

**$\beta$ 、 $\gamma$ 、X 線同時解析による  
迅速・高感度放射性核種分析法の開発  
(委託研究)**

—令和 2 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

Development of Rapid and Sensitive Radionuclide Analysis Method  
by Simultaneous Analysis of  $\beta$ ,  $\gamma$ , and X-rays  
(Contract Research)

-FY2020 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource  
Development Project-

福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター  
日本分析センター

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,  
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development  
Japan Chemical Analysis Center

March 2022

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課  
〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.

This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).

Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan

Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

$\beta$ 、 $\gamma$ 、X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発  
(委託研究)

—令和2年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門 福島研究開発拠点  
廃炉環境国際共同研究センター

日本分析センター

(2021年11月11日受理)

日本原子力研究開発機構(JAEA) 廃炉環境国際共同研究センター(CLADS)では、令和2年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業(以下、「本事業」という)を実施している。

本事業は、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の廃炉等をはじめとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。

平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省からJAEAに移行することで、JAEAとアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、令和2年度に採択された「 $\beta$ 、 $\gamma$ 、X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発」の令和2年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、燃料デブリ・廃棄物中放射性核種の迅速分析の実現を目指し、多重 $\gamma$ 線検出法などの最新計測システムを整備し、これを用いた測定、また放射線シミュレーション計算により $\beta$ 線、X線を含む核種毎のスペクトルデータベースを構築し、これらを統合解析するスペクトル定量解読法(Spectral Determination Method:SDM法)を開発することにより、多核種同時定量を可能にし、化学分離プロセスを軽減することを目的とする。

---

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、日本分析センターが実施した成果を取りまとめたものである。

廃炉環境国際共同研究センター：〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

Development of Rapid and Sensitive Radionuclide Analysis Method  
by Simultaneous Analysis of  $\beta$ ,  $\gamma$ , and X-rays  
(Contract Research)

— FY2020 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,  
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development  
Japan Atomic Energy Agency  
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

Japan Chemical Analysis Center

(Received November 11, 2021)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (hereafter referred to “the Project”) in FY2020.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields.

The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2020, this report summarizes the research results of the “Development of rapid and sensitive radionuclide analysis method by simultaneous analysis of  $\beta$ ,  $\gamma$ , and X-rays” conducted in FY2020.

The present study aims to enable rapid analysis of radionuclides in fuel debris and waste, and develops the measurement system such as multiple  $\gamma$ -ray detection method. We develop a spectral determination method (SDM method) for integrated analysis by constructing a spectral database for nuclides including  $\beta$ -rays and X-rays by measurement using this system and radiation simulation calculation. This method enables simultaneous quantification of multiple nuclides and reduces the chemical separation process.

Keywords:  $\beta$ ,  $\gamma$ , and X-rays Measurement, Liquid Scintillation Counter, Fuel Debris, Long-lived Radionuclide

---

This work was performed by Japan Chemical Analysis Center under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要 .....	1
2. 平成 30 年度 採択課題 .....	2
3. 令和元年度 採択課題 .....	5
4. 令和 2 年度 採択課題 .....	8
付録 成果報告書 .....	11

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project .....	1
2. Accepted Proposal in FY2018.....	2
3. Accepted Proposal in FY2019.....	5
4. Accepted Proposal in FY2020.....	8
Appendix Result Report .....	11

This is a blank page.

## 1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン(平成26年6月文部科学省)」等を踏まえ、平成27年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」(以下、「本事業」という。)を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」という。)では、平成27年に廃炉国際共同研究センター(以下、「CLADS」という。現:廃炉環境国際共同研究センター)を組織し、「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、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廃炉(以下、「1F廃炉」という。)に係る研究開発を進めている。

また、平成29年4月にCLADSの中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後はCLADSを中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省からJAEAに移行することで、JAEAとアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム(令和元年度より新設)に再編した。

2. 平成 30 年度 採択課題

平成 30 年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

共通基盤型原子力研究プログラム	11 課題（若手研究 6 課題、一般研究 5 課題）
課題解決型廃炉研究プログラム	6 課題
国際協力型廃炉研究プログラム	2 課題（日英共同研究）

平成 30 年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山崎 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響評価	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

## 共通基盤型原子力研究プログラム

## 【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオライト焼結固化技術の開発	新井 剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の開発	牟田 浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤 拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本 保	木更津工業 高等専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

## 課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究	桐島 陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邊 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発	萩原 雅之	高エネルギー 加速器研究機構

## 国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤 毅	京都大学

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

- 共通基盤型原子力研究プログラム 7 課題（若手研究 2 課題、一般研究 5 課題）
- 課題解決型廃炉研究プログラム 4 課題
- 国際協力型廃炉研究プログラム 4 課題（日英共同研究 2 課題、日露共同研究 2 課題）
- 研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 課題

令和元年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一朗	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁 (令和元年度まで) 大曲 新矢	産業技術総合研究所

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島2・3号機ペDESTAL燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邊 大輔	日立 GE ニュークリア・エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学 (令和2年度 まで) 岡山大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取出し臨界安全技術の高度化	小原 徹	東京工業大学
微生物生態系による原子炉内物体の腐食・変質に関する評価研究	金井 昭夫	慶應義塾

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦 (平成30年度まで) 竹下 健二	東京工業 大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

#### 4. 令和2年度 採択課題

令和2年度は、2つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。  
公募の概要は以下のとおりである。

公募期間：令和2年3月17日～令和2年5月14日（課題解決型）  
令和2年5月13日～令和2年7月15日（国際協力型）

課題数：10 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 8 課題（若手研究 2 課題、一般研究 6 課題）  
国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題（日英共同研究）

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。

その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、採択課題を決定した。

#### 令和2年度 採択課題一覧

##### 課題解決型廃炉研究プログラム

##### 【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリにおける特性の経年変化と環境劣化割れの調査	楊 会龍	東京大学
健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発	岡本 章玄	物質・材料研究機構

課題解決型廃炉研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発	田中 真伸	高エネルギー加速器研究機構
$\alpha$ / $\beta$ / $\gamma$ 線ラジオリシス影響下における格納容器系統内広域防食の実現：ナノバブルを用いた新規防食技術の開発	渡邊 豊	東北大学
$\beta$ 、 $\gamma$ 、X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
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	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
革新的水質浄化剤の開発による環境問題低減化技術の開拓	浅尾 直樹	信州大学
無人航走体を用いた燃料デブリサンプルリターン技術の研究開発	鎌田 創	海上・港湾・航空技術研究所

本報告書は、以下の課題の令和2年度の研究成果を取りまとめたものである。

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
$\beta$ 、 $\gamma$ 、X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録  
成果報告書

This is a blank page.

令和 2 年度

日本原子力研究開発機構

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

$\beta$ 、 $\gamma$ 、X 線同時解析による迅速・高感度  
放射性核種分析法の開発

(契約番号 R02I141)

成果報告書

令和 3 年 3 月

公益財団法人日本分析センター

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、公益財団法人日本分析センターが実施した「 $\beta$ 、 $\gamma$ 、X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発」の令和2年度の研究成果を取りまとめたものです。

目次

概略	vii
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2. 1-1
2.1 全体計画	2. 1-1
2.1.1 全体計画図	2. 1-1
2.1.2 実施体制図	2. 1-2
2.2 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法	2. 2-1
3. 令和2年度の実施内容及び成果	3. 1-1
3.1 $\gamma$ 線測定装置の整備	3. 1-1
3.2 SDM法に関する研究	3. 2. 1-1
3.2.1 $\gamma$ 線SDM法開発	3. 2. 1-1
3.2.2 放射線シミュレーションに関する研究（再委託先：新潟大学）	3. 2. 2-1
3.2.3 機械学習を用いた核種認識法の開発（再委託先：九州大学）	3. 2. 3-1
3.3 分析法バリデーション	3. 3. 1-1
3.3.1 SDM法及び解析結果の検証（再委託先：量研機構）	3. 3. 1-1
3.3.2 $\gamma$ 線SDM法のバリデーション（再委託先：大成建設）	3. 3. 2-1
3.3.3 SDM法のバリデーション（連携先：JAEA）	3. 3. 3-1
3.4 研究推進	3. 4-1
4. 結言	4-1

執筆者リスト

事業代表者

公益財団法人日本分析センター	グループリーダー	篠原 宏文
	技術相談役	大島 真澄
	上級技術員	鈴木 勝行

再委託先機関 事業責任者

国立大学法人新潟大学 助教 後藤 淳

国立大学法人九州大学 准教授 金 政浩

大成建設株式会社 専任課長 谷口 雅弘

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構 上席研究員 早川 岳人

連携機関 事業責任者

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 マネージャー 原賀 智子

表一覧

表 3.2.3-1	今回整備した GPU マシンのスペック一覧.....	3.2.3-2
表 3.2.3-2	複数核種の存在するスペクトルに対して機械学習モデルによる解析を行った結果.....	3.2.3-3
表 3.3.2-1	対象核種の比較表 (1/2) .....	3.3.2-3
表 3.3.2-1	対象核種の比較表 (2/2) .....	3.3.2-4
表 3.3.2-2	1F 関連の文献一覧表 (1/2) .....	3.3.2-6
表 3.3.2-2	1F 関連の文献一覧表 (2/2) .....	3.3.2-7
表 3.3.2-3	実測例の参考文献の一覧表.....	3.3.2-8
表 3.3.2-4	環境関連の文献一覧表.....	3.3.2-9
表 3.3.2-5	核種別定量限界 (1/10) .....	3.3.2-10
表 3.3.2-5	核種別定量限界 (2/10) .....	3.3.2-11
表 3.3.2-5	核種別定量限界 (3/10) .....	3.3.2-12
表 3.3.2-5	核種別定量限界 (4/10) .....	3.3.2-13
表 3.3.2-5	核種別定量限界 (5/10) .....	3.3.2-14
表 3.3.2-5	核種別定量限界 (6/10) .....	3.3.2-15
表 3.3.2-5	核種別定量限界 (7/10) .....	3.3.2-16
表 3.3.2-5	核種別定量限界 (8/10) .....	3.3.2-17
表 3.3.2-5	核種別定量限界 (9/10) .....	3.3.2-18
表 3.3.2-5	核種別定量限界 (10/10) .....	3.3.2-19
表 3.3.2-6	$\gamma$ 線核種分析の内容と定量限界の関係.....	3.3.2-20
表 3.3.3-1	文献調査結果 (1/13) .....	3.3.3-4
表 3.3.3-1	文献調査結果 (2/13) .....	3.3.3-5
表 3.3.3-1	文献調査結果 (3/13) .....	3.3.3-6
表 3.3.3-1	文献調査結果 (4/13) .....	3.3.3-7
表 3.3.3-1	文献調査結果 (5/13) .....	3.3.3-8
表 3.3.3-1	文献調査結果 (6/13) .....	3.3.3-9
表 3.3.3-1	文献調査結果 (7/13) .....	3.3.3-10
表 3.3.3-1	文献調査結果 (8/13) .....	3.3.3-11
表 3.3.3-1	文献調査結果 (9/13) .....	3.3.3-12
表 3.3.3-1	文献調査結果 (10/13) .....	3.3.3-13
表 3.3.3-1	文献調査結果 (11/13) .....	3.3.3-14
表 3.3.3-1	文献調査結果 (12/13) .....	3.3.3-15
表 3.3.3-1	文献調査結果 (13/13) .....	3.3.3-16

図一覧

図 2. 1. 1-1	全体計画図.....	2. 1-1
図 2. 1. 2-1	実施体制図.....	2. 1-2
図 3. 1-1	NaI 検出器 4 台 .....	3. 1-1
図 3. 1-2	高圧電源.....	3. 1-1
図 3. 1-3	In1 (左) 及び In2 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ .....	3. 1-2
図 3. 1-4	In3 (左) 及び In4 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ .....	3. 1-2
図 3. 1-5	In5 (左) 及び In6 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ .....	3. 1-3
図 3. 1-6	In7 (左) 及び In8 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ .....	3. 1-3
図 3. 1-7	CeBr <sub>3</sub> 検出器 4 台.....	3. 1-4
図 3. 1-8	In1 (左) 及び In2 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ .....	3. 1-5
図 3. 1-9	In3 (左) 及び In4 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ .....	3. 1-5
図 3. 1-10	In5 (左) 及び In6 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ .....	3. 1-6
図 3. 1-11	In7 (左) 及び In8 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ .....	3. 1-6
図 3. 1-12	LN <sub>2</sub> 検出器容器とゲルマニウム検出器の組み合わせ .....	3. 1-7
図 3. 1-13	Co-60 のスペクトルデータ .....	3. 1-7
図 3. 1-14	1 次元スペクトル表示例 .....	3. 1-10
図 3. 1-15	高速データ収集装置による 2 次元スペクトル.....	3. 1-11
図 3. 1-16	LN <sub>2</sub> 検出器容器及び LN <sub>2</sub> 残量監視装置 .....	3. 1-12
図 3. 1-17	LN <sub>2</sub> 運搬容器.....	3. 1-12
図 3. 1-18	検出器架台単体.....	3. 1-13
図 3. 1-19	検出器架台と LN <sub>2</sub> 検出器容器の組み合わせ .....	3. 1-13
図 3. 1-20	クライオスタット 3 台の全体写真.....	3. 1-13
図 3. 1-21	クライオスタット 1 台の拡大写真.....	3. 1-13
図 3. 1-22	スペクトルパルサーによるスペクトル (修理前) .....	3. 1-14
図 3. 1-23	スペクトルパルサーによるスペクトル (修理後) .....	3. 1-14
図 3. 1-24	NT-100 装置による 2 次元スペクトル .....	3. 1-15
図 3. 1-25	APU8008A (青) と NT-100 装置 (橙) を用いて得られたスペクトルの比較 .....	3. 1-15
図 3. 2. 1-1	ゲルマニウム検出器で得られた $\gamma$ 線標準スペクトル.....	3. 2. 1-1
図 3. 2. 1-2	NaI 検出器で得られた $\gamma$ 線標準スペクトル .....	3. 2. 1-2
図 3. 2. 1-3	CeBr <sub>3</sub> 検出器で得られた $\gamma$ 線標準スペクトル.....	3. 2. 1-2
図 3. 2. 2-1	シミュレーション環境.....	3. 2. 2-1
図 3. 2. 2-2	エネルギー校正及び半値幅エネルギー依存性の関数.....	3. 2. 2-2
図 3. 2. 2-3	エネルギー分解能を考慮したスペクトル.....	3. 2. 2-3
図 3. 2. 2-4	シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GEM、線源 : Eu-152) .....	3. 2. 2-3
図 3. 2. 2-5	シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GMX、線源 : Eu-152) .....	3. 2. 2-3
図 3. 2. 2-6	シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GEM、線源 : Cs-137) .....	3. 2. 2-4
図 3. 2. 2-7	シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GMX、線源 : Cs-137) .....	3. 2. 2-4
図 3. 2. 2-8	シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GMX、線源 : Cs-134) .....	3. 2. 2-4
図 3. 2. 2-9	シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GMX、線源 : Co-60) .....	3. 2. 2-5

図 3.2.2-10	シミュレーションと実測の比較（検出器：GMX、線源：Ba-133）	3.2.2-5
図 3.2.2-11	シミュレーションと実測の比較（検出器：NaI、線源：Eu-152）	3.2.2-5
図 3.2.2-12	シミュレーションと実測の比較（検出器：CeBr <sub>3</sub> 、線源：Eu-152）	3.2.2-6
図 3.2.2-13	シミュレーションと実測の比較（検出器：NaI、線源：Co-60）	3.2.2-6
図 3.2.2-14	シミュレーションと実測の比較（検出器：CeBr <sub>3</sub> 、線源：Co-60）	3.2.2-6
図 3.2.2-15	シミュレーションと実測の比較（検出器：NaI、線源：Ba-133）	3.2.2-7
図 3.2.2-16	シミュレーションと実測の比較（検出器：CeBr <sub>3</sub> 、線源：Ba-133）	3.2.2-7
図 3.2.2-17	SDM 用基準スペクトルの例（検出器：GMX、NaI、CeBr <sub>3</sub> 、線源：Mn-54）	3.2.2-7
図 3.2.2-18	SDM 用基準スペクトルの例（検出器：GMX、NaI、CeBr <sub>3</sub> 、線源：Rh-102）	3.2.2-8
図 3.2.2-19	SDM 用基準スペクトルの例（検出器：GMX、NaI、CeBr <sub>3</sub> 、線源：Ag-110m）	3.2.2-8
図 3.2.2-20	SDM 用基準スペクトルの例（検出器：GMX、NaI、CeBr <sub>3</sub> 、線源：Eu-154）	3.2.2-8
図 3.2.3-1	今回整備した GPU マシン「RC GPU Server nami4 II（リアルコンピューティング株式会社製）」の写真	3.2.3-2
図 3.2.3-2	代表的な順方向全結合型ニューラルネットワーク	3.2.3-3
図 3.2.3-3	代表的な 1 次元畳み込みニューラルネットワークによる放射能推定モデルの例	3.2.3-4
図 3.2.3-4	Cs-134、Cs-137 及び K-40 が含まれるサンプルに対する Cs-137 の放射能をコベル法によって解析した結果（左）と CNN をとりこんだ機械学習モデルによって推定した結果（右）の比較	3.2.3-5
図 3.2.3-5	CNN 機械学習モデルによる推定結果とコベル法で得るために必要な計数時間の比	3.2.3-6
図 3.3.1-1	修理した液体窒素デュアの試験を行ったモジュール	3.3.1-2
図 3.3.1-2	修理した液体窒素デュアの試験のために冷却後に計測した $\gamma$ 線スペクトル	3.3.1-3
図 3.3.2-1	Cs-137 についての測定時間と定量限界の関係	3.3.2-21

略語一覧

SDM 法	: Spectral Determination Method (スペクトル解読法)
JAEA	: Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
量研機構	: 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (廃炉環境国際共同研究センター)
LSC	: Liquid Scintillation Counter (液体シンチレーションカウンタ)
1F	: 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
東電	: 東京電力ホールディングス株式会社

## 概略

燃料デブリ中分析対象中重核種 40 種の分析は、現在化学処理により峻別分離を行った後に、放射能分析することを想定している。我々は、液体シンチレーション検出器による  $\beta$  線、X 線と Ge 検出器等による  $\gamma$  線の測定スペクトルは核種毎に異なる応答を示し、測定スペクトルはその線形重ね合わせで表せるという第 1 原理に基づき、 $\beta$ 、 $\gamma$ 、X 線スペクトルデータを同時に統一的に解析するスペクトル定量法を開発する。これにより、核種分析能を大幅に改善し、峻別化学分離を不要とすることで、化学処理プロセスを大幅に軽減することを目指す。

## 1. はじめに

廃炉措置において、燃料デブリの取り出し、汚染水対策、建屋の解体作業、廃棄物の減容化、クリアランスによる廃棄物量の低減のために、多量の試料の放射性核種分析が必要になり、迅速性が要求されると同時に、高確度の定量法が必要である。

対象核種は中重核のみで、40核種に及ぶ。放射性核種分析は現在、試料の溶解後、元素に特化した化学分離により峻別分離を行った後に、放射能測定を行い、定量しているが、化学処理には高度の技術と時間が必要であるばかりでなく、不純物が定量精度に影響を与えないよう、時として化学分離を繰り返す必要があり、時間を要すると同時に、作業者の被曝量の増加が避けられない。このために、我々は放射能測定における核種分析能を飛躍的に向上させ、化学処理の負担を大幅に軽減することを目的として、以下の手法開発を提案する。

$\beta$ 線、X線測定には、吸収のない液体シンチレーション検出器を、 $\gamma$ 線測定にはGe、NaI検出器等を使用し、個別に測定する。これら放射線は、核種毎に異なるエネルギー値、強度等を有するため、それらの測定スペクトルは核種固有のものとなる。また、多核種を含む試料を測定して得られたスペクトルは、核種毎のスペクトルの線形重ね合わせで表すことができる。この第1原理に基づいたコード開発を行うことで、これらのスペクトルデータを統一的に解析でき、各核種成分に分解することを可能にした。我々は $\gamma$ 線スペクトル解析において、このスペクトル解読法（Spectral Determination Method、以下、「SDM法」と略す。）を実証したが、今回それを $\beta$ 線、X線及び $\gamma$ 線の同時解析に発展させ、核種分析能を大幅に改善することで、峻別化学分離を不要とし、化学処理プロセスを大幅に軽減することを実証する。実効的ないくつかの粗化学分離を提案し、各々における40核種の定量限界を導出する。

2. 業務計画

2.1 全体計画

2.1.1 全体計画図

本業務の全体計画図を図 2.1.1-1 に示す。

項目	年度		
	令和2年度	令和3年度	令和4年度
	要素研究フェーズ (要素開発、原理検討)		検証フェーズ (分析法評価)
(1) $\gamma$ 線測定装置の整備	ガンマ線検出器整備	多重 $\gamma$ 線検出装置整備、分析試験	分析試験及び評価まとめ
(2) SDM法に関する研究			
① $\gamma$ 線SDM法開発	SDM-G法	データベース整備、SDM-BG法開発、 化学分離(粗分離)スキーム検討	試験及び評価まとめ
②放射線シミュレーションに関する研究 (新潟大学)	シミュレーション準備	データベース整備、SDM-BGG法開発	改善及び評価まとめ
③機械学習を用いた核種認識法の開発 (九州大学)	モデリング	モデリングと実証試験	改善及び評価まとめ
(3) 分析法バリデーション			
①SDM法および解析結果の検証 (量研機構)	SDM-G法検証	SDM-BG法検証	SDM-BGG法検証及び有効性評価
② $\gamma$ 線SDM法のバリデーション (大成建設)	文献調査	SDM分析試験と解析	分析試験及び評価まとめ
③SDM法のバリデーション (原子力機構)	文献調査	SDM分析試験、定性分析法評価	分析法評価及びまとめ
(4) 研究推進	進捗確認等の打合せの実施	進捗確認等の打合せの実施	進捗確認等の打合せの実施
	まとめ・評価	まとめ・評価	まとめ・評価

図 2.1.1-1 全体計画図

2.1.2 実施体制図

本業務の実施体制図を図 2.1.2-1 に示す。

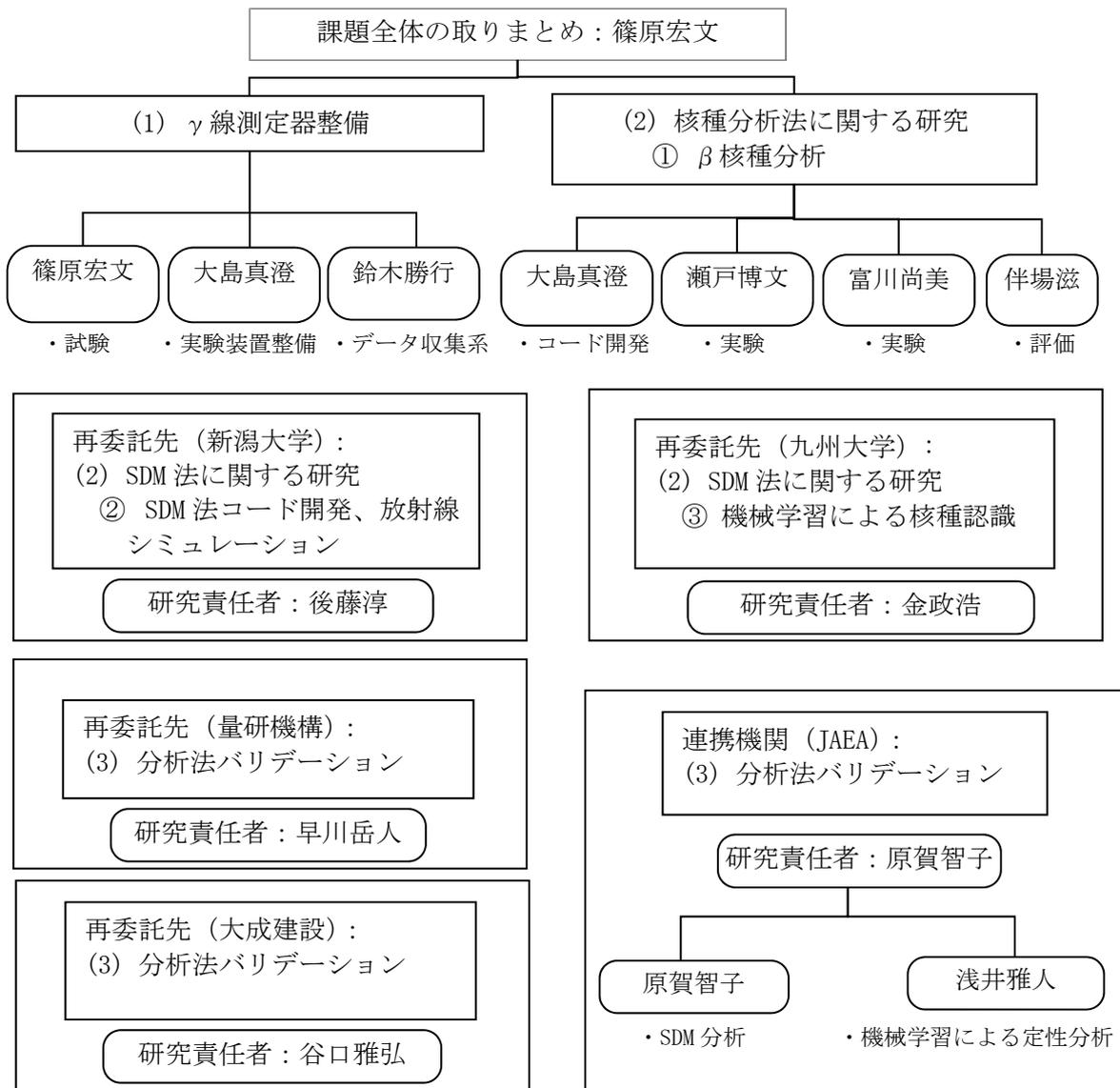


図 2.1.2-1 実施体制図

## 2.2 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法

### (1) $\gamma$ 線測定装置の整備

SDM法開発のための $\gamma$ 線検出器体系（Ge検出器、CeBr<sub>3</sub>、NaI検出器各、鉛シールドを含む検出器架台、Ge検出器用液体窒素容器、液体窒素補給用運搬容器等）を整備する。また、高速データ収集システムを整備し、検出器からの信号を処理し、1次元及び同時計数データ取得を可能にする。

また、導入した $\gamma$ 線検出器体系、高速データ収集システム各々の性能試験を行う。

### (2) SDM法に関する研究

#### ① $\gamma$ 線SDM法開発

$\beta$ 線と $\gamma$ 線を統合解析するSDM-BG法の準備研究のために、 $\gamma$ 線のみを解析する $\gamma$ 線SDM法（SDM-G法）を開発する。

#### ② 放射線シミュレーションに関する研究（再委託先：新潟大学）

シミュレーション環境を構築する。Ge検出器、NaI検出器、CeBr<sub>3</sub>検出器を用いた $\gamma$ 線測定試験結果を考慮した計算パラメータのチューニングを実施し、シミュレーションの高精度化を図る。標準線源が無い核種など実測が難しい核種も含めて、SDM用基準スペクトルをシミュレーションで作成する。

