

ALPS処理水の分析結果

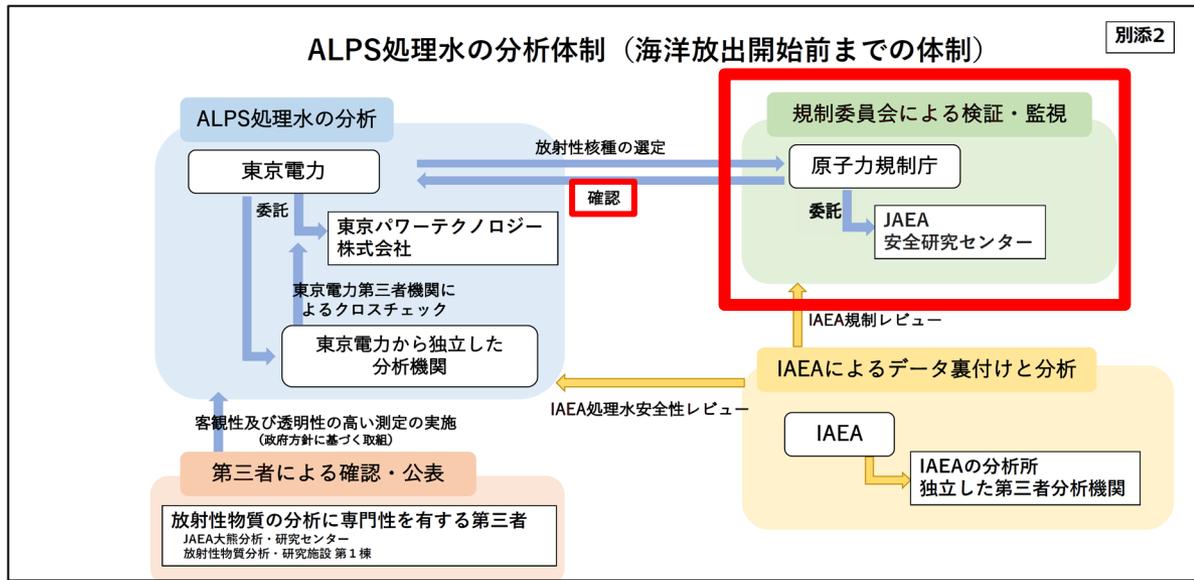
2023年4月14日

日本原子力研究開発機構
安全研究センター

島田亜佐子、邊見光、飯田芳久

目的

- ALPS処理水の海洋放出につき、原子力規制委員会は、東京電力が実施計画に従い測定・評価対象核種分析の体制整備や分析に係る品質保証活動を適切に実施しているかを保安検査で確認していることに加えて、政府方針で示されている客観性や透明性の担保という目的に鑑み、独立した立場で分析の妥当性を確認する。
- 日本原子力研究開発機構（JAEA）安全研究センターは、原子力規制庁からの委託により、ALPS処理水中の核種分析を実施。



特定原子力施設監視・評価検討会(第101回)資料1-1より抜粋

JAEA安全研究センター及び東京電力による分析結果を不確かさの範囲を考慮した上で比較し、確認のための一根拠とする。

分析試料

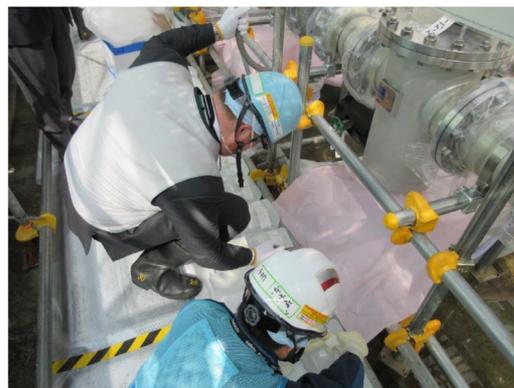
東京電力福島第一原子力発電所 IAEA関係者によるALPS処理水サンプル採取立ち会い（3月24日）

