

令和4年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金
（固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発）
（分冊②）

2. 性状把握

2025年2月

日本原子力研究開発機構

本成果報告は7分冊で構成し、本資料は分冊②である。

分冊	タイトル
①	1. 全体概要
②	2. 性状把握
③	3. 保管・管理
④	4. 処理・処分 4.1 処理技術
⑤	4.2 処分概念の提示及び安全評価手法の開発 4.2.1 処分概念提示に必要な情報・知識の調査 4.2.2 安全評価手法開発の試行 4.2.2.1 ストーリーボードのプロトタイプ検討
⑥	4.2.2.2 重要シナリオ・モデル・パラメータ検討
⑦	4.2.2.3 1F廃棄物の特徴を考慮した品質管理下安全評価検討

	頁
2. 性状把握	
2.1 研究開発への取り組み方	2
2.2 分析の計画	9
2.3 試料の採取と管理、輸送	12
2.4 分析の実施・結果	18
2.5 データベースの整備	70
2.6 分析法の開発	73
2.7 インベントリ推算手法の開発	91
2.8 分析計画法の適用性向上	121
2.9 まとめ	151

2.1 研究開発への取り組み方

目標・実施内容

(2.7 インベントリ推算手法の開発)

■ 背景・実績

- 解析的なインベントリ推算手法を開発し、推定の不確実性を低減するために、分析データに基づく核種移行パラメータの設定(図1)、ベイズ統計を利用した不確実性の定量的評価等を順次進めてきた(図2)。

■ 目標

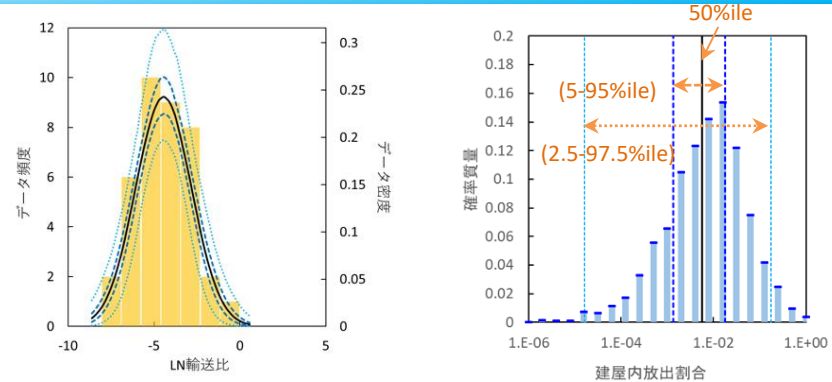
- 移行モデルの改良、核種移行パラメータの不確実性低減により解析的インベントリ推算手法を改良し、インベントリを更新する。
- 震災前廃棄物のインベントリを推定する方法を検討する。燃料デブリ取り出し廃棄物のインベントリ推定に必要な情報を調査・整理する。

実施内容

- 燃料デブリ取り出しに伴う高線量率の瓦礫類廃棄物を念頭に置き、汚染水付着の二次的汚染と燃料デブリの混入に係る核種移行パラメータを検討する。また、放射化生成物のインベントリ推算を進める。廃棄物の分類(母集団)の妥当性を定量的に評価する手法等を検討する。
- 事故前に保管されていた廃棄物(震災前廃棄物)に関して、事故に伴う汚染や津波との接触影響等を評価するため、保管廃棄物の情報を整理し、これらの影響を検討する。
- 燃料デブリ取り出し廃棄物について、取り出し工事等の情報を調べ、インベントリを推算するための概略的な手順を検討する。

目標達成を判断する指標

- 統計論的インベントリ推算手法の検討に基づき、移行モデルの改良、核種移行パラメータの不確かさの低減等により、廃棄物インベントリ情報を更新する。(2023年度)
- 震災前廃棄物の情報を整理する。(2022年度)
- 事故影響を考慮したインベントリ推算手法を示す。(2023年度)
- 燃料デブリ取り出し廃棄物のインベントリ推定に必要な情報を整理する。(2023年度)



輸送比のベイズ統計手法による分析

建屋内気中放出割合の統計論的設定

図1 ベイズ統計に基づく核種移行パラメータの設定
(IRID, 2020年度最終報告, 令和3年10月.)

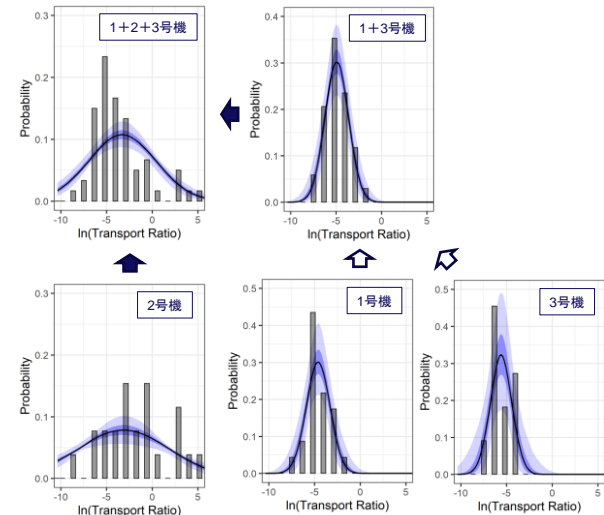


図2 核種移行割合(準揮発性核種の空気中への移行)の号機による分解
(IRID, 2021年度最終報告, 令和4年9月.)

2.1 研究開発への取り組み方

目標・実施内容

(2.8 分析計画法の適用性向上)

■ 背景・実績

- 1F の廃棄物は母集団が不確かであるなどのため、事前に分析点数を評価することが難しい。廃棄物分野においても標準的な手法とされているDQOプロセス (Data Quality Objectives) にベイズ統計を組み合わせ(図1)、その有用性を示してきた(図2)。

■ 目標

- DQO プロセスと統計論的方法を組み合わせた分析計画法について、試行例を蓄積し、適用性を向上させる。

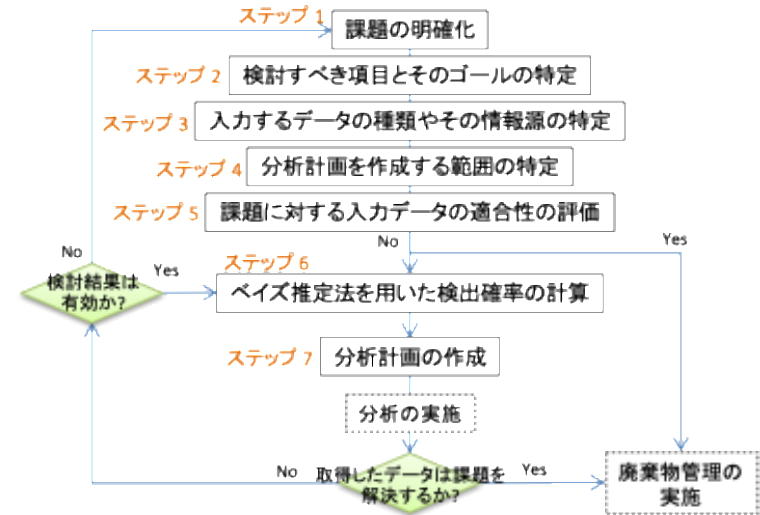


図1 廃棄物を対象とした DQO プロセス

実施内容

- 近い将来に分析を予定する廃棄物を念頭に、検討すべきケースを抽出し、試行例を増やしていく。
- 廃棄物の性状や由来(発生場所)に基づく放射性核種の濃度や組成のばらつき、分析の目的に応じて設定すべき基準を考慮し、ベイズ統計などの手法を援用した定量的な計算手法を検討し、分析すべき試料数の導出を試行する。
- 試行例を類型化し、分析計画法としての有用性を評価する。
- DQOプロセスの事例研究は、ステークホルダーとなる関係者の参加を得るワークショップの形式を想定する。



目標達成を判断する指標

- DQO プロセスと統計論的方法を組み合わせた分析計画法の試行例を蓄積する。(2022年度)
- 試行例を類型化し、分析計画法としての有用性を評価する。(2023年度)

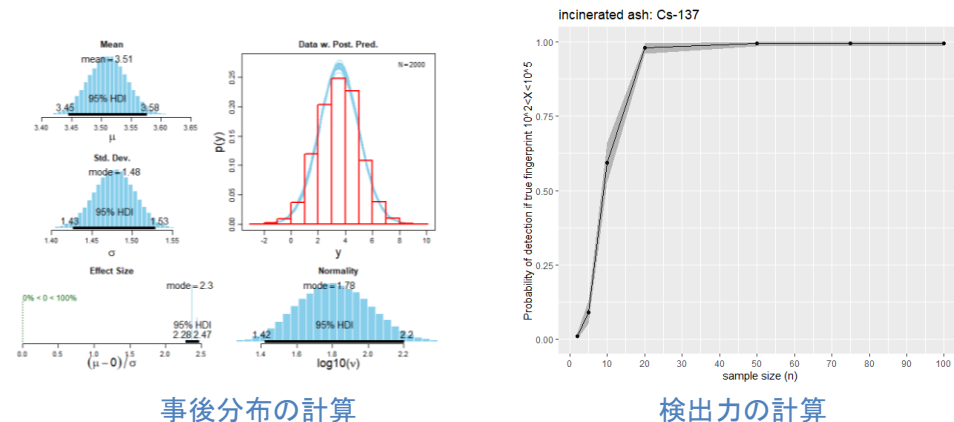


図2 ベイズ統計を利用した分析試料数の検討例

2.1 研究開発への取り組み方

目標・実施内容

(2.8 分析計画法の適用性向上(廃棄物確認手法))

■ 背景・実績

- 廃棄物確認手法は処分区分とともに設定されるものであり、1F廃棄物の不確実性を念頭に事前の検討が望まれる。

■ 目標

- 廃棄物確認の結果が過大評価とならない合理的な廃棄体毎の核種インベントリ推算手法を検討する。

実施内容

○ 従来利用されている手法は、1F 廃棄物の汚染メカニズムが不確実性を有するために適用が妨げられるおそれがある。そこで代表的な廃棄物を選び、適用の可能性がある手法の組み合わせを検討し、適用にあたっての課題を検討する。



目標達成を判断する指標

○ 代表的な廃棄物を選定し、適用の可能性がある手法の組み合わせを検討し、適用における課題を示す。(2023年度)

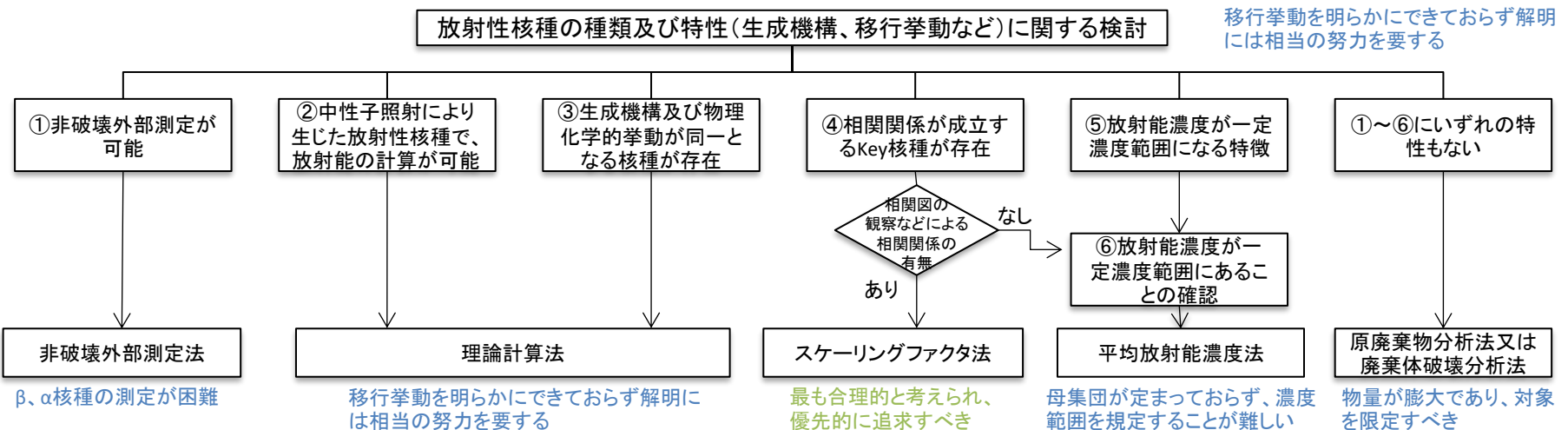
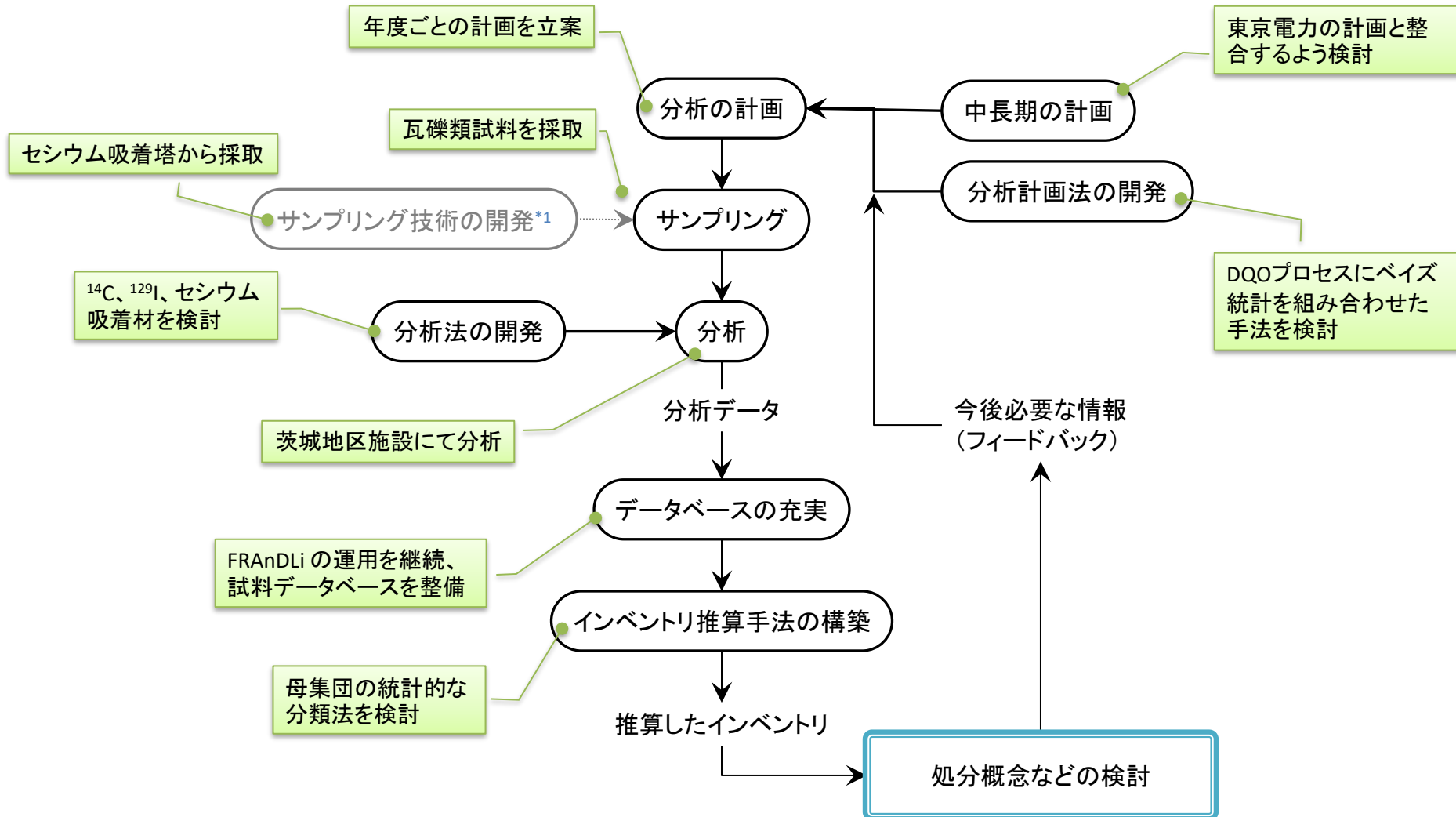


図1 放射能濃度決定手順の基本的考え方(引用)*1

*1 日本原子力学会, “ピット処分及びトレンチ処分対象廃棄物の放射能濃度決定に関する基本手順:2011,” AESJ-SC-F022:2011 (2012).

2.1 研究開発への取り組み方 分析とそのデータを利用した研究開発の全体像



*1 他の事業にて実施.

2.1 研究開発への取り組み方

性状把握の成果イメージ(知識ベースの形成)

- 廃棄物の性状把握は、本事業を含めて、分析を中心とした一連の研究開発を継続していく性状把握の方法論とその裏付けとなる分析データが主要な成果であり、これらの知見を蓄積する知識ベースの形成を目指す。

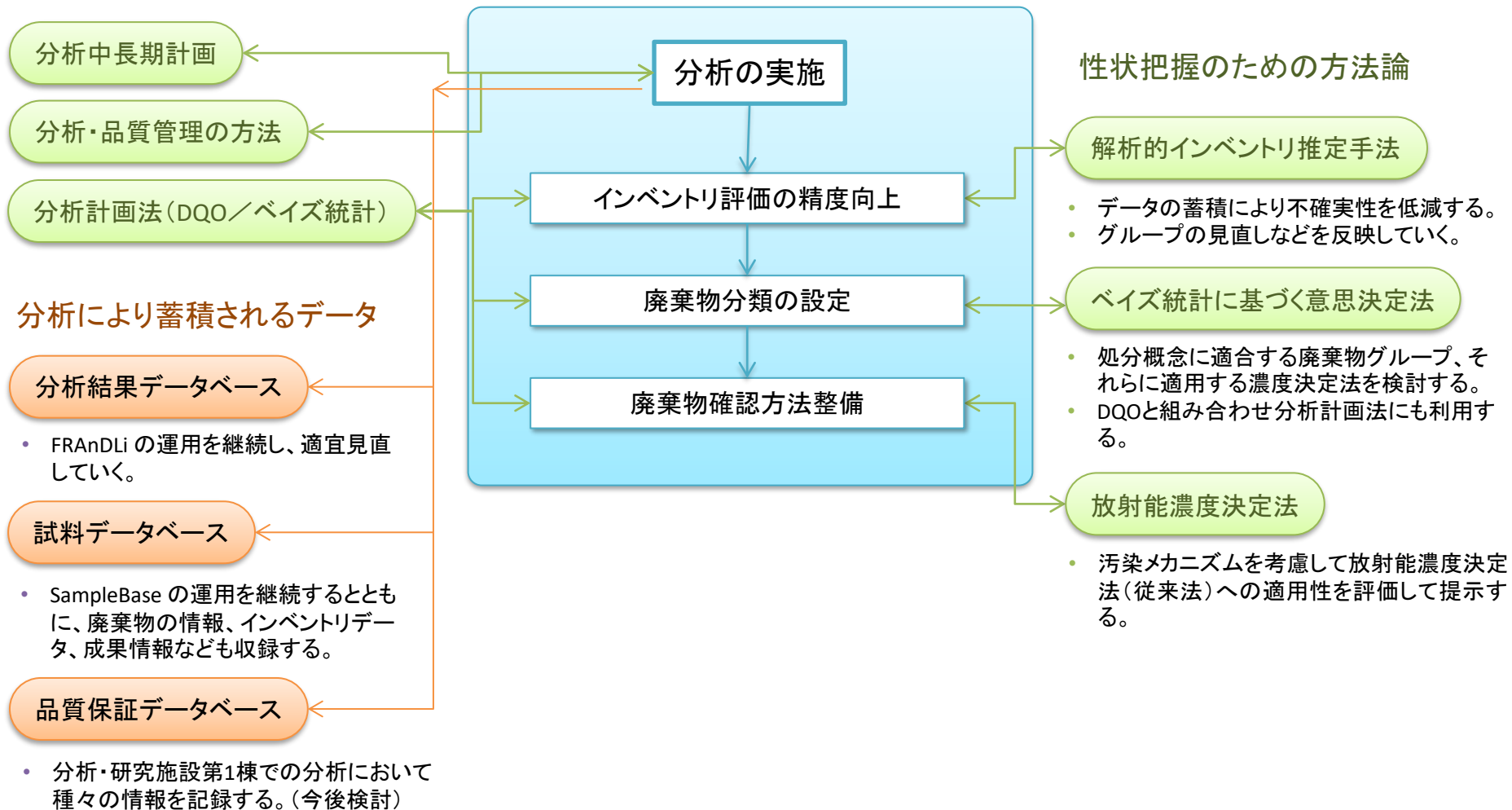


図1 性状把握の成果となる知識ベースのイメージ

2.2 分析の計画 中長期的な分析の展開

- 以前に検討された中長期の分析計画とともに^{*1}、2022年度より東京電力が作成した計画^{*2}を参照して分析の内容を具体化して実施した。
 - 運用を開始した放射性物質分析・研究施設第1棟(大熊第1棟)とともに、優先度に応じて順次分析を進めた。(図1)
- 優先する廃棄物として、水処理二次廃棄物、瓦礫類等、建屋解体物等が挙げられており、これらに取り組んだ。
 - 例えば、ALPSスラリーは、安定化処理を前提として、固化処理法の検討に資する性状の情報が必要であり(図2)、継続して分析を進めた(次ページ表)。
 - 新たな分析のニーズに対応するよう、東京電力と分析施設の間で情報を共有しつつ進めた。

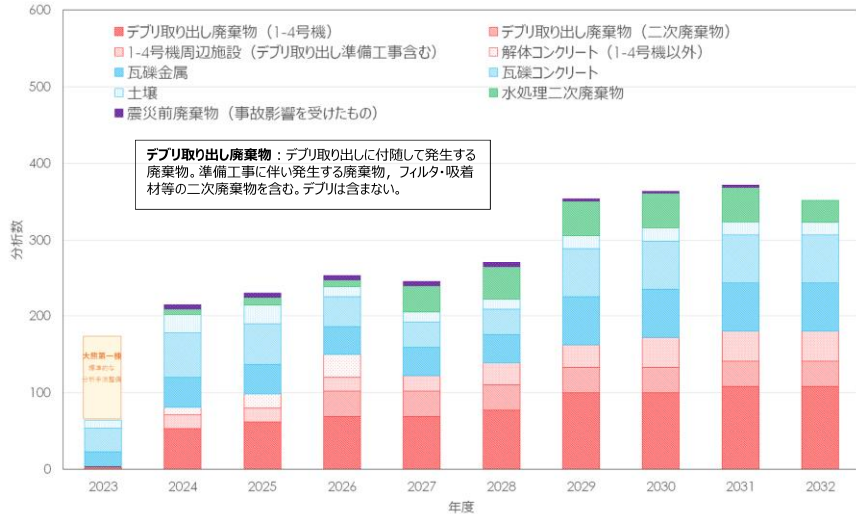


図1 全体分析計画(年度毎の分析数の推移)^{*2}

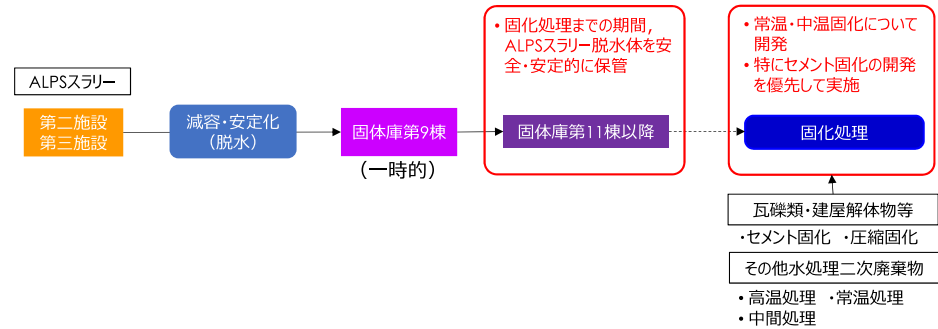


図2 ALPSスラリーの保管、固化処理の方針^{*3}

^{*1} IRID, 令和3年度開始「廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」最終報告, P. 366-376, 令和4年9月. https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2022/08/2022015_kotaihaikibutsu.pdf

^{*2} 東京電力ホールディングス株式会社, “東京電力福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた固体廃棄物の分析計画,” 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第112回), 2023年3月30日.

^{*3} 東京電力ホールディングス株式会社, “水処理二次廃棄物の固化処理に関する検討方針について,” 特定原子力施設の実施計画の審査等に係る技術会合(第15回), 資料1-2, 2023年12月4日.

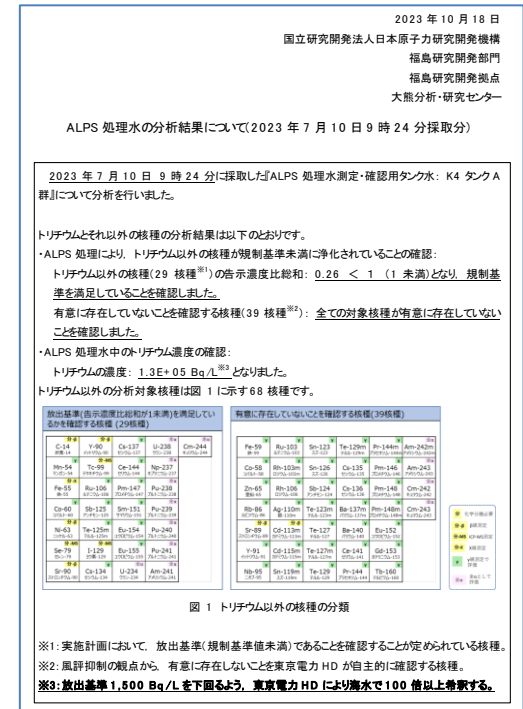
2.2 分析の計画 施設の中長期的な利用見通し

- 分析は、放射性物質分析・研究施設第1棟(大熊第1棟)と茨城地区施設が相互に補完するよう進めた。(表)
- 茨城地区での分析は、原子力機構 核燃料サイクル工学研究所 高レベル放射性物質研究施設(CPF)、MHI原子力研究開発株式会社(NDC社)、日本核燃料開発株式会社(NFD社)の施設にて分析を分担した。
 - それぞれの施設の特徴を考慮して、分析を継続する予定である。
- 大熊第1棟では、これまで実施してきた分析手法の整備を踏まえ、瓦礫等の試料の分析を順次進めている。また、ALPS処理水の海洋放出に関して第三者としての分析を実施している。(図)
 - 分析の全体に対する寄与が徐々に増えていくと見込んでいる(前ページ 図1)。

表 廃棄物の分析施設と役割

機関・施設	特徴・運用の仕方
原子力機構 核燃料サイクル工学研究所 高レベル放射性物質研究施設 (CPF)	<ul style="list-style-type: none"> ● 再処理試験を行う施設であり、燃料成分の分析に実績がある。 ● 水処理二次廃棄物や汚染水の分析を中心として、分析法開発を含め実施しており、これを継続する。
MHI原子力研究開発株式会社 (NDC)	<ul style="list-style-type: none"> ● 従来より廃棄物の分析に実績がある。 ● 低放射性の試料を中心として、瓦礫等の分析を進めていく。
日本核燃料開発株式会社 (NFD)	<ul style="list-style-type: none"> ● 燃料の分析に実績がある。 ● 近年、1F 廃棄物(燃料デブリに関連した試料、PCV 内で採取された試料)を分析している。 ● 1F から NFD 社セルへ試料を輸送、持ち込むことが可能であり、高線量率の試料(セシウム吸着材)の分析を進めている。
原子力機構 大熊分析・研究センター 放射性物質分析・研究施設 (大熊第1棟)	<ul style="list-style-type: none"> ● 本格的な運用に移行している。

図 大熊第1棟における処理水の分析結果*1



*1 https://fukushima.jaea.go.jp/okuma/alps/dai3/pdf/analysis-result_details-20230710.pdf

2.2 分析の計画 次期計画の検討

- 本事業終了後の分析を計画するため、分析対象とする試料の選定を進めた。
 - 原子力機構の放射性物質分析・研究施設第1棟(大熊第1棟)において分析作業を本格化しており、茨城地区と適切に分担するよう、相互に協力して計画を検討した。(表1)
- 分析試料は、2023年度に採取した試料、固体廃棄物貯蔵庫管理棟内の予備室で保管している試料、分析施設に輸送済みの試料から選定した。
 - 今後、重要な試料(汚染水処理設備配管等)が採取される場合は、ニーズに応じて適時に輸送、分析するよう調整する。
 - 分析試料の輸送は、計3回を想定した。

表1 分析計画案の検討例(部分)

種類				2024年度 分析計画数 (東電側)	2024年度における 東電側の優先度 (早期にデータが欲しい)	2024年度 分析実施 予定箇所	各分析実施場所で設定する分析目的	検討内容	対象核種	
瓦礫・土壌 不燃物	付属施設 (RW/B・その他建屋)	コンクリート/金属	線量:30mSv/h~ 汚染:α有、β有	30		NDC, 大熊第1棟	【NDC】 ・SARRYの配管を想定する。 ・汚染水と接触した金属の汚染状態(核種組成)を把握する 【大熊第1棟】 ・揮発性核種(C-14, Cl-36, I-129, Tc-99など)の分析に対応したサンプリング及び前処理技術開発 ・切り出したSGTS配管の一部を分析し、付着した核種組成を把握する	【大熊第1棟】 ・鉄セル、GB内でのサンプリング手法開発(切削、粉体化など) - 試料表面に塗装等(有機物)があった場合の分析アプローチの検討 - 塊状試料からのサンプリング位置の選定検討 ・実試料を用いた溶解条件検討(アルカリ・酸) - 回収率評価手法の検討	【NDC】暫定 ・H-3, C-14, Co-60, Ni-63, Se-79, Sr-90, Tc-99, Ru-101, Cs-137, Eu-152, Eu-154, U-234, U-235, U-236, U-238, 239+240, Am-241, Cm-244 【大熊第1棟】 ・C-14, Cl-36, I-129, Tc-99等の揮発性核種を指標とする ・Ca-41, Ni-63, Sr-90, Tc-99, Se-79, Zr-93, Mo-93, Pd U-234, U-235, U-236, U-238, Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244	
			BG相当未満 (<5μSv/h)	線量:BG程度 汚染:α無、β無 線量:BG~0.1mSv/h 汚染:α無、β無	30	△	NDC, 大熊第1棟	【NDC】 ・汚染状態(核種組成)を把握する 【大熊第1棟】 ・揮発性核種(C-14, Cl-36, I-129, Tc-99など)の分析に対応したサンプリング及び前処理技術開発 ・2023年度に検討した分析手法を用いた分析データの積み上げ	【大熊第1棟】 ・鉄セル、GB内でのサンプリング手法開発(切削、粉体化など) - 試料表面に塗装等(有機物)があった場合の分析アプローチの検討 - 塊状試料からのサンプリング位置の選定検討 ・実試料を用いた溶解条件検討(アルカリ・酸) - 回収率評価手法の検討	【NDC】暫定 ・H-3, C-14, Co-60, Ni-63, Se-79, Sr-90, Tc-99, Ru-101, Cs-137, Eu-152, Eu-154, U-234, U-235, U-236, U-238, 239+240, Am-241, Cm-244 【大熊第1棟】 ・C-14, Cl-36, I-129, Tc-99等の揮発性核種を指標とする ・Co-60, Ni-63, Sr-90, Zr-93, Mo-93, Nb-94, Tc-99, Cs-137, U-235, U-236, U-238, Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244
			低線量 0.005~1 mSv/h	線量:BG~0.1mSv/h 汚染:α無、β無 線量:0.1~1mSv/h 汚染:α無、β有	30	○	NDC, 大熊第1棟	【NDC】 ・汚染状態(核種組成)を把握する 【大熊第1棟】 ・揮発性核種(C-14, Cl-36, I-129, Tc-99など)の分析に対応したサンプリング及び前処理技術開発 ・2023年度に検討した分析手法を用いた分析データの積み上げ	【大熊第1棟】 ・鉄セル、GB内でのサンプリング手法開発(切削、粉体化など) - 試料表面に塗装等(有機物)があった場合の分析アプローチの検討 - 塊状試料からのサンプリング位置の選定検討 ・実試料を用いた溶解条件検討(アルカリ・酸) - 回収率評価手法の検討	【NDC】暫定 ・H-3, C-14, Co-60, Ni-63, Se-79, Sr-90, Tc-99, Ru-101, Cs-137, Eu-152, Eu-154, U-234, U-235, U-236, U-238, 239+240, Am-241, Cm-244 【大熊第1棟】 ・C-14, Cl-36, I-129, Tc-99等の揮発性核種を指標とする ・Ca-41, Ni-63, Sr-90, Tc-99, Se-79, Zr-93, Mo-93, Pd U-234, U-235, U-236, U-238, Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244
	瓦礫 コンクリート	低線量 0.005~1 mSv/h	BG相当未満 (<5μSv/h)	線量:BG~0.1mSv/h 汚染:α無、β無 線量:BG~0.1mSv/h 汚染:α無、β無	20	△	NDC, 大熊第1棟	【NDC】 ・汚染状態(核種組成)を把握する 【大熊第1棟】 ・揮発性核種(C-14, Cl-36, I-129, Tc-99など)の分析に対応したサンプリング及び前処理技術開発 ・2023年度に検討した分析手法を用いた分析データの積み上げ	【NDC】 ・C-14の有機・無機形態別分析の検討(一部試料) 【大熊第1棟】 ・鉄セル、GB内でのサンプリング手法開発(切削、粉体化など) - 試料表面に塗装等(有機物)があった場合の分析アプローチの検討 - 塊状試料からのサンプリング位置の選定検討 ・実試料を用いた溶解条件検討(アルカリ・酸) - 回収率評価手法の検討	【NDC】暫定 ・H-3, C-14, Co-60, Ni-63, Se-79, Sr-90, Tc-99, Ru-101, Cs-137, Eu-152, Eu-154, U-234, U-235, U-236, U-238, 239+240, Am-241, Cm-244 【大熊第1棟】 ・C-14, Cl-36, I-129, Tc-99等の揮発性核種を指標とする ・Ca-41, Ni-63, Sr-90, Tc-99, Se-79, Zr-93, Mo-93, Pd U-234, U-235, U-236, U-238, Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244
			低線量 0.005~1 mSv/h	線量:BG~0.1mSv/h 汚染:α無、β無 線量:0.1~1mSv/h 汚染:α無、β有	28	○	NDC, 大熊第1棟	【NDC】 ・汚染状態(核種組成)を把握する 【大熊第1棟】 ・揮発性核種(C-14, Cl-36, I-129, Tc-99など)の分析に対応したサンプリング及び前処理技術開発 ・2023年度に検討した分析手法を用いた分析データの積み上げ	【大熊第1棟】 ・鉄セル、GB内でのサンプリング手法開発(切削、粉体化など) - 試料表面に塗装等(有機物)があった場合の分析アプローチの検討 - 塊状試料からのサンプリング位置の選定検討 ・実試料を用いた溶解条件検討(アルカリ・酸) - 回収率評価手法の検討	【NDC】暫定 ・H-3, C-14, Co-60, Ni-63, Se-79, Sr-90, Tc-99, Ru-101, Cs-137, Eu-152, Eu-154, U-234, U-235, U-236, U-238, 239+240, Am-241, Cm-244 【大熊第1棟】 ・C-14, Cl-36, I-129, Tc-99等の揮発性核種を指標とする ・Ca-41, Ni-63, Sr-90, Tc-99, Se-79, Zr-93, Mo-93, Pd U-234, U-235, U-236, U-238, Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244
			アスファルト等	線量:BG~0.1mSv/h 汚染:α無、β無 線量:0.1~1mSv/h 汚染:α無、β有	8		-	-	-	-

2.3 試料の採取と管理、輸送

試料管理の全体的な流れ

- 試料の分析に不可欠である、試料採取、保管管理と輸送を継続して実施した。(図1)
 - 採取した瓦礫や水処理二次廃棄物等の試料は、固体廃棄物貯蔵庫内の所定場所(管理棟内の予備室及び操作室(図2))にて保管管理した。
 - 試料の状態を定期的に点検するとともに、試料を分析施設へ輸送するため、測定や分取、輸送容器への梱包などの作業を実施した。
- 1F現場での作業にあたっては、作業主体(図1①から④の実施者、外注先)と適切に分担して、東京電力の担当グループと調整して進めた(図3)。

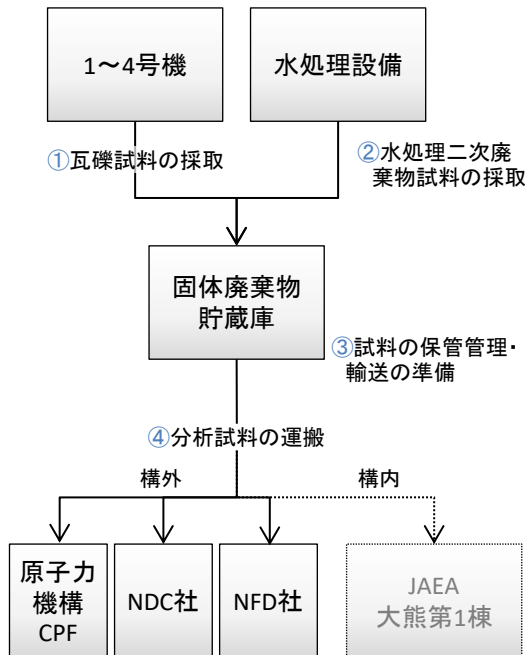


図2 試料の保管状況
(固体廃棄物貯蔵庫の予備室)

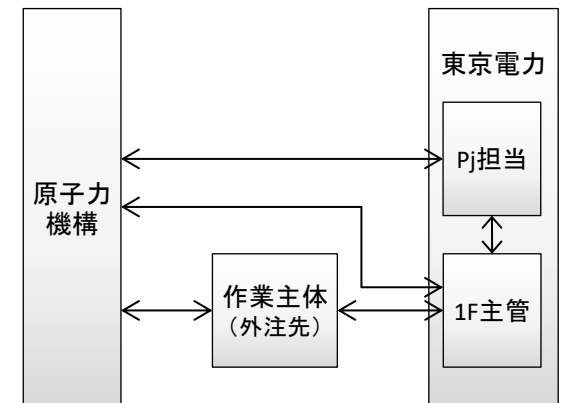


図3 1F現場と連携する体制

図1 分析試料の取得・管理等の実施内容

2.3 試料の採取と管理、輸送

試料の採取

- 原子炉建屋等から試料を採取し、2022年度は88点、2023年度は203点の試料を得た。
 - 建屋内からは、従来、採取されていない場所、分析の優先度を考慮して試料を採取、入手した。(表1)
 - 他に、2023年度は、5・6号機周辺の土壌(15点)、エリアBBの金属(41点)、エリアFのコンクリート等(50点)、Cヤードのコンクリート等(36点)、土砂置場(エリア4)の土壌(20点)を採取した。
 - 焼却灰は、増設雑固体廃棄物焼却設備にて20点を採取した。(図2)
- 水処理二次廃棄物は、増設多核種除去設備(ALPS)にて採取された炭酸塩沈殿スラリーの試料(2点)を入手した。

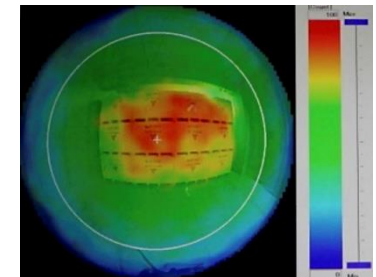
表1 建屋内にて採取・入手した瓦礫の試料(2022、2023年度に採取、入手)

建屋	場所		採取日	試料・点数
	フロア	ゾーン		
1 R/B	1階	R	2022/7/29	スミアろ紙×9、コンクリート片×1、塗装片×1、金属片×1
	3階(FPCポンプ室)	R	2022/9/8	スミアろ紙×1、コンクリート片×1
2 R/B	1階(大物搬入口)	R・α	2022/11/22	スミアろ紙×3、コンクリート片(床はつり)×3、スミアろ紙×4、塗装片×2
	1階(階段)	R・α	2022/12/5	スミアろ紙×1
	2階(大物搬入口)	R・α	2022/12/5	スミアろ紙×4
	5階(オペフロ)	R	2022/7/6	スミアろ紙×3
3 R/B	5階(オペフロ)	R	2022/9/28	スミアろ紙×3
4 R/B	5階(オペフロ)	Y	2022/12/21	スミアろ紙×1、塗装片(床)×1、コンクリート片(床)×5、スミアろ紙×4、金属片×3
3 Rw/B	1階	Y	2023/01/19	コンクリートコア×10、コンクリートはつり×3
	2階	Y	2023/01/24	コンクリートコア×2、コンクリートはつり×1
4 Rw/B	1階	Y	2023/01/26	コンクリートコア×3、コンクリートはつり×1
	2階	Y	2023/01/26	コンクリートコア×1
集中廃棄物 処理施設 (プロセス主 建屋)	屋上	Y	2023/1/26	スミアろ紙×3、目地材×1、コンクリート片×1、金属片×1
	4階	Y	2023/1/26	スミアろ紙×2、金属片×1、スミアろ紙×2、石膏ボード×1
	3階	Y	2023/1/26	金属片×3、スミアろ紙×5、塗装片(床)×1
	2階	Y	2023/1/26	スミアろ紙×1
	2階(階段室)	Y	2023/1/26	塗装片(床)×1、スミアろ紙×1
	1階(津波浸水エリア)	Y	2023/1/26	スミアろ紙×1、金属片×1、石膏ボード×1



測定方法

(手前12個のコンテナの表面線量率は0.0011-0.023 mSv/h)



ガンマカメラの測定結果

図2 焼却灰コンテナのガンマカメラ測定(2022年度実施)

2.3 試料の採取と管理、輸送 試料の保管

- 瓦礫、水処理二次廃棄物、滞留水等の試料は、1F構内の固体廃棄物貯蔵庫 管理棟内の予備室及び操作室(図1)で継続して保管管理している。
- 2023年度は建屋やコンテナ等から採取した瓦礫183試料(図2)、増設多核種除去設備で発生した炭酸塩沈殿スラリー2試料(図3)、増設雑固体廃棄物焼却設備で発生した焼却灰20試料(図4)を受け入れた。
- 2023年度末時点においておよそ 1,500 試料を固体廃棄物貯蔵庫で保管管理している(表1)。



図1 試料の保管状況
(予備室、2024年2月末)

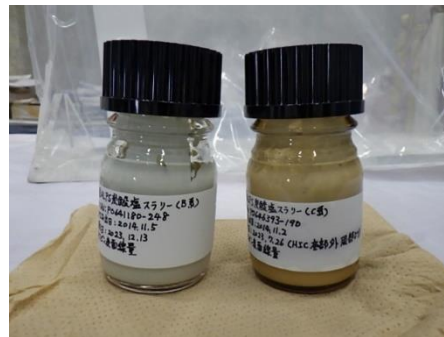


図3 炭酸塩沈殿スラリー試料の例



図2 瓦礫試料の例
(3号機Rw/B 1階壁面コンクリートコア)



図4 焼却灰試料の例

表1 保管管理している試料の内訳

試料の種類		試料数
瓦礫		667
スラッジ		65
滞留水		25
処理水		265
多核種除去設備および増設多核種除去設備	吸着材	66
	鉄共沈スラリー	23
	炭酸塩沈殿スラリー	50
濃縮廃液スラリー		8
焼却灰		45
土壌・植物		274
返還試料		42
合計		1530

2.3 試料の採取と管理、輸送

試料の輸送

- 1F から分析を実施する分析施設(NDC社、NFD社、原子力機構 CPF)への試料輸送を 2022年度に計2回、2023年度に計3回、いずれもA型輸送物として実施した(表1)。
- また、分析施設(NFD社)において 2021 年度末までに分析が終了した残試料について、2022年10月26日に1Fへ返却する輸送を実施した(表2)。

表1 福島第一原子力発電所から分析施設への分析試料の輸送実績

年度	回数	輸送日	輸送先	輸送物	試料数
2022年度	第1回	2022年9月14日	NDC社	瓦礫(建屋瓦礫、金属タンクブラスト除染回収ダスト)	18
			NFD社	瓦礫(建屋瓦礫)	2
	第2回	2023年3月16日	NDC社	滞留水および処理水(SARRY II 入口水およびSARRY II 処理水)	6
			原子力機構 CPF	水処理二次廃棄物(既設ALPS吸着材および増設ALPS吸着材)	6
2023年度	第1回	2023年10月5日	NDC社	瓦礫(建屋瓦礫、屋外保管瓦礫、屋内保管瓦礫)	12
	第2回	2023年11月16日	NFD社	水処理二次廃棄物セシウム吸着材	7
	第3回	2024年2月21日	原子力機構 CPF	水処理二次廃棄物(ALPS炭酸塩沈殿スラリーおよびALPS鉄共沈スラリー)	7

表2 分析施設から福島第一原子力発電所への分析残試料の輸送実績

年度	回数	輸送日	発送元	輸送物	試料数
2022年度	-	2022年10月26日	NFD社	水処理二次廃棄物(濃縮廃液スラリー)の残試料	2
				水処理二次廃棄物(既設ALPS炭酸塩沈殿スラリー)の残試料	2
				水処理二次廃棄物(増設ALPS炭酸塩沈殿スラリー)の残試料	2
				分析残滓	1

2.3 試料の採取と管理、輸送

試料の輸送(セシウム吸着材)

- セシウム吸着装置の使用済み吸着塔から吸着材の試料(計7種)が IRID により採取された*¹。(図1、表1)
- 試料の一式を 2023 年 10月26日に受け取って一時的に保管し、輸送の準備を進めた。

表1 採取した吸着材の種類と量

吸着材 (呼称)	通水時期	採取日	採取量 * ² (g)	線量率 * ³ (mSv/h)	備考
IE96 (小)	2013/10/17 ~2014/2/25	2023/6/12	3.68	24.0	HTI建屋滞留水のセシウム濃度が低位安定した時期のもの
IE96 (大)	2011/8/29 ~2011/9/7	2023/7/19	2.43	61.6	初期に供用されたIE96メディアで高線量率のもの
IE911	2011/8 ~2012/3/8	2023/7/31	6.82	0.924	SARRY 運開時の IE911 初装荷品
AGH	2011/6/15 ~2011/9/13	2023/9/6	17.97	1.40	AGHの初装荷品
H(小)	2013/10/29 ~2013/11/6	2023/9/14	16.12	63.2	プロセス主建屋滞留水のセシウム濃度が低位安定した時期のもの
H(大)	2011/6/15 ~2011/6/27	2023/9/27	測定せず	245	KURION 運開時の H 初装荷品
TSG	2015/3/4 ~2015/3/23	2023/10/4	14.60	6.02	Sr吸着運用開始(2014/12月)後、比較的初期のもの TSGのうち測定値最大

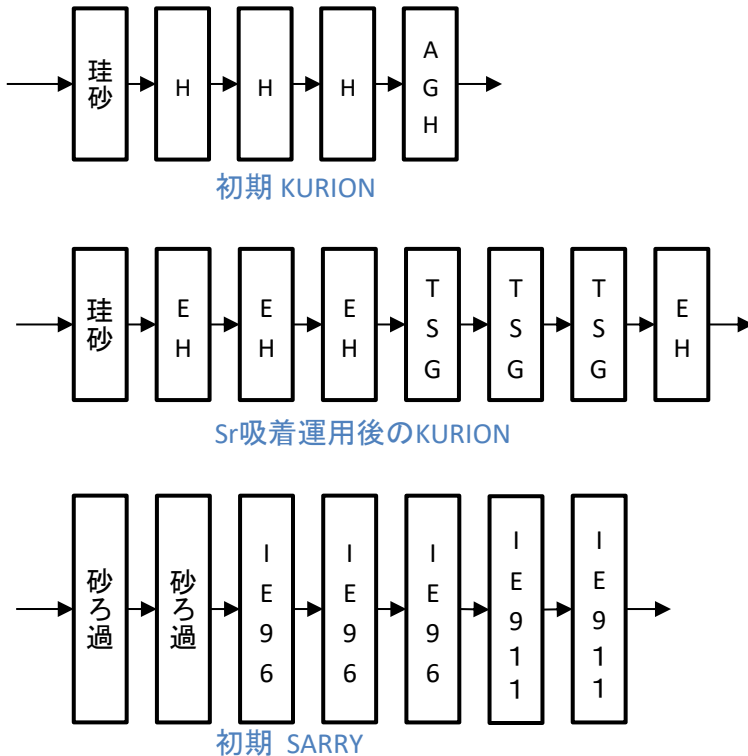


図1 セシウム吸着装置の吸着塔構成(吸着材の順序)

注 矢印は水の流れを示す。ある吸着材を複数の吸着塔に充填して用いる場合、通液量に応じて通水の順序を変えて運用される。
EHは工学ハーシュライト。

*² 試料採取のサンプリングヘッド容量: SARRY吸着塔では 3 mL、KURION 吸着塔では 20 mL。

*³ 収納容器表面、伸縮式線量率計測定値からの推算。

*¹ IRID, 令和4年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に係る研究開発(セシウム吸着塔からの吸着材採取技術及び固体廃棄物の分別に係る汚染評価技術の開発)) 最終報告(その2), 令和6年2月。

2.3 試料の採取と管理、輸送

試料の輸送(セシウム吸着材)

- 7種の試料(セシウム吸着材)をNFD-2型輸送容器(A型、NFD社所有)に格納した状態で受け取り、固体廃棄物貯蔵庫内所定場所にて一時保管した後、第2回輸送にて2023年11月にNFD社へ輸送した。(図1)
 - 試料は使用した採取治具ごと収納容器に収納されていた。
 - 吸着材が含有する水によって水素の発生が懸念されるため(計算によりごく少ないものと評価している)、ベントのために輸送容器の本体と蓋の間に隙間を設ける処置を講じた。
- 輸送容器をNFD社に移送後、それぞれの試料をセル内で取り出し、金属容器に移し替えて保管している。(図2)

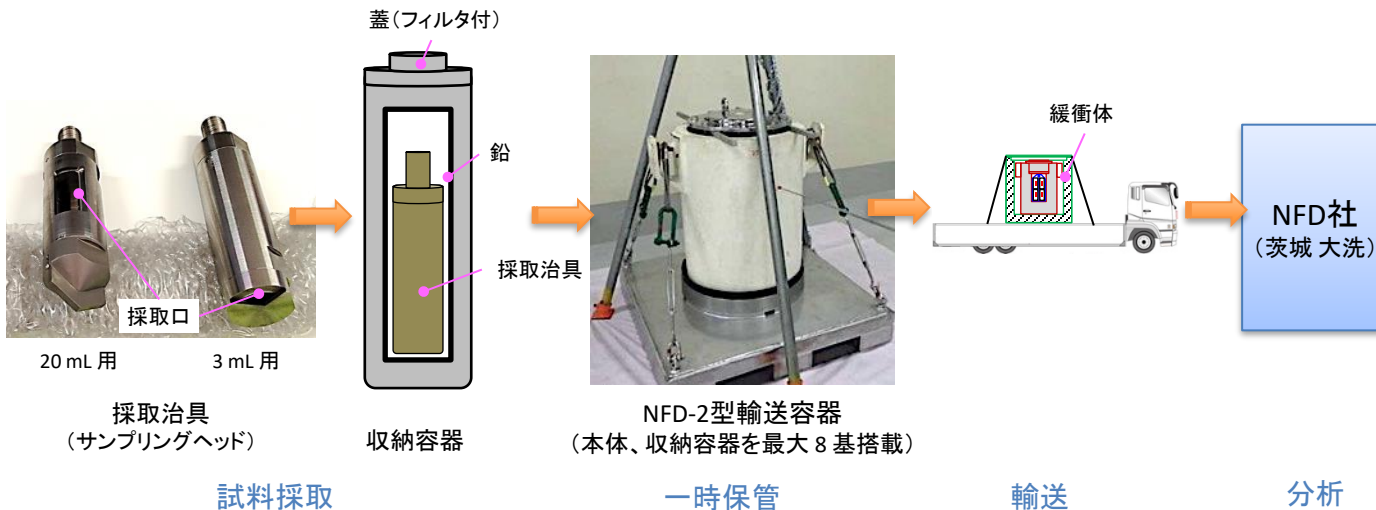


図1 採取したセシウム吸着材試料の分析に至る流れ



図2 セル内での試料の移し替え

2.4 分析の実施・結果

試料の種類

- 瓦礫
 - コンクリート、金属等（建屋内採取物、屋外集積物）
 - 2号機TIP配管閉塞物
 - フランジタンク除染物

- 滞留水
 - 3号機、タンク（スラッジを含む）
 - 1号機、集中廃棄物処理施設（スラッジを含む）

- 水処理二次廃棄物
 - ALPS 吸着材
 - セシウム吸着装置（SARRY II）工程水
 - セシウム吸着装置（KURION、SARRY）吸着材

- 特定核種の分析
 - 瓦礫・汚染水の I-129
 - 汚染水の Tc-99
 - 汚染水の Ni-63

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(コンクリート、金属等)

■ 分析試料(2022年度)

- 建屋の解体における廃棄物の性状把握に資するよう、場所(建屋や階、床/壁)や材料の多様性に着目して、1から3号機建屋にて採取した瓦礫試料を選び分析した。

表1 瓦礫試料の情報

採取場所	性状	試料番号	採取日	質量(g)	表面線量率 γ ($\mu\text{Sv/h}$)	表面線量率 $\beta\gamma$ ($\mu\text{Sv/h}$)
3号機 原子炉建屋 1階	コンクリート	C-3RB-1	2021年11月9日	36.30	20	700
	金属(錆付)	M-3RB-1#1	2021年11月9日	88.20	20	710
	金属(錆付)	M-3RB-2#3	2021年11月9日	49.54	17	455
3号機 原子炉建屋 1階	塗装片	R-3RB-12#2	2021年11月9日	4.35	2.5	65
	金属(パイプ)	M-3RB-3	2021年11月9日	137.80	10	1200
2号機 タービン建屋 1階	ビニールテープ	R-2TB-9	2021年11月11日	2.40	1.5	6
	保温材(有機物)	R-2TB-10	2021年11月11日	2.90	1.5	20
1号機 廃棄物処理建屋 1階	金属	M-1WB-2	2021年11月12日	57.80	1.5	20
	スミア(床)	R-1WB-2	2021年11月12日	0.80	1.5	6
1号機 原子炉建屋 3階	金属(ボルト、塗膜あり)	M-1RB-2	2021年12月13日	50.80	30	1500
	塗装片(壁)	R-1RB-8#2	2021年12月13日	8.55	67	1300
	スミア	R-1RB-9	2021年12月13日	0.80	5	400
2号機 原子炉建屋 2階	スミア(床)	R-2RB-3	2021年12月21日	0.80	30	3000
	スミア(壁)	R-2RB-4	2021年12月21日	0.80	5	400



C-3RB-1



R-3RB-12#2



M-3RB-2#3



M-3RB-1#1



M-3RB-3

図1 瓦礫試料の外観

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(コンクリート、金属等)

■ 分析試料(2023年度)

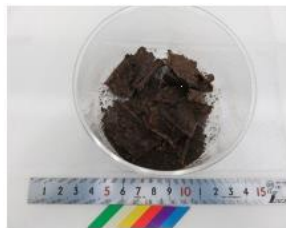
- 前年度に引き続き、建屋内で採取された試料として、2号機原子炉建屋及び集中廃棄物処理施設(プロセス主建屋)にて採取された瓦礫を分析した。
- また、屋外集積の瓦礫として、Cヤードの集積瓦礫、コンテナに収納された瓦礫の分析を実施した。

表1 瓦礫試料の情報

採取場所	性状	試料番号	採取日	質量 (g)	表面線量率 γ ($\mu\text{Sv/h}$)	表面線量率 $\beta\gamma$ ($\mu\text{Sv/h}$)
2号機 原子炉建屋 1階	コンクリート(床はつり)	C-2RB-1	2022年11月22日	151	50	950
	コンクリート(床はつり)	C-2RB-2	2022年11月22日	213	24	420
	コンクリート(床はつり)	C-2RB-3	2022年11月22日	115	1400	11000
	塗装片	R-2RB-23	2022年12月5日	5.74	< 0.5	1.2
集中廃棄物処理施設 プロセス主建屋 1階	金属	M-PMB-6	2023年1月26日	29.3	1.8	34
	石膏ボード	R-PMB-20	2023年1月26日	22.9	0.8	3.3
Cヤード	コンクリート	C-RSA-1	2021年10月29日	589	< 0.5	< 0.5
	コンクリート	C-RSA-7	2021年12月9日	298	< 0.5	< 0.5
	コンクリート	C-RSA-18	2022年1月21日	274	< 0.5	< 0.5
瓦礫収納コンテナ	金属	M-SC-1	2022年9月13日	44.8	1.3	1.1
	金属(配管内錆)	M-SC-4	2022年9月13日	5.92	< 0.5	2.0
	金属(アルミ足場材)	M-SC-6	2022年9月13日	1.57	< 0.5	< 0.5



C-RSA-1



M-PMB-6



R-PMB-20



M-SC-6



C-2RB-3



R-2RB-23

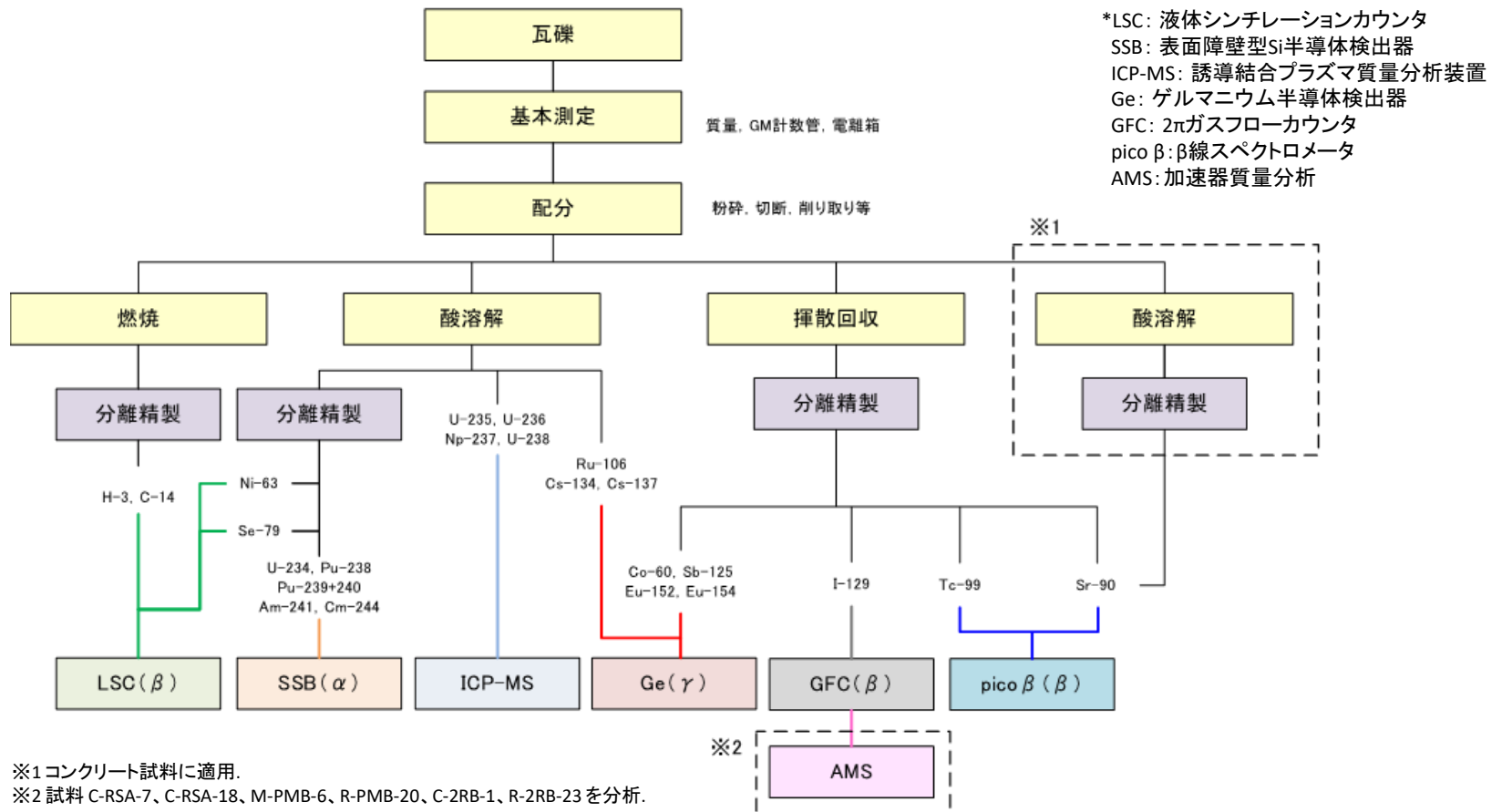
図1 瓦礫試料の外観

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(コンクリート、金属等)