#### ③ 機械学習を用いた核種認識法の開発（再委託先：九州大学）

高速電子計算機を整備する。畳み込みニューラルネットワーク（CNN）を用いて、複数核種（測定可能なエネルギーの $\gamma$ 線を放出する7核種）の核種識別が可能なモデルを構築する。

### (3) 分析法バリデーション

#### ① SDM法及び解析結果の検証（再委託先：量研機構）

SDM法について検討を開始する。従来分析法、特に代表的ピーク解析法であるTotal Peak Area法とSDM-G法との比較を行う。日本分析センターに貸与するゲルマニウム検出器の性能試験を実施し、令和3年度の試験に備える。

#### ② $\gamma$ 線SDM法のバリデーション（再委託先：大成建設）

1F廃棄物及び燃料デブリ中の $\gamma$ 線放出核種24種について、主要核種Cs-137、Sr-90の存在下における定量限界を、過去の文献により調査する。

#### ③ SDM法のバリデーション（連携先：JAEA）

多重 $\gamma$ 線検出法及びSDM法による定量結果との比較を行うため、従来分析法に関して過去の文献を調べ、定量限界について調査を行う。1F廃棄物中測定対象核種に対する調査を行う。

### (4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉環境国際共同研究センター（以下、「CLADS」と略す。）等との連携を密にして、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

## 3. 令和2年度の実施内容及び成果

3.1  $\gamma$ 線測定装置の整備

SDM法開発のための $\gamma$ 線検出器体系（Ge検出器3台、CeBr<sub>3</sub>、NaI検出器各4台、鉛シールドを含む検出器架台、Ge検出器用液体窒素容器、液体窒素補給用運搬容器、高速データ収集システム）を整備し、納入された検出器単体での性能試験及びシミュレーション用データ取得を実施した。また、高速データ収集システムを整備し、検出器からの信号を処理し、1次元及び同時計数データ取得の試験を実施した。

## (1) NaI検出器

NaI検出器4台が納入された（図3.1-1）。製造、納入順にN1、N2、N3、N4と命名した。検出器単体での動作確認及び性能試験を実施し、検出器4台と後述する高速データ収集システムによる8チャンネル（入力チャンネルをIn1、In2、…、In8と命名する。）でのデータ取得を行い、健全性を確認した。

## ① 仕様

モデル	: プリアンプ内蔵 NaI(Tl)シンチレーション検出器 51B51/2M-E2
結晶	: NaI(Tl)、 $\phi 51 \times 51$ mm
光電子増倍管	: $\phi 51$ mm、type ETL 9266
外寸：長さ	: 220 mm 直径：58 mm
温度範囲	: $-20$ °C to $+70$ °C
ライズタイム	: およそ $0.5$ $\mu$ s
フォールタイム	: $50$ $\mu$ s positive
最大信号高	: $\pm 10$ V
エネルギー分解能	: $< 8.0$ % FWHM @ 662 keV
ゲイン安定性	: $< 1.0$ % over 24 h at $20$ °C
高電圧	: $600 \sim 800$ V



図 3.1-1 NaI 検出器 4 台  
(株式会社サイオニクス製)



図 3.1-2 高圧電源  
(アメテック株式会社製)

高圧電源は各2チャンネルを内蔵し、2台で4台の検出器に電源を供給する。また、CeBr<sub>3</sub>検出器の電源と共用とする（図3.1-2）。

② Co-60 のスペクトルデータ

NaI 検出器と後述する高速データ収集装置の健全性試験を兼ねて、以下の組み合わせで測定を行った (図 3.1-3~図 3.1-6)。

- NaI#1 (N1) → 入力チャンネル#1 (In1)
- NaI#1 (N2) → 入力チャンネル#2 (In2)
- NaI#1 (N3) → 入力チャンネル#3 (In3)
- NaI#1 (N4) → 入力チャンネル#4 - #8 (In4 - In8)

つまり、In4 - In8 には共通して、N4 の出力を入力した。

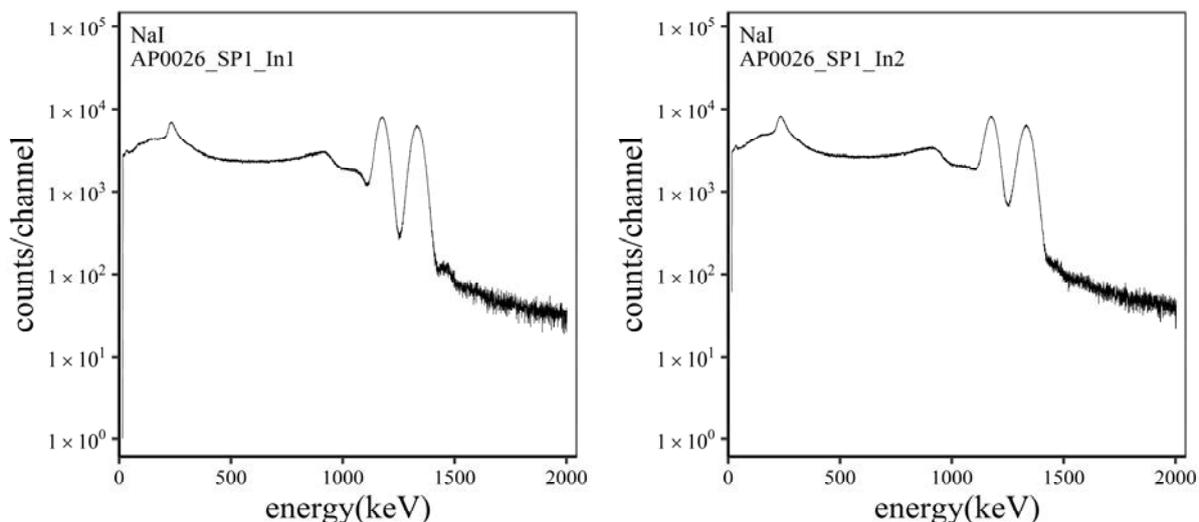


図 3.1-3 In1 (左) 及び In2 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ  
1333 keV におけるエネルギー分解能 : In1 (左) 4.5 %、In2 (右) 5.0 %

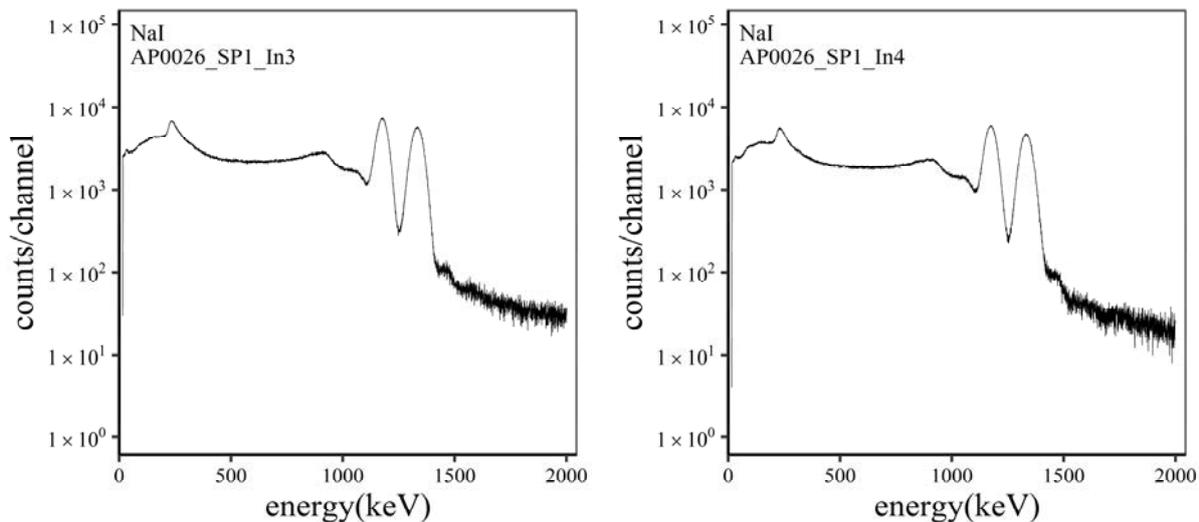


図 3.1-4 In3 (左) 及び In4 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ  
1333 keV におけるエネルギー分解能 : In3 (左) 4.6 %、In4 (右) 4.7 %

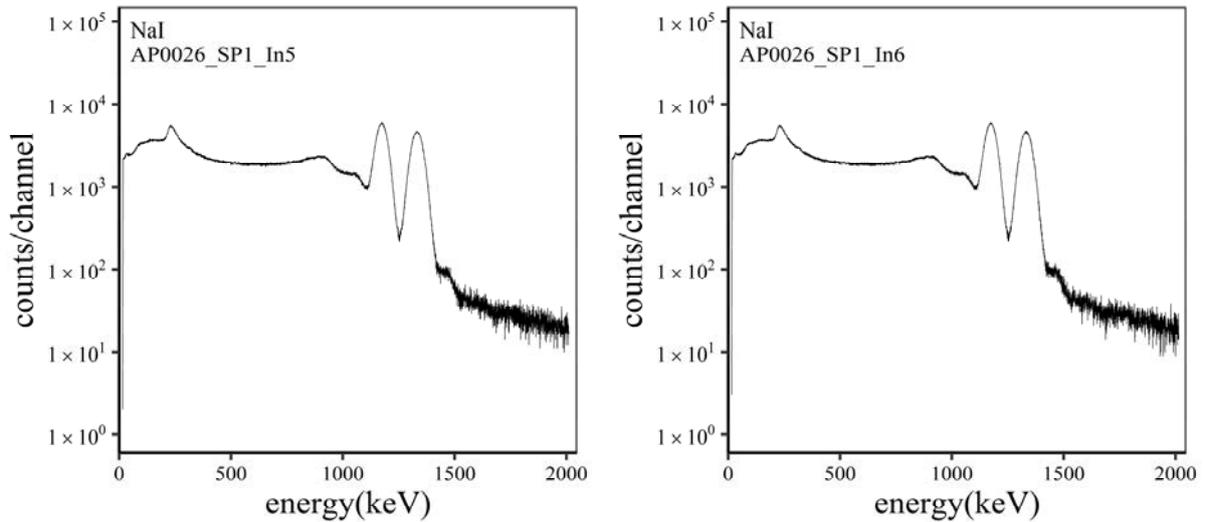


図 3.1-5 In5 (左) 及び In6 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ  
1333 keV におけるエネルギー分解能 : In5 (左) 4.7 %、In6 (右) 4.7 %

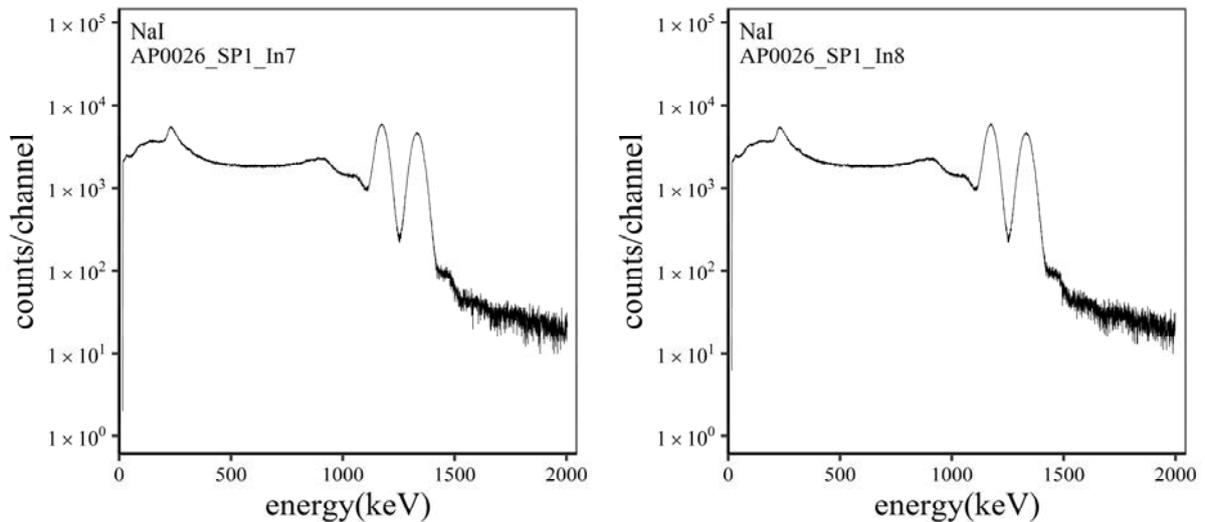


図 3.1-6 In7 (左) 及び In8 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ  
1333 keV におけるエネルギー分解能 : In7 (左) 4.7 %、In8 (右) 4.7 %

③ Cs-137 を用いたエネルギー分解能試験

②と同様の条件で、Cs-137 の測定を行い、得られた分解能は、各々6.24 %、6.23 %、6.24 %、6.25 %であり、要求仕様 (8.5 % FWHM 以下) を満たすことを確認した。

(2) CeBr<sub>3</sub> 検出器

検出器単体での動作確認及び性能試験を実施し、検出器 4 台と高速データ収集システムによる 8ch でのデータ取得を行い、健全性を確認した。

CeBr<sub>3</sub> (セリウムブロマイド) 検出器 4 台が納入された (図 3.1-7)。製造、納入順に C1、C2、C3、C4 と命名した。検出器単体での動作確認及び性能試験を実施し、検出器 4 台と後述する高速データ収集システムによる 8 チャンネルでのデータ取得を行い、健全性を確認した (図 3.1-8 ~ 図 3.1-11)。

① 仕様

モデル	: プリアンプ付き汎用 CeBr <sub>3</sub> 検出器 38B38/2M-E2-CEBR-X
結晶	: CeBr <sub>3</sub> 、φ38×38 mm
光電子増倍管	: φ51 mm、R6231
入射窓	: 0.5 mm アルミニウム
外寸	: 長さ: 179.5 mm (コネクターまで) 最大直径: 58.8 mm
温度範囲	: -20 to 65 °C



図 3.1-7 CeBr<sub>3</sub> 検出器 4 台  
(株式会社サイオニクス製)

② Co-60 のスペクトルデータ

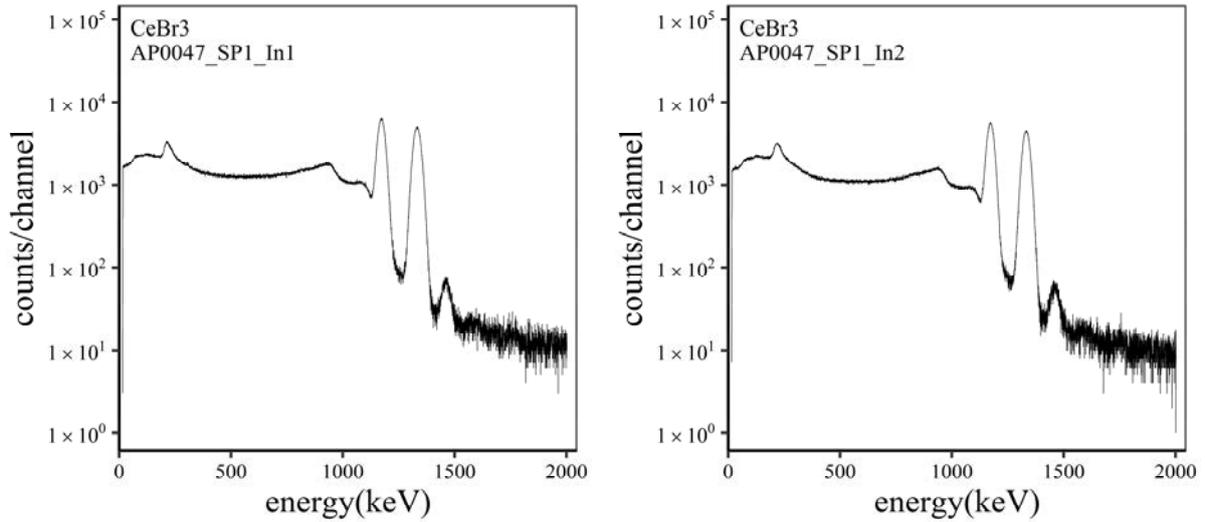


図 3.1-8 In1 (左) 及び In2 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ  
 1333 keV におけるエネルギー分解能 : In1 (左) 3.0 %、In2 (右) 2.9 %

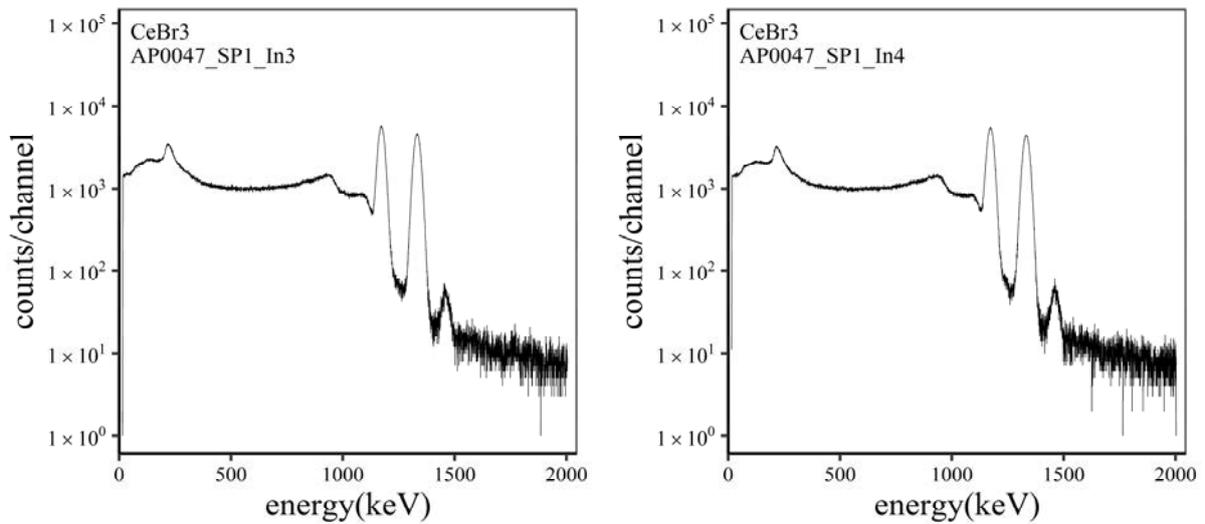


図 3.1-9 In3 (左) 及び In4 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ  
 1333 keV におけるエネルギー分解能 : In3 (左) 2.6 %、In4 (右) 2.7 %

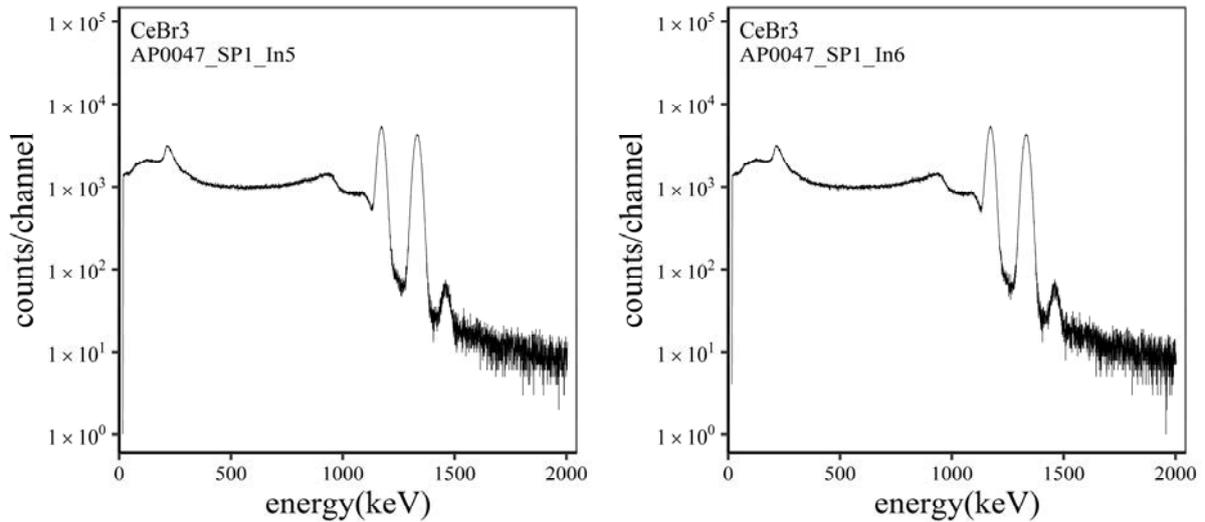


図 3.1-10 In5 (左) 及び In6 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ  
 1333 keV におけるエネルギー分解能 : In5 (左) 2.7 %、In6 (右) 2.7 %

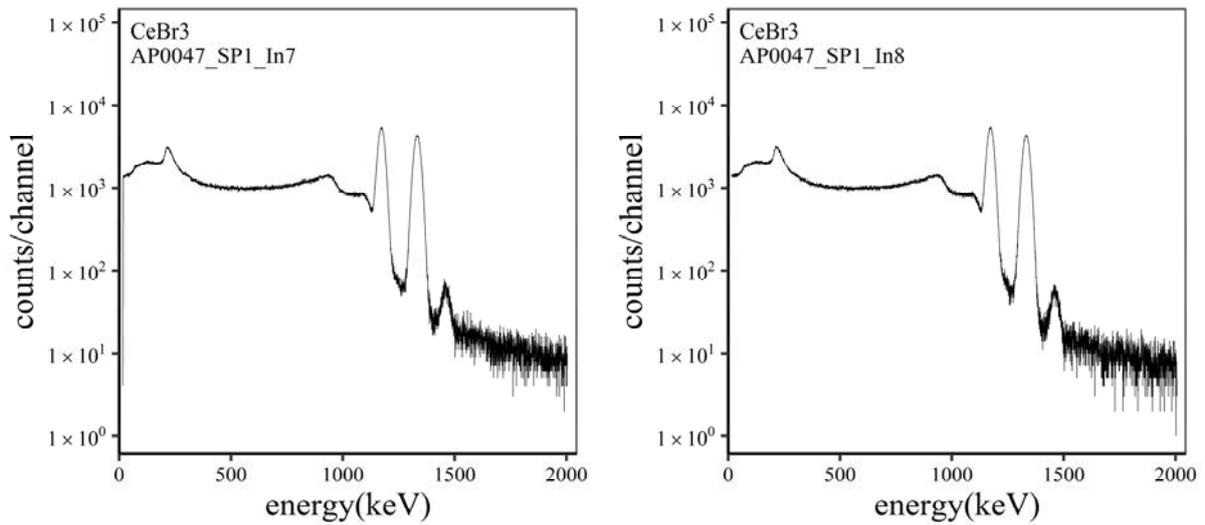


図 3.1-11 In7 (左) 及び In8 (右) により得られた Co-60 のスペクトルデータ  
 1333 keV におけるエネルギー分解能 : In7 (左) 2.7 %、In8 (右) 2.7 %

③ Cs-137 を用いたエネルギー分解能試験

②と同様の条件で、Cs-137 の測定を行い、得られた分解能は、In1～In4 において全て 3.77 % であり、要求仕様 (4.5 % FWHM 以下) を満たすことを確認した。

(3) Ge 検出器

検出器単体での動作確認及び性能試験を実施し、検出器の健全性を確認した。  
LN<sub>2</sub> 検出器容器とゲルマニウム検出器の組み合わせた写真を図 3.1-12 に示す。

① 仕様

モデル	: 同軸型 n タイプ HPGe 半導体検出器 GMX-40P4-70-A-S
高電圧	: -4000 V
エネルギー分解能	: 2.3 keV @ 1.33 MeV
ピークコンプトン比	: 59:1
相対効率	: 40 %
ピーク形状 (FWTM/FWHM)	: 2.0
シェイピングタイム	: 2 μs



図 3.1-12 LN<sub>2</sub> 検出器容器 (後述) とゲルマニウム  
検出器の組み合わせ  
(アメテック株式会社製)

② Co-60 のスペクトルデータ

健全性を確認した 3 台の検出器のうち、1 台の Co-60 のスペクトルデータを例として図 3.1-13 に示す。

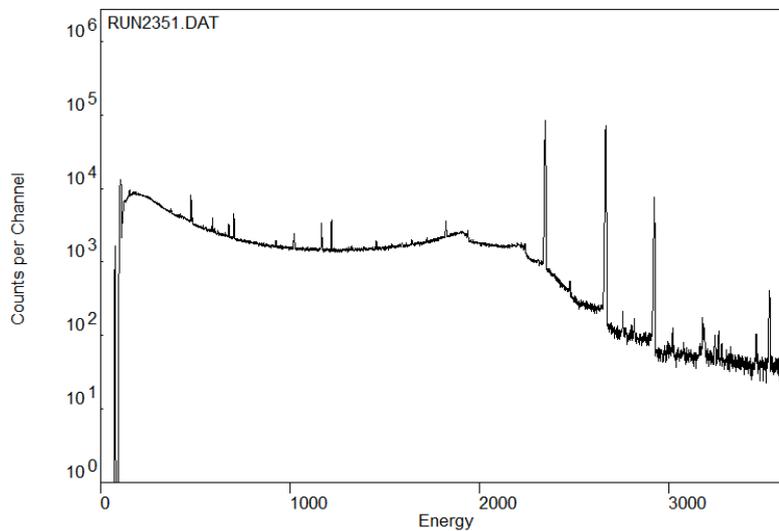


図 3.1-13 Co-60 のスペクトルデータ  
1333 keV におけるエネルギー分解能 : 2.25 keV

得られた分解能は、2.25 keV FWHM であり、要求仕様 (2.3 keV FWHM 以下) を満たすことを確認した。

## (4) 高速データ収集装置

SDM 法開発のためには、 $\gamma$  線の 1 次元及び 2 次元スペクトルの高速測定が必要である。このために、株式会社テクノエーピー製 APUS008A 型高速データ収集装置を整備した。その仕様を以下に紹介する。

## ① 概要

最新の DSP (Digital Signal Processing、デジタルシグナルプロセッシング) 技術を用い、リアルタイムデジタルシグナルプロセッシング機能を搭載した株式会社テクノエーピー製マルチチャンネルアナライザ (MCA) をベースとして以下の概念設計を行った。シングルス測定体系用を担うデータ収集装置と、マルチガンマ測定、シングルス測定を同時に扱うデータ収集装置の 2 式を想定する。

これまでの放射線計測は、プリアンプからの信号をスペクトロスコピアンプに渡し、アナログ回路によって増幅と波形整形処理をして、MCA などの計測装置に合わせてスペクトル解析を行っていたが、DSP の場合は、非常に高速な 100 MHz・14 Bit の A/D コンバータを利用して、プリアンプからの信号を直接デジタルに変換する。デジタルに変換されたデータは高集積 FPGA (Field Programmable Gate Array) に送られ、数値演算によって、スペクトル分析される。プリアンプの信号は FPGA によるパイプラインアーキテクチャによって、リアルタイムに台形フィルタ (Trapezoidal Filter) 処理される。

DSP の構成はスペクトロスコピアンプと MCA を一体化したもので、伝統的なアナログ方式に変わり最新のデジタル信号処理技術を用いたパルスシェイピングを実行する。台形フィルタの他に、タイミングフィルタアンプ、CFD、波形デジタイザ等の機能を有する。

