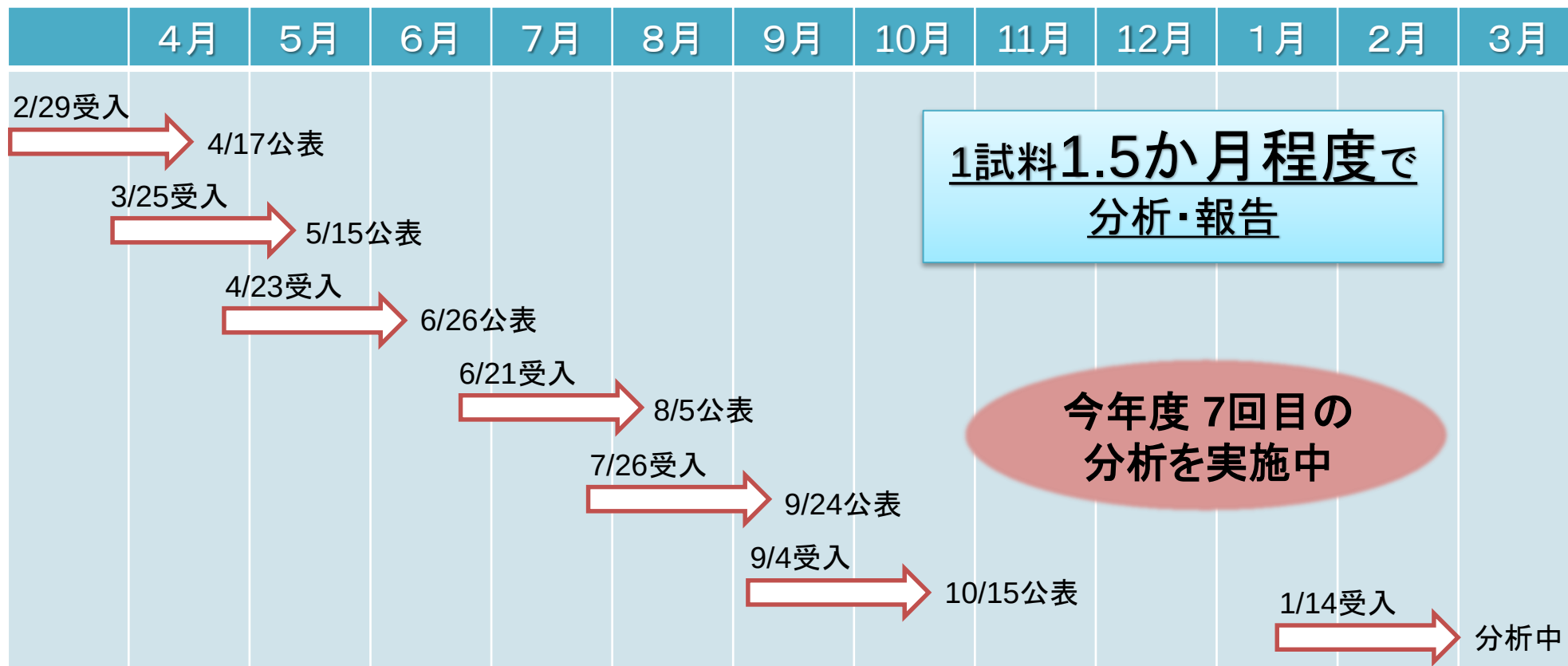
告示濃度の1/100程度まで分析できる能力

大熊分析・研究センターのALPS処理水分析能力

トリチウム分析・・・「10Bq/L程度まで、信頼性を確保して正確に分析する」

トリチウム以外の核種分析・・・「それぞれの告示濃度の1/100程度まで分析する」

<今年度の分析・報告実績>



ALPS処理水第三者分析の 立ち上げに向けて

処理水

分取

分析装置一例



γ線スペクトロメータ(γ線)



液体シンチレーションカウンタ(β線)