■ 分析方法

- 核種に応じた前処理法(燃焼法、酸溶解法、揮散回収法)を適用し、核種を分離・精製して測定、定量した(図1)。
- I-129 の濃度が低い試料の一部を加速器質量分析 (AMS) により分析した。



※1 コンクリート試料に適用。

※2 試料 C-RSA-7、C-RSA-18、M-PMB-6、R-PMB-20、C-2RB-1、R-2RB-23 を分析。

図1 瓦礫の分析フロー

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(コンクリート、金属等)

■ 分析結果(2022年度)

- 分析した試料(P. 19 表1)に Sr-90、Cs-134、137、Sr-90、U-238が検出された。一部の試料には、C-14、Co-60、Tc-99、Sb-125、Eu-154、U-234、235、Pu-238、239+240、Am-241、Cm-244が検出された。(図1、図2)
- I-129 は放射線測定(2πガスフローカウンタ)で不検出であった。一部の試料(3号機原子炉建屋)を加速器質量分析(AMS)に供し、定量することができた。
- U-234/U-235/U-238比は天然ウランの同位体比と同等であった。Pu-238/Pu-239+240比は照射燃料のプルトニウム同位体比と同等であった。

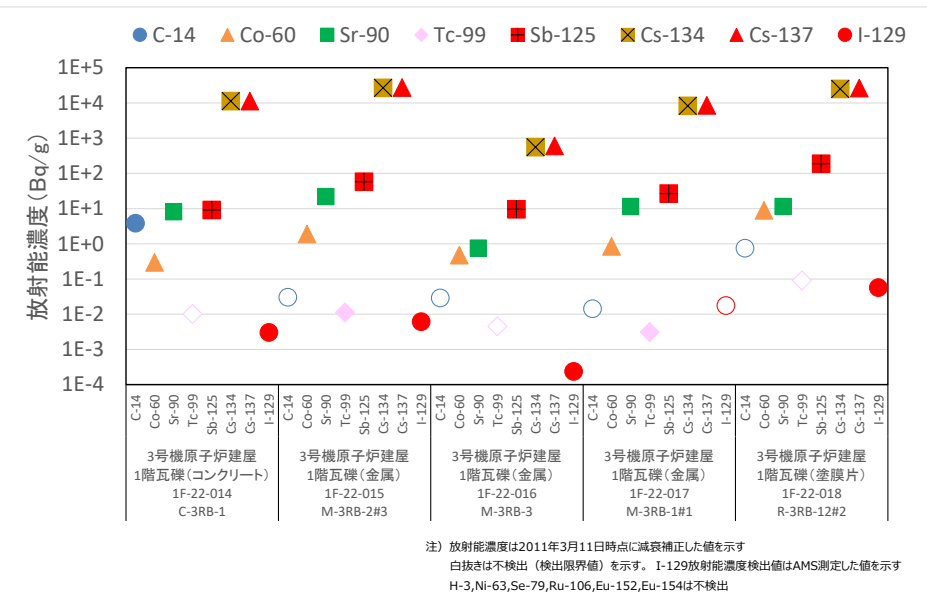


図1 3号機瓦礫試料分析結果(γ・β核種)*1

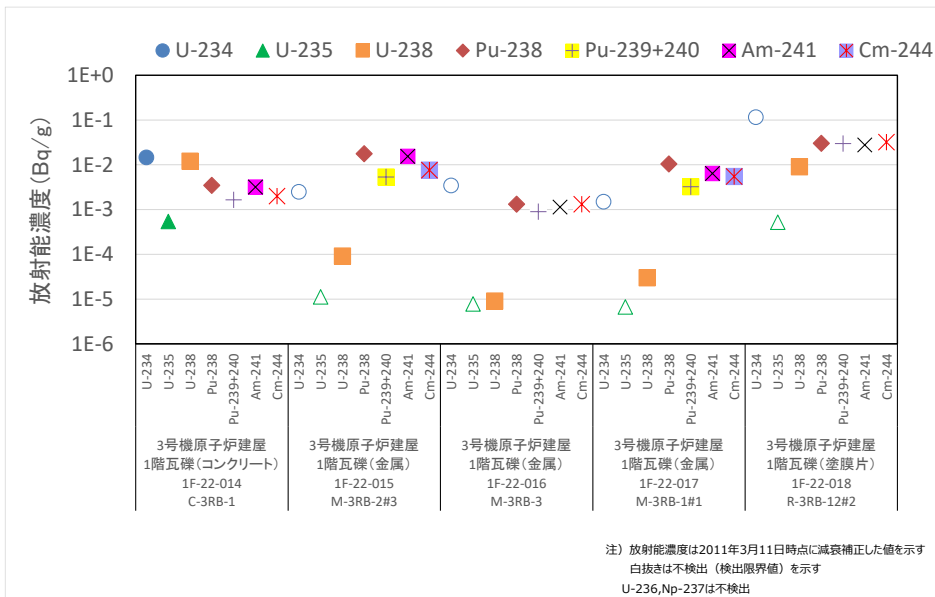


図2 3号機瓦礫試料分析結果(α核種)*1

*1 白抜きは検出下限値未満。放射能濃度は2011年3月11日に減衰補正した値。全α濃度については測定時点の値。

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(コンクリート、金属等)

■ 分析結果(2022年度)

- Sr-90、Sb-125、Pu 同位体、Am-241、Cm-244 の放射能濃度は、Cs-137 に対する比のばらつきが 10^4 の範囲であり、相関がみられた(図1)。

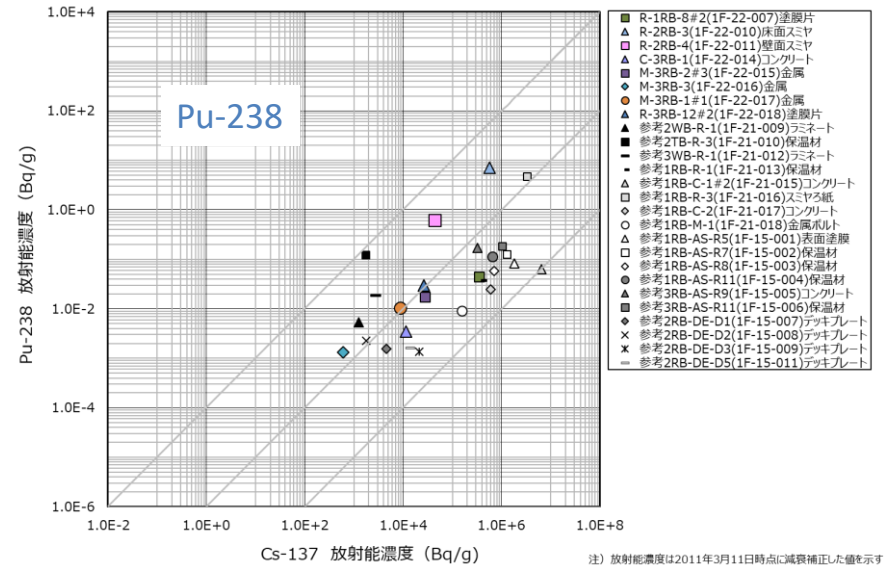
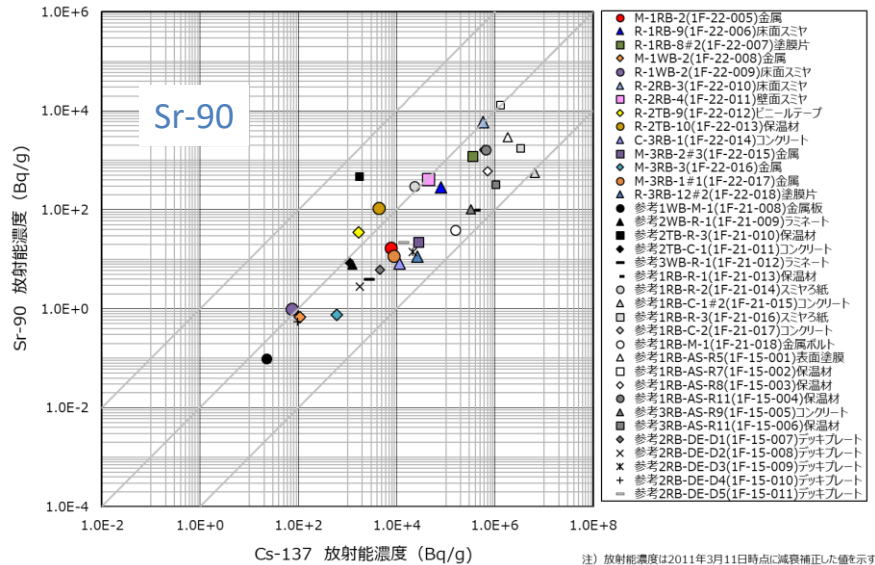


図1 Cs-137に対する放射能濃度の相関*1

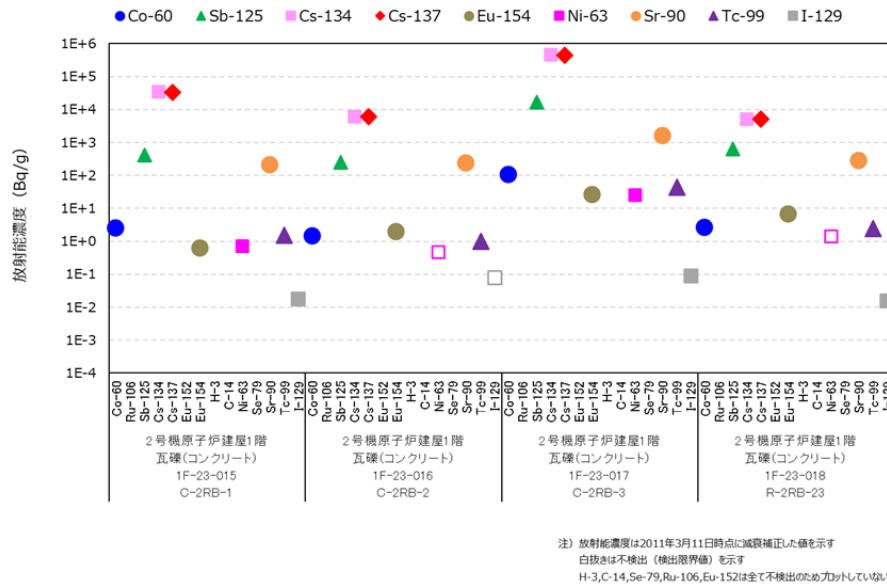
*1 比較対象とCs-137の両核種が検出された試料を計算した。放射能濃度は2011年3月11日に減衰補正した値。

2.4 分析の実施・結果

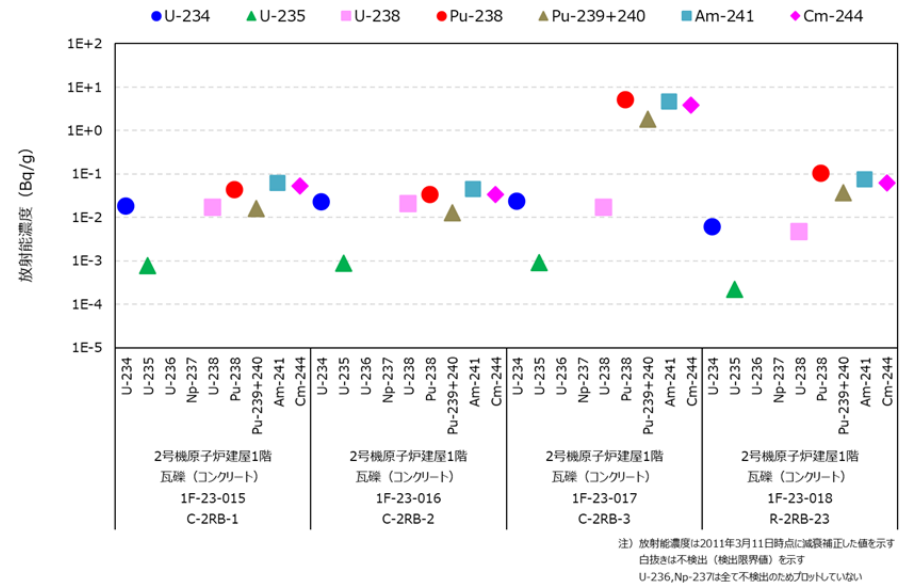
瓦礫(コンクリート、金属等)

■ 分析結果(2023年度)

- 2号機原子炉建屋1階にて採取された試料(P.20表1)から、Co-60、Sb-125、Cs-137、Cs-134、Eu-154、Sr-90、Tc-99及びU同位体、Pu同位体、Am-241、Cm-244が検出された。一部の試料でNi-63、I-129が検出された。
- ✓ 採取位置により濃度の違いがあるものの、組成はおおよそ同等であった。
- 検出されたU同位体の組成は天然の組成に近い。



γ ・ β 核種



α 核種

図1 瓦礫の分析結果*1

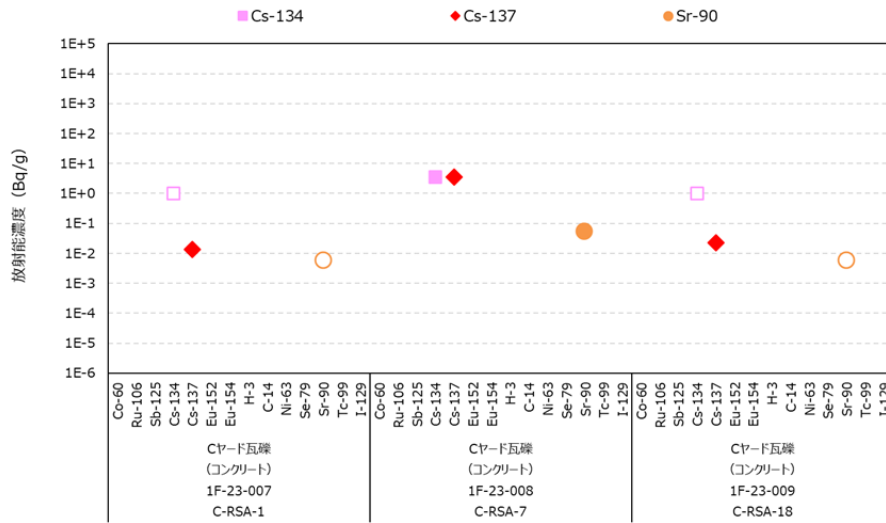
*1 白抜きは検出下限値未満。放射能濃度は2011年3月11日に減衰補正した値。

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(コンクリート、金属等)

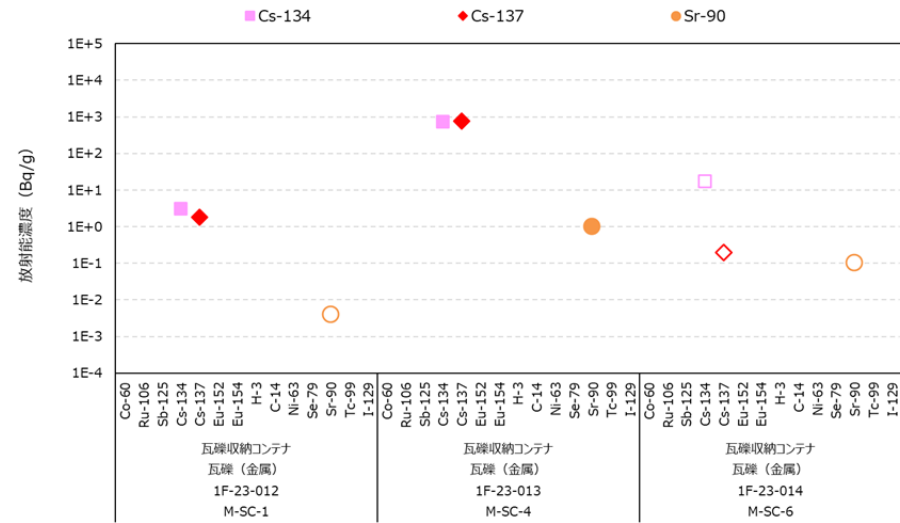
■ 分析結果(2023年度)

- Cヤードの集積瓦礫、コンテナに収納された瓦礫(P. 20 表1)から、Cs-137、Cs-134 及び Sr-90 が検出された(図1)。
- Cヤードの瓦礫においては、U-234、U-235、U-238 が検出され、その組成は天然の組成に近い。
- 瓦礫収納コンテナの瓦礫からは U-238 のみが検出された。



注) 放射能濃度は2011年3月11日時点に減衰補正した値を示す
白抜きは不検出(検出限界値)を示す
H-3, C-14, Co-60, Ni-63, Se-79, Tc-99, Ru-106, Sb-125, I-129, Eu-152, Eu-154は全て不検出のためプロットしていない

Cヤードから採取された瓦礫



注) 放射能濃度は2011年3月11日時点に減衰補正した値を示す
白抜きは不検出(検出限界値)を示す
H-3, C-14, Co-60, Ni-63, Se-79, Tc-99, Ru-106, Sb-125, I-129, Eu-152, Eu-154は全て不検出のためプロットしていない

瓦礫収納コンテナから採取された瓦礫

図1 瓦礫の分析結果(γ ・ β 核種)*1

*1 白抜きは検出下限値未満。放射能濃度は2011年3月11日に減衰補正した値。

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(コンクリート、金属等)

■ 分析結果

- 既報の分析結果と合わせ主要核種(Cs-137、Co-60)との相関を調べた。FP核種であるCs-137とSr-90は相関がみられた。一方で、Sb-125やPu-238は、生成過程の異なるCo-60との方が良い相関性が見られた。Tc-99は一部の試料でCo-60との相関がみられるが、採取場所によって相関性が異なる可能性があり、データの蓄積が必要である(図1)。

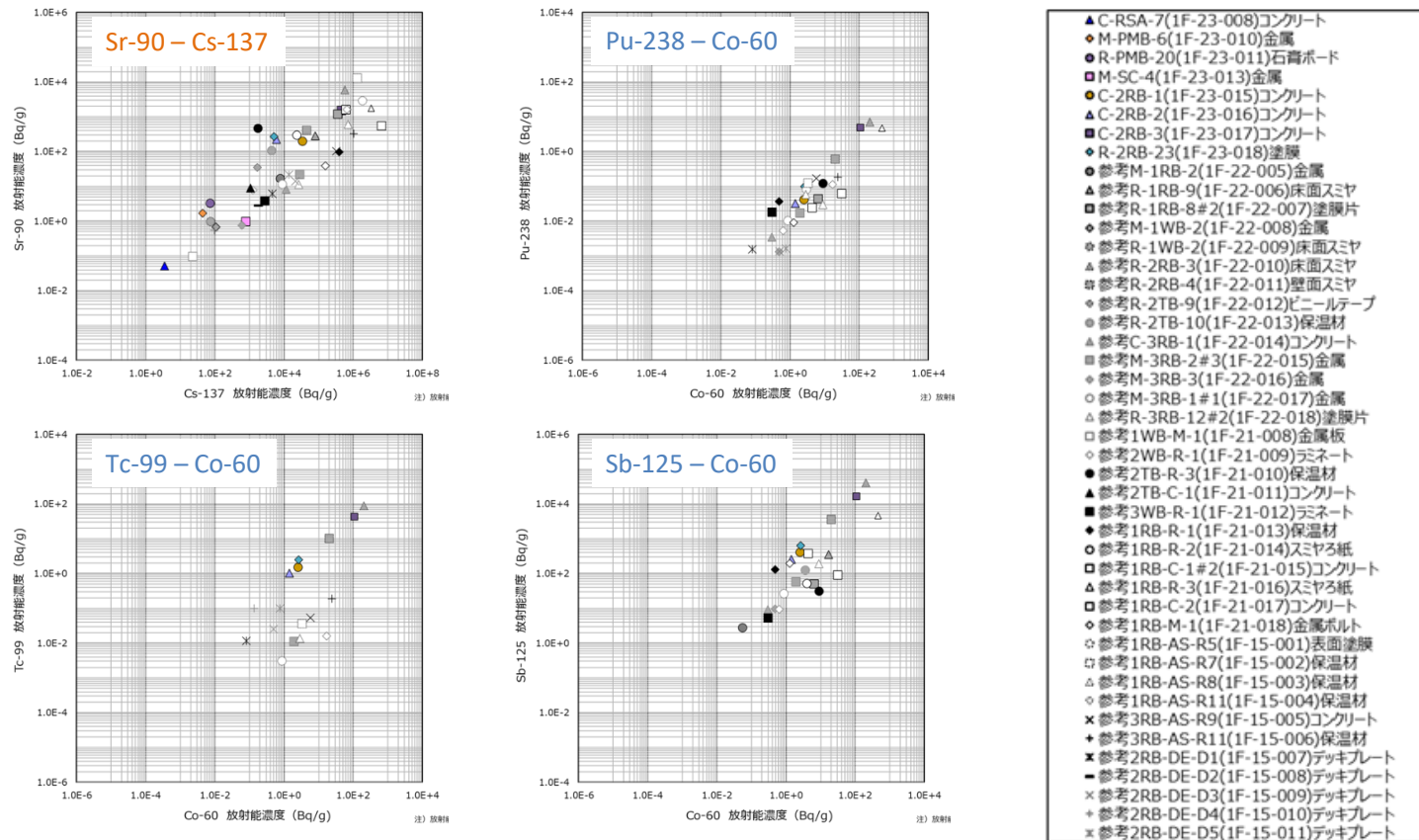


図1 Cs-137またはCo-60との放射能*1の相関

*1 放射能濃度は2011年3月11日に減衰補正した値。

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(2号機TIP配管閉塞物)

- 2号機の原子炉炉心部につながる計装システム配管(TIP配管)において閉塞物が確認されており、2013年7月の調査において採取された(図1、表1)^{*1,2}。
- Dライン(図2)で採取された閉塞物を分析した。歯ブラシにより回収されており(図3)、超音波洗浄で剥離し、王水・フッ酸溶解した溶解液を分析した。

表1 TIP配管閉塞物試料と試料受入れ時のγ分析結果

試料(採取場所)	Cs-137 [Bq]	Co-60 [Bq]
Dライン	2.2×10^5	2.1×10^5
Bライン (参考:2018年度実施)	3.3×10^5	4.7×10^6
Cライン (参考:2019年度実施)	3.1×10^4	4.4×10^6

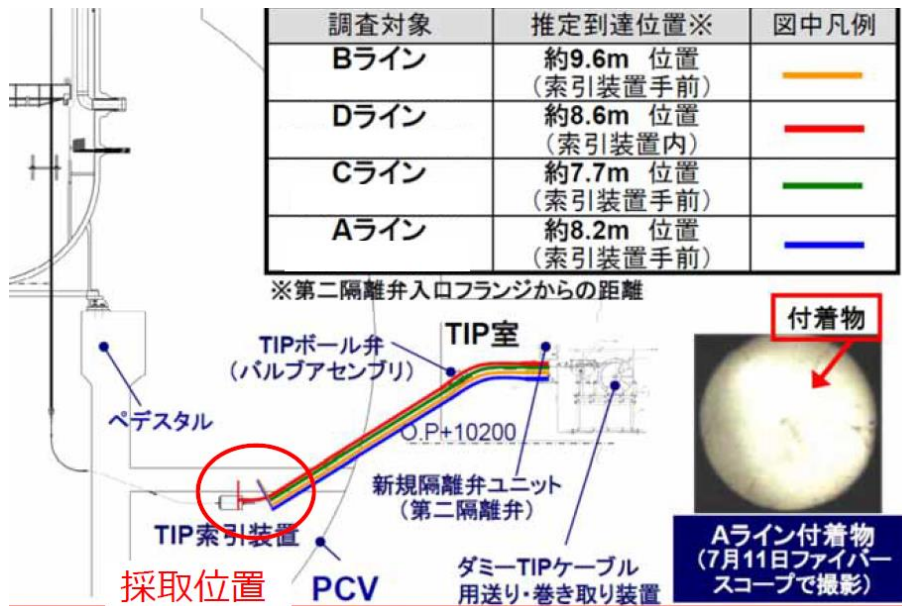


図1 TIP配管閉塞物の採取位置^{*1}

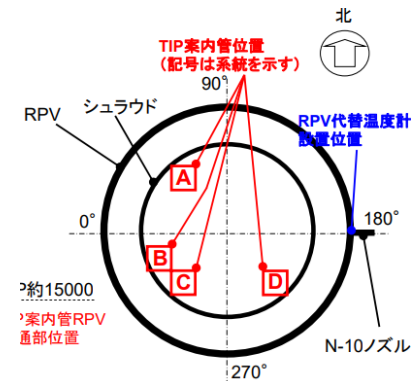


図2 炉心部におけるTIP配管の配置^{*2}



図3 試料外観

^{*1} 東京電力ホールディングス株式会社、“福島第1原子力発電所のサンプル分析について”，第56回特定原子力施設監視・評価検討会 (2017)。

^{*2} 東京電力株式会社，“2号機TIP案内管の活用に向けた検討状況について”，2012年12月25日。

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(2号機TIP配管閉塞物)

■ 分析結果(元素)

- Fe、Cr、Ni、Zr、Mo など金属元素が検出された。
- Fe に対する比をステンレス鋼や炭素鋼^{*1}と比較すると、Cr、Co、Ni の比がステンレス鋼に近い。(図1)
- Dラインは、Mo、ZrやSnの比がステンレス鋼に比べ大きい^{*2}。Moは潤滑剤(二硫化モリブデン)、Zrはジルカロイ(被覆管やチャンネルボックス)由来の可能性がある。

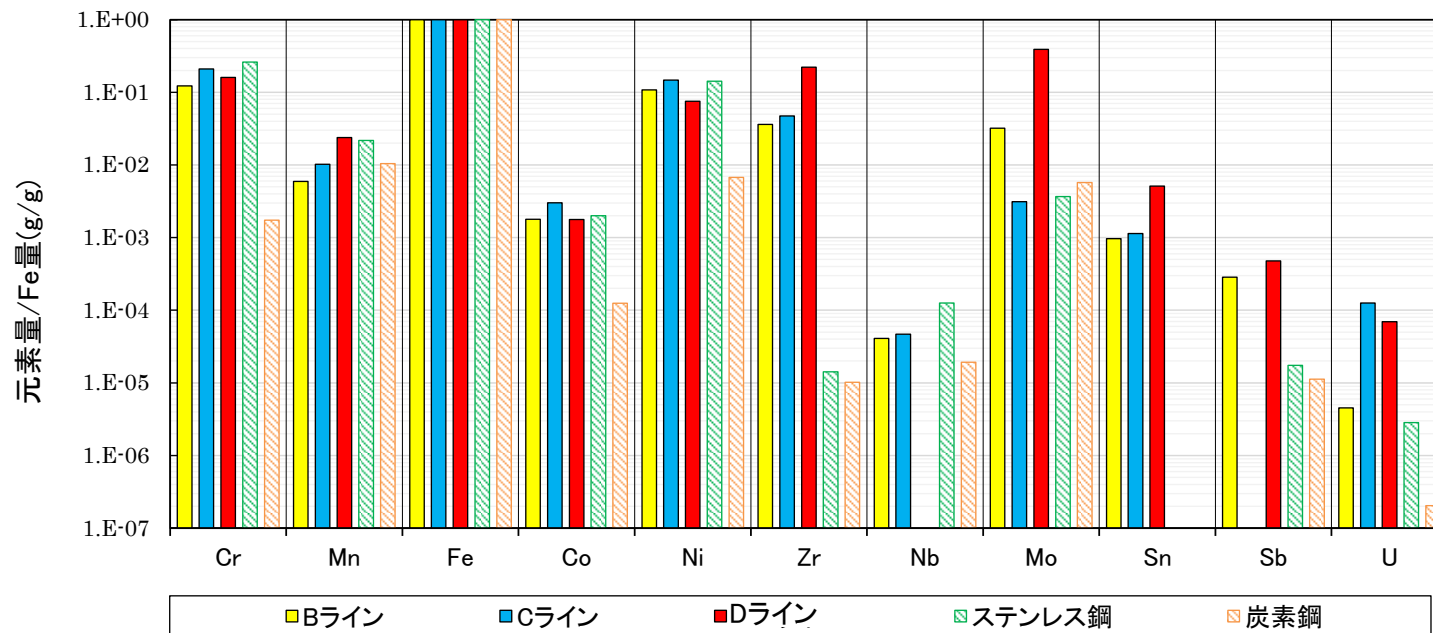


図1 TIP配管閉塞物の元素分析結果(Feに対する比)

*1 原子力環境整備センター, “原子力発電所の運転及び解体に伴い発生する廃棄物の物量, 性状等に関する資料集,” 平成10年11月.

*2 東京電力株式会社, “2号機TIP案内管付着物の簡易金属分析結果について,” 2013年11月28日.

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(2号機TIP配管閉塞物)

■ 分析結果(放射性核種)

- 放射性核種の濃度をU-238を基準として燃料組成で規格化する(輸送比を算出する)と(図1)、アクチニド核種は1に近い値を示し、燃料ペレットからともに移行したと考えられる。
- ランタニドの Eu-154、155 はアクチニド核種と化学的な挙動が類似すると考えられるが、高い値を示す傾向があり、その原因解明が課題である。
- アクチニドよりも揮発性が高いFP核種(Sr-90、Sb-125、Cs-134、137)はより高い輸送比を示す。FPと材料の放射化により生成しうる核種は、由来の判定が難しいが、NbやZr核種は材料の寄与が大きいとみられる。

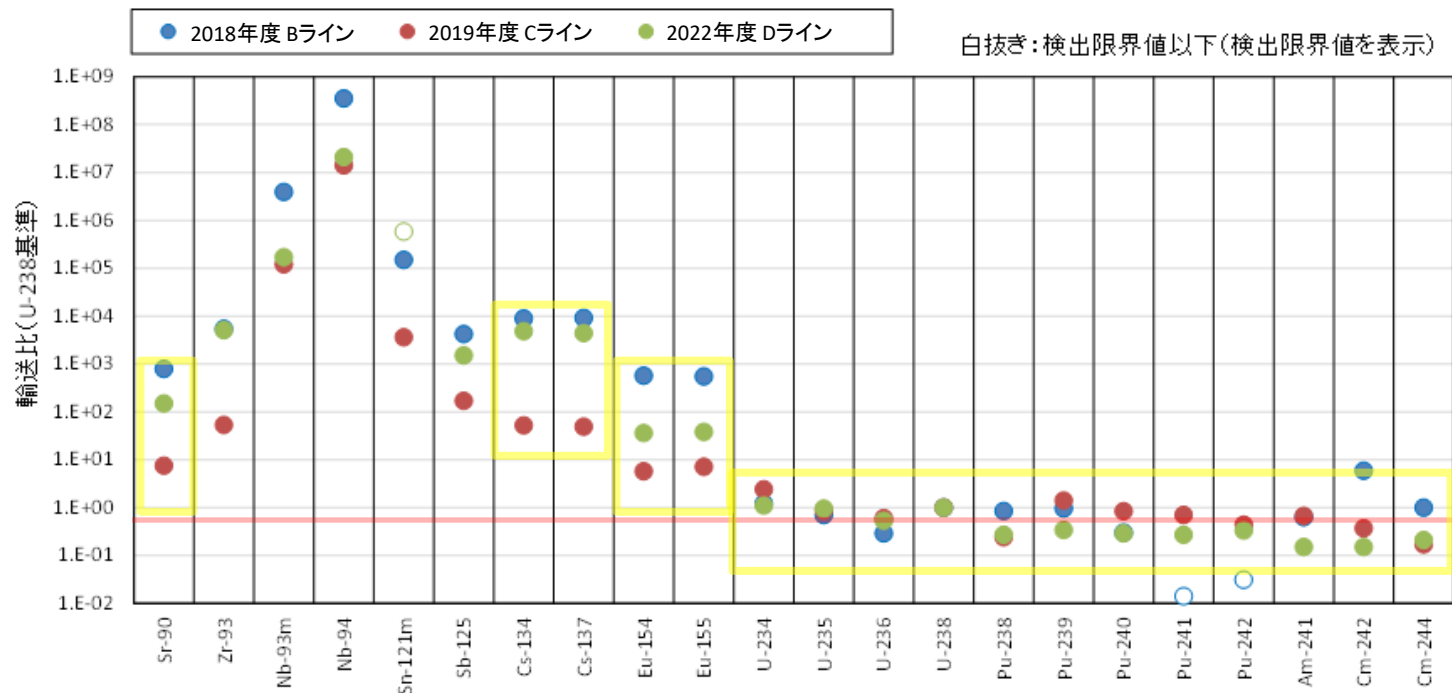


図1 TIP配管閉塞物の放射性核種分析結果(U-238基準の輸送比)

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(フランジタンク除染物)

- フランジ型(組立型)のタンクの解体が進められ、切断によるタンク片は容器へ収納し屋外保管されている。これらの汚染タンク片について大型機器除染設備にてブラスト除染が行われている。
- ブラスト除染で回収したダストとタンク内面の切削片を分析した。
- Sr-90 を主体とする汚染であるとみられ、汚染核種を詳細に分析した。I-129 は濃度が低いとみられ、加速器質量分析 (AMS) により検出、定量を試みた。

表1 試料の情報

性状	試料番号	採取場所	除染の時期	採取日	質量 (g) ^{*1}	表面線量率 γ ($\mu\text{Sv/h}$) ^{*1}	表面線量率 $\beta\gamma$ ($\mu\text{Sv/h}$) ^{*1}
ブラスト除染ダスト	M-BD-1#2	ドラム缶 (18-00070)	2018年9月頃	2022年5月25日	139.99	9	4,000
ブラスト除染ダスト	M-BD-8#2	ドラム缶 (18-00014)	2019年1月頃	2022年5月26日	129.55	5	2,500
ブラスト除染ダスト	M-BD-10#2	集塵機A廃ドラム缶 (R3-1-1)	2021年1月頃	2021年11月15日	58.60	25	2,500
タンク内面の切削片	M-BD-13	角型タンク内面 (No16-22)	— ^{*2}	2022年6月29日	76.97	6	3,000



図1 タンクの解体^{*3}

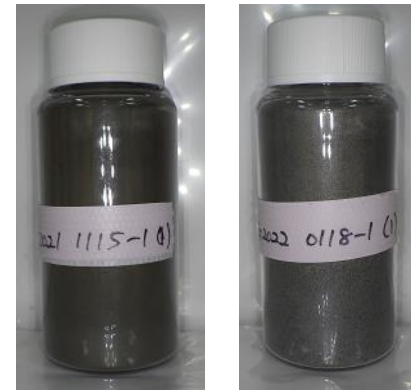


図2 ブラスト除染ダスト試料の外観

^{*1} 100 mL ポリ瓶に入れて測定。 ^{*2} タンク内面を切削して採取した。 ^{*3} 東京電力ホールディングス(株), “大型機器除染設備設置の概要,” 2019.1.23.

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(フランジタンク除染物)

■ 試料の外観

- フランジタンクのブラスト除染ダストは、黒色の粉末状であった。(図1上)
- 角型タンクの内面切削片は、茶褐色のフレーク状で、色調や形状が異なるものが混合していた(図1下)。放射線測定により分画の放射エネルギーが同等であることを確認し、粉碎したものを分析に供した。

■ 分析方法

- 核種に応じた前処理法(燃焼法、酸溶解法、揮散回収法)により処理し、核種を分離・精製して測定した。(図2)



M-BD-1#2

(フランジタンク ブラスト除染ダスト)



M-BD-13

(角型タンク内面の切削片)

図1 タンク試料の外観

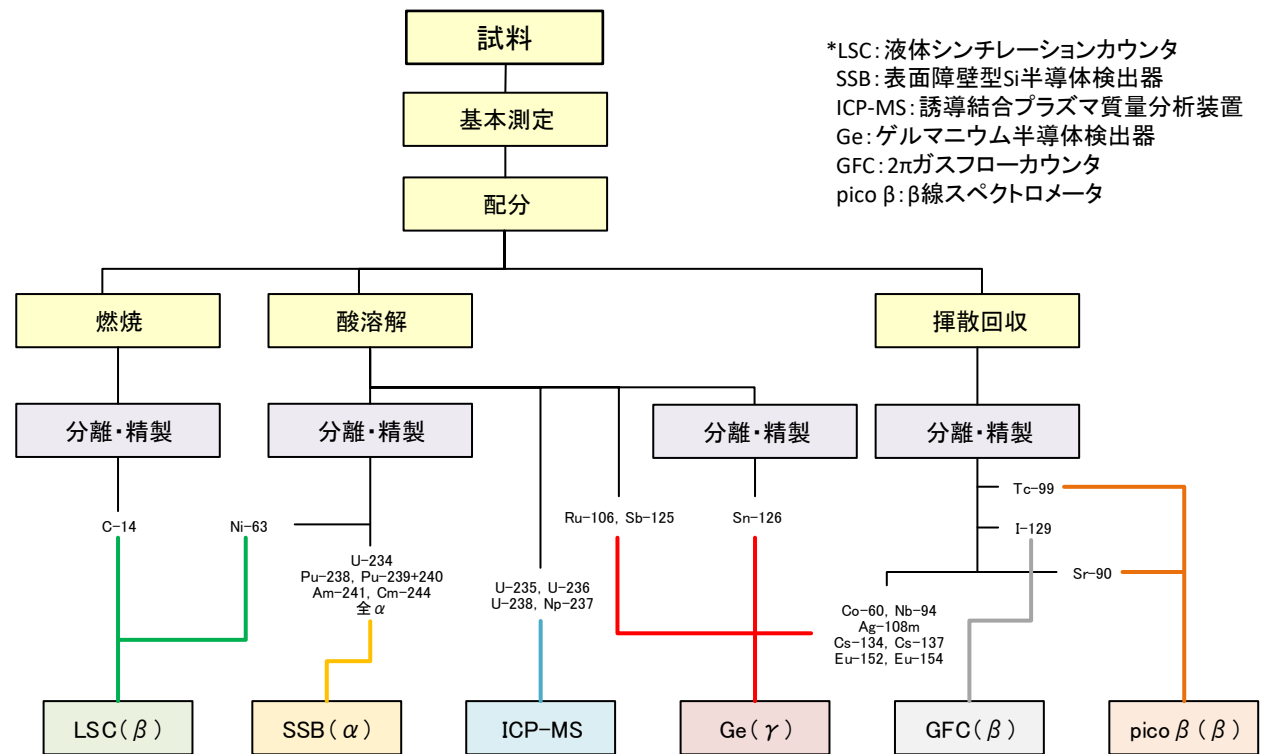


図2 ブラスト除染ダスト及び切削片の分析フロー

2.4 分析の実施・結果

瓦礫(フランジタンク除染物)

■ 分析結果

- 分析した試料(P. 30 表1)から、Co-60、Sb-125、Cs-137、Ni-63、Sr-90、Tc-99、I-129、U-235、U-238 が検出された。また、一部の試料から Cs-134、C-14、Pu-238、Pu-239+240 が検出された。(図1、2)
- 汚染の主要核種は Sr-90 であり、放射能の 96.6~99.2% を占めた。タンクで保管されていたRO濃縮塩水は、セシウム吸着装置等により Cs-134、Cs-137 が除去された一方、除去されなかった Sr-90 の放射能濃度が高かったと推定される。Sr-90/I-129 比は $5.3 \times 10^4 \sim 2.7 \times 10^5$ であった。
- U-235/U-238 比は天然ウランの同位体比と同等であった。Pu-238/Pu-239+240 比は照射燃料のプルトニウム同位体比と同等であった。

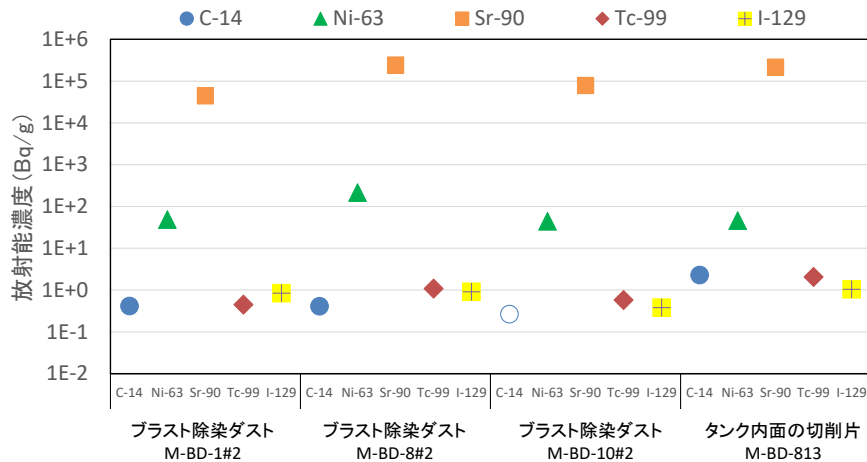


図1 検出された主なβ核種の分析結果*1

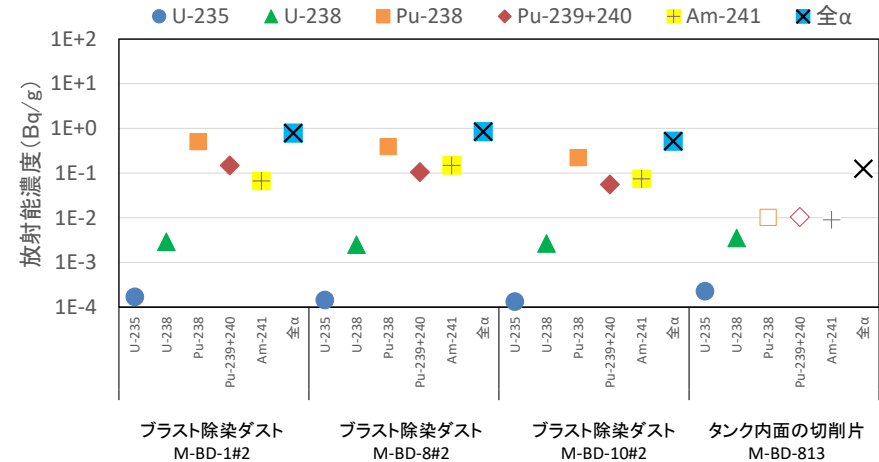


図2 検出された主なα核種の分析結果*1,*2

*1 白抜きは検出下限値未満。放射能濃度は2011年3月11日に減衰補正した値。ただし、全α濃度については測定時点の値。

*2 U-234、U-236、Np-237、Cm-244は不検出。

2.4 分析の実施・結果

滞留水(3号機、タンク)

- 試料
 - 3号機トーラス室水、3号機MSIV室水、EエリアD1タンク内の残水を分析した。
- 概要
 - 水質(表1)
 - ろ過(孔径 10、1、0.1、0.02 μm のメンブレンフィルタによる段階的なるろ過)によるフィルタ回収物の溶解液およびろ液を分析
 - 同 α(Pu、Am、Cm)、γ核種および Sr-90 分析
 - 同 元素分析

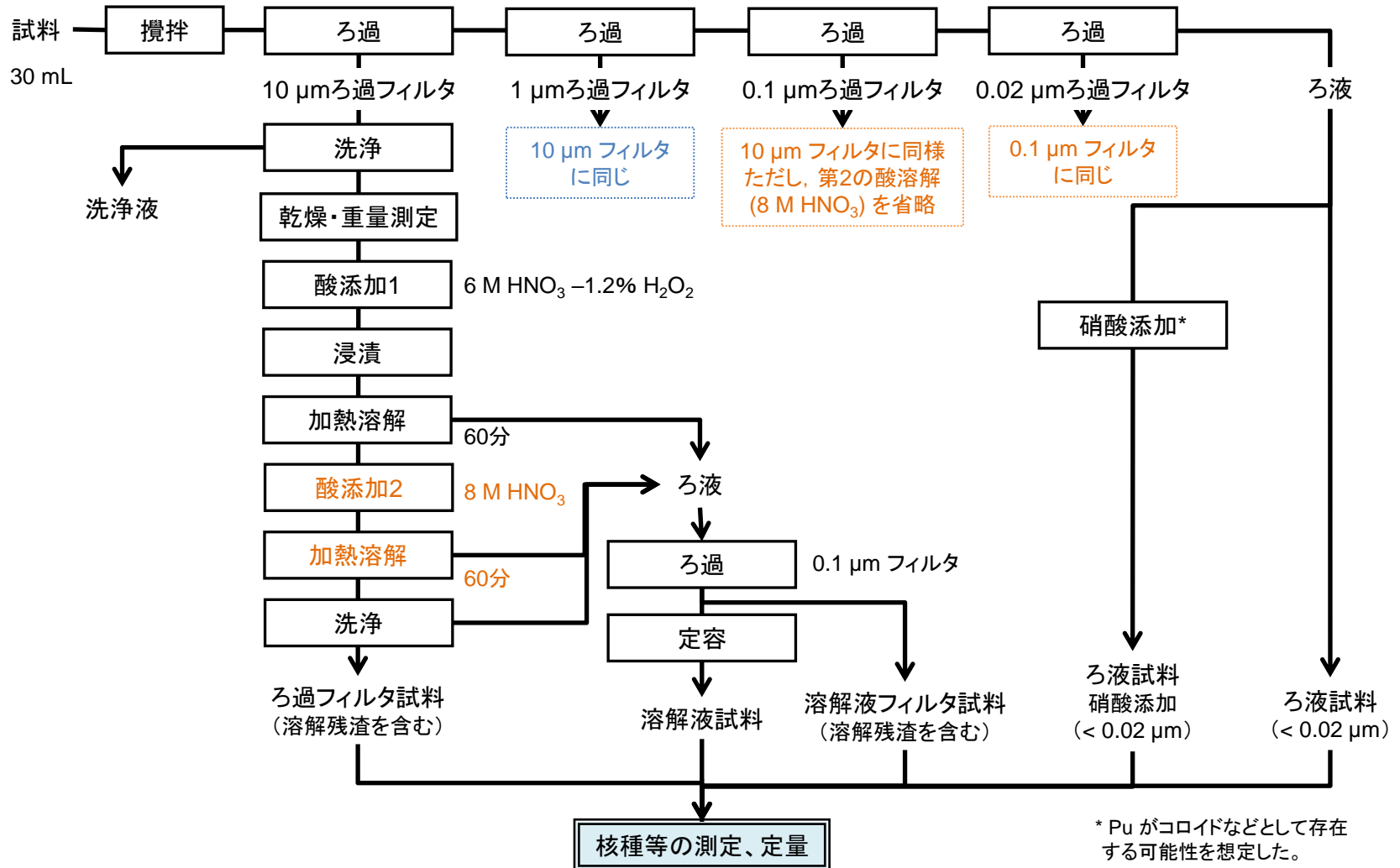
表1 試料とその水質

分析項目	分析値				備考
	3号機トーラス室滞留水	3号機MSIV室滞留水	EエリアD1タンク残水	2号機トーラス室滞留水最深部水(参考)	
pH	7.1	6.7	7.9	7.8	24°Cで測定
酸化還元電位	585 mV	533 mV	454 mV	397 mV	25°C標準電位換算
電気伝導率	0.03 S/m	0.02 S/m	1.04 S/m	4.68 S/m	24°Cで測定
塩化物イオン濃度	< 50 ppm	< 50 ppm	3.4×10^3 ppm	2.0×10^4 ppm	

2.4 分析の実施・結果

滞留水(3号機、タンク)

■ 分析方法



2.4 分析の実施・結果

滞留水(3号機、タンク)

- 30 mL の試料に含まれる固形分を分散させ(図1)、孔径が 10、1、0.1、0.02 μm の PTFE(ポリテトラフルオロエチレン)製メンブレンフィルタで順にろ過した結果、孔径 10 μm フィルタで固形分のほとんどを捕集した(図2)。
- 乾燥して質量を測定したところ、いずれの試料においても孔径 10 μm フィルタのみで測定値が得られた。3号機トラス室水において、汚染水中の固形分濃度はおよそ 1.2 g/L と推定された。
- それぞれのフィルタに回収された固形分(回収物)を硝酸溶液で加熱溶解し、溶液を分析試料とした。

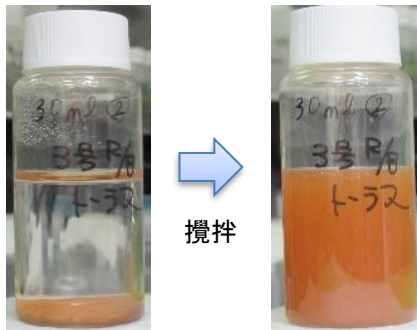




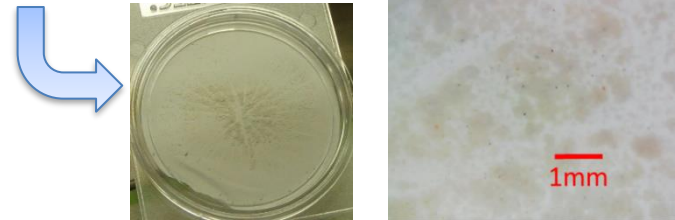


図1 固形分の分散の様子
(3号機トラス室水)

フィルタ孔径	10 μm	1 μm	0.1 μm	0.02 μm
質量 (g)	0.036	ND	ND	ND
ろ過回収物の外観				



溶解残渣(右図は拡大して観察)

図2 逐次ろ過により回収した固形分
(3号機トラス室水)

2.4 分析の実施・結果

滞留水(3号機、タンク)

■ 分析結果 (3号トラス室滞留水の γ 核種および ^{90}Sr)

No.	分級	放射能濃度 [Bq/mL] ^{*1}				
		^{54}Mn (約312日)	^{60}Co (約5.3年)	^{94}Nb (約 2.0×10^4 年)	^{106}Ru (約374日)	^{125}Sb (約2.8年)
1	> 10 μm	$< 3 \times 10^3$	$(1.5 \pm 0.1) \times 10^3$	$< 1 \times 10^0$	$(6.4 \pm 0.4) \times 10^3$	$(3.8 \pm 0.1) \times 10^3$
2	10~1 μm	$< 3 \times 10^2$	$(3.9 \pm 0.8) \times 10^{-1}$	$< 5 \times 10^{-2}$	$< 8 \times 10^2$	$< 6 \times 10^0$
3	1~0.1 μm	$< 2 \times 10^3$	$< 2 \times 10^0$	$< 3 \times 10^{-1}$	$< 3 \times 10^3$	$< 2 \times 10^1$
4	0.1~0.02 μm	$< 2 \times 10^3$	$< 2 \times 10^0$	$< 3 \times 10^{-1}$	$< 4 \times 10^3$	$< 2 \times 10^1$
5	< 0.02 μm (ろ液)	$< 2 \times 10^4$	$(7.3 \pm 0.8) \times 10^1$	$< 3 \times 10^0$	$< 2 \times 10^5$	$< 8 \times 10^2$

No.	分級	放射能濃度 [Bq/mL] ^{*1}				
		^{134}Cs (約2.1年)	^{137}Cs (約30年)	^{152}Eu (約14年)	^{154}Eu (約8.6年)	^{90}Sr (約29年)
1	> 10 μm	$(5.5 \pm 0.1) \times 10^3$	$(5.4 \pm 0.1) \times 10^3$	$< 3 \times 10^0$	$(3.8 \pm 0.1) \times 10^2$	$(6.0 \pm 0.1) \times 10^3$
2	10~1 μm	$(3.8 \pm 0.2) \times 10^1$	$(3.5 \pm 0.1) \times 10^1$	$< 5 \times 10^{-1}$	$< 4 \times 10^{-1}$	$(2.5 \pm 0.1) \times 10^1$
3	1~0.1 μm	$< 2 \times 10^1$	$(1.0 \pm 0.1) \times 10^1$	$< 4 \times 10^0$	$< 3 \times 10^0$	$(8.7 \pm 0.2) \times 10^0$
4	0.1~0.02 μm	$< 3 \times 10^1$	$(2.7 \pm 0.1) \times 10^1$	$< 4 \times 10^0$	$< 2 \times 10^0$	$(2.9 \pm 0.2) \times 10^0$
5	< 0.02 μm (ろ液)	$(1.6 \pm 0.1) \times 10^4$	$(1.5 \pm 0.1) \times 10^4$	$< 2 \times 10^1$	$< 2 \times 10^1$	$(1.1 \pm 0.1) \times 10^4$

*1 放射能濃度は2011.3.11で補正した値. 分析値の±の後の数値は計数誤差.

2.4 分析の実施・結果

滞留水(3号機、タンク)

■ 分析結果(3号トラス室滞留水のα核種)

No.	分級	放射能濃度 [Bq/mL] ^{*1}		
		²³⁸ Pu (約88年)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (約 2.4×10^4 年, 約 6.6×10^3 年)	²⁴² Pu (約 3.7×10^5 年)
1	> 10 μm	$(2.5 \pm 0.1) \times 10^2$	$(7.5 \pm 0.1) \times 10^1$	$(5.1 \pm 0.3) \times 10^{-1}$
2	10~1 μm	$(6.6 \pm 0.3) \times 10^{-2}$	$(2.0 \pm 0.2) \times 10^{-2}$	-
3	1~0.1 μm	$(1.2 \pm 0.1) \times 10^{-2}$	$(3.8 \pm 0.6) \times 10^{-3}$	-
4	0.1~0.02 μm	$< 7 \times 10^{-4}$	$< 9 \times 10^{-4}$	-
5	< 0.02 μm (ろ液)	$< 2 \times 10^{-3}$	$< 2 \times 10^{-3}$	-

No.	分級	放射能濃度 [Bq/mL] ^{*1}			
		²⁴¹ Am (約 4.3×10^2 年)	²⁴³ Am (約 7.4×10^3 年)	²⁴² Cm (約163日)	²⁴⁴ Cm (約18年)
1	> 10 μm	$(1.3 \pm 0.1) \times 10^2$	$(8.0 \pm 0.5) \times 10^{-1}$	$(1.4 \pm 0.1) \times 10^7$	$(9.4 \pm 0.1) \times 10^1$
2	10~1 μm	$(2.8 \pm 0.2) \times 10^{-2}$	-	$< 2 \times 10^4$	$(2.5 \pm 0.2) \times 10^{-2}$
3	1~0.1 μm	$(5.3 \pm 0.8) \times 10^{-3}$	-	$< 2 \times 10^4$	$(5.1 \pm 0.9) \times 10^{-3}$
4	0.1~0.02 μm	$< 9 \times 10^{-4}$	-	$< 2 \times 10^4$	$< 2 \times 10^{-3}$
5	< 0.02 μm (ろ液)	$< 3 \times 10^{-3}$	-	$< 4 \times 10^4$	$< 4 \times 10^{-3}$

*1 放射能濃度は2011.3.11で補正した値. 分析値の±の後の数値は計数誤差.