< 参 考 資 料 >
2022年3月25日
東京電力ホールディングス株式会社
福島第一廃炉推進カンパニー

- 3月24日、来日中のIAEA関係者が、福島第一原子力発電所を訪問し、測定・確認用設備からALPS処理水のサンプルを採取する場に立ち会いました。
- IAEA関係者によるサンプル採取の立ち会いは、本年2月に続き2回目となります。
- 採取されたサンプルの一部は、当社の分析を検証するため、IAEAの研究所にて分析される予定です。



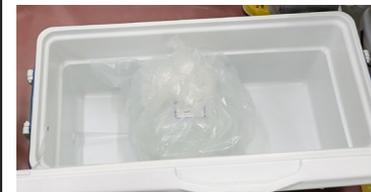
サンプル採取立ち会いの様子



サンプル採取の様子

撮影者：東京電力ホールディングス株式会社
撮影日：2022年3月24日

IAEA
原子力科学研究所
に受け入れ
(2022年10月12日)



東京電力HD公開資料:

https://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/reference/pdf/2022/1h/rf_20220325_2.pdf

分析対象核種

➤ 原子力規制庁から委託を受けた、以下13核種の分析を実施

- ・ **主に検出される核種** (東京電力の分析値と比較):

Co-60, Sr-90, Ru-106, Sb-125, I-129, Cs-134, Cs-137, H-3, C-14, Tc-99

- ・ **ほとんど検出されない核種** (存在量の確認): Cl-36, Fe-55, Se-79

【参考】ALPS処理前後の告示濃度限度比総和の比較

- 下表の分類で、ALPS入口 (2021年度) 及びALPS出口 (K-4, J1-C, J1-G) の分析結果について、告示濃度限度比を評価した結果は以下の通り。

No. 分類	具体的核種 (測定・評価の候補となっている核種)	ALPS 入口	ALPS出口		
			K-4	J1-C	J1-G
① ALPS処理水中で 主に検出される核種	主要7核種 (放射平衡Y-90, Te-125m 含む) C-14, Tc-99	1.7E+03	2.7E-01	1.6E-01	5.8E-02
②	α U-234, U-238, Np-237, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Am-241, Cm-244	5.4E+00	8.2E-04	4.2E-02	3.7E-02
③ ALPS 処理水中 には ほとんど 検出され ない核種	ALPS除去対象 (上記以外) Mn-54, Ni-63, Cd-113m, Ce-144, Pm-147, Sm-151, Eu-154, Eu-155, Pu-241	2.2E+00	1.4E-03	1.3E-02	1.2E-02
④	α 以外 除去 対象 以外 測定数多 Cl-36, Se-79 Nb-94	5.0E-02	1.2E-02	1.2E-02	1.2E-02
⑤	測定 数多 (1)全β, Ge で計数可 Ba-133	8.8E-03	1.8E-05	1.4E-04	1.3E-04
⑥	測定 数少 (2)全β, Ge で計数不可 Fe-55 , Nb-93m, Mo-93	2.2E-02	9.2E-03	6.8E-03	6.8E-03

※: J1-C, J1-Gでは、Cl-36, Se-79, Fe-55, Nb-93m, Mo-93の分析評価結果がないため、増設ALPS出口の結果を使用

分析方法(1/2)

Ge: Ge半導体検出器
 LSC: 液体シンチレーションカウンタ
 ICP-MS: 誘導結合プラズマ質量分析装置

核種	線種	分析装置	分析方法(前処理)	準拠手法
Co-60	β γ	Ge	前処理せずに分析装置で測定	放射能測定法 シリーズ No.7
Sr-90	β	LSC	SrレジンによりSrを精製し、Sr-90とY-90の放射平衡後に測定	JAEA-Technology 2009-051
Ru-106	β	Ge (娘核種であるRh-106の γ 線を測定)	前処理せずに分析装置で測定	放射能測定法 シリーズ No.7
Sb-125	β γ	Ge	前処理せずに分析装置で測定	放射能測定法 シリーズ No.7
I-129	β γ	ICP-MS	Anion-SRによりIを分離	放射能測定法 シリーズ No.32
Cs-134	β γ	Ge	前処理せずに分析装置で測定	放射能測定法 シリーズ No.7
Cs-137	β γ	Ge	前処理せずに分析装置で測定	放射能測定法 シリーズ No.7