トリプル四重極誘導結合
プラズマ質量分析計

γ核種

γ線スペクトロメータ

一部核種は計算により評価

β核種

H-3

C-14

Cd-113^m, Ni-63

Tc-99

Se-79

I-129

Sr-89, Sr-90, Y-90

液体シンチレーション
カウンタ

トリプル四重極誘導結合
プラズマ質量分析計

β線スペクトロメータ

α核種

T-α (Pu, Am, Cm)

T-α (U, Np)

α線シンチレーション
カウンタ

一部核種は計算により評価

核種ごとに担当者を指定し、分担して分析を実施

処理水

分取

γ核種

γ線スペクトロメータ

一部核種は計算により評価

分析装置一例



γ線スペクトロメータ(γ線)



液体シンチレーションカウンタ(β線)

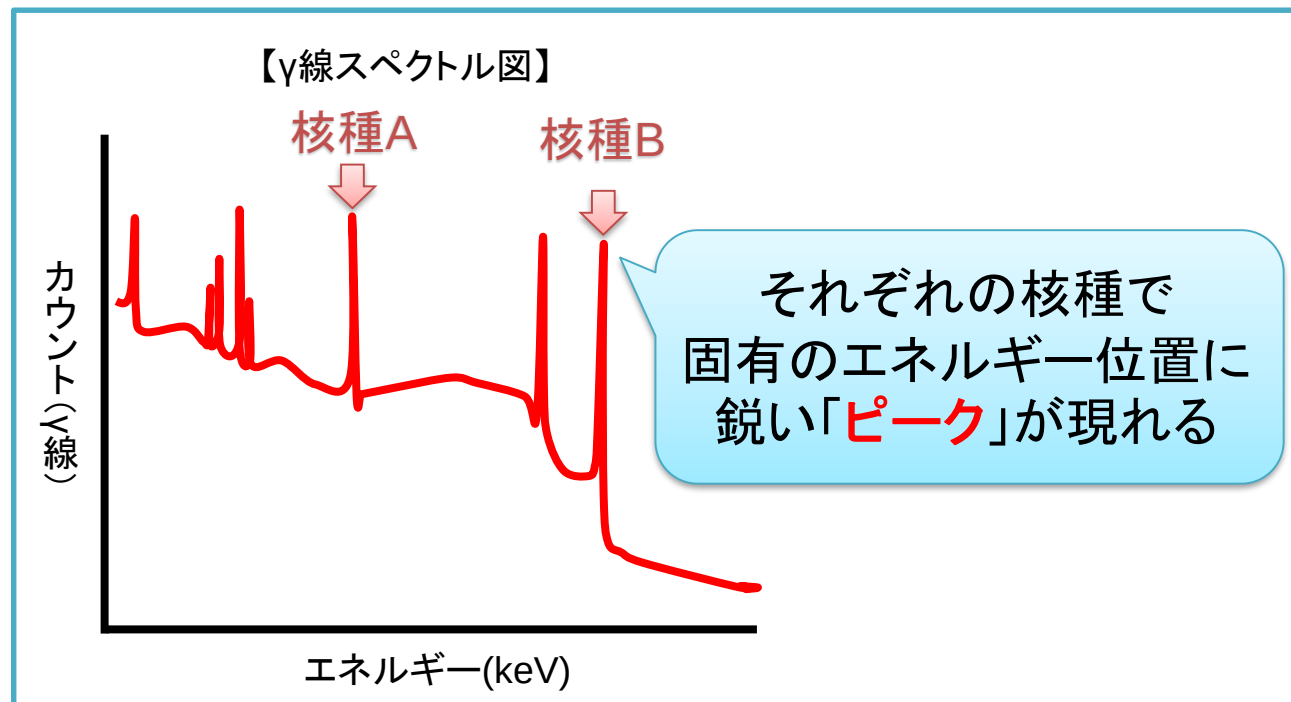


トリプル四重極誘導結合
プラズマ質量分析計

C-14 炭素-14	Y-90 イットリウム-90	Cs-134 セシウム-134	U-234 ウラン-234	Am-241 アメリシウム-241	Y-91 イットリウム-91	Sn-119m スズ-119m	Te-129 テルル-129	Pr-144 プラセオジム-144	Tb-160 テルビウム-160
Mn-54 マンガン-54	Tc-99 テクネチウム-99	Cs-137 セシウム-137	U-238 ウラン-238	Cm-244 キュリウム-244	Nb-95 ニオブ-95	Sn-123 スズ-123	Te-129m テルル-129m	Pr-144m プラセオジム-144m	Am-242m アメリシウム-242m
Fe-55 鉄-55	Ru-106 ルテニウム-106	Ce-144 セリウム-144	Np-237 ネプツニウム-237	Fe-59 鉄-59	Ru-103 ルテニウム-103	Sn-126 スズ-126	Cs-135 セシウム-135	Pm-146 プロメチウム-146	Am-243 アメリシウム-243
Co-60 コバルト-60	Cd-113m カドミウム-113m	Pm-147 プロメチウム-147	Pu-238 プルトニウム-238	Co-58 コバルト-58	Rh-103m ロジウム-103m	Sb-124 アンチモン-124	Cs-136 セシウム-136	Pm-148 プロメチウム-148	Cm-242 キュリウム-242