2.4 分析の実施・結果

滞留水(3号機、タンク)

■ 分析結果(固形分の元素組成)

表1 孔径 10 μm フィルタ収物の元素組成(質量%)^{*1,2}

試料	Na	Mg	Al	Ca	Mn	Fe
3号機トーラス室滞留水	ND	2.7	4.6	0.7	0.5	77.6
3号機MSIV室水	ND	ND	4.0	ND	ND	92.0
EエアリアD1タンク内の残水	0.3	0.7	0.5	3.9	1.0	78.3
試料	Ni	Zn	Mo	Ag	Ba	U
3号機トーラス室滞留水	0.5	13.5	ND	ND	ND	ND
3号機MSIV室水	1.2	ND	ND	ND	ND	2.8
EエアリアD1タンク内の残水	0.1	14.7	0.1	0.2	0.2	ND

*1 「ND」は不検出。 *2 検出された元素の合計を100%として算出。

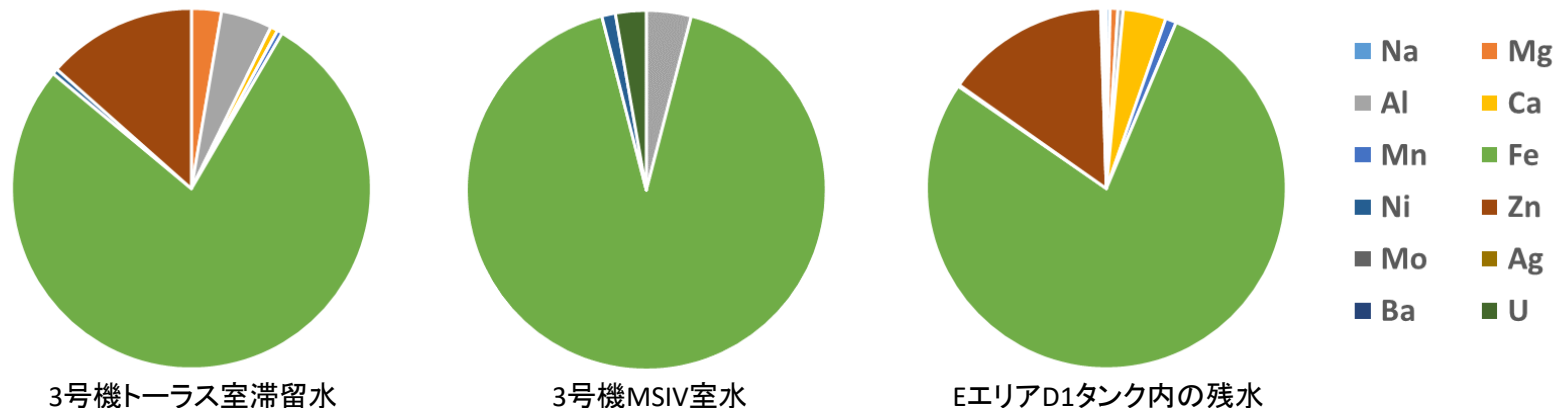


図1 孔径 10 μm フィルタ回収物の元素組成^{*3}

*3 検出された元素の合計を100%として算出。

2.4 分析の実施・結果

滞留水(3号機、タンク)

- 水中に溶存するイオンの性状を調べるため、イオン交換樹脂への吸着性を調べた。
- 試験方法
 - 3号機MSIV室水試料を 0.03 μm フィルタ*1でろ過したろ液を陽イオンまたは陰イオン交換樹脂と 19 時間程度接触した。イオン交換樹脂接触前後の水中の放射能を分析した。(図1)
- 結果
 - Puは、陽イオン交換によって水中濃度が 0.4 %以下まで減少し、一方で陰イオン交換による変化は見られなかった(図2)。
 - Amも、陽イオン交換により水中濃度が検出下限値未満に低下し、陰イオン交換後によっては減少せず(図3)、Puに同様の結果であった。
 - ろ液中のPu、Amは、いずれも陽イオン交換性であるとみられ、原子炉建屋の滞留水中のPuとAmは陽イオンであることが示唆された。

MSIV室滞留水

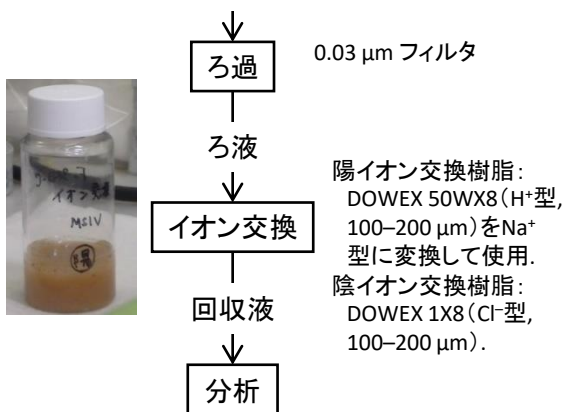


図1 イオン交換試験のフロー

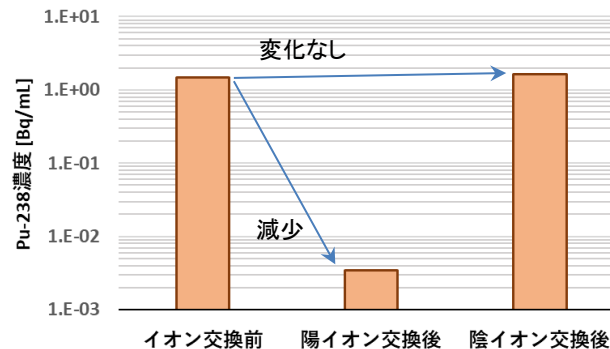


図2 Puのイオン交換試験結果

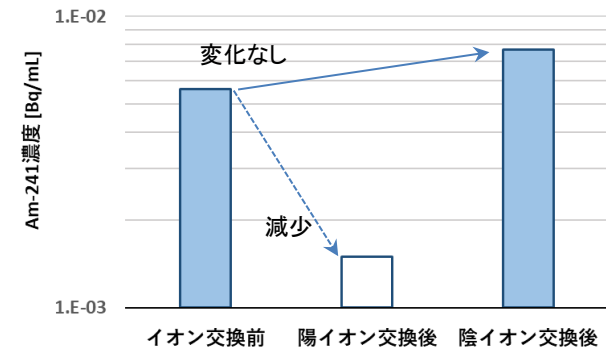


図3 Amのイオン交換試験結果

*1 0.02 μm のフィルタは酸化アルミニウム製であり、U を吸着する可能性を考慮して異なる材質の製品を用いた。

2.4 分析の実施・結果

滞留水(1号機、集中廃棄物処理施設)

- 原子炉建屋等の地下滞留水から比較的高濃度の α 核種が検出されており、それらのほとんどが滞留水底部に堆積する固形分(スラッジ)に存在することがわかっている(図1)。1号機原子炉建屋(R/B)滞留水、プロセス主建屋(PMB)滞留水、及び高温焼却炉建屋(HTI/B)滞留水について、 α 核種の存在形態を把握するための分析、試験を実施した(表1)。
- フィルタによる段階的なる過を行い、フィルタ回収物およびろ液を分析した。(分級分析)
- 1号機 R/B 滞留水、PMB 滞留水について、スラッジからの α 核種の溶出を調査した。(浸漬試験)

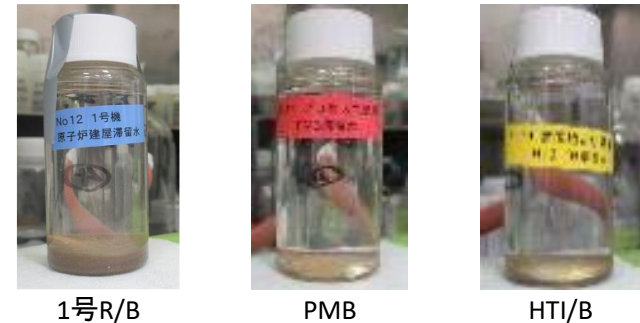


図1 滞留水試料の外観

表1 滞留水試料

No.	試料	採取日	全 α 濃度 ^{*1} (Bq/mL)	Cs-137濃度 ^{*1} (Bq/mL)	Sr-90濃度 ^{*1} (Bq/mL)	実施内容
1	1号機原子炉建屋(R/B)トーラス室滞留水	2022/4/19	2.16×10^1	3.27×10^4	1.96×10^4	分級分析、浸漬試験
2	プロセス主建屋(PMB)滞留水	2022/4/21	4.05×10^0	4.58×10^4	2.09×10^4	分級分析、浸漬試験
3	高温焼却炉建屋(HTI/B)滞留水	2022/4/22	1.32×10^1	2.81×10^5	1.39×10^4	分級分析
参考	2号機原子炉建屋(R/B)トーラス室滞留水(最深部)	2020/4/20	3.4×10^1	1.5×10^6	—	分級分析
参考	3号機原子炉建屋(R/B)MSIV室滞留水	2021/7/8	1.69×10^3	5.81×10^3	9.48×10^3	分級分析、浸漬試験、イオン交換試験
参考	3号機原子炉建屋(R/B)トーラス室滞留水	2021/7/13	5.38×10^2	2.18×10^4	1.52×10^4	分級分析、浸漬試験

*1 採取時の測定値。

2.4 分析の実施・結果

滞留水(1号機、集中廃棄物処理施設)

■ 分析方法

- 孔径 10、1、0.1、0.02 μm のフィルタによる段階的なろ過を行い、各フィルタ回収物および 0.02 μm ろ過のろ液を分析した(図1)。孔径 10 μm フィルタで固形分のほとんどのスラッジを捕集した(図2)。フィルタ回収物は、硝酸溶液により溶解して分析した。

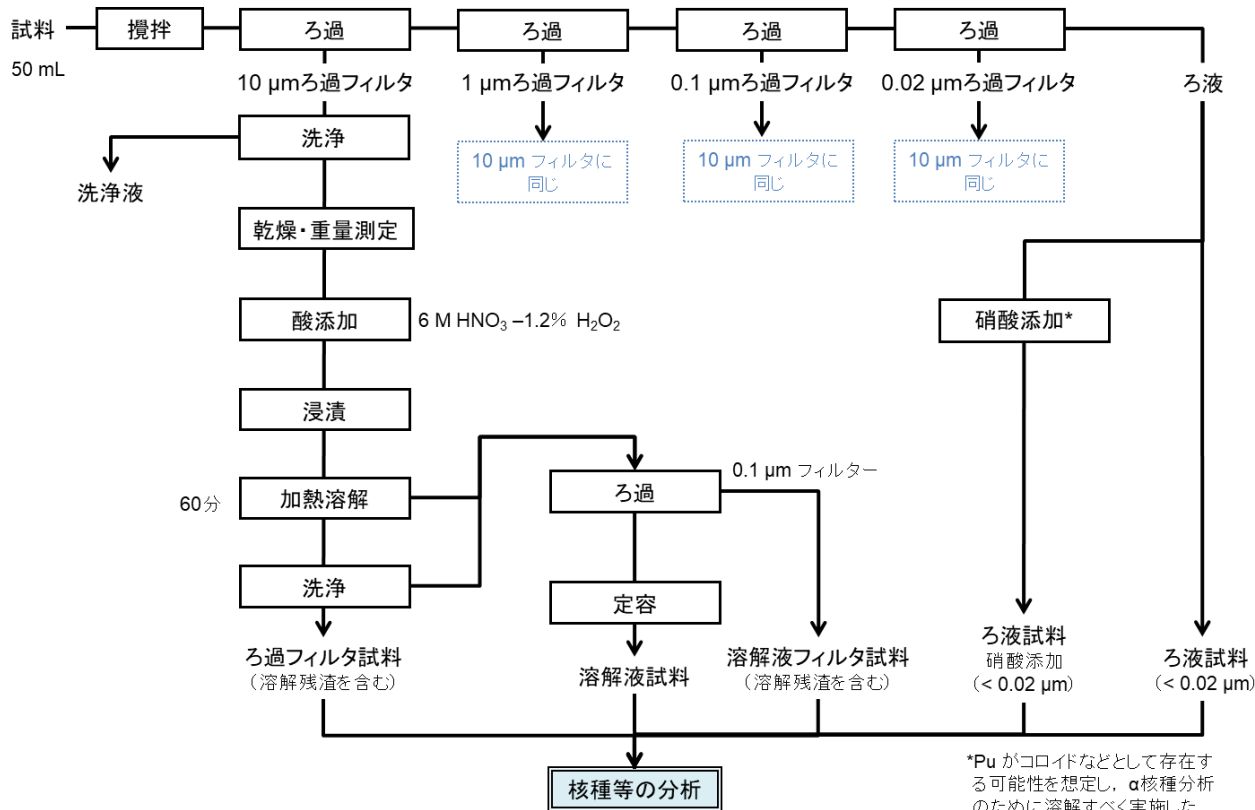
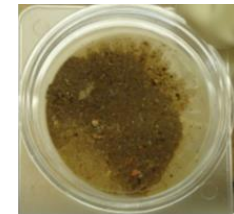
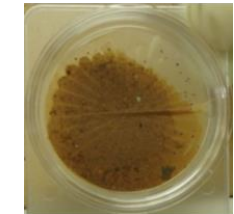


図1 分級を伴う分析フロー



1号機原子炉建屋滞留水



PMB滞留水



HTI/B滞留水

図2 10 μm フィルタ回収物の外観

2.4 分析の実施・結果

滞留水(1号機、集中廃棄物処理施設)

■ 分析結果(水質)

- 0.02 μmろ過のろ液について、電極法により水質(pH、酸化還元電位、電気伝導度、塩化物イオン濃度)を測定した(表1)。ICP-AESにより元素分析を実施した(表2)。
- 滞留水は、pH 7~9 でおおよそ中性からわずかにアルカリ性、酸化還元電位は 400~600 mV で酸化雰囲気である。海水成分を含むが、継続的な冷却水の注入により希釈されている。

表1 滞留水の水質分析結果

試料	pH	酸化還元電位 ^{*1} (mV)	電気伝導度(24°C) (S/m)	塩化物イオン濃度 (ppm)
1号機 R/B トーラス室滞留水	8.0 (23 °C)	406	0.034	< 20
PMB 滞留水	8.7 (23 °C)	393	0.142	120
HTI/B 滞留水	7.4 (23 °C)	553	0.058	66
2号機 R/B トーラス室滞留水(最深部)	7.8 (24 °C)	397	4.68	2.0 × 10 ⁴
3号機 R/B トーラス室滞留水	7.1 (24 °C)	585	0.03	< 50

*1 酸化還元電位は 25°C 標準電極電位換算した値。

表2 滞留水の元素分析結果 (ppm)

試料	Na	Mg	Ca	Si	K	Mn
1号機 R/B トーラス室滞留水	9.3 × 10 ⁰	1.9 × 10 ¹	5.2 × 10 ¹	2.0 × 10 ⁰	ND	4.1 × 10 ⁰
PMB 滞留水	3.8 × 10 ²	1.4 × 10 ¹	3.3 × 10 ¹	1.2 × 10 ¹	ND	< 2 × 10 ⁰
HTI/B 滞留水	9.5 × 10 ¹	1.4 × 10 ¹	2.5 × 10 ¹	9.5 × 10 ⁰	ND	< 2 × 10 ⁰
2号機 R/B トーラス室滞留水(最深部)	8.3 × 10 ³	1.3 × 10 ³	5.1 × 10 ²	ND	3.3 × 10 ²	ND
3号機 R/B トーラス室滞留水	1.3 × 10 ¹	< 2 × 10 ⁰	4.8 × 10 ⁰	< 4 × 10 ⁰	< 4 × 10 ⁰	< 2 × 10 ⁰

2.4 分析の実施・結果

滞留水(1号機、集中廃棄物処理施設)

■ 分析結果(Pu、Am、Cm)

- いずれの滞留水試料についても、Pu、Am 及び Cm の放射能の 99%以上が10 μmフィルタで回収された。(表1)
- 粒子を探索、分析した結果では、μm オーダーの大きさの粒子が見出されており、この知見と整合する。

表1 スラッジと滞留水(孔径 0.02 μm ろ液)のα核種濃度と段階的なろ過における分配(物質収支)

試料	フィルタ	濃度* ¹ (Bq/mL)					分配* ² (%)		
		Pu-238	Pu-239+240	Am-241	Cm-242	Cm-244	Pu-238	Am-241	Cm-244
1号機 R/B トーラス室 滞留水	10 μm	1.4×10^1	3.4×10^0	8.4×10^0	4.3×10^6	1.2×10^1	99.986	100	100
	1 μm	1.9×10^{-3}	5.1×10^{-4}	$< 5 \times 10^{-4}$	$< 4 \times 10^4$	$< 7 \times 10^{-4}$	0.014	< 0.006	< 0.006
	0.1 μm	$< 4 \times 10^{-4}$	$< 5 \times 10^{-4}$	$< 6 \times 10^{-4}$	$< 8 \times 10^4$	$< 8 \times 10^{-4}$	< 0.003	< 0.007	< 0.007
	0.02 μm	$< 5 \times 10^{-4}$	$< 3 \times 10^{-4}$	$< 5 \times 10^{-4}$	$< 4 \times 10^4$	$< 7 \times 10^{-4}$	< 0.004	< 0.006	< 0.006
	ろ液	$< 2 \times 10^{-3}$	$< 7 \times 10^{-4}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 7 \times 10^4$	$< 2 \times 10^{-3}$	< 0.014	< 0.012	< 0.017
PMB 滞留水	10 μm	5.7×10^0	1.7×10^0	2.4×10^0	1.3×10^6	2.5×10^0	99.628	99.643	99.685
	1 μm	1.1×10^{-2}	3.5×10^{-3}	3.6×10^{-3}	$< 4 \times 10^4$	3.9×10^{-3}	0.192	0.149	0.156
	0.1 μm	6.5×10^{-3}	2.3×10^{-3}	2.9×10^{-3}	$< 4 \times 10^4$	2.1×10^{-3}	0.114	0.120	0.084
	0.02 μm	3.8×10^{-3}	1.4×10^{-3}	2.1×10^{-3}	$< 4 \times 10^4$	1.9×10^{-3}	0.066	0.087	0.076
	ろ液	$< 8 \times 10^{-4}$	$< 9 \times 10^{-4}$	$< 2 \times 10^{-3}$	$< 8 \times 10^4$	$< 2 \times 10^{-3}$	< 0.02	< 0.09	< 0.08
HTI/B 滞留水	10 μm	9.2×10^0	2.7×10^0	5.5×10^0	1.5×10^6	2.7×10^0	99.938	99.98	100
	1 μm	4.3×10^{-3}	7.5×10^{-4}	9.7×10^{-4}	$< 4 \times 10^4$	$< 7 \times 10^{-4}$	0.047	0.02	< 0.03
	0.1 μm	$< 5 \times 10^{-4}$	$< 4 \times 10^{-4}$	$< 5 \times 10^{-4}$	$< 4 \times 10^4$	$< 7 \times 10^{-4}$	< 0.005	< 0.01	< 0.03
	0.02 μm	$< 5 \times 10^{-4}$	$< 4 \times 10^{-4}$	$< 5 \times 10^{-4}$	$< 4 \times 10^4$	$< 7 \times 10^{-4}$	< 0.005	< 0.01	< 0.03
	ろ液	1.4×10^{-3}	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 2 \times 10^{-3}$	$< 2 \times 10^5$	$< 3 \times 10^{-3}$	0.015	< 0.04	< 0.12

*1 試料(固液混合)当たりの濃度。2011.3.11に減衰補正した値。

*2 検出値(放射能)の合計を100%として算出。検出下限値未満は、検出値の合計に対する比として算出。

2.4 分析の実施・結果

滞留水(1号機、集中廃棄物処理施設)

■ 分析結果(スラッジの元素組成)

- 10 μmフィルタで回収したスラッジを溶解し、ICP-AESによる元素分析を実施した(図1、表1)。
- 全ての試料でFeが主成分であり、Mg、Al、Ca、Znが検出された。
- 1号機原子炉建屋滞留水試料は、他試料に比べてFeの割合が比較的小さく、AlやMgが多く含まれる。

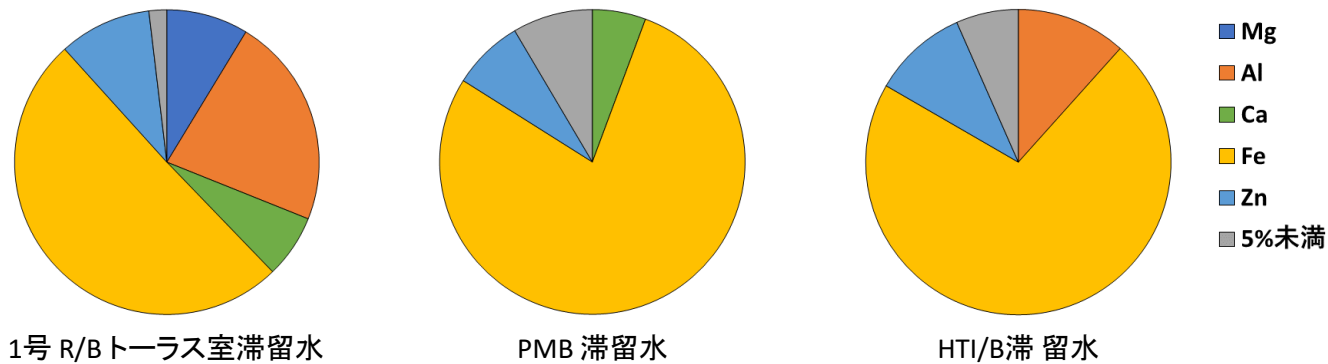


図1 スラッジの元素組成^{*1} (wt%)

表1 スラッジの元素組成^{*1,2} (wt%)

試料	Mg	Al	Si	Ca	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	K	Ti
1号機 R/B トーラス室滞留水	8.7	22.4	0.9	6.7	0.9	50.5	ND	ND	9.8	ND	ND
PMB 滞留水	1.4	4.7	ND	5.7	0.9	78.3	ND	1.4	7.5	ND	ND
HTI/B 滞留水	1.6	11.6	ND	2.8	ND	71.7	ND	ND	10.1	2.2	ND
2号機 R/B トーラス室滞留水	1.6	7.0	1.0	0.78	0.25	78.1	ND	ND	10.9	0.09	0.07
3号機 R/B MSIV室滞留水 ^{*3}	ND	4.0	ND	ND	ND	92.0	1.2	ND	ND	ND	ND
3号機 R/B トーラス室滞留水	2.7	4.6	ND	0.7	0.5	77.6	0.5	ND	13.5	ND	ND

*1 検出した元素の合計値を100%とした。*2 「ND」は検出下限値未満。*3 他にUを2.8%検出。

2.4 分析の実施・結果

滞留水(1号機、集中廃棄物処理施設)

■ 分析結果(スラッジ中の核種濃度)

- 10 μm フィルタで回収したスラッジに検出された核種について、スラッジの質量^{*1}あたりの濃度を算出した(図1)。
- スラッジ中の Fe 濃度は試料によって異なるものの(表1)、Fe 質量あたりのPu、Am、Cmについて、3号機原子炉建屋滞留水を除きおおよそ同程度の濃度であった。3号機原子炉建屋滞留水は比較的高い濃度の傾向を示した。

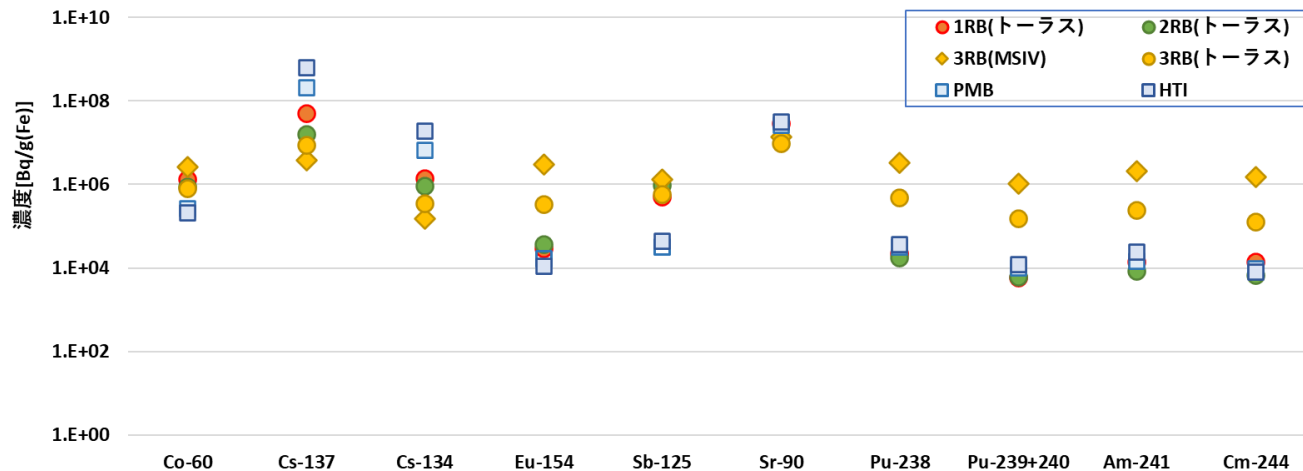


図1 スラッジ質量に対する放射能濃度

表1 スラッジまたはFe元素濃度^{*2}

試料	濃度 (g/L)		Fe/スラッジ比 (g/g)
	スラッジ	Fe	
1号 R/B トーラス室滞留水	7.0	0.59	8%
2号 R/B トーラス室滞留水	5.2	2.0	38%
3号 R/B MSIV室滞留水	0.40	0.21	53%
3号 R/B トーラス室滞留水	1.2	0.49	41%
PMB 滞留水	0.66	0.17	25%
HTI/B 滞留水	1.2	0.23	18%

^{*1} 孔径10 μmフィルタ回収物の質量. スラッジを自然乾燥させて測定した. ^{*2} 孔径10 μmフィルタ回収物の溶解液を ICP-AES分析して求めた.

2.4 分析の実施・結果

滞留水(1号機、集中廃棄物処理施設)

■ 浸漬試験の方法

- 1号機 及び 3号機 R/B 滞留水と PMB 滞留水を 10 μm フィルタに通じてスラッジを回収し、水で洗浄した。これを純水に浸漬し、水の一部を分取して分析した。スラッジを洗浄した水(洗浄液)も分析に供した。

■ 結果

- 1号機 R/B トーラス室のスラッジから、α核種の溶出は認められなかった。
- PMB のスラッジの洗浄液から Pu-238 と Am-241 がそれぞれ検出された。浸漬液では、Pu-238が 30 日目に洗浄液よりも低い濃度で検出され、Am-241 は不検出であった。
 - 洗浄操作では、化学的な溶出に加え、微粒子がフィルタを通過した可能性が考えられる。
- 3号機のスラッジは 1号機 R/B トーラス室のスラッジよりも高い濃度で推移しており、号機による違いが認められる。
 - 3号機では、上流側であるMSIV 室がトーラス室よりも高い傾向である。

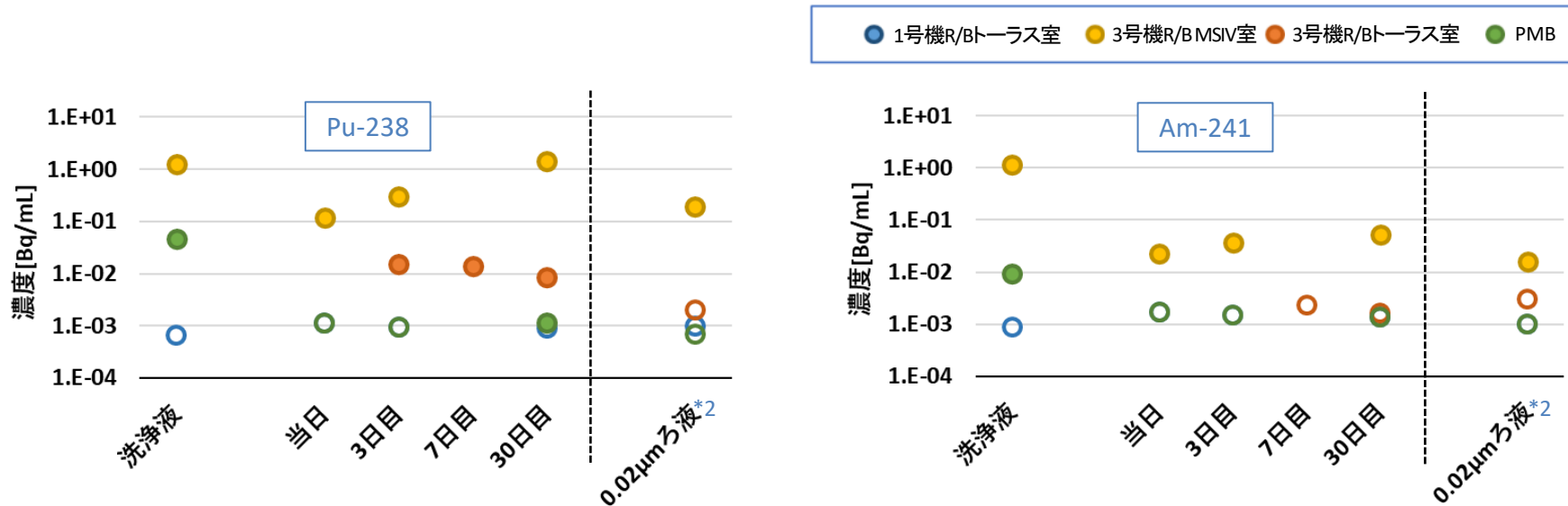


図1 スラッジを洗浄、浸漬した時の溶液中の Pu-238(左)、Am-241(右)の濃度*1

*1 白抜きは検出下限値未満を示す。*2 孔径0.02 μmフィルタろ過液の分画。

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物 (ALPS 吸着材 (チタン酸塩))

- 既設及び増設多核種除去設備 (ALPS)において、使用済みのチタン酸塩吸着材を吸着塔から排出し、高性能容器 (HIC) に移送した後、直ちに吸着材を採取した(表1)。
- 吸着材試料は白色であった。ADSrt-EAL1-1 には異物が見られたため、夾雑物を避けて吸着材を分取し、分析に供した。(図1)
- あらかじめ分析法を検討し、その成果に基づき放射能分析を実施した(図2)。

表1 チタン酸塩吸着材試料

試料番号	発生設備	HICシリアルNo.	採取日	質量 (g)	線量率* (mSv/h)
ADSrt-AAL1-3	増設 A系統	PO641180-232	2018.10.24	8	$\beta\gamma$: 87.5
ADSrt-EAL1-1	既設 ABC系統	PO625899-218	2018.10.25	8	$\beta\gamma$: 26.3

* 採取試料を 50 mL バイアル瓶に収納した時の表面線量率。



ADSrt-AAL1-3



ADSrt-EAL1-1

図1 吸着材試料の外観

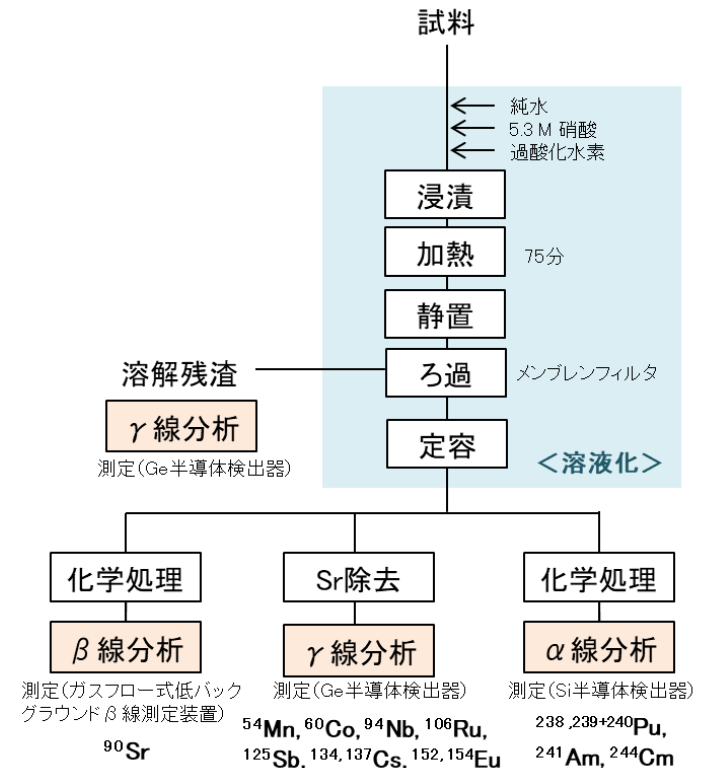


図2 吸着材の分析フロー

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物(ALPS 吸着材(チタン酸塩))

■ 分析結果

- Sr-90が支配的であり、Cs-137、134及びSb-125は4桁以上低い濃度で検出された。処理の対象核種が主たる成分となっている。
- α核種(Pu-239、Pu-239+240、Am-241及びCm-244)は検出されなかった。

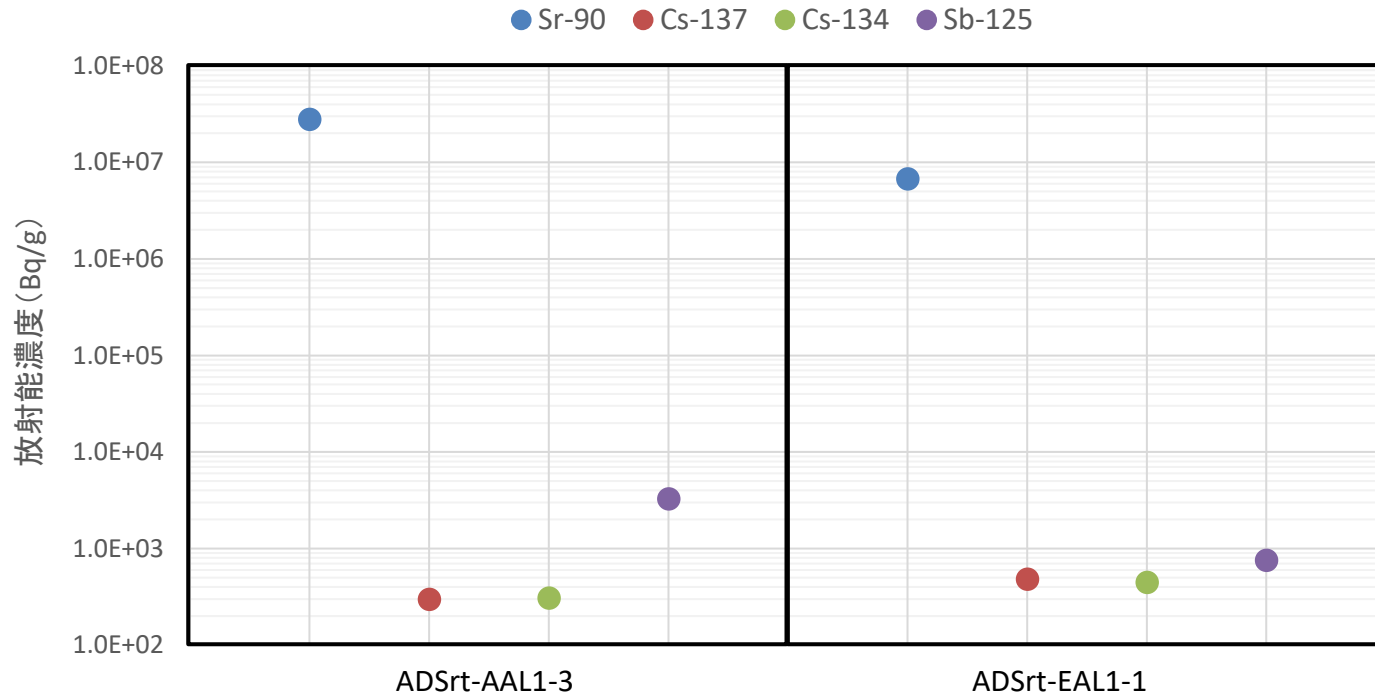


図1 チタン酸塩吸着材の放射性核種分析結果^{*1}

^{*1} 放射能濃度は採取日(2011.3.11)に補正. 湿潤状態の質量を基準として放射能濃度を算出.

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物 (ALPS 吸着材 (銀ゼオライト、ケイチタン酸塩、酸化セリウム))

- 既設及び増設多核種除去設備 (ALPS) において、使用済みの銀ゼオライト、ケイチタン酸塩、酸化セリウムの各吸着材を分析した (表1、図1)。試料は、吸着塔から吸着材を排出し、高性能容器 (HIC) に移送した後、直ちに採取された。
- あらかじめ分析法を検討し、その成果に基づき放射能分析を実施した。



銀ゼオライト



ケイチタン酸塩



酸化セリウム

図1 分析試料の外観

表1 ALPS吸着材試料

種類	試料番号	発生設備		採取日	質量 (g)	線量率 (γ) ^{*1} (μSv/h)
銀ゼオライト	ADSi-AAL12-3	増設	BC系統	2017/3/16	28	6
	ADSi-EAL14-1	既設	ABC系統	2017/9/5	20	0.8
	AZ-AAL-3	増設	A系統	2020/9/8	63	2
ケイチタン酸塩	TN-AAL-2#2	増設	BC系統	2020/9/14	23	43
	TN-AAL-5#2	増設	A系統	2021/3/15	22	24
	TN-EAL-4#2	既設	ABC系統	2021/3/16	21	37
酸化セリウム	CE-AAL-3	増設	A系統	2020/7/8	36	1.2
	CE-AAL-5	増設	A系統	2020/7/30	36	1.2

*1 採取試料を 50 mL バイアル瓶に収納した時の表面線量率。

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物 (ALPS 吸着材 (銀ゼオライト))

■ 分析方法

- 前処理として固体試料を溶解し液体の状態にする処理 (溶液化) を実施した。溶液化はそれぞれの吸着材についてあらかじめ検討した方法を適用した。
 - ✓ 銀ゼオライト吸着材をアルカリ融解し、融解生成物を酸で溶解した。(図1, 図2)。
 - 試料毎に溶解残渣のγ線分析を行い、溶解を確認した(表1)。
- 一部の吸着材のγ核種については、当該吸着材で作製した校正線源を用いて、測定、定量した。

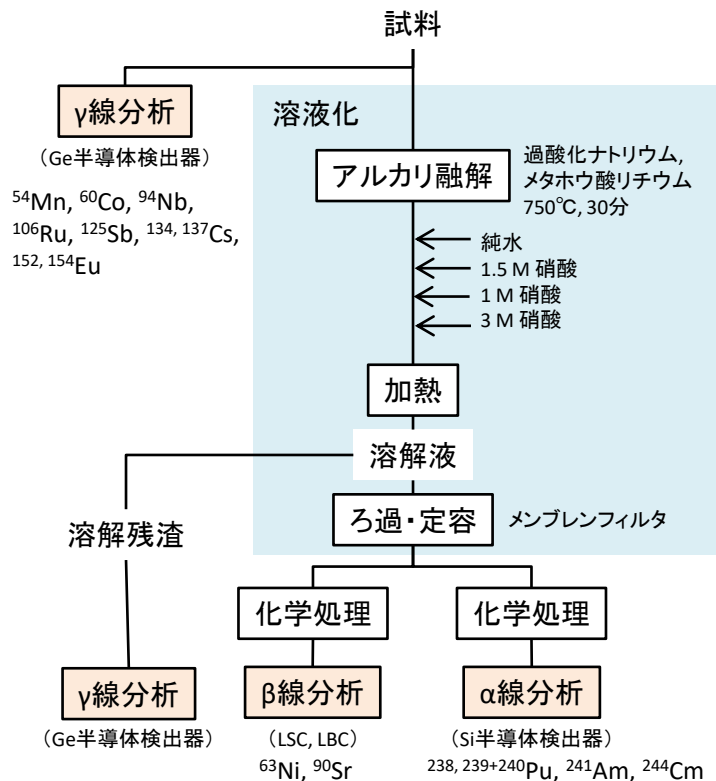


図1 銀ゼオライト吸着材の分析フロー

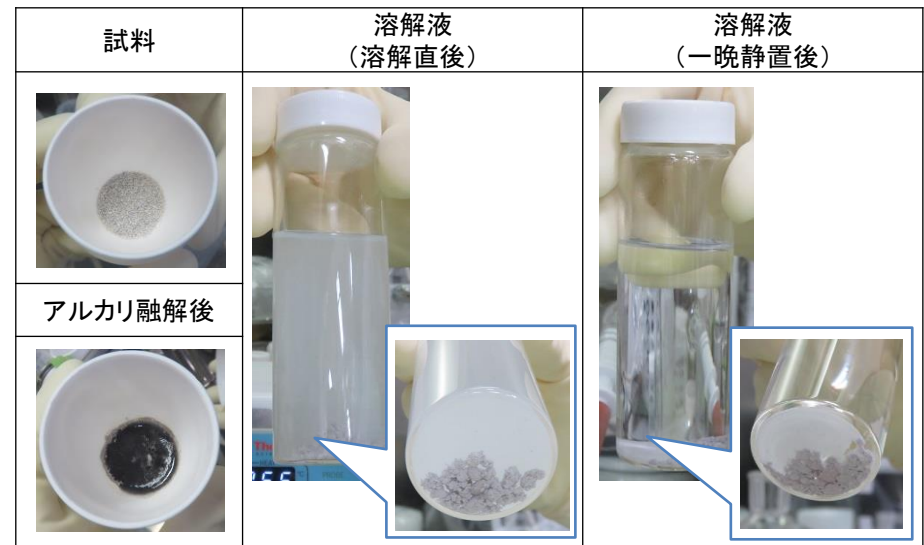


図2 溶解操作中の銀ゼオライト吸着材の様子

表1 銀ゼオライト吸着材の溶解における Cs-137 の物質収支 (%)

試料	溶解液	溶解残渣
ADSi-AAL12-3	99.98	0.02
AZ-AAL-3	> 99.94	< 0.06

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物(ALPS 吸着材(銀ゼオライト))

■ 分析方法

- 銀ゼオライト吸着材の I-129 は、アルカリ融解により得られる溶解液と溶解残渣のそれぞれから I-129 を回収するフローを構築した(図1)。
- 溶解液は担体添加・回収法により AgIO_3 沈殿、溶解残渣は再溶解・再沈殿により AgI 沈殿をそれぞれ回収し、 γ 線分析により定量した。I-129 の放射能は、他を合計して溶解液全体の 5% 以下と少ないことを確認した(表1)。

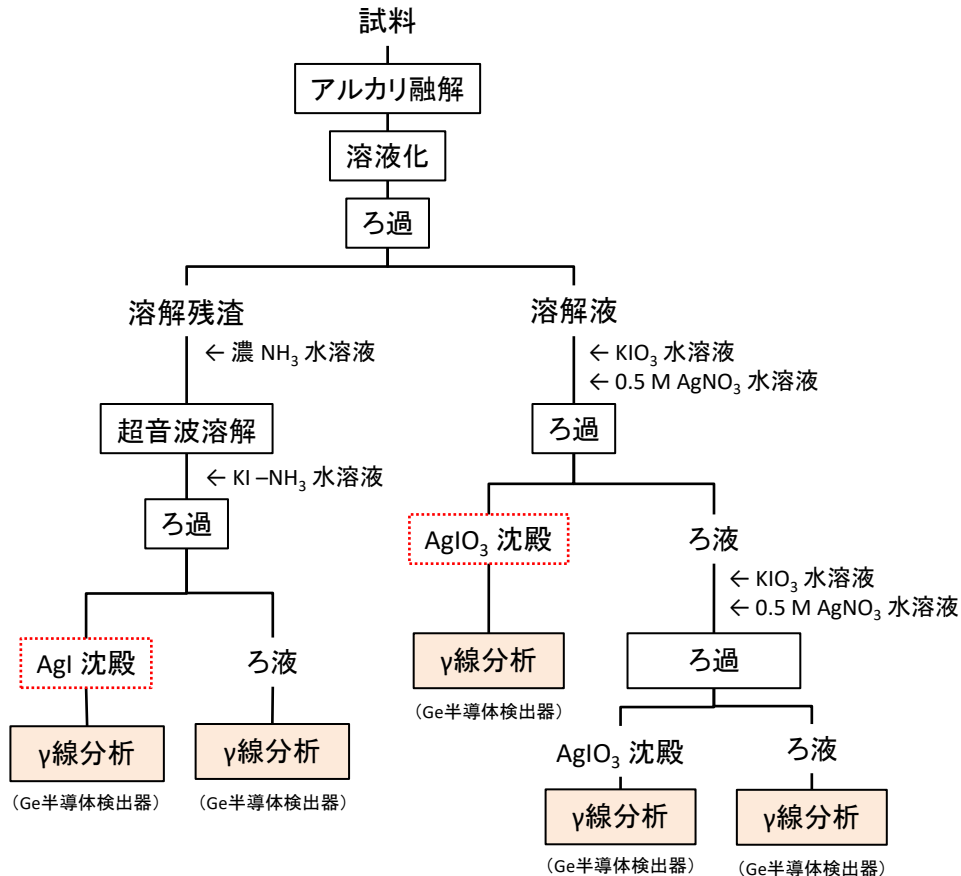


表1 銀ゼオライト吸着材の分析における I-129 の収支

試料番号	内訳	放射能濃度 (Bq/g) ^{*1}
ADSi-AAL12-3	溶解液	$(2.0 \pm 0.2) \times 10^1$
	溶解残渣	$(1.1 \pm 0.2) \times 10^0$
	合計	$(2.1 \pm 0.2) \times 10^1$
ADSi-EAL14-1	溶解液	$(1.8 \pm 0.2) \times 10^1$
	溶解残渣	$(1.5 \pm 0.2) \times 10^0$
	合計	$(2.0 \pm 0.2) \times 10^1$
AZ-AAL-3	溶解液	$(2.4 \pm 0.1) \times 10^2$
	溶解残渣	$(1.8 \pm 0.3) \times 10^1$
	合計	$(2.6 \pm 0.1) \times 10^2$

*1 分取質量(湿潤)を基準として放射能濃度を算出。放射能濃度は2011年3月11日に補正。分析値の±の後の数値は計数誤差。

図1 銀ゼオライト吸着材の I-129 分析フロー

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物 (ALPS 吸着材 (ケイチタン酸塩))

■ 分析方法

- ケイチタン酸塩吸着材は、過酸化ナトリウム及び炭酸ナトリウムによりアルカリ融解を行い、融解生成物を硝酸・過酸化水素にて溶解するフローを構築し、分析した(図1、2)。
- 増設ALPSの使用済み吸着材ではアルカリ融解後に青色を呈した(図2)。微量に含まれるCoによるものと推察している。Cs-137のほとんどを回収でき、マトリックスの溶解を確認できた(表1)。

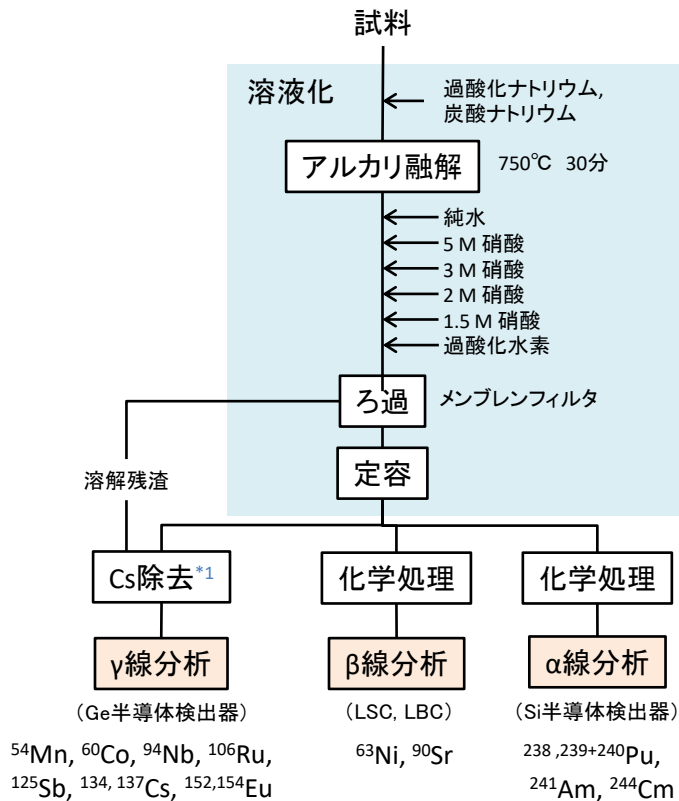


図1 ケイチタン酸塩吸着材の分析フロー

*1 Cs-137が高いためあらかじめ除去。

試料	元試料	アルカリ融解後	溶解残渣	溶解液
TN-EAL-4#2				
TN-AAL-2#2				
TN-AAL-5#2				

図2 溶解操作中のケイチタン酸塩吸着材の様子

表1 溶解における Cs-137 の物質収支 (%)

試料	溶解液	溶解残渣
TN-EAL-4#2	99.998	0.002
TN-AAL-2#2	99.997	0.003
TN-AAL-5#2	99.999	0.001

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物(ALPS 吸着材(酸化セリウム))

■ 分析方法

- 酸化セリウム吸着材は、熱分解後に硝酸・過酸化水素溶解するフローを構築し、分析した(図1、2)。
- 一部の試料で溶解液と溶解残渣にI-129 の存在が示唆されており、それらの回収、定量方法を検討している。
- 主たる回収対象である Co-60 と Sb-125 は残渣へ移行しておらず、マトリックスの溶解を確認できた(表1)。

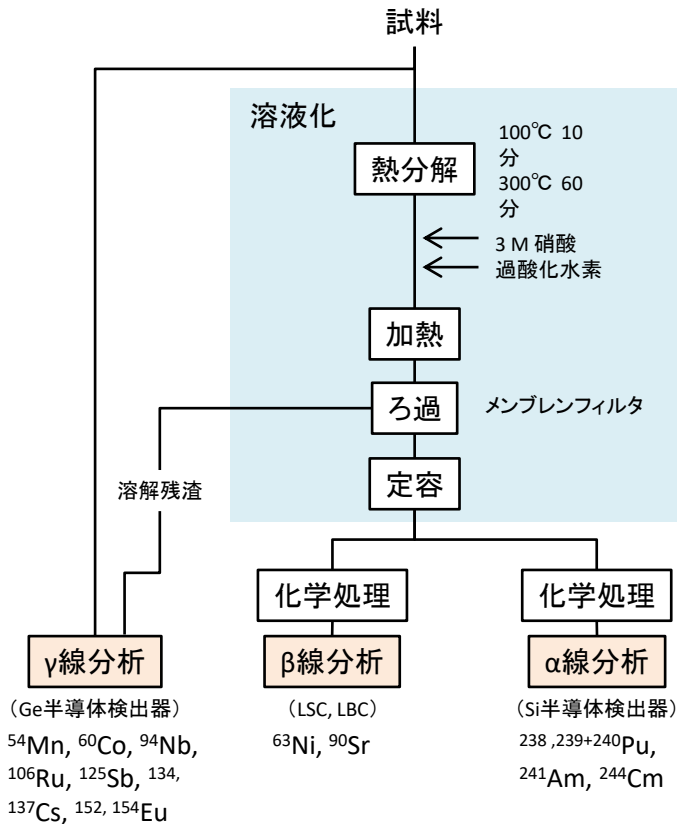


図1 酸化セリウム吸着材の分析フロー

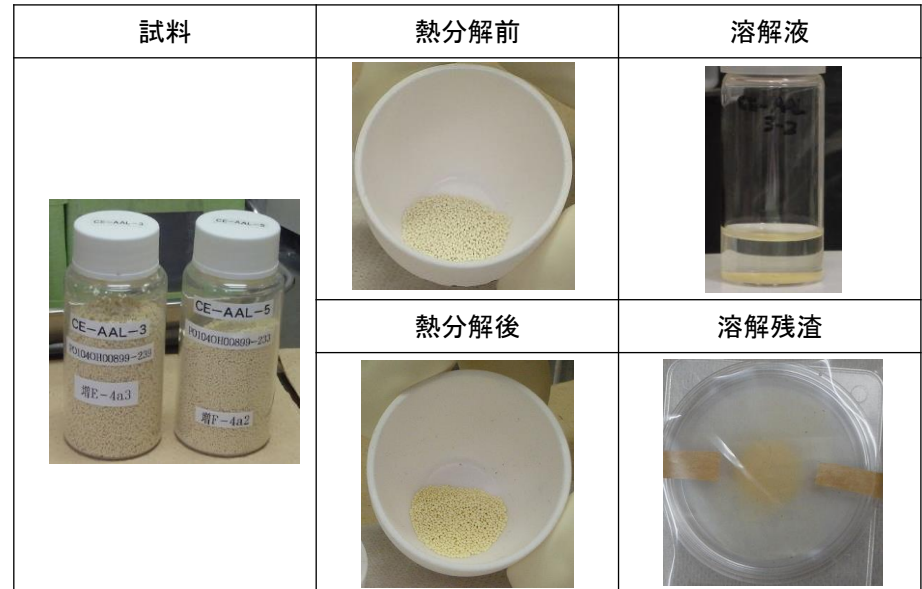


図2 溶解操作中の酸化セリウム吸着材の様子

表1 溶解における残渣への Co-60 と Sb-125 の移行割合 (%)^{*1}

試料	Co-60	Sb-125
CE-AAL-3 ^{*1}	< 5	< 1
CE-AAL-5 ^{*1}	< 8	< 1

^{*1} 処理前後の固体試料のγ計数から評価。ジオメトリが一致していないため厳密な比較は難しい。

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物 (ALPS 吸着材)

- 既設及び増設多核種除去設備 (ALPS) で発生した使用済み吸着材を分析した (表1)。試料は、吸着塔から吸着材を排出し、高性能容器 (HIC) に移送した後、直ちに採取された。
- 吸着材は湿潤しており、加熱乾燥により含水率を求めた。

表1 ALPS 吸着材試料

種類	試料番号	発生設備		採取日	質量 (g)	線量率 (γ) ^{*1} (μSv/h)	主な除去対象元素 ^{*2,3}
銀ゼオライト	ADSi-AAL12-3	増設	BC系統	2017/3/16	28	6	I
	ADSi-EAL14-1	既設	ABC系統	2017/9/5	20	0.8	
	AZ-AAL-3	増設	A系統	2020/9/8	63	2	
ケイチタン酸塩	TN-AAL-2#2	増設	BC系統	2020/9/14	23	43	Cs (Sr)
	TN-AAL-5#2	増設	A系統	2021/3/15	22	24	
	TN-EAL-4#2	既設	ABC系統	2021/3/16	21	37	
酸化セリウム	CE-AAL-3	増設	A系統	2020/7/8	36	1.2	I, Sb
	CE-AAL-5	増設	A系統	2020/7/30	36	1.2	
	ADCe-AAL8-1	増設	BC	2016/11/14	23	1.2	
	ADCe-AAL8-2	増設	BC	2016/11/14	24	1.3	
	ADCe-EAL9-1	既設	ABC	2017/1/16	26	1.6	
	ADEJ-AAL-1	増設	C系統	2018/10/23	37	0.9	
キレート樹脂	ADIR-EAL-3	既設	ABC系統	2018/10/22	26	22	Co (M ²⁺ , M ³⁺)
樹脂系1	CH-AAL-1	増設	BC系統	2019/8/26	19	0.8	Ru等 負電荷コロイド
樹脂系2	CH-AAL-6	増設	BC系統	2019/9/12	25	0.9	
	CH-AAL-7	増設	C系統	2020/1/27	20	0.9	
活性炭	AC-AAL-2	増設	A系統	2020/6/24	32	0.4	コロイド

*1 採取試料を 50 mL バイアル瓶に収納した時の表面線量率。*2 東京電力, “多核種除去設備 (ALPS) 確認試験、設置工事の状況について,” 平成24年6月25日。

*3 飯田ら, “汚染水処理二次廃棄物保管容器の健全性に関する調査,” 原子力バックエンド研究, 24(1), 53-64 (2017)。

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物(ALPS 吸着材)

- 吸着材の処分を想定し、目安濃度と比較すると、多くの核種がおおよそトレンチ処分に該当し、Sr-90 や Cs-137 の濃度によりピット処分以上が適当とみられる吸着材がある。(表1)

表1 ALPS 吸着材の分析結果と処分区分の目安*1との比較

試料	試料番号	放射能濃度 (Bq/t) ^{*2}							考えられる処分区分
		Co-60	Ni-63	Sr-90	Cs-137	I-129	Pu-238	Am-241	
チタン酸塩	ADSrt-AAL1-3	< 9 E+06		2.8E+13	3.0E+08		< 3 E+04	< 3 E+04	トレンチ処分
	ADSrt-EAL1-1	< 1 E+07		6.8E+12	4.9E+08		< 2E+04	< 4E+04	
キレート樹脂	ADIR-EAL-3	< 2 E+07	< 2 E+06	8.0E+11	< 6 E+06		< 2 E+04	< 3 E+04	ピット処分
ケイチタン酸塩	TN-AAL-2#2	< 1 E+07	3.3E+06	2.6E+09	8.8E+10		< 2 E+04	< 2 E+04	中深度処分
	TN-AAL-5#2	< 1 E+07	2.3E+06	2.7E+07	4.9E+10		< 2 E+04	< 3 E+04	
	TN-EAL-4#2	3.0E+07	7.7E+06	1.9E+08	8.7E+10		< 2 E+04	< 2 E+04	
酸化セリウム	ADEJ-AAL-1	6.4E+06	3.1E+06	4.1E+07	2.0E+07		< 2 E+04	< 2 E+04	トレンチ処分
	ADCe-AAL8-1	9.3E+06		3.8E+08	7.1E+06		< 2 E+04	< 2 E+04	
	ADCe-AAL8-2	9.1E+06		3.7E+08	7.2E+06		< 2 E+04	2.0E+04	
	ADCe-EAL9-1	1.9E+06		1.7E+07	< 3 E+04		< 2 E+04	< 2 E+04	
	CE-AAL-3	7.3E+06	5.9E+06	2.2E+07	3.7E+06		< 9 E+03	< 2 E+04	
	CE-AAL-5	4.4E+06	1.0E+07	2.1E+06	4.6E+06		< 9 E+03	< 2 E+04	
酸化チタン	ADTO-EAL13-1	3.6E+05		2.7E+08	3.7E+05		< 2 E+04	< 3 E+04	トレンチ処分
	ADTO-AAL15-3	5.3E+06		1.1E+09	1.0E+08		< 2 E+04	< 3 E+04	
銀ゼオライト	ADSi-AAL12-3	4.8E+06	7.6E+06	8.0E+09	6.9E+08	2.1E+07	< 2 E+04	< 3 E+04	トレンチ処分
	ADSi-EAL14-1	2.5E+06	< 2 E+06	6.6E+07	5.3E+05	2.0E+07	< 2 E+04	< 2 E+04	
	AZ-AAL-3	6.0E+06	2.4E+06	2.6E+07	1.5E+09	2.6E+08	< 2 E+04	< 2 E+04	
フェロシアン化合物	ADCst-EAL1-3	1.8E+07		< 5 E+06	3.3E+10		< 1 E+04	< 2 E+04	トレンチ処分
樹脂系1	ADCh-AAL10-1	2.6E+07		< 2 E+06	6.1E+06		< 3 E+04	< 3 E+04	トレンチ処分
	CH-AAL-1	8.6E+07	9.1E+06	2.0E+07	1.4E+05		< 2 E+04	< 5 E+04	
樹脂系2	ADCh-AAL11-1	1.0E+08		2.3E+06	5.4E+07		< 2 E+04	< 4 E+04	トレンチ処分
	CH-AAL-6	1.2E+08	6.0E+06	6.1E+07	1.2E+05		< 2 E+04	< 5 E+04	
	CH-AAL-7	2.0E+07	3.9E+06	< 4 E+06	5.0E+05		< 2 E+04	< 5 E+04	
活性炭	ADC-AAL8-2	2.8E+07		< 2 E+06	< 6 E+04		< 6 E+03	< 2 E+04	トレンチ処分
	ADC-AAL8-3	1.6E+07		< 2 E+06	< 5 E+04		< 8 E+03	< 6 E+03	
	ADC-EAL9-1	3.1E+07		< 2 E+06	7.8E+04		< 8 E+03	< 7 E+03	
	AC-AAL-2	1.5E+06	3.1E+06	1.0E+07	5.3E+04		< 6 E+03	< 2 E+04	

*1 原子力安全委員会, “低レベル放射性固体廃棄物の埋設処分に係る放射能濃度上限値について,” 表4, 平成19年5月21日.

*2 空欄は分析値がない. 値は2011.3.11 時点に減衰補正した. 「<」は検出下限値.