分析方法(2/2)

Ge: Ge半導体検出器
 LSC: 液体シンチレーションカウンタ
 GFC: ガスフローカウンタ
 ICP-MS: 誘導結合プラズマ質量分析装置

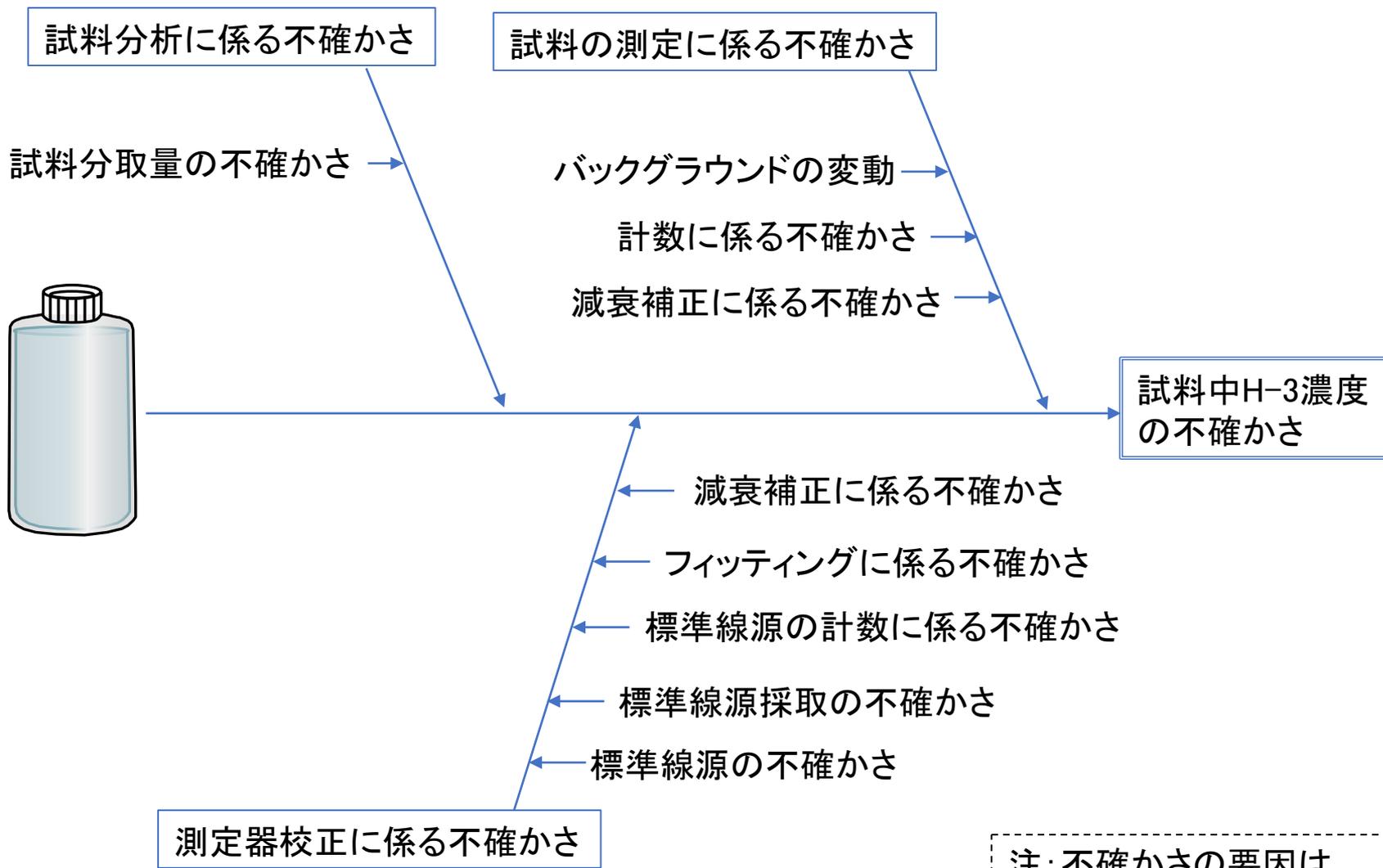
核種	線種	分析装置	分析方法(前処理)	準拠手法
H-3	β	LSC	蒸留によって不純物を取り除いた試料とシンチレータを混合	放射能測定法シリーズ No.9
C-14	β	LSC	試料に1.5M硝酸を添加し、窒素ガスを通気して発生したCO ₂ を吸収剤に捕集してシンチレータと混合	JAEA-Technology 2009-051
Tc-99	β	ICP-MS	TEVALレジンによりTcを分離	内田ら ^{*1} 、田上 ^{*2}
Cl-36	β	GFC	AgCl沈殿およびSDB-XDディスクによるI除去の後、再度AgClとして回収	JAEA-Technology 2009-051
Fe-55	EC	Ge	水酸化鉄とシュウ酸カルシウムの共沈により回収	市毛ら ^{*3}
Se-79	β	LSC	AMP、炭酸塩、水酸化鉄による沈殿分離およびTEVALレジンによる分離の後、Se沈殿として回収、硝酸で溶解・中和後にシンチレータと混合	JAEA-Technology 2009-051