Ni-63 ニッケル-63	Sb-125 アンチモン-125	Sm-151 サマリウム-151	Pu-239 プルトニウム-239	Zn-65 亜鉛-65	Rh-106 ロジウム-106	Te-123m テルル-123m	Ba-137m バリウム-137m	Pm-148m プロメチウム-148m	Cm-243 キュリウム-243
Se-79 セレン-79	Te-125m テルル-125m	Eu-154 ユウロピウム-154	Pu-240 プルトニウム-240	Rb-86 ルビジウム-86	Ag-110m 銀-110m	Te-127 テルル-127	Ba-140 バリウム-140	Eu-152 ユウロピウム-152	
Sr-90 ストロンチウム-90	I-129 ヨウ素-129	Eu-155 ユウロピウム-155	Pu-241 プルトニウム-241	Sr-89 ストロンチウム-89	Cd-115m カドミウム-115m	Te-127m テルル-127m	Ce-141 セリウム-141	Gd-153 ガドリニウム-153	

γ分析対象核種: 45核種

γ線スペクトロメータ (Ge半導体検出器)



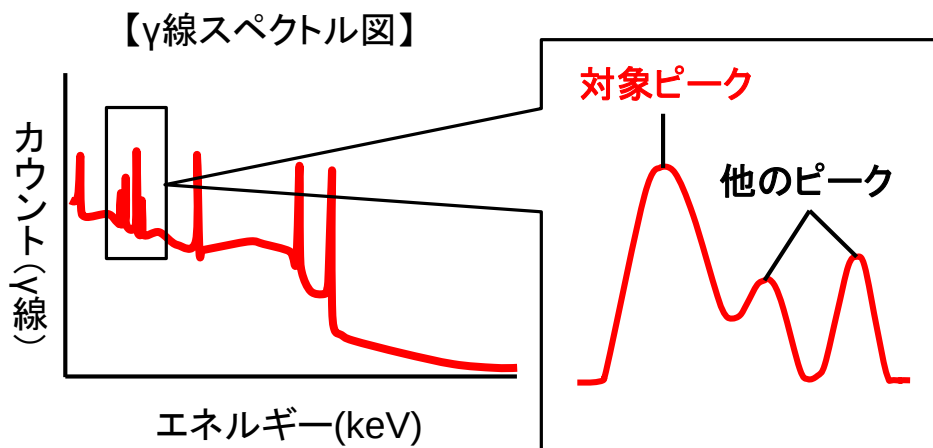
◆ 化学的な分離操作は不要で試料をそのまま測定できる

◆ 広いエネルギー範囲で複数の核種を同時に測定することが可能

正確な分析のための検討

スペクトルに現れるピーク

- ◆複数のγ線を放出する核種のピーク
- ◆天然核種(自然界に存在する核種)や装置構造材由来のピーク



放射能濃度の計算に使用する
対象ピークを適切に選定する

要求を満たすための検討

要求事項

- ◆1試料を1.5か月程度で分析・報告する
- ◆それぞれの核種の告示濃度の1/100程度まで分析する

放射能濃度を導
き出すパラメータ

より少ない量のγ核種を
分析できる

① 検出効率	低い	→	高い
② 測定時間	短い	→	長い
③ 試料量	少ない	→	多い

最適な測定条件を検討する

対象ピークの選定方法

【例】

核種名	γ 線エネルギー(keV)	γ 線放出率(%)	対象ピーク(γ 線)
Cs-137	662	85	単一の γ 線
Sb-125	428	30	最も放出率の高い γ 線
	601	18	
Eu-155	87	31	他のピークによる干渉を受けず、次に放出率が高い γ 線
	105	21	