この装置は優れたエネルギー分解能と時間分解能を提供し、高い計数率時でも抜群の安定感を持つ。またアナログ方式最高スループットを誇るゲートインテグレートアンプ以上のスループット (100 kcps 以上) を提供する。

最大 8CH のマルチチャンネル DSP は、すべての ADC が同期して動作しており、またモジュール間も同期させることが可能である。多チャンネルのシステムや、コインシデンス、アンチコインシデンスシステム、エネルギーと時間の相関解析にも応用できる。

## ② ハード仕様

## i アナログ入力

- ・ チャンネル数 : 1-8 CH 選択可能
- ・ 入力レンジ :  $\pm 1$  V
- ・ コースゲイン :  $\times 1$ 、 $\times 2$ 、 $\times 5$ 、 $\times 10$
- ・ 周波数帯域 : DC~16 MHz
- ・ Fine gain :  $\times 0.333$ ~ $\times 1.0$
- ・ 入力インピーダンス : 1 k $\Omega$

## ii ADC

- ・ サンプリング周波数 : 100 MHz
- ・ 分解能 : 14 bit
- ・ SNR : 66 dB@1 MHz

## iii 性能

- ・ 分解能 : 1.70 keV@1.33 MeV (代表値)
- ・ スペクトルブロードニング : 12 %以下 (1 kcps~100 kcps)
- ・ スループット : 100 kcps 以上
- ・ 積分非直線性 :  $\pm 0.025$  % (typ)
- ・ パルスペア分解能 :  $1.25 \times$  (Rise time + Flat top Time)

iv MCA

- ・ ADC GAIN : 4096 チャンネル
- ・ イベント転送レート : 約 1.2 MByte/秒  
1 イベント 10 Byte (80 Bit) の場合  
CH 合計で 120 kcps

v 信号処理機能オプション

- ・ コインシデンス : 同時計数
- ・ コインシデンス 2 次元ヒストグラム表示 : コインシデンス機能の結果から CH-CH の  
2 次元ヒストグラムを作成
- ・ プリアンプの Rise time 計測 : 10~90 %または 20~80 %、0.625 ns  
(最小単位)
- ・ プリアンプの立ち上がり波形デジタイズ : プリアンプ信号の立ち上がり波形をイベ  
ントデータに付加

vi デジタルパルスシェイピング

- ・ FAST 系 Rise time : 0.05  $\mu$ s~1  $\mu$ s
- ・ FAST 系 Flat top time : 0.03  $\mu$ s~1  $\mu$ s
- ・ SLOW 系 Rise time : 0.16  $\mu$ s~8  $\mu$ s
- ・ SLOW 系 Flat top time : 0.16  $\mu$ s~2  $\mu$ s
- ・ デジタル Fine gain :  $\times 0.333 \sim \times 1$
- ・ トリガータイミング : LET (Leading Edge Timing)、  
CFD (Constant Fraction Discriminator Timing)
- ・ デジタル CFD : 0.625 ns 時間分解能
- ・ デジタル Pole zero cancel
- ・ デジタル Baseline Restorer
- ・ デジタル Pile up Reject
- ・ LLD (Low Level Discriminator)
- ・ ULD (Upper Level Discriminator)

vii I/F

- ・ LAN I/F : Ethernet TCP/IP 100Base-T  
※オプションでデータ転送量が約 2 MByte/秒の UDP も可

viii 形状

- ・ ユニット型 : APU8002 (2CH)、APU8004 (4CH)、APU8008 (8CH)
- ・ VME 型 : APV8002 (2CH)、APV8004 (4CH)、APV8008 (8CH)

ix 消費電流

(APV8004 の場合。他の機種もおおよそ同程度)

- +5 V : 3.0 A (最大)
- +12 V : 0.2 A (最大)
- 12 V : 0.2 A (最大)

③ 1 次元スペクトル作成ソフトウェア仕様

1 次元スペクトル作成ソフトウェアは、事象データから 1 次元スペクトルを作成及び表示する。図 3.1-14 に、CeBr<sub>3</sub> 検出器で得られた 1 次元スペクトルの表示例を示す。

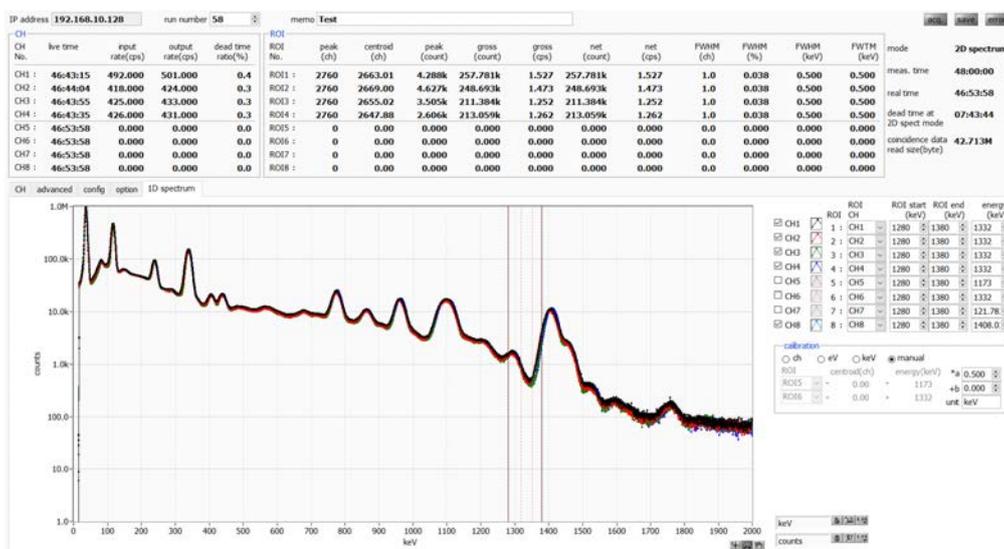


図 3.1-14 1次元スペクトル表示例  
 CeBr<sub>3</sub>検出器4台のスペクトルを示す。各チャンネルのゲインを合わせることで、4つのスペクトルが重なっている。

i 1次元スペクトル生成

8台の検出器からの信号について、エネルギー較正された $\gamma$ 線エネルギースペクトルを作成する。

ii 1次元スペクトル表示

オンラインで、最大4096チャンネル、最小128チャンネルまでのスペクトルを任意の領域について表示する。設定したROI領域のGross count、Net countの表示が可能である。

iii  $\gamma$ 線エネルギー較正

ゲイン調整により、エネルギー値より計算された位置にピークが来るよう、手動操作により設定が可能である。

④ 2次元スペクトル作成ソフトウェア仕様

2次元スペクトル作成ソフトウェアは、事象データの時間情報から同時計数事象を選別し、それぞれのエネルギー情報から2次元スペクトルを作成する。図3.1-15に、2次元スペクトル表示例を示す。

i 2次元スペクトル生成

予め、外部計算機に4096チャンネル×4096チャンネルの2次元スペクトル領域を確保しておく。データ収集ハードウェアにおいて、入力チャンネル#1-7の7台のGe検出器からの信号について、時間分解能内(20 - 1000 nsの範囲で選択可。)に連続発生した2個または3個の事象データを、LAN経由で外部計算機に送信する。外部計算機は受け取ったペアのエネルギーデータを、2次元スペクトル上の各々縦軸、横軸とする交点に1カウント加えることで、頻度分布を作成する。時間分解能内に3個以上の事象が発生した場合には、2個ずつの事象に分解し、以上の操作を行う。

ii 2次元スペクトル表示

上記で生成した2次元スペクトルをオンラインで表示する。4096チャンネル×4096チャンネルの全領域から、128チャンネル×128チャンネルまでの拡張表示が可能である。

⑤ オフライン $\gamma$ 線定量ソフトウェア仕様

オフライン $\gamma$ 線定量ソフトウェアは、測定終了後、予め用意した核種毎の $\gamma$ 線データベースを参照して、1、2次元スペクトルを解析し、その結果とスペクトルデータを記憶装置に保存する。

i 1次元・2次元スペクトルの定量

測定終了後に、外部計算機の指令により、データ収集ハードウェア内の1次元スペクトルデータを外部計算機に読み込む。スペクトルデータ#1 - 7を足し合わせたサムスペクトルを作成する。サムスペクトル及び2次元スペクトルに対して、予め核種毎に最大3個ずつ準備された $\gamma$ 線データベースを参照して、ピークカウントデータを求める。誤差評価を行い、誤差付きの定量値を表示する。

ii 定量結果・スペクトルデータの保存

以上の定量結果及び1次元・2次元スペクトルデータを外部記憶装置に保存する。

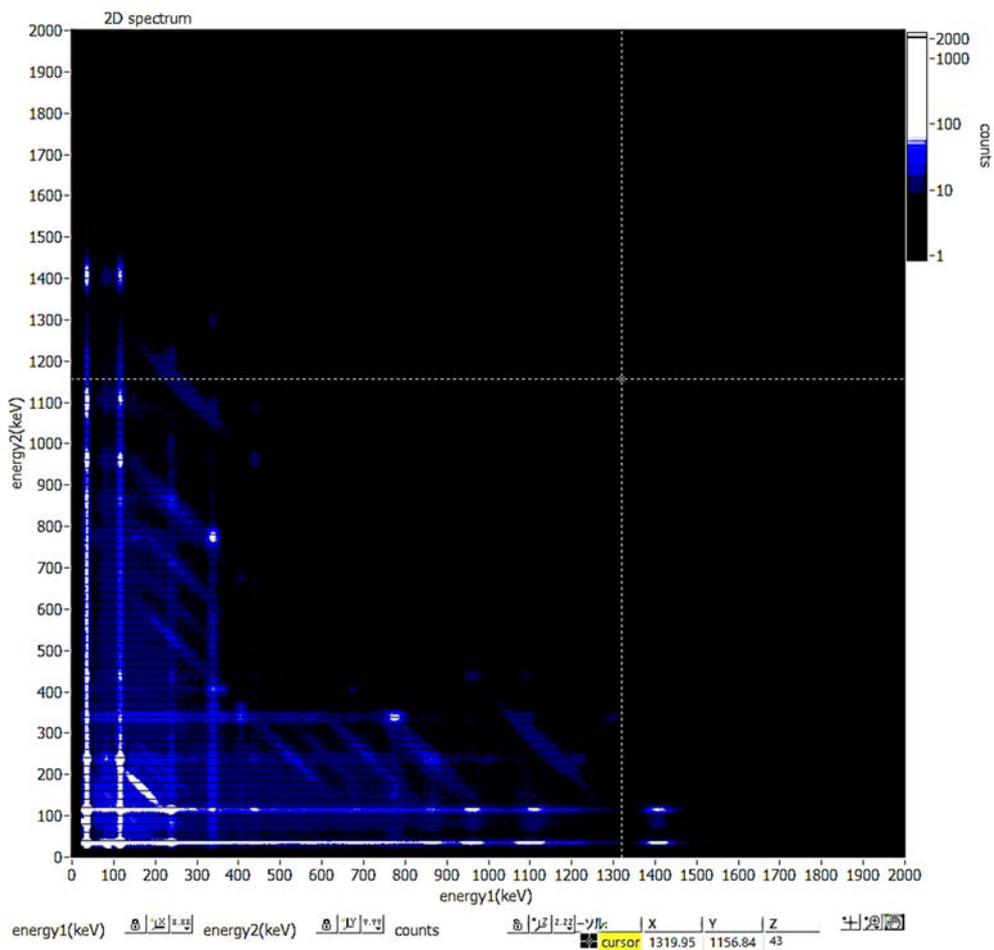


図 3.1-15 高速データ収集装置による2次元スペクトル  
CeBr<sub>3</sub>検出器4台により、Eu-152を用いて得られた。測定時間は47時間であった。右上のバーで表されているように、白色は高計数であり、白点はEu-152の同時計数ガンマ線ピークを表している。

(5) LN<sub>2</sub> 検出器容器 (図 3.1-16)

仕様

型式：大陽日酸株式会社製 CryoSystem2000

液体窒素容量：61 L

蒸発量：0.85 L/日

外径：559 mm

高さ：692 mm

口径：216 mm

空重量：26.3 kg

充填重量：82.5 kg

口径が大きく、4 台の Ge 検出器を冷却することが可能である。

LN<sub>2</sub> 残量監視装置を備える。



図 3.1-16 LN<sub>2</sub> 検出器容器及び LN<sub>2</sub> 残量監視装置

(6) LN<sub>2</sub> 運搬容器 (図 3.1-17)

仕様

型式：エーテック株式会社製 LICON-100N

液体窒素内容量：120 L

充填量 LN<sub>2</sub>：81 kg

全高：1364 mm

外径：508 mm

空重量：約 91 kg

充填時重量：171 kg

蒸発損失 (LN<sub>2</sub>)：2.4 L/day (2.0 %)

材質：SUS

キャスター付き

1 m フレキホース付き



図 3.1-17 LN<sub>2</sub> 運搬容器

(7) 検出器架台 (図 3.1-18 及び図 3.1-19)

仕様

架台下部：鉄製 50 mm アングル溶接

架台上部：鉛ブロック 50 個を載せ、外部  $\gamma$  線を遮蔽することが可能である。1 層あたり 6 個のブロックを積み、中央に 200×200 mm のスペースを設け、これを 7 層積み上げる。また、最上部には、手動開口機構を設け、最大 200×200 mm の開口とする。耐震のために、鉛ブロック側面を鉄板で覆い、鉄部は塗装を施してある。



図 3.1-18 検出器架台単体



図 3.1-19 検出器架台と LN<sub>2</sub> 検出器容器の組み合わせ

(8) クライオスタット (図 3.1-20 及び図 3.1-21)

同仕様のもの 3 台を購入した。日本分析センター所有の 2 台のゲルマニウム検出器用と、令和 3 年度に量研機構より借り受ける検出器 1 台用を冷却するために使用する。

仕様

モデル：アメテック株式会社製縦型クライオスタット (ディップスティックタイプ) CFG-PV4

同社製 PopTop タイプの Ge 半導体検出器に接続して使用する。

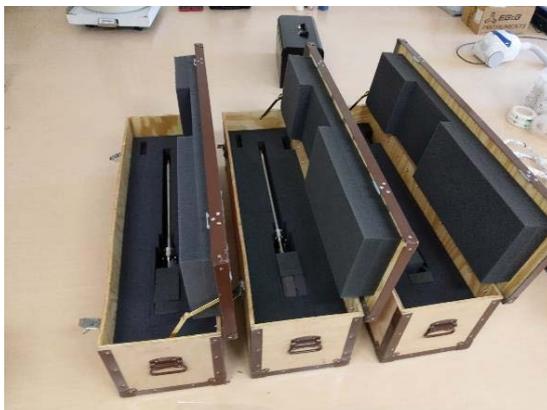


図 3.1-20 クライオスタット 3 台の全体写真



図 3.1-21 クライオスタット 1 台の拡大写真

(9) NT-100 データ収集装置改造

(4)で紹介した高速データ収集装置は新設の装置であるため、日本分析センターが所有する既存のデータ収集装置と比較することで動作確認を行うこととした。この装置は株式会社ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーション製多重MCA装置 (NT-100 データ収集装置) であり、2 台までの検出器のシングルス測定及び2 台の検出器を用いた多重 $\gamma$ 線測定が可能である。しかしながら、使用にあたり、以下の不具合が確認されたため、修理を実施した。

NT-100 データ収集装置において、測定スペクトルが 256ch 間隔で繰り返し表示、及び1つのエネルギーピークが2ないし3個に割れてしまう等の症状が発生した。当該装置の修理を担当しているメーカーである株式会社TNB 工房にて、スペクトルパルサーを用いた動作試験では、測定時間が進むにつれてスペクトルピーク部分がピークシフトすること、また、高エネルギー側へ肩部分が現れて、パルサー本来の半値幅よりもはるかに広いピークとして測定されることが確認された。(図 3.1-22)

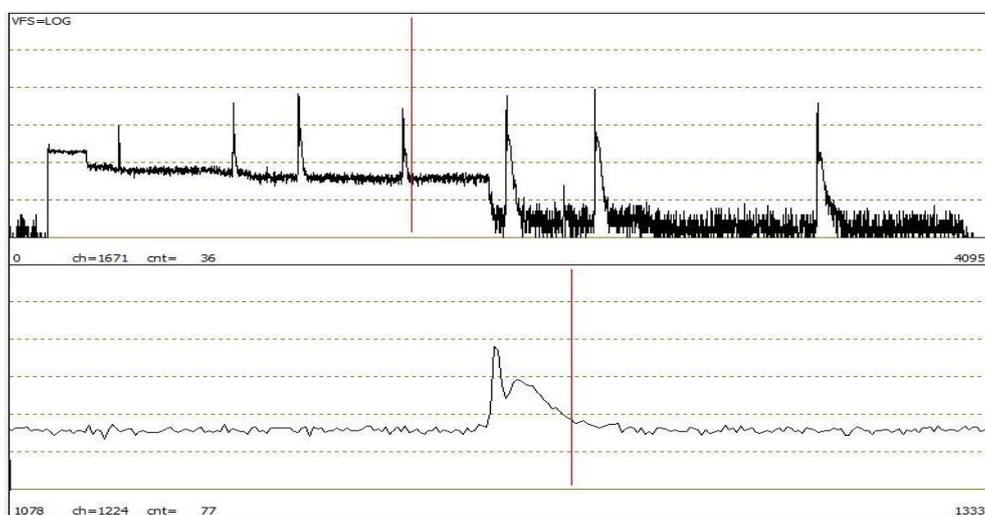


図 3.1-22 スペクトルパルサーによるスペクトル (修理前)

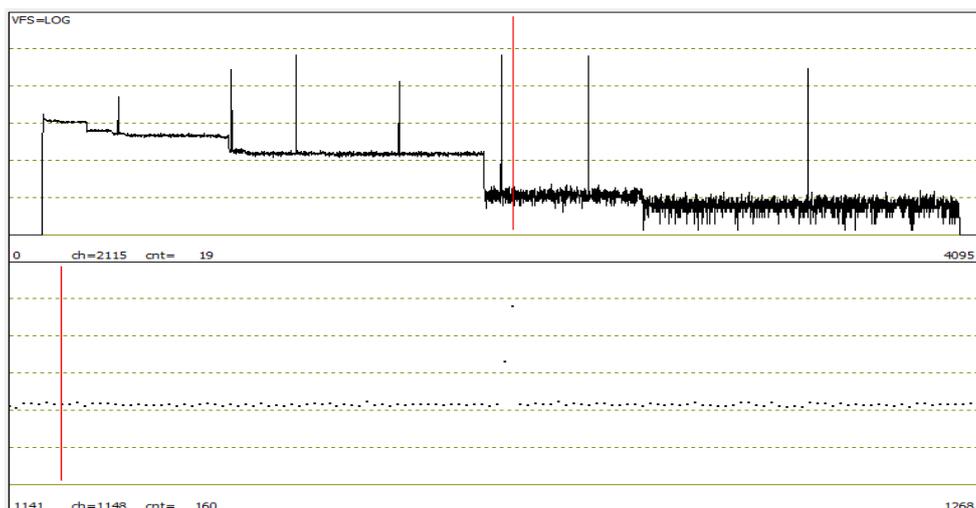


図 3.1-23 スペクトルパルサーによるスペクトル (修理後)

当該装置の List-MCA モジュールの ADC 回路までのアナログ電子回路を交換修理し、メーカーによる安定度試験を実施し、スペクトルに異常がないことが確認された。(図 3.1-23)

修理が完了した NT-100 装置を用いて、(4)で紹介した高速データ収集装置の動作確認を行った。図 3.1-24 に Eu-152 線源を用いて、同時計数測定により得られた 2 次元スペクトルを示す。縦軸、横軸は  $\gamma$  線エネルギーに比例する入力チャンネルである。2 次元図作成時に対称化が行われている。図 3.1-25 に入力チャンネルのゲイン合わせを行い、X 軸に射影した 1 次元スペクトル図を示す。図 3.1-24 の 2 次元スペクトルは APU8008A を用いて得られた同等のスペクトル (図 3.1-15) との比較からスペクトル形状がよく一致していることがわかった。図 3.1-25 の射影スペクトル図の比較により相対的カウント差が見られたが、大きくは検出器の台数の違いによるものであり (最大で約 12 倍)、それ以外には同時計数時間幅の差から来るものと思われる。APU8008A の方が高効率であることがわかった。

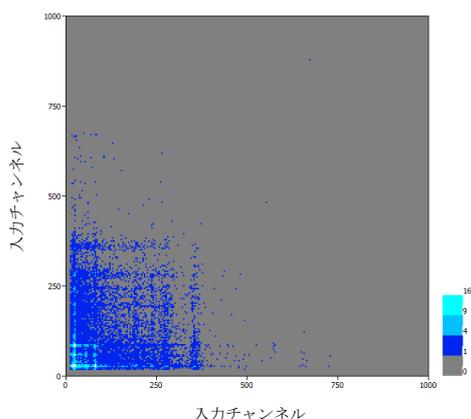


図 3.1-24 NT-100 装置による 2 次元スペクトル  
縦軸、横軸チャンネルは  $\gamma$  線  
エネルギーに比例する。

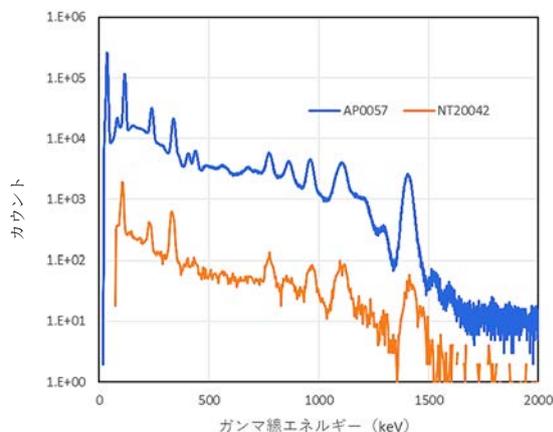


図 3.1-25 APU8008A (青) と NT-100 装置  
(橙) を用いて得られたスペクトルの比較

### 3.2 SDM 法に関する研究

#### 3.2.1 $\gamma$ 線 SDM 法開発

スペクトル解読法とは、多核種を含む試料を測定して得られたスペクトルは核種毎のスペクトルの線形和で表すことができるという第1原理に基づいた方法であり、このコード開発を行うことで、測定されたスペクトルデータを統一的に解析して、各核種成分に分解することを可能にする。令和2年度においては、この開発のために、標準 $\gamma$ 線スペクトルの整備を開始した。図3.2.1-1にゲルマニウム検出器によるEu-152、Ba-133、Co-60及びバックグラウンド（線源なし）のスペクトルを示す。同様に、NaI、CeBr<sub>3</sub>検出器によるスペクトルを図3.2.1-2、図3.2.1-3に示す。これらは、規格化など一定の加工を施したのちに、SDM解析の基準スペクトルとなる。

スペクトル定量法はこれまで自主研究により開発しており、一部核種について従来の代表的定量法であるTotal Peak Area法との比較を行っている。令和2年度の本研究では、全6核種についての定量精度をまとめ、また放射能標準物質の定量に関する解析を行い、日本原子力学会欧文誌に投稿した。（原理開発と定量を自主研究で、精度評価を本研究で実施したものを取りまとめた。）

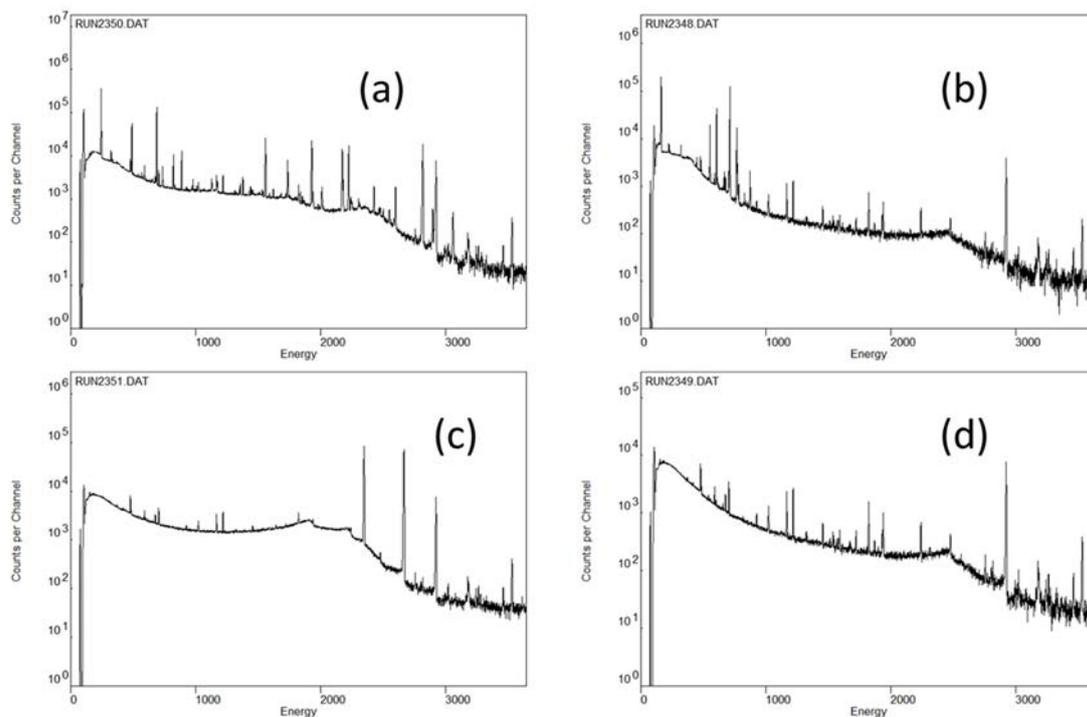


図 3.2.1-1 ゲルマニウム検出器で得られた $\gamma$ 線標準スペクトル  
 (a)Eu-152、(b)Ba-133、(c)Co-60、(d)バックグラウンド（線源なし）



令和3年度に予定しているSDM-BG法開発に備えて、SDM-B法の予備的検討を進めた。SDM-B法は液体シンチレーションカウンタ（以下、「LSC」と略す。）で測定した $\beta$ 線、X線（+ $\gamma$ 線）スペクトルを扱う方法である。これは、 $\gamma$ 線スペクトルを解析するSDM-G法と組み合わせて、SDM-BG法とすることで、 $\beta$ 線のみを放出する核種、 $\gamma$ 線のみを放出する核種、 $\beta$ 線 $\gamma$ 線両方を放出する核種を統一的に解析することを可能にする。

廃炉・汚染水対策事業（IRID/JAEAからの委託事業）においてLSC測定対象核種への妨害核種の影響評価のために取得したスペクトルデータを用いて、本研究では、特にC1-36とCs-137複数核種の弁別、定量方法について検討を行い、令和3年3月18日に一般社団法人日本原子力学会2021年春の年会（オンライン開催）2D14において、SDM-B法の解析結果を報告した。ここでは、Cs-137及びC1-36の混合溶液のLSC測定を行い、得られたLSCスペクトルの解析から、主成分であるC1-36の定量結果は、Cs-137濃度に依らず、3%以下の精度が得られることがわかった。一方で、Cs-137の定量結果は、主成分C1-36濃度に対するCs-137濃度約30%で誤差が約24%、10%での誤差が約50%という結果が得られた。