*1: 内田ら(1998) ICP-MSによる環境水中Tc-99の迅速・簡便な分析法の検討, 保健物理, 1998, 33 巻, 1 号, p. 35-39

*2: 田上 恵子(2003), 環境試料中のTc-99の分析ならびに環境挙動の解明に関する研究, 放射化学ニュース, 2003, 8 号, p. 3-8

*3: 市毛ら(2010) コンクリート廃棄物中のCa-41の放射能分析法の検討, RADIOISOTOPES, 2010, 59, p.367-378

不確かさの要因の例(トリチウム(H-3))



不確かさの評価の例(トリチウム(H-3))

不確かさの要因	相対標準不確かさ*1	値 (%)
試料の分析に係る不確かさ		
・試料分取量の不確かさ	μ_1	0.618
測定器校正に係る不確かさ		
・標準線源の不確かさ	μ_2	2.550
・標準線源採取の不確かさ	μ_3	1.020
・計数に係る不確かさ	μ_4	0.854
・校正式のフィッティング	μ_5	0.654
・減衰補正に係る不確かさ	μ_6	0.004
試料の測定に係る不確かさ		
・バックグラウンドの変動	μ_7	2.438
・計数に係る不確かさ	μ_8	0.432
・減衰補正に係る不確かさ	μ_9	0.007

・合成標準不確かさ = $\sqrt{\mu_1^2 + \dots + \mu_9^2} = 3.9 (\%)$

・拡張不確かさ*2 = (合成標準不確かさ) × 2 = 7.8 (%)

注：不確かさの値は分析毎に異なる。
また、低濃度では不確かさの幅が一層大きくなることに留意

*1の例：[相対標準不確かさ (%)] = [標準不確かさ] ÷ [測定値] × 100

*2:ISO国際文書“Guide to the expression of Uncertainty in Measurement(1995)”(「計測における不確かさの表現ガイド」)に基づき、

合成標準不確かさと包含係数k=2とから決定されたもので、約95%の信頼の水準を持つと推定される区間を定めたものである。

分析結果の比較 (En 数)

分析結果の不確かさを考慮し、ISO/IEC17043:2010(JIS Q 17043:2011)のB.3パフォーマンスの統計計算に記載された統計手法のうち、 En 数を指標とした評価を実施。

→ En 数の絶対値 ($|En|$) が1を超えた場合は、分析値の差が生じた原因について検討を実施する。

$$En = \frac{X_{\text{東電}} - X_{\text{JAEA}}}{\sqrt{U_{\text{東電}}^2 + U_{\text{JAEA}}^2}}$$

$X_{\text{東電}}$: 東京電力の分析結果

X_{JAEA} : JAEA安全研究センターの分析結果

$U_{\text{東電}}$: 東京電力の分析結果の拡張不確かさ ($k=2$)

U_{JAEA} : JAEA安全研究センターの分析結果の拡張不確かさ ($k=2$)

分析結果(1/2)

➤ JAEA安全研究センターの分析値が検出下限値未満であった核種

核種		JAEA 安全研究センター 分析値 (Bq/L)	東京電力 分析値* (Bq/L)	告示濃度限度 (Bq/L)
分析値を 比較する 核種	Ru-106	<0.66	<0.415	100
	Sb-125	<0.18	0.150±0.0749	800
	Cs-134	<0.066	<0.0573	60
存在量を 確認する 核種	Cl-36	<1.5	—	900
	Fe-55	<0.36		2,000
	Se-79	<0.77		200

- ・いずれの検出下限値も告示濃度限度の1/100以下。
- ・Cl-36, Fe-55, Se-79の存在量は検出下限値未満。

* : 原子力規制委員会面談資料「ALPS処理水の分析結果に関する面談(令和5年2月22日)」資料1
<https://www2.nra.go.jp/data/000421817.pdf>

分析結果(2/2)

➤ JAEA安全研究センターの分析値が検出下限値以上であった核種

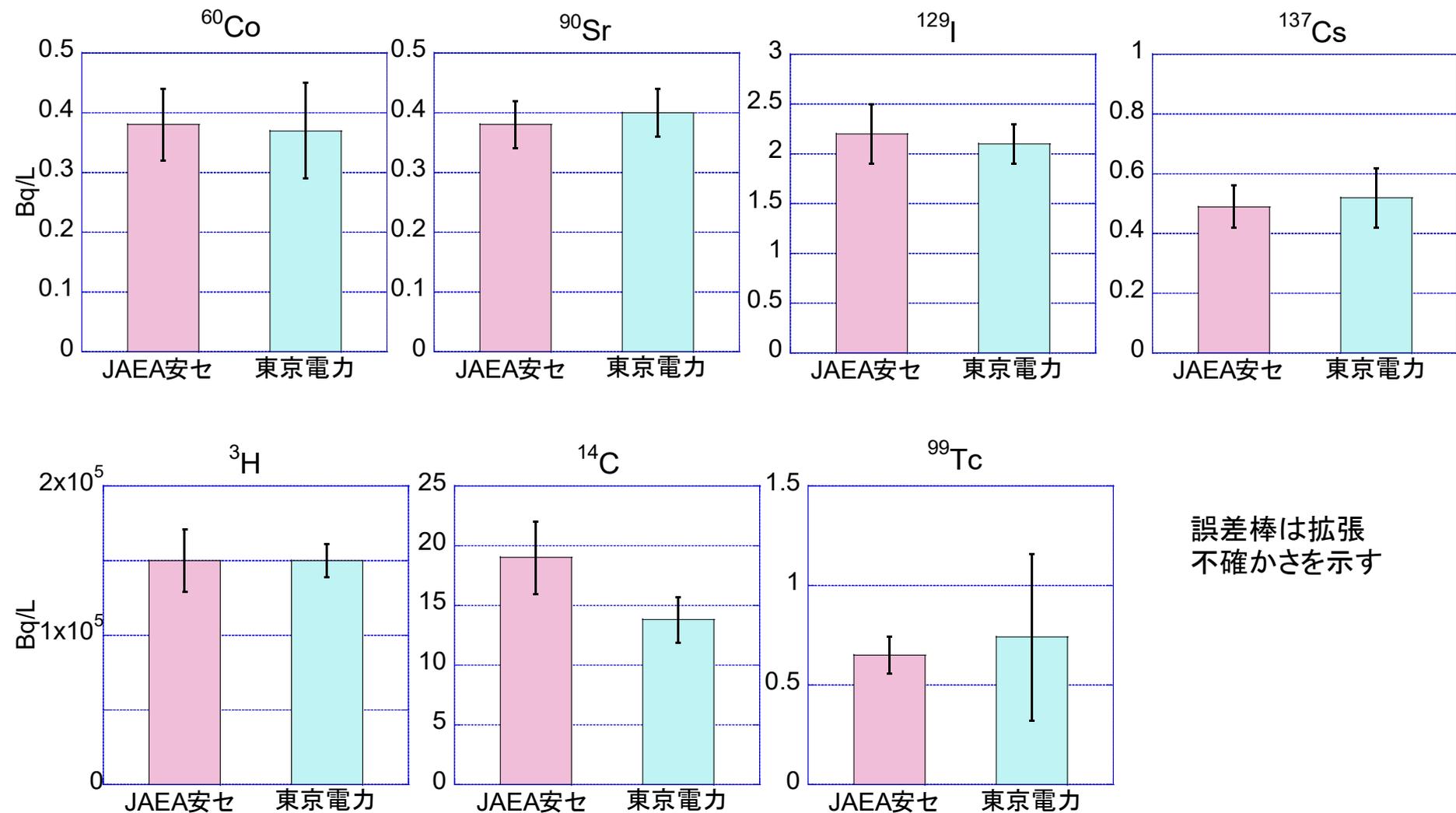
核種		JAEA 安全研究センター 分析値(Bq/L)	東京電力 分析値* (Bq/L)	告示濃度限度 (Bq/L)	En
分析値を 比較する 核種	Co-60	0.38 ± 0.06	0.373 ± 0.0745	200	0.11
	Sr-90	0.38 ± 0.04	0.399 ± 0.0383	30	0.39
	I-129	2.2 ± 0.3	2.13 ± 0.162	9	0.21
	Cs-137	0.49 ± 0.07	0.517 ± 0.100	90	0.21
	H-3	(1.5 ± 0.2)E+05	(1.46 ± 0.102)E+05	60,000	0.0072
	C-14	19 ± 3	13.8 ± 1.90	2,000	1.5
	Tc-99	0.65 ± 0.09	0.735 ± 0.412	1,000	0.2