選定のポイント

- ◆ γ 線放出率が高いキレイなピークを選ぶ
- ◆近接するピークを避ける

γ 分析対象の全ての核種で評価



対象ピークの選定方法

【例】

核種名	γ線エネルギー (keV)	γ線放出率 (%)	備考
Cs-137	662	85	80keV付近は天然核種の放射線と近接する 対象ピークが妨害ピークと重なると、 誤って検出or検出を見逃すリスク となる
Sb-125	428	56	
	601	25	
Eu-155	87	31	他のピークによる干渉を受けず、 次に放出率が高いγ線
	105	21	

選定のポイント

- ◆γ線放出率が高いキレイなピークを選ぶ
- ◆近接するピークを避ける

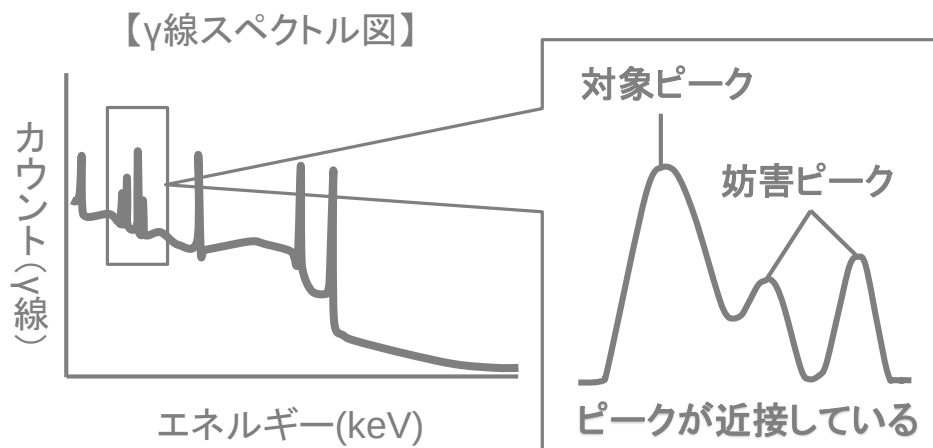
γ分析対象の全ての核種で評価



正確な分析のための検討

スペクトルに現れるピーク

- ◆複数のγ線を放出する核種のピーク
- ◆天然核種(自然界に存在する核種)や装置構造材由来のピーク



放射能濃度の計算に使用する
ピークを適切に選定する

要求を満たすための検討

要求事項

- ◆1試料を1.5か月程度で分析・報告する
- ◆それぞれの核種の告示濃度の1/100程度まで分析する

放射能濃度を導
き出すパラメータ

より少ない量のγ核種を
分析できる

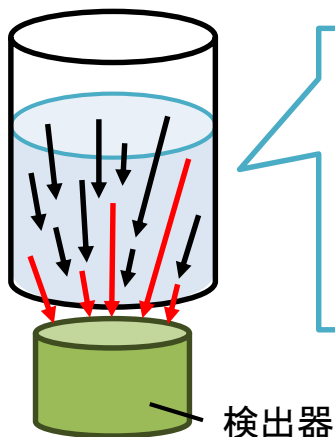
① 検出効率	低い	→	高い
② 測定時間	短い	→	長い
③ 試料量	少ない	→	多い