以上によりSDM法はLSCスペクトル解析にも十分適用できることがわかった。

### 3.2.2 放射線シミュレーションに関する研究（再委託先：新潟大学）

まず、本研究で実施するシミュレーションに必要な環境を構築した（図 3.2.2-1）。ワークステーションに OS として Ubuntu20.04.2 LTS をインストールし、Geant4[3.2.2-1][3.2.2-2][3.2.2-3][3.2.2-4]を用いたシミュレーションを実施するために必要な環境を構築した。テストシミュレーションを実施し、正常に計算できることを確認した。

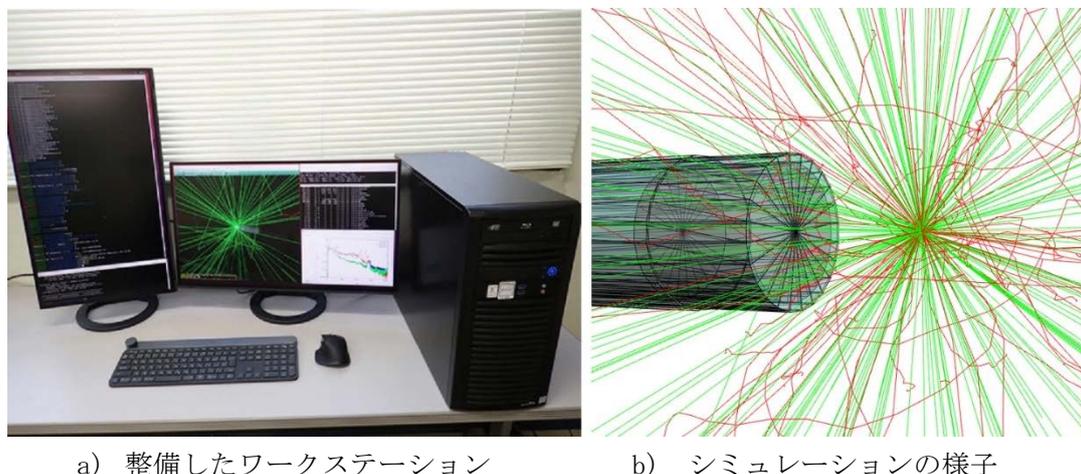


図 3.2.2-1 シミュレーション環境

次に、Ge 検出器、NaI 検出器、CeBr<sub>3</sub> 検出器を用いた  $\gamma$  線測定試験結果を考慮したチューニングを実施し、シミュレーションの高精度化を図った。Ge 検出器のチューニングは日本分析センターの GMX（アメテック株式会社製 GMX40P4-70-A-S、53-TN33023A）及び新潟大学の GEM（アメテック株式会社製 GEM-20180-P、36-TP11275B）の実測結果を用いて実施した。GMX は n 型、GEM は p 型とタイプが異なる Ge 検出器である。NaI 検出器及び CeBr<sub>3</sub> 検出器のチューニングは、結晶サイズがそれぞれ  $\phi 51 \times 51$  mm 及び  $\phi 38 \times 38$  mm の株式会社サイオニクス製検出器の実測結果を用いて実施した。

チューニングの基準として用いた実測スペクトルは、 $\gamma$  線標準線源を各検出器前面から 5～15 cm 程度離れた位置に設置して測定した。測定したスペクトルから、同条件下で線源のみを取り除いて測定したバックグラウンドスペクトルを差し引いたスペクトルを作成し、シミュレーション結果と比較した。また、実測スペクトルの各  $\gamma$  線ピークをガウス関数でフィッティングすることでピークチャンネルと半値幅（FWHM）を求め、それを用いてエネルギー校正関数及び半値幅のエネルギー依存性の関数を決定し、シミュレーションスペクトル作成に用いた。図 3.2.2-2 に GMX の実測結果から求めたエネルギー校正関数及び半値幅エネルギー依存性関数のグラフを示す。赤線はフィッティング結果で、フィッティング関数は、それぞれエネルギー校正関数は一次関数、半値幅  $\Gamma$  はエネルギー  $E$  及びパラメータ  $a$  と  $b$  で表される以下の関数を用いた。

$$\Gamma = \sqrt{aE + b}$$

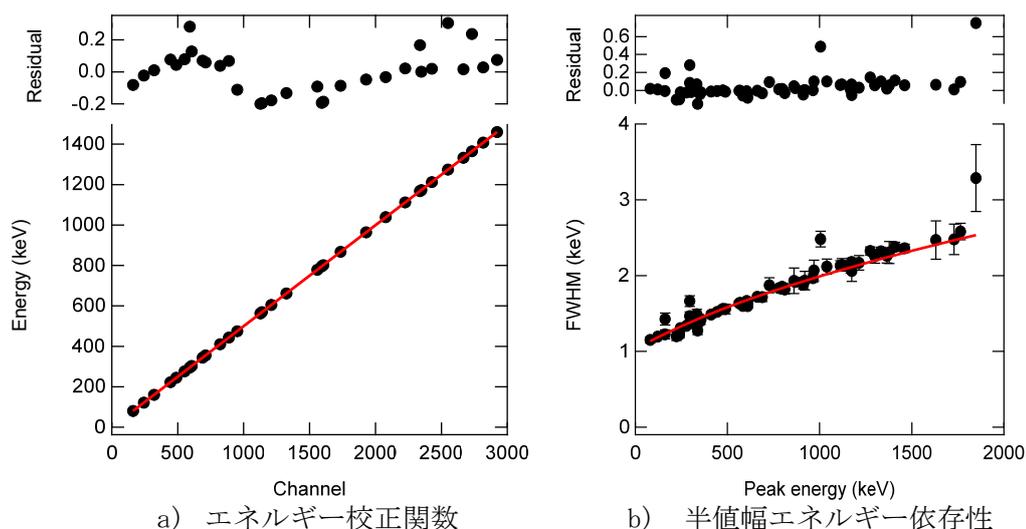


図 3.2.2-2 エネルギー校正及び半値幅エネルギー依存性の関数

シミュレーションでの検出器は、データシートなどの情報を元に、結晶、ケースなどをできるだけ正確に入力して作成した。検出器以外の物質については、GEM については比較用実測データが鉛遮蔽で囲った配置のものであり、影響が大きいと考えられたのでシミュレーションでも鉛遮蔽を考慮した。一方、GMX 及び NaI、CeBr<sub>3</sub> については、検出器のみを考慮してシミュレーションを実施した。以上の設定でのシミュレーションを実施し実測と比較するとともに、各種シミュレーションパラメータをチューニング[3.2.2-5]することでさらなる高精度化を図った。

シミュレーション結果からスペクトル作成の際には、実測のエネルギー分解能を再現するために半値幅エネルギー依存関数を考慮したガウス関数型乱数によりシミュレーションで得られた 1 イベント毎の検出器出力に幅を持たせた。図 3.2.2-3 にエネルギー分解能を考慮した場合としない場合のスペクトルの一例を示す。

以上の手順により作成したシミュレーションスペクトルと実測との比較を図 3.2.2-4 から図 3.2.2-16 に示す。シミュレーションスペクトルは、各チャンネルの計数をシミュレーションのイベント数で割って 1 崩壊あたりのスペクトルを作成後、実測の崩壊数（放射能×測定時間）を乗じた値で表示した。Ge 検出器については、GEM では 2 核種（Eu-152 と Cs-137）、GMX では 5 核種（Eu-152、Cs-137、Cs-134、Co-60、Ba-133）での比較を実施した。いずれのスペクトルもシミュレーションが実測をよく再現できていることが分かる。NaI 検出器と CeBr<sub>3</sub> 検出器は、それぞれ 3 核種（Eu-152、Co-60、Ba-133）での比較を実施し、概ね実測を再現できることを確認した。

チューニングしたシミュレーション体系にて、標準線源が無い核種など実測が難しい核種も含めて、SDM 用基準スペクトルをシミュレーションで作成した。作成した基準スペクトルの例として、GMX、NaI、CeBr<sub>3</sub> 検出器で距離 5 cm にある点線源（Mn-54、Rh-102、Ag-110m、Eu-154）を測定することを想定して作成した基準スペクトルを図 3.2.2-17 から図 3.2.2-20 に示す。

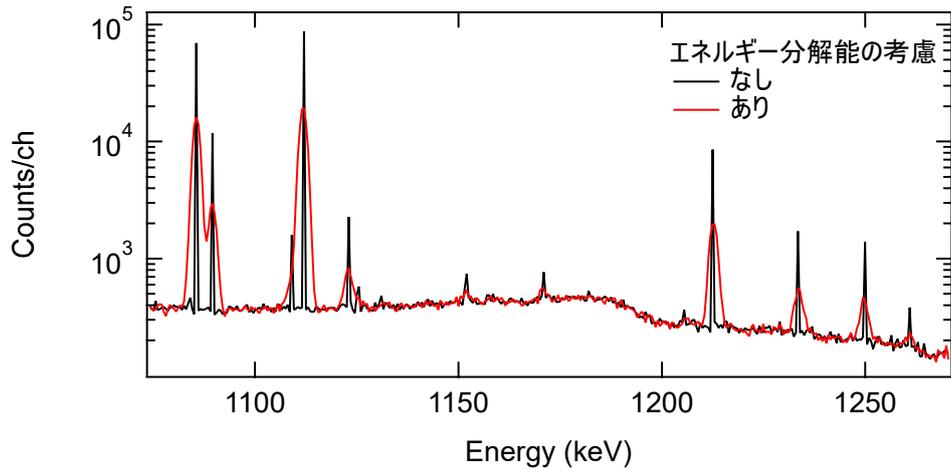


図 3.2.2-3 エネルギー分解能を考慮したスペクトル

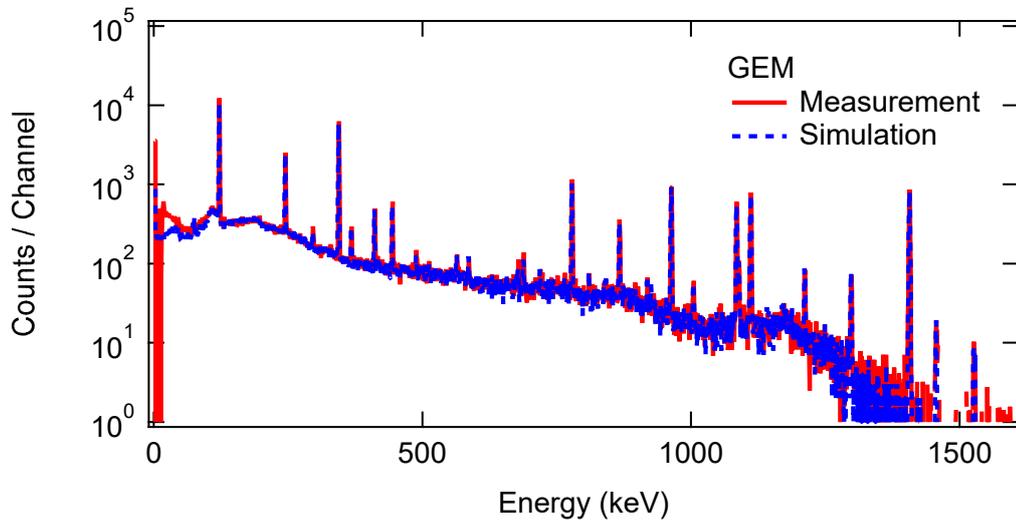


図 3.2.2-4 シミュレーションと実測の比較 (検出器：GEM、線源：Eu-152)

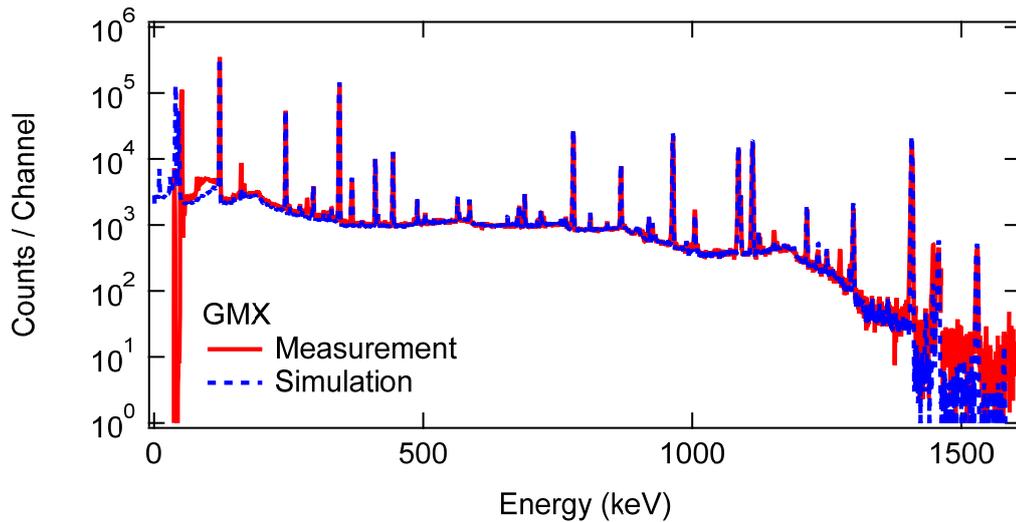


図 3.2.2-5 シミュレーションと実測の比較 (検出器：GMX、線源：Eu-152)

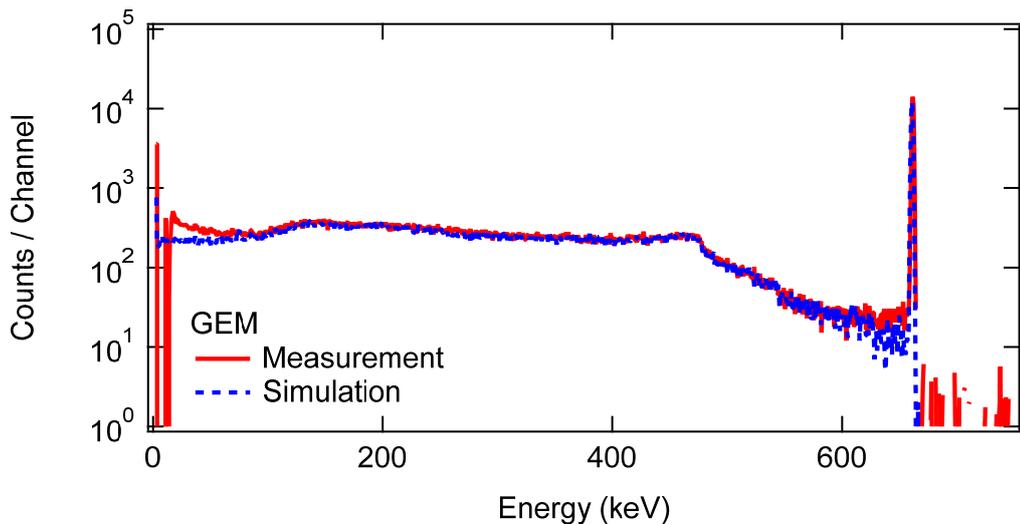


図 3.2.2-6 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GEM、線源 : Cs-137)

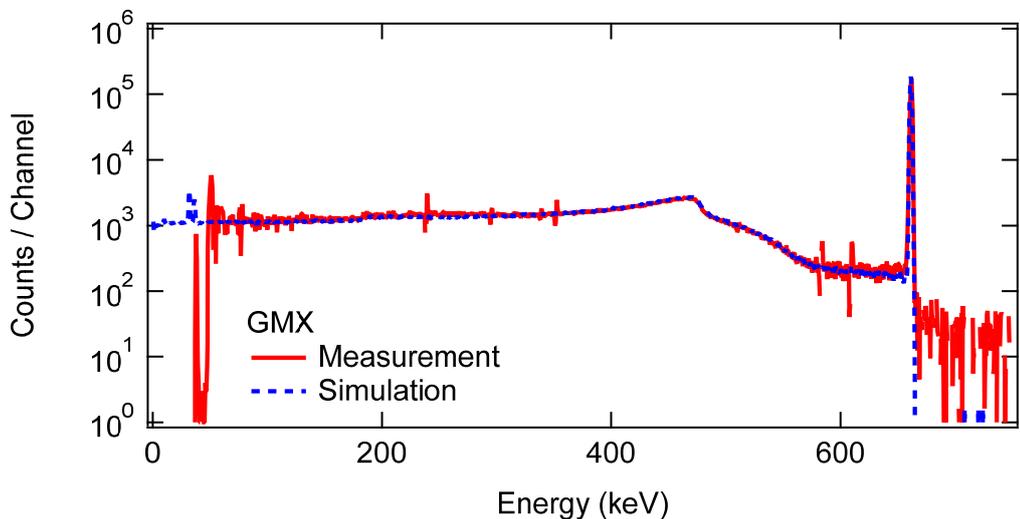


図 3.2.2-7 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GMX、線源 : Cs-137)

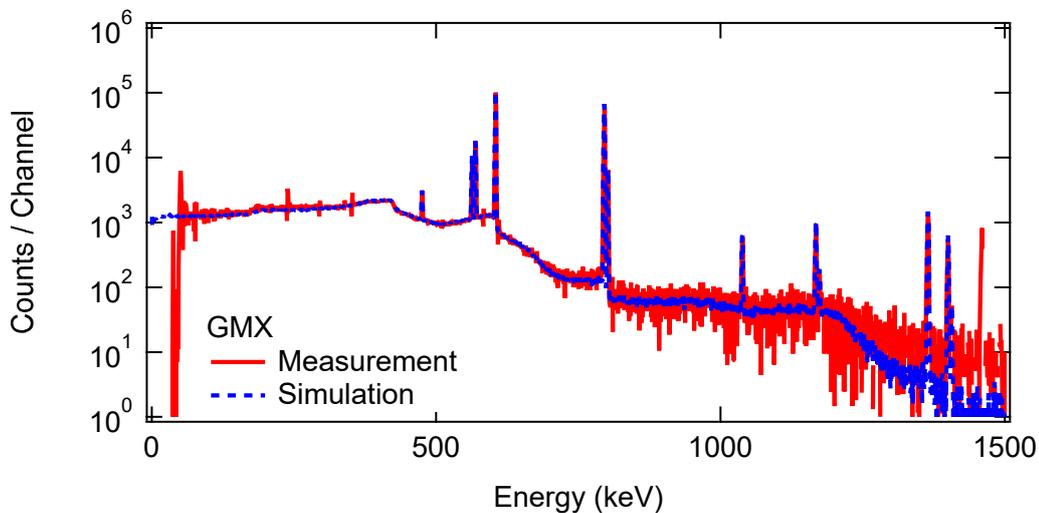


図 3.2.2-8 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GMX、線源 : Cs-134)

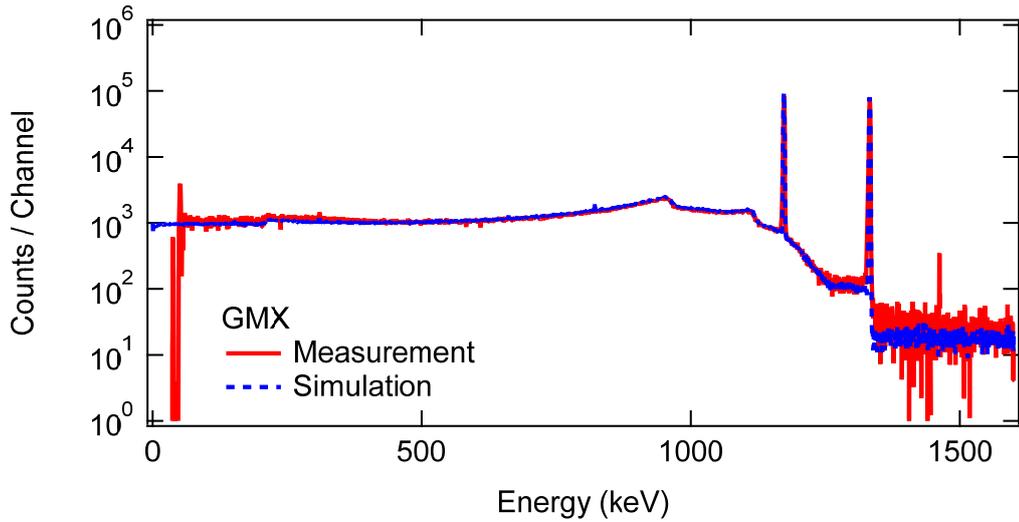


図 3.2.2-9 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GMX、線源 : Co-60)

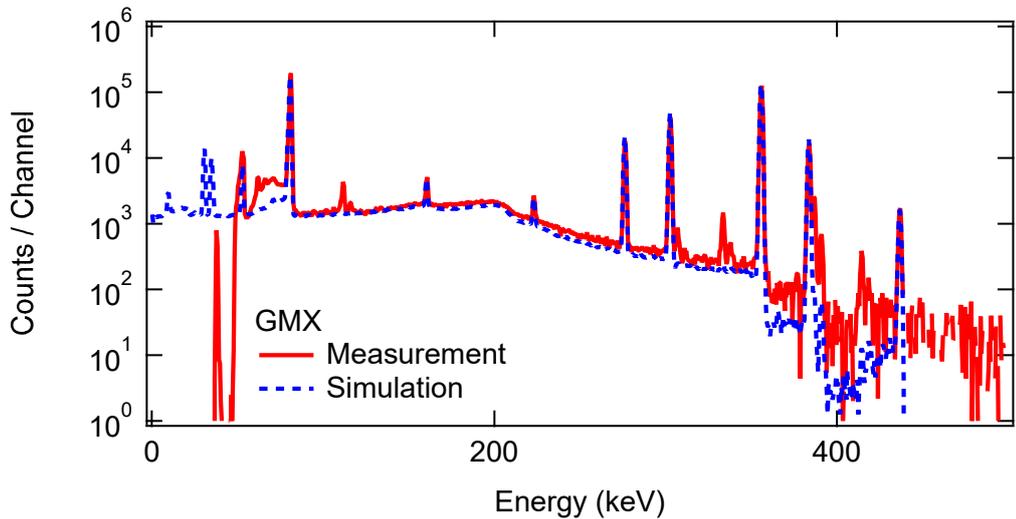


図 3.2.2-10 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : GMX、線源 : Ba-133)

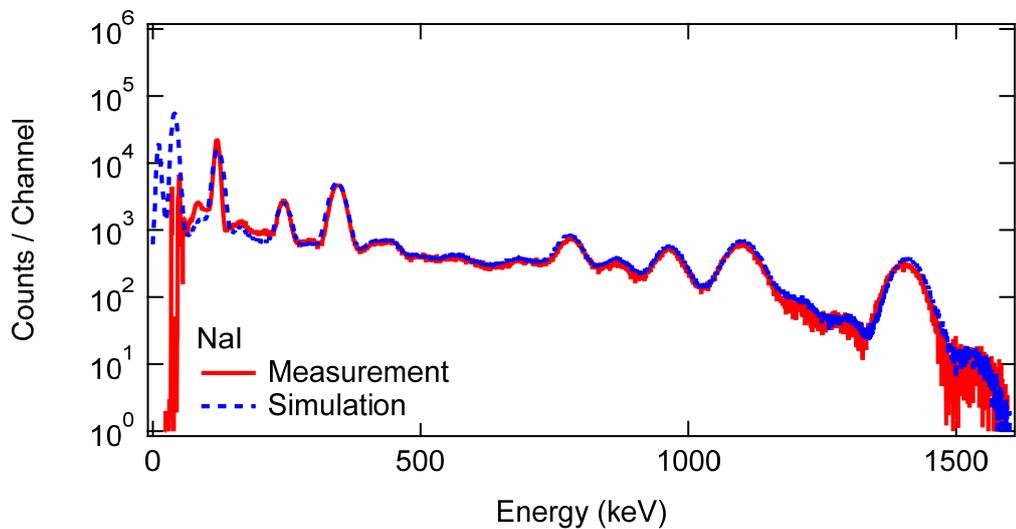


図 3.2.2-11 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : NaI、線源 : Eu-152)

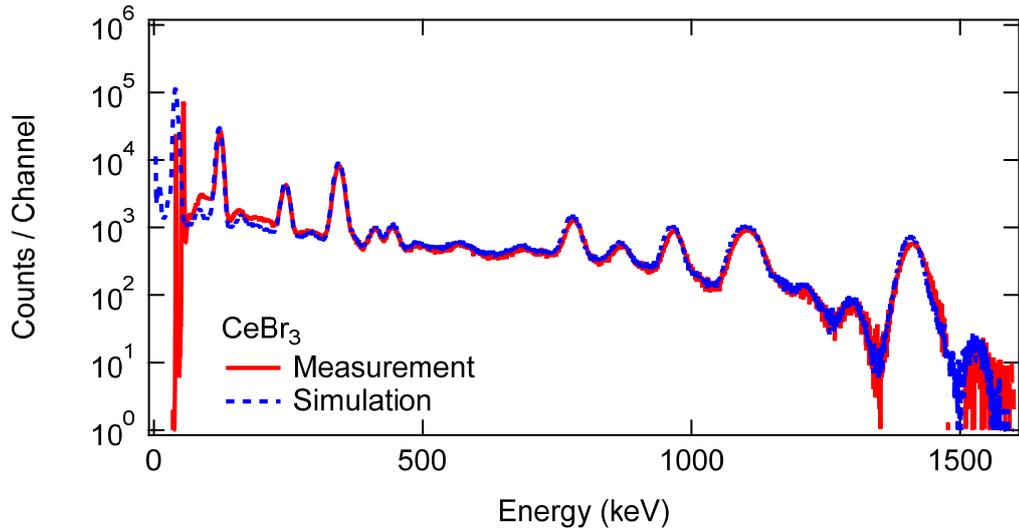


図 3.2.2-12 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : CeBr<sub>3</sub>、線源 : Eu-152)

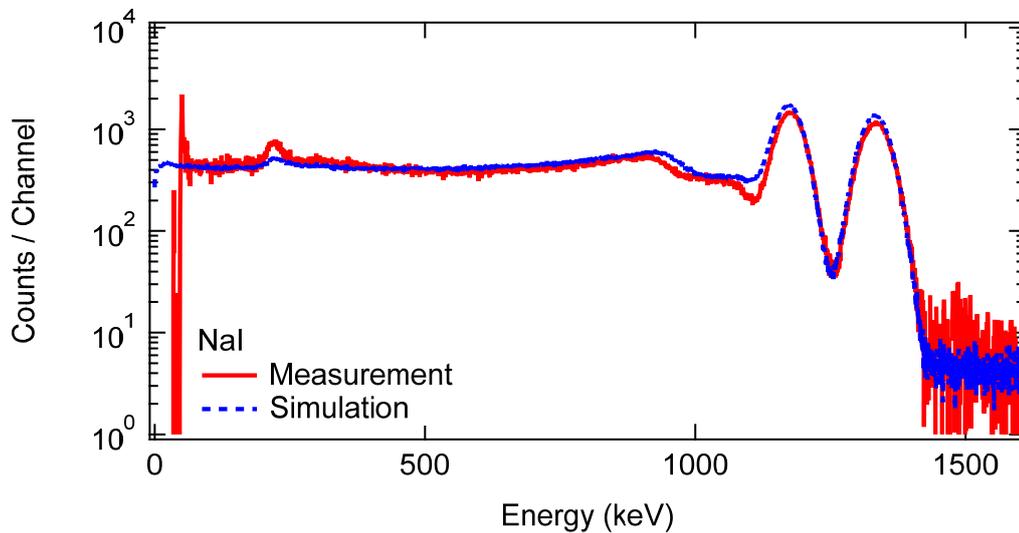


図 3.2.2-13 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : NaI、線源 : Co-60)