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物(セシウム吸着装置(SARRY II)工程水)

- 原子炉建屋等の地下に滞留する汚染水を処理するセシウム吸着装置 (SARRY II) の工程から採取した水を分析した。
(表1、図1)
 - 処理設備の入口、出口とともに、吸着塔の出口の水も対象とした。
 - I-129 については AMS による低濃度領域の分析を試みた。

表1 セシウム吸着装置 (SARRY II) の工程水試料

No.	採取場所	試料番号	採取日	体積 (mL)	表面線量率 (γ) (μSv/h)
1	SARRY II 入口	LI-SAT3-1	2020年11月20日	100	72
2	SARRY II フィルタ出口 (F-2)	LI-SAT3-2	2020年11月20日	100	72
3	SARRY II 同時吸着塔 1塔目出口 (S-2)	LI-SAT3-3	2020年11月20日	100	< 1.0
4	SARRY II 同時吸着塔 2塔目出口 (S-3)	LI-SAT3-4	2020年11月20日	100	< 1.0
5	SARRY II 同時吸着塔 3塔目出口 (S-1)	LI-SAT3-5	2020年11月20日	100	< 1.0
6	SARRY II 同時吸着塔 4塔目出口 (S-4)	LI-SAT3-6	2020年11月20日	100	< 1.0



入口水



フィルタ出口水



同時吸着塔4塔目出口水

図1 試料の外観

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物(セシウム吸着装置(SARRY II)工程水)

■ 分析方法

- 核種に応じた前処理法(燃焼法、酸溶解法、揮散回収法)を適用し、核種を分離・精製して測定、定量した。(図1)
- 入口水と出口水の2試料について、I-129 の濃度を AMS により分析した。

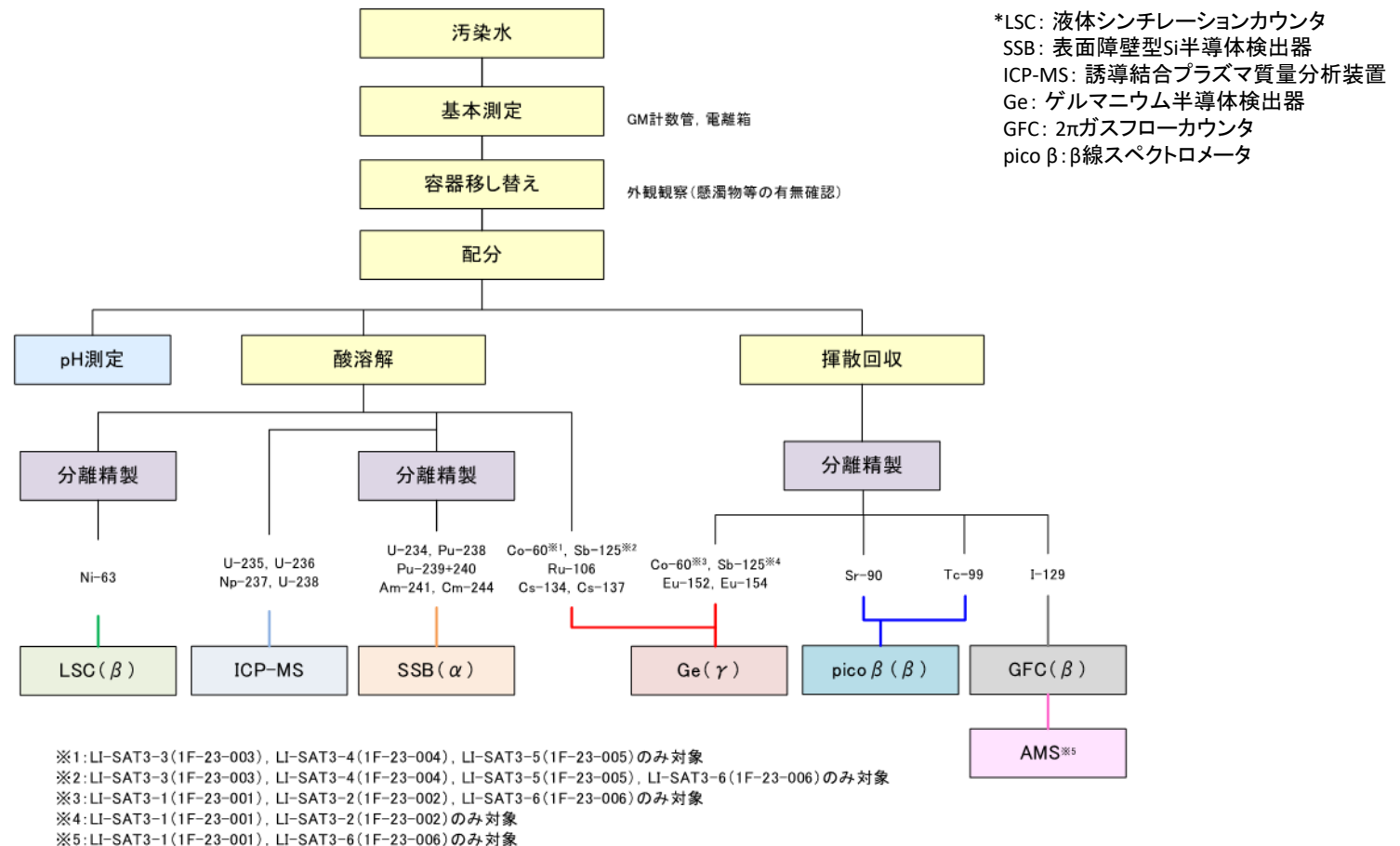


図1 SARRY II 処理工程水の分析フロー

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物(セシウム吸着装置(SARRY II)工程水)

■ 分析結果

- Cs-134 及び 137 は同時吸着塔1塔目、2塔目で顕著な濃度の低下がみられた。
- Sr-90は1塔目から3塔目で顕著な濃度の低下がみられた。
- Co-60、Sb-125、Ni-63、Tc-99 は工程中で大きな変動は見られなかった。
- I-129 はいずれの試料からも不検出であった。
 - ✓ 入口水と出口水は AMS により定量され、それぞれ 6.6×10^{-3} 、 6.8×10^{-3} Bq/cm³ であり、除染されないことが示唆された。(P.82 参照)
- α核種は、同時吸着塔1塔目と2塔目で濃度が低下する傾向が見られた。U同位体比とPu同位体比は燃料の同位体と同等であり、いずれも燃料に由来すると考えられる。

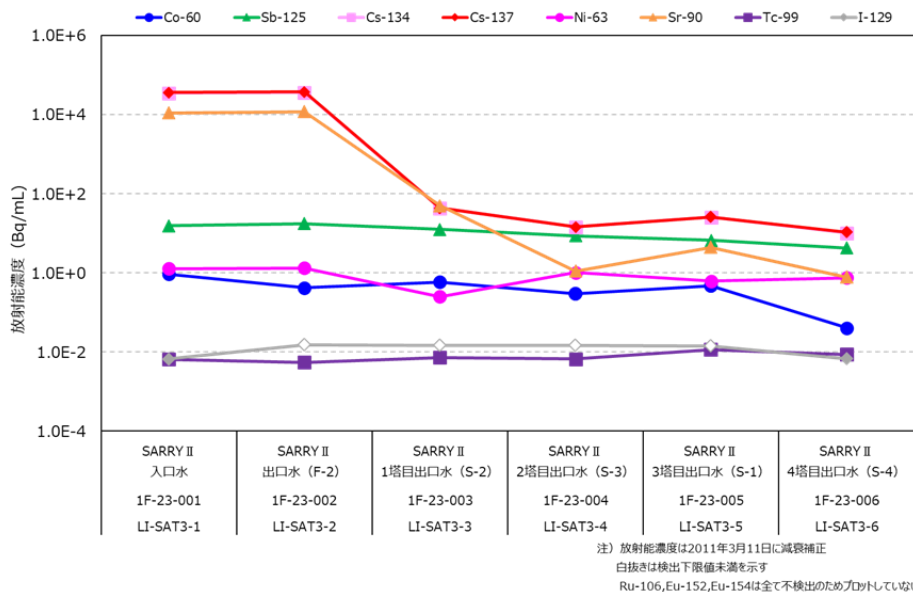


図1 γ・β核種の分析結果*1

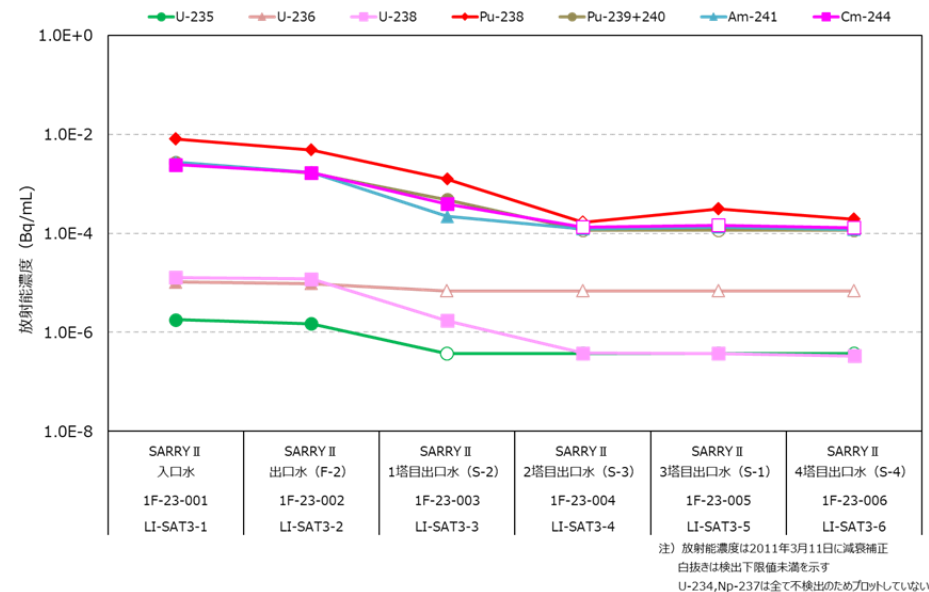


図2 α核種の分析結果*1

*1 白抜きは検出下限値未満を示す。放射能濃度は2011年3月11日に減衰補正した。

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物(セシウム吸着装置(KURION、SARRY)吸着材)

- セシウム吸着装置(KURION)の使用済み吸着材 4 試料と第二セシウム吸着装置(SARRY)の使用済み吸着材 3 試料を対象とした(表1)。
- セルに試料を受け入れ、輸送用の容器から保管用のステンレス容器へ移し替えるに伴って次を実施した。
 - デジタルスコープによる外観観察
 - 質量測定
 - 電離箱サーベイメータによる γ 線量率測定
- また、Ge半導体検出器による γ 線スペクトル測定を行った(図1)。

表1 分析対象試料

装置	吸着材の呼称	試料番号	吸着材の種類
SARRY	IE96(小)	ZL-SA-1	ゼオライト
	IE96(大)	ZL-SA-2	ゼオライト
	IE911	SIT-SA-1	ケイチタン酸
KURION	AGH	AZ-KU-1	銀添着ゼオライト
	H(小)	ZL-KU-1	ゼオライト
	H(大)	ZL-KU-2	ゼオライト
	TSG	SIT-KU-1	ケイチタン酸

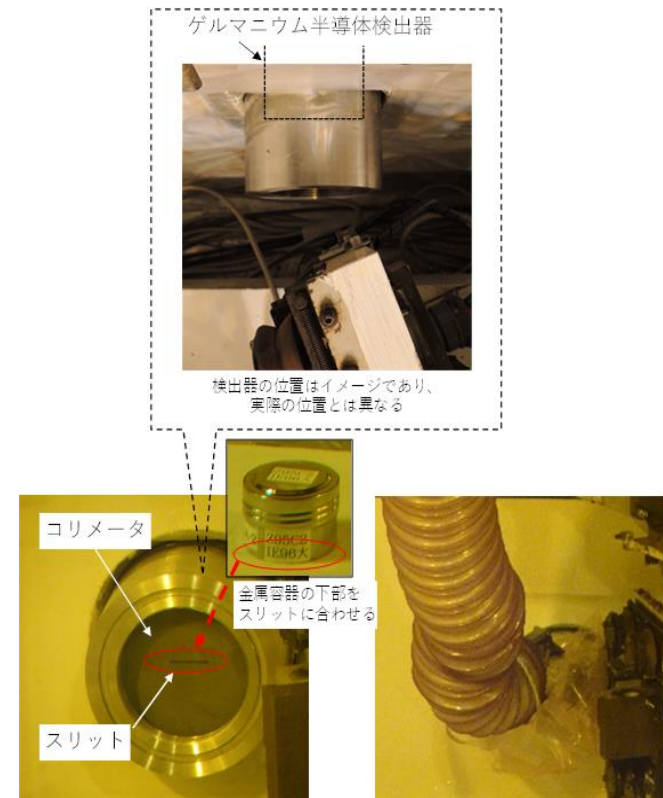









図1 γ 線スペクトル測定の様子

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物(セシウム吸着装置(KURION、SARRY)吸着材)

- 質量を測定し、採取時の測定値と同等であることを確認した。
- 線量率は、Srを含有するであろう吸着材(IE911、TSG)は、1Fでの測定値よりも低い傾向があった。
- 吸着材の外観はおおよそ乾燥しているようであった。穿孔時の金属片や、穿孔穴清掃に用いたバフの一部等の混入物がみられた。

表1 吸着材試料の外観、質量、線量率

吸着材	試料番号	外観	質量*1 (g)	線量率*2 (mSv/h)	吸着材	試料番号	外観	質量*1 (g)	線量率*2 (mSv/h)
IE96 (小)	ZL-SA-1		3.081	18.5	AGH	AZ-KU-1		11.697	0.711
IE96 (大)	ZL-SA-2		1.646	26.9	H (小)	ZL-KU-1		14.9	31.1
IE911	SIT-SA-1		4.635	10.4	H (大)	ZL-KU-2		3.872	93.9
					TSG	SIT-KU-1		13.358	9.9

*1 混入物の除去、試料の乾燥を実施していない。

*2 保管用のSUS容器に試料を入れ、容器側面から電離箱式サーベイメータにより測定した。

2.4 分析の実施・結果

水処理二次廃棄物(セシウム吸着装置(KURION、SARRY)吸着材)

■ 分析結果

- γ 線スペクトルには Cs-137、Cs-134 のみが検出された。
- バックグラウンド (BG) として Co-60 と K-40 が検出された。
- ケイチタン酸である IE911 (SIT-SA-1) は、Cs-137 の小さなピークが認められたが、計数誤差の範囲で BG と同等であった。

表1 分析対象試料

吸着材	試料番号	ピーク面積 (counts/10000 s)		
		Cs-137 (662 keV)	Cs-134 (796 keV)	Co-60 (1332 keV)
IE96小	ZL-SA-1	62309.2 ± 296.3	1493.0 ± 58.0	939.0 ± 35.8
IE96大	ZL-SA-2	63697.9 ± 261.1	1157.7 ± 56.7	883.0 ± 34.0
IE911	SIT-SA-1	449.0 ± 52.6	ND	936.4 ± 34.2
AGH	AZ-KU-1	4944.8 ± 85.1	ND	922.1 ± 33.8
H小	ZL-KU-1	142675.0 ± 389.2	2510.9 ± 66.1	930.2 ± 34.8
H大	ZL-KU-2	168124.3 ± 420.9	2947.3 ± 69.3	910.1 ± 34.4
TSG	SIT-KU-1	49959.8 ± 235.4	877.6 ± 54.0	931.7 ± 34.2
BG		350.9 ± 51.0	ND	932.1 ± 34.8

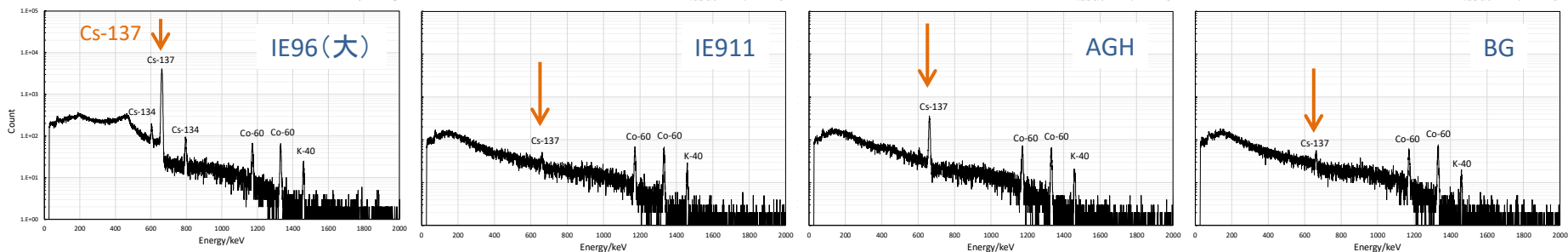


図1 セシウム吸着材の γ 線スペクトル

2.4 分析の実施・結果

特定核種の分析(瓦礫・汚染水の I-129)

- I-129 は処分安全評価の重要な核種であり、低濃度での定量が求められる。本年度分析した分析試料のうち、β線測定において検出下限値未満であった試料から8点を選び加速器質量分析(AMS)によるI-129分析を実施した。(図1)
- 瓦礫試料について4試料から検出され、Cs-137との相関についてデータを拡充できた。
 - 原子炉建屋で採取された瓦礫について相関性が示唆された。
 - 汚染水を経由した汚染が想定されるプロセス主建屋の瓦礫において、Cs-137に対しI-129濃度が高い傾向が見られた。
- SARRY II 処理工程水について、より低濃度で検出され、処理工程におけるI-129の挙動について知見が得られた。

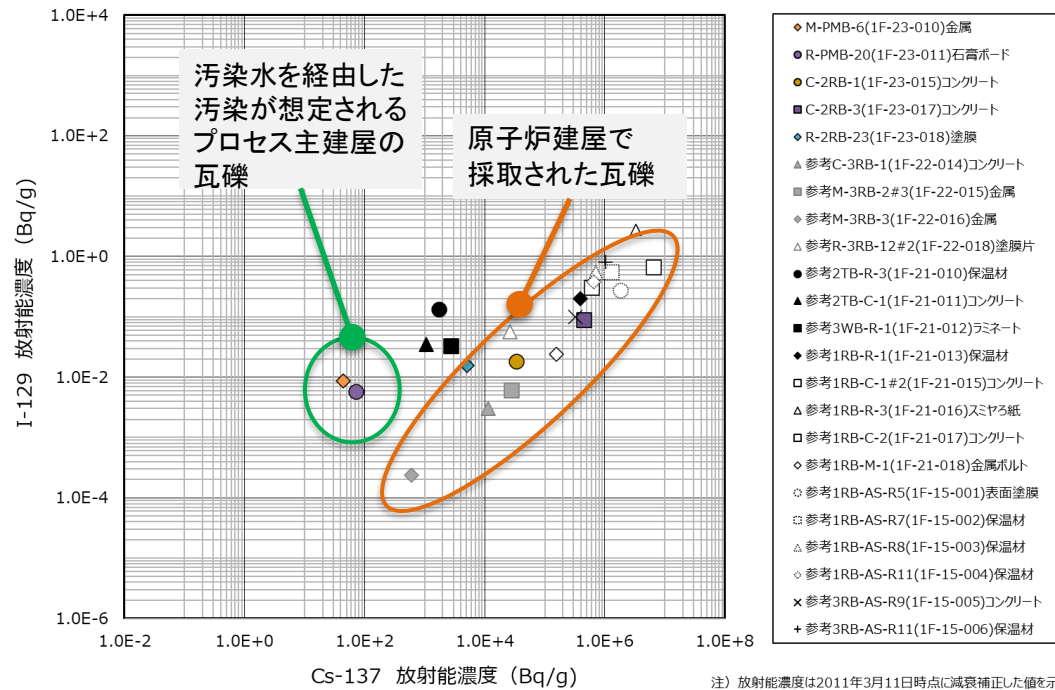


図1 瓦礫試料のI-129とCs-137の相関図

2.4 分析の実施・結果

特定核種の分析(汚染水の Tc-99)

- 従来、Tc-99 の分析を ICP-AES により行っている場合があり、より低濃度での定量を目指して放射能測定による分析法を整備した。
- 施設の制約のため、塩化物を含む試薬を使用^{*1}をしない分析フローを検討した。(図1)
- 汚染水(滞留水及び処理工程水)24 試料(表1)を分析した。うち、6試料はスラッジとともに採取されており、孔径10 μmのフィルタでろ過・回収した固形分をスラッジとして、また、さらに孔径の小さいフィルタでろ過したろ液を汚染水として分析した。

表1 分析対象試料

試料番号	採取日	採取場所	試料番号	採取日	採取場所
LI-2RB5-2	2013.8.7	2号機格納容器	LI-PMB1-1	2017.12.5	プロセス主建屋
LI-3RB5-2	2015.10.22	3号機格納容器	L-PMB-4	2022.4.21	プロセス主建屋 ^{*2}
L-1RB-4	2022.4.19	1号機原子炉建屋 ^{*2}	LI-HTI2-2	2014.2.11	高温焼却炉建屋
LI-TS-02	2020.2.13	2号機原子炉建屋 ^{*2}	LI-HTI7-1	2017.12.5	高温焼却炉建屋
L-3RB-8	2021.7.8	3号機原子炉建屋 ^{*2}	L-HTI-11	2022.4.22	高温焼却炉建屋 ^{*2}
L-3RB-7	2021.7.13	3号機原子炉建屋 ^{*2}	LI-AR3-2	2011.9.6	除染装置
LI-1TB5-5	2015.9.30	1号機タービン建屋	LI-KU3-2	2011.9.6	セシウム吸着装置
LI-1TB6-1	2017.7.10	1号機タービン建屋	LI-KU7-4	2016.7.25	セシウム吸着装置
LI-2TB7-1	2015.9.25	2号機タービン建屋	LI-SA2-3	2014.2.11	第二セシウム吸着装置
LI-3TB7-1	2015.10.15	3号機タービン建屋	LI-SA3-1	2014.8.5	第二セシウム吸着装置
LI-RW4-1	2014.11.25	集中RW	LI-SA6-3	2015.9.8	第二セシウム吸着装置
			LI-SA7-2	2016.7.25	第二セシウム吸着装置
			L-RC-1	2021.7.21	RO濃縮装置 濃縮水 ^{*2}

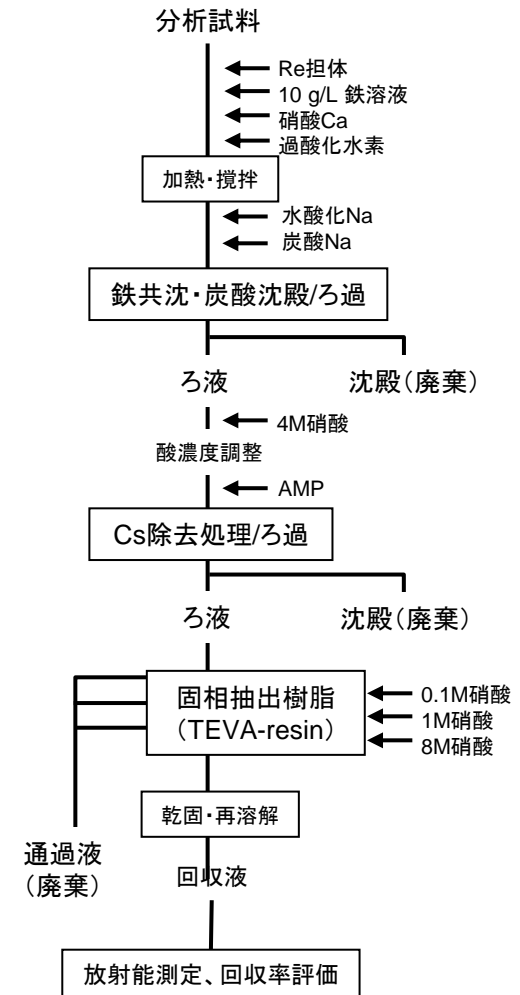


図1 ⁹⁹Tcの分析方法

*1 関 晃太郎 ほか, “福島第一原子力発電所の廃止措置に向けた瓦礫・植物などの放射性核種分析手法に関する検討,” JAEA-Technology 2016-013 (2016).

*2 スラッジとともに採取された試料.

2.4 分析の実施・結果

特定核種の分析(汚染水の Tc-99)

- 分析に供した汚染水 24 試料のうち、21 試料で Tc-99 が検出された。
- Tc-99 の濃度は、採取日や採取場所によらず $10^{-2} \sim 10^{-1} \text{ Bq/cm}^3$ 程度で推移している。
- 汚染水中の主要な核種である Sr-90 及び Cs-137 のいずれとも相関は見られず、これらを key 核種とした Tc-99 濃度の推定は困難と考えられる。

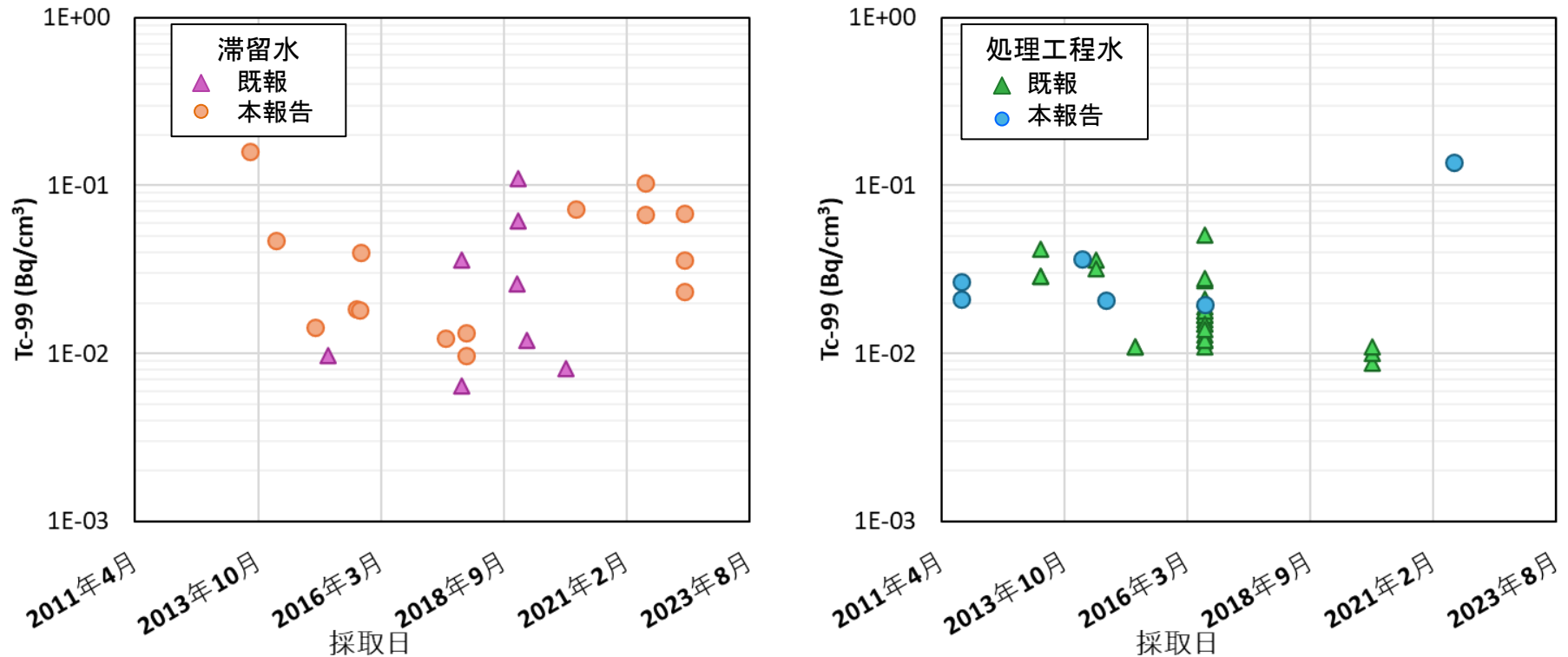


図1 汚染水中の ^{99}Tc 濃度の推移*1

*1 放射能濃度は2011年3月11日で減衰補正した値.

2.4 分析の実施・結果

特定核種の分析(汚染水の Tc-99)

- Se-79 及び I-129 は Tc-99 とともに水中で陰イオンで存在すると考えられ、Tc-99 の分析結果と比較した。
 - 上記核種について滞留水への輸送比(Cs-137を基準)を計算した。(図1)
- Tc-99 に対し、Se-79 と I-129 の輸送比(Cs-137基準)は桁違いに大きい。また、H-3 や Sr-90 も Tc-99 に比べて大きな輸送比であり(図2)、燃料からの放出(溶出)の挙動がこれら核種と異なると見られる。

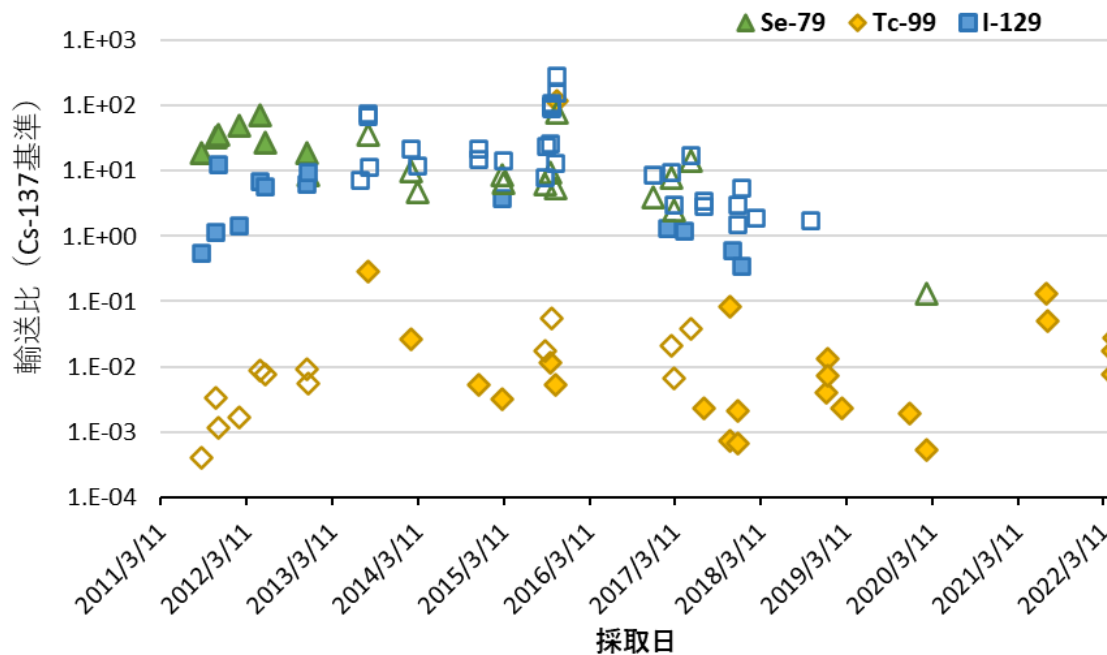


図1 滞留水への ^{79}Se 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I の輸送比(Cs-137基準)の推移*1

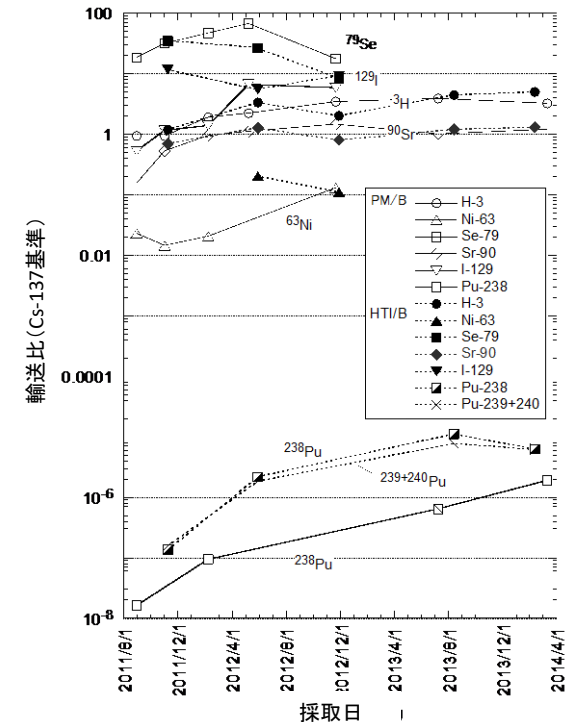


図2 滞留水への核種の輸送比(Cs-137基準)の推移*2

*1 放射能濃度は2011年3月11日で減衰補正した値。白抜きは不検出。ソースタームの放射能量は西原らの計算値(JAEA-Data/Code 2012-018)を用いた。*2 Koma et al., Nuclear Materials and Energy, 10, 35-41 (2017)。

2.4 分析の実施・結果

特定核種の分析(汚染水の Tc-99)

- スラッジを含む滞留水試料について、スラッジと水の間での Tc-99 の分配(物質収支)を求めた。(図1)
- 多くの試料でスラッジに Tc-99 が検出され、スラッジ中の存在割合は60~90%であった。
- Tc は水中で VII 価 (TcO_4^-) として溶解しており、スラッジには異なる化学形態で存在する可能性がある。Tc は IV 価 ($TcO(OH)_2$) として存在しうることから^{*2,3}、固体の表面 (Fe を主成分とするスラッジの表面など) で還元され^{*4}、スラッジに移行する反応が示唆される。

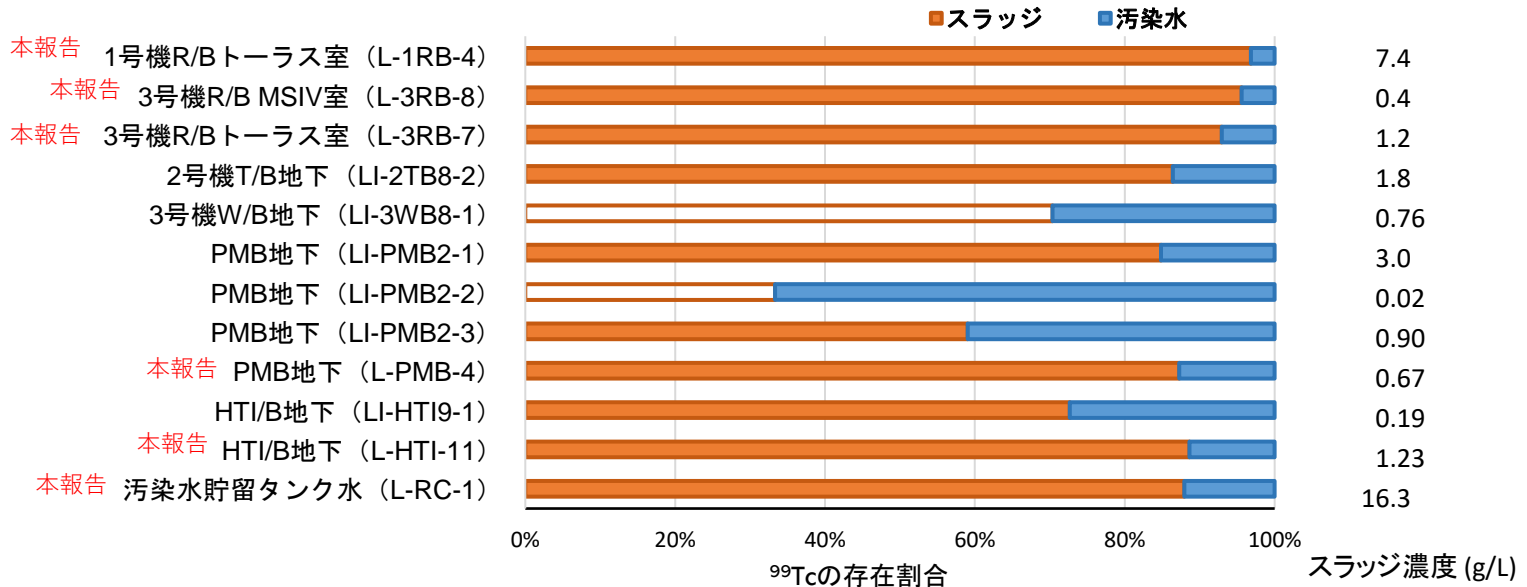


図1 スラッジ-水間の ^{99}Tc の分配(物質収支)^{*1}

*1 既報のデータを含む。スラッジを含む試料あたりの放射能に基づく。白抜きは検出下限値から算出した割合。

*2 田上ら, “土壤中におけるテクネチウムの物理化学的形態に関する考察,” RADIOISOTOPES, 43, 623 (1994).

*3 百島ら, “鉄共沈法による海水中の ^{99}Tc の濃縮,” RADIOISOTOPES, 40, 17 (1991).

*4 A. Hixon et al., “Plutonium environmental chemistry: Mechanisms for the surface-mediated reduction of Pu(V/VI),” Environ. Sci. :Process Impacts, 20, 1306 (2018).

2.4 分析の実施・結果

特定核種の分析(汚染水の Ni-63)

■ Ni-63分析法

- ステンレス鋼を主要材料とする分析施設では、腐食の観点からハロゲン系試薬の使用は好ましくない。
- Ni-63の分析法は、従来、塩酸溶液系での陰イオン交換に基づいている。
- 2021年度に、硝酸溶液では錯形成能の違いから分離が困難となる条件において、1F廃棄物の主要核種である Sr-90-Y-90、Cs-137 による妨害を除去するよう、化学分離方法を検討、開発した。(図1)

■ データの拡充

- これまでに分析に供した滞留水、処理水及びスラリー等の20点の試料について Ni-63 を分析した。
 - ✓ 2、3号機PCV水、2号機トーラス室滞留水、1、3号機タービン建屋滞留水、建屋スラッジ
 - ✓ 集中RW地下高汚染水、HTI/B地下滞留水、KURION出口水、SARRY出口水、AREVA出口水
 - ✓ ALPS鉄共沈スラリー、濃縮廃液スラリー
- 分析試料から Ni を化学分離し、液体シンチレーションカウンタにより放射能を測定した。
 - ✓ 担体の回収率は83~100%と良好であった。
- 20 試料のうち 19 試料から Ni-63 を検出した。

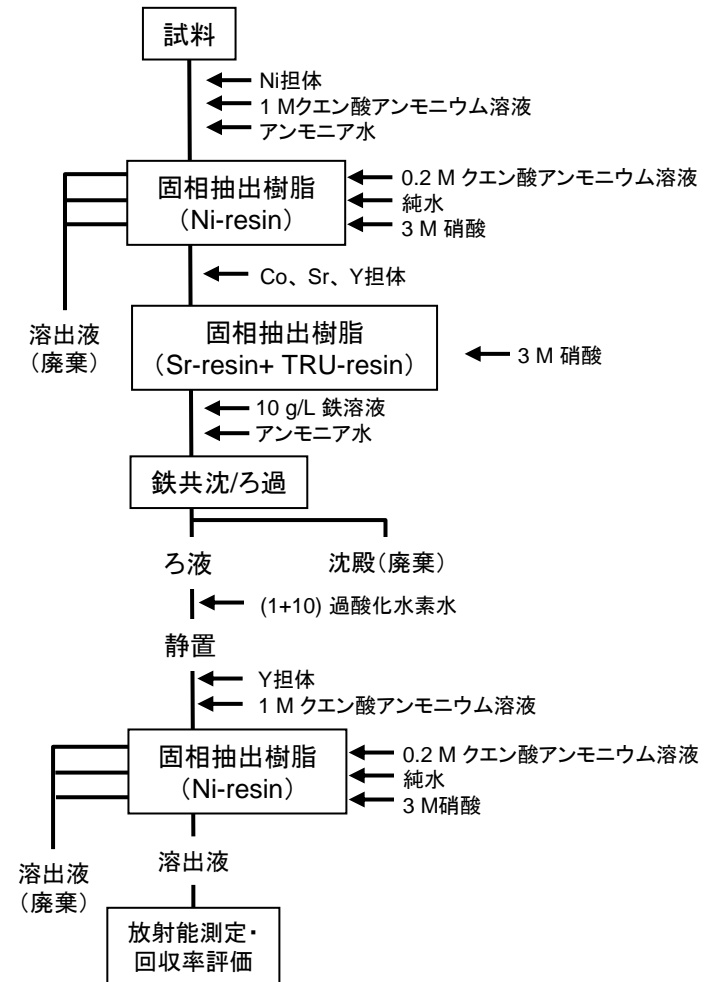


図1 Ni-63 の分析方法

2.4 分析の実施・結果

特定核種の分析(汚染水の Ni-63)

■ 分析結果

- 汚染水の Co-60/Ni-63 比は相関する傾向が見られる(図1)。事故初期に得られた試料では高い値であり、時間の経過とともに小さくなる傾向がみられた。
- 炉心付近の試料(図1 青矢印)については、構造材(ステンレス鋼)中の Co-60/Ni-63 比(=4.7)^{*1}とよく一致した。この比は、放射化生成物の由来を考察する上で参考となりうる。

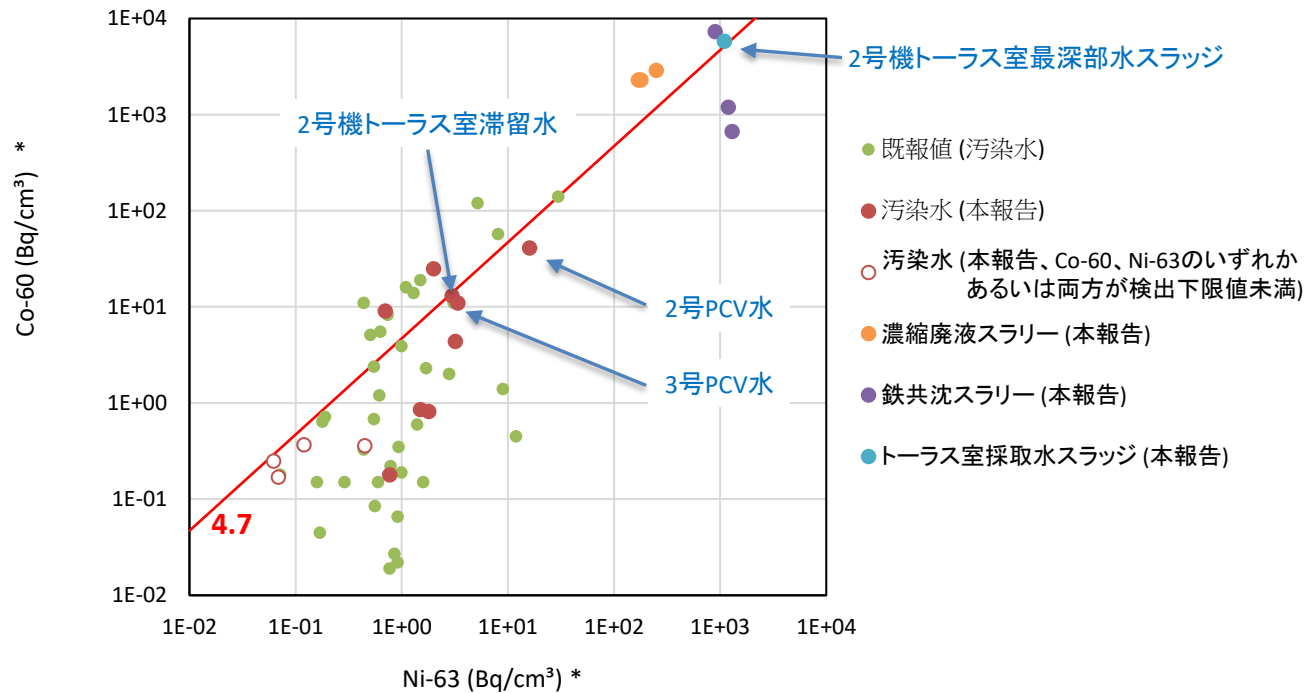


図1 Ni-63 の分析結果

* 既往値は FRAnDLi を検索、引用した。放射能濃度は2011年3月11日で減衰補正した。濃縮廃液スラリーは Bq/g。

^{*1} 電気事業連合会, “余裕深度処分対象廃棄物に関する基本データ集(一部改訂),” 平成28年8月23日, 上部格子板、シュラウド等(ステンレス鋼)の合計値を参照。

2.5 データベースの整備 分析結果データベース (FRAnDLi)

- FRAnDLi は、試料の分類を見直すとともに、検索において、試料と分析項目(核種)のそれぞれを複数選択できるように改良した。また、利便性のためトップページのレイアウトを変更した(図1)。
 - 試運用した結果、特に問題が見つかっていないことから、2024年3月7日に運用に切り替えた。
- 2022年度および2023年度は、分析した90試料とともに、東京電力が公開したデータ(2541件、保管廃棄物量、処理水量)を収録した。(表1)

表1 収録した試料件数(2023年度まで*1)

試料	取得機関	収録試料件数			
		2022年度追加	2023年度追加	計	
汚染水	滞留水	東京電力	20	21	474
		原子力機構	2	3	80
	処理水	東京電力	47	53	830
		原子力機構	1	0	107
水処理二次廃棄物	原子力機構	12	11	61	
瓦礫	瓦礫	原子力機構	16	21	202
	建屋スラッジ	原子力機構	12	12	59
土壌・植物	原子力機構	0	0	467	
保管廃棄物量等	東京電力	1,248	1,152	14,203	

*1 2024年3月7日時点。

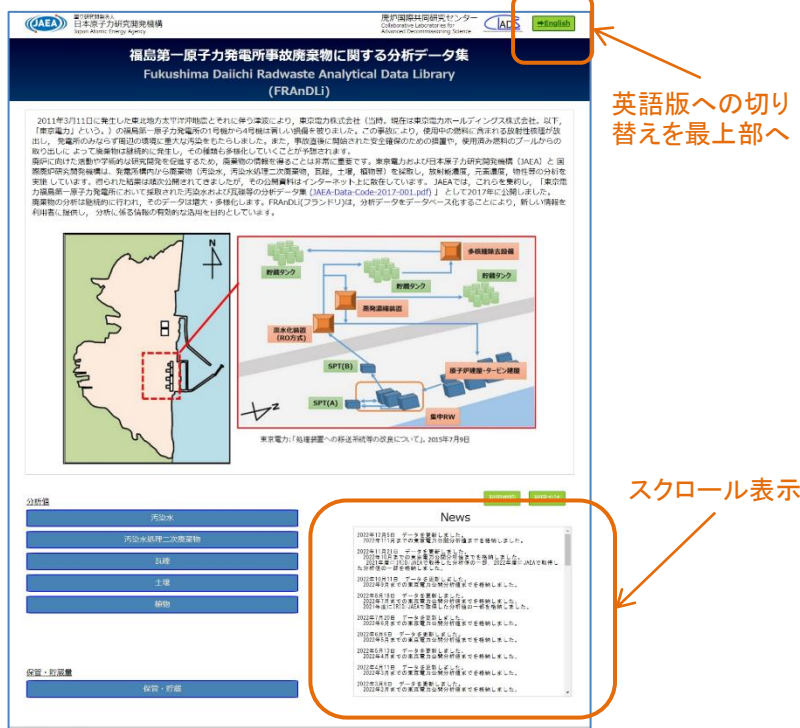


図1 トップページのレイアウトの変更

2.5 データベースの整備

試料データベースの整備 (SampleBase)

- 分析データを活用する上で、試料の情報が重要であり、Wiki ソフトウェアを基盤とした試料データベース (SampleBase) を試作し、運用を開始した。(図1)
 - Wiki ソフトウェアの特性を活かし、試料にまつわる種々の(雑多な)情報を収録できる。これまでに、入力すべき試料の情報を整え、50データを入力した(元試料と派生試料を並べて表示して試料管理を支援)。
 - 原子力機構のサーバ上に構築し、これに社外関係者からアクセスできる。公開に適さない情報を含むため、当面は関係者に限定して運用する。
- 収録した情報を再利用するため、データ検索のユースケースを想定し、分析試料の保管管理と輸送管理の検索機能を導入した。(表1)

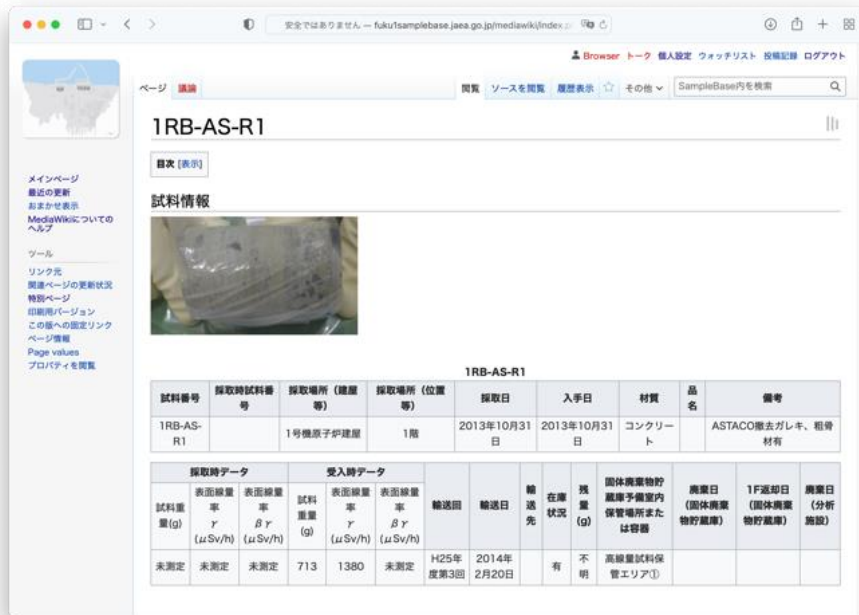


表1 試料情報を検索するユースケースに関する想定

研究開発の段階	検索の目的
性状把握の進捗管理	<ul style="list-style-type: none"> ● これまでの分析点数 ● ある種類の廃棄物の分析実績
分析試料の保管管理	<ul style="list-style-type: none"> ● 保管中の試料の一覧
分析の計画	<ul style="list-style-type: none"> ● ある条件に適合する試料の一覧
分析試料の輸送管理	<ul style="list-style-type: none"> ● 輸送試料の一覧

図1 分析試料情報の Wiki (SampleBase) の使用例

2.5 データベースの整備

試料データベースの整備(研究開発情報の収録)

- 試料情報とともに、研究開発に係る情報を収録するよう利用方策を検討している。
 - 現在、種々の情報をアップロードしながら、収録すべき情報を検討している(表1)。
 - 一般の Wiki のように、検索から出発するのではなく、メインページから主要な情報にアクセスできるよう構成を検討している。(図1)
- この Wiki を 1F 廃棄物の性状に関する知識ベースの土台とする可能性を考慮して進めている。

表1 収録を検討している情報(試用中のものを含む)

分類	内容(コンテンツ)
分析試料の情報	<ul style="list-style-type: none"> • 採取の履歴、線量率などの性状、輸送の実績等
分析データ	<ul style="list-style-type: none"> • 得られたデータ(FRAnDLi データの引用) • 上記に含まれないデータ • 公開等の実績に関するリスト
廃棄物の情報	<ul style="list-style-type: none"> • 廃棄物の由来、性状、発生量等
分析方法	<ul style="list-style-type: none"> • 公開されているマニュアル、論文等 • 分析施設で用いるマニュアル等の基準
試料の輸送	<ul style="list-style-type: none"> • 輸送の実績
研究開発の情報	<ul style="list-style-type: none"> • インベントリ推算、分析計画の方法等
補助事業の情報	<ul style="list-style-type: none"> • 実施した事業、外注先の一覧等 • 報告書の収録



図1 Wiki SampleBase のメインページ

2.6 分析法の開発

C-14 分析法の検討(C-14 の多様な分析対象)

- C-14 はコンクリートなどの瓦礫によく検出され、他にも植物、土壌、汚染水にも認められている。C-14 は多様な化学形態を取りうるので、多様な分析の対象に合わせて分析法を整備する必要がある。
 - C-14 は Cs-137 と相関しない一方で、H-3 との相関が伺われる(図1)。C-14 の汚染プロセスは代表的な核分裂生成物と異なる可能性に配慮して検討する必要がある。
- C-14 は原子炉とその周辺において放射化によって生成するために、含有する物質(ソースターム)が多様である。また、ソースタームから移行する経路も複数と考えられる。これら多様性を踏まえて、分析法を検討する対象の優先度を検討した。
- 代表的な C-14 の汚染経路としては、空気と水を媒体とした経路に大別できる(図2)。
 - 汚染のプロセスは、ソースタームから媒質(空気と冷却水)への移行、媒質中の移行、固体表面での反応(固定化)に分解して考えた。

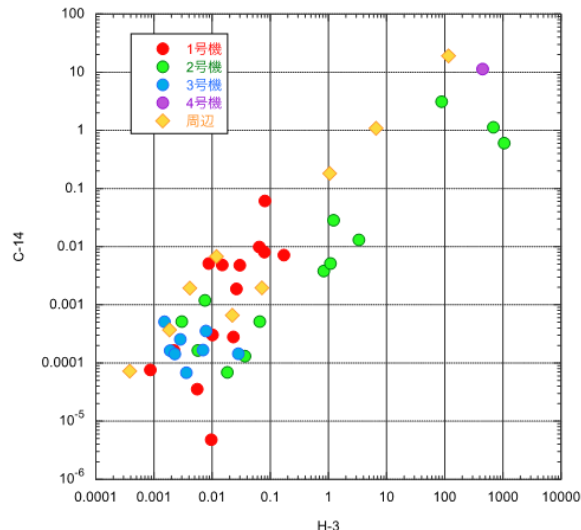


図1 瓦礫(コンクリート)への C-14 と H-3 の輸送比の相関*1

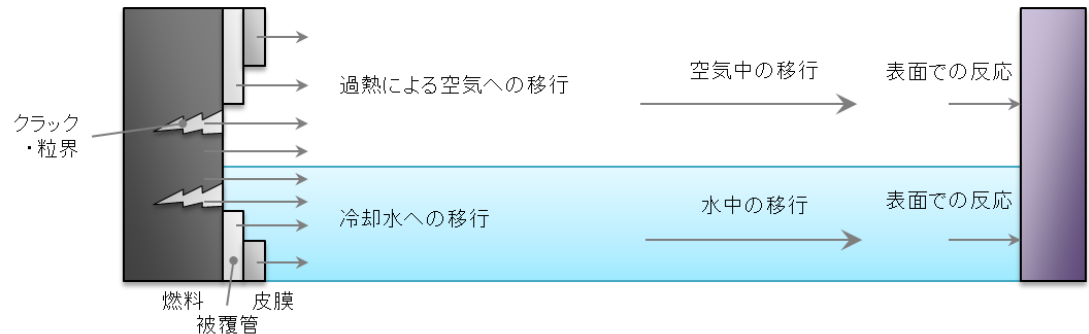


図2 分析法の主な対象とする C-14 の移行経路の検討、選定

*1 北海道大学, 福井大学 ほか, “溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討,” 令和3年度, JAEA-Review 2022-038 (2023).

2.6 分析法の開発

C-14 分析法の検討(C-14 の多様な分析対象)

- C-14 のソースタームは原子炉が停止した時点において C-14 を含む材料を想定した。
 - 材料中の N-14、O-17、C-13 の放射化により生成する。
 - 燃料要素と構造材料(炉内構造物)に加えて冷却水を考慮した。(表1)
 - C-14 の放射エネルギーに対する寄与は、燃料要素に対し構造材料が大きい。
- 原子炉が停止した時点における C-14 の形態は、C-14 が存在していた場所により、初期の化学形態、その後の化学反応が異なり、それぞれを検討する必要がある。(表1)
 - 燃料要素は、酸化物と金属中の C-14 が事故の過程で反応した可能性を検討すべきである。
 - 被覆管表面に付着した成分は、クラッドとともに冷却水中を循環する可能性がある。

表1 C-14 のソースターム中の存在場所と化学形態

分類	C-14 の存在場所	C-14 の化学形態
燃料要素	燃料酸化物相	<ul style="list-style-type: none"> • 酸素ポテンシャル(燃焼度)に依存。 • 損傷した燃料にあつては、過熱水蒸気との反応の可能性。
	被覆管の金属相	<ul style="list-style-type: none"> • free elementとして存在。少量だがカーバイドとしても存在。^{*1} • 過熱水蒸気と反応。
	被覆管表面の被膜 (液相から移行)	未調査。(下記、冷却水系の寄与)
構造材料(炉内構造物)	金属相	未調査。
冷却水系	液相	<ul style="list-style-type: none"> • 水の酸素管理がないため酸化雰囲気である。炭酸イオンで存在。(PWR系)^{*2} • 精製系に回収される。(PWR系)^{*3}

*1 核燃料サイクル開発機構, “東海再処理施設におけるC-14の挙動,” JNC TN8410 2001-021 (2001).

*2 K. Rumbko et al., “Study on C-14 Generation and Release in Pressurized Water Reactor,” Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting (2014).

*3 K. Kino, “Investigation of C-14 in the CRUD collected on the coolant filter of commercial PWR (I) - thermal decomposition characteristics and C-14 release behavior under various gas atmospheres,” MRS Advances, 3, 1051 (2018).

2.6 分析法の開発

C-14 分析法の検討(C-14 の多様な分析対象)

- C-14 がソースタームから媒質へ移行し、拡散する過程、さらに被汚染物に固定化される過程について、ソースタームが酸化環境となり CO_2 となる場合、水中、並びに空気中にあっても水粒子(水蒸気、水滴)として移動する場合には、炭酸イオンの寄与が大きいと見られる。(表1)
 - 圧力容器内では加熱水蒸気が充満しており、C-14 を酸化して CO_2 として空気の流れに乗って移動する。
 - 燃料の冷却のために供給される水(冷却水)と接触し、溶解して炭酸イオンとして冷却水の流れに乗って移動する。
 - ソースタームの一部が機械的な作用により微小粒子となり、移動する可能性も考えられる。
- 無機形態とともに、有機化合物を考慮する必要がある、還元環境での生成についての報告があり、さらに調べる必要がある。BWR の条件に着目して引き続き検討を進める。
- 固定化された C-14 は、長期にわたる環境への曝露の結果、化学的、物理的に変化する可能性を考慮すべきである。

表1 ^{14}C が固定化される過程

汚染される物質	想定される固定化の方法
金属	<ul style="list-style-type: none"> • 表面に炭酸塩被膜を形成する • 腐食生成物中に炭酸塩として取り込まれる
コンクリート	<ul style="list-style-type: none"> • CO_2 と接触してコンクリートの炭酸化が生じる
有機物	<ul style="list-style-type: none"> • 同位体交換が生じる(寄与は小さいと考えられる)
吸着材 (活性炭、ゼオライト、金属酸化物、イオン交換樹脂、キレート樹脂等)	<ul style="list-style-type: none"> • 活性炭では CO_2 の吸着や物理吸着が生じる
土壌	<ul style="list-style-type: none"> • 炭酸塩として析出
植物	<ul style="list-style-type: none"> • CO_2 (光合成) や CO_3^- (根からの水分吸収) として吸収し、植物の一部となる

2.6 分析法の開発

C-14 分析法の検討(検討の優先度)

- 分析法を検討する優先度を設定するためにC-14により汚染される過程を物質ごとに整理した。(表1)

表1 ¹⁴C が固定化される主要な過程に関する想定

材質	廃棄物汚染物	経路						
		1 残留	2 揮発 無機	3 水蒸気 無機	4 揮発 有機物	5 水 無機	6 水 有機	7 二次
コンクリート	解体廃棄物: 格納容器内・圧力容器内	✓	✓	✓	✓	✓	✓	
	解体廃棄物: 原子炉建屋・その他 地上階		✓	✓	✓			
	解体廃棄物: 原子炉建屋・その他 地下階					✓	✓	
	保管瓦礫*1		✓	✓	✓			
金属	解体廃棄物: 格納容器内・圧力容器内	✓	✓	✓	✓	✓	✓	
	解体廃棄物: 原子炉建屋・その他 地上階		✓	✓	✓			
	解体廃棄物: 原子炉建屋・その他 地下階					✓	✓	
	保管瓦礫*1		✓	✓	✓			
有機物	解体廃棄物: 地上階		✓	✓	✓			
	解体廃棄物: 地下階					✓	✓	
	保管瓦礫*1		✓	✓	✓			
水処理 二次廃 棄物	鉄共沈スラリー					✓	✓	
	炭酸塩沈殿スラリー					✓	✓	
	AREVAスラッジ					✓	✓	
	濃縮廃液スラリー					✓	✓	
	KURION/SARRY/SARRY II					✓	✓	
	ALPS					✓	✓	
焼却灰	土嚢ゼオライト/土嚢活性炭					✓	✓	
	保護衣							✓
	立木・伐採木		✓	✓	✓	✓	✓	
土壌	その他可燃物		✓	✓	✓	✓	✓	
	土壌		✓	✓	✓	✓	✓	

¹⁴C の移行に関する想定

1. 放射化により生成した状態でその場に留まる
2. 揮発し CO₂として移動、接触、固定
3. CO₃²⁻として水蒸気に溶け込んで移動、接触、固定
4. 有機物(CH₄など)として移動、接触、固定
5. CO₃²⁻として水に溶け込んで移動、接触、固定
6. 分子量の小さい有機物として水に溶け込んで移動、接触、固定
7. 廃止措置に係る作業による二次汚染

*1 保管瓦礫は、表面線量率で分類(>30、1-30、0.1-1、<0.1 mSv/h)、保管されている。

2.6 分析法の開発

C-14 分析法の検討(検討の優先度)

- 分析の対象とする優先度を、想定される C-14 の化学形態、廃棄物の発生量、および C-14 が各廃棄物に到達する可能性を組み合わせる検討した(表1)。
- 瓦礫類ではコンクリートや金属、また、水処理二次廃棄物では炭酸塩スラリーの優先度がそれぞれ高いものと考えられた。
- 各分析施設の実績を考慮し、分担して分析を実施する計画を立てていく。

表1 C-14 を分析する対象の優先度(試行例)

廃棄物	材質	C-14の化学形態 ^{*1}	廃棄物の発生量 (t)		C-14の到達の可能性 ^{*2}	分析の優先度
解体廃棄物: 原子炉建屋 地上階	金属	炭酸塩(表面、腐食部)、 低分子有機炭素	36,322	大	大	高
	コンクリート	CaCO ₃ 、低分子有機炭素	457,289	大	大	高
解体廃棄物: 原子炉建屋 地下階	金属	炭酸塩(表面、腐食部)、 低分子有機炭素	9,080	中	中	中
	コンクリート	CaCO ₃ 、低分子有機炭素	114,322	大	中	高
保管瓦礫: >30 mSv/h瓦礫	金属	炭酸塩(表面、腐食部)、 低分子有機炭素	17,177	大	大	高
	コンクリート	CaCO ₃ 、低分子有機炭素	12,249	大	大	高
保管瓦礫: <0.1mSv/h瓦礫	金属	炭酸塩(表面、腐食部)、 低分子有機炭素	29,889	大	小	中
	コンクリート	CaCO ₃ 、低分子有機炭素	22,095	大	小	中
水処理 二次廃棄物	炭酸塩沈殿スラリー	CaCO ₃ 、有機炭素	10,865	大	中	高
	ALPS吸着材(活性炭)	CO ₃ ⁻ イオン、炭酸塩、有機炭素	88	小	大	中

*1 ¹⁴C が到達するプロセスと廃棄物の材料から、その廃棄物中に特に重要と考えられる¹⁴Cの形態。

*2 ソースタームからの距離を定性的に比較した。

2.6 分析法の開発

C-14 分析法の検討(技術開発の課題)

- C-14 は試料を分解(燃焼)し、気相へと追い出し回収する方法が一般的である。分析施設によっては設備面の制約(燃焼炉が大きい、など)から分析が難しい場合がある。このため、燃焼法とともに試料を溶解する方法の適用性の検討を進めた(図1)。
- アルカリ融解を用いた方法は、コンクリートや金属試料等で実績がある^{*1,2}。
- 酸で容易に溶解する廃棄物(炭酸塩スラリーなど)は、湿式酸化法(酸溶解)の適用も考えられる。
- 試料からの C-14 回収における技術的な課題として以下を考慮して検討した。
 - 廃棄物の種類(材質)に適した前処理方法を選定、具体化する。
 - 廃棄物は Cs-137 や I-129、H-3 など揮発性の β 線放出核種を含むため、CO₂ 回収を妨害しない精製方法を取り入れる。
 - 種々の化学形態が共存する中で、回収率の評価方法を確立する。
 - ✓ アルカリ融解における有機形態の C の挙動を調査し、必要に応じて酸化分解などを取り入れる。

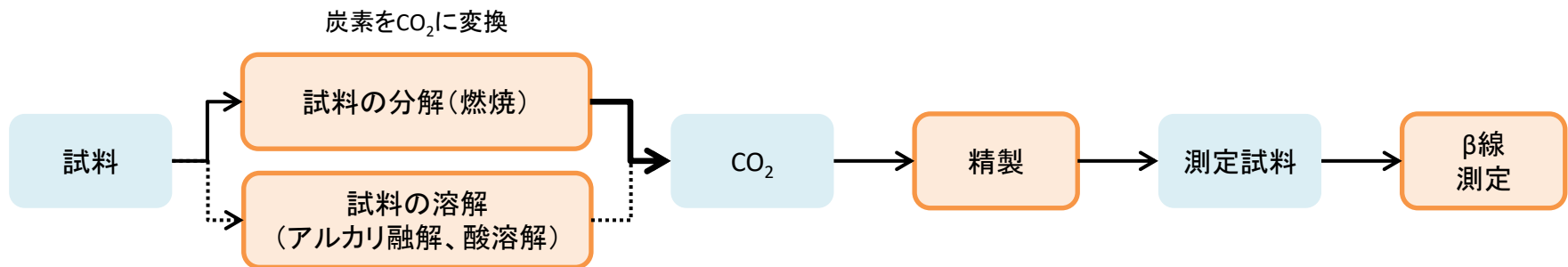


図1 ¹⁴C 分析の基本的な流れ

*1 亀尾ら, “研究施設等廃棄物に含まれる放射性核種の簡易・迅速分析法(分析指針),” JAEA-Technology 2009-51 (2009).