最適な測定条件を検討する



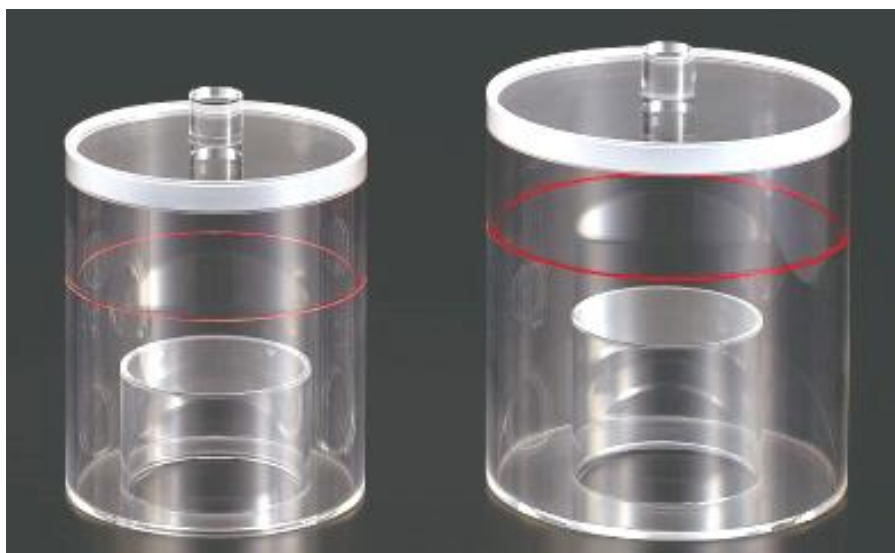
試料形状に着目

- ← 検出器まで到達する γ 線
- ← 検出器まで到達しない γ 線

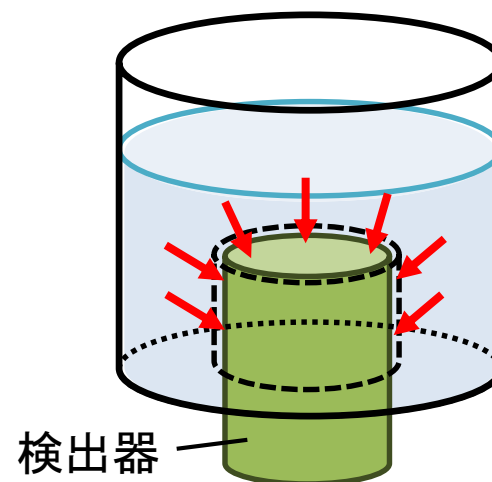


自己吸収(γ 線の減衰)により、 γ 線を検出する効率が下がってしまう
 ⇒ 検出器に接している面積が少ないため、**検出効率が低い。**

マリネリ容器



◆ 検出器を囲む形状をしているため、検出器に接する面積が大きくなり、 γ 線を**効率よく検出**することができる



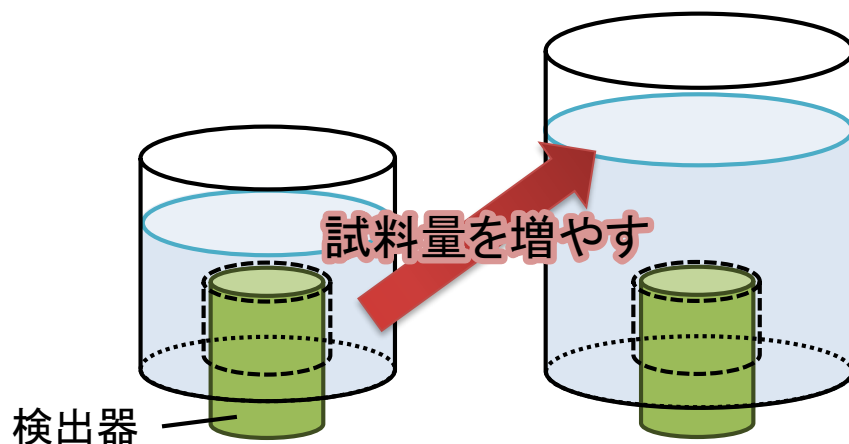
◆1.5か月程度で分析・報告する

試料の分取、解析を除く分析時間

試料測定 2週間 + BG測定 2週間

天然核種の量は常に一定ではない
⇒天然核種のピークを差し引くため、
バックグラウンド(BG)測定が必要

◆告示濃度の1/100程度まで分析する

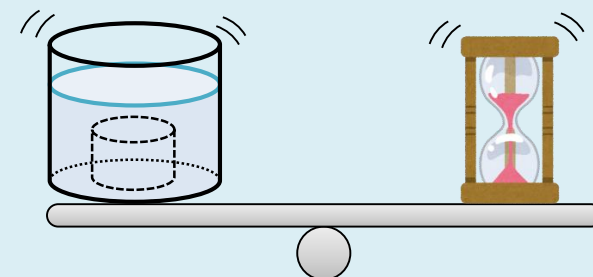


試料量が多すぎると...