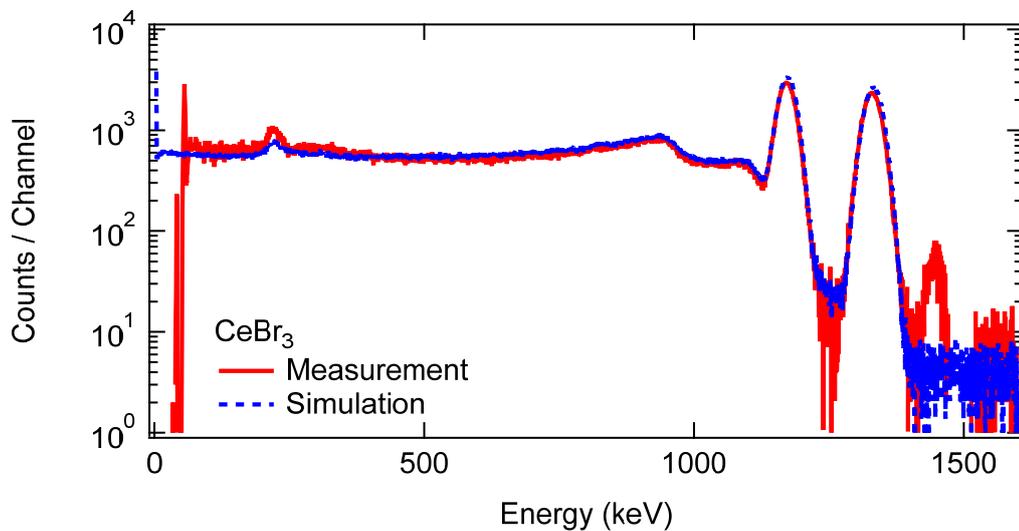


図 3.2.2-14 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : CeBr<sub>3</sub>、線源 : Co-60)

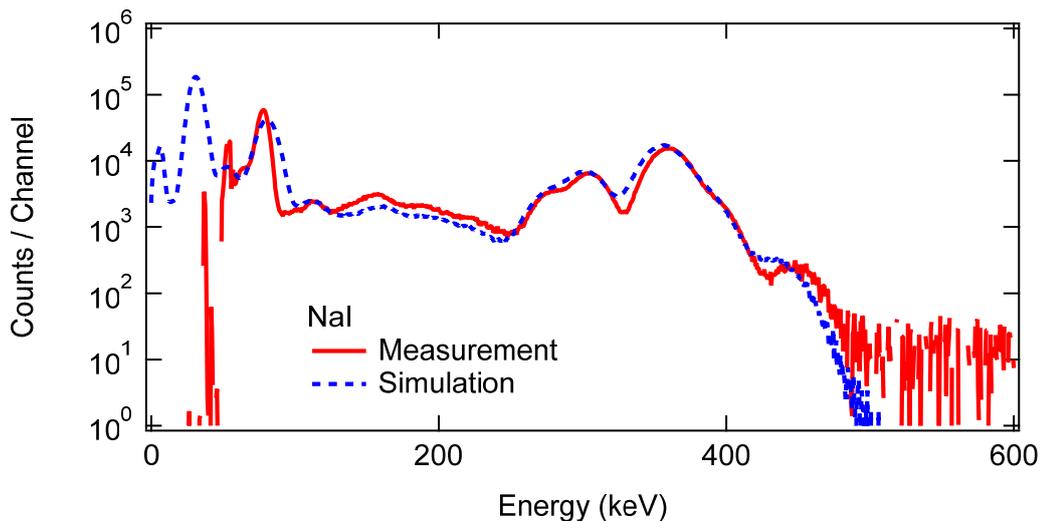


図 3.2.2-15 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : NaI、線源 : Ba-133)

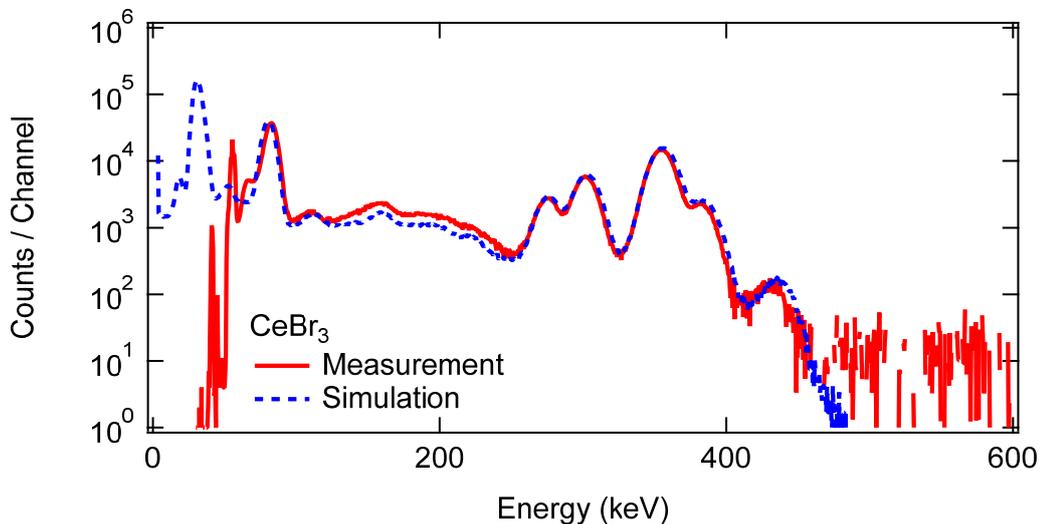


図 3.2.2-16 シミュレーションと実測の比較 (検出器 : CeBr<sub>3</sub>、線源 : Ba-133)

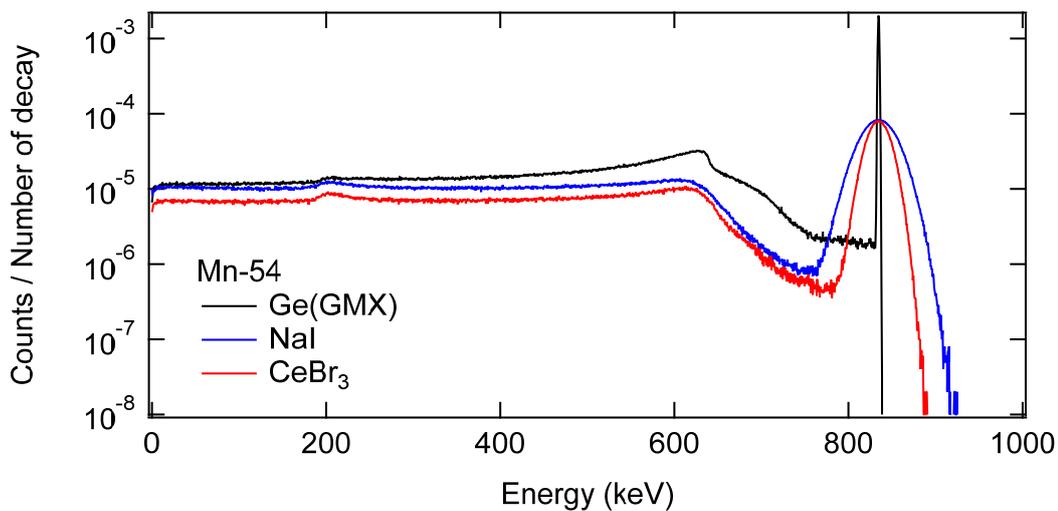


図 3.2.2-17 SDM 用基準スペクトルの例 (検出器 : GMX、NaI、CeBr<sub>3</sub>、線源 : Mn-54)

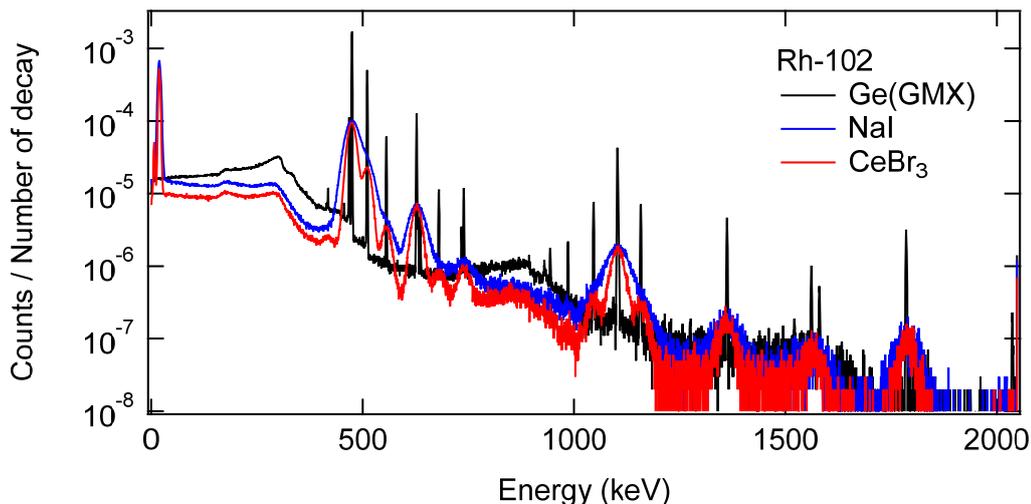


図 3.2.2-18 SDM 用基準スペクトルの例 (検出器 : GMX、NaI、CeBr<sub>3</sub>、線源 : Rh-102)

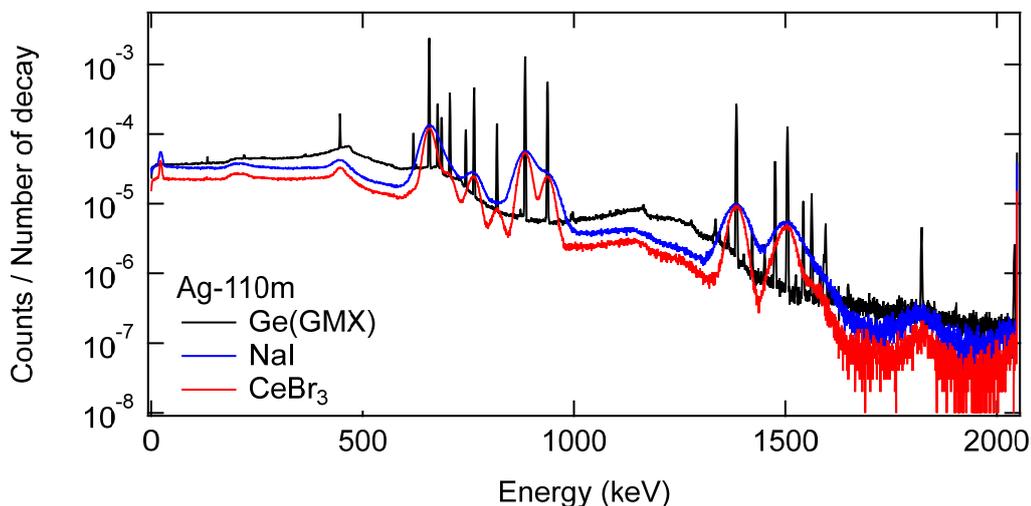


図 3.2.2-19 SDM 用基準スペクトルの例 (検出器 : GMX、NaI、CeBr<sub>3</sub>、線源 : Ag-110m)

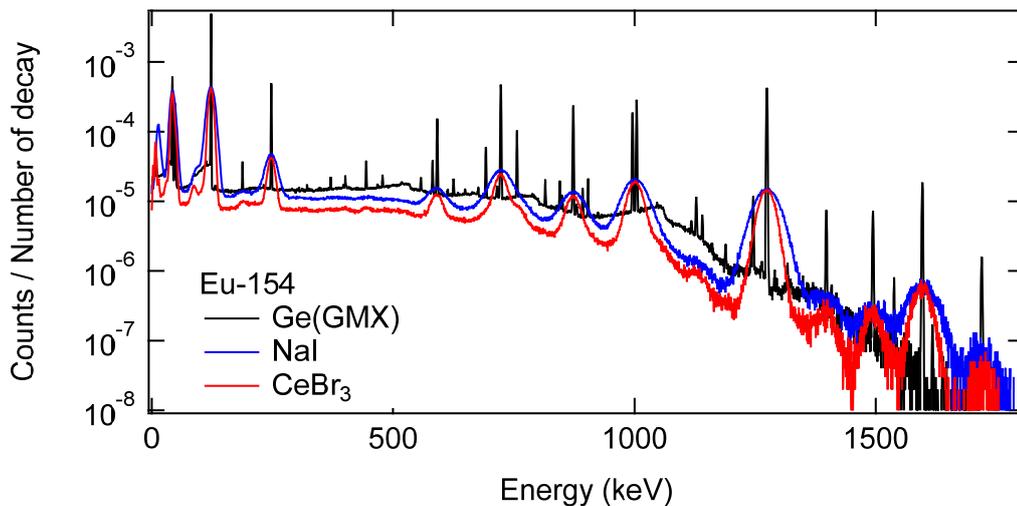


図 3.2.2-20 SDM 用基準スペクトルの例 (検出器 : GMX、NaI、CeBr<sub>3</sub>、線源 : Eu-154)

参考文献

- [3.2.2-1] Geant4, <https://geant4.web.cern.ch> (参照：2021年1月1日) .
- [3.2.2-2] Agostinelli, S. et al., Geant4 - a Simulation Toolkit, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, vol. 506, issue 3, 2003, pp.250-303.
- [3.2.2-3] Allison, J. et al., Geant4 Developments and Applications, IEEE Transactions on Nuclear, vol. 53, issue 1, 2006, pp.270-278.
- [3.2.2-4] Allison, J. et al., Recent Development in Geant4, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, vol. 835, 2016, pp.186-225.
- [3.2.2-5] Goto, J. et al., Introduction of Multiple  $\gamma$ -ray Detection to Charged Particle Activation Analysis, J. Radioanal. Nucl. Chem., vol. 314, 2017, pp.1707-1714.

### 3.2.3 機械学習を用いた核種認識法の開発（再委託先：九州大学）

令和2年度はまず、高速 GPU サーバーを整備し、機械学習に必要な環境を整えた。このサーバーを用いて、ゲルマニウム検出器で得られる $\gamma$ 線スペクトルの核種識別を行う機械学習モデルを構築した。順方向全結合型及び CNN を用いて、シミュレーションで求めたスペクトルの試験解析を実行した。その結果、単核種識別についてはほぼ 100 %、複数核種（Co-60、Cs-134、Cs-137、Eu-152 等 7 核種）の場合も 80 %程度で核種識別が可能であることを明らかにした。

#### (1) 高速 GPU サーバーの整備

##### ① GPU による学習

教師あり機械学習では大量のデータを用いて、モデルにフィッティングさせる数値計算を何度も繰り返す必要があることから、近年では本来画像処理用に使用される GPU ボードを学習に用いることが多い。GPU ボードは、画像処理において 3 次元空間中における大量の座標を大規模なメモリに収めながら数値計算する必要に迫られて開発されたものである。さらに数値計算では同時に多くの演算を行えるように設計されており、CPU が処理を 1 つ 1 つ順番にこなしていくのに対して、数千個の大量の演算器を用いて一度に計算する、いわゆる並列計算が実行可能となっている。この大規模なメモリと数値計算能力の高さを活用することで、CPU による計算に比べ数倍～100 倍ほど速く学習過程を終了することができる。

機械学習モデルの開発では、順方向全結合型ニューラルネットワークや畳み込みニューラルネットワークなど、モデルの外枠を決める際にももちろん学習過程による試験が必要だが、外枠が決まった後もハイパーパラメータの最適化を行うごとにも学習が必要となる。そこで、本研究でも GPU を複数台備えたサーバーマシンを整備し、学習過程に使用することとした。

##### ② 整備した GPU サーバー及び開発環境の構築

機械学習に必要な GPU サーバーマシン（概観写真 図 3.2.3-1、スペック一覧 表 3.2.3-1）を整備し、機械学習に必要なライブラリ群（TensorFlow、Keras）及び GPU による高速計算のためのライブラリ（CUDA）の整備を実施した。具体的な手順は以下の通りである。

- i 本来画像処理を担う GPU ボードを機械学習の数値計算に用いることができるように汎用並列コンピューティングプラットフォーム CUDA（ver. 10.0）をインストール
- ii 開発環境構築に用いる Anaconda をインストール
- iii 開発言語である Python ver. 3.6.9 をインストール
- iv TensorFlow-gpu（ver. 1.13.1）及びそのラッパーである Keras（ver. 2.2.5）を Anaconda からインストール
- v その他グラフ描画ライブラリなどの必要なライブラリをインストール



図 3.2.3-1 今回整備した GPU マシン「RC GPU Server nami4 II (リアルコンピューティング株式会社製)」の写真

表 3.2.3-1 今回整備した GPU マシンのスペック一覧

筐体	5U 水冷静音ケース
CPU	AMD EPYC 7232 (3.1 GHz、8 core) L3/32 MB
本体メモリ	128 GB (16 GB×8) DDR4-2933 ECC Reg
本体ストレージ	SSD 500 MB M.2/ HDD 4 TB SATA
ネットワーク	10 GB×2 (on board)
VGA	NVIDIA GeForce RTX3090×2 (CUDA コア : 10496 メモリ : 24 GB GDDR6X)
OS	Ubuntu Linux プリインストール

その後、簡単な MNIST の例題などを実行し問題無く機械学習が実施できることを確認した。

## (2) 核種識別用機械学習モデルの開発

核種識別モデルの構築のため、順方向全結合型ニューラルネットワーク及び畳み込みニューラルネットワークモデルに対して、データの前処理やネットワーク構造ごとにどのような性能が得られるか確認した。その後、高性能が得られた畳み込みニューラルネットワークモデルについて、最もよく用いられるスペクトロメトリの手法「コベル法」と本モデルの性能を比較し、機械学習モデルがより高い性能を示すことを明らかにした。

### ① 順方向全結合型ニューラルネットワーク

最も伝統的かつ、十分に万能性を備えることで知られている順方向全結合型ニューラルネットワークについて核種識別の試験モデルを作成した。モデルの代表的な例を図 3.2.3-2 に示す。

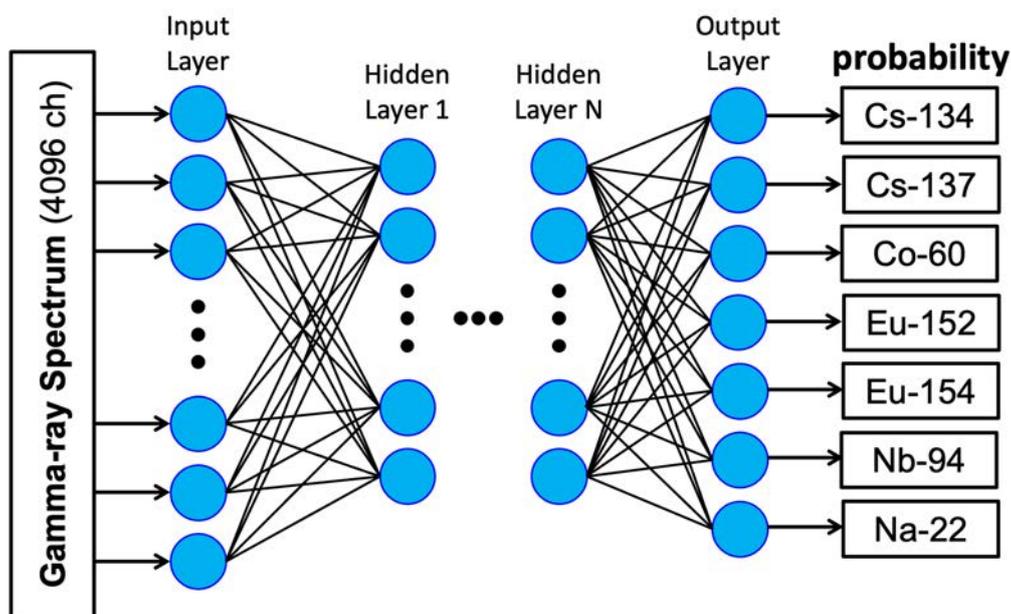


図 3.2.3-2 代表的な順方向全結合型ニューラルネットワーク  
(Nは隠れ層の数を表す。)

i 単核種解析

本研究は機械学習モデルがスペクトル全体の情報を活用して核種識別を実施できることを想定している。その原理実証のため、まず想定している7核種（Cs-134、Cs-137、Co-60、Eu-152、Eu-154、Nb-94、Na-22）のうち1核種のみを含む低統計なスペクトルに対して、最も単純な隠れ層1層のモデルで「分類」による核種識別が可能かどうか調査した。シミュレーションでは、各核種ランダムに放射能を与えたγ線スペクトルを多数生成し、学習と検証に用いた。

その結果、単核種のみ含むスペクトルに対しては、検証用データ（学習に用いていないスペクトル）を与えても、どの核種も90%を超える精度で識別できることがわかった。

ii 複数核種解析

そこで、7核種が混在するスペクトルとして、各々の核種が50%の確率で含まれるスペクトルを作成し、機械学習モデルの学習と検証に用いることにした。なお、選ばれた核種の放射能は本解析でもランダムに決めている。このモデルを用いて、検証用データのスペクトルに対して核種の有無を分類問題として識別させた。

表 3.2.3-2 複数核種の存在するスペクトルに対して機械学習モデルによる解析を行った結果  
(核種正答率はスペクトル中に自身を含む際に正しく判定される割合、全核種正答率はスペクトルに含まれる全ての核種を正しく存在すると識別できる割合を示す。)

Nuclide	Cs-134	Cs-137	Co-60	Eu-152	Eu-154	Nb-94	Sn-126
核種 正答率	95.8 %	95.1 %	97.4 %	94.9 %	95.3 %	96.7 %	97.2 %
全核種 正答率	77.3 %						

解析の結果を表 3.2.3-2 に示す。この表より、各核種が含まれているかどうかは、核種に大きく依存せず単核種識別の結果と同様に95%以上の識別能力があることがわかる。スペクトル

3.2.3-3

中に含まれる核種全てを識別でき、なおかつ含まれない核種を誤認識もしない例を「全核種正答率」と定義すると、その値も 77.3 %に達していることがわかった。

② 1次元畳み込みニューラルネットワーク

順方向全結合型ニューラルネットワークでの核種識別能を確認できたため、次は「1次元CNN」を取り入れた回帰による機械学習モデルへ発展させた。このモデルでは定量的な評価を実施でき、なおかつスペクトルの局所的形状（光電ピーク、コンプトンエッジなど）を「フィルタ」による特徴量抽出で取り扱えるため、さらなる精度向上が見込まれる。代表的なモデルの概要図を図 3. 2. 3-3 に示す。

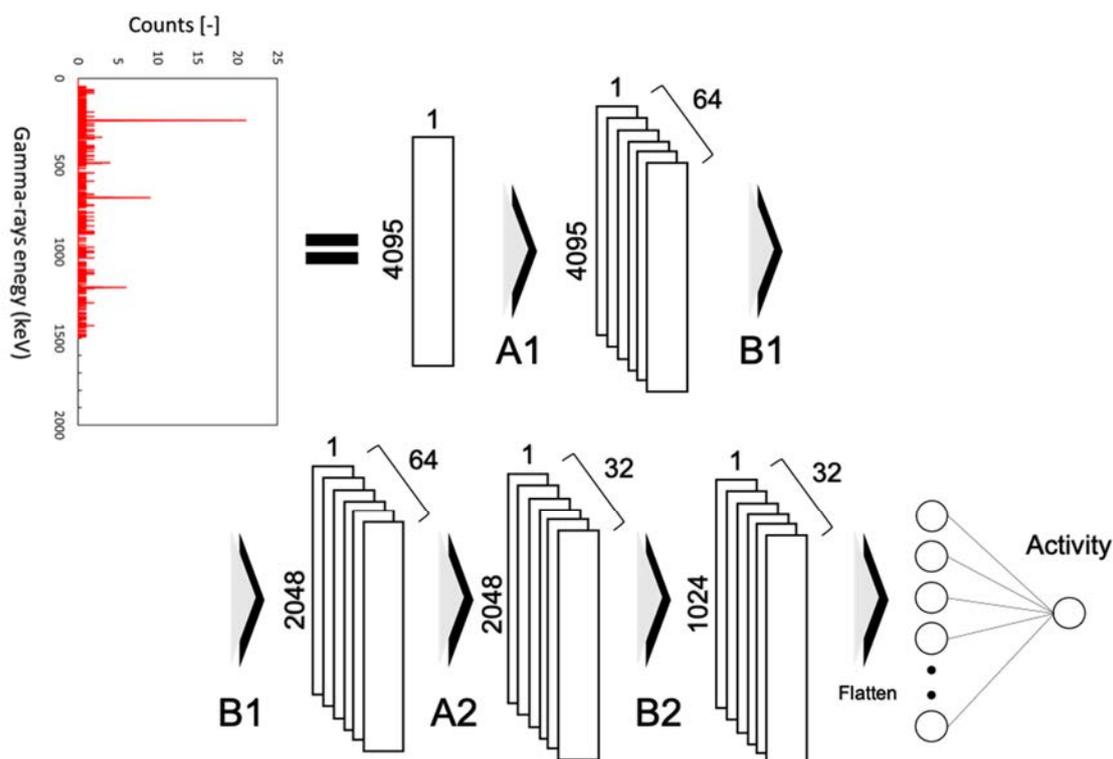


図 3. 2. 3-3 代表的な 1次元畳み込みニューラルネットワークによる放射能推定モデルの例

このように、順方向全結合型ニューラルネットワークでは「分類問題」であったものを「回帰問題」として取り扱うことで、サンプルに含まれる放射能を予測するモデルとなっている。これにより、スクリーニングレベルを設定して核種識別を行うことができるようになる。

令和 2 年度は、この CNN モデルによる有効性を確認するため、まずは Cs-134、Cs-137 を含み、妨害核種として K-40 が存在する系に対してシミュレーションを実施し、学習と検証用のスペクトルを作成した。なお、放射能はランダムに与え、計測時間は 60 秒間に設定した。検証用データに関しては、伝統的によく用いられ、なおかつ精度も高いことで知られている「コベル法」による解析も行い、機械学習モデルの推定結果と比較した。