*2 Takahashi et al., “Improvement of Inventory and Leaching Rate Measurements of C-14 in Hull Waste and Separation of Organic Compounds for Chemical Species Identification,” Materials Research Society Symposium Proceedings, 1665, 139–148 (2014).

2.6 分析法の開発

C-14 分析法の検討(検討状況)

- C-14 の分析方法は多種の廃棄物ごとに複数の化学形態を検討する必要があり、その組み合わせが多様である。中長期的に取り組むこととなるため、優先度と分析施設の特徴に応じて分析方法の整備を順次進めている(表1)。
- 無機化合物と共に、有機化合物を念頭に置いた検討を進めている。
 - 酸化分解に使用する酸化剤についてコールド試験を実施している。
 - 燃焼法について、燃焼温度によってガス化する形態が異なることを利用した分別を検討している。
- 低濃度の C-14 を分析する場合、加速器質量分析 (AMS) の利用が考えられる。
 - 年代測定にて、C-14 を含む同位体比の分析に実績がある。
 - 前処理では、分離した炭素を還元してグラファイトとする必要があり、前処理法を試料ごとに検討することとなる。
 - 事故に由来する炭素とともに、試料マトリックスが元々含む成分、分析の過程において混入する成分の寄与を考慮する。

表1 ^{14}C 分析の検討状況

廃棄物の種類	^{14}C 分析の優先度	検討を進める分析方法	備考
炭酸塩スラリー	高	湿式酸化法	
鉄共沈スラリー	高	湿式酸化法	
コンクリート瓦礫	高	アルカリ融解法(燃焼法)	NDC社にて燃焼法による分析を一部進めている。
金属瓦礫	中	アルカリ融解法(燃焼法)	NDC社にて燃焼法による分析を一部進めている。
SARRY/KURION吸着材	高	湿式酸化法	NFD社にてセル内での実施も念頭に湿式酸化法による分析を検討している。
ALPS吸着材	中	アルカリ融解法(燃焼法)	原子力機構にてアルカリ融解法の検討を進めている。
土壌	中	アルカリ融解法(燃焼法)	

2.6 分析法の開発

I-129 分析法の検討(加速器質量分析の方法)

- I-129 を低濃度にて検出、定量するため、従来の放射線や ICP-MS による分析に加え、加速器質量分析 (AMS) の適用を試みている。
- 試料から I-129 を気中に分離し、キシレンにて回収したものをさらに溶媒抽出により精製する。ヨウ化銀に調製して AMS 測定に供する。
 - 測定に適した可能な I-129 / I-127 同位体比になるよう、ヨウ素担体を添加して希釈する。
- 東京大学タンデム加速器研究施設 (MALT) にある装置 (図1, 表1) を利用し、I-129 / I-127 同位体比を測定している。

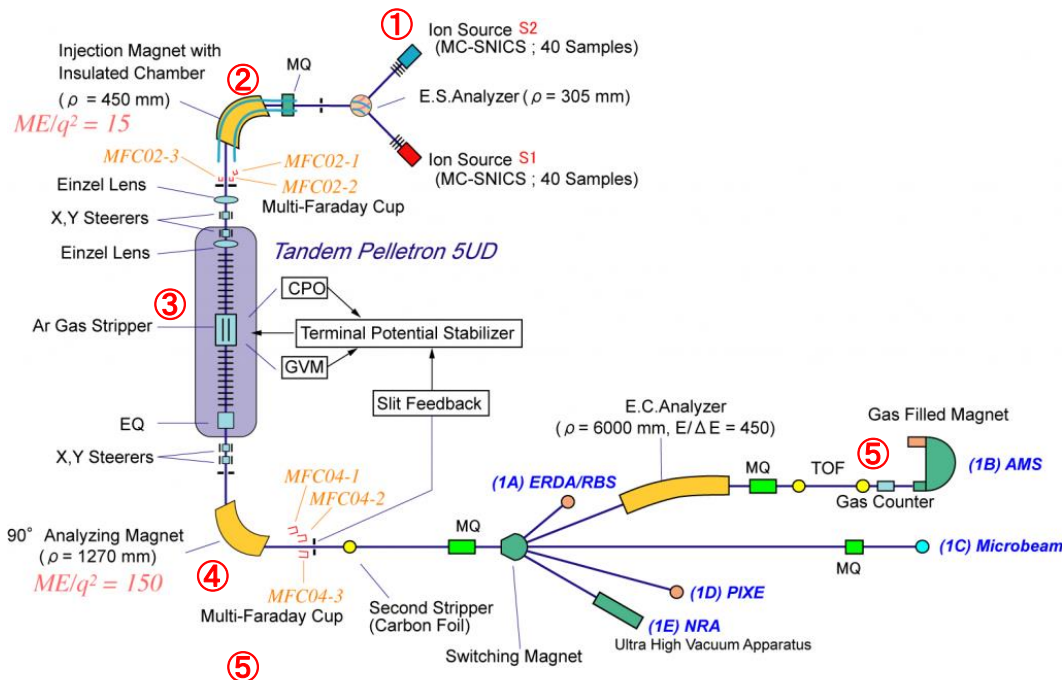


図1 AMS 装置の概要*1

表1 AMS の測定原理

① イオン源	試料をCs ⁺ イオンでスパッタすることにより負イオン化する。
② 入射電磁石	導入された負イオンを磁場によって質量数別に分離する。
③ タンデム加速器	負イオンを中央部の高電位ターミナルに向かって加速させる。中央部で荷電変換装置によって正イオンに変換し、荷電の逆転により高電位ターミナルからの反発を受けて更に加速させる。
④ 分析電磁石	対象となる質量、エネルギー、電荷をもつ粒子を静電場と磁場により分離する。
⑤ 検出器	比較対象の同位体(I-127)をファラデーカップで測定し、測定対象の同位体(I-129)をガスカウンターで測定して同位体比(I-129/I-127)を求める。

*1 東京大学総合博物館タンデム加速器研究施設. <https://malt.um.u-tokyo.ac.jp/>

2.6 分析法の開発

I-129 分析法の検討(分析対象試料)

- AMSによるI-129の分析を継続して実施し、2023年度は瓦礫(6点)、汚染水(2点)の分析を実施した。
 - I-129の低濃度のデータを蓄積することにより、1号機・3号機原子炉建屋の瓦礫においてCs-137との相関性が示唆されている。(P.63)
 - 瓦礫は、I-129とCs-137の相関性に着目し、次の3つの観点を検討して6点を選定した(表1)。
 - ✓ より低濃度領域のCs-137とI-129の相関
 - ✓ 採取場所によるCs-137とI-129の相関の違い
 - ✓ 由来が不明な廃棄物におけるCs-137とI-129の相関
 - β線測定により汚染水中に検出されなかったSARRY II処理工程水のうち、入口と出口の2試料を測定対象に選定した。

表1 AMSによるI-129分析の対象試料(瓦礫)

試料	試料番号	分析の目的		
		低濃度	採取場所	由来の不明
Cヤード瓦礫 コンクリート	C-RSA-7	✓		✓
Cヤード瓦礫 コンクリート	C-RSA-18	✓		✓
2号機原子炉建屋1階瓦礫 コンクリート (床はつり)	C-2RB-1		✓	
2号機原子炉建屋1階瓦礫 塗膜	C-2RB-23		✓	
プロセス主建屋1階瓦礫 金属	M-PMB-6	✓	✓	
プロセス主建屋1階瓦礫 石膏ボード	R-PMB-20	✓	✓	

2.6 分析法の開発

I-129 分析法の検討(分析結果)

- いずれの試料についても、β線測定の実検出下限値よりも低い濃度で定量された。(表1、図1)
- Cヤード瓦礫は AMS によっても検出されなかった。
- 廃棄物管理上の取り扱いに関して、クリアランスの区分(10^{-2} Bq/g)^{*2}を判定する目的に利用できる。

表1 AMSによる I-129 分析結果

試料	試料番号	分析結果 (Bq/g ^{*1})	
		AMS	β線測定
SARRY-II 入口水	LI-SAT3-1	6.6×10^{-3}	$< 2 \times 10^{-2}$
SARRY-II 出口水	LI-SAT3-6	6.8×10^{-3}	$< 2 \times 10^{-2}$
Cヤード瓦礫	C-RSA-7	$< 5 \times 10^{-5}$	$< 9 \times 10^{-2}$
Cヤード瓦礫	C-RSA-18	$< 6 \times 10^{-5}$	$< 9 \times 10^{-2}$
2号機原子炉建屋瓦礫	C-2RB-1	8.7×10^{-3}	$< 2 \times 10^{-1}$
2号機原子炉建屋瓦礫	C-2RB-23	5.8×10^{-3}	$< 1 \times 10^{-1}$
プロセス主建屋瓦礫	M-PMB-6	1.8×10^{-2}	$< 9 \times 10^{-2}$
プロセス主建屋瓦礫	R-PMB-20	1.6×10^{-2}	$< 4 \times 10^{-1}$

*1 SARRY II 入口水と出口水は Bq/cm³.

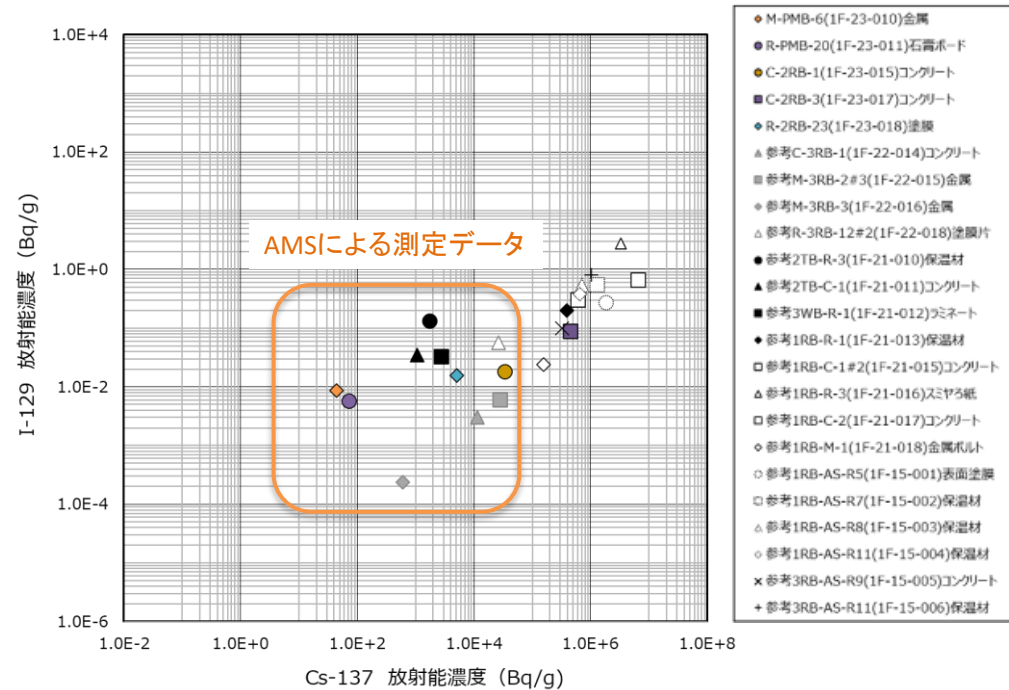


図1 AMSによる I-129 分析で得た瓦礫のデータ

*2 “工場等において用いた資材その他の物に含まれる放射性物質の放射能濃度が放射線による障害の防止のための措置を必要としないものであることの確認等に関する規則,” 令和二年原子力規制委員会規則第十六号, 別表(第2条関係).

2.6 分析法の開発

I-129 分析法の検討(現状と課題)

- I-129 の分析のためには、複数の分析手法(質量分析、放射能分析)を効果的に利用する(使い分ける)ことが重要と考えられる。
 - 質量分析を伴う方法では、天然に存在する I-129 の存在を考慮して、天然や環境に由来する I-129 の寄与を考慮する。その由来には、大気圏での生成、環境中ウランの自発核分裂、核実験等が挙げられる^{*1}。
- 本事業では、質量分析法である ICP-MS/MS による分析法を開発を進め、その適用を目指し進めた。
 - あらかじめ化学分離を行い ICP-MS/MS に導入することにより、 10^{-2} Bq/g レベルの検出を期待している^{*2}。
 - 環境試料の分析においては、反応ガスを適用し、 10^{-10} の I-129/I-127 同位体比が見込まれる^{*3}。
- さらに、質量分析法である AMS はより低濃度(小さな I-129/I-127 同位体比)を目的とする場合にその適用を考える。
- 放射線測定により検出されなかった試料の一部を AMS に供し、多くの試料で定量値を得た。(前ページ表1)。
 - より低い濃度を定量するためには、使用する薬品(同位体希釈のためのヨウ化カリウム)について、より品位の高い物を厳選して用いる、試料を取り扱う作業環境の影響を抑えるなどの工夫を要する。
- これらの研究開発動向を踏まえて、放射能分析、ICP-MS/MS と AMS を適用する方針を継続して検討する。

*1 川村 ほか, “環境中のヨウ素 129 とその分析法について,” 環境管理, 42, 56–58 (2013).

*2 太田 ほか, “放射性ガレキを対象とした¹²⁹Iと³⁶Clの分析法の検討,” 日本原子力学会2023年春の年会, 1H12 (2023).

*3 Matsueda et al., “Mass-spectrometric determination of iodine-129 using O₂-CO₂ mixed-gas reaction in inductively coupled plasma tandem quadrupole mass spectrometry,” Analytical Science, 38, 1371-1376 (2022).

2.6 分析法の開発 セシウム吸着装置吸着材(進め方)

- 採取されたセシウム吸着装置吸着材の分析に着手するにあたり、分析法を検討した。
 - 分析対象とする核種は、東京電力の分析計画^{*1}と分析施設の経験を踏まえ、Co-60、Ni-63、Sr-90、Mo-93、Zr-93、Nb-93m、Nb-94、Tc-99、Ru-106、Ag-108m、Sb-125、Sn-126、Cs-134、Cs-137、Eu-154、U同位体、Np-237、Pu同位体、Am-241、Cm-244を想定した。
- 前処理法として、化学的に安定なマトリックスの分解、高い線量率の主因であるCs-137の分離を検討した。(図1)
 - 溶液化方法は、吸着材を酸等により溶解する。IやCなどの揮発を考慮すべき元素は、溶解操作とは別に気体にしてから溶液に回収する。
 - 試料をホットセルから搬出して分析するにあたって、線量率に応じてCs-137等を分離する。
- 分析方法を検討しつつ、順次分析に適用する予定である。(表1)
 - 採取量の比較的多いH吸着材(P.85)から着手する。吸着材を溶解した溶液を分析する方法を適用する。
 - 揮発性の核種の分析は、既往の分析方法の調査から取り掛かり、フローを検討して分析に移る。

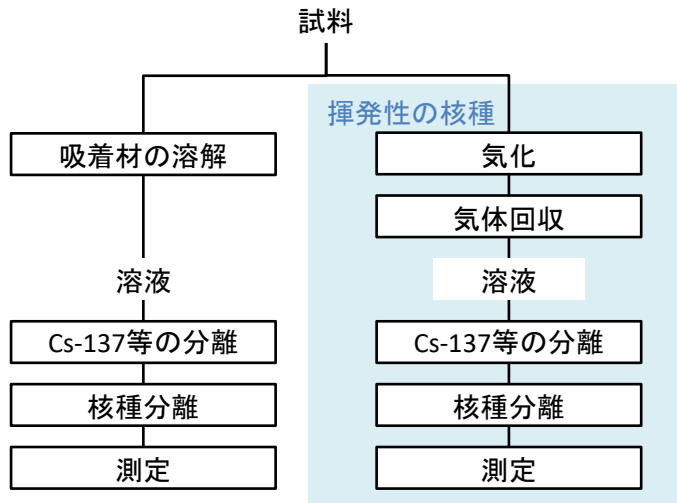


表1 検討のスケジュール(暫定)

検討項目		2023年度	2024年度	2025年度以降
溶解方法	コールド検討	■	■	
	ホット作業		■	■
揮発性の高い元素回収方法	文献調査	■		
	コールド検討		■	■
	ホット作業			■

図1 セシウム吸着材の基本的な分析フロー

^{*1} 東京電力ホールディングス株式会社, “東京電力福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた固体廃棄物の分析計画,” 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第112回), 2023年3月30日.

2.6 分析法の開発

セシウム吸着装置吸着材(溶解方法)

- 吸着材の主成分はゼオライト(アルミノケイ酸塩)またはケイチタン酸塩(結晶性シリコチタネート)である(表1)。
 - ゼオライトは Si、O が結合した骨格の Si の一部が Al と置換したアルミノケイ酸塩である。
 - ケイチタン酸塩は Ti と置換したものである。
- ゼオライトについて HF による溶解事例があり、HFと酸(王水または硝酸)を組み合わせた条件を検討した。(表2)
 - 溶解残渣の発生率及び測定対象核種の安定同位体トレーサーの溶解挙動から最適な溶解条件を求めた。
 - ゼオライトで決定した手法について、ケイチタン酸塩系の吸着材および Ag 添着の吸着材への適用性を検討した。

表1 吸着材の成分

装置	吸着材	主要な成分
KURION	H	ゼオライト(ハーシュライト)
	AGH	銀添着ゼオライト(ハーシュライト)
	TSG	ケイチタン酸塩
SARRY	IE96	ゼオライト(チャバサイト)
	IE911	ケイチタン酸塩

表2 ゼオライトの溶解検討条件

No.	吸着材	溶解供試量	酸の種類	液温	時間		
1	H	0.5 g (乾燥質量)	フッ酸 15 mL	室温	1h		
2					2h		
3					3h		
4				約90°C	1h		
5					2h		
6					3h		
7			フッ酸 15 mL+王水 5mL	0.5 g (乾燥質量)	室温	1h	
8						1h	
9						2h	
10					約90°C	3h	
11						室温	1h
12							1h
13			2h				
14			フッ酸 15 mL+硝酸(1+1) 5 mL	0.5 g (乾燥質量)	約90°C	3h	

2.6 分析法の開発

セシウム吸着装置吸着材(吸着材の溶解)

- 種々の元素の溶解性を考慮して、HFと王水の混合酸溶液を採用することとした。
- 溶解の結果、フッ化物が溶解残渣として発生するため、溶解残渣をホウ酸と硝酸の混合溶液で溶解することとした(図1)。
 - 分析対象の元素も一部が溶解残渣に移行するが、溶解できた(表1)。
- 銀添着ゼオライト及びケイチタン酸塩も同様の手法で溶解できると考えられた。
 - 銀添着ゼオライトでは、王水中のClとハロゲン化物を形成する可能性があるため、HFと硝酸の混合酸溶液を採用することとした*1。

表1 各溶液での元素回収率*2 (%)

	Co	Ni	Sr	Zr	Nb	Mo	Ru
溶解液1	100.0	130.9	32.5	98.2	99.3	108.7	99.6
溶解液2	1.0	-	64.2	0.6	-	-	-

	Ag	Sn	Sb	Cs	Eu*3	Re*4	U
溶解液1	98.0	97.6	94.4	12.9	1.2	99.5	97.6
溶解液2	-	-	-	84.3	100.1	-	-

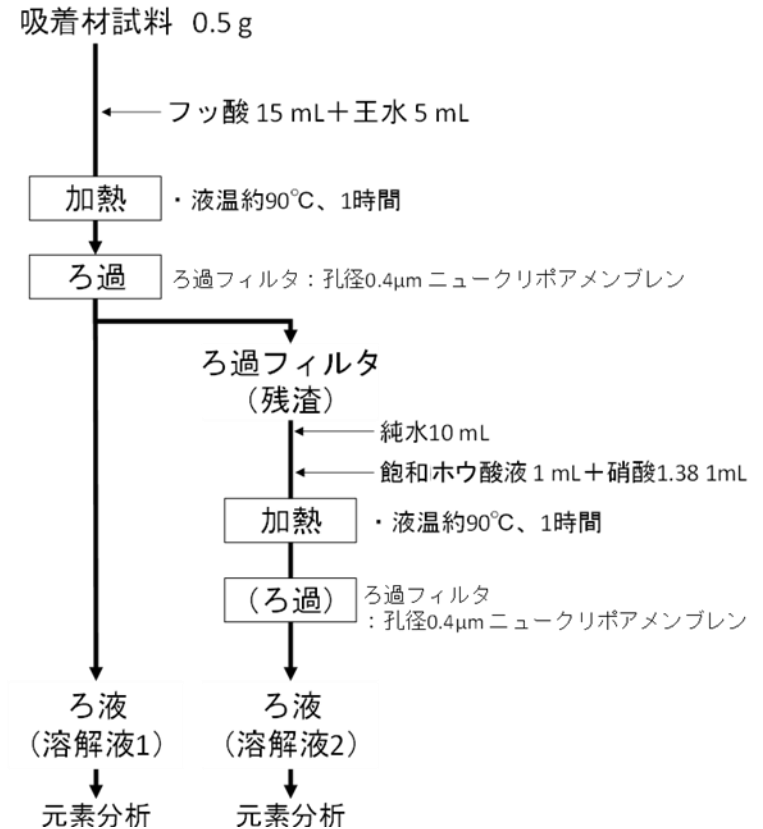


図1 検討した溶解フロー

*1 未使用のH吸着材にAg(NO₃)を添加して検討した。*2 添加した元素に対する割合。*3 アクチニド核種の模擬としても用いている。*4 Tcの模擬。

2.6 分析法の開発

セシウム吸着装置吸着材(Csの除去)

- 吸着材を溶解してHF-王水溶液(溶解液1)とホウ酸-硝酸溶解液(溶解液2)が得られ(前ページ、図1)、これら溶解液からCsを除去する必要があり、Csに選択的な吸着材を用いる方法を検討した。
 - 低いpH領域～低濃度の酸でCsに対する吸着能を持つリンモリブデン酸アンモニウム(AMP)を添着した吸着材(AMP-PAN)を使用することとした。
- H吸着材を溶解して溶解液1と溶解液2を調製し、種々の核種が吸着されないことを確かめる試験を行った(図1)。
 - 溶解液1と溶解液2中の元素(Csを除く)はAMP-PANに吸着せず、通過液と洗浄液にそれぞれほぼ全量が回収され(表1)、本法の有効性を確認した。

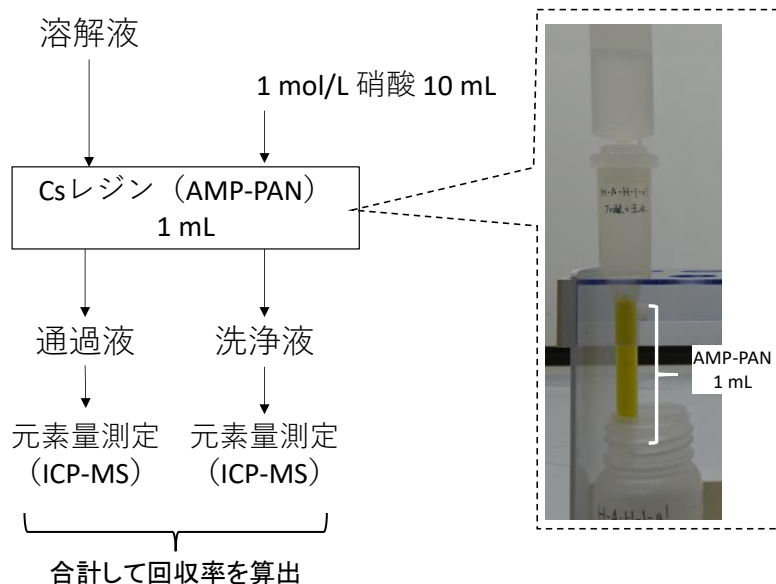


表1 各溶解液からの元素回収率 *1 (%)

溶解液	Co	Ni	Sr	Zr	Nb	Mo *2	Ru
1(HF-王水)	97	99	91	101	100	*	101
2(ホウ酸-硝酸)	105	-	98	104	-	*	-

溶解液	Ag	Sn	Sb	Cs	Eu *2	Re *3	U
1(HF-王水)	100	99	99		(105)	100	99
2(ホウ酸-硝酸)	-	-	-		99	-	-

*1 添加した元素に対する割合。“-”は、HF-王水により溶解し、溶解液2にほとんど存在しないため対象外。

*2 AMPの成分であり、AMP-PAN吸着材から溶出するため対象外。

*3 アクチニド核種の模擬。

*4 Tcの模擬。

図1 セシウム吸着材の溶解液からのCs除去に関する試験フロー

2.6 分析法の開発 セシウム吸着装置吸着材(分析フロー)

- 検討の結果として候補となる分析のフローを構築した。(図1)

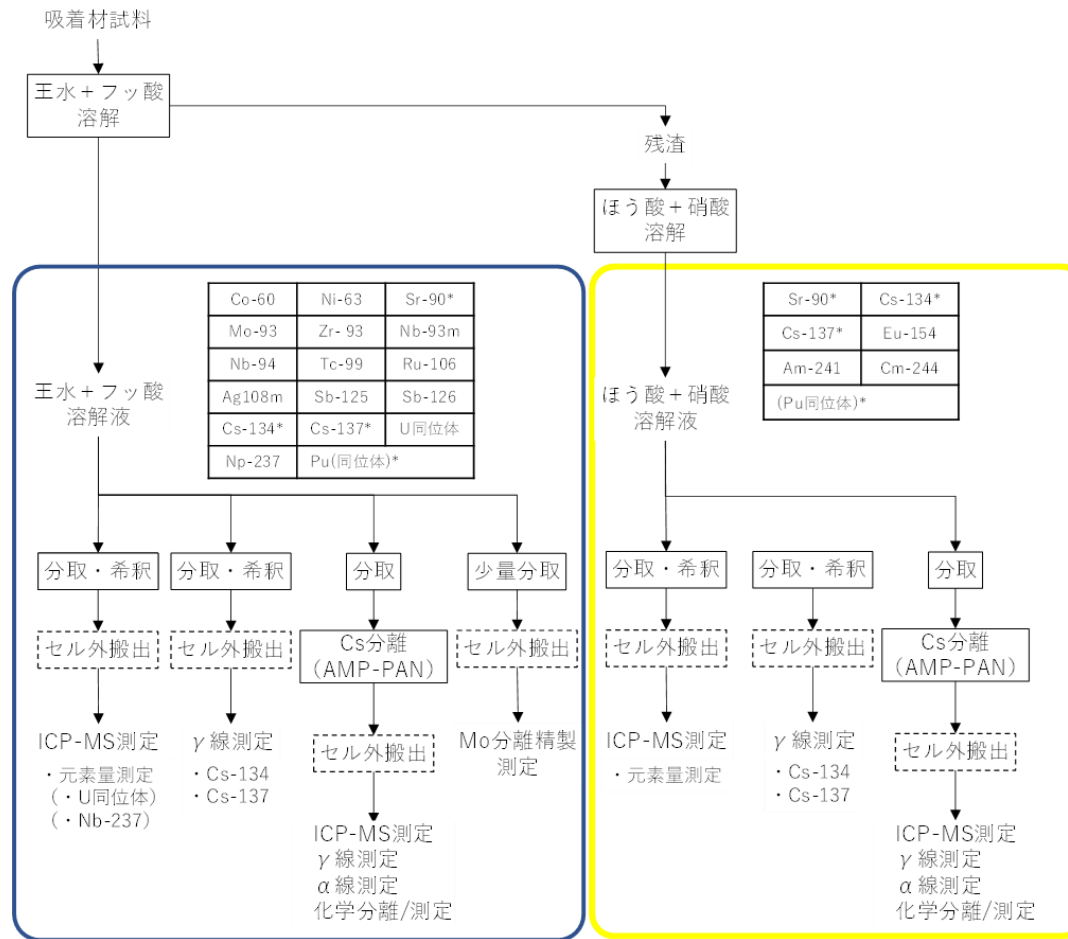


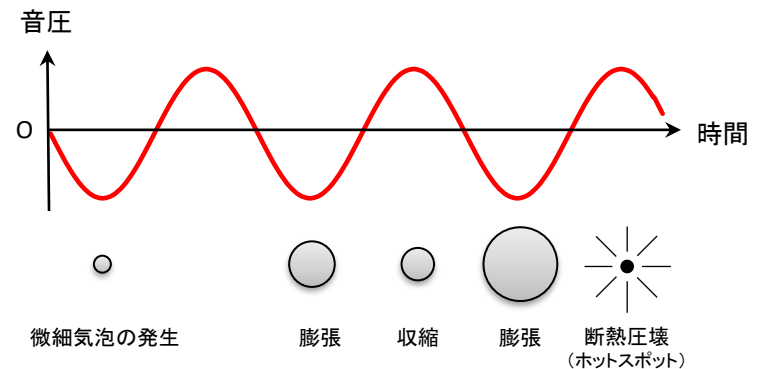
図1 セシウム吸着材の分析フロー(検討の結果)

注 * を付した成分は各溶解液の分析値を合算した。Mo については、AMP-PAN からの寄与があるため、溶解液の一部を分取して測定した。

2.6 分析法の開発

セシウム吸着装置吸着材(吸着材の効率的な粉砕)

- 吸着材の分析操作には、一般に長時間の操作を要するため、高線量率試料を直接取り扱う操作における取り扱い時間を短縮することが重要である。
- 吸着材の溶解を促進するために、超音波照射を用いた方法^{*1}([図1](#))を利用して、吸着材の粉砕を試みた。
- 超音波照射について SARRY のゼオライト系吸着材 (IE96) の粉砕試験を実施した。([図2](#))
 - 1 g の吸着材を水に浸漬し、26 kHz、50 W の超音波を 10 分間照射し、10～数十 μm の粒径の粒子となった。
 - 表面積を増大する効果により、イオン交換による吸着材からの効率的なCsの分離も期待され、他の吸着材についても検討する必要がある。



[図1](#) 超音波キャビテーションによる反応場(ホットスポット)の生成



[図2](#) IE96 吸着材の粉砕の様子

^{*1} 安田啓司, “超音波を利用した水中の汚染物質の分解と有価物質分離,” 化学と教育, 67(8), 350 (2019).

2.6 分析法の開発

セシウム吸着装置吸着材(Csの予備的な分離)

- 吸着したCsをイオン交換により除去する方法を検討した。
 - KNO₃を用いた既報^{*1}を参照し、液性、交換イオンをパラメータとしたコールド試験を実施した(図1)。
 - 100 μgのCsを吸着させたゼオライト0.5gをカラムに充填し、各種脱離液50 mLを通じて、Csの溶離率を求めた。
- 交換イオンK⁺によりCsを9割程度溶離することができ、最も効果的であった(表1)。
 - 液性による影響は認められなかった。K⁺以外の交換イオンでは回収率が低下した。
 - 吸着材と親和性があるイオンの場合、吸着材が未飽和である場合に効率が悪くなる可能性がある。
 - 脱離液の量を200 mLに増やすと溶離率は上がるが、最初の50 mLでほとんどのCsが溶離された。
- 超音波処理を組み合わせるとより高い溶離率が得られる可能性がある。

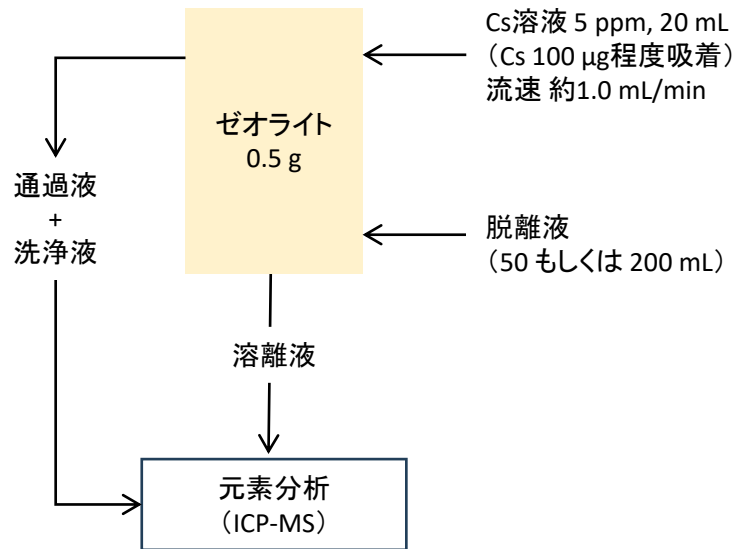


図1 吸着材からのセシウム溶離試験フロー

表1 吸着材からのセシウム溶離試験結果

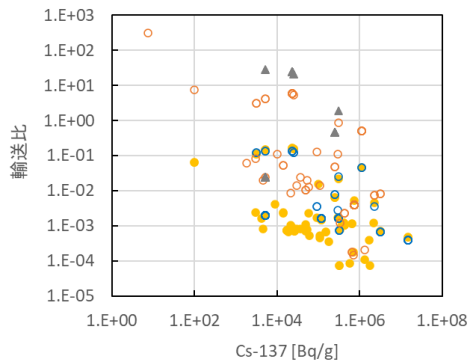
脱離液			吸着量 (μg)	溶離量 (μg)	溶離率 (%)
液性	交換イオン	体積 (mL)			
中性	K ⁺ (2 M KNO ₃)	50	98.7	86.4	87.5
		200	98.9	96.9	98.0
アルカリ性	K ⁺ (2 M KOH)	50	99.2	93.5	94.3
酸性 (1M HNO ₃)	K ⁺ (2 M KNO ₃)	50	99.0	88.1	89.0
アルカリ性	Na ⁺ (2 M NaOH)	50	98.5	41.7	42.4
中性	Rb ⁺ (2 M RbNO ₃)	50	98.9	12.8	13.0

*1 野村ら, “海水を含む水からのCs除染に係るゼオライトカラムの繰り返し使用に関する検討,” 日本原子力学会 2012年春の年会 L19 H24年3月20日.

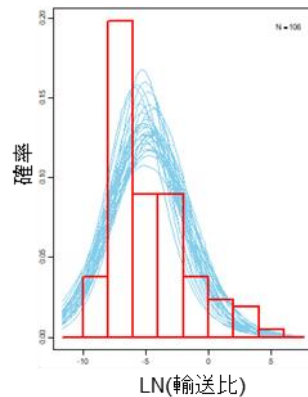
2.7 インベントリ推算手法の開発 解析的インベントリ推算手法の検討

■ ベイズ推定による母集団に関する検討

- ベイズ推定によって求められる検定力 (Bayesian power、以下、「ベイズ検定力」という) の分析を行うことによって、実廃棄物等の母集団に関する考察を行った。
- 輸送比から導出した頻度分布から、事後分布を発生させた(図1)。
- 事後分布の平均値 (μ) と標準偏差 (σ) の確率分布から、それぞれの 95% 高密度区間 (Highest Density Interval; HDI) を算出した(図2)。
- 現時点の目標達成の程度把握や目標達成に必要なサンプルサイズを推定した(図3)。
- 高いベイズ検定力が期待できない場合には、分析にかかるリソースを考慮しつつ、母集団や核種のグループの見直しも含めて次のアクションを検討することとなり、このような意思決定の支援に本法が有用と考えられる。



輸送比の相関



頻度分布から求めた事後分布

図1 分析データから求めた分布

(例: 建屋内気中放出割合、Transition Metals)

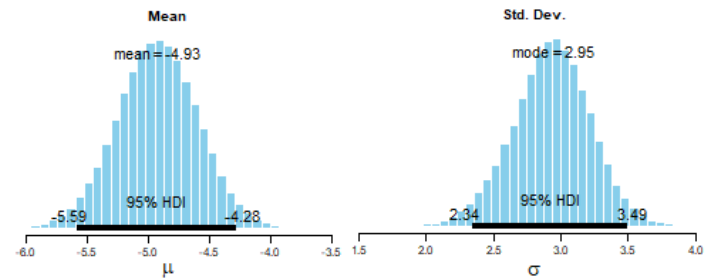


図2 事後分布の確率分布(左図: 平均値(μ)、右図: 標準偏差(σ))

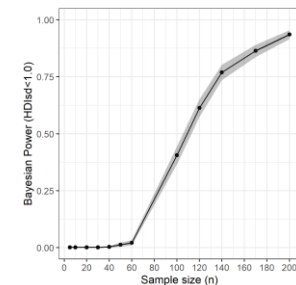
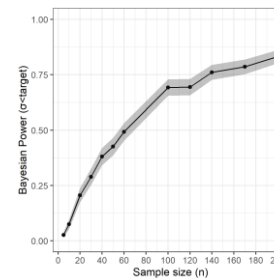


図3 ベイズ検定力(左図: $\sigma < \text{target}$ の時、右図: $\text{HDI} < 1.0$ の時)

2.7 インベントリ推算手法の開発 解析的インベントリ推算手法の検討

- 解析的インベントリ推算手法の主要なパラメータについて、ベイズ統計を適用して検討した結果、ベイズ検定力を指標とした母集団、分析の優先度に関する推察を得ることができた。(図1)
 - 今後の分析計画を検討する上での指標として活用できるものであり、この手法の定式化が課題である。
- 燃料デブリ取り出し廃棄物のインベントリ推定に必要な情報を整理した。
 - 処分の安全評価において重要となる核種(C-14やSr-90等)の濃度について、95パーセンタイル値までの不確実性幅を考慮すると、滞留水による汚染の寄与が大きく、震災前の放射能濃度に対して1桁以上高く推算された。

パラメータ	比較的高い ← データの充足性 → 比較的低い	分析の優先度(案)	母集団に関する考察	
建屋内気中放出割合	Alkaline Earth Metals (AEM)グループ Volatile Elements (VE)グループ Lanthanides, Actinides (LA)グループ	Semivolatile Elements (SeE)グループ Transition Metals (TM)グループ	相対的に高い ・3号機上層階 ・1～3号機中層階	2号機、上層階と下層階で母集団分離の可能性に留意
建屋外放出割合	VEグループ AEMグループ LAグループ	TMグループ SeEグループ	相対的に低い	母集団を分ける必要性は低い
滞留水移行割合 (水処理二次廃棄物)	Soluble Elements (SoE)グループ AEMグループ	Chalcogens (Ch)グループ TMグループ LAグループ	相対的に低い	現状の分布を一つの母集団として進める
滞留水移行割合 (建屋内汚染)	SoEグループ	TMグループ Chグループ LAグループ AEMグループ	当面サンプル・分析データの充実を要する(特に原子炉建屋滞留水)	当面、現状の分布を一つの母集団として進める(原子炉建屋は母集団分離の可能性にも留意)

注)

- ・ データの充足性は相対的なものであり、処分安全評価などからパラメータの不確実性に関する制約がなされた場合には、見直しの可能性がある。
- ・ 分析の優先度は、あくまで解析的インベントリ推算の確信の程度を向上する観点からのものである。例えば建屋外の瓦礫保管に係る分析データの重要性に対して影響するものではない。

図1 ベイズ検定力を指標とした母集団、分析の優先度に関する推察

2.7 インベントリ推算手法の開発

解析的モデルの不確実性低減 – 放射化生成物のデータ更新

- 東京電力による最近の評価結果 (ALPS 評価書)^{*1}をもとに、放射化生成物に由来するソースタームを見直した。
 - 従来の炉内インベントリ情報と比較し、燃料成分に大きな差はない(ただし C-14 は ALPS 評価書が大)一方で、炉内構造物については多くの核種に違いが見られた。(図1)

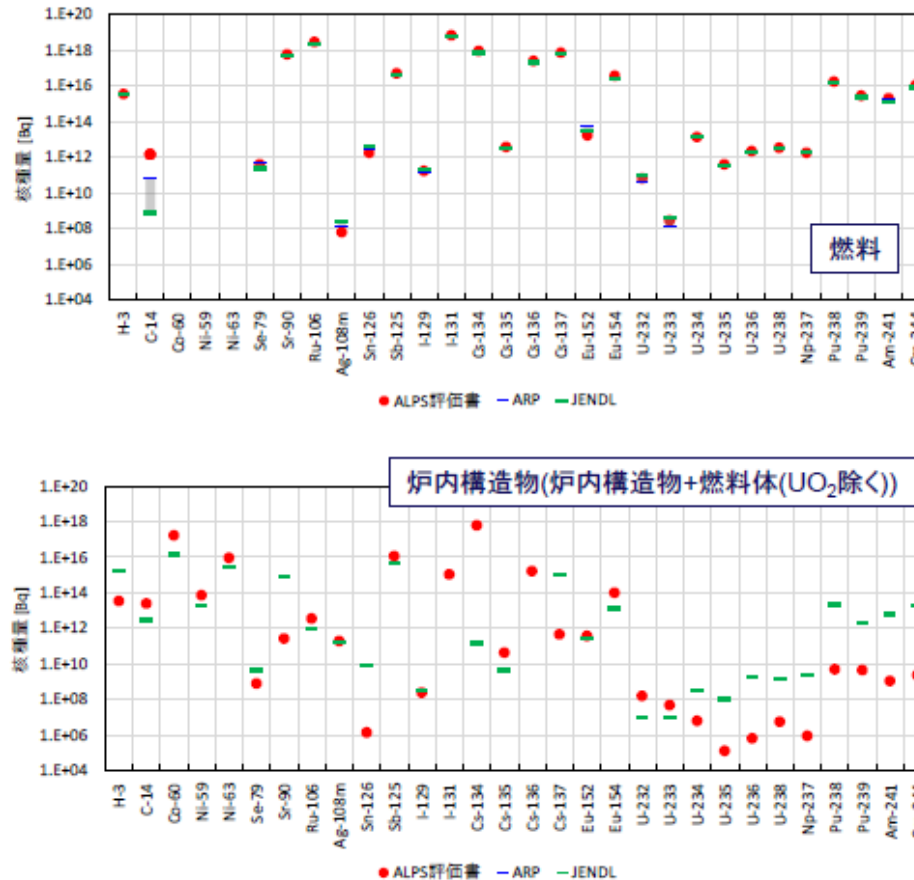


図1 2022年度までの炉内インベントリ情報(緑及び青)と更新後の値(赤)の比較

ARP: ORIGEN-ARPによる計算, JENDL: RIGEN-2.2とJENDL-3.3による計算

^{*1} 東京電力ホールディングス, “多核種除去設備等処理水(ALPS処理水)の海洋放出に係る放射線環境影響評価報告書,” 2023年2月。

2.7 インベントリ推算手法の開発

解析的モデルの不確実性低減 – 追加した分析データに基づく更新

- 2022年度に追加された分析データは、おおよそ従来の分布の範囲にとどまっており、新たな傾向を示すものではなかった。(図1)
- 元素グループごとに分布のパラメータ(μ と σ)を導出した。(図2、 μ について)
 - 2022年度からいく分変化したが、増えた分析データに比べて、むしろ炉内構造物等のデータを差し替えた影響の寄与が大きいと見られる。
- 今後、核種移行パラメータ更新後のモデルにて廃棄物インベントリを算出する予定である。

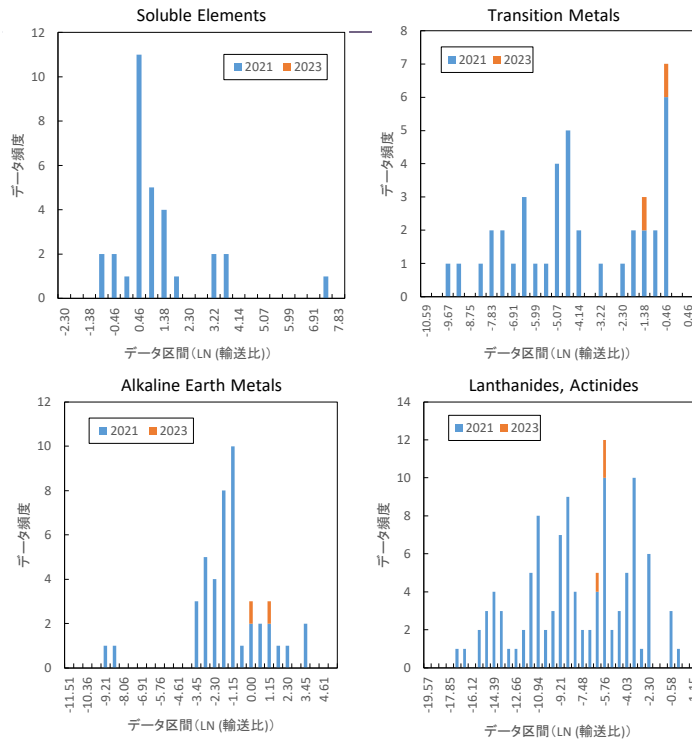


図1 追加された分析データを含む輸送比の頻度分布

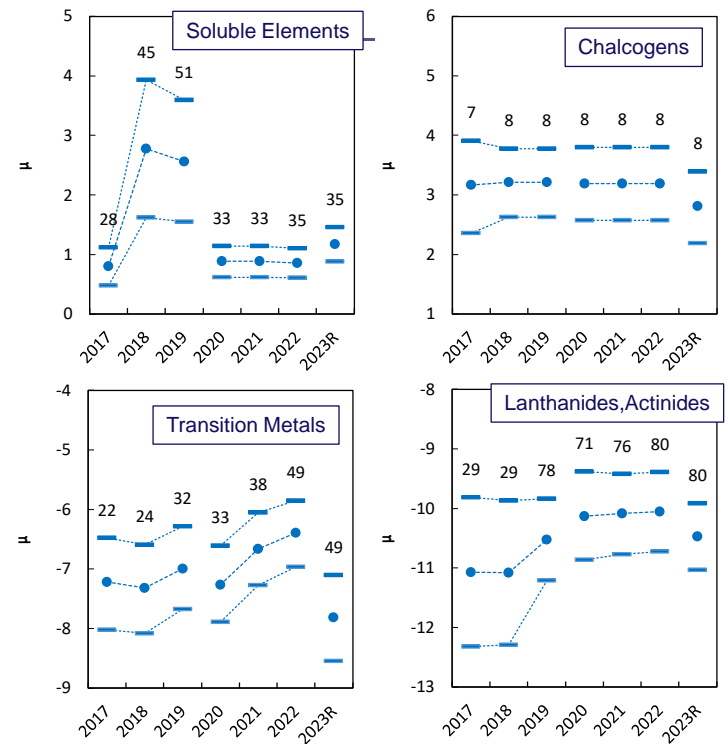


図2 分布のパラメータ (μ) の年次推移

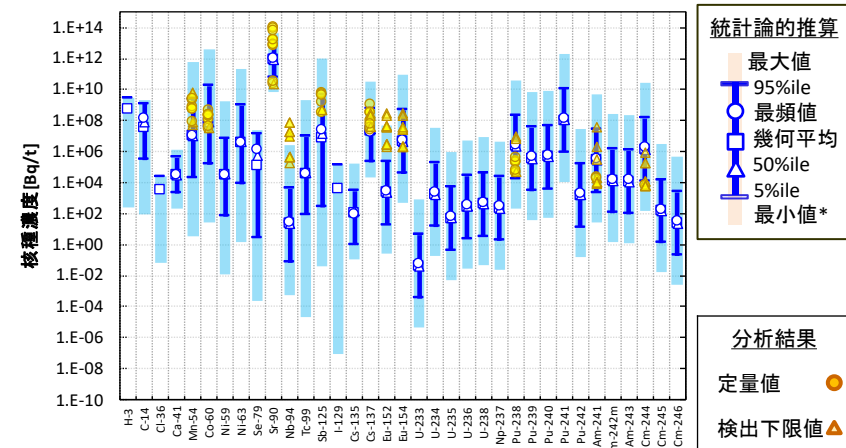
2.7 インベントリ推算手法の開発

解析的モデルの不確実性低減 – 追加した分析データに基づく更新

- 分析データの蓄積を反映した核種移行パラメータの更新、炉内インベントリ設定の変更を反映して、推算を改めて行い、インベントリを更新した。(図1)
- 前事業^{*1}の推算結果と比較すると、核種移行パラメータの更新(分析データの蓄積)よりも炉内インベントリ設定の変更の影響が大きいと見られた。処分安全評価において重要とみられる核種への影響もあるため、解析推算と分析の両面で検討を継続する必要があると考えられる。
- 今後の実廃棄物試料等の分析データの拡充に関しては、3号機上層階や1~3号機中層階の建屋内瓦礫等の試料のサンプリング、建屋内滞留水の採取場所などの確かな情報に基づくサンプリング、「遷移金属」グループの分析が望まれる。



コンクリート瓦礫(受入目安表面線量率区分 1~5 mSv/h)



ALPS 炭酸塩沈殿スラリー(分析データとの比較)

図1 インベントリ計算結果

^{*1} IRID, 令和3年度開始「廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」2021年度最終報告最終報告, 令和4年9月。

2.7 インベントリ推算手法の開発 放射化コンクリートの推算

- インベントリ推算のモデルでは、ソースタームとして燃料と炉内構造物を評価している。今後、燃料デブリの取り出しに伴い、格納容器周辺からコンクリート廃棄物が発生するので、その推算を行った。公開されている情報をもとに解析条件を設定して中性子分布を求め、放射化生成物の量を計算した。(図1)
- 処分やクリアランスにおいて重要な核種を評価するため、コンクリートの材料に含まれる微量な成分や遮へいコンクリート中の中性子束を考慮して推算を試みた。
 - コンクリート原料(セメントと骨材)の試料を入手して化学分析を行い、放射化計算の対象とする組成を決定した。骨材は阿武隈川産である。
 - 遮へいコンクリート中の減衰により減少する中性子束を正確に取り扱う手法を取り込んだ。
- 種々の因子による影響を感度解析的に評価した。

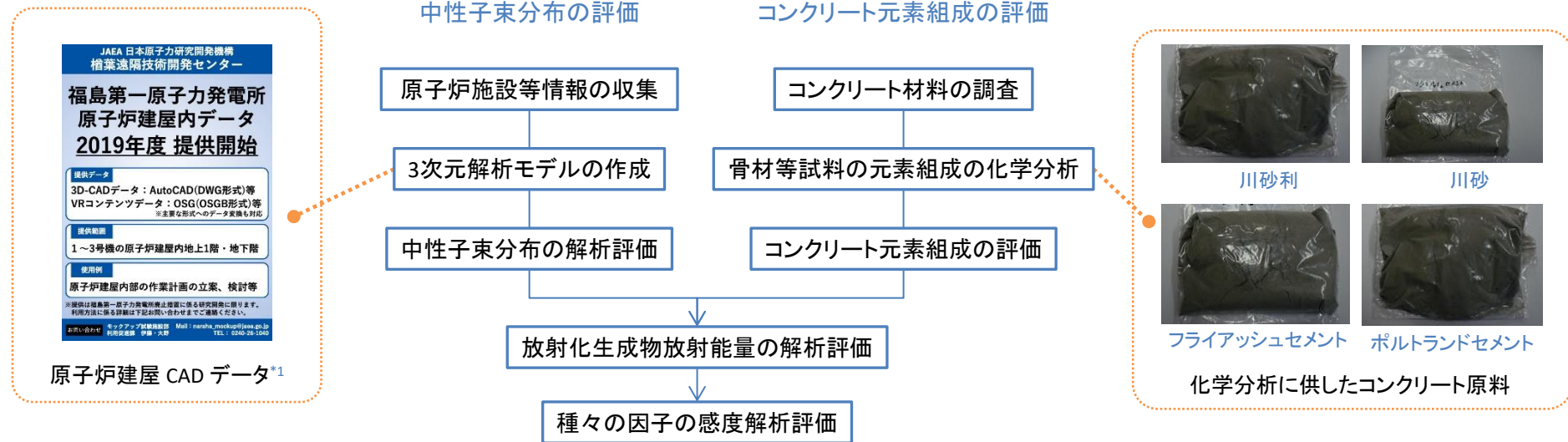


図1 放射化生成物量の推算に関する流れ

*1 日本原子力研究開発機構, “福島第一原子力発電所原子炉建屋内データ,” 2019年6月14日. https://naraha.jaea.go.jp/experience/experiential_program.pdf

2.7 インベントリ推算手法の開発 放射化コンクリートの推算

- 2号機をモデルケースとして中性子輸送計算を行い、中性子束分布を求めた。
- CADデータをもとにこれを適宜補完して解析モデルを作成した(図1)。中性子輸送計算には、3次元モンテカルロ法コード MCNPを用い、原子炉建屋の中性子束分布を求めた。
 - 遮へいコンクリートに中性子が深層浸透する様子を計算するため、最適分散低減法を適用し、パラメータ作成に ADVANTG*1を用いた。PCVの全体を最適化することが困難であったので、3つの領域(シールドプラグ、底部外周、底部全体)に最適化した結果を重ね合わせて結果を得た(図2)。
- 炉心の上部と外周方向に熱中性子束密度が大きい(図2)。中性子スペクトルは、コンクリートを浸透するにつれて熱中性子の寄与が大きくなる(図3)。
 - 3群に縮約し、熱中性子フラックスを放射化計算に用いた。

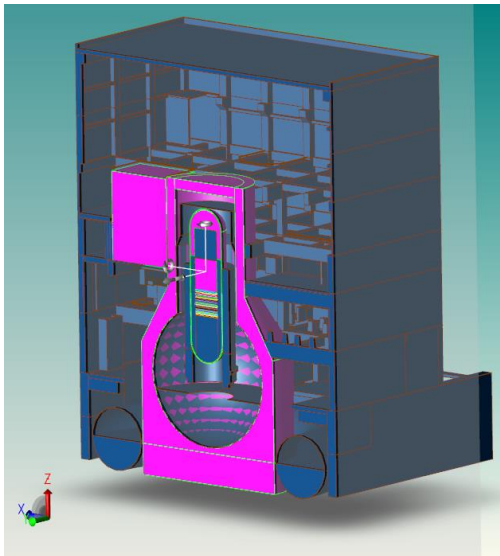


図1 中性子輸送計算の構造モデル

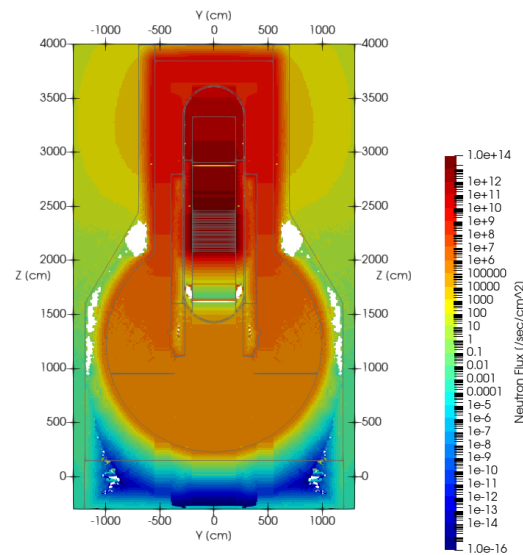


図2 計算により求めた熱中性子束分布

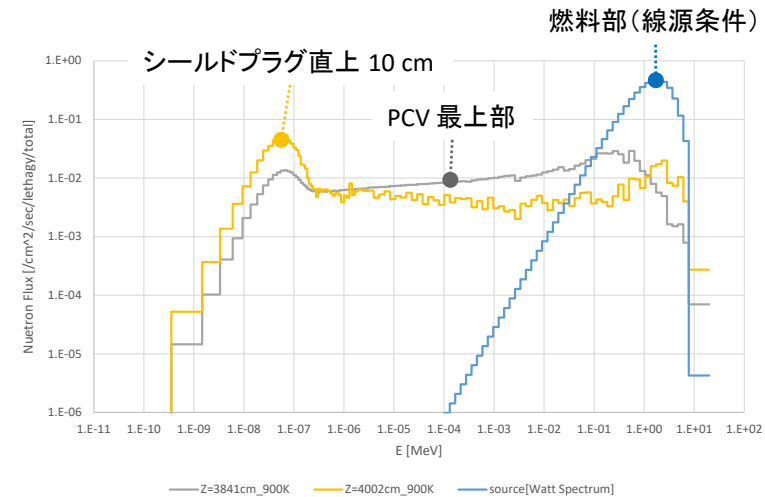


図3 計算により求めた中性子スペクトル

*1 S. Mosher et al., "ADVANTG—An Automated Variance Reduction Parameter Generator," ORNL/TM-2013/416 Rev. 1 (2015).