- ・分取、運搬が大変
- ・検出器を故障させるリスク



	試料量	測定時間
条件①	1 L	1か月以上
条件②	2 L	2週間
条件③	5 L	1週間

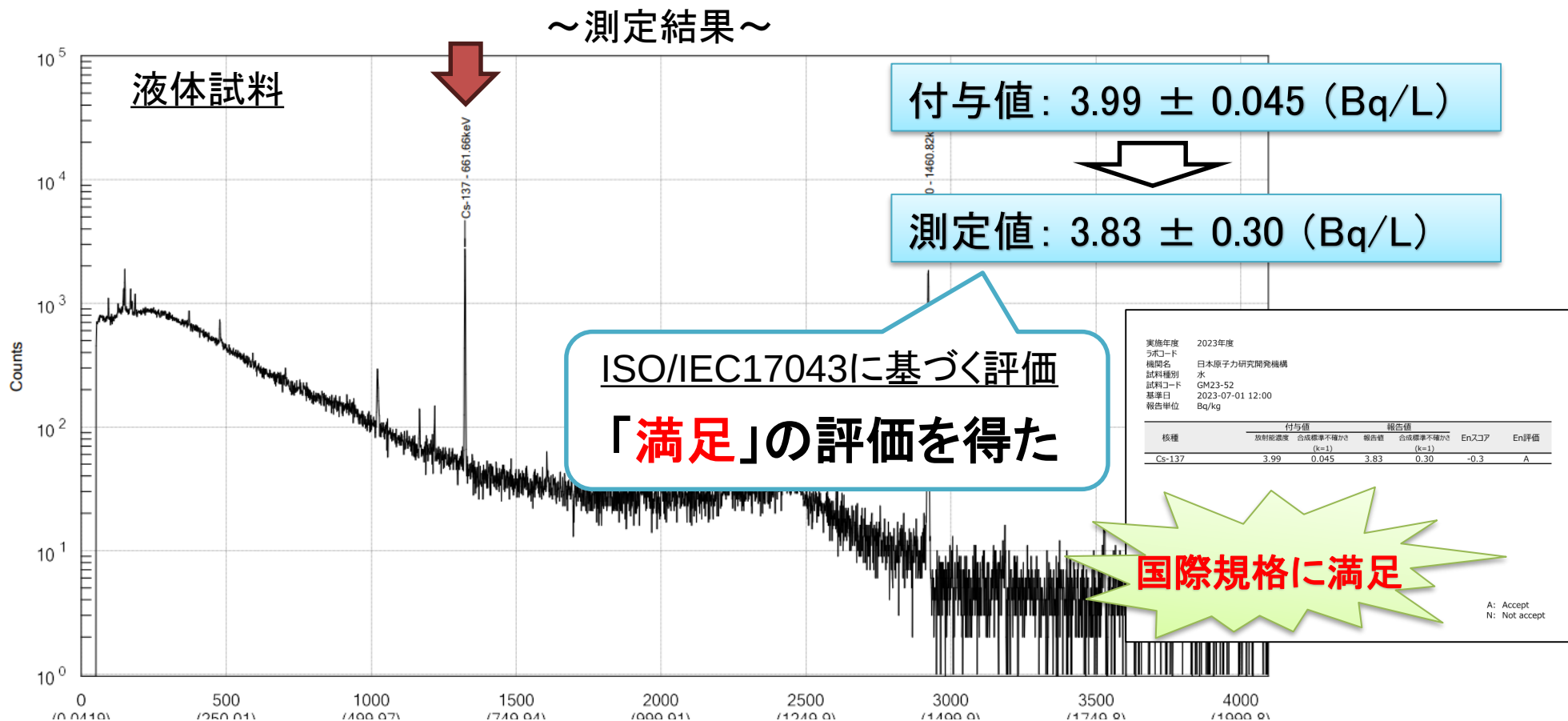


最もバランスが良い条件を決定

結果の妥当性について

- ◆ ISO/IEC17043※の認定取得機関が開催する試験所間比較試験に自主参加
- ◆ 上記機関により作製されたCs-137が含まれる液体試料を分析
- ◆ 付与値と測定値を比較して評価される

※ISO/IEC17043とは、「技能試験提供者」としての国際規格



液体試料におけるCs-137分析の妥当性を確認

○ 世界各国の分析機関が公表したALPS処理水と同一のサンプルに対して実施

分析値±拡張不確かさ(k=2)【Bq/L】

核種	IAEA (国際機関)	IRSN (フランス)	KINS (韓国)	LANL (アメリカ)	LS (スイス)	TEPCO	第1棟
^3H	$1.5\text{E}+05$ $\pm 2.6\text{E}+03$	$1.5\text{E}+05$ $\pm 1.8\text{E}+04$	$1.6\text{E}+05$ $\pm 5.6\text{E}+03$	$1.5\text{E}+05$ $\pm 3.0\text{E}+03$	$1.7\text{E}+05$ $\pm 1.5\text{E}+04$	$1.5\text{E}+05$ $\pm 1.0\text{E}+04$	$1.5\text{E}+05$ $\pm 8.6\text{E}+03$
^{14}C	-	15 ± 2.2	13 ± 1.7	-	-	14 ± 1.9	13 ± 2.2
^{60}Co	0.38 ± 0.040	0.37 ± 0.074	0.39 ± 0.088	0.36 ± 0.040	0.38 ± 0.020	0.37 ± 0.076	0.36 ± 0.058
^{63}Ni	2.8 ± 0.18	2.4 ± 0.30	2.0 ± 0.17	-	3.1 ± 0.40	< 8.1	3.0 ± 0.56