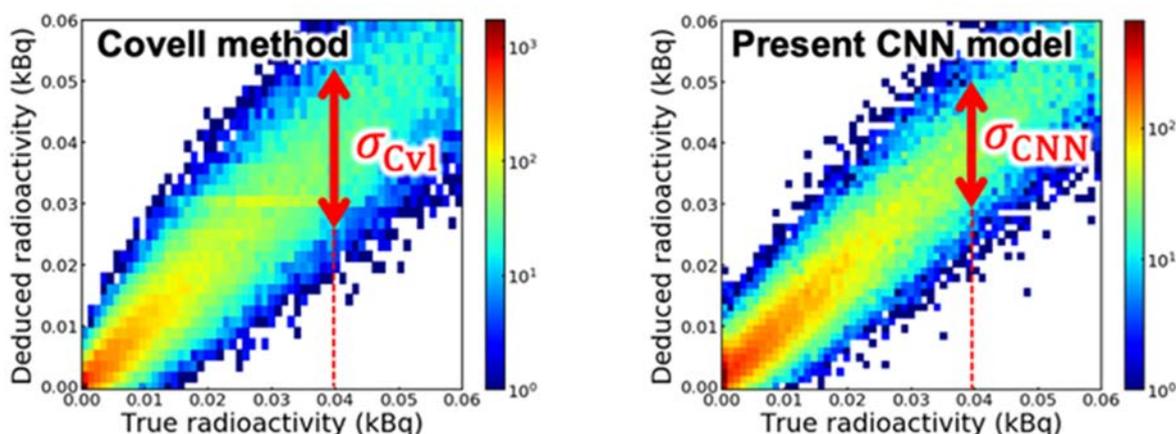


図 3.2.3-4 Cs-134、Cs-137 及び K-40 が含まれるサンプルに対する Cs-137 の放射能をコベル法によって解析した結果(左)と CNN をとりこんだ機械学習モデルによって推定した結果(右)の比較

その結果のうち、Cs-137 の放射能を推定したものの例を図 3.2.3-4 に示す。横軸が正解の放射能の値であり、本来は神のみぞ知る値だが、今回はシミュレーションデータを用いているため、一意に決まる。縦軸が、コベル法及び機械学習モデルで導出した放射能である。つまり縦軸方向の広がり分布の標準偏差となる。これを両者比較することで機械学習モデルの有用性を考察する。この比較において、より定量的に評価できるように、次で定義される計測時間増倍係数を導入する。

$$c \equiv \left( \frac{\sigma_{CVL}}{\sigma_{CNN}} \right)^2$$

ここで、 $\sigma_{CVL}$  及び  $\sigma_{CNN}$  はそれぞれ、コベル法による解析結果の標準偏差と機械学習による推定結果の標準偏差である。コベル法が光電ピークを計数する手法であることを考慮すると、 $\sigma_{CVL}$  は、ほぼその統計不確かさで決まると考えられる。簡単のため、コベル法では着目した光電ピークはバックグラウンド成分を含まないと仮定すると、計数時間  $t$  と  $\sigma_{CVL}$  の間には次の様な関係がある。

$$\sigma_{CVL} = \frac{1}{\sqrt{A\epsilon t}}$$

ここで、 $A$  及び  $\epsilon$  はそれぞれサンプル中の放射能と着目している  $\gamma$  線の光電吸収確率を表している。両辺を 2 乗すると、統計的には計測時刻に反比例して分散  $\sigma_{CVL}^2$  の値が小さくなっていることがわかる。すなわち、機械学習で得られた分散  $\sigma_{CNN}^2$  に対する比をとってその値を  $c$  とすれば、コベル法で機械学習モデルと同等の標準偏差（あるいは精度）を達成するためには、 $c$  倍の計数時間が必要といえる。つまり、この値が 1 を上まわっていれば、機械学習モデルは計数時間を短縮できるということになる。今回の検証用データに対して計測時間増倍計数を求めたものを図 3.2.3-5 に示す。

### 3.2.3-5

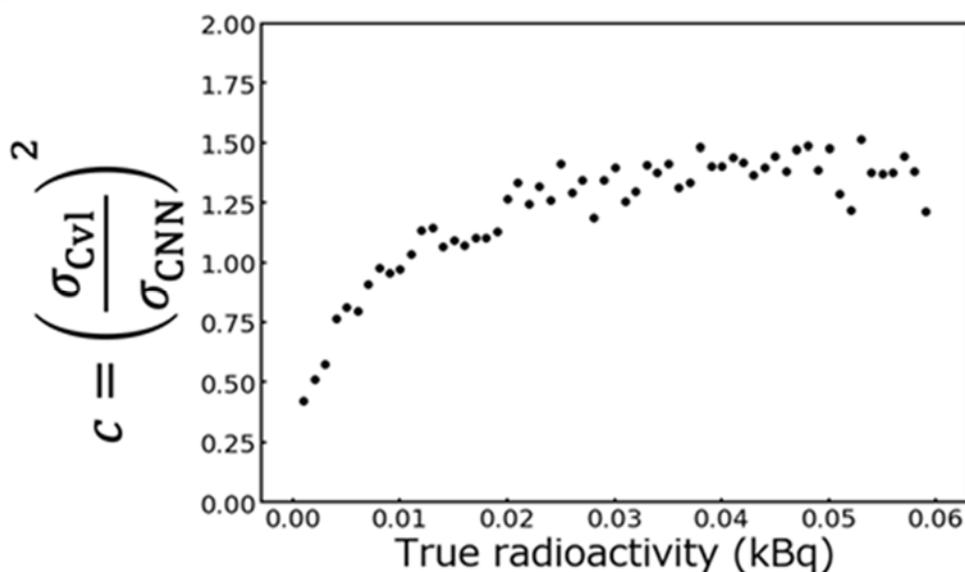


図 3.2.3-5 CNN 機械学習モデルによる推定結果とコベル法で得るために必要な計数時間の比  
(1 より大きい場合は機械学習モデルのほうが高性能といえる。)

この結果より、低放射能領域では多少計数時間がコベル法の方が短いという結果があるものの、ほとんどの領域で CNN モデルを取り込んだ機械学習モデルの推定結果の方が高速に定量できるといえる。最大でコベル法の計数時間を 1.5 倍した効果があるとわかった。

### (3) まとめ及び今後の展望

令和 2 年度は機械学習に必要な GPU サーバマシンを整備し、開発環境を整えた。また、 $\gamma$  線スペクトル形状から核種予測ができるか検証するため、順方向全結合型ニューラルネットワークを用いて、単核種及び複数核種が含まれるスペクトルの解析を行い、識別能を有すること明らかにした。さらに、従来法との比較による定量的な性能を調査できる 1 次元 CNN を取り込んだ機械学習モデルを構築し、妨害核種として K-40 が存在する場合の Cs-134 と Cs-137 を含むサンプルの測定を模擬した解析を行った。その結果、機械学習による推定は、従来法の計測時間を増倍する効果があることがわかった。

今後、CNN モデルに対する最適な損失関数を決定し、低放射能域においても計数時間増倍効果が得られるようにするとともに、サンプルに含まれる放射性物質の数を増やしても同等の性能が得られるか評価していく。

### 3.3 分析法バリデーション

#### 3.3.1 SDM 法及び解析結果の検証（再委託先：量研機構）

##### (1) SDM 法の検証

一般に、測定対象となる試料には複数の放射性同位体が含まれる。これら放射性同位体から放出される主な放射線は $\beta$ 線、 $\gamma$ 線である。 $\gamma$ 線のエネルギーは放射性同位体が崩壊した後に生成される娘核の励起状態の励起エネルギーや分岐などの核構造の情報及び、 $\beta$ 崩壊で生成される励起の生成比に主に依存する。そのため、放射性同位体の種類によって異なるエネルギー値、強度の特徴を持つ。これらの $\gamma$ 線のエネルギー、強度比を計測することで核種の同定を行う。実際に得られた $\gamma$ 線のエネルギースペクトルは、複数の放射性同位体の $\gamma$ 線スペクトルの和になる。この $\gamma$ 線のエネルギーと強度を計測すれば核種の割合は評価できる。

しかし、現実には放射線検出器の性能による限界に起因して測定精度の限界がある。1 つには、エネルギー分解能である。エネルギー分解能は主に、放射線が検出器内部で、 $\gamma$ 線（ $\beta$ 線）のエネルギーを eV 領域の電子や光（特に可視光領域）に変換して収集する。このときに、統計的ゆらぎが発生して、単一のエネルギーに対して幅が発生する。また、 $\gamma$ 線の場合、実際の検出器は飛程と比較して十分長い厚さを持たない。そのため、検出器内部でコンプトン散乱が発生して、 $\gamma$ 線のエネルギーの一部が検出器外に持ち出された結果、エネルギーの一部のみを計測する。このエネルギーはコンプトン散乱角度に依存するため、検出器の幾何学的構造に依存する。線源との相対的な位置、遮蔽の幾何学的配置によって、スペクトルの位置は決まる。複数の放射性同位体を含む試料からのスペクトルは、個々のスペクトルの重ね合わせになる。そのため、典型的な $\gamma$ 線のスペクトルを標準線源で計測し、試料に含まれる放射性同位体の量を評価するのが SDM 法である。

SDM 法の原理は本研究グループによって導出されたものである。まず、本原理に基づく解析式が正しいかどうか手計算で確認を行った。その結果、式の導出に問題がないことを確認した。

現在、 $\gamma$ 線のピークの面積を求めるトータルピークエリア法が主な分析法の 1 つである。このトータルピークエリア法では、統計誤差はピーク面積とバックグラウンド面積で決まる。原理的にコンプトン散乱によるバックグラウンドは、計測したい $\gamma$ 線よりエネルギーの高い $\gamma$ 線に起因する。そのため、トータルピークエリア法において統計誤差は一概には言えず他の核種との兼ね合いになる。

そこで、ベーススペクトル計測の時間が 10 秒、100 秒、1000 秒、10000 秒の 4 つのサンプルスペクトルについて両手法で比較を行った。Co-60、Cs-137、Cs-134、Na-22、Ba-133、Eu-152 の標準線源をそれぞれ同一時間計測したスペクトルを足すことで、作成されたベーススペクトルを用いた。Co-60 が強い環境を想定して Co-60 を別途計測してさらに足し合わせた。計測時間が長くなると総イベント数が約 10 倍ずつ増加するため、統計誤差に起因する誤差は小さくなっていく。一番条件が悪い計測時間が 10 秒（相対的に Co-60 が強い状況）では、Cs-137 でトータルピークエリア法では 0.9 (dr/r=90%) と非常に大きな誤差になっている。しかし、SDM 法では 0.27 と 1/3 程度の誤差である。全体的に SDM 法の誤差が小さい。相対的に有利な計測時間 10000 秒では、トータルピークエリア法では Cs-137 に対して 0.0028 (0.28%) と小さい値であるが、SDM 法ではさらに小さい 0.0022 の値になった。

このように全体的に SDM 法の方が優れた結果となっている。この原因としては、有効なイベント数から理解できる。通常の核種測定に用いられる Ge 検出器において、1.3 MeV の $\gamma$ 線が入射した場合に、ピークを形成する確率は、Ge 半導体結晶の大きさに依存するが、だいたい 0.1 ~ 0.3 程度である。つまり、3 倍から 5 倍程度はコンプトン散乱となりバックグラウンドを形

成する。トータルピークエリア法では、ピークの面積が統計誤差の大きな要因であるが、SDM法では全エリアのイベントが有効であるため、統計的には3~5倍程度多くなる。そのため、統計誤差に起因する誤差はSDM法の方が小さくなる。本検証では、このメカニズムが検証された。

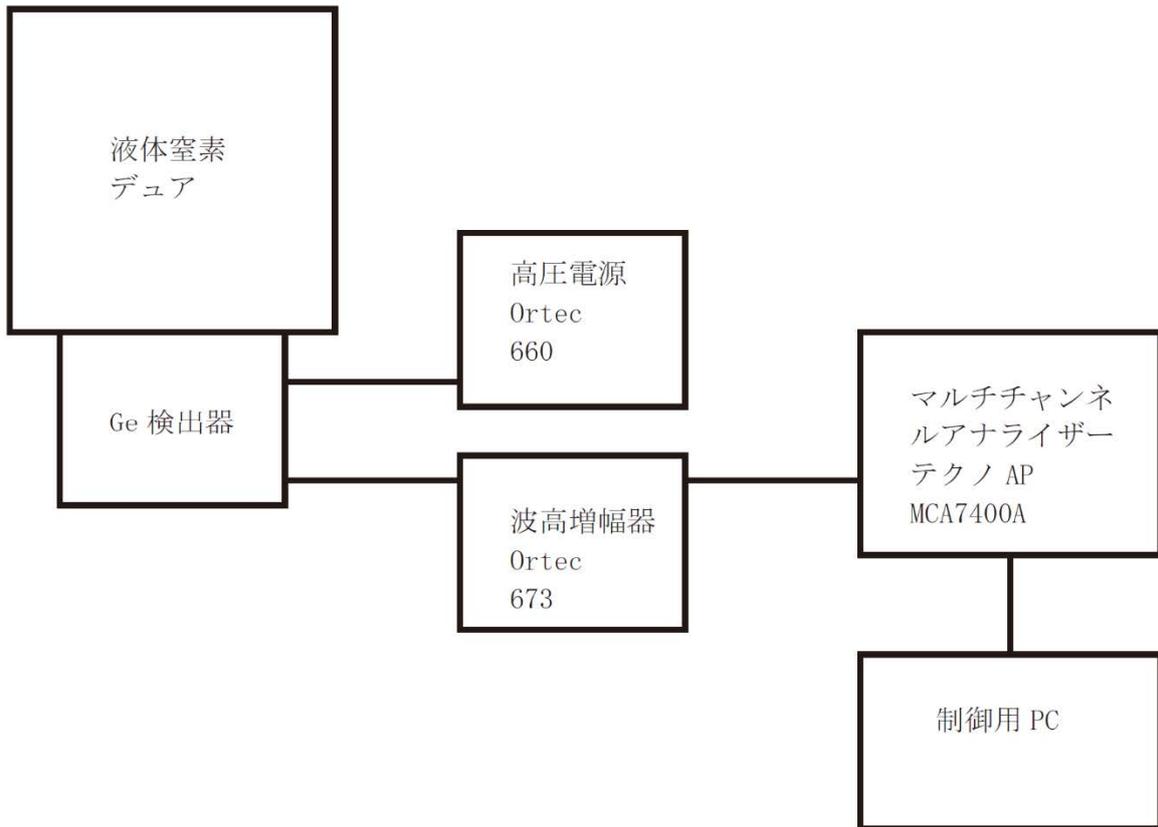


図 3.3.1-1 修理した液体窒素デュアの試験を行ったモジュール

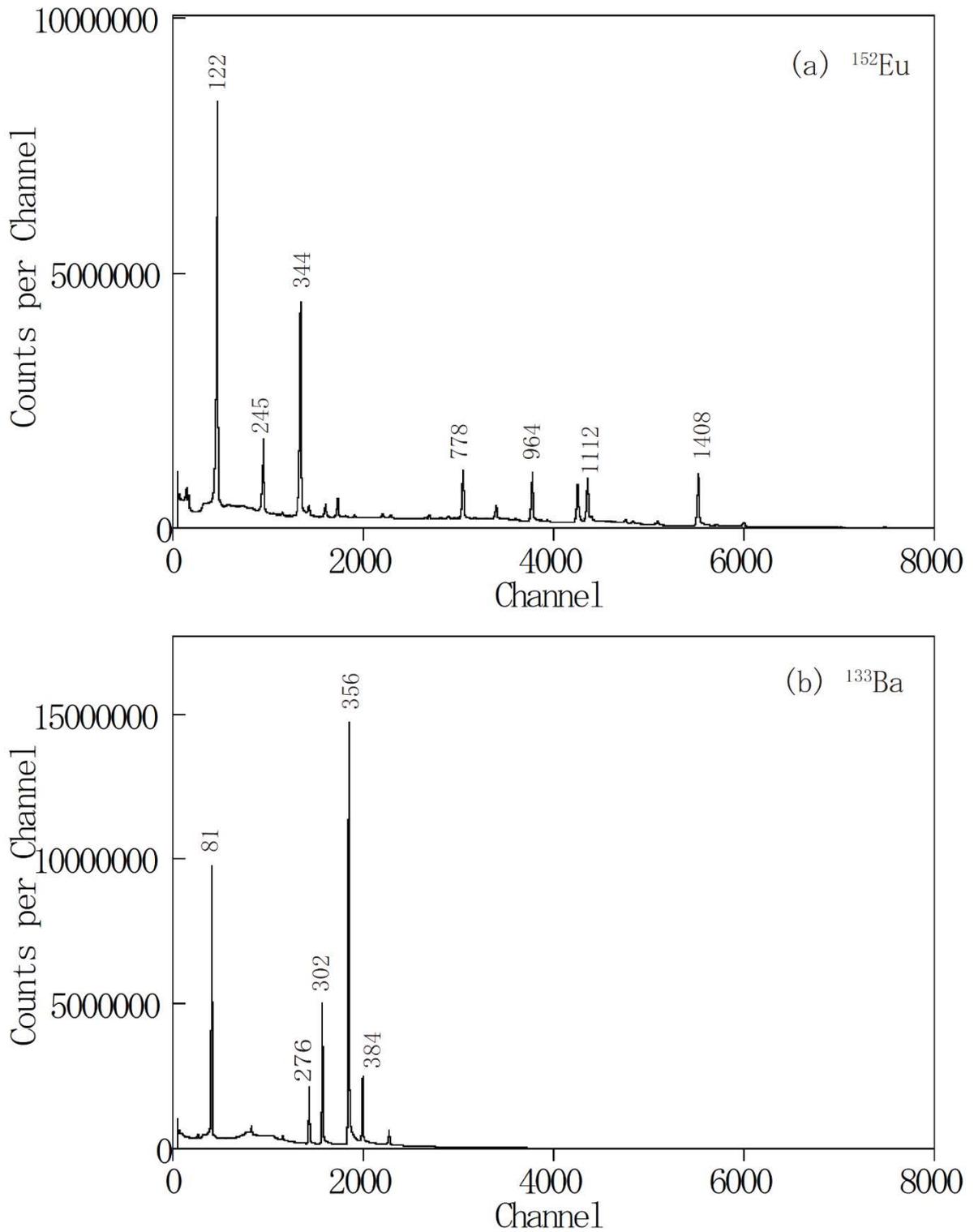


図 3.3.1-2 修理した液体窒素デュアの試験のために冷却後に計測した $\gamma$ 線スペクトル  
(Eu-152 の計測スペクトル (上)、Ba-133 の計測スペクトル (下))

## (2) Ge 検出器の修理と試験

令和 3 年度、日本分析センターで行う  $\gamma$  線計測実験に量研機構が保有する Ge 検出器一式を用いる予定である。Ge 検出器は液体窒素温度の低温で稼働させることで高いエネルギー分解能を得ることができる。そのため、専用の液体窒素デュアを用いる。しかし、購入してから 10 年以上が経過し真空容器の真空が悪化している。そのため、メーカーに真空状態の診断及び可能な場合には真空容器の真空引きを依頼した。メーカーの判断では再使用可能であった。真空容器の真空引きによって正常に冷却、検出器による計測が可能かどうか実験を行った。液体窒素デュアを Ge 検出器に接続して窒素冷却を行った。通常の冷却と同様であり、問題はなかった。窒素冷却の確認後に、窒素冷却後に標準線源を用いて  $\gamma$  線計測の確認を行った。図 3.3.1-1 に、試験に用いた回路の模式図を示す。高圧電源にはアメテック株式会社製の 660 を用いた。波高増幅器にはアメテック株式会社製の 673 を用いた。波高増幅器の信号はマルチチャンネルアナライザーを用いて記録した。マルチチャンネルアナライザーには、株式会社テクノエーピー製の MCA7400A を用いた。Ge 検出器もアメテック株式会社製でありバイアスシャットダウン信号を接続して実験を行った。検出器において温度が上昇した場合には、検出器の損傷を防ぐために自動的に高圧電源を切る回路である。バイアスシャットダウンが起きず、検出器の温度が低いことを意味していた。

図 3.3.1-2 に標準線源 Ba-133 と Eu-152 の  $\gamma$  線スペクトルの例を示す。2 つの  $\gamma$  線スペクトルは典型的な  $\gamma$  線スペクトルであり、80 keV から 1408 keV の領域まで計測できたことがわかる。以上の試験で正常に冷却できたことを確認した。

### 3.3.2 $\gamma$ 線 SDM 法のバリデーション（再委託先：大成建設）

#### (1) 目的・概要

目的は、1F 廃棄物及び燃料デブリ中の  $\gamma$ 線放出核種 24 種について、主要核種 Cs-137、Sr-90 の存在下における定量限界を、過去の文献により調査することである。

そこで、1F サイト内の廃棄物を主体とした測定と、1F サイト外の環境放射能の測定を対象として文献調査を行った。

これは令和3年度以降測定に関する基礎データとしての定量限界数値の把握と核種の濃度幅、混在状況を把握するものである。

また、参考として放射能測定事例の公開データを追加調査した。

#### (2) 調査文献の対象

調査文献の対象は、以下の2項目とした。

- ・環境放射能測定関連系（福島関連とそれ以外を含む）
- ・1F 関連の放射能測定系

#### ① 定量限界値の文献調査の条件

定量限界として、調査対象は、 $\gamma$ 線スペクトロスコープによる測定に限定し、基本として Ge 半導体検出器の結果を調査し、他の測定手法である ICP、AMS、NAA 等は除外する。

また、定量限界導出の条件は問わないこととした。これは付随している条件等データが十分に取得できないためである。

#### ② 核種選定

本調査にて設定した全 40 核種、 $\gamma$ 線核種 24 核種を対象とするが、別途東電にて設定している分類があるので、比較する。

東電において、用途に応じて 62 核種、48 核種、38 核種、31 核種（ $\gamma$ 核種）等が提示されている。本事業の対象 40 核種と東電による選定核種の比較を表 3.3.2-1 に示す。

##### i 本事業 40 核種、 $\gamma$ 線 24 核種の選定

当英知事業では、1F の放射性物質放出事故を模擬するため核燃料の燃焼計算コード ORIGEN により生成する FP 等の放射性核種を導出した公開文献[1]を基本に、その中で 10 年後 1 GBq 以上の 40 核種を選定した。そのうち本報告では  $\gamma$ 線 24 核種を選定した。また、この算定において鋼材の放射化核種も導出している。

##### ii 東電・62 核種

1F の多核種除去設備の性能を調査するために 62 核種としている。

##### iii 東電・38 核種

1F の放射性廃棄物の処理・処分の安全性評価等の観点から、38 核種を選定している。

##### iv 東電・48 核種

サブドレン他浄化設備の処理済水の排水に係る確認対象核種として 48 核種を選定している。また 41 核種への移行が検討され、調査対象の 24 核種のうち Gd-153 が除外されている。

v 東電・主要7核種

処理水の分析により法的な濃度限度に対して有意に検出された核種として7核種を選定している。

③ 測定対象物

1F サイト内と環境放射能（福島県内及び一般環境）の測定対象を以下に示す。

- ・環境放射能測定関連系：土壌、草木、河川水、堆積物等
- ・1F 関連の放射能測定関連系：解体廃棄物、操業廃棄物等

1F サイト内においては、事故に伴い発生した事故廃棄物、施設解体に伴い1次、2次廃棄物、汚染水処理等の操業に伴う操業廃棄物がある。それぞれに核種、濃度の違いがあると考えられる。

i 1F 廃棄物の種別

1F 廃棄物の種別について公開文献[10]を調査した結果、性状として固体と液体に大きく区分されるが、廃棄物の分類（瓦礫類、汚染水、水処理2次廃棄物、可燃物、土壌、植物）から、試料の発生場所別に細分されている。

ii 1F 廃棄物ごとの含有核種の状況

多核種除去設備の場合、核種が選択的に吸着させるので特徴がある。そのため2次廃棄物に含有核種の特異性が出る。

その多核種除去設備から発生する廃棄物と含有核種状況を公開文献[23]に報告されており、主要核種のCs-137、Co-60を選択的に保持する吸着材がある。

表3. 3. 2-1 対象核種の比較表 (1/2)

核種	本事業 40核種	本章 24核種	東電62核種	東電48核種	東電38核種 安全対応	東電31核種 ( $\gamma$ 核種)
H-3	○			○	○	
C-14					○	
Cl-36	○				○	
Ca-41	○				○	
Ni-59					○	
Fe-55	○					
Fe-59			○			
Co-58			○			
Se-79					○	
Kr-85	○					
Rb-86			○			
Sr-89			○	○		
Sr-90	○		○	○	○	
Y-90	○		○	○		
Y-91			○	○		○ (βも)
Zr-93	○				○	
Mo-93					○	
Nb-95			○			
Nb-94					○	
Tc-99	○		○	○	○	
Ru-103			○			
Ru-106 (Rh-106)	○	○	○	○		○
Rh-103m			○			
Pd-107					○	
Ag-110m	○	○	○	○		○
Cd-113m	○		○	○		
Cd-115m			○			
Sn-119m	○	○	○	○		○
Sn-123			○	○		○
Sn-126	○	○	○	○	○	○
Sb-124			○	○		○
Sb-125	○	○	○	○		○
Te-123m			○	○		○
Te-125m	○	○	○	○		○
Te-127			○	○		○
Te-127m			○	○		○
Te-129			○		○	
Te-129m			○			
I-129	○	○	○	○		(ICP)

表3.3.2-1 対象核種の比較表 (2/2)

核種	本事業 40核種	本章 24核種	東電62核種	東電48核種	東電38核種 安全対応	東電31核種 ( $\gamma$ 核種)
Cs-134	○	○	○	○		○
Cs-135			○	○	○	○
Cs-136			○			
Cs-137	○	○	○	○	○	○
Ba-137m	○		○	○		○
Ba-140			○			
Ce-141			○			
Ce-144	○	○	○	○		○
Pr-144	○	○	○	○		○
Pr-144m	○	○	○	○		○
Pm-146	○	○	○	○		○
Pm-147	○		○	○		○
Pm-148			○			
Pm-148m			○			
Sm-151	○		○	○	○	○
Eu-152	○	○	○	○	○	○
Eu-154	○	○	○	○	○	○
Eu-155	○	○	○	○		○
Gd-153	○	○	○	○		○
Tb-160			○			
U-233					○	
U-234					○	
U-235					○	
U-236					○	
U-238					○	
Np-237					○	
Pu-238			○	○	○	
Pu-239			○	○	○	
Pu-240			○	○	○	
Pu-241			○	○	○	
Pu-242					○	
Am-241			○	○	○	
Am-242m			○	○	○	
Am-243			○	○	○	
Cm-242			○	○		
Cm-243			○	○		
Cm-244			○	○	○	
Cm-245					○	
Cm-246					○	
Mn-54	○	○	○	○		○
Co-60	○	○	○	○	○	○
Ni-63	○		○	○	○	○ ( $\beta$ $\gamma$ )
Zn-65			○	○		○
Ba-133	○	○				
Sn-121	○					
Sn-121m	○	○				
Sb-126m	○	○				
Sb-126	○	○				
Ag-110	○	○				

(3) 令和2年度の成果

① 調査文献

1F 関連の文献一覧表を表 3.3.2-2 に示す。この表の構成は、文献名、著者、発行年、内容等を記載している。

実測例の参考文献の一覧表を表 3.3.2-3 に示す。この表の構成も 1F 関連の文献一覧表と同様である。

環境関連の文献一覧表を表 3.3.2-4 に示す。この表の構成も 1F 関連の文献一覧表と同様である。

② 核種別定量限界

1F 関連の文献調査から、対象 24 核種のうち記載のあった核種について定量限界値を以下に示す。

i 放射能濃度の単位について

放射能測定対象物が、固体と液体、また固体において土壌等の種別により、単位が異なっている。固体は、Bq/g の g 単位が多いが、土壌の場合は Bq/kg の kg 単位が主流である。