2.7 インベントリ推算手法の開発 放射化コンクリートの推算

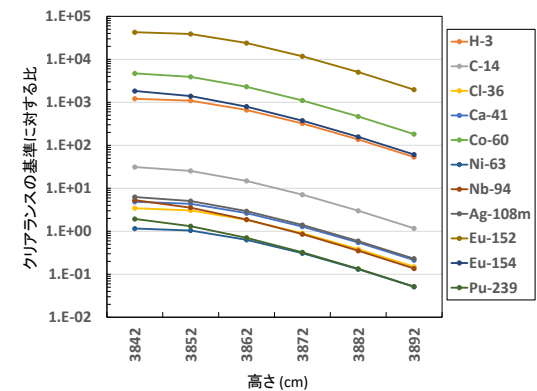
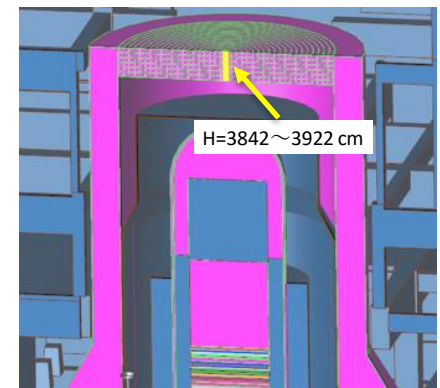
- コンクリートの成分から生成される放射性核種を考慮して、そのターゲットとなる元素を選定した(表1)。分析結果に基づいてコンクリートの組成を設定した。
- クリアランス基準に対する寄与は Eu-152、Co-60、Eu-154、H-3、Ba-133、C-14、Cs-137 の順であり(炉停止後 30 y)、これらで 99.9% を占める。(表2)
 - シールドプラグでは、下から上方へと濃度が低下し、40 cm ほどで 1 桁低下する。(図1)

表1 処分安全に重要な核種が放射化により生成する場合に考慮すべき元素

分類	元素	想定した核種
主成分	H	^3H
	C, O	^{14}C
	Na, Mg, Al, Si, S, K	—
	Ca, Ti	^{41}Ca
	Fe	(^{54}Mn)
微量	Li	^3H
	N	^{14}C
	Cl	^{36}Cl
	Sc	^{41}Ca
	Mn	(^{54}Mn)
	Co	(^{54}Mn), ^{60}Co
	Ni	^{60}Co , ^{59}Ni , ^{63}Ni
	Cu	^{60}Co , ^{63}Ni
	Zn	^{63}Ni
	Se, Br	^{79}Se
	Sr	^{90}Sr
	Y	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$
	Zr	^{90}Sr , ^{93}Zr
	Nb	^{93}Zr , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, ^{94}Nb
	Mo	^{93}Zr , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, ^{94}Nb , ^{93}Mo
	Ru	^{93}Mo , ^{99}Tc
	Rh	^{99}Tc
	Pd	^{107}Pd
	Ag, Cd	^{107}Pd , $^{108\text{m}}\text{Ag}$
	In	$^{108\text{m}}\text{Ag}$
	Sn, Sb, Te	^{126}Sn
	Cs	^{129}I , ^{135}Cs , ^{137}Cs
	Ba, La	^{135}Cs , ^{137}Cs
	Sm	^{151}Sm
	Eu, Gd	^{151}Sm , ^{152}Eu , ^{154}Eu
	Tb	^{152}Eu , ^{154}Eu
	Hf, Ta	^{182}Hf
	Th, U	α 核種, 核分裂生成物

表2 放射化生成物の放射能とクリアランス基準との比較 (Bq/g)

核種名	クリアランスレベル	10.0 y	30.0 y	100.0 y
H-3	100	7.189E+02	2.335E+02	4.562E+00
C-14	1	5.587E+00	5.572E+00	5.524E+00
Cl-36	1	6.593E-01	6.593E-01	6.593E-01
Ca-41	100	9.365E-01	9.361E-01	9.357E-01
Sc-46	0.1	1.716E-09		
Mn-54	0.1	2.832E-01	2.552E-08	
Fe-55	1000	2.593E+00	1.615E-02	3.081E-10
Fe-59	1	2.085E-22		
Co-58	1	4.403E-16		
Co-60	0.1	1.183E+04	8.521E+02	8.540E-02
Ni-59	100	2.529E-03	2.528E-03	2.526E-03
Ni-63	100	2.572E-01	2.240E-01	1.379E-01
Zn-65	0.1	4.618E-02	4.429E-11	
Sr-90	1	7.567E-01	4.625E-01	8.251E-02
Nb-94	0.1	8.118E-01	8.114E-01	8.096E-01
Nb-95	1	1.424E-16		
Tc-99	1	9.458E-04	9.458E-04	9.454E-04
Ru-106	0.1	1.508E-03	1.811E-09	
Ag-108m	0.1	1.237E+00	1.109E+00	7.570E-01
Ag-110m	0.1	8.266E-04	1.295E-12	
Sb-124	1	2.441E-24		
Te-123m	1	5.824E-19		
I-129	0.01	2.461E-05	2.461E-05	2.461E-05
Cs-134	0.1	2.495E+02	3.000E-01	1.806E-11
Cs-137	0.1	7.925E+00	4.991E+00	9.905E-01
Ba-133	0.1	1.140E+02	3.053E+01	3.031E-01
Eu-152	0.1	2.412E+04	8.525E+03	2.236E+02
Eu-154	0.1	1.559E+03	3.104E+02	1.093E+00
Tb-160	1	1.612E-23		
Ta-182	0.1			
Pu-239	0.1	3.007E-01	3.005E-01	2.999E-01
Pu-241	10	7.681E-08	2.923E-08	9.935E-10
Am-241	0.1	3.338E-07	4.784E-07	5.136E-07
D/Cの総和	—	3.861E+04	9.967E+03	2.398E+02



クリアランスレベルに対する比

図1 原子炉上部シールドプラグの放射化生成物の核種

2.7 インベントリ推算手法の開発 放射化コンクリートの推算

- 解析により求める放射化生成物放射能に係る不確実性について、以下の因子を検討した。(表1)
 - 中性子束分布解析の基礎となる原子炉等の構造に関する因子として、構造のモデリングを検討した。
 - コンクリートの初期組成に関して、コンクリートの組成変動や微量な成分に着目し、初期組成や水分の影響を検討した。
 - 計算解析に関し、計算オプションやライブラリデータ等の影響を検討した。
- 構造のモデリングに関して、線源強度分布、鉄筋配置等、炉周囲の配管の寄与を検討した。(表2、表3)
 - 線源強度(核分裂イベント)の分布は保守的に一様な分布とした場合、核種に対しておおよそ同様の影響を与える。
 - 鉄の存在を考慮すると、中性子を吸収する効果により放射能が低下する結果となる。

表1 放射能の推算に影響すると見られる不確実性因子

分類	項目	パラメータ
構造モデリング	線源強度分布	標準(径・軸方向分布) 感度(一様分布)
	鉄筋配置等	鉄筋による吸収反応
	炉周囲の配管	内側1領域の変更
コンクリート組成	コンクリートの組成及び密度	分析値 ^{*1} 引用
	コンクリート中の自由水の割合	含有率 5 wt%、3 wt%
	骨材等原料の組成	分析の平均値、最大値
計算解析	温度	炉内温度 300 K、900 K
	分散低減オプション	Forward-CADIS法、CADIS法
	放射化ライブラリ	ENDFとJENDL-5
	崩壊ライブラリ	ENDFとJENDL-DDF2015
	Mesh Tally 領域幅	10 cm と 1 cm 厚さ毎のスペクトルインデックス

表2 構造のモデリングに関して検討した不確実性因子

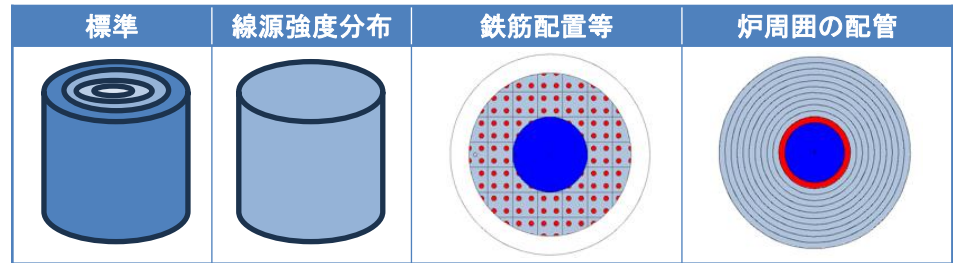


表3 構造のモデリングに関する不確実性因子の寄与評価

核種	線源強度分布	鉄筋配置等	炉周囲の配管
³ H	+163%	-59%	-33%
¹⁴ C	+168%	-38%	-22%
⁶⁰ Co	+168%	-52%	-27%
¹³⁷ Cs	+164%	-50%	-31%
¹³³ Ba	+168%	-52%	-27%
¹⁵² Eu	+159%	-59%	-9.8%
¹⁵⁴ Eu	+175%	-45%	-23%

*1 J.C. Evans et al., "Long-lived Activation Products in Reactor Materials," NUREG/CR-3474 (1984).

2.7 インベントリ推算手法の開発 放射化コンクリートの推算

- 放射化コンクリートの核種組成に関して、コンクリート組成及び密度、自由水の割合、骨材等原料の寄与を検討した。(表1)
 - 試料の分析値と文献*1の比較では、C への影響はターゲットとして N の考慮が重要であることを示している。
 - 水は 3 から 5wt% が増えると中性子吸収の効果により放射能濃度が 10% ほど低下する。
 - 分析値のばらつき(平均値に対する最大値)を考慮すると、数 10% ほどの放射能濃度の変動を想定する必要がある(図1)。
- 計算解析に関して、温度、分散低減オプション、放射化及び崩壊ライブラリ、Mesh Tally 領域幅の寄与を検討した。(表2)
 - 分散低減の手法による寄与が相対的に大きく、本検討で用いた Forward-CADIS 法*2の妥当性を確認した(図2)。

表1 核種組成に関する不確実性因子の影響評価

核種	コンクリートの組成及び密度	コンクリート中の自由水の割合	骨材等原料の組成
³ H	-41%	-13%	+21%
¹⁴ C	+505%	-8.3%	-0.05%
⁶⁰ Co	-35%	-10%	+68%
¹³⁷ Cs	-36%	-12%	+60%
¹³³ Ba	+245%	-10%	+17%
¹⁵² Eu	-24%	-1.3%	+34%
¹⁵⁴ Eu	-24%	-9.5%	+34%

表2 計算解析に関する不確実性因子の影響評価

核種	温度	分散低減オプション	放射化ライブラリ	崩壊ライブラリ	評価領域幅 (Mesh Tally)
³ H	-0.04%	-20%	+0.73%	-0.09%	+1.5%
¹⁴ C	-0.05%	-19%	-0.32%	0.0%	-0.05%
⁶⁰ Co	-0.08%	-19%	-0.18%	0.0%	-0.07%
¹³⁷ Cs	-0.06%	-20%	+2.6%	0.0%	+7.2%
¹³³ Ba	-0.10%	-19%	-65%	0.0%	-0.08%
¹⁵² Eu	-0.09%	-21%	+3.1%	+1.8%	-12%
¹⁵⁴ Eu	-0.06%	-17%	+0.13%	+0.26%	+0.90%

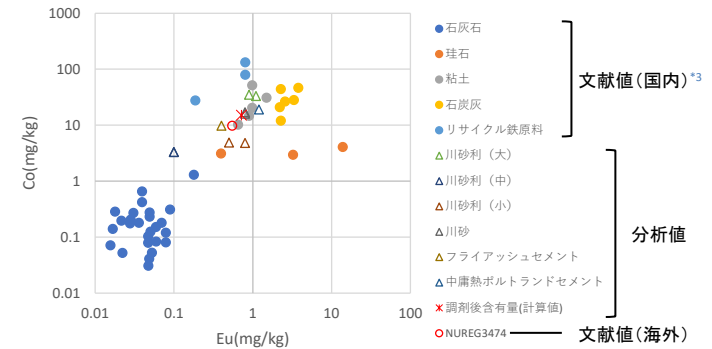


図1 セメント原料が含む Eu と Co 濃度の相関

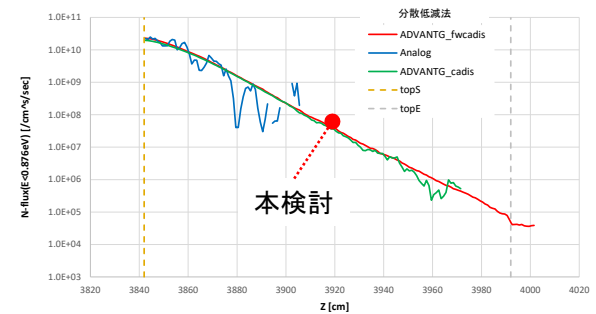


図2 分散低減手法による中性子束計算 (深さ方向)の違い

*1 J.C. Evans et al., "Long-lived Activation Products in Reactor Materials," NUREG/CR-3474 (1984).
 *2 モンテカルロ法により放射線の深層への透過問題を取り扱う際に適用する分散低減法の一つ。
 *3 田野崎隆雄 ほか, コンクリート系低放射化材料の開発, コンクリート工学年次論文集, 29(1) (2007).

2.7 インベントリ推算手法の開発 放射化コンクリートの推算

- コンクリートの主要成分から生ずる H-3、Ca-41 および C-14 とともに、微量成分の放射化により Ni-59、Ni-63、Eu-152、Eu-154、Cl-36、Cs-137 や Sr-90 などを生じることが分かった。
- 処分の目安に照らして試みに処分区分を当てはめると、生体遮蔽コンクリートの表面部分が L3 に相当すると考えられる。(図1)
- 炉停止後 30 y を想定した場合における処分区分に寄与する核種を試算すると、寄与する核種が異なる(表1)。
- 処分区分の分布は、不確実性への寄与が相対的に大きい因子である線源強度や原料組成の結果(図2)を標準ケース(図1)と比較し、不確実性因子に対する影響が小さいことがわかった。

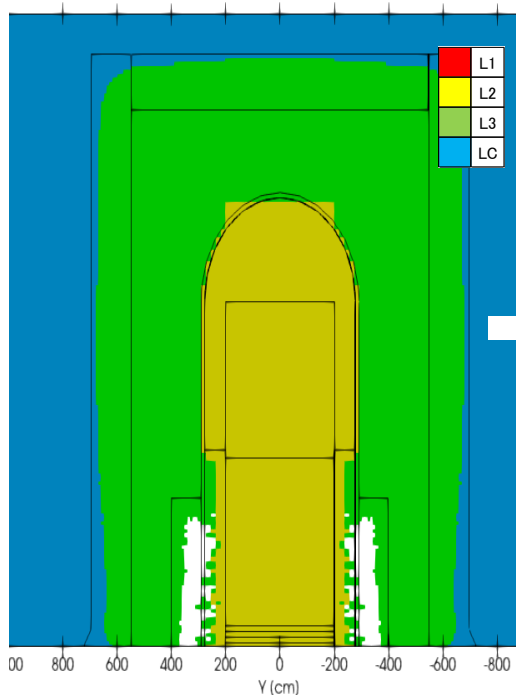


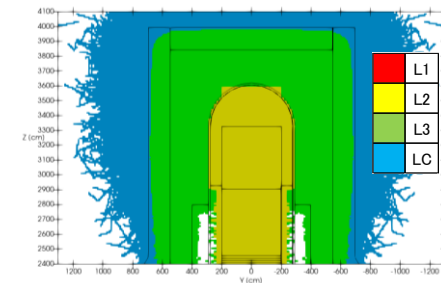
図1 低レベル廃棄物の区分
(停止30年後の放射能濃度に基づく試算)

表1 炉停止後 30 y を想定した場合における処分区分に寄与する核種の試算

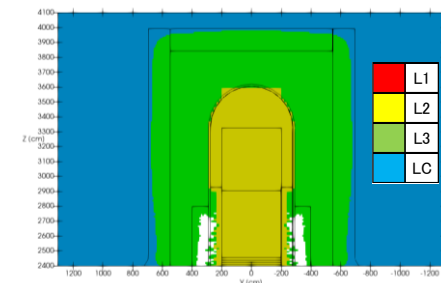
核種	単位生成量 (Bq/g) ^{*1}	区分上限値に相当する熱中性子束 ^{*2} (/s/cm ²)		
		トレンチ (L3)	ピット (L2)	中深度 (L1)
C-14	5.572E+00	—	2.23E+13	2.23E+18
Cl-36	6.593E-01	—	—	1.88E+16
Co-60	8.521E+01	1.46E+11	1.46E+16	—
Ni-63	2.240E+01	—	5.54E+14	—
Sr-90	4.625E-01	2.68E+10	2.68E+16	—
Tc-99	9.458E-04	—	1.31E+15	1.31E+20
I-129	2.461E-07	—	—	5.04E+21
Cs-137	4.991E-01	2.48E+11	2.48E+17	—
α核種	3.005E-02	—	4.13E+14	4.13E+15

^{*1} 平均熱中性子束 1.24×10^9 (/s/cm²) における生成量。

^{*2} 各処分区分で最も小さい中性子束に色を付けた。



線源強度分布



骨材等試料の元素組成

図2 不確実性因子の寄与に着目した処分区分の試算

2.7 インベントリ推算手法の開発 放射化生成物 Co-60 の推算

- 放射化生成物である Co-60 は、通常の廃炉では高線量率の主因となり、また、廃棄物管理におけるキー核種として重要である。1F の廃棄物に関しては、Cs-137 はキー核種の主要な核種である。
- Co-60 の輸送比が 1 を超える場合がある(図1)。Co は Cs よりも揮発性が低いので、輸送比の算出に用いるソースタームの放射能が過小に評価されている可能性が考えられる。従来、Co-60 のソースタームとしては、燃料の被覆管を考慮していた。運転中の原子炉にあっては、構造材料の放射化生成物が冷却系を介して燃料被覆管に沈着する。このプロセスに由来する Co-60 の寄与を考慮すべきである。
- インベントリの推算においては、核種濃度の相関を考慮して元素グループを設定している。ここで、Cs-137 をキー核種とする場合に比べて、Co-60 に対してより良い相関が得られている(図2、表1)。これは、Co-60 のソースタームが限定されていることとともに、燃料が損傷する過程における核種のふるまいが重要であることを示唆している。
- これらのことから、Co-60 のソースタームとして、冷却系を介して燃料に付着する成分を検討した。

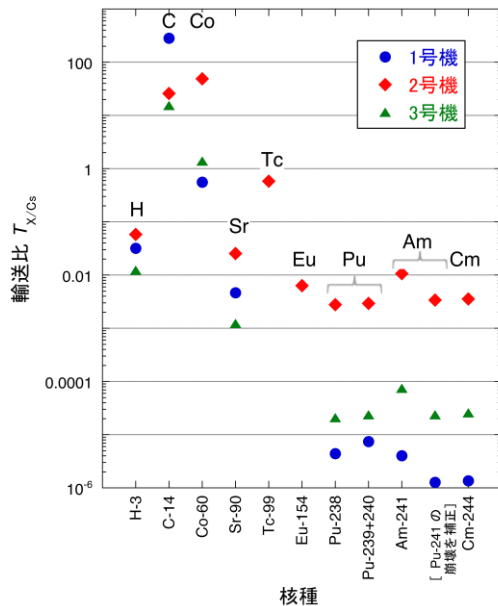


図1 建屋内にて採取した瓦礫への輸送比*1

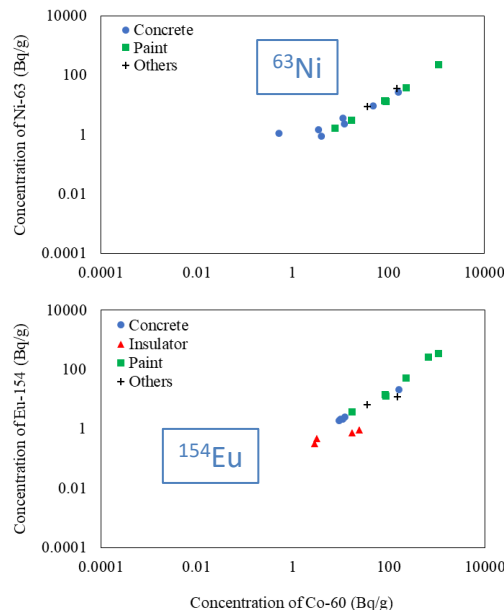


図2 ^{60}Co と ^{63}Ni 、 ^{154}Eu 濃度の相関*2

表1 核種濃度の相関係数*2

核種	相関係数	
	対 Co-60	対 Cs-137
H-3	0.80	0.53
C-14	0.14	0.21
Ni-63	1.0	0.062
Sr-90	0.77	0.27
Tc-99	0.92	0.19
I-129	0.85	0.53
Cs-137	-0.036	-
Eu-154	0.99	0.012
Am-241	0.94	0.0088
Pu-239+240	0.94	0.027

*1 Y. Koma et al., Nuclear Materials and Energy, 10, 35-41 (2017). *2 Y. Takahatake et al., FDR2022-1063 (2022).

2.7 インベントリ推算手法の開発 放射化生成物 Co-60 の推算

- BWR の運転では、Co-60 が配管の線量率に対して主に寄与し、従事者の被ばくを抑制するために、Co-60 の挙動を把握し、その制御が行われてきた*1。
 - 構造材料が鉄クラッド(ヘマタイト $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) や Co が冷却水に移行すると、燃料の表面で冷却水の沸騰に伴い、析出する。析出した Co は、 $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ 反応により Co-60 を生成する。Co の一部は浄化系にて除去される。(図1)
- 1970年代中盤に中国電力島根原子力発電所1号機で腐食生成物が測定され、燃料表面と1次冷却系における Co 及び Co-60 の物質収支が求められた*1。その結果をもとに燃料に付着する核種の量を計算すると、被覆管の放射化による生成量(ORIGENによる計算)に比べて 100 倍ほどとなる。(図2)
 - 燃料に付着する Co-60 を考慮すると、Co-60 の輸送比は前ページ 図1に示した値に比べて 2 桁ほど小さくなり、Sr と同等の値となる。

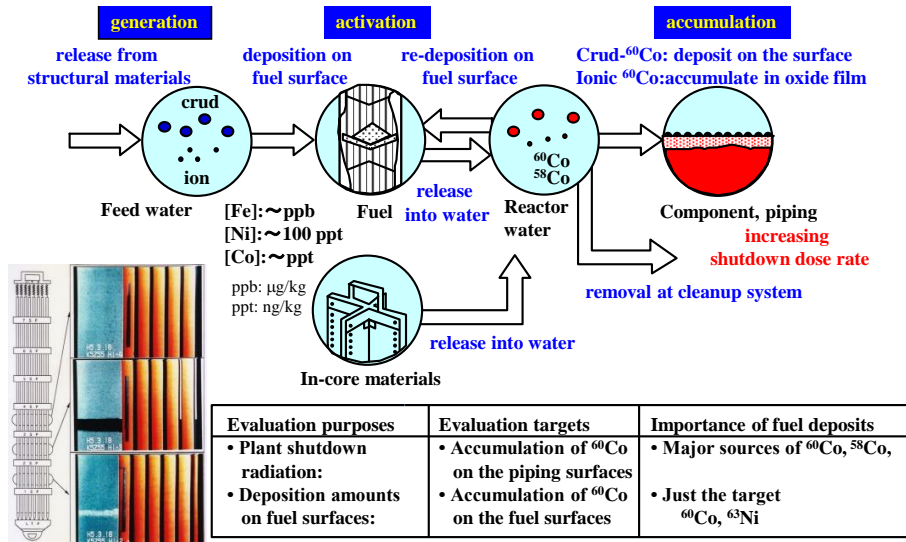


図1 BWR 1次冷却系における腐食生成物の主要な移行プロセス*2

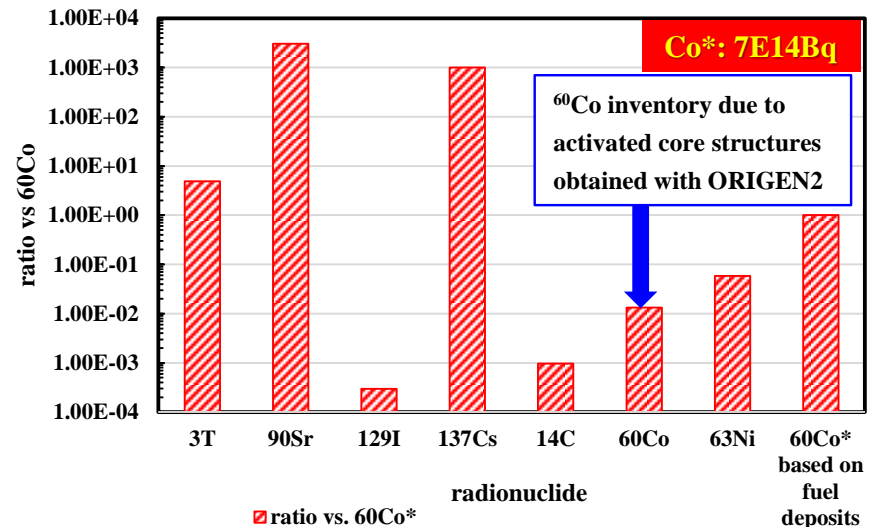


図2 燃料に付着する核種量 (^{60}Co に対する比)

*1 S. Uchida et al., Nucl. Sci. Eng., 69, 78-85 (1979). *2 S. Uchida et al., J. Nucl. Sci. Technol., 24, 593-600 (1987).

2.7 インベントリ推算手法の開発 放射化生成物 Co-60 の推算

- Co と Ni を対象として、燃料棒の表面に鉄クラッドとともに沸騰析出する機構をモデル化し、1F の条件を当てはめて詳細な評価を行った。
- 鉄クラッドなど不溶性の成分は比較的安定に沸騰析出するが、 Co^{2+} 、 Ni^{2+} は一部が可溶性となるので、Fe と再析出する。このため、見かけの付着速度が不溶性の成分より小さくなる。(図1)
- 燃料周囲の条件は、沸騰により冷却水中の蒸気量が増大し二相流が形成されることから、軸方向の分布を有する。実効的な流速が増大すると共に、流れによるせん断流の影響があり、燃料表面に付着するクラッドがはく離され、付着量は付着と脱離のバランスで決まる。結果として、クラッドの付着量は軸方向の分布を持ち、下部に多く分布する。(図2)
- 付着量の計算にあたっては、反応の過程や燃料の軸に対する分布を考慮する必要がある。

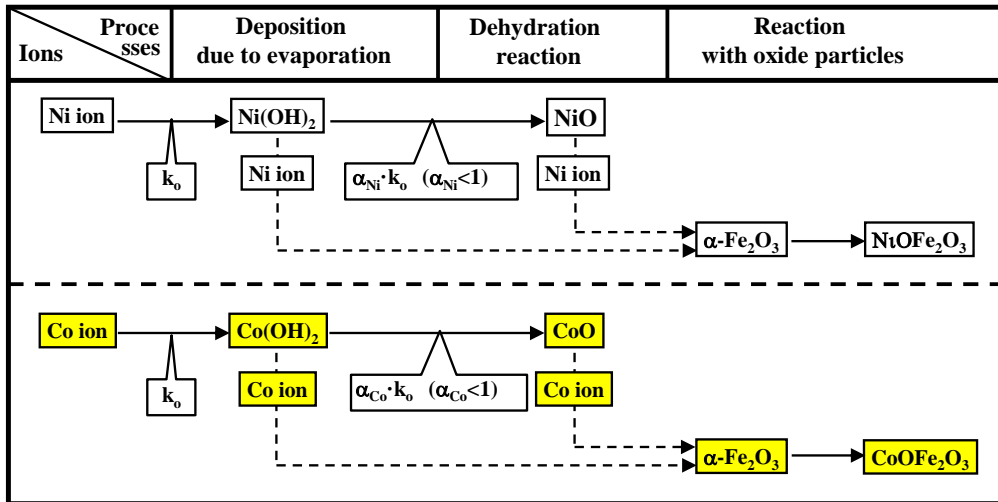


図1 Ni^{2+} と Co^{2+} の溶解成分と付着形態の変化*1
(BWR燃料への可溶性成分の析出プロセス)

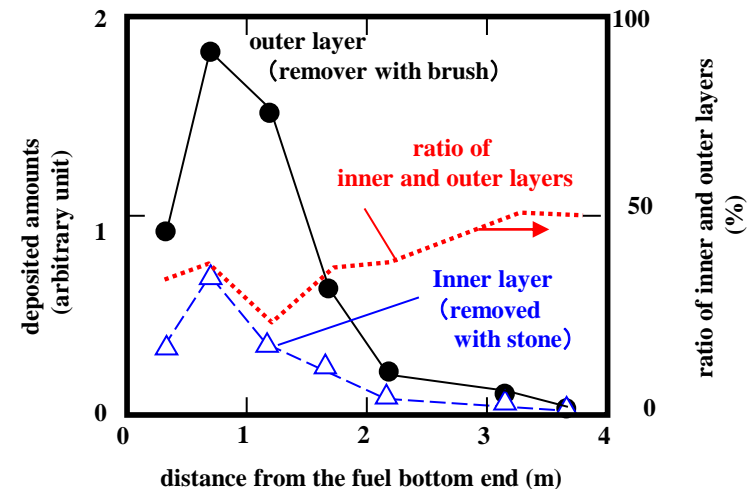


図2 燃料表面への鉄クラッド付着プロファイル*2
(島根1号の使用済み燃料の試験結果)

*1 Y. Asakura et al., J. Nucl. Sci. Technol., 26, 1112-1120 (1989).. *2 S. Uchida et al., J. Nucl. Sci. Technol., 24, 593-600 (1987).

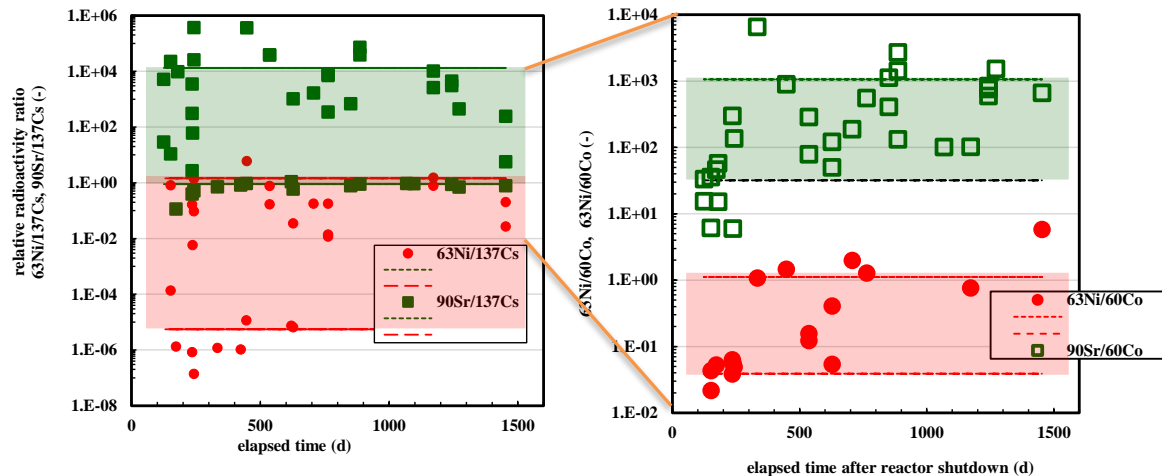
2.7 インベントリ推算手法の開発 放射化生成物 Co-60 の推算

- 1から3号機炉心燃料の表面に付着する Co-60 及び Ni-63 の量を試算した。
 - 軸方向に分割したノードを設定し、熱流速、流速分布及び熱中性子束(燃烧度)分布を与えて計算し、軸方向の分布を有する蓄積量を得た。
 - Co-60 と Ni-63 の付着量は、いずれも 2 号機 > 3 号機 > 1 号機の順であった。(表1)
 - 付着量は被覆管の生成量に対して、Co-60 について約 200 から 400 倍、Ni-63 について約 100 から 200 倍であった。
- β核種である Ni-63 と Sr-90 の汚染水へ輸送比は、Cs-137 を基準とする場合、4 桁近くのばらつきが見られる(図2 左、Co-60 の輸送比も同様)。一方、Co-60 の値を基準とすると、そのばらつきは 1.5 桁ほどに縮小する(図2 右)。
 - Ni-63 は輸送比の平均値が 1.0 に近く、原子炉から汚染水に至る移行挙動もほぼ同じと推察される。Sr-90 は輸送比のばらつきは小さいものの、平均値が 100 近い値を示すことから、Co-60 と Sr-90 の間には、炉心から汚染水に至る間の挙動に本質的な差異のあることが推察される。

表1 ^{60}Co と ^{63}Ni インベントリの試算結果
(被覆管中の生成と燃料表面付着量
(Bq/core) の比較)

号機	^{60}Co			^{63}Ni		
	被覆管	付着物	比*	被覆管	付着物	比*
1号機	2.5E+12	6.1E+14	241	1.2E+13	1.1E+15	91
2号機	3.6E+12	1.5E+15	416	1.5E+13	2.7E+15	182
3号機	3.3E+12	7.9E+14	240	1.4E+13	1.4E+15	103
合計/ 平均	9.4E+12	2.9E+15	299	4.1E+13	5.3E+15	125

* 付着物/被覆管



^{137}Cs 基準

^{60}Co 基準

図2 汚染水へのβ核種 (^{63}Ni 、 ^{90}Sr) の輸送比

2.7 インベントリ推算手法の開発 事象進展を考慮した汚染分布の解析

- 母集団の妥当性をベイズ統計により解析した結果、データの充足性が低い廃棄物及び元素グループを特定することができた。その対策として、データの拡充とともに、元素グループの分類の妥当性を考えるべきである。
 - 燃料デブリの取り出しが本格化すると、内部構造物が解体され高線量率の廃棄物が発生すると見込まれる。PCVの内部の汚染は、従来、分析データが少ないので、インベントリの推算に係る不確実性の低減が重要となる。
 - 元素グループの分類は、従来、輸送比の大きさや化学的な性質を考慮して設定している。汚染に関する挙動をより具体的に検討することによって、元素グループの設定を改善できるものと期待される。
- これらのため、PCV内部の汚染を対象として、解析的に核種の汚染の検討を試みた。
 - 前述の推算方法と異なり、空間的にはPCV内部、時間的には事故事象の進展を考慮した。(図1)

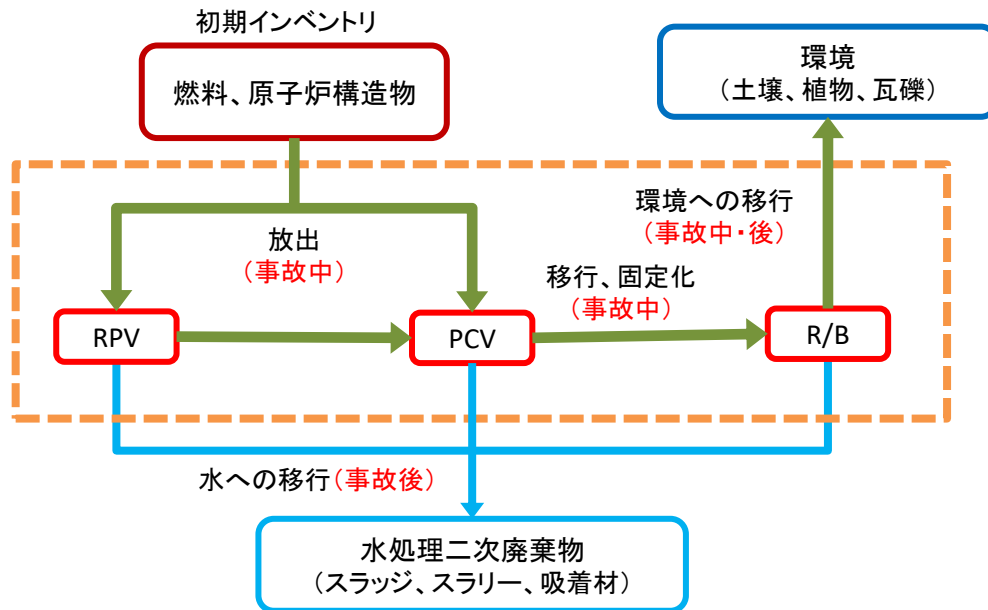


図1 検討する汚染モデルの核種挙動の概念

- 解析は次のようにモデルを検討して進めた。
 - 放射性核種は粒子(エアロゾル)として移行することを前提とした。
 - 粒子が移動する駆動力として、系内の空気の流動を考えた。すなわち、損傷した燃料の発熱に起因する温度の上昇および水の蒸発、これに伴う圧力の変化を検討した。
 - セシウム、ヨウ素とストロンチウムの挙動について、事故が進展する中で生じた分布を検討した。
 - これら解析のために、シビアアクシデント解析コード*1と流体力学解析コード*2を用いた。
 - 燃料デブリ取り出しを予定し、分析データが比較的多い2号機を対象とした。

*1 SAMPSON. *2 STAR-CCM+.

2.7 インベントリ推算手法の開発 事象進展を考慮した汚染分布の解析

- 2号機に関して、そのプラントデータから主蒸気逃がし安全弁 (SRV) にリークが発生し、ドライウェル (DW) 内に蒸気が流出したと考えられている(図1)。また、オペレーションフロアのシールドプラグで高線量率の汚染が見つかったことから、格納容器 (PCV) トップヘッド部から蒸気が漏洩して、原子炉ウェルに汚染物質が移動した可能性がある。
- 圧力容器 (RPV) と PCV を対象とし、3月15日1時から7時における SA 解析を行い (SAMPSON による、全体解析と呼ぶ)、Cs、I と Sr の挙動を解析により求めた。
 - RPV と PCV にノードを設定した(図2)。燃料からの FP の放出率(表1)と初期分布(表2)を既報^{*1}を参考に設定した。

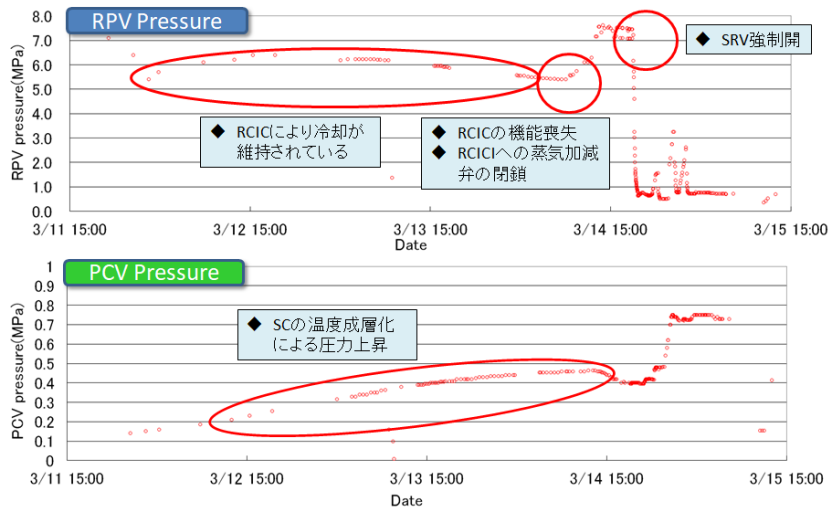


図1 RPV と PCV の圧力挙動

表1 全体解析で用いた FP の質量と放出率

元素	質量 (kg)	燃料からの放出率
Cs	188.3	1
I	13.98	1
Mo	214.8	0.25
Sr	63.57	0.02

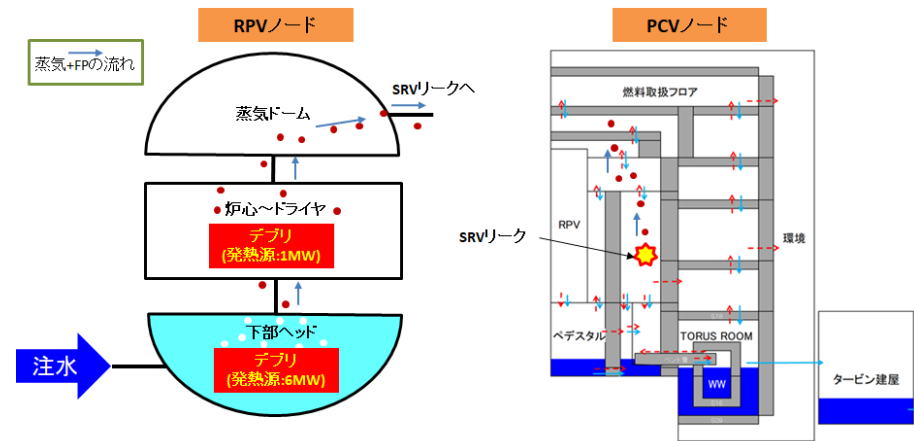


図2 全体解析で用いた RPV 及び PCV ノード

表2 全体解析で用いた FP 化学種の初期分布 (kg)

化合物	RPV		PCV
	炉心	下部ヘッド	S/C
CsOH	48.4	48.4	24.2
CsI	10.3	10.3	5.15
Cs ₂ MoO ₄	43.4	43.4	21.7
HI	0.56	0.56	0.28
MoO ₃	17.5	17.5	8.77
Sr	0.509	0.509	0.25

*1 木野 ほか, "SAMPSONコードによる福島第一原子力発電所の事故進展およびFP挙動評価 (2) SAMPSONによるFP挙動評価," 2021年春の年会, 1A05 (2021).

2.7 インベントリ推算手法の開発 事象進展を考慮した汚染分布の解析

- 解析においては、最近得られた情報を参考として、計算方法を決定した。
 - 従来の解析^{*1}では、Csの大半がRPVおよびS/Cに存在するものと評価しているが、内部調査の結果によると、シールドプラグに10～20%のCs-137が存在すると示唆されており、従来の解析はRPVからPCV、あるいはさらに建屋への移行を過小評価している可能性が高い。このため、エアロゾルが再浮遊する過程をモデル化した。
 - また、SAMPSON解析においてSrの放出率は他のコードよりも小さいことからこれを見直して計算した。
- エアロゾルの再浮遊を組み込み、核種がシールドプラグからオペフロ、環境へと拡散する挙動をおおよそ再現することができた(表1)。また、Srの輸送比は、分析により得られた値と近い値を導出することができた(表2)。

表1 全体解析により得られたFPの分布とCsに対する輸送比

場所	分布(物質収支)			輸送比 (Csに対する)	
	Cs	I	Sr	I	Sr
燃料(残留)	0	0	0.98	—	—
RPV	0.46	0.46	0.009	1	0.020
DW	0.099	0.099	2.0E-03	1	0.020
トラス室	6.0E-07	5.4E-07	1.2E-08	0.90	0.019
RB1-4	0.008	0.009	1.6E-04	1.1	0.021
SC	0.25	0.25	4.9E-03	1.0	0.020
シールドプラグ	0.18	0.16	3.5E-03	0.93	0.020
オペフロ	0.01	0.022	2.1E-04	2.2	0.021
環境	0.001	0.001	1.6E-05	1.0	0.016
合計	1.0	1.0	1.0		

表2 2号機建屋内へのSrの輸送比

	採取場所(試料)	Sr輸送比(Csに対する)
1階	パーソナルエアロック室入口 (樹脂表面)	0.0141
2階	北側通路・床(ストリッパブルペ イント)	0.00692
	床(スミア)	0.0141
	壁(スミア)	0.0125
3階	北側通路・床(ストリッパブルペ イント)	0.00418
5階	天井(デッキプレート)	8.94e-4, 0.0076, 0.00209, 0.00182, 0.00211
	シールドプラグ東側(床)	0.0256
	ウェルプラグ上部(ボーリングコ ア下層塗膜)	0.0149
	オペフロ北東部(ボーリングコ ア上層塗膜)	0.0201
	オペフロ西側(ガレキ)	0.265, 0.0290, 0.0229, 0.0220, 0.0239

*1 木野 ほか, "SAMPSONコードによる福島第一原子力発電所の事故進展およびFP挙動評価 (2) SAMPSONによるFP挙動評価," 2021年春の年会, 1A05 (2021).

2.7 インベントリ推算手法の開発 事象進展を考慮した汚染分布の解析

- 圧力容器の内部では、燃料からの発熱によって蒸気が流動し、エアロゾルが再浮遊する可能性がある。
 - 数値流体解析計算を行い(汎用連続体シミュレーションソフトの STAR-CCM+ を使用)、2号機の形状に関して公開情報に基づいて計算モデルを作成した。
 - 高温になった圧力容器への注水が開始され、水が入り始めた直後の状況に対応するため、バッフルプレート上の20個の穴から450 Kの水蒸気が流入する条件をリファレンスとした。CFDモデルの底面に2500 Kの熱源があり、その近傍で水蒸気が熱せられる。他に、バッフルプレートが閉じ、底面から水蒸気が流入するケースも検討した。(図1)
 - シュラウド上のスタンドパイプを1本の配管でモデル化したモデルとともに、より現実に近いモデルも検討した。
- 中心軸付近を高温の水蒸気が上昇し、シュラウドの壁面付近まで回って冷やされた後に下降するという熱対流が見られる。(図2)
 - 水蒸気の流速は、上昇流が3 m/s程度、下降流が1 m/s程度になる。
 - 上下方向流速はシュラウドの壁面温度に依存し、温度が低い場合に大きな流速が得られる。

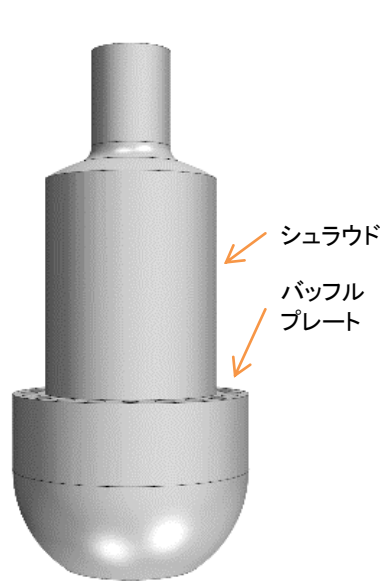


図1 CFDモデルの幾何形状

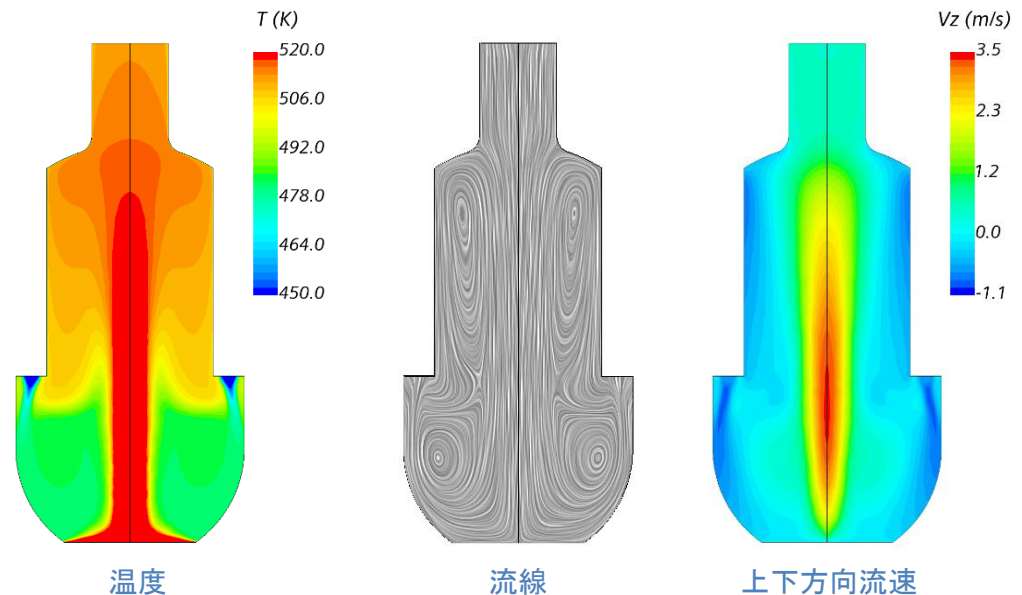


図2 解析結果(リファレンスケース)

2.7 インベントリ推算手法の開発 事象進展を考慮した汚染分布の解析

- 炉内で発生した汚染物質が、SRV から噴出した蒸気と共に PCV 内を移動し、PCV トップヘッドのフランジ部分から原子炉ウエルに移動する挙動を CFD 解析によって評価した。
 - SRV から PCV トップヘッドまでの蒸気の流れと汚染粒子の輸送を評価する目的から、PCVドライウエル内をモデル化した(図1左)。また、SRV と PCV トップヘッドフランジ開口部周辺は、他の部位よりも流れが複雑で流速が高くなることから他の部位よりもメッシュを細かく設定した(図1右)。
- 粒子は、上部ドライウエル内を上昇してPCVトップヘッドフランジから流出した。PCV内の多くの部分では粒子の流速が 1 cm/s 以下であった。上部ドライウエルではあまり粒子は滞留せず、PCVトップヘッドに向かうものと、下部ドライウエルに滞留するものに分かれた。(図2左)
- CFD計算を利用して粒子の軌跡を追跡することにより、核種の汚染分布を推定することが期待される(図2中、右)。

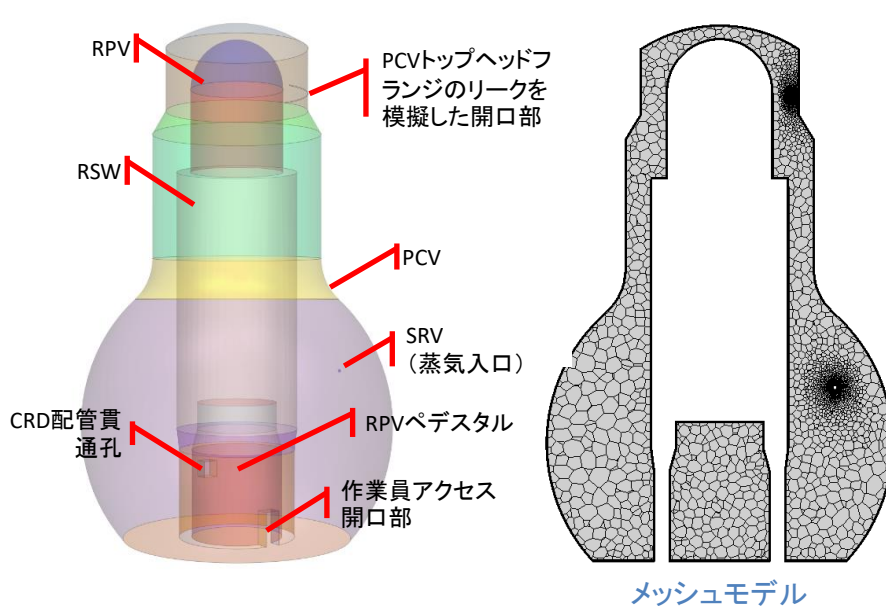
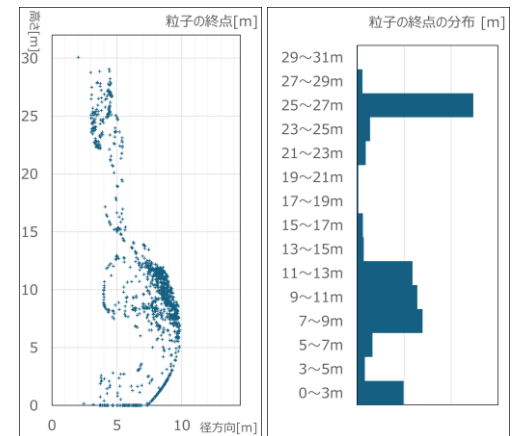


図1 CFDモデルの幾何形状
RSW: 原子炉補機冷却水系



粒子の終点散布図 粒子の終点分布

図2 解析結果

2.7 インベントリ推算手法の開発

震災前廃棄物・燃料デブリ取り出し廃棄物の検討

- 事故前に保管されていた廃棄物は、事故に伴う汚染や津波との接触などにより性状が影響を受けた可能性がある。そのような場合に、廃棄物管理の手法を検討する必要があり、インベントリ推算について検討した。(図1)
- 燃料デブリ取り出し廃棄物は、高放射性であり、燃料デブリを含む可能性があることから、重要な対象であり、インベントリ推定の概略的な手順を検討した。(図2)

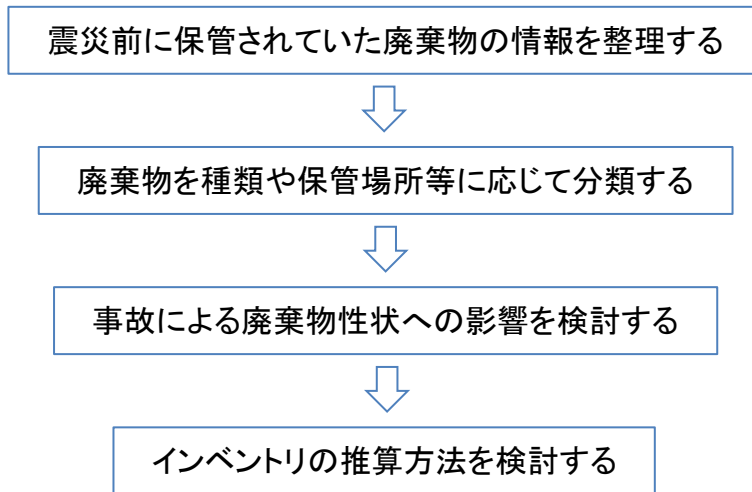


図1 保管廃棄物の検討(案)

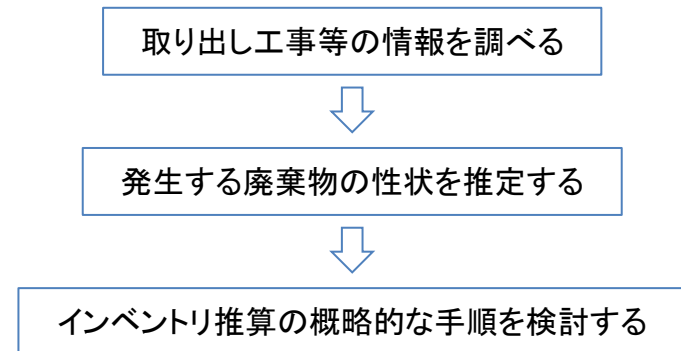


図2 燃料デブリ取り出し廃棄物の検討(案)

2.7 インベントリ推算手法の開発 震災前廃棄物の検討

- 震災の当時に保管されていた廃棄物(震災前廃棄物)のうち、汚染水と接触した可能性のある廃棄物を調べた。実施計画を参照し^{*1,2}、保管場所の配置から汚染水との接触可能性を推察した。(表1)
 - 固体廃棄物貯蔵庫は汚染水と隔離されている。覆土式一時保管施設と伐採木一時保管槽は事故後に設置されたものであり、それぞれ汚染水の影響はない。サイトバンカは津波が流入したが、汚染水との接触はなく、内部の観察も行われている。
 - 結果として、使用済樹脂、フィルタスラッジ、濃縮廃液の貯蔵設備を以後の検討の対象として抽出した。(表2)

表1 放射性廃棄物の管理施設と汚染水との接触可能性

施設・設備	廃棄物	汚染水との接触可能性
固体廃棄物貯蔵庫 (第1棟～第9棟)	1～6号機で発生したドラム缶、ドラム缶以外の容器に収納された放射性固体廃棄物、開口部閉止措置を実施した大型廃棄物であるドラム缶等、使用済保護衣等や許可されていない瓦礫類	なし
サイトバンカ	1～6号機で発生した原子炉内で照射された使用済制御棒、チャンネルボックス等	なし
使用済樹脂、フィルタスラッジ、濃縮廃液の貯蔵設備	使用済樹脂、フィルタスラッジ、濃縮廃液(造粒固化体(ペレット))	あり
覆土式一時保管施設	瓦礫類	なし
伐採木一時保管槽	伐採木	なし

表2 使用済樹脂、フィルタスラッジおよび造粒固化体の貯蔵状況

種類 (貯蔵場所)	貯蔵状況	
使用済樹脂、 フィルタスラッジ (使用済樹脂貯蔵タンク等)	<ul style="list-style-type: none"> ・1～4号機廃棄物処理建屋 ・廃棄物集中処理建屋 	<ul style="list-style-type: none"> ・監視設備の故障等により確認が困難であり、監視できない ・水没や汚染水処理設備の設置等により高線量率となっており貯蔵設備へアクセスできない
	<ul style="list-style-type: none"> ・点検が可能な液体廃棄物処理系 ・5号機廃棄物処理建屋 ・6号機原子炉建屋付属棟(地下を除く) 	<ul style="list-style-type: none"> ・定期的に外観点検または肉厚測定等を行い、漏えいのないことを確認
	<ul style="list-style-type: none"> ・6号機原子炉建屋付属棟の地下 	<ul style="list-style-type: none"> ・滞留水により没水しているため監視できないことから、貯蔵設備に対する滞留水の影響を確認
	<ul style="list-style-type: none"> ・運用補助共用施設 	<ul style="list-style-type: none"> ・定期的に監視
造粒固化体 (造粒固化体貯槽)	<ul style="list-style-type: none"> ・廃棄物集中処理建屋 	<ul style="list-style-type: none"> ・監視設備の故障等により確認が困難であり、監視できない

*1 東京電力ホールディングス株式会社, 福島第一原子力発電所 特定原子力施設に係る実施計画, II 2.10 放射性固体廃棄物等の管理施設.