^{90}Sr	0.32 ± 0.28	0.41 ± 0.24	0.40 ± 0.038	-	0.43 ± 0.060	0.40 ± 0.040	0.31 ± 0.066
^{99}Tc	0.79 ± 0.034	0.63 ± 0.30	< 0.0037	-	0.75 ± 0.12	0.74 ± 0.42	0.66 ± 0.14
^{125}Sb	0.10 ± 0.018	< 1.3	< 0.39	0.088 ± 0.020	0.15 ± 0.020	0.15 ± 0.076	0.13 ± 0.044
^{129}I	2.0 ± 0.32	1.9 ± 0.32	1.1 ± 0.24	< 20	1.9 ± 0.60	2.1 ± 0.16	2.0 ± 0.16
^{137}Cs	0.47 ± 0.050	0.47 ± 0.076	0.47 ± 0.074	0.47 ± 0.012	0.50 ± 0.062	0.52 ± 0.10	0.46 ± 0.072

検出されたγ核種を含むすべての核種で、良く一致した

※IAEA報告書（First Interlaboratory Comparison on the Determination of Radionuclides in ALPS Treated Water, 2023）と比較

【成果・貢献】

- ◆ γ 分析において、正確な分析を行うと共に要求を満足するための検討を行い、**最適な分析手法を確立した**
- ◆ 今年度は**計6回**の分析を実施、その結果を**1.5か月程度で報告**している
- ◆ 信頼性を確保した分析結果を報告、公表する事で、**地域の皆様への安心、国際社会からの信頼確保に貢献**

【やりがい】

- ◆ ALPS処理水における γ 分析の主担当として、直接的に分析に携わることで、地元である**福島復興に貢献**していることを実感できる
- ◆ 分析上の課題を自ら捉え、改善していく経験を積む事で、**より高いスキル**を身に付けていく事ができる

【今後の目標】

- ◆ **分析能力の維持・管理**に努め、**より効率的な分析手法**に向けて改良を進める

ご清聴ありがとうございました