なお、本調査では、原文を優先し、単位の L→kg、L→mL 等の補正はしない。

・単位例	液状	Bq/L 又は Bq/mL、Bq/cm <sup>3</sup>
	固体	Bq/g
	土壌	Bq/kg、Bq/g

ii 対象の 24 核種の核種別定量限界の結果

対象の 24 核種のうち、以下の各核種について定量限界データの調査結果を表 3.3.2-5 に示す。

Co-60、Ru-106 (Rh-106)、Cs-134、Cs-137、Sn-126、Ce-144、Eu-152、Eu-154、Eu-155、Mn-54、Ag-110m、Sn-119m、Sb-125、Pr-144、Pr-144m、Pm-146、Te-125m、Gd-153、I-129

なお、Sn-121m、Sb-126m、Ba-133、Sb-126、Ag-110 については調査した文献中、記載例はみられなかった。

表3.3.2-2 1F関連の文献一覧表 (1/2)

参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界等の内容
[2]	福島第一原子力発電所構内で採取した瓦礫の分析	IRID/JAEA	2016/4/28	瓦礫	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[3]	福島第一原子力発電所事故廃棄物の処理・処分研究開発	IRID/JAEA 宮本泰明	2015/9/11	多核種除去設備スラリー	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[4]	放射性廃棄物の処理処分	IRID/JAEA 宮本泰明	2016	多核種除去設備スラリー	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Eu-152、Eu-154等複数である。所定核種について測定条件の記載がある。
[6]	増設多核種除去設備（増設ALPS）実施計画補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Ru-106、Sb-125、Cs-134、Cs-137、他複数である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。多核種除去設備の3系統の出入口水の測定の定量限界が示されている。
[7]	3号機廃棄物地下貯蔵建屋原子炉冷却材浄化系廃樹脂貯蔵タンク室漏えい樹脂の回収について	東電	2021/2/25	CUW漏洩状況	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Cs-134である。
[8]	ALPS処理水データ集（タンク群毎）4. K4エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Eu-152、Eu-154等複数の核種が示されている。
[9]	福島第一原子力発電所構内で採取した建屋内瓦礫、立木、落葉及び土壌の放射能分析	IRID/JAEA	2015/3/26	建屋内瓦礫 立木 落葉 土壌	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[10]	福島第一原子力発電所の固体廃棄物試料分析	IRID/JAEA	2017/5/25	多核種除去設備スラッジ 処理水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Cs-137、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[11]	廃棄物試料の分析結果（水処理設備処理二次廃棄物・滞留水）	IRID/JAEA	2018/3/29	R/B滞留水、スラリー	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Mn-54、I-129、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[12]	多核種除去設備等処理水の全ベータ値と主要7核種合計値とのかい離調査結果について	東電	2019/6/17	タンク群分析結果	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Ru-106、Cs-134である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[13]	多核種除去設備のホット試験について	東電	2013/4/19	処理対象水 処理済水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Sb-125、Cs-134である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類 処理対象水 処理済水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Ru-106、Cs-134、Cs-137である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。また2次処理の第3回目、第3回目以降の定量限界を示している。

表3.3.2-2 1F関連の文献一覧表 (2/2)

参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界等の内容
[15]	9-1福島第一原子力発電所の廃炉に伴う廃棄物の種類と量	IRID/JAEA 宮本泰明	2014/9/30	ガレキ、伐採木	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Cs-137である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[16]	多核種除去設備(ALPS)処理水タンクの放射能濃度について	東電	2019/1/17	ALPS処理水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Cs-134、Cs-137である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[17]	廃棄物試料の分析結果(瓦礫、水処理設備処理二次廃棄物、汚染水、処理水、土壌)	IRID/JAEA	2018/7/26	多核種除去設備スラッジ、処理水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Mn-54、Co-60、Cs-137、Sb-125、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[18]	福島第一発電所構内で採取した建屋内瓦礫の放射能分析	IRID/JAEA	2015/10/1	原子炉建屋内瓦礫	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[19]	廃棄物試料の分析1号機原子炉建屋5階瓦礫・1号機タービン建屋地下1階スラッジ・多核種除去設備HICスラリー	IRID/JAEA	2016/9/29	滞留水スラッジ、原子炉建屋内瓦礫、スラリー	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Ru-106、Sb-125、Ce-144、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[20]	2号機及び3号機原子炉格納容器(PCV)内滞留水の分析結果	IRID/JAEA	2016/11/24	PCV滞留水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Ru-106、Ce-144、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[21]	汚染水処理二次廃棄物の放射能評価のための多核種除去設備スラリー試料分析	IRID/JAEA	2015/8/27	鉄共沈、炭酸塩、溜まり水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Sb-125、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[22]	廃棄物試料の分析結果(4号機建屋 原子炉建屋ボーリングコア、土壌、多核種除去設備処理水)	IRID/JAEA	2018/11/29	瓦礫 土壌 焼却灰	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。瓦礫は単位面積あたりの放射能で示されている。
[23]	廃棄物試料の分析結果	IRID/JAEA	2017/3/30	土壌焼却灰セシウム吸着多核種除去設備	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Cs-137、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[24]	廃棄物試料の分析結果(2及び3号機原子炉格納容器内滞留水、1号機タービン建屋内滞留水・スラッジ、1号機原子炉建屋オペレーティングフロアボーリングコア)	IRID/JAEA	2017/2/23	滞留水、瓦礫	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Ru-106、Sb-125、Ce-144、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。スラッジを清水注入で採取し50cm <sup>3</sup> を採取し分析。
[25]	東京電力福島第一原子力発電所において採取された汚染水および瓦礫等の分析データ集	JAEA	2017	瓦礫、汚染水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Cs-137、Eu-152、Eu-154である。複数の核種放射能濃度の結果が示されている。
[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	多核種除去設備等出入口水	対象24核種のうち定量限界の記載があるのは、Co-60、Eu-152、Eu-154等、複数である。
[27]	環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法	水中の放射性セシウムモニタリング手法に関する技術資料検討委員会	2015/9/17	セシウム含有水	水中放射性セシウムモニタリング手法に関する技術資料検討委員会による分析方法をまとめたもので、対象24核種のうち、Cs-137定量限界の記載がある。

表3.3.2-3 実測例の参考文献の一覧表

参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	記載内容の要約
[28]	1, 2号機トールス室滞留水および堆積物分析結果について	東電	2013/8/29	滞留水、堆積物	Ce-144について若干のピークを観測した例を示す。1号機、2号機において検出核種を示している。複数の核種放射能濃度の結果の報告。
[29]	福島第一原子力発電所の固体廃棄物試料分析（現状までの成果報告）	IRID/JAEA	2017/5/25	固体廃棄物	1Fにおける発生廃棄物についての内容とその区分を示している。
[30]	福島第一原子力発電所事故廃棄物の処理・処分研究開発	IRID/JAEA 宮本泰明	2015/9/11	事故廃棄物	水処理廃棄物の分析結果からスラリーの放射能濃度の報告。
[31]	福島第一原子力発電所事故廃棄物の処理・処分技術開発の概要	IRID/JAEA 宮本泰明	2016/6/3	事故廃棄物	Sr-90存在下の複合核種の測定例の報告。
[32]	除染装置スラッジおよび多核種除去設備スラリーの安定化・固化処理の検討状況	東電	2016/10/21	スラッジ、スラリー	スラリーの含有核種と放射能濃度の測定値の報告。
[33]	福島第一原子力発電所格納容器内等で採取された試料の分析	東電	2019/5/30	PCV内堆積物、付着物	Sr-90存在下のスラリーの含有核種と放射能濃度の測定値、分析工程を示している。γ線核種としてMn-54、Co-60、Nb-94、Sb-125、Cs-137、Eu-152、Eu-154を対象としている。

表3.3.2-4 環境関連の文献一覧表

参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データおよび内容要約
[34]	Speciation analysis of <sup>129</sup> I, <sup>137</sup> Cs, <sup>232</sup> Th, <sup>238</sup> U, <sup>239</sup> Pu and <sup>240</sup> Pu in environmental soil and sediment	デンマーク工科大、ウブサラ大	2012	福島環境中堆積物	目的 連続抽出による混在核種の抽出測定法の開発 対象核種 I-129 Cs-137、他 対象試料 IAEA、NIST、福島の堆積物2種 分析技術 溶媒抽出法による核種分離手法の開発で、連続抽出による。 結果 環境中、生体中の核種の移動性、吸収性に差があることがわかった。また異なる核種について各フラクションで挙動が変わっている。 定量限界 -
[35]	Depth profiles of radioactive cesium in soil using a scraper plate over a wide area surrounding the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Japan	日本分析センター、他	2014	福島の汚染土壌	目的 福島の環境中の土壌のフォールアウトによる核種の深部浸透挙動に関する調査、検討である。 対象核種 Cs-134、Cs-137 対象試料 福島現地のフォールアウトによる汚染土壌 分析技術 スクレイパーによる採取とGe半導体検出器 結果 深部浸透の挙動を下方移動のモデルを設定し、実際のデータと比較している。その結果、DMモデルからの速度と双曲線関数に近似した場合の速度は同等であった。 定量限界 -
[36]	A review on speciation of I-129 in the environment and biological samples	デンマーク工科大、他	2009	環境中の土壌等試料	目的 環境中のヨウ素の分布 についての調査で、影響の観点からスペシエーションを重要視している。 対象核種 I-129、I-127 (安定核種) 対象試料 大気、河川水、河川底の堆積物、海水 分析技術 - 結果 スペクトロスコーピーではスペシエーションは不可である 定量限界 γ-X線スペクトロメトリーでI-129について20 mBq。
[37]	Analysis of <sup>129</sup> I in the soils of Fukushima Prefecture: preliminary reconstruction of <sup>131</sup> I deposition related to the accident at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP).	学習院大、東大	2015	福島県内の汚染土壌	目的 ヨウ素I-131の福島における土壌沈着を調査している。I-131は短半減期のため直接の測定は困難なためI-129との相関関係を調査・確定し、分布状況を示そうとしている。 対象核種 I-129、I-131 対象試料 福島フォールアウトした汚染土壌 分析技術 - 結果 I-131についてCs-137と異なる分布があった。 定量限界 記載なし
[38]	The development of <sup>125</sup> Sn separation procedure by means of TBP resin	スロバキア	2015	放射性廃棄物スラッジ	目的 妨害核種、鉛シールドからのX線等からの影響により、難測定核種であるSn-126について、抽出により、影響を低減させる技術報告 対象核種 Sn-126 対象試料 スロバキア原子力施設のスラッジ 分析技術 核種の分離精製として抽出には、塩酸、TBPレジン抽出、AMP-PANによるレジンカラムにて精製 結果 Sn-126の測定法を確立している。 定量限界 最小検出可能放射能(MDA) : 2.9 Bq/L~7.5 Bq/L。
[39]	<sup>135</sup> Cs activity and <sup>135</sup> Cs/ <sup>137</sup> Cs atom ratio in environmental samples before and after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident	弘前大学・山田正俊、他	2016	福島県内環境中土壌	目的 長半減期であるが収率が小さい核種Cs-135を環境中のトレーサー利用するための検討。 対象核種 Cs-135、Cs-137 対象試料 福島県内での環境試料(土壌、植物) 分析技術 - 結果 - 定量限界 Cs-137についてGe半導体検出器にて3.28 Bq/kg。
[40]	Triple-Quadrupole Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry with a High-Efficiency Sample Introduction System for Ultratrace Determination of <sup>135</sup> Cs and <sup>137</sup> Cs in Environmental Samples at Femtogram levels	放医研・田上恵子、他	2016	環境中の試料	目的 環境中の土壌、底泥、植物中の微量核種Cs-135の放射能を測定するためおよびCs-135/Cs-137を調べるためのフェムトグラムレベル(1フェムトは10 <sup>-15</sup> )を測定できる化学機器分析による高感度測定法の開発。(Ge半導体検出器は使用しない) 対象核種 Cs-137、Cs-135(長半減期、FP核種) 対象試料 福島土壌、底泥、草木(複数) 分析技術 脱溶媒和試料導入システムとICPの高感度システムの導入、硝酸による酸浸漬抽出、AMPによるCs捕集機構を組み込んでいる。 結果 フェムトグラムレベルの測定を達成 定量限界 Ge半導体検出器としては無
[41]	福島事故廃棄物を対象とした <sup>93</sup> Zr、 <sup>93</sup> Mo、 <sup>107</sup> Pd及び <sup>126</sup> Sn分析法の開発	JAEA	2017	福島事故廃棄物(滞留水、処理水、他)	目的 事故廃棄物において分析手法が定まっていない核種の測定対象核種Mo-99、Sn-126、Zr-93、Pd-107の測定技術の開発対象試料 福島事故廃棄物のうち液体(滞留水、処理水) 分析技術 主体の化学精製処理に対しては回収率向上、分離精製法の開発を行っている。放射能測定にGe-LEPS(GLP)を用いている。 結果 測定難核種を測定可能としている。 定量限界 Mo-99 : 0.05 Bq/ml (Mo-93、Ge-LEPS半導体検出器で回収率90%、70000秒)、Sn-126 : 0.05 Bq/ml、瓦礫の測定では0.03 Bq/g。

表3.3.2-5 核種別定量限界 (1/10)

対象核種	参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データ
Ru-106	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Ru-106の定量限界(単位:Bq/L)は、浄化処理前:7.8E+01、排水前の分析:4.2E+00、3ヶ月毎の分析:7.9E-01。
	[6]	増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Ru-106の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、B系処理対象:1.3E-03。
	[12]	多核種除去設備等処理水の全ベータ値と主要7核種合計値とのかい離調査結果について	東電	2019/6/17	タンク群分析結果	Ru-106の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、タンク群分析結果:0.46。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類処理対象水 処理済水	Ru-106の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、タンク群分析結果:0.46、J1-C多核種除去設備処理前:5。 Ru-106の定量限界(単位:Bq/L)は、C系処理対象水:5.00E+00。
	[20]	2号機及び3号機原子炉格納容器(PCV)内滞留水の分析結果	IRID/JAEA	2016/11/24	PCV滞留水	Ru-106の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、2号3号機PCV滞留水:80。
	[21]	汚染水処理二次廃棄物の放射能評価のための多核種除去設備スラリー試料分析	IRID/JAEA	2015/8/27	鉄共沈、炭酸塩、溜まり水	Ru-106の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、PCV滞留水:80。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Ru-106の定量限界(単位:Bq/L)は、RO濃縮塩水:1.1。
Rh-106	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Rh-106の定量限界(単位:Bq/L)は、浄化処理前:7.8E+01、排水前の分析:4.2E+00、3ヶ月毎の分析:7.9E-01。
	[6]	増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Rh-106の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、処理水:0.0013。 Rh-106の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、B系処理済:1.3E-03。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類処理対象水 処理済水	Rh-106の定量限界(単位:Bq/L)は、C系処理対象水:5.00E+00。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Rh-106の定量限界(単位:Bq/L)は、RO濃縮塩水:1.1。
Ag-110m	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Ag-110mの定量限界(単位:Bq/L)は、浄化処理前:1.7E+01、排水前の分析:5.7E-01、3ヶ月毎の分析:4.8E-02。
	[6]	増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Ag-110mの定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、A系処理対象:2.7E-01、A系処理済:1.2E-04、B系処理対象:2.7E-01、B系処理済:1.5E-04、C系処理対象:3.9E-01、C系処理済:1.1E-04。
	[8]	ALPS処理水データ集(タンク群毎)4. K4エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Ag-110mの定量限界(単位:Bq/L)は、K4エリアタンク水:5.60E-03。

表3.3.2-5 核種別定量限界 (2/10)

対象核種	参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データ
Ag-110m	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類処理対象水 処理済水	Ag-110mの定量限界（単位：Bq/L）は、C系処理対象水：5.41E-01、C系処理済水：4.26E-02。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Ag-110mの定量限界（単位：Bq/L）は、処理対象水：760、処理装置出口水：0.13、RO処理対象水：430、RO濃縮塩水：0.13。
Sn-119m	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Sn-119mの定量限界（単位：Bq/L）は、浄化処理前：1.8E+03、排水前の分析：1.1E+02、3ヶ月毎の分析：2.9E-01。
	[6]	増設多核種除去設備（増設ALPS）実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Sn-119mの定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、A系処理対象：2.3E+01、A系処理済：1.8E-02、B系処理対象：2.3E+01、B系処理済：2.2E-02、C系処理対象：3.7E+01、C系処理済：2.2E-02。
	[8]	ALPS処理水データ集（タンク群） （毎）4. K4エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Sn-119mの定量限界（単位：Bq/L）は、K4エリアタンク水：0.17。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類処理対象水 処理済水	Sn-119mの定量限界（単位：Bq/L）は、C系処理対象水：3.90E+02、C系処理済水：4.24E+01。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Sn-119mの定量限界（単位：Bq/L）は、処理装置出口水：0.38、RO濃縮塩水：0.37。
Sn-126	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Sn-126の定量限界（単位：Bq/L）は、浄化処理前：3.2E+01、排水前の分析：2.5E+00、3ヶ月毎の分析：2.9E-01。
	[6]	増設多核種除去設備（増設ALPS）実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Sn-126の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、A系処理対象：2.6E+00、A系処理済：7.2E-04、B系処理対象：2.6E+00、B系処理済：7.4E-04、C系処理対象：3.5E+00、C系処理済：6.3E-04。
	[8]	ALPS処理水データ集（タンク群） （毎）4. K4エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Sn-126の定量限界（単位：Bq/L）は、K4エリアタンク水：0.027。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類処理対象水 処理済水	Sn-126の定量限界（単位：Bq/L）は、C系処理対象水：2.88E+00、C系処理済水：2.92E-01。
	[17]	廃棄物試料の分析結果（瓦礫、水処理設備処理二次廃棄物、汚染水、処理水、土壌）	IRID/JAEA	2018/7/26	多核種除去設備スラッジ、処理水	Sn-126の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、多核種処理水：0.05。
	[20]	2号機及び3号機原子炉格納容器（PCV）内滞留水の分析結果	IRID/JAEA	2016/11/24	PCV滞留水	Sn-126の定量限界（単位：Bq/g）は、1号建屋内瓦礫②：0.5、タービン建屋内スラッジ：0.08。
	[25]	東京電力福島第一原子力発電所において採取された汚染水および瓦礫等の分析データ集	JAEA	2017	瓦礫、汚染水	Sn-126の定量限界（単位：Bq/g）は、1号建屋内瓦礫②：0.5。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Sn-126の定量限界（単位：Bq/L）は、処理装置出口水：0.38、RO濃縮塩水：0.37。

表3.3.2-5 核種別定量限界(3/10)

対象核種	参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データ
Sb-125	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Sb-125の定量限界(単位: Bq/L)は、浄化処理前: 4.6E+01、排水前の分析: 1.8E+00、3ヶ月毎の分析: 1.8E-01。
	[6]	増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Sb-125の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、処理水: 0.00042。 Sb-125の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、A系処理済: 4.8E-04、B系処理済: 4.5E-04、C系処理済: 4.2E-04。
	[13]	多核種除去設備のホット試験について	東電	2013/4/19	処理対象水 処理済水	Sb-125の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、処理済水: 0.00045。
	[17]	廃棄物試料の分析結果(瓦礫、水処理設備処理二次廃棄物、汚染水、処理水、土壌)	IRID/ JAEA	2018/7/26	多核種除去設備スラッジ、 処理水	Sb-125の定量限界(単位: Bq/g)は、除染装置スラッジ: 5000。
	[22]	廃棄物試料の分析結果(4号機建屋 原子炉建屋ボーリングコア、土壌、多核種除去設備処理水)	IRID/ JAEA	2018/11/29	瓦礫、土壌、焼却灰	Sb-125の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、炭酸塩: 200。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Sb-125の定量限界(単位: Bq/L)は、処理装置出口水: 0.38、RO濃縮塩水: 0.37。
	Te-125m	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水
[6]		増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Te-125mの定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、A系処理済: 4.8E-04、B系処理済: 4.5E-04、C系処理済: 4.2E-04。
[26]		多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Te-125mの定量限界(単位: Bq/L)は、処理装置出口水: 0.38、RO濃縮塩水: 0.37。
Cs-134	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Cs-134の定量限界(単位: Bq/L)は、1か月ごとの分析: 0.01。 Cs-134の定量限界(単位: Bq/L)は、浄化処理前: 2.1E+01、排水前の分析: 6.2E-01、3ヶ月毎の分析: 5.3E-02。
	[6]	増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Cs-134の定量限界(単位: Bq/L)は、1か月ごとの分析: 0.01。 Cs-134の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、A系処理済: 1.7E-04、B系処理済: 1.5E-04、C系処理済: 2.0E-04。
	[7]	3号機廃棄物地下貯蔵建屋原子炉冷却材浄化系廃樹脂貯蔵タンク室漏えい樹脂の回収について	経産省 東電	2021/2/25	CUW漏洩状況	Cs-134の定量限界(単位: Bq/L)は、CUW漏洩状況: 260。
	[12]	多核種除去設備等処理水全ベータ値と主要7核種合計値とのかい離調査結果について	東電	2019/6/17	タンク群分析結果	Cs-134の定量限界(単位: Bq/L)は、タンク群分析結果: 0.061。
	[13]	多核種除去設備のホット試験について	東電	2013/4/19	処理対象水 処理済水	Cs-134の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、処理済水: 0.00017。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類 処理対象水 処理済水	Cs-134の定量限界(単位: Bq/L)は、タンク群分析: 0.061、J1-C 多核種除去設備処理後: 0.076。 Cs-134の定量限界(単位: Bq/L)は、C系処理対象水: 、C系処理済水: 7.60E-02。
	[16]	多核種除去設備(ALPS)処理水タンクの放射能濃度について	東電	2019/1/17	ALPS処理水	Cs-134の定量限界(単位: Bq/L)は、ALPS汚染水: 0.184、ALPS汚染水: 0.1675。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Cs-134の定量限界(単位: Bq/L)は、処理装置出口水: 0.26、RO濃縮塩水: 0.27。

表3.3.2-5 核種別定量限界(4/10)

対象核種	参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データ
Cs-137	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Cs-137の定量限界(単位: Bq/L)は、1か月ごとの分析: 0.01。 Cs-137の定量限界(単位: Bq/L)は、浄化処理前: 2.6E+01、排水前の分析: 6.8E-01、3ヶ月毎の分析: 5.9E-02。
	[6]	増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Cs-137の定量限界(単位: Bq/L)は、処理水: 260。 Cs-137の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、A系処理済: 1.3E-04、B系処理済: 1.4E-04、C系処理済: 1.3E-04。
	[10]	福島第一原子力発電所の固体廃棄物試料分析	IRID/JAEA	2015/5/25	多核種除去設備スラッジ、処理水	Cs-137の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、処理水: 0.13。
	[13]	多核種除去設備のホット試験について	東電	2013/4/19	処理対象水 処理済水	Cs-137の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、処理水: 0.13。
	[15]	9-1福島第一原子力発電所の廃炉に伴う廃棄物の種類と量	IRID/JAEA 宮本 泰明	2014/9/30	ガレキ、 伐採木	Cs-137の定量限界(単位: Bq/g)は、ガレキ・伐採木: 0.07。
	[16]	多核種除去設備(ALPS)処理水タンクの放射能濃度について	東電	2019/1/17	ALPS処理水	Cs-137の定量限界(単位: Bq/L)は、ALPS汚染水: 0.143。
	[17]	廃棄物試料の分析結果(瓦礫、水処理設備処理二次廃棄物、汚染水、処理水、土壌)	IRID/JAEA	2018/7/26	多核種除去設備スラッジ、 処理水	Cs-137の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、多核種処理水: 0.02。
	[24]	廃棄物試料の分析結果(2及び3号機原子炉格納容器内滞留水、1号機タービン建屋内滞留水・スラッジ、1号機原子炉建屋オペレーティングフロアボーリングコア)	IRID/JAEA	2017/2/23	滞留水、 瓦礫	Cs-137の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、多核種除去設備処理水: 0.07。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Cs-137の定量限界(単位: Bq/g)は、ガレキ・伐採木: 0.07。 Cs-137の定量限界(単位: Bq/L)は、処理装置出口水: 0.30、RO濃縮塩水: 0.32。
	Ce-144	[4]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水
[6]		増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Ce-144の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、A系処理対象: 4.4E+00、A系処理済: 1.5E-03、B系処理対象: 4.4E+00、B系処理済: 1.4E-03、C系処理対象: 5.8E+00、C系処理済: 1.3E-03。
[8]		ALPS処理水データ集(タンク群(毎)4. K4エリアタンクの62核種測定結果)	東電	2018/10/1	ALPS 処理水	Ce-144の定量限界(単位: Bq/L)は、K4エリアタンク水: 0.063。
[14]		多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類 処理対象水 処理済水	Ce-144の定量限界(単位: Bq/L)は、C系処理対象水: 6.84E+00、C系処理済水: 5.69E-01。
[20]		2号機及び3号機原子炉格納容器(PCV)内滞留水の分析結果	IRID/JAEA	2016/11/24	PCV滞留水	Ce-144の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、2号3号機PCV滞留水: 300。
[21]		汚染水処理二次廃棄物の放射能評価のための多核種除去設備スラリー試料分析	IRID/JAEA	2015/8/27	鉄共沈、 炭酸塩、 溜まり水	Ce-144の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、PCV滞留水: 300。

表3.3.2-5 核種別定量限界 (5/10)

対象核種	参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データ
Ce-144	[25]	東京電力福島第一原子力発電所において採取された汚染水および瓦礫等の分析データ集	JAEA	2017	瓦礫、汚染水	Ce-144の定量限界 (単位: Bq/cm <sup>3</sup> ) は、2号機3号機PCV滞留水: 300。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Ce-144の定量限界 (単位: Bq/L) は、処理対象水: 14000、処理装置出口水: 0.89、RO処理対象水: 5000、RO濃縮塩水: 0.98。
Pr-144	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Pr-144の定量限界 (単位: Bq/L) は、浄化処理前: 5.7E+01、排水前の分析: 4.6E+00、3ヶ月毎の分析: 6.1E-01。
	[6]	増設多核種除去設備 (増設ALPS) 実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Pr-144の定量限界 (単位: Bq/cm <sup>3</sup> ) は、A系処理対象: 4.4E+00、A系処理済: 1.5E-03、B系処理対象: 4.4E+00、B系処理済: 1.4E-03、C系処理対象: 5.8E+00、C系処理済: 1.3E-03。
	[8]	ALPS処理水データ集 (タンク群毎) 4. K4 エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Pr-144の定量限界 (単位: Bq/L) は、K4エリアタンク水: 0.063。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類 処理対象水 処理済水	Pr-144の定量限界 (単位: Bq/L) は、C系処理対象水: 6.84E+00、C系処理済水: 5.69E-01。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Pr-144の定量限界 (単位: Bq/L) は、処理対象水: 81000、処理装置出口水: 180、RO処理対象水: 47000、RO濃縮塩水: 220。
Pr-144m	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Pr-144mの定量限界 (単位: Bq/L) は、浄化処理前: 5.7E+01、排水前の分析: 4.6E+00、3ヶ月毎の分析: 6.1E-01。
	[6]	増設多核種除去設備 (増設ALPS) 実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Pr-144mの定量限界 (単位: Bq/cm <sup>3</sup> ) は、A系処理対象: 4.4E+00、A系処理済: 1.5E-03、B系処理対象: 4.4E+00、B系処理済: 1.4E-03、C系処理対象: 5.8E+00、C系処理済: 1.3E-03。
	[8]	ALPS処理水データ集 (タンク群毎) 4. K4 エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Pr-144mの定量限界 (単位: Bq/L) は、K4エリアタンク水: 0.098。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類 処理対象水 処理済水	Pr-144mの定量限界 (単位: Bq/L) は、C系処理対象水: 6.84E+00、C系処理済水: 5.69E-01。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Pr-144mの定量限界 (単位: Bq/L) は、処理対象水: 81000、処理装置出口水: 180、RO処理対象水: 47000、RO濃縮塩水: 220。
Pm-146	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Pm-146の定量限界 (単位: Bq/L) は、浄化処理前: 2.7E+01、排水前の分析: 7.7E-01、3ヶ月毎の分析: 8.7E-02。
	[6]	増設多核種除去設備 (増設ALPS) 実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Pm-146の定量限界 (単位: Bq/cm <sup>3</sup> ) は、A系処理対象: 4.6E-01、A系処理済: 1.9E-04、B系処理対象: 4.6E-01、B系処理済: 1.8E-04、C系処理対象: 6.2E-01、C系処理済: 2.0E-04。
	[8]	ALPS処理水データ集 (タンク群毎) 4. K4 エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Pm-146の定量限界 (単位: Bq/L) は、K4エリアタンク水: 0.19。