*2 同上, III 2.1 放射性廃棄物等の管理

2.7 インベントリ推算手法の開発 震災前廃棄物の検討

- 震災前廃棄物と滞留水が接触することにより、滞留水に含まれる放射性核種が震災前廃棄物を汚染することを想定してインベントリを試算した。
 - 容器の空隙に滞留水で満たされ、廃棄物の元の放射能と滞留水の放射能を合算した。滞留水は PCV 環境を想定して加算した (図1)*1。計算方法の検討を優先し、結果が大きな保守性を含むことを許容した。
- 震災前に得られていた分析値に対して、滞留水の寄与により濃度が増加する (図2)。放射化生成物に比べて、FP 核種は大きく増加しており、アクチニドも同様であると推察される。廃棄物をサンプリングし、分析データを得ることが望まれる。

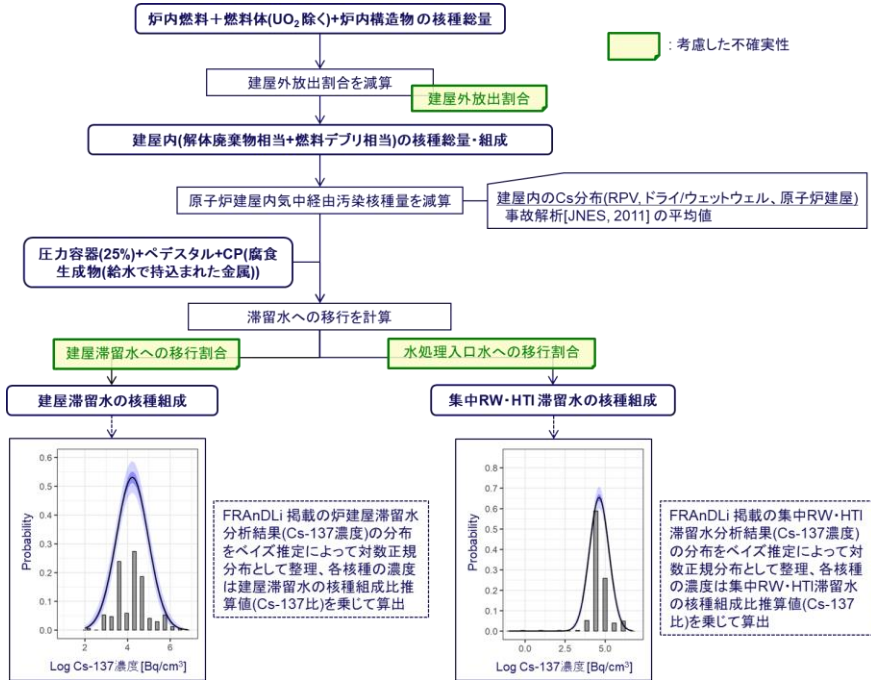


図1 保管されていた廃棄物を汚染する滞留水のインベントリ推算

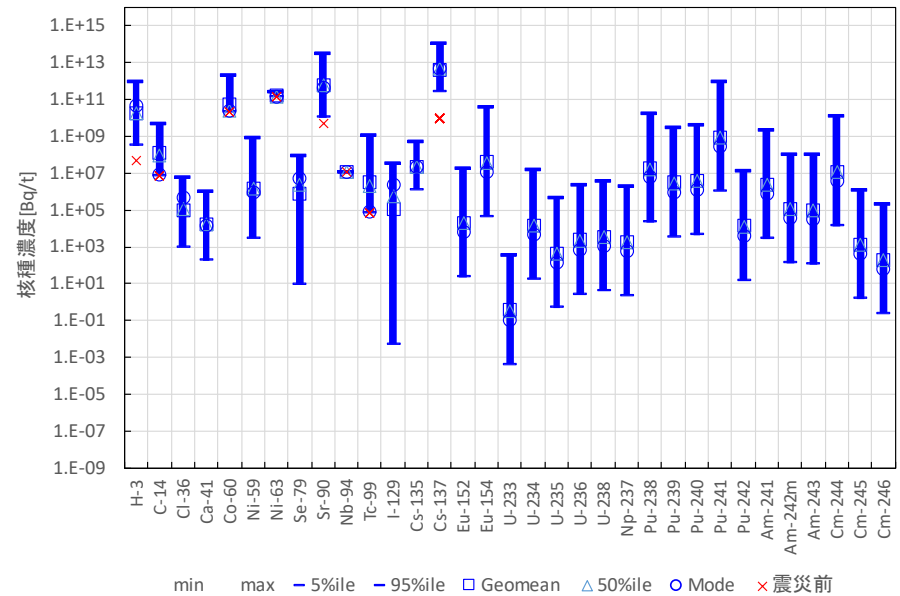


図2 事故の影響を考慮した震災前廃棄物のインベントリ (フィルタスラッジの試算例)

*1 東京電力ホールディングス, “多核種除去設備等処理水(ALPS処理水)の海洋放出に係る放射線環境影響評価報告書(建設段階・改訂版),” 2023年2月。

2.7 インベントリ推算手法の開発 燃料デブリ取り出し廃棄物の検討

- 解体廃棄物の対象物は、燃料デブリの取り出しに伴う二次廃棄物を含めて検討する必要がある。
- 燃料デブリの取り出し規模に関して規模を拡大した時の工法が NDF の廃炉等技術委員会（燃料デブリ取り出し工法評価小委員会）にて検討・評価がなされている*1。
 - 気中工法 – 燃料デブリが気中に露出した状態で、水をかけ流しながら取り出す工法
 - 冠水工法 – バウンダリとして船殻構造体と呼ばれる新規構造物で原子炉建屋全体を囲い、原子炉建屋を冠水させ燃料デブリを取り出す工法
 - 充填固化工法 – 充填材により燃料デブリを安定化させつつ現場線量を低減し、掘削装置により燃料デブリを構造物や充填材ごと粉碎・流動化して循環回収する工法
- 廃棄物の量を推定するに必要な情報を得るに至っておらず、現時点で検討は適当ではないと思われる。

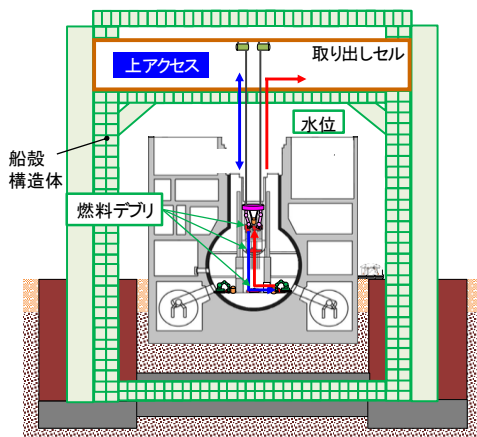


図1 冠水工法

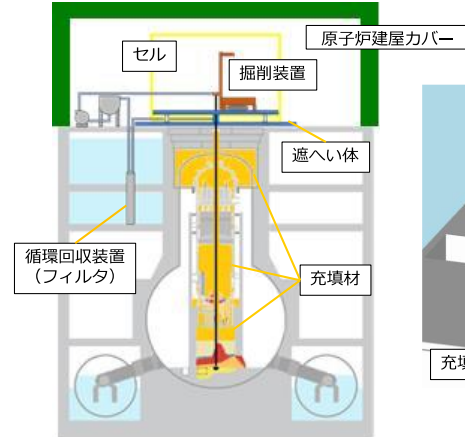
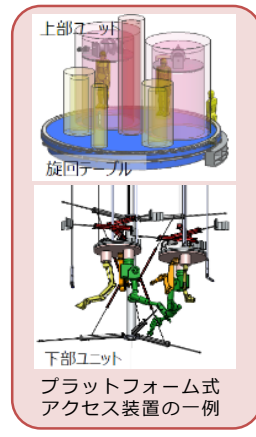
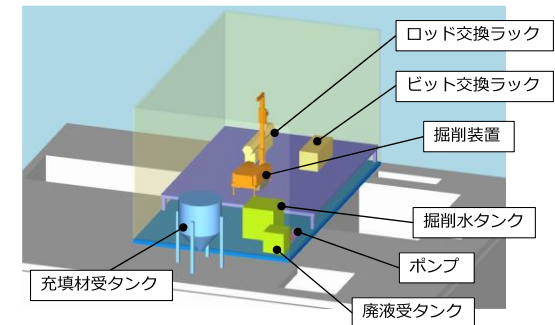


図2 充填固化工法



*1 更田豊志, “燃料デブリの大規模取り出しに向けて,” 福島第一廃炉国際フォーラム, 2023年8月28日。

2.7 インベントリ推算手法の開発 高線量率廃棄物の性状を評価する手法の開発

- 燃料デブリ取り出しに伴う廃棄物(燃料デブリ取り出し廃棄物)は、線量率が高いために、発生したのち遅滞なく処置、保管される。また、一旦、所定の場所に收容されたら、再び取り扱うことは大きな負担となる。
 - これは、既に保管されている高線量率の廃棄物についても同様である。
- したがって、発生した時点で得られる情報を確実に収集するとともに、その情報をもとにして性状を推定する手法が重要である。本検討ではこれに向けて取り組んだ(図1)。
 - ここで、廃棄物を収納した容器の性状を十分に考慮して進めた(図2)。

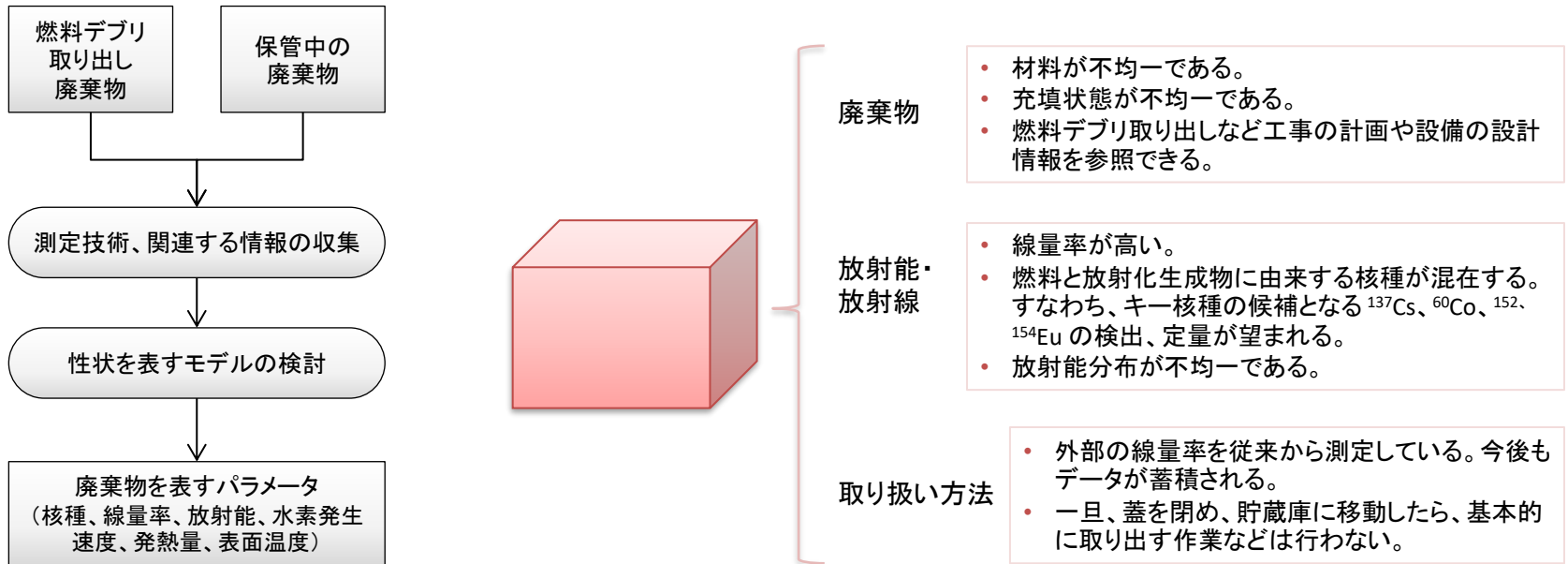


図1 課題解決に向けた進め方

図2 廃棄物を収納した容器に関する考慮すべき性状

2.7 インベントリ推算手法の開発 高線量率廃棄物の性状を評価する手法の開発

- 検討は2か年にかけて取り組んだ(図1)。ここで、次の事項を前提として考慮した。
 - 対象廃棄物は、高線量率である。
 - 非破壊測定が可能なガンマ核種(Cs-137、Co-60、Eu-152、Eu-154)の検出、定量が重要である。
- また、次の事項を考慮して進めた。
 - 燃料デブリの取り出しに係るプロジェクトとの連携するため IRID の過年度成果を参照した。
 - 放射能の推算に関して、過去の補助事業で電力中央研究所と取り組んだ解析的手法^{*1}を参考とした。
 - 廃棄物容器内部の分布の不均一性に関して英知事業^{*2}で検討されているので、協力を検討した。
 - 成果は、ソフトとハードを組み合わせたシステムとなるので、その実用化像を示すよう検討した。

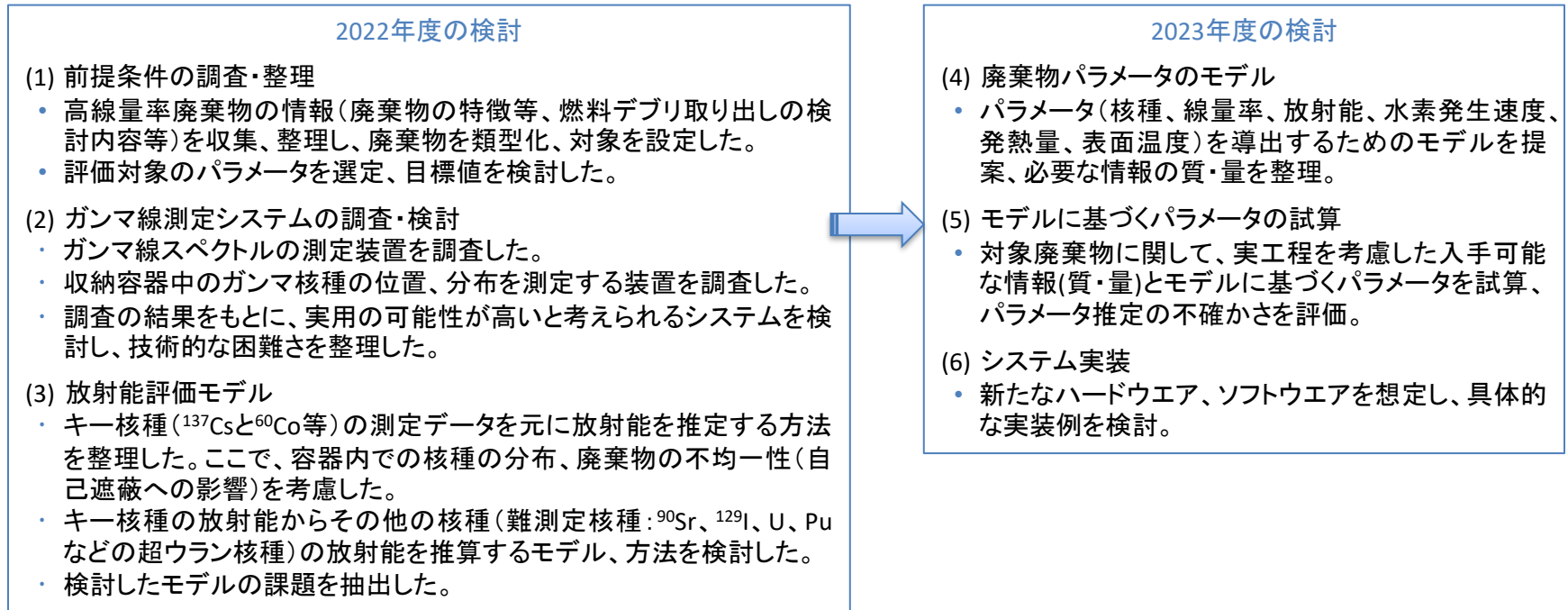


図1 検討の工程

^{*1} D. Sugiyama et al., J. Nucl. Sci. Technol., 58, 493 (2021). ² 北海道大学 ほか, 「溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討」, 令和2から4年度.

2.7 インベントリ推算手法の開発 高線量率廃棄物の性状を評価する手法の開発

- ガンマ線測定システムの調査・検討
 - ガンマ線スペクトルをもとに放射エネルギーを推算する手法を検討した(図1)。
 - 測定対象には、6 m³ コンテナ、または一辺が1~1.5 m程度の角型容器を想定した。
 - 測定から推算に至る手順は次を想定した。
 - ✓ 測定範囲(面積・視野角)ごとのガンマ線スペクトル測定。
 - ✓ 測定範囲ごとのガンマ線波高分布から、各セグメントごとのキー核種の放射エネルギーを推算。
 - ✓ キー核種の放射エネルギーから、目的核種の放射エネルギーを推算。
 - 既存のシステムでは、「ボックスカウンタ」の概念(図2)が参考となることから、高い線量率や測定核種の種類など本件に特有の条件を考慮して検討を進めた。

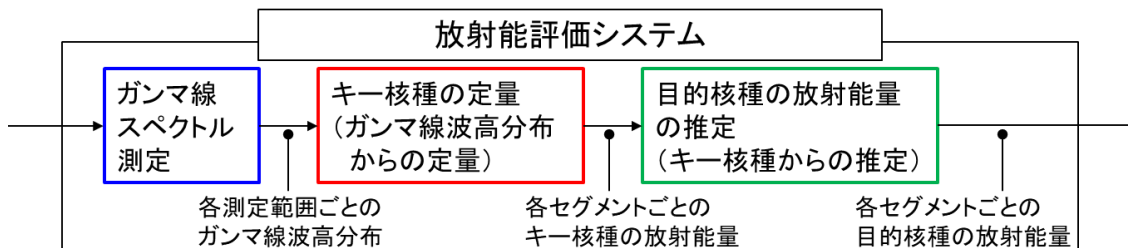
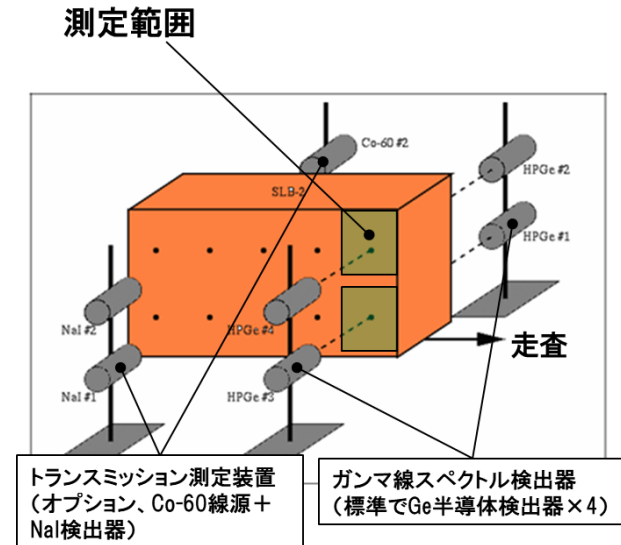


図1 ガンマ線スペクトル測定から目的核種放射能を評価する流れ



図2 ボックスカウンタ構成の例*1

*1 Mirion Technologies, Inc. <https://www.mirion.com/products/wm2500-modular-gamma-box-and-container-counter>

2.7 インベントリ推算手法の開発 高線量率廃棄物の性状を評価する手法の開発

■ 放射能評価モデル

- 放射能を推定するための評価モデルを検討し、いずれも可能性があると考えられた。(表1、図1)
- 複数のキー核種による推定を行うことで、線形・非線形いずれのモデルにおいても推定精度が上昇する(表2)。ここで、複数のキー核種の分析データを得ることが条件となる。
- FRAnDLiの分析データを使用した検討では、線形モデルと非線形モデルを比較した場合、Sb、Tcなどは相関が低下し、Iなどは相関が上昇する傾向が見られた。

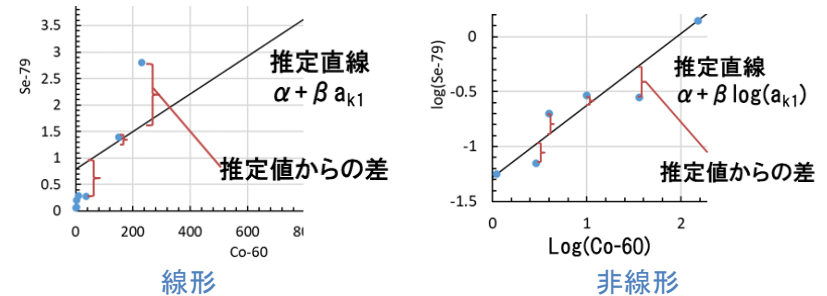


図1 単核種モデルのイメージ

表1 目的核種推定のための評価モデル

	汚染モデル $a_{i,x} = S_x \times f(T_x, F_{i,x})$	推定モデル	$F_{i,d}$ と $F_{i,k}$ の関係	推定式	推定式(係数の具体化)
線形	$a_{i,x} = S_x \times F_{i,x} \times T_d$	単核種	$F_{i,d} = A + B F_{i,k}$	$a_{i,d} = \alpha + \beta a_{i,k}$	$a_{i,d} = A S_d T_d + B \frac{S_d T_d}{S_k T_k} a_{i,k}$
		複数核種	$F_{i,d} = A + B F_{i,k1} + C F_{i,k2} + D F_{i,k3} + \dots$	$a_{i,d} = \alpha + \beta a_{i,k1} + \gamma a_{i,k2} + \sigma a_{i,k3} + \dots$	$a_{i,d} = A S_d T_d + B \frac{S_d T_d}{S_{k1} T_{k1}} a_{i,k1} + C \frac{S_d T_d}{S_{k2} T_{k2}} a_{i,k2} + D \frac{S_d T_d}{S_{k3} T_{k3}} a_{i,k3} + \dots$
非線形	$a_{i,x} = S_x \times X^{F_{i,x} \times T_d}$	単核種	$F_{i,d} = A F_{i,k1}$	$\log(a_{i,d}) = \alpha + \beta \log(a_{i,k})$	$\log(a_{i,d}) = \left\{ \log(S_d) - A \frac{T_d}{T_k} \log(S_k) \right\} + A \frac{T_d}{T_k} \log(a_{i,k})$
		複数核種	$F_{i,d} = A F_{i,k1} + B F_{i,k2} + C F_{i,k3} + \dots$	$\log(a_{i,d}) = \alpha + \beta \log(a_{i,k1}) + \gamma \log(a_{i,k2}) + \sigma \log(a_{i,k3}) + \dots$	$\log(a_{i,d}) = \left\{ \log(S_d) - \left[A \frac{T_d}{T_{k1}} \log(S_{k1}) + B \frac{T_d}{T_{k2}} \log(S_{k2}) + C \frac{T_d}{T_{k3}} \log(S_{k3}) + \dots \right] \right\} + A \frac{T_d}{T_{k1}} \log(a_{i,k1}) + B \frac{T_d}{T_{k2}} \log(a_{i,k2}) + C \frac{T_d}{T_{k3}} \log(a_{i,k3}) + \dots$

表2 単核種と複数核種による非線形モデルの比較結果

推定核種 (log a _d)	単核種による推定結果	複数核種による推定結果						
		キー核種 (log a _k)	推定値 からの 差の平均	相関係数	データ数	推定値 からの 差の平均	相関係数	データ数
H-3	Semivolatile	Co-60	0.24	0.63	12	0.19	0.70	12
C-14	Volatile	Co-60	0.35	0.45	12	0.31	0.55	12
Se-79	Volatile	Co-60	0.20	0.95	5	0.14	0.91	5
Sb-125	Volatile	Co-60	0.39	-0.46	7	0.07	0.98	7
I-129	Volatile	Co-60	0.34	0.57	8	0.20	0.87	8
Cs-134	Alkali	-	-	-	0	-	-	0
Sr-90	Alkali Earth	Cs-137	0.73	0.83	23	0.33	0.95	23
Ni-63	Transition Metals	Co-60	0.07	1.00	16	0.06	1.00	16
Tc-99	Transition Metals	Co-60	0.63	0.84	18	0.35	0.94	18
Sn-126	Transition Metals	Co-60	0.13	0.89	5	0.01	1.00	5
U-234	Ln & An	Eu-154	0.09	-0.65	7	0.10	0.71	7
U-235	Ln & An	Eu-154	0.22	0.94	11	0.14	0.97	11
U-238	Ln & An	Eu-154	0.21	0.91	14	0.15	0.94	14
Pu-238	Ln & An	Eu-154	0.26	0.97	19	0.23	0.97	19
Pu-239+240	Ln & An	Eu-154	0.23	0.97	19	0.23	0.97	19
Am-241	Ln & An	Eu-154	0.29	0.94	15	0.26	0.95	15
Cm-244	Ln & An	Eu-154	0.34	0.96	18	0.29	0.98	18
全α	-	-	-	-	0	-	-	0

■ …単核種推定から推定差が減少、相関係数が上昇した箇所

2.7 インベントリ推算手法の開発 高線量率廃棄物の性状を評価する手法の開発

■ モデルに基づくパラメータの試算

- 測定対象の核種
 - ✓ 炉内構造物等に主に生成される放射化生成物(AP)の放射能は Co-60 を基に評価する。
 - ✓ 燃料由来のFP、アクチニドについては、移行しやすい核種の放射能は Cs-137、あまり移行しない核種の放射能は Eu-154 を用いて評価する。
- ボックスカウンタ(2022年度対象として抽出)についての検討
 - ✓ このシステム(P. 117 図2)は、分割ガンマスキャンシステム*1に相当し、その原理は、検出器の視野を制限して、保管容器の特定の部分(セグメント)に存在する放射性核種の放射能による寄与だけを測定できるようにするものである。
 - ✓ 廃棄物の保管容器として、直方体(1.5 × 1.5 × 1 m³)を想定し、キー核種の測定の不確かさを計算シミュレーション(MCNP)によって各種条件下での検出器計数率の不確かさを評価した。(図1)
 - ✓ 測定対象を回転する場合、相対する2面の測定が必要、4面によりさらに不確かさ減少する。(図1 (a))
 - ✓ アクティブ・セグメンテーション(トランスミッション測定)は、収納容器外部から既知強度のガンマ線を照射し、容器反対側で透過ガンマ線強度を測定することにより、収納物の不均一性を推定するものである。極めて高強度の線源が必要とされ、現実的ではない。(図1 (b))
 - ✓ パッシブ・セグメンテーション(ボックスカウンタ式)は、各側面に5測定点としても不確かさ減少は軽微である。(図1 (c)、表1)

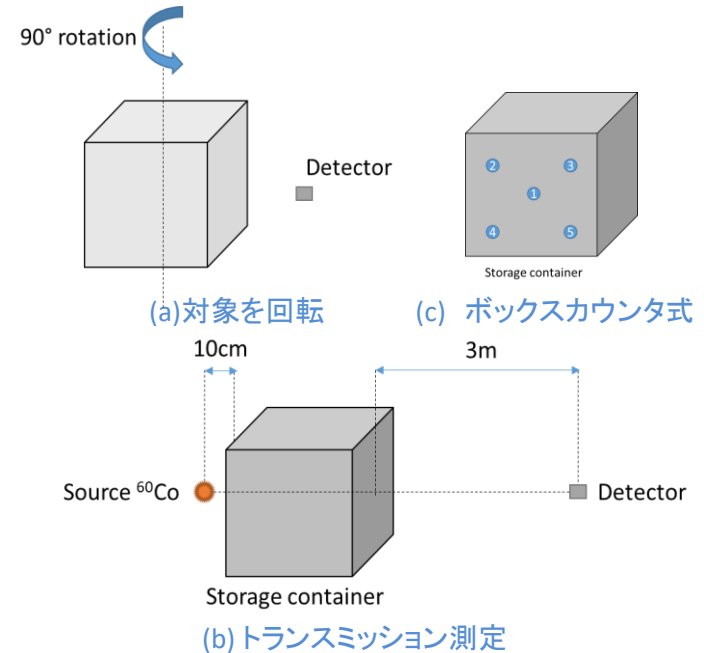


図1 保管容器(1.5 × 1.5 × 1 m³)周辺の測定点
(比重1のコンクリートが充填された容器内を27分割した
いずれかのセグメントに放射能が集中している場合)

表1 測定点数の違いによる放射能評価値の不確かさ

測定点数の数	⁶⁰ Co放射能 不確かさ	¹³⁷ Cs放射能 不確かさ
1 (1面、中心位置)	1,430%	7,740%
2 (2対向面、中心位置)	120%	310%
4 (各側面に1、中心位置)	112%	293%
20 (各側面に5)	110%	291%

*1 ISO, "Guidance for gamma spectrometry measurement of radioactive waste," ISO 19017:2015 (2015).

2.7 インベントリ推算手法の開発 高線量率廃棄物の性状を評価する手法の開発

■ システム実装例の検討

- 検出器として下記の3種類を選定した。
 - ✓ HPGe (175 mm³)、CZT (20 mm³)、CeBr₃ (12,870 mm³)
 - ✓ 高計数率下での測定には小型検出器が有利である。
 - ✓ 特徴を性能や運用の面から整理した。(表1)
- 保管容器は、鉄製の長方形型を想定した(外寸1.5×1.5×1 m³、鉄6.4 mm厚)。
 - ✓ 遮蔽は、容器内にコンクリート(中遮蔽 200 mm)、鉄(重遮蔽 120 mm)の設置を考慮した。
 - ✓ 放射能は、Co-60: 120 GBq、Cs-137: 1.0 TBq、Eu-154: 360 GBqと設定した*1。線源の分布(点あるいは均一線源)を想定した。
 - ✓ 測定距離は、保管容器表面より3、4、5 mを想定した。
- シミュレーションにより測定上限放射能を検討した。

- 容器内中央に点線源を仮定した場合の結果
 - ✓ 各核種について対応する総計数率(c/s)を算出した。
 - HPGe検出器及びCZT検出器: 10⁴~10⁶ c/s 程度
 - CeBr₃検出器: 10⁷~10⁸ c/s 程度
 - CeBr₃検出器: 限度である200,000 c/sより2~3桁高い
- 容器内に均一分布する線源を仮定する場合の結果
 - ✓ Co-60放射能最大値に対するHPGeの総計数率は、距離5 mでも測定上限(200,000 c/s)の2倍近く余裕がある(表2)。
 - ✓ Co-60存在下でもCs-137とEu-154のMDA(HPGe)は、目標とした値を十分に下回った。ただし、CZTではEu-154の放射能評価に影響を及ぼす。

表1 検討した検出器(HPGe、CZT、CeBr₃)の長所・短所

長所	短所
良い分解能(HPGe)	検出器と電気回路が分離(CZT, HPGe)
室温で動作(CeBr ₃ , CZT)	検出器の冷却が必要(HPGe)
寸法が小さい(CZT, HPGe)	高コスト(HPGe)
応答が早い(CeBr ₃)	分解能低、温度変化、潮解(CeBr ₃)
低コスト(CeBr ₃)	ピーク形状が非ガウシアン(CZT)

表2 HPGe検出器によるCo-60の測定上限放射能(均一分布の場合)

遮蔽	廃棄物密度	⁶⁰ Co測定上限放射能(Bq)			容器内の ⁶⁰ Co放射能最大値(Bq)
		測定距離 3 m	測定距離 4 m	測定距離 5 m	
無遮蔽	0.6	5.7 × 10 ¹²	9.8 × 10 ¹²	1.5 × 10 ¹³	3.2 × 10 ¹³
	0.8	6.8 × 10 ¹²	1.2 × 10 ¹³	1.8 × 10 ¹³	3.8 × 10 ¹³
	1.0	8.0 × 10 ¹²	1.4 × 10 ¹³	2.1 × 10 ¹³	4.7 × 10 ¹³
中遮蔽	0.6	2.8 × 10 ¹³	4.8 × 10 ¹³	7.4 × 10 ¹³	1.8 × 10 ¹⁴
	0.8	3.4 × 10 ¹³	5.9 × 10 ¹³	9.1 × 10 ¹³	2.1 × 10 ¹⁴
	1.0	4.1 × 10 ¹³	7.1 × 10 ¹³	1.1 × 10 ¹⁴	2.5 × 10 ¹⁴
重遮蔽	0.6	3.1 × 10 ¹⁴	5.4 × 10 ¹⁴	8.1 × 10 ¹⁴	1.8 × 10 ¹⁵
	0.8	3.9 × 10 ¹⁴	6.7 × 10 ¹⁴	1.0 × 10 ¹⁵	2.2 × 10 ¹⁵
	1.0	4.6 × 10 ¹⁴	8.0 × 10 ¹⁴	1.2 × 10 ¹⁵	2.7 × 10 ¹⁵

*1 容器表面における線量率が10 Sv/hに相当する放射能。

2.8 分析計画法の適用性向上

分析計画法の必要性

- 廃棄物管理技術の各分野は、事故に由来する不確実性を有している。各分野の研究開発は、それぞれの不確実性を最小化するよう、システムの詳細を最適化するため、フィードバックを伴い繰り返して検討する。(図1)
- 検討に必要な性状を把握(キャラクターゼーション)する上で、廃棄物に関する情報とともに、分析によりデータを収集する。このために、分析計画は、必要の都度、その時の目的や条件を考慮して立案する。
 - 分析の計画は、1回で完了せず繰り返して行う。
 - 複数の目的に対しても、蓄積する分析データを活用することが可能であり、追加すべき分析の点数は徐々に減ることが期待される。

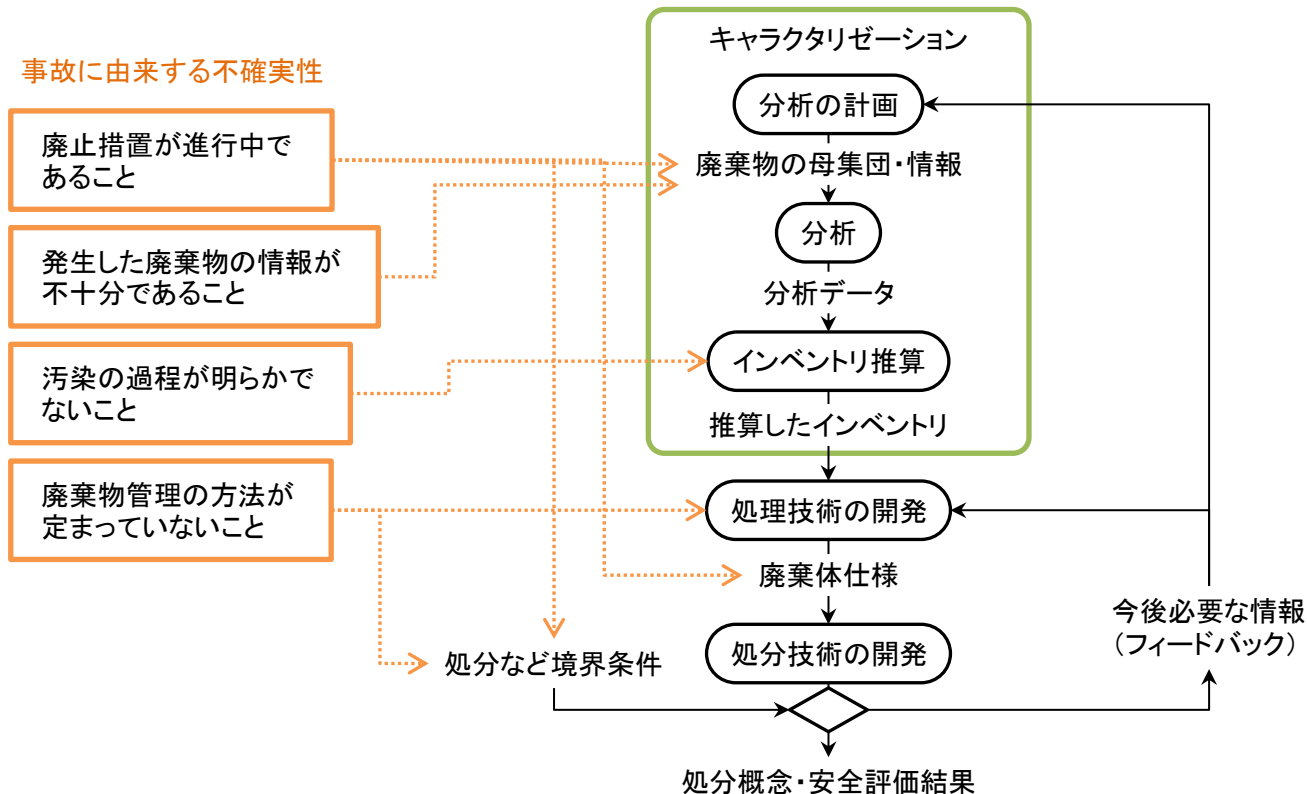


図1 廃棄物管理システムの検討における不確実性の影響

2.8 分析計画法の適用性向上 DQO プロセスとベイズ統計の適用

- 分析計画法は、既往の実績のある方法を基礎とし、1Fに特有な条件・事象に対する事例を検討している。
 - 米国 EPA により開発された DQO プロセス (Data Quality Objectives) ^{*1}は、廃棄物管理においても標準的な方法とされており(図1)、これを利用すべく取り組んでいる。
- 廃棄物の情報に関する不確実性を定量的に扱う(確率として)ため、ベイズ統計を援用した計算方法を活用する^{*2}。
 - t -分布のパラメータである μ 、 σ と ν (正規性パラメータ) の不確実性を計算する統計プログラムを利用する(図2)。
- 適用にあたっては、先行事例を有する英国 National Nuclear Laboratory (NNL) と協力し^{*3}、習熟の段階から 1F に関わる条件を踏まえた応用研究へと展開してきている。

Table of contents

List of abbreviations and acronyms.....	8
Executive summary.....	1
Chapter 1. Introduction, objectives and scope.....	16
1.1. Background.....	16
1.2. Objectives and scope of work.....	18
1.3. Mode of operation of the group and structure of this report.....	18
References.....	19
Chapter 2. Methodology features.....	20
2.1. Differences between conventional and unconventional/legacy waste.....	20
2.2. Toolboxes of common approaches.....	21
2.3. Data Quality Objectives process.....	23
2.4. Data Quality Assessment.....	25
2.5. MARSSIM, MARSAME and MARLAP.....	25
2.6. NEA Working Party on Decommissioning and Dismantling.....	27
2.7. Interaction with stakeholders.....	35
References.....	36
Chapter 3. Case Studies.....	38
3.1. France.....	38
3.2. Japan.....	51
3.3. Russia.....	71
3.4. Ukraine.....	80
3.4.1. Characterisation of legacy waste produced at Rivne Nuclear Power Plant.....	80

図1 OECD NEA による報告書の目次^{*1}

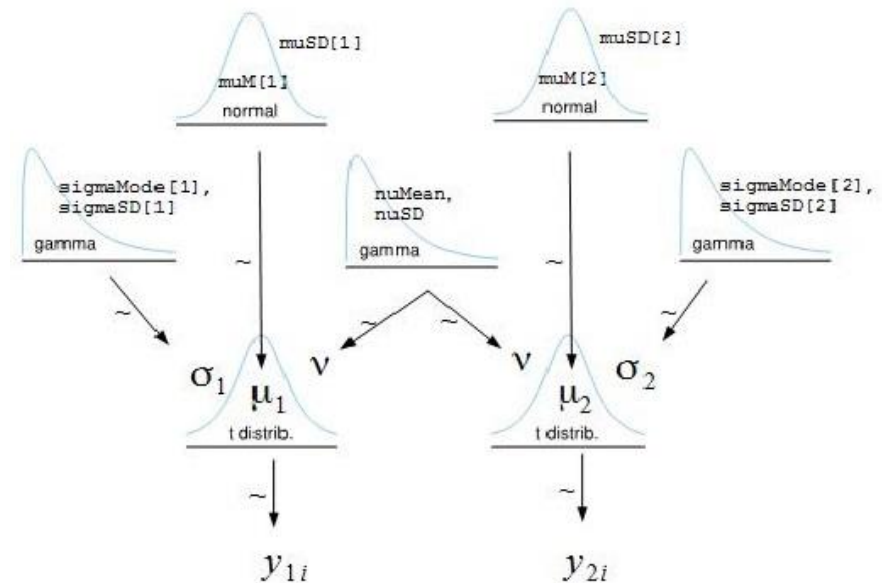


図2 Kruschke による分布を表すパラメータ (μ, σ, ν)^{*2}

^{*1} OECD Nuclear Energy Agency (NEA), "Characterisation Methodology for Unconventional and Legacy Waste," NEA/RWM/R(2020)2 (2021).

^{*2} JK Kruschke, "Bayesian estimation supersedes the t test," J. Exp. Psychol. Gen., 142(2), 573-603 (2013). doi: 10.1037/a0029146.

^{*3} Caroline Pyke et al., "Radioactive waste sampling for characterisation - A Bayesian upgrade," Nuclear Engineering and Technology, 54(1), 414-422 (2022).

2.8 分析計画法の適用性向上

分析の目的

- 分析を行う目的は廃棄物管理の進展とともに変化していく(図1)。それら目的に応じて分析計画法を試行し、適用の事例を積み重ねている。
- 以前の事業*1において、目的「放射能濃度分布・核種組成の推定」に関して焼却灰を対象として検討した経験を踏まえ、分析の目的を再度検討するとともに、分析にニーズに応えるよう分析計画法を継続して適用した。

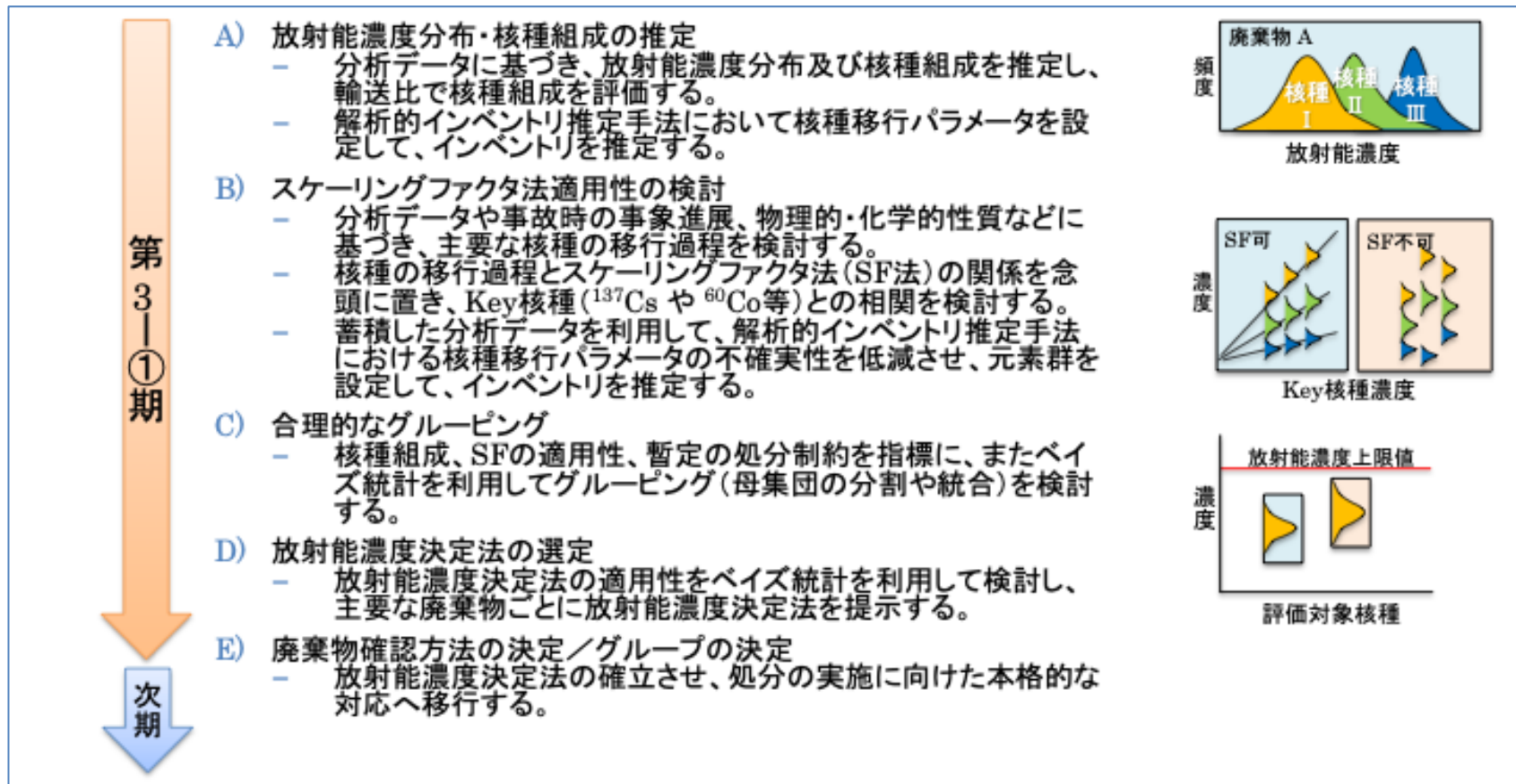


図1 中長期的な分析計画における分析の目的*1

*1 IRID, 令和3年度開始「廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」最終報告, 令和4年9月。

2.8 分析計画法の適用性向上

分析の目的

- 前ページに示した分析の目的を廃棄物管理技術の進展に合わせて以下の4つに整理することを検討した。(図1)
 - フィンガープリントの作成
 - 処分・クリアランスへの適合
 - 廃棄物分類(母集団)の設定
 - 放射能濃度決定方法の選定
- 検討を繰り返し不確実性が低減されると、必要な分析点数が少なくなっていく、最終的には、既存の分析データにより境界条件を満足することを確率論的に検証することとなる。

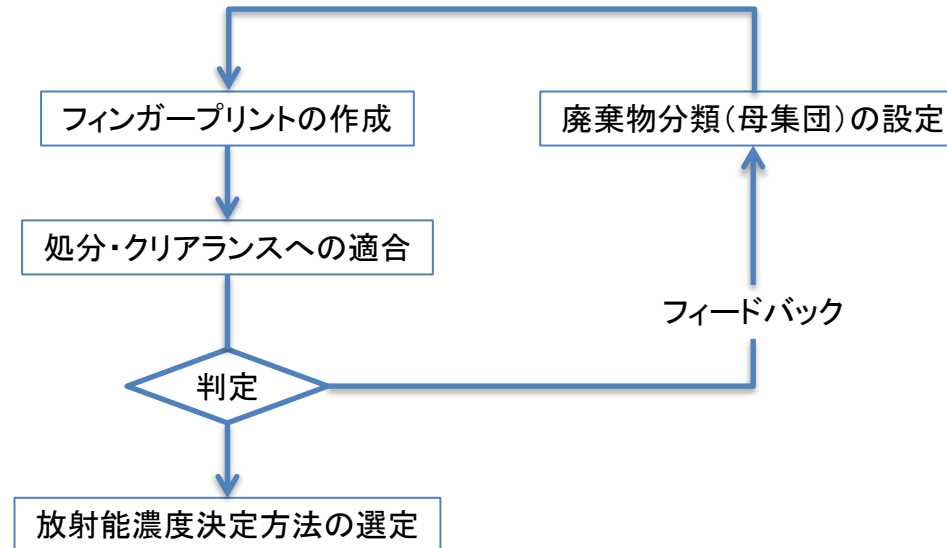


図1 廃棄物管理技術の開発において分析計画法を適用する局面

2.8 分析計画法の適用性向上 フィンガープリントの作成を目的とした計画

- 処分などの検討に提供するインベントリは、核種移行のモデルに移行割合を組み合わせて求める*¹。(図1)
 - 移行割合は、分析データを適用して対数正規分布のパラメータとして導出する。
 - 核種のインベントリは、統計パラメータ(95%ile、50%ile、幾何平均、最頻値(mode)など)として求められる。
- 英国は、核種のインベントリを統合的に管理し、データを公開している*²。(図2)
 - インベントリを表す「フィンガープリント」が開発され、IAEA技術文書*³をはじめ、国際的にもよく用いられている。
 - フィンガープリントは発生者、処分の事業者、規制当局などのステークホルダーにより参照、利用される。
- 本検討により得られたインベントリも関係者が共有すべき情報であり、その利用方法に関して、英国の事例を参照して検討する価値があると考えられる。

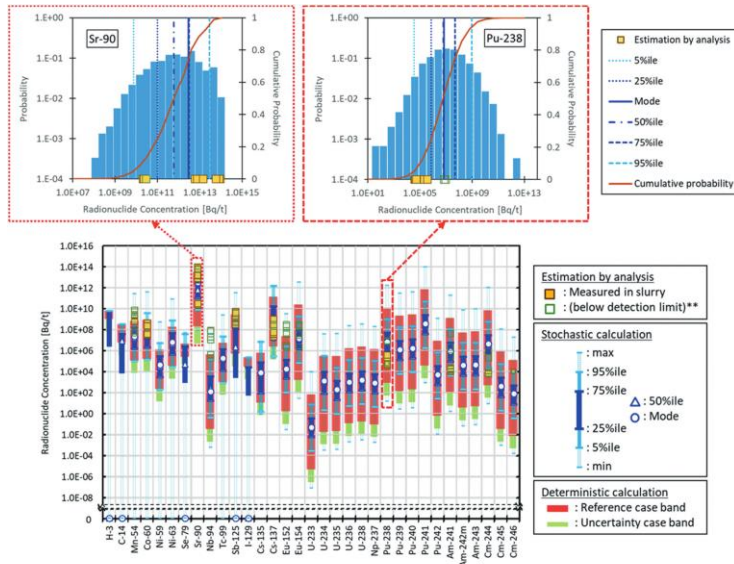


図1 解析的手法により導出するインベントリの例 *¹

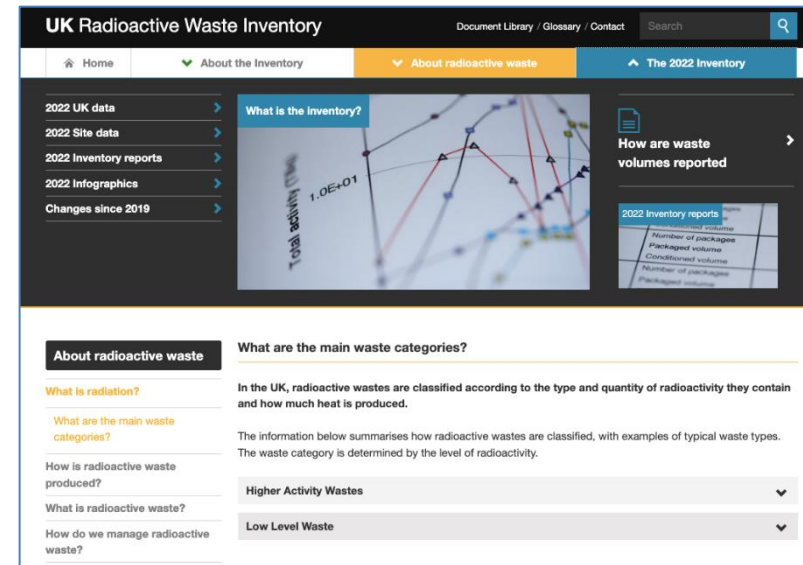


図2 英国のナショナルインベントリ(Web サイト)*²

*¹ D. Sugiyama et al., Journal of Nuclear Science and Technology, 58(4), 493–506 (2021).

*² NDA, “UK Radioactive Waste Inventory.” <https://ukinventory.nda.gov.uk/>

*³ IAEA, “Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization”, IAEA-TECDOC-1537 (2007)

2.8 分析計画法の適用性向上 フィンガープリントの作成を目的とした計画

- フィンガープリントは、処分側の受入れ基準を満たすことを念頭に廃棄物ごとに作成される(図1)。
 - 核種ごとに、平均放射能濃度、その不確かさ(Band)と濃度設定の方法(Code)が示される。(図2)
 - Bandsは、95%ile信頼区間での上側及び下側の最良の推定値として適用される。
 - Codeは、放射能濃度の実測値、推定値、廃棄物中に当該核種が存在する可能性等、8種類からなる。
- フィンガープリントを作成する際には、廃棄物の出所、モデリング、キャラクタリゼーション(非破壊検査、破壊サンプリング及び分析)等の情報を含めて評価が行われる。

WASTE STREAM 2F06/C Encapsulated Barium Carbonate Slurry/MEB Crud			
Nuclide	Mean radioactivity, TBq/m ³		Bands and Code
	Waste at La 2019	Future arisings	
H 3	6.59E-05	1.56E-04	BB 1
Be 10	2.71E-11	2.79E-11	BB 2
C 14	6.54E-02	3.78E-02	BB 1

Nuclide	Mean radioactivity, TBq/m ³			Bands and Code
	Waste at La 2019	Bands and Code	Future arisings	
H 3	6.59E-05	BB 1	1.56E-04	BB 1
Be 10	2.71E-11	BB 2	2.79E-11	BB 2
C 14	6.54E-02	BB 1	3.78E-02	BB 1

平均放射能濃度

Bands

Code

Bands (上側と下側)

- A 1.5 倍
- B 3 倍
- C 10 倍
- D 100 倍
- E 1000 倍

注: 平均放射能濃度の不確かさを表す係数

Code(濃度設定の方法)

- 1 測定した放射能濃度
- 2 推定した放射能濃度(最良の見積もり)
- 3 推定した放射能濃度(上限値)
- 4 存在しない
- 5 存在するが、重要ではない
- 6 存在する可能性が高いが、評価されていない
- 7 かなりの量が存在するが、定量されていない
- 8 有意な存在が予想されない

図1 フィンガープリントの例

図2 フィンガープリントにおける平均放射能濃度、Bands及びCodeの例

2.8 分析計画法の適用性向上

フィンガープリントの作成を目的とした計画

- フィンガープリントの作成は、核種の選定、濃度の評価、その不確実性の評価が主要な工程である。(図1)
- 分析計画法を適用するにあたっての具体的な手順を検討している。
 - 全 α 、全 β 、全 γ を基準として、合計に寄与する核種を網羅し(例えば $\geq 99\%$)、また、全体の放射能にかかわらず重要な核種を含め、放射能を評価する。
 - 分析によらない場合、放射平衡の計算、輸送比を用いた元素グループからの推定を行う。
 - 値の不確実性を分析、計算に応じて評価する。
- 更なる改善点として英 NNL から、対象廃棄物の状況の変化に対応するため、フィンガープリントを作成した後もフィンガープリントを更新する判断基準や頻度の明文化が重要であることが推奨されており、引き続き検討する。

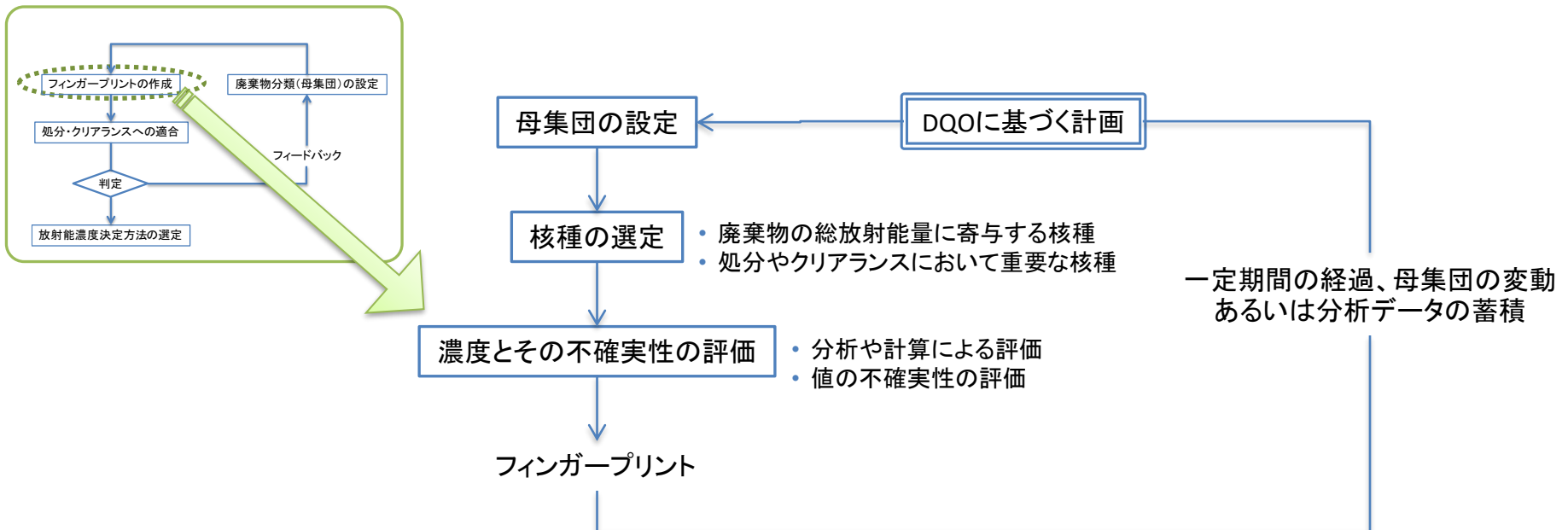


図1 フィンガープリントの作成に関する分析計画、その繰り返し

2.8 分析計画法の適用性向上 処分・クリアランスへの適合を目的とした計画

- 廃棄物の最終的な処置（処分、クリアランス）を決定する上で必要な分析点数を求める場合、処分やクリアランスの条件を指標として、それへの適合性を検討する。複数があるが、安全に係る指標を優先的に考える。（図1）
- 分析計画法を適用するにあたっての具体的な手順を検討している。
 - 処分概念に対応する基準に照らしてD/Cを求め、合計値ΣD/Cに寄与する核種を同定する。
- 更なる改善点として英 NNL から、個々の放射性核種の濃度分布を表す高密度区間(HDI)の範囲について、処分やクリアランスの条件と比較する上で、HDIの裕度を広めにとる検討も重要である(P. 148の試行では95%と設定した)と推奨されており、今後の試行で取り入れていく。

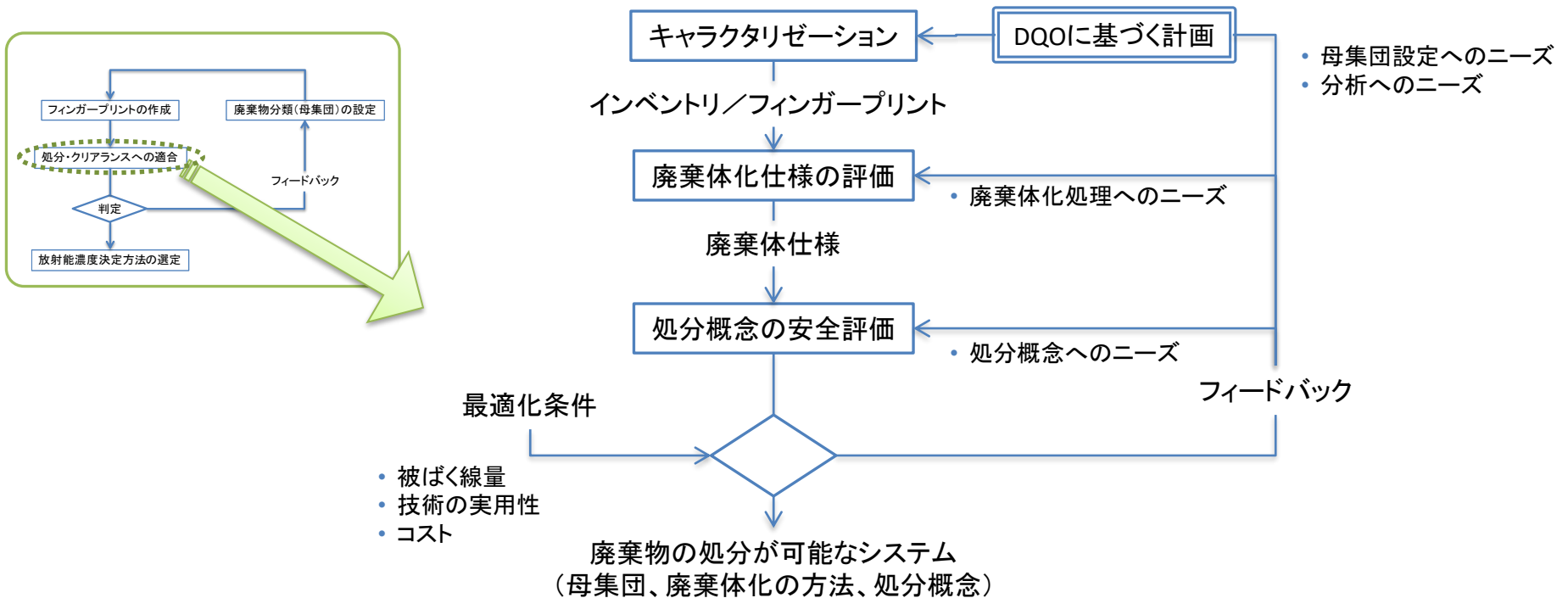


図1 処分・クリアランスへの適合に関する分析計画、その繰り返し

2.8 分析計画法の適用性向上 処分・クリアランスへの適合を目的とした計画

- 処分とクリアランスへの適合性は、複数の核種による寄与を総合して判断する。
- 処分に関しては、公衆被ばくが制約となり、所定の線量に相当する濃度を算出し、それらの寄与の合計が基準を下回るように計画する。(表1)
- クリアランスに関しては、濃度が定められているのでそれとの比 (D/C) の合計が指標となる。(表2)

表1 処分への適合を検討する際の要件の例
(中深度処分の廃棄物埋設地及び坑道の設計*1)

自然事象	「被ばくに至る経路」及び「人工バリア及び天然バリアの状態に係るパラメータの組み合わせ」について科学的に合理的と考えられる範囲で最も厳しい設定とした自然事象シナリオに基づき、評価される公衆の受ける線量が300マイクロシーベルト／年を超えないこと。
ボーリング	廃止措置の終了直後において廃棄物埋設地と地表との間に短絡経路が形成され、人工バリアと同等の機能を有する構築物で区画された廃棄物埋設地の区画内の放射性物質が漏えいすることを仮想した設定に基づき、評価される公衆の受ける線量が20ミリシーベルト／年を超えないこと。
放射能濃度制限	10万年が経過した後における廃棄物埋設地内の放射性廃棄物等と公衆との接触を仮想した設定に基づき、評価される公衆の受ける線量が20ミリシーベルト／年を超えないこと。

表2 クリアランスに係る放射能濃度の基準*2

放射性物質の種類	放射能濃度 (Bq/g)	放射性物質の種類	放射能濃度 (Bq/g)
³ H	100	¹⁰⁶ Ru	0.1
¹⁴ C	1	^{108m} Ag	0.1
³⁶ Cl	1	^{110m} Ag	0.1
⁴¹ Ca	100	¹²⁴ Sb	1
⁴⁶ Sc	0.1	^{123m} Te	1
⁵⁴ Mn	0.1	¹²⁹ I	0.01
⁵⁵ Fe	1000	¹³⁴ Cs	0.1
⁵⁹ Fe	1	¹³⁷ Cs	0.1
⁵⁸ Co	1	¹³³ Ba	0.1
⁶⁰ Co	0.1	¹⁵² Eu	0.1
⁵⁹ Ni	100	¹⁵⁴ Eu	0.1
⁶³ Ni	100	¹⁶⁰ Tb	1
⁶⁵ Zn	0.1	¹⁸² Ta	0.1
⁹⁰ Sr	1	²³⁹ Pu	0.1
⁹⁴ Nb	0.1	²⁴¹ Pu	10
⁹⁵ Nb	1	²⁴¹ Am	0.1
⁹⁹ Tc	1		

*1 原子力規制庁, “中深度処分に係る規制基準等における要求事項について,” 令和2年7月15日.

*2 “製錬事業者等における工場等において用いた資材その他の物に含まれる放射性物質の放射能濃度についての確認等に関する規則,” 平成十七年経済産業省令第百十二号.