・C-14を除き、En数の絶対値は1以下。

* : 原子力規制委員会面談資料「ALPS処理水の分析結果に関する面談(令和5年2月22日)」資料1

<https://www2.nra.go.jp/data/000421817.pdf>

分析結果(2/2)のグラフ

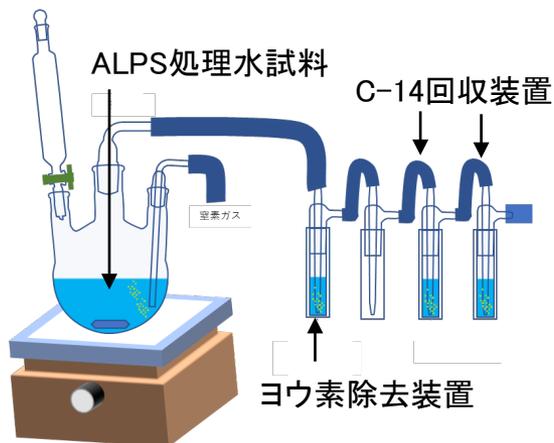


誤差棒は拡張
不確かさを示す

C-14分析の検討

- ALPS処理水中には揮発性のI-129が2.2Bq/L存在するため、この影響でJAEA安全研究センターの分析値が若干高くなった可能性がある。
→ 準拠手法に示されている装置構成に加え、ヨウ素除去装置(硝酸銀溶液)を設置して再分析を実施。

分析装置の概略図



再分析結果

- 分析値: 14 ± 2 Bq/L
(東京電力: 13.8 ± 1.9 Bq/L)
- $|En| = 0.07 (< 1)$