表3.3.2-5 核種別定量限界(6/10)

対象核種	参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データ
Pm-146	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類処理対象水 処理済水	Pm-146の定量限界(単位:Bq/L)は、C系処理対象水:1.23E+00、C系処理済水:6.66E-02。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Pm-146の定量限界(単位:Bq/L)は、処理対象水:1300、処理装置出口水:0.18、RO処理対象水:680、RO濃縮塩水:0.18。
Eu-152	[2]	福島第一原子力発電所構内で採取した瓦礫の分析	IRID/ JAEA	2016/4/28	瓦礫	Eu-152の定量限界(単位:Bq/g)は、建屋内瓦礫:0.08、覆土瓦礫:0.7。
	[3]	福島第一原子力発電所事故廃棄物処理処分研究開発	IRID/ JAEA 宮本 泰明	2015/9/11	多核種除去設備スラリー	Eu-152の定量限界(単位:Bq/ml)は、鉄共沈:20、炭酸塩沈殿:200。
	[4]	放射性廃棄物の処理処分(日本原子力学会誌)	IRID/ JAEA 宮本 泰明	2016	多核種除去設備スラリー	Eu-152の定量限界(単位:Bq/ml)は、鉄共沈:20、炭酸塩沈殿:200。
	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Eu-152の定量限界(単位:Bq/L)は、浄化処理前:5.7E+01、排水前の分析:2.0E+00、3ヶ月毎の分析:2.5E-01。
	[6]	増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Eu-152の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、A系処理対象:1.5E+00、A系処理済:5.8E-04、B系処理対象:1.5E+00、B系処理済:5.4E-04、C系処理対象:1.8E+00、C系処理済:6.1E-04。
	[8]	ALPS処理水データ集(タンク群毎)4、K4エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Eu-152の定量限界(単位:Bq/L)は、K4エリアタンク水:0.028。
	[9]	福島第一原子力発電所構内で採取した建屋内瓦礫、立木、落葉及び土壌の放射能分析	IRID/ JAEA	2015/3/26	建屋内瓦礫 立木 落葉 土壌	Eu-152の定量限界(単位:Bq/g)は、建屋内瓦礫:0.5、立木:0.5、落葉:0.5、土壌:0.5。
	[11]	廃棄物試料の分析結果(水処理設備処理二次廃棄物・滞留水)	IRID/ JAEA	2018/3/29	R/B滞留水 スラリー	Eu-152の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、R/B滞留水:0.4、スラリー:3。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類処理対象水 処理済水	Eu-152の定量限界(単位:Bq/L)は、C系処理対象水:2.70E+00、C系処理済水:2.84E-01。
	[17]	廃棄物試料の分析結果(瓦礫、水処理設備処理二次廃棄物、汚染水、処理水、土壌)	IRID/ JAEA	2018/7/26	多核種除去設備スラッジ、 処理水	Eu-152の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、多核種処理水:0.2。Eu-152の定量限界(単位:Bq/g)は、除染装置スラッジ:80。
	[19]	廃棄物試料の分析1号機原子炉建屋5階瓦礫・1号機タービン建屋地下1階スラッジ・多核種除去設備HICスラリー	IRID/ JAEA	2016/9/29	滞留水スラッジ、 原子炉建屋内瓦礫、 スラリー	Eu-152の定量限界(単位:Bq/g)は、原子炉建屋内瓦礫:0.6。
[20]	2号機及び3号機原子炉格納容器(PCV)内滞留水の分析結果	IRID/ JAEA	2016/11/24	PCV滞留水	Eu-152の定量限界(単位:Bq/g)は、原子炉建屋内瓦礫①:3、タービン建屋内スラッジ:0.6、多核種除去スラリー:2 Bq/cm <sup>3</sup> 。	
[21]	汚染水処理二次廃棄物の放射能評価のための多核種除去設備スラリー試料分析	IRID/ JAEA	2015/8/27	鉄共沈、 炭酸塩、 溜まり水	Eu-152の定量限界(単位:Bq/cm <sup>3</sup> )は、PCV滞留水:1。	

表3.3.2-5 核種別定量限界(7/10)

対象核種	参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データ
Eu-152	[22]	廃棄物試料の分析結果(4号機建屋原子炉建屋ボーリングコア、土壌、多核種除去設備処理水)	IRID/JAEA	2018/11/29	瓦礫、土壌、焼却灰	Eu-152の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、鉄共沈: 60、炭酸塩: 40、溜り水(鉄共沈): 20、溜り水(炭酸塩): 200。
	[24]	廃棄物試料の分析結果(2及び3号機原子炉格納容器内滞留水、1号機タービン建屋内滞留水・スラッジ、1号機原子炉建屋オペレーティングフロアボーリングコア)	IRID/JAEA	2017/2/23	滞留水、瓦礫	Eu-152の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、セシウム吸着装置処理水: 0.2。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Eu-152の固体廃棄物系の定量限界(単位: Bq/g)は、瓦礫: 0.8。 Eu-152の液状の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、汚染水: 0.2。 Eu-152の処理系の液状の定量限界(単位: Bq/L)は、処理対象水: 3800、処理装置出口水: 0.48、RO処理対象水: 2000、RO濃縮塩水: 0.53。
Eu-154	[2]	福島第一原子力発電所構内で採取した瓦礫の分析	IRID/JAEA	2016/4/28	瓦礫	Eu-154の定量限界(単位: Bq/g)は、建屋内瓦礫: 0.05、覆土瓦礫: 0.3。
	[3]	福島第一原子力発電所事故廃棄物処理処分研究開発	IRID/JAEA 宮本泰明	2015/9/11	多核種除去設備スラリー	Eu-154の定量限界(単位: Bq/ml)は、鉄共沈: 20、炭酸塩沈殿: 200。
	[4]	放射性廃棄物処理処分(日本原子力学会誌)	IRID/JAEA 宮本泰明	2016	多核種除去設備スラリー	Eu-154の定量限界(単位: Bq/ml)は、鉄共沈: 20、炭酸塩沈殿: 200。
	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Eu-154の定量限界(単位: Bq/L)は、浄化処理前: 3.6E+01、排水前の分析: 1.8E+00、3ヶ月毎の分析: 1.5E-01。
	[6]	増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Eu-154の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、A系処理対象: 2.7E-01、A系処理済: 4.1E-04、B系処理対象: 2.7E-01、B系処理済: 3.8E-04、C系処理対象: 5.1E-01、C系処理済: 3.3E-04。
	[8]	ALPS処理水データ集(タンク群毎)4、K4エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Eu-154の定量限界(単位: Bq/L)は、K4エリアタンク水: 0.012。
	[9]	福島第一原子力発電所構内で採取した建屋内瓦礫、立木、落葉及び土壌の放射能分析	IRID/JAEA	2015/3/26	建屋内瓦礫 立木 落葉 土壌	Eu-154の定量限界(単位: Bq/g)は、建屋内瓦礫: 0.2、立木: 0.2、落葉: 0.2、土壌: 0.2。
	[10]	福島第一原子力発電所の固体廃棄物試料分析	IRID/JAEA	2015/5/25	多核種除去設備スラッジ、処理水	Eu-154の定量限界(単位: Bq/g)は、除染装置スラッジ: 200。
	[11]	廃棄物試料の分析結果(水処理設備処理二次廃棄物・滞留水)	IRID/JAEA	2018/3/29	R/B滞留水 スラリー	Eu-154の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、R/B滞留水: 0.2、スラリー: 2。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類 処理対象水 処理済水	Eu-154の定量限界(単位: Bq/L)は、C系処理対象水: 5.77E-01、C系処理済水: 1.14E-01。
	[17]	廃棄物試料の分析結果(瓦礫、水処理設備処理二次廃棄物、汚染水、処理水、土壌)	IRID/JAEA	2018/7/26	多核種除去設備スラッジ、処理水	Eu-154の定量限界(単位: Bq/cm <sup>3</sup> )は、多核種処理水: 0.07。 Eu-154の定量限界(単位: Bq/g)は、除染装置スラッジ: 200。
	[19]	廃棄物試料の分析 1号機原子炉建屋5階瓦礫・1号機タービン建屋地下1階スラッジ・多核種除去設備HICスラリー	IRID/JAEA	2016/9/29	滞留水スラッジ、原子炉建屋内瓦礫、スラリー	Eu-154の定量限界(単位: Bq/g)は、原子炉建屋内瓦礫: 0.3。
[20]	2号機及び3号機原子炉格納容器(PCV)内滞留水の分析結果	IRID/JAEA	2016/11/24	PCV滞留水	Eu-154の定量限界は、原子炉建屋内瓦礫①: 1 Bq/g、タービン建屋内スラッジ: 0.3 Bq/g、多核種除去スラリー: 2 Bq/cm <sup>3</sup> 、2号3号機PCV滞留水: 0.9 Bq/cm <sup>3</sup> 、1号タービンスラッジ: 200 Bq/g、滞留水: 2 Bq/cm <sup>3</sup> 。	

表3.3.2-5 核種別定量限界(8/10)

対象核種	参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データ
Eu-154	[21]	汚染水処理二次廃棄物の放射能評価のための多核種除去設備スラリー試料分析	IRID/JAEA	2015/8/27	鉄共沈、炭酸塩、溜まり水	Eu-154の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、PCV滞留水：0.9。
	[22]	廃棄物試料の分析結果（4号機建屋原子炉建屋ボーリングコア、土壌、多核種除去設備処理水）	IRID/JAEA	2018/11/29	瓦礫、土壌、焼却灰	Eu-154の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、鉄共沈：40、炭酸塩：30、溜り水（鉄共沈）：20、溜り水（炭酸塩）：200。
	[23]	廃棄物試料の分析結果（土壌、焼却灰、並びに水処理設備（セシウム吸着装置、多核種除去設備）出入口水）	IRID/JAEA	2015/3/30	土壌、焼却灰、セシウム吸着多核種除去設備出入口水	Eu-154の定量限界は、土壌：0.2 Bq/g、焼却灰：0.09 Bq/g、R/B滞留水：0.2、セシウム吸着装置処理水：0.2 Bq/cm <sup>3</sup> 。
	[24]	廃棄物試料の分析結果（2及び3号機原子炉格納容器内滞留水、1号機タービン建屋内滞留水・スラッジ、1号機原子炉建屋オペレーティングフロアボーリングコア）	IRID/JAEA	2017/2/23	滞留水、瓦礫	Eu-154の定量限界は、土壌：0.2 Bq/g、焼却灰：0.09 Bq/g、セシウム吸着装置処理水：0.2 Bq/cm <sup>3</sup> 、多核種除去設備処理水：0.02 Bq/cm <sup>3</sup> 。
	[25]	東京電力福島第一原子力発電所において採取された汚染水および瓦礫等の分析データ集	JAEA	2017	瓦礫、汚染水	Eu-154の定量限界は、1号建屋内瓦礫①：0.8 Bq/g、1号タービンスラッジ：200 Bq/g、2号機3号機PCV滞留水：0.9 Bq/cm <sup>3</sup> 、滞留水：0.8 Bq/cm <sup>3</sup> 。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Eu-154の液状の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、汚染水：0.1。 Eu-154の固体廃棄物系の定量限界（単位：Bq/g）は、瓦礫：0.3。 Eu-154の処理系液状の定量限界（単位：Bq/L）は、処理対象水：980、処理装置出口水：0.37、RO処理対象水：530、RO濃縮塩水：0.40。
Eu-155	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Eu-155の定量限界（単位：Bq/L）は、浄化処理前：4.0E+01、排水前の分析：3.0E+00、3ヶ月毎の分析：3.5E-01。
	[6]	増設多核種除去設備（増設ALPS）実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Eu-155の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、A系処理対象：3.2E+00、A系処理済：8.7E-04、B系処理対象：3.2E+00、B系処理済：9.7E-04、C系処理対象：3.8E+00、C系処理済：7.8E-04。
	[8]	ALPS処理水データ集（タンク群毎）4、K4エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Eu-155の定量限界（単位：Bq/L）は、K4エリアタンク水：0.033。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類処理対象水 処理済水	Eu-155の定量限界（単位：Bq/L）は、C系処理対象水：3.43E+00、C系処理済水：3.36E-01。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Eu-155の定量限界（単位：Bq/L）は、処理対象水：980、処理装置出口水：0.37、RO処理対象水：530、RO濃縮塩水：0.40。
Gd-153	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Gd-153の定量限界（単位：Bq/L）は、浄化処理前：2.7E+01、排水前の分析：2.4E+00、3ヶ月毎の分析：4.2E-01。
	[6]	増設多核種除去設備（増設ALPS）実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Gd-153の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、A系処理対象：2.5E+00、A系処理済：8.3E-04、B系処理対象：2.5E+00、B系処理済：6.6E-04、C系処理対象：3.4E+00、C系処理済：7.3E-04。
	[8]	ALPS処理水データ集（タンク群毎）4、K4エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Gd-153の定量限界（単位：Bq/L）は、K4エリアタンク水：0.032。

表3.3.2-5 核種別定量限界 (9/10)

対象核種	参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データ
Gd-153	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類処理対象水 処理済水	Gd-153の定量限界（単位：Bq/L）は、C系処理対象水：3.17E+00、C系処理済水：2.64E-01。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Gd-153の定量限界（単位：Bq/L）は、処理対象水：2200、処理装置出口水：0.37、RO処理対象水：1100、RO濃縮塩水：0.40。
Mn-54	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Mn-54の定量限界（単位：Bq/L）は、浄化処理前：1.1E+01、排水前の分析：5.3E-01、3ヶ月毎の分析：5.1E-02。
	[6]	増設多核種除去設備（増設ALPS）実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Mn-54の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、A系処理対象：1.9E-01、A系処理済：1.3E-04、B系処理対象：1.9E-01、B系処理済：1.3E-04、C系処理対象：3.0E-01、C系処理済：1.1E-04。
	[8]	ALPS処理水データ集（タンク群毎）4. K4エリアタンクの62核種測定結果	東電	2018/10/1	ALPS処理水	Mn-54の定量限界（単位：Bq/L）は、K4エリアタンク水：0.0067。
	[11]	廃棄物試料の分析結果（水処理設備処理二次廃棄物・滞留水）	IRID/JAEA	2018/3/29	R/B滞留水 スラリー	Mn-54の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、スラリー：50。
	[14]	多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について	東電	2020/11/16	タンク類処理対象水 処理済水	Mn-54の定量限界（単位：Bq/L）は、C系処理対象水：3.62E-01、C系処理済水：3.83E-02。
	[17]	廃棄物試料の分析結果（瓦礫、水処理設備処理二次廃棄物、汚染水、処理水、土壌）	IRID/JAEA	2018/7/26	多核種除去設備スラッジ、処理水	Mn-54の定量限界（単位：Bq/g）は、除染装置スラッジ：10000。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	Mn-54の定量限界（単位：Bq/L）は、RO処理対象水：0.11。
Co-60	[2]	福島第一原子力発電所構内で採取した瓦礫の分析	IRID/JAEA	2016/4/28	瓦礫	Co-60の定量限界（単位：Bq/g）は、建屋内瓦礫：0.3、覆土瓦礫：0.2。
	[5]	サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について	東電	2014/12/25	排水	Co-60の定量限界（単位：Bq/L）は、浄化処理前：1.4E+01、排水前の分析：8.8E-01、3ヶ月毎の分析：5.6E-02。
	[6]	増設多核種除去設備（増設ALPS）実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	Co-60の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、処理水：0.00012。 Co-60の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、A系処理済：1.2E-04、B系処理済：1.5E-04、C系処理済：1.5E-04。
	[9]	福島第一原子力発電所構内で採取した建屋内瓦礫、立木、落葉及び土壌の放射能分析	IRID/JAEA	2015/3/26	建屋内瓦礫 立木 落葉 土壌	Co-60の定量限界（単位：Bq/g）は、建屋内瓦礫：0.07、立木：0.07、落葉：0.07、土壌：0.07。
	[10]	福島第一原子力発電所の固体廃棄物試料分析	IRID/JAEA	2015/5/25	多核種除去設備スラッジ、処理水	Co-60の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、処理水：0.06。 Co-60の定量限界（単位：Bq/g）は、除染装置スラッジ：1000。
	[13]	多核種除去設備のホット試験について	東電	2013/4/19	処理対象水 処理済水	Co-60の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は処理対象水：0.66。
	[17]	廃棄物試料の分析結果（瓦礫、水処理設備処理二次廃棄物、汚染水、処理水、土壌）	IRID/JAEA	2018/7/26	多核種除去設備スラッジ、処理水	Co-60の定量限界（単位：Bq/g）は、除染装置スラッジ：200。Co-60の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、多核種処理水：0.04。

表3.3.2-5 核種別定量限界(10/10)

対象核種	参考文献番号	文献名	著者	発行年	測定対象物	定量限界データ
Co-60	[19]	廃棄物試料の分析 1号機原子炉建屋5階瓦礫・1号機タービン建屋地下1階スラッジ・多核種除去設備HICスラリー	IRID/JAEA	2016/9/29	滞留水スラッジ、原子炉建屋内瓦礫、スラリー	Co-60の定量限界（単位：Bq/g）は、原子炉建屋内瓦礫：0.2。
	[20]	2号機及び3号機原子炉格納容器（PCV）内滞留水の分析結果	IRID/JAEA	2016/11/24	PCV滞留水	Co-60の定量限界は、1号タービンスラッジ：1000 Bq/g、滞留水：0.8 Bq/cm <sup>3</sup> 。
	[23]	廃棄物試料の分析結果（土壌、焼却灰、並びに水処理設備（セシウム吸着装置、多核種除去設備）出入口水）	IRID/JAEA	2015/3/30	土壌、焼却灰、セシウム吸着多核種除去設備出入口水	Co-60の定量限界は、原子炉建屋内瓦礫（/面積cm <sup>2</sup> ）：0.6 Bq/cm <sup>2</sup> 、セシウム吸着装置処理水：0.2 Bq/cm <sup>3</sup> 、土壌：90 Bq/g。
	[24]	廃棄物試料の分析結果（2及び3号機原子炉格納容器内滞留水、1号機タービン建屋内滞留水・スラッジ、1号機原子炉建屋オペレーティングフロアボーリングコア）	IRID/JAEA	2017/2/23	滞留水、瓦礫	Co-60の定量限界は、土壌：0.07 Bq/g、セシウム吸着装置処理水：0.2 Bq/cm <sup>3</sup> 、多核種除去設備処理水：0.09 Bq/cm <sup>3</sup> 。
	[25]	東京電力福島第一原子力発電所において採取された汚染水および瓦礫等の分析データ集	JAEA	2017	瓦礫、汚染水	Co-60の定量限界は、1号タービンスラッジ：1000 Bq/g、滞留水：0.8 Bq/cm <sup>3</sup> 、1号建屋内瓦礫①：0.4 Bq/g。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	多核種除去設備	Co-60の定量限界（単位：Bq/g）は、瓦礫：0.2。 Co-60の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、汚染水：0.03。Co-60の定量限界（単位：Bq/L）は、RO処理対象水：0.16。
I-129	[6]	増設多核種除去設備（増設ALPS）実施計画 補足説明資料	東電	2016/6/1	処理水	I-129の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、A系処理済：8.9E-04、B系処理済：8.9E-04、C系処理済：7.3E-04。
	[11]	廃棄物試料の分析結果（水処理設備処理二次廃棄物・滞留水）	IRID/JAEA	2018/3/29	R/B滞留水スラリー	I-129の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、R/B滞留水：0.05。 I-129の定量限界（単位：Bq/cm <sup>3</sup> ）は、A系処理対象：、A系処理済：8.9E-04、B系処理済：8.9E-04、C系処理済：7.3E-04。
	[20]	2号機及び3号機原子炉格納容器（PCV）内滞留水の分析結果	IRID/JAEA	2016/11/24	PCV滞留水	I-129の定量限界（単位：Bq/g）は、1号建屋内瓦礫②：0.2。
	[25]	東京電力福島第一原子力発電所において採取された汚染水および瓦礫等の分析データ集	JAEA	2017	瓦礫、汚染水	I-129の定量限界（単位：Bq/g）は、1号建屋内瓦礫②：0.2。
	[26]	多核種除去設備に関する補足説明資料	東電	2013/1/24	処理対象水 処理済水 RO濃縮塩水	I-129の定量限界（単位：Bq/L）は、処理対象水：1900、処理装置出口水：0.90、RO処理対象水：1500、RO濃縮塩水：0.90。
Sn-121m	-	-	-	-	-	記載なし
Sb-126m	-	-	-	-	-	記載なし
Ba-133	-	-	-	-	-	記載なし
Sb-126	-	-	-	-	-	記載なし
Ag-110	-	-	-	-	-	記載なし

(4) 考察 その他

① 核種ごとの放射能濃度の分析フロー

1F 廃棄物の測定用試料に対しての核種ごとの測定の全体フローが公開文献[30]に示されており、Ge 半導体検出器による測定核種として Co-60、Nb-94、Eu-152、Eu-154 があげられている。これから基本的には核種を分離・精製により単一化、あるいは測定しやすい形態として測定するのが、現行手法では精度を向上のため必要と考えられる。

② 難測定核種について

難測定核種については、その要因を以下にあげる。

- ・ Ge 半導体検出器等の測定機器のデータ処理的にスペクトル上判別しにくい核種
- ・ 短半減期、分離精製等の低い収率、低残存量、等の要因で、放射エネルギーが少ない核種

また、公開文献[14]から、放射性核種の混在状況により、コンプトン等のピークが重なり、妨害される場合が報告されている。

③ 定量限界値の詳細

調査文献のうち定量限界の導出についての条件記載が無いものが多いが、測定条件記載があった文献[5]のデータを表 3.3.2-6 に示す。

表 3.3.2-6  $\gamma$  線核種分析の内容と定量限界の関係

試料量	0.5L	2L	10L	2L
前処理等	直接 (マリネリピーカ)	直接 (マリネリピーカ)	リンモリブデン酸塩共沈法	直接 (マリネリピーカ)
計測装置	Ge 半導体検出器	Ge 半導体検出器	Ge 半導体検出器	Ge 半導体検出器
計測時間	300 秒	1,000 秒	30,000 秒	40,000 秒
定量限界	Cs-134 : 約 21 Bq/L Cs-137 : 約 26 Bq/L Co-60 : 約 14 Bq/L	Cs-134 : 約 0.62 Bq/L Cs-137 : 約 0.68 Bq/L Co-60 : 約 0.88 Bq/L	Cs-134 : 約 0.0039 Bq/L Cs-137 : 約 0.0038 Bq/L	Cs-134 : 約 0.053 Bq/L Cs-137 : 約 0.059 Bq/L Co-60 約 0.056 Bq/L

この表 3.3.2-6 から、試料の量、測定時間は異なっており、それにともない定量限界も変化しており、試料の量が多い場合と、測定時間が長い場合において定量限界が低下すると考えられる ( $\alpha$  核種の例では 100 万秒測定の例も報告されている)。

④ 定量限界と時間の関係

水中セシウム技術検討委員会からの公開資料[27]「環境放射能モニタリングのための水中放射性セシウムの前処理法・分析法」から、Cs-137 についての測定時間と定量限界の関係のグラフ図 3.3.2-1 を作成した。定量限界と時間については、測定時間が長いと定量限界は低下する傾向がみられる。

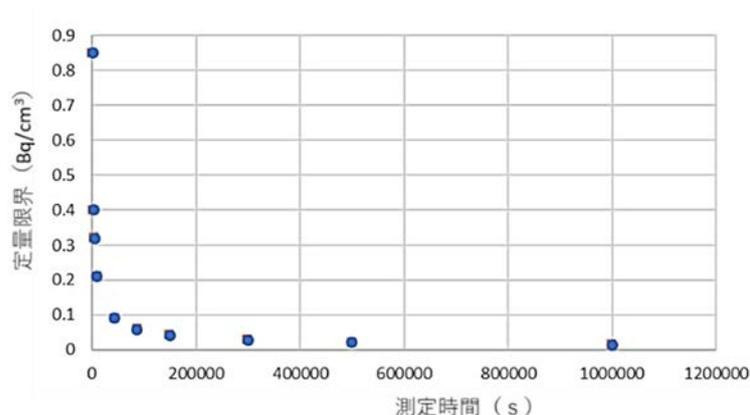


図 3.3.2-1 Cs-137 についての測定時間と定量限界の関係

#### ⑤ 核種別の放射能（濃度）評価方法

γ 核種の核種別の放射能分析方法について、東電公開データ[5]では 48 核種のうち γ 線核種 (31 核種) 分析手法について、基本的には Ge 半導体検出器であるが、核種固有の要素として以下の追記がある。

31 核種のうち放射平衡核種としては、Rh-106 (Ru-106 から)、Te-125m (Sb-125)、Te-127m (Te-127)、Ba-137m (Cs-137 から)、Pr-144 (Ce-144 から)、Pr-144m (Ce-144 から) がある。

また、他の核種を基本として評価する核種としては、Sn-119m (Sn-123 から評価)、Cs-135 (Cs-137 から評価)、Pm-147 (Eu-154 から評価)、Sm-151 (Eu-154 から評価) となっている。

また Ni-63、Y-91 については、β γ 核種であるため β 核種の測定法で対応している。Y-91 について妨害核種があれば濃縮して Ge 半導体検出器の場合もある。

#### ⑥ デブリの分析について

現状デブリについては採取が困難であるため実測されたデータは今後となるが、関連する格納容器内等で採取された試料の文献データ[33]によれば、主要核種として Cs-134、Cs-137、Co-60、Am-241 が観測され、Mn-54、Rh-106、Sb-125、Ce-144、Eu-154、Eu-152 については、定量限界以下（定量限界の数値は掲載なし）の試料が多くなっている。

#### (5) 結言

1F 事故による、サイト内、サイト外の放射能測定についての状況を調査し、令和 3 年度以降に用いるデータベースを