2.8 分析計画法の適用性向上 廃棄物分類(母集団)の設定を目的とした計画

- 母集団の設定は、フィンガープリントの作成と処分・クリアランスへの適合においても必要な基本的な操作である。
- 母集団の設定においては次の操作が必要と考えられる。(図1)
 - 母集団の分割の仕方を検討する。
 - 分割した母集団の差異を定量化する。
 - 分割した母集団と基準値の関係を定量化する。
 - 2つの母集団の相互の関係、また、母集団と基準値の相対的な関係を議論する上で、統計論的方法を援用する。
- 更なる改善点として英 NNL から、分割した母集団の差異(すなわち母集団の分割)の統計論的な評価に有用な指標は、各母集団の平均値の差とその差のばらつきであると推奨されており、今後の試行で取り入れていく。

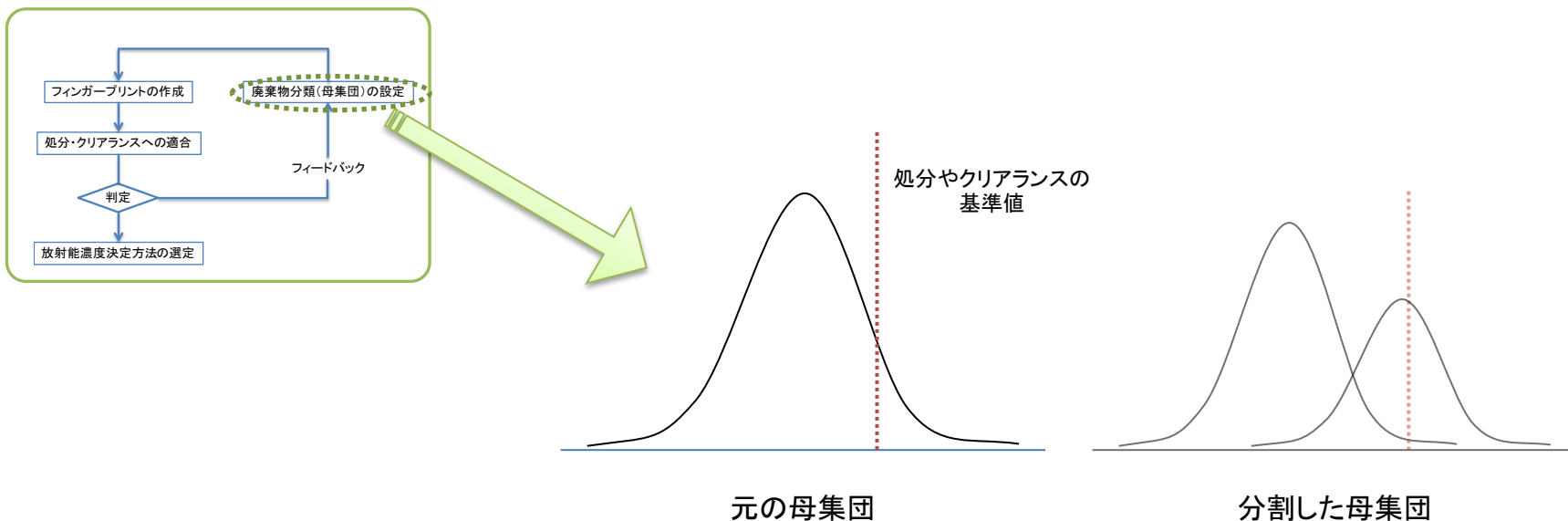


図1 母集団の分割と基準値との比較

2.8 分析計画法の適用性向上 放射能濃度決定方法の選定を目的とした計画

- 処分方策を決定する過程で、並行して放射能濃度決定方法を選定することが望まれる。
- 複数の候補のうち(図1)、非破壊外部測定法と理論計算法はそれぞれ次の制約が考えられる。
 - 非破壊外部測定法は、キー核種を定量する上で不可欠であるが、難測定核種の定量は難しい。
 - 理論計算法は、事故による核種の汚染過程が明らかとなっていないので適用が困難である。
- 難測定核種の濃度を決定する上でスケーリングファクタ法、平均放射能濃度法、原廃棄物分析法の適用性を定量的に判断できるよう備えるために検討を進めた。

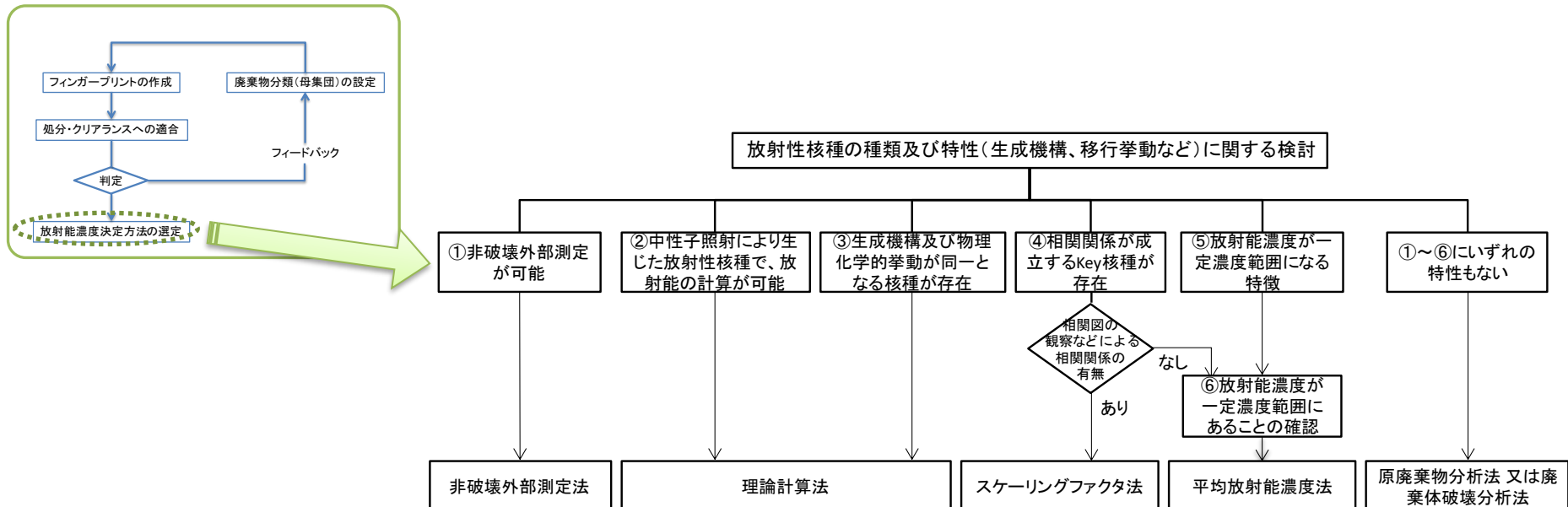


図1 放射能濃度決定方法の選定方法*1

*1 日本原子力学会, “ピット処分及びトレンチ処分対象廃棄物の放射能濃度決定に関する基本手順:2011,” AESJ-SC-F022:2011 (2012).

2.8 分析計画法の適用性向上

放射能濃度決定方法の選定を目的とした計画(スケーリングファクタ法)

- 放射能濃度決定方法のうち、スケーリングファクタ法はあらかじめ係数を定め、非破壊測定による測定値を用いて廃棄体の濃度を決定する。(定義1)
- 事故前の1Fの廃棄物にはスケーリングファクタ法を適用した例がある(図1)。種々の廃棄物に対して、事故の影響を考慮して検討する必要がある。
- スケーリングファクタの不確実性を評価する方法が参考となる*3。

$$D_{2\sigma} = e^{2\sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N [\ln(SF)_i - \ln(SF)]^2}{N-1}}}$$

- 2σ に相当する95.5%を条件とすると、 $D_{2\sigma} \leq 10$ を条件とする。

定義1 スケーリングファクタ法*1

評価対象を代表できる適切な個数の試料をサンプリングし、この放射化学分析などの測定結果によって廃棄体中の放射能濃度を間接的に決定する。難測定核種とKey核種との両者の放射能濃度間に原則として相関関係(スケーリングファクタ)が成立する場合に採用できる。

$$SF = \frac{A_{DTM}}{A_{Key}}$$

Key核種の放射能濃度は廃棄体中からの透過γ線を外部から計測することによって定量し、これと相関関係を利用して難測定核種の放射能濃度を決定する。

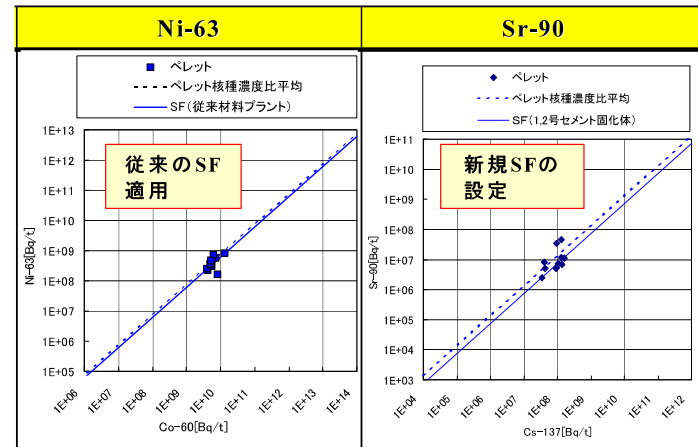


図1 1Fのペレット廃棄物のスケーリングファクタ*2

*1 日本原子力学会, “ピット処分及びブレンチ処分対象廃棄物の放射能濃度決定に関する基本手順:2011,” AESJ-SC-F022:2011 (2012).
 *2 原子力安全基盤機構, “ペレット・グラニュール固化体及びペレット固化体に係る廃棄確認方法について,” 改訂2, JNES-SS-0902 (2009).
 *3 International Atomic Energy Agency, “Determination and Use of Scaling Factors for Waste Characterization in Nuclear Power Plants,” NW-T-1.18, Annex A-2.4. Evaluation methodology (2009).

2.8 分析計画法の適用性向上

放射能濃度決定方法の選定を目的とした計画(平均放射能濃度法)

- 放射能濃度決定方法のうち、平均放射能濃度法は放射能濃度の算術平均が基準値が下回ることを示す方法である。(定義1)
- 廃棄体の放射能濃度が「埋設事業許可申請書に記載した最大放射能濃度を超えないこと」を示すために、統計論的な評価が必要である。(図1)
- 1Fのペレット廃棄物についてH-3、C-14、Tc-99について平均放射能濃度法が適用された例がある*2(図2)。種々の廃棄物に対して、事故の影響を考慮して検討する必要がある。

定義1 平均放射能濃度法*1

Key 核種の放射能濃度に依存せず、放射性核種の放射能濃度が一定の範囲にある場合に適用できる。この方法では廃棄体個々の放射能濃度を測定しないため、放射性核種の放射能濃度は規制の対象となる放射能濃度(埋設処分施設の最大放射能濃度など)に対して適切な裕度がある場合に適用できる。

平均放射能濃度: $C_{av} = \frac{\sum_{i=1}^n y_i}{n}$

C_{av} : 平均放射能濃度
 y_i : 放射性核種の放射能濃度
 n : 試料数

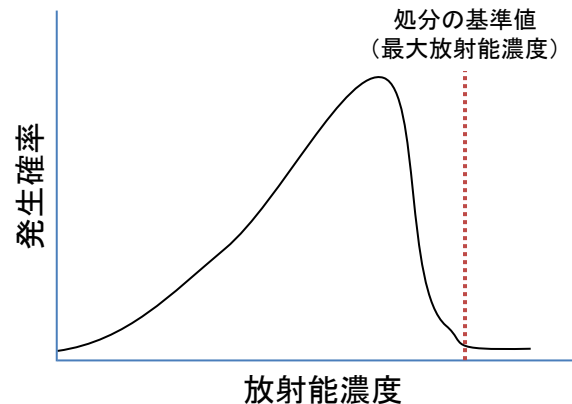


図1 廃棄体の放射能濃度と基準値との比較

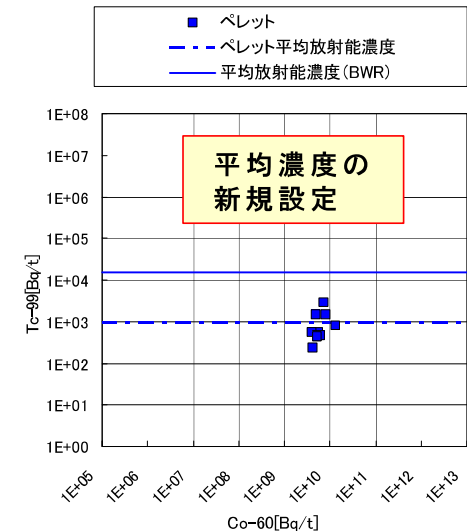


図2 1Fのペレット廃棄物の放射能濃度*2

*1 日本原子力学会, “ピット処分及びトレンチ処分対象廃棄物の放射能濃度決定に関する基本手順:2011,” AESJ-SC-F022:2011 (2012).

*2 原子力安全基盤機構, “ペレット・グラニュール固化体及びペレット固化体に係る廃棄確認方法について,” 改訂2, JNES-SS-0902 (2009).

2.8 分析計画法の適用性向上

放射能濃度決定方法の選定を目的とした計画(原廃棄物分析法)

- 放射能濃度決定方法のうち、原廃棄物分析法は原廃棄物をサンプリングして分析し、廃棄体の放射能濃度を決定する方法である。(定義1)
- 代表性のためサンプリング方法が重要であり、標準のサンプリング法^{*3}の適用を検討することとなる。(表1)
- 種々の廃棄物に対して、事故の影響を考慮して検討する必要がある。

定義1 原廃棄物分析法^{*1}

原廃棄物から試料をサンプリングし、当該試料のγ線スペクトロメトリ又は放射化学分析などの結果から廃棄体などの対象物の放射能濃度を決定する。このため、この方法を適用する廃棄体などの対象物からサンプリングする試料は、次のいずれかによって、その代表性を担保する。

- 対象物の均一性による担保
- 対象物の代表箇所を選定による担保
- 複数の試料又は箇所を選定による担保

表1 サンプリング方法の比較^{*2}

段 階		JIS K 0060 のサンプリング方法	焼却灰のサンプリング方法案
サンプリングする焼却灰を収納したドラム(一次サンプリング)の選定		例えば、ドラムが 51 本以上であれば 10 本をランダムに選定する。 ただし、同一ロットであることが必要である。	ドラム単位の同一ロットの説明が難しい場合には、全ドラムから採取する
ドラムからの試料(インクリメント)のサンプリング	採取方法	原則はランダムに 2 試料/容器。	ランダムに 2 試料/容器。
	採取量	最大粒径が大きいと採取量が多くなり、例えば、最大粒径が 50mm の場合は、1600ml/容器。 この制約は試料の適正な採取方法(スコップの大きさ)によるものである。	粒径を例えば 10mm 以下に制限することで、120ml/容器とする。 粒径の小さいもののみで良い理由は、放射能濃度が粒径に依存しないためである。
分析用試料の作製	試料の調製方法	サンプリングした試料を 5mm 以下に粉碎し、均一に混合する。	サンプリングした試料を 5mm 以下に粉碎し、均一に混合する。 例えば、5 本分単位(600ml)で粉碎して、これを繰り返し、分析に必要な量を当量ずつ採取して混合する。
	安全係数	特に規定なし。	ドラム内の放射能濃度のばらつきに応じて、分析結果に安全係数を乗じることとする。 今回の分析結果から、総放射能量の確認は 1.5 倍、最大放射能濃度の確認は 3.5 倍とすることが考えられた。

^{*1} 日本原子力学会, “ピット処分及びトレンチ処分対象廃棄物の放射能濃度決定に関する基本手順:2011,” AESJ-SC-F022:2011 (2012).

^{*2} 本山光志 ほか, “原子力発電所から発生する焼却灰に対する原廃棄物分析法の適用性について,” 2018年春の年会, 1L06 (2018).

^{*3} JIS K 0060 産業廃棄物のサンプリング方法(廃棄物から溶出試験を実施する試料のサンプリング方法).

2.8 分析計画法の適用性向上 英国の廃棄物管理事例

■ 概要

- 廃棄物からの統計論的な評価に基づく試料採取方法及び分析計画の開発に関する知見を得るため、先行事例を有する National Nuclear Laboratory (NNL) の Preston Laboratory、マグノックス社、LLWR社を訪問し、英国における廃棄物の特性評価、分別、受渡し、最終処分プロセス等の実務を視察した。
- 各機関から廃棄物管理における事業者と英国規制当局との関係、廃棄物の放射性核種組成(フィンガープリント)の作成及び運用方法に関する説明を受け、1F廃棄物の技術課題の解決に必要な知見を収集した。

■ NNL Preston Laboratory

- 1940年代から英国内の核燃料製造を行ってきた Springfields サイトにある(サイト管理はWestinghouse社) (図1)。
- 英国内外の原子力事業者からの依頼に基づき、核燃料製造の技術開発とその品質管理(ISO17025)、廃棄物中のウラン回収技術開発を実施している。
 - ✓ 核燃料製造に伴うILW及びLLWに含まれるウランを硝酸溶液として回収する。少量の残存物は放射性廃棄物として最終処分する。
- 現在、ドラム缶9,000本の放射性廃棄物を受け入れ、うち500本について処理方法を検討中である。
 - ✓ 廃油や固体廃棄物からのウラン抽出・精製の条件検討、実証プラントでの検証を実施している。
- コンクリートブロック廃棄物への汚染の浸透性の評価や、金属廃棄物の除染に硝酸と電気分解を用いた事例がある。
 - ✓ 1F廃棄物量低減の参考になると考えられる。金属廃棄物のクリアランスにあたり、廃棄物容器への再利用を検討したが実績はない。
- 分析とその計画法に関して、廃棄物として処分する場合、再利用する場合で分析の内容が異なる。1F廃棄物に応用する際は、その利用目的の明確化が重要である。
 - ✓ 例: 英国ではウラン濃縮度を重要な指標として(高濃縮ウランは90%超等)、濃縮度別にフィンガープリントを作成している。



図1 英 NNLの組織概要(囲み部:Preston Laboratory)

2.8 分析計画法の適用性向上 英国の廃棄物管理事例

■ マグノックス社 (Trawsfynydd nuclear power station)

- 英国で唯一、人口貯水池から冷却水を用いて運用していたマグノックス炉2基の廃止措置が進められている(図1)。
 - ✓ 1997年に核燃料が取り除かれ、英国のDecay & Delay戦略(遅延解体)に基づく長期管理を計画している。
 - ✓ 景観保護の理由から建屋の高さを低減する措置を実施し、2055年までに構造物の全解体を目標としている。
- 原子炉建屋、一部の地上冷却系構造物の解体で発生したコンクリート瓦礫は、燃料冷却系の撤去によって生じる地中の空隙を埋めるために使用する。これらのオンサイト処分の取り組みは、Trawsfynyddが初の事例である(図2)。
 - ✓ 建屋構造物を解体する前に、放射能の大部分を除染処理、コンクリート表面の削り取り等により除去する。
 - ✓ オンサイト処分は、将来的なリスクと公衆被ばく線量に関する GRR^{*1} の要件を実証し得る場合にのみ実施する。



図1 マグノックス炉の外観(左:解体前の遠景、中:解体前の近景、右:解体後の想像図)

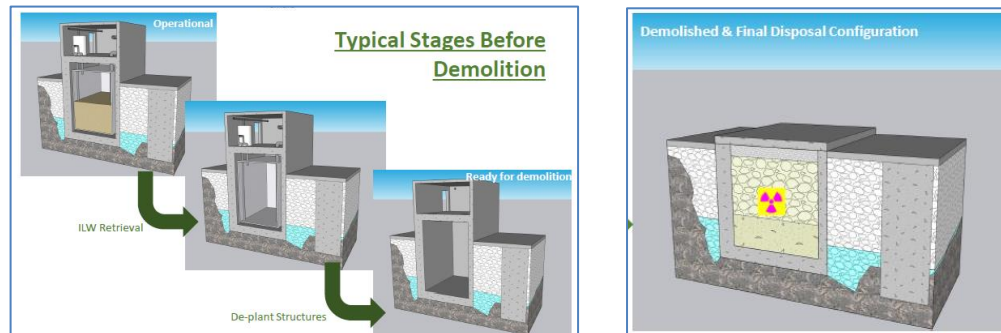


図2 マグノックス炉の解体イメージ(左上:ILWの撤去、左中:プラント構造物の撤去、左下:建屋解体準備の完了、右:オンサイト処分のイメージ)

*1 Scottish Environment Protection Agency, Environment Agency, Natural Resources Wales, "Management of radioactive waste from decommissioning of nuclear sites: Guidance on Requirements for Release from Radioactive Substances Regulation," July 2018. <https://www.sepa.org.uk/media/365893/2018-07-17-grr-publication-v1-0.pdf>.

2.8 分析計画法の適用性向上 英国の廃棄物管理事例

■ マグノックス社 (Trawsfynydd nuclear power station) つづき

- 中レベル放射性廃棄物は、海洋投棄が禁止された1941年から保管している。サイト内でグラウト固化を行っている。
- 低レベル放射性廃棄物は、Vault(壕)で保管している。関連する作業は遠隔操作で行っている(図1)。
- 立地地域の理解により、低レベル廃棄物のオンサイト処分が可能となった。廃棄物のモニタリングでは、種類ごとにフィンガープリントを使用している。
 - ✓ 廃棄物の種類ごとに、固有のフィンガープリントを設定している。フィンガープリントには、材質、放射能量、化学的特性等の情報が含まれる。(例えば、原子炉建屋の解体前に、異なる4エリアから採取したバルクサンプルをもとに、4種類の固有のフィンガープリントを設定した。)
 - ✓ フィンガープリントは3年ごとに見直している(所定の期間である5年よりも短い)。その際、固有のコードを付与する廃棄物の統合あるいは分割を検討している。
 - ✓ Key核種として Co-60 及び Cs-137 を選定している。廃棄体の非破壊測定によりKey核種を定量し、フィンガープリントを用いて放射能インベントリを導出している(図2)。
- 搬出先であるLLWRは、約1000年後に海岸浸食に伴い敷地が海中に沈む。LLWRは、敷地に搬入する廃棄物に関し、フィンガープリントをはじめ性状に関する情報を必要としている。

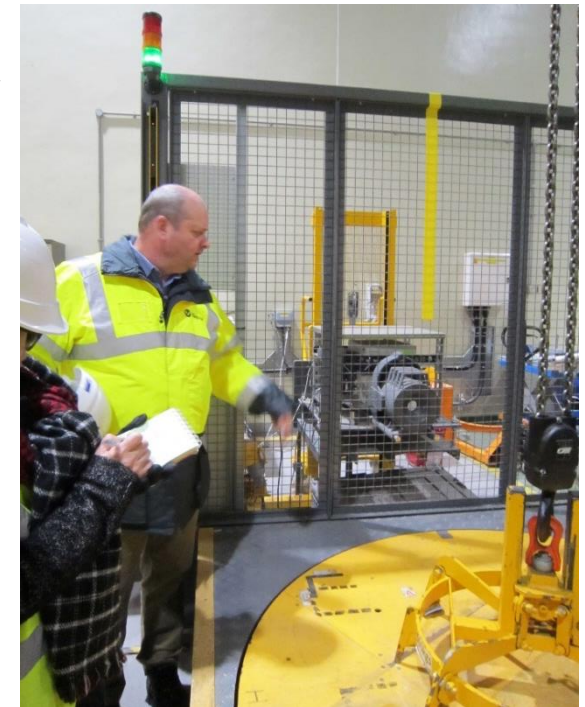
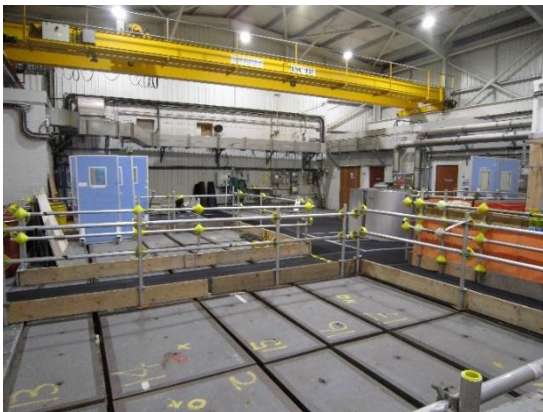


図1 低レベル放射性廃棄物の保管状況(左: Vaultの例、右: 遠隔操作の例)

図2 非破壊測定装置(奥: 検出器、手前: 揚重装置)

2.8 分析計画法の適用性向上 英国の廃棄物管理事例

■ LLWR社

- 英国において LLWR は唯一の低レベル廃棄物 (LLW) 処分場である(図1)。
- 英国では4,447,000 m³ の放射性廃棄物が発生している。LLW 及び極低レベル廃棄物 (VLLW) が94~95%を占めている。
 - ✓ 受入れ可能な廃棄物量はごく限られている。処分する廃棄物量を最小化するため、発生事業者との契約に基づき、統一的なサービスを提供している。
 - ✓ 通常の運転、廃止措置による廃棄物の他、事故由来の廃棄物も受け入れる。
- 発生事業者は、廃棄物にフィンガープリントを添えてLLWRに搬入する。
 - ✓ 廃棄物の所有権はLLWRに移行する。申告内容と実態が異なる場合、LLWRは廃棄物を発生事業者に戻す権利を有する。
- LLWRは廃棄物の処分量を低減するため、発生自体の回避、減量、再使用、リサイクルを推進している。
 - ✓ 取扱い実績 (2009年) 処分: 約95%、転用: 約5% (2021年) 処分: 約2%、転用: 約98%
 - ✓ LLWRは、必要に応じて廃棄物のフィンガープリントを再設定する。
- LLWRでは通常、廃棄物を圧縮、焼却等で処理しコンテナに収納している。グラウト材を充填した後、コンクリート保管庫 (Vault) で処分する(図2、図3)。
 - ✓ グラウト材には、石炭燃焼灰の粉砕物とポルトランドセメントの混合物を使用している。
 - ✓ 最終的には、保護層 (Final Engineered Cap) を保管庫の上に構築し、廃棄物と環境を長期的に隔離する。
- LLWRで処分する廃棄物の情報は、LLWRに関係する各サービスカンパニーが責任箇所を更新している。LLWRはそれらを集約し、知識マネジメントシステムを管理している。



図1 LLWRの外観



図2 グラウト材充填後のコンテナ断面

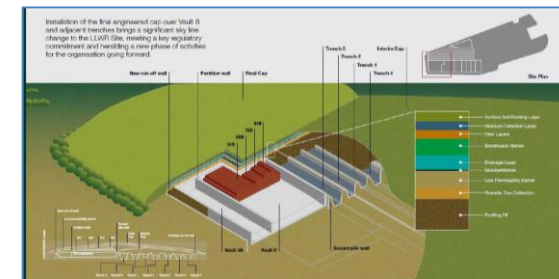


図3 LLWRにおけるLLW及びVLLWの処分(左:コンテナの外観、右:保護層構築の概念図)

2.8 分析計画法の適用性向上 英国の廃棄物管理事例

■ LLWR社 つづき

- LLWRでは当初、マグノックス社 (Winfrith サイト) のスラッジを収納した500Lドラム缶 (TRSDラム缶) 1068本を、中レベル廃棄物 (ILW) として保管していた (図1)。
- LLWRの環境安全ケースが2011年に見直され、廃棄物受入れ基準 (Waste Acceptance Criteria; WAC) も更新された。
 - ✓ 更新されたWACでは、処分場の海岸浸食による廃棄物の露出に対する対応が反映された。
 - ✓ 環境安全ケースは10年周期で更新される。英国規制当局の承認を得ることで操業の継続が可能となる。
 - ✓ 次の更新は2021年に行う計画であったが、更新に伴う作業量の多さから、規制当局が5年間の延長を承認した。次の更新は2026年の予定である。
- LLWRは更新されたWACによるTRSDラム缶の管理に対応した技術 (Best Available Techniques : BAT) を開発し、収納物の履歴、特性評価等に関する情報の管理方法、WACを満たすことの判断方法等を定めた。
 - ✓ この結果、TRSDラム缶の多くはLLWとして処分可能であると判断し、敷地内のVaultに処分した。ILWの保管量削減を達成した。
 - ✓ 英国では、既発生廃棄物の処分ルートに適用するWACが全て確立している。
 - ✓ 各事業者は廃棄物の取扱い当初から、適用されるWACに基づいて対応することができる。
 - ✓ TRSDラム缶の管理に対応したBATの詳細は明らかにされていない。

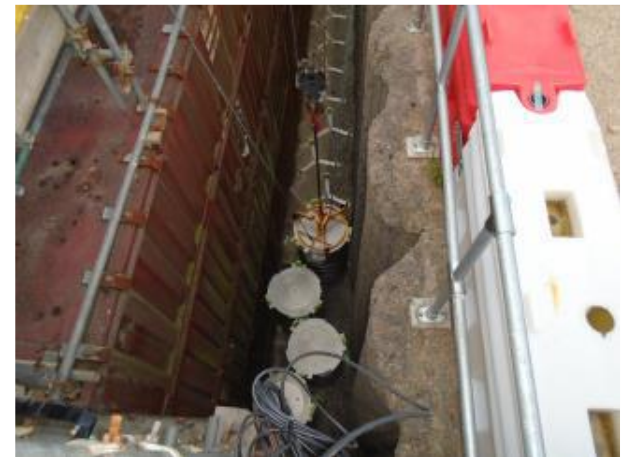


図1 TRSDラム缶取扱いの例

2.8 分析計画法の適用性向上 英国の廃棄物管理事例

- 1F廃棄物の分析計画に反映すべき点
 - 英国で確定している処分ルートに基づくWAC、BAT及び特性評価を構成する要素(図1)等の事例を参考に、1F廃棄物の特性評価で求められる分析の目的を整理し、それぞれに適した分析計画法を構築する必要がある。その際、英国のコンテキストに沿った処分を契約制度として定式化するためにLLWR(処分側)、ステークホルダー(規制側、発生側等)との間で課題としたこと、特に放射性核種濃度の評価方法を議論した過程が重要である。
 - それらの考え方をベースに、日本の法令、基準、処分検討等の知見、東京電力による1F廃棄物の保管管理の方針等を取り入れることで、日本のコンテキスト(暫定クライテリアの設定を含む)に沿った分析計画を立案する方法の開発に役立てられるものとする。

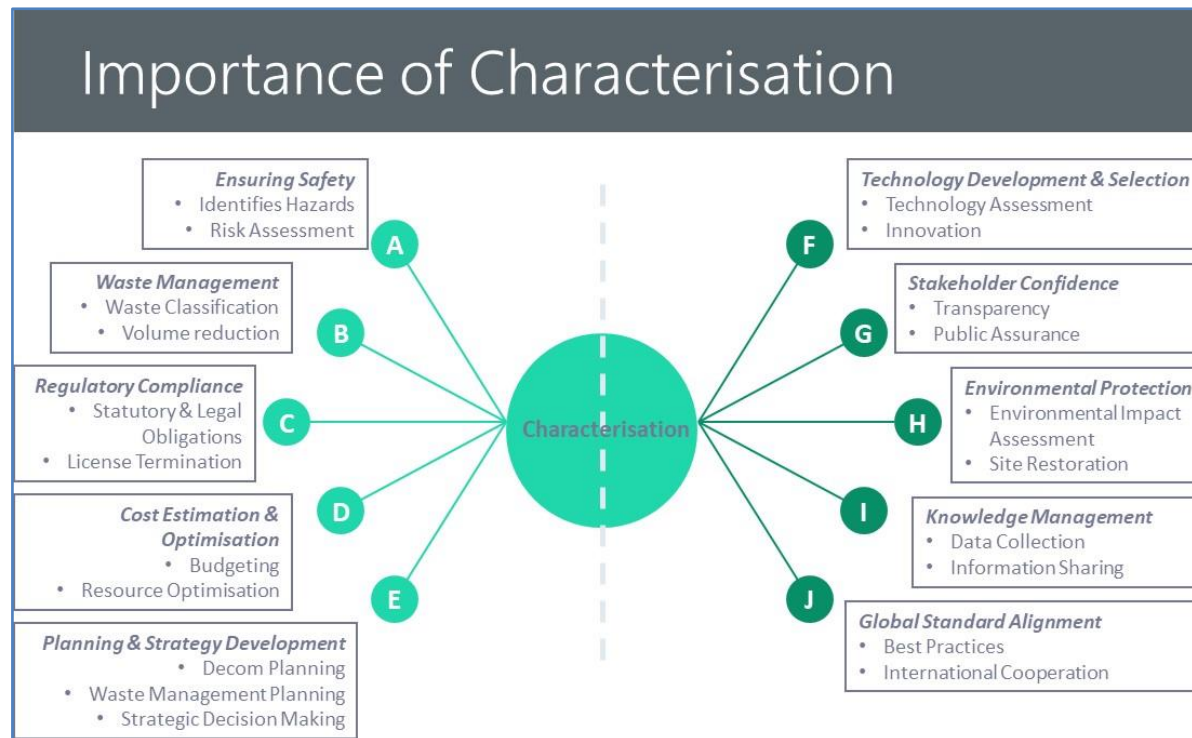


図1 廃棄物の特性評価を構成する要素

2.8 分析計画法の適用性向上

事例研究 1(焼却灰のフィンガープリント)

- 焼却灰の試料を対象として DQOプロセスの所定の段階(7 つの Step)を検討した。

Step 1	課題の明確化
Step 2	検討すべき項目とそのゴールの設定
Step 3	入力するデータの種類やその情報源の特定
Step 4	分析計画を作成する範囲の特定
Step 5	課題に対する入力データの適合性の評価
Step 6	ベイズ推定法を用いた検出確率の計算
Step 7	分析計画の作成

- 課題の明確化(DQO Step 1)

- 廃棄物の処分を最終的な目的に置き、廃棄物に含まれる放射性核種の組成と、その最大放射能の評価に着目して、『1Fで発生した焼却灰に含まれる放射性核種の網羅的な組成(フィンガープリント)を決定するための分析計画を立案する』こととした。

- 検討すべき項目とそのゴールの特定(DQO Step 2)、
入力するデータの種類やその情報源の特定(DQO Step 3)

- 焼却灰のフィンガープリントを決定するために検討すべき事項とその情報源を以下の5点に整理した。

- ① 焼却灰の発生、試料採取に関する情報
 - 焼却設備に関する公開情報、東電提供情報
- ② 評価対象核種の選定方法
 - 日本での38核種選定の実績、英国の知見
- ③ 効果的なフィンガープリントを決定するための母集団の考え方
 - 英国の知見、①の情報によるグループ分け
- ④ 採取済み試料の活用方法
 - 既存情報の他、未確認事項の収集、整理
- ⑤ 分析試料数を統計的に求める計算方法
 - 過年度に検討した計算方法の応用、英国の知見

- 分析計画を作成する範囲の特定(DQO Step 4)

- 焼却対象物、焼却処理設備、発生時期、保管管理方法の違い等に着目し、分析計画を作成する範囲の観点以下に3点に整理した。
 - ・ 評価対象核種
 - ・ 母集団
 - ・ 焼却灰の発生時期

DQO Step 2～4の検討に対するNNLによるコメントと対応

- 検討すべき項目とそのゴールの設定(DQO Step 2)～分析計画を作成する範囲の特定(DQO Step 4)へ下記を取り入れるよう検討した。
 - 焼却灰の放射エネルギーのプロファイル(全 α 、全 β/γ 、総放射能に寄与する主要な放射性核種)
 - プロファイルの一貫性の有無
 - プロファイルが一貫性を有さない場合、その境界値の特定
 - 所定の施設での処分を可能にするための十分な特性評価
 - 評価対象核種の選定、不確実性の許容範囲の処分側セーフティーケースへの適合

2.8 分析計画法の適用性向上

事例研究 1(焼却灰のフィンガープリント)

■ DQO Step 2 から Step 4 の進め方(NNLコメントを踏まえた見直し)

- NNLコメントは、放射エネルギーのプロファイルに関する内容、処分クライテリアへの適合に関する内容に大別される。
- 放射エネルギーのプロファイル
 - プロファイルは、フィンガープリント(全 α 、全 β/γ 、総放射能に寄与する主要な放射性核種を含む)を指し、その確立が必要である。
 - フィンガープリントを確立する条件：核種ごとの絶対値、不確かさの範囲を明らかにする(インベントリ推算と同等の情報を含む)
 - フィンガープリントを確立するアプローチ：
 - ✓ 核種ごとの絶対値、不確かさの範囲に影響する因子を抽出する。
(例：焼却対象物、焼却処理設備(既設及び増設設備)、運転キャンペーンの組み方(投入物、線量率の管理等)、保管方法(容器の体積)等)
 - ✓ 影響する因子をもとに、フィンガープリントの一貫性が期待される集団を特定する。
 - この集団が焼却灰の母集団の決定に繋がる。
 - 放射性核種濃度の比較だけではなく、CsIに対する輸送比等を含めて評価する。
 - 一貫性の境界値となり得る要素を、運転データ等をもとに検討する。
(例：保管容器の表面線量率に対する核種濃度、あるいはCsIに対する輸送比の頻度分布から境界値を特定する等)
 - ✓ 母集団の候補を抽出する観点で、影響する因子や運転データ等を整理する。
 - 運転データ等とは、可燃物コンテナや焼却灰ドラム缶の内容物区分、表面線量率、放射エネルギー等を想定する。
 - 取得済み分析試料の情報を加味して母集団を決定する。
(焼却灰の分析実績は5試料、未分析試料数は29試料(既設27試料、増設2試料)である。)
- 暫定の処分クライテリアの設定
 - 暫定の処分クライテリアの設定が必要であり、過年度の事業における検討内容等をもとに暫定の処分クライテリアを設定し、フィンガープリントを確立する分析計画の立案を試行する。
 - 放射能濃度の絶対値や不確かさの範囲等、影響が大きい核種を特定する。
 - 試行を通じて、処分からのフィードバックを受ける方法の確立に繋げていく。

2.8 分析計画法の適用性向上

事例研究 1(焼却灰のフィンガープリント)

- 分析計画を作成する範囲の特定(DQO Step 4、NNLコメントを踏まえて見直した結果)
 - 焼却灰におけるフィンガープリントの一貫性が期待される集団(母集団)の特定に向け、母集団を分割する観点、関連するパラメータ、検討に必要な情報を整理した。(下表)
 - 原子力機構とステークホルダーの一員である東京電力とともに母集団の決定について検討した。
 - 母集団の分割に関わる重要な観点として、以下の3点を候補とした。候補を選択する際は、分析計画の立案におけるサンプリングの実現性を考慮した。
 - A) 原廃棄物の違い(No. 2)
 - B) 焼却灰の種類(混合割合)の違い(No. 5)
 - C) 保管容器の表面線量率、放射エネルギーの違い(No. 8、9)

No.	分割する観点	関係するパラメータ
1	分割なし	—
2	原廃棄物(既設:保護衣等)(増設:伐採木・瓦礫類)	<ul style="list-style-type: none"> • 放射性核種による汚染状態 • 化学成分
3	焼却設備(既設または増設)	<ul style="list-style-type: none"> • 原廃棄物(No. 2)と関連性大
4	焼却処理の時期(原廃棄物の切り替え)	<ul style="list-style-type: none"> • 原廃棄物(No. 2)と関連性大
5	焼却灰の種類(主灰または飛灰)	<ul style="list-style-type: none"> • 主灰、飛灰の混合割合 • Cs-137濃度、核種組成
6	保管容器の種類(ドラム缶または角型容器)	<ul style="list-style-type: none"> • 母集団の構成単位
7	保管容器ごとの焼却灰量(ドラム缶への投入重量)	<ul style="list-style-type: none"> • 採取の母集団
8	保管容器の表面線量率	<ul style="list-style-type: none"> • 処分方法の想定
9	保管容器の放射エネルギー	<ul style="list-style-type: none"> • 処分方法の想定
10	焼却後の保管方法(保管施設)	<ul style="list-style-type: none"> • 表面線量率による仕分け • 廃棄体化時の移動、処理の方針

2.8 分析計画法の適用性向上

事例研究 1(焼却灰のフィンガープリント)

■ 分析計画を作成する範囲の特定(DQO Step 4)(続き)

➤ 原廃棄物の違い(No. 2)

既設設備

- 原廃棄物はビニール袋に詰められている。1袋ごと焼却炉へ投入される。
- 焼却する保護衣は、主に屋外作業で発生したタイベックであり、発生場所の区別はない。保護衣のうち重汚染エリアから発生したものは、焼却せずコンテナで保管している。

増設設備

- ピット内の原廃棄物は種類に関係なくランダムに取出され、連続的に焼却される。焼却灰は、連続的にコンテナに排出される。
- 焼却灰と原廃棄物のトレーサビリティを得ることは困難であり、観点として採用できない。

本検討への反映

- 原廃棄物の違いによる母集団の分割は行わない。
- 焼却処理における原廃棄物の投入順序に関して、運転方法を決定する考え方の詳細を把握する必要がある。

➤ 焼却設備の違いに伴う焼却灰の種類(混合割合)の違い(No. 5)

- 既設設備 : 主灰、飛灰は、混合した状態で保管容器に充填される。
- 増設設備 : 主灰、飛灰は、それぞれ別の保管容器に充填される。
- 焼却灰の種類(主灰、飛灰、それらの混合物)は、保管容器の表面線量率や放射エネルギーとの関連性が高い。
- 焼却灰の種類による分割は、現実的に可能である。

本検討への反映

- 母集団を設備(既設または増設)の違い、すなわち主灰、飛灰、それらの混合物の3種類で分割する。

2.8 分析計画法の適用性向上

事例研究 1(焼却灰のフィンガープリント)

- 分析計画を作成する範囲の特定(DQO Step 4)(続き)
- 保管容器の表面線量率、放射エネルギーの違い(No. 8、9)
 - 保管容器中の放射能インベントリに着目した取扱いは、1Fでの焼却灰の管理の方針とも整合する。
 - 焼却灰の核種組成比が重要である。
 - ✓ 焼却灰の核種組成(フィンガープリント)は重要であり、母集団を「焼却灰の種類」と「表面線量率・放射能」に分ける視点を検討し、それぞれの核種組成(フィンガープリント)とその不確実性を評価する。
 - ✓ 将来的には、スケーリングファクタ法を適用できるか否かで廃棄物集団を分類する。その際、特徴的な汚染を見逃してはならない。
 - 保管容器ごとの表面線量率や放射能の実測データは、東京電力の保管記録から入手可能である。

本検討への反映

- 表面線量率及び放射エネルギーに着目し、母集団の分割を試行する。
- 課題に対する入力データの適合性の評価(DQO Step 5)
 - 課題の明確化(DQO Step 1)で設定した課題(1F焼却灰に含まれる放射性核種のフィンガープリントを決定するための分析計画を立案する。)に対し、検討すべき項目とそのゴールの特定(DQO Step 2)、入力するデータの種類やその情報源の特定(DQO Step 3)、分析計画を作成する範囲の特定(DQO Step 4)の検討で得た内容による解決可能性を検討した。
 - その結果、既存の入力データ(焼却処理設備の運転情報、分析データ等)のみでは、DQO Step 4で議論した母集団に対応した分析計画の立案は困難であると判断した。
 - これを受け、DQO Step 6においてベイズ推定法を用いた検出確率の計算を行うこととした。

2.8 分析計画法の適用性向上 事例研究 1(焼却灰のフィンガープリント)

■ ベイズ推定法を用いた検出確率の計算 (DQO Step 6)

➤ 計算の進め方

- 焼却灰に含まれる放射性核種のフィンガープリントを決定するための分析計画を立案するため、ベイズ推定法を用いた計算を以下の内容で試行した。
 - ✓ DQO Step 4 で議論した焼却灰の母集団を分割する観点のうち、試行として、焼却設備(既設設備、増設設備)別にフィンガープリントを決定するための分析点数を評価した。
- これまでに、既設設備から発生した試料5点分の分析データを取得しているが、過去に発生した焼却灰、今後発生する焼却灰のフィンガープリントを決定するには分析データが不足している。
- 現在、計49試料(既設設備から27試料、増設設備から22試料)が採取済みである。これら49試料と追加のサンプリングによって得られる試料を含め、フィンガープリントを決定するために必要な分析点数を評価した。

➤ 焼却灰の発生量と母集団のサンプル数

- 「福島第一原子力発電所固体廃棄物の保管管理計画」^{*1}に2028年度末までの焼却灰の発生量が示されている(表1)。毎月の保管容器(既設設備:200Lドラム缶、増設設備:1m³コンテナ)の発生数を一定と仮定し、これらを母集団として、その平均放射能濃度及びバラつきの評価が可能な分析点数の算出に用いた。

表1 廃棄物の焼却・減容速度の算出^{*1}

減容設備名称	竣工時期 (X)	運用期間 (A)	減容対象物	廃棄物発生量 (Y)	想定処理速度 (m ³ /月)(Z)	処理期間 (B)
雑固体廃棄物 焼却設備	運用中	64ヶ月 ^{*1}	使用済 保護衣等	約 7.7 万 m ³	約 0.19 万	約 41ヶ月
増設雑固体廃棄物 焼却設備	運用中	69ヶ月 ^{*2}	伐採木	約 12.2 万 m ³	約 0.53 万	約 57ヶ月
			雑可燃物	約 12.9 万 m ³	約 0.40 万	
減容処理設備	2024年2月	61ヶ月	金属	約 5.5 万 m ³	約 0.11 万 ~0.22 万	約 39ヶ月 ~41ヶ月
			コンクリート アスファルト	約 3.4 万 m ³	約 0.06 万 ~0.12 万	

毎月の保管容器の発生数は各設備における母集団のサンプル数とした。^{*2}

既設設備: $77,000 [m^3] \times \text{減容率} 0.1 / \text{充填率} 0.8 / 0.2 [m^3/\text{本}] / 41 [月] = 1,174 [本/月]$

増設設備: $((122,000[m^3] + 129,000[m^3]) / (1 m^3/\text{基}) \times \text{減容率} 0.1 / \text{充填率} 0.8) / 57 [月] = 550 [基/月]$

^{*1} 東京電力HD株式会社, “福島第一原子力発電所固体廃棄物の保管管理計画,” 2023年11月版, (2023).

^{*2} 焼却による減容率を 10%、容器当たりの充填率を 80% にそれぞれ設定した。

2.8 分析計画法の適用性向上 事例研究 1(焼却灰のフィンガープリント)

■ ベイズ推定法を用いた検出確率の計算 (DQO Step 6) (続き)

➤ 計算の実施

- 英国の実用例^{*1}に倣い、焼却灰のフィンガープリントとして、母集団の平均放射能濃度及びその不確かさ (Bands) を明らかにする。実用例では、Bandsの分類として5種類が示されている (P. 126、図2)。
- 本検討では、この分類をもとに5種類のBandsを計算条件として設定し、それぞれの条件を満たすことの確認に必要な分析点数を計算した。
- ベイズ推定法を用いた計算にはR、Rstudio、JAGS、BESTパッケージを使用した。

① 母集団におけるCs-137放射能濃度分布の仮定

- 過年度の検討で、焼却灰サンプリング時 (1 試料あたり 100 g) のCs-137放射能濃度の分布を $4.67 \times 10^1 \sim 1.09 \times 10^5$ [Bq/100 g] と評価した。この結果をCs-137放射能濃度の仮定に用い、その平均放射能濃度 (幾何平均) で 3.35 [Bq/100 g] とした。同じく、標準偏差を ± 1.68 とした。

② Cs-137放射能濃度の確率密度分布の作成

- 設定した母集団におけるCs-137平均放射能濃度とその標準偏差から、マルコフ連鎖モンテカルロ (mcmc) 法を用いた計算により、Cs-137放射能濃度の確率密度分布 (事前分布) を作成した (図1)。

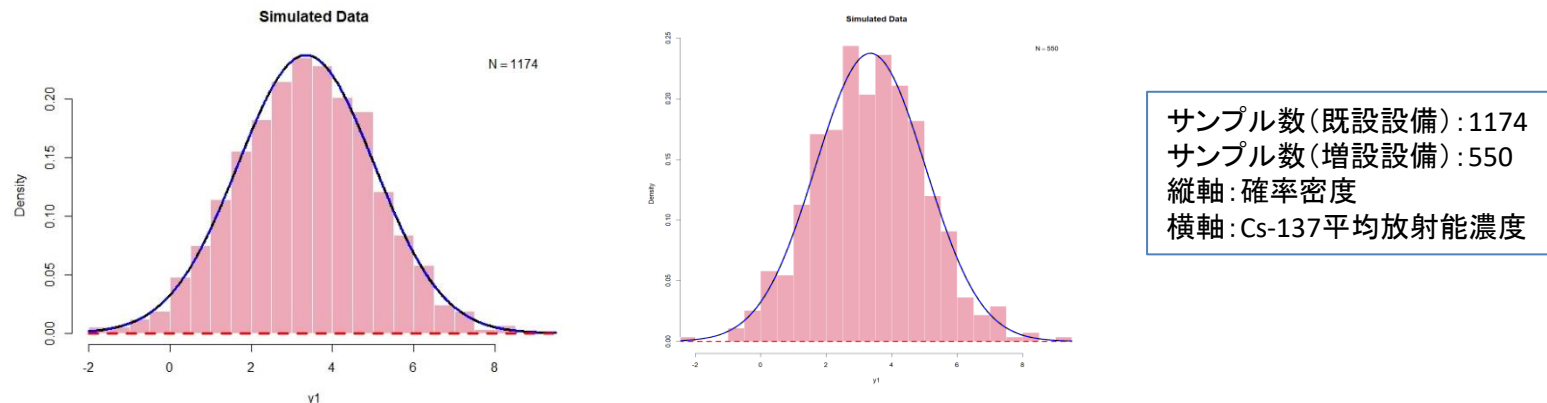


図1 計算によるCs-137放射能濃度の確率密度分布 (左: 既設設備、右: 増設設備)

*1 NDA, Solid Radioactive Waste Characterisation Good Practice Guide (2022).

2.8 分析計画法の適用性向上 事例研究 1(焼却灰のフィンガープリント)

■ ベイズ推定法を用いた検出確率の計算 (DQO Step 6) (続き)

➤ 計算の実施(続き)

③ Cs-137放射能濃度の標準偏差の確率密度分布

- Cs-137放射能濃度の確率密度分布(事前分布)を求めた母集団について、そこから任意の数の試料を採取し分析した場合の、事後の標準偏差の確率密度分布(事後分布)を計算により求めた。
 - 事後分布として得た標準偏差から、その95%高密度区間(HDI)と、任意に設定した標準偏差の不確かさの範囲(ROPEsd)を比較し、95%HDIが基準としたROPEsdの範囲内にある確率を計算した(図1)。
 - 本検討では、実用例による5種類のBandsをもとに、それらをCs-137放射能濃度の幾何平均における標準偏差に変換して用いた(表1)。
- ⇒ 母集団の平均放射能濃度とその不確かさの推定に、どれだけの試料数が必要かが評価できる。

表1 実用例によるBandsの変換と不確かさ(ROPEsd)として用いる範囲

実用例の Bands	幾何平均における標準偏差	比較に用いる不確かさの範囲(ROPEsd)
1.5	± 0.176	0~0.176
3	± 0.477	0.176~0.477
10	± 1	0.477~1.00
100	± 2	1.00~2.00
1000	± 3	2.00~3.00

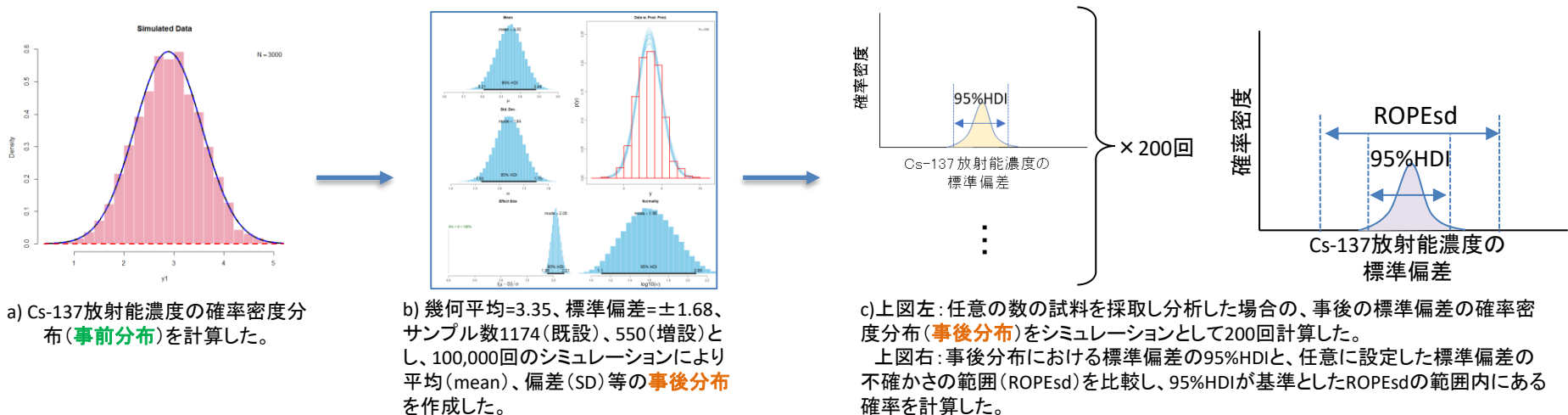


図1 Cs-137放射能濃度の標準偏差の95%HDIと不確かさの範囲との比較

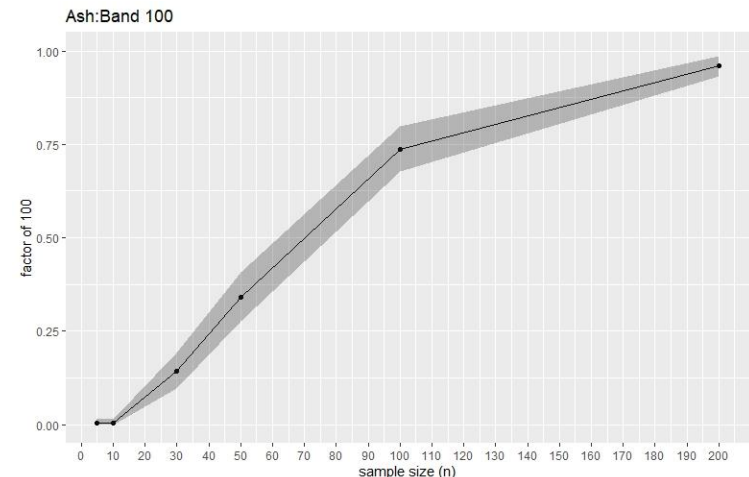
2.8 分析計画法の適用性向上 事例研究 1(焼却灰のフィンガープリント)

■ ベイズ推定法を用いた検出確率の計算 (DQO Step 6) (続き)

➤ 計算の結果

- 計算にあたり試料数を5、10、30、50及び100とした。
- 母集団におけるCs-137放射能濃度の標準偏差の不確かさを推定するために必要な試料数、その検出確率を下表及び下図に示す。
- 既設設備、増設設備とも、Cs-137平均放射能濃度(幾何平均)を3.35 [Bq/100 g]とした場合に、標準偏差の不確かさは1.0~2.0であることが示唆されるが、その確認には多数の試料を必要とする。

母集団	不確かさの範囲 (ROPEsd)	試料数に対するCs-137放射能濃度の標準偏差の不確かさを推定する確率 [%]				
		N=5	N=10	N=30	N=50	N=100
既設設備	0~0.176	0	0	0	0	0
	0.176~0.477	0	0	0	0	0
	0.477~1.00	0	0	0	0	0
	1.00~2.00	0	0	13	34	73
	2.00~3.00	0	0	0	0	0
増設設備	0~0.176	0	0	0	0	0
	0.176~0.477	0	0	0	0	0
	0.477~1.00	0	0	0	0	0
	1.00~2.00	0	0	14	40	72
	2.00~3.00	0	0	0	0	0



既設設備の例: 焼却灰のCs-137平均放射能濃度(幾何平均)を3.35 [Bq/100g]とした場合に、試料数に対して、標準偏差の不確かさが1.00~2.00の範囲にあることを推定する確率

■ 分析計画の作成 (DQO Step 7)

- 計算の結果をもとに、他の母集団を分割する観点と組み合わせた評価の実施や、新たな観点による母集団の分割を議論すること等が考えられる。
- 1F廃棄物のステークホルダーによる議論が有効であると共に、それらの成果を廃棄物管理や分析施設等の各現場に展開し、実現性のある分析計画とすることが肝要である。

2.8 分析計画法の適用性向上 事例研究 2(原廃棄物法)

- 原廃棄物法を適用する事例として、濃縮廃液を取り上げて DQO プロセスにより検討した。
 - 原子力機構 ふげん発電所では、冷却水系からの廃液を濃縮して保管しており、これをセメント混練固化して処分する計画である(図1)。
 - 先例に倣って(図2)、固化に先立ち保管するタンクの中で廃液を攪拌して均一化してから処理を行う想定を検討した。
- 原廃棄物(廃液)を分析して放射能濃度を決定するので、均一化の過程を考慮しつつベイズ統計により計算した。
 - あらかじめ計算により予測された濃度を参照して基準を設定したところ、得られる分析データは期待を満足しない可能性が示唆された(図3)。
- 結果として、DQO プロセスのより手前のステップに遡って検討すべきことが明らかとなった。検討を継続して、上記の過程とともに事例として蓄積していく。

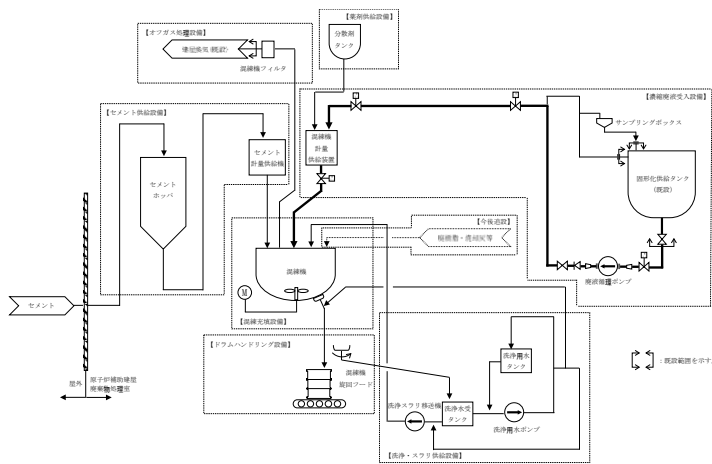
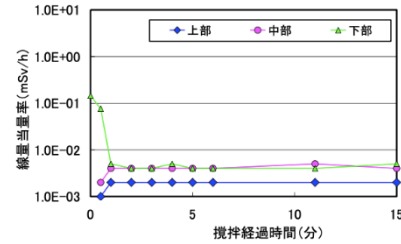
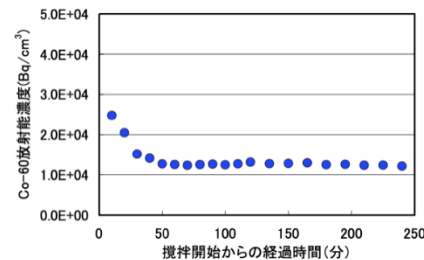


図1 セメント混練固化装置設置の概略系統*1



タンクの線量率の推移



タンクの Co-60 濃度の推移

図2 タンク内を攪拌により
均一化する例*2

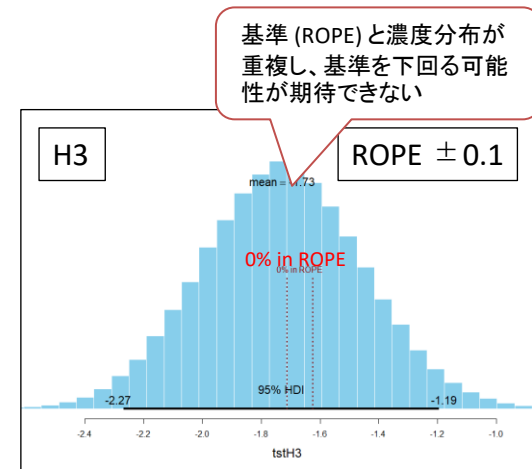


図3 核種の濃度分布を統計計算した結果
(³H の例)

*1日本原子力研究開発機構, 「ふげん」廃止措置計画変更認可申請について, 令和3年9月28日.

*2 “東京電力(株) 柏崎刈羽原子力発電所で製作される均質・均一固化体の廃棄確認方法について,” JNES-EV-2013-9006.

■ 成果

- 試料の分析を茨城地区の3施設にて継続して実施した。このために、分析試料の採取、保管、輸送の作業を安全に行った。IRIDが成功裏に採取したセシウム吸着材を分析施設のホット施設へ輸送し、分析の準備を進めた。
- 分析結果データベースFRAnDLiの運用を継続するとともに、試料データベースの整備を進めた。
- C-14の分析方法について移行過程等を踏まえて今後の開発対象を検討した。I-129分析のために加速器質量分析を適用する試料を選定した。セシウム吸着材は高線量率の条件を考慮して分析法を検討した。
- 解析的インベントリ推算のために、ソースタームのうち放射化生成物(コンクリート、Co-60)の検討を進めた。新たに得られた分析データを考慮して核種移行パラメータを求めたところ影響は大きくなかった。廃棄物のインベントリをあらためて算出し、処分等の今後の検討に提供していく。
- 燃料デブリ取り出しのために、複数の核種の測定の重要性、高線量率のコンテナを測定するシステムに重要な要素を示した。
- 分析計画法に関して、1F廃棄物の廃棄物管理を進める上で必要な目的を整理し、それぞれに対する分析計画法の適用の仕方を検討し、事例として蓄積している。

■ 課題

- 放射性物質・分析研究施設第1棟では、廃棄物とともに処理水の分析が開始され、徐々に分析能力が高められている。茨城地区の分析との連携の仕方を調整していく必要がある。

■ 今後の展開

- 複数の施設の間で適切に分担して分析を着実に進める。セシウム吸着材試料を受け取ったので、この分析に着手していく。分析計画法の適用事例を増やしていく。
- 分析データを活用するため、データベースの運用、改良を継続する。
- インベントリ推算は、1F現場のニーズを捉えて対象を検討して取り組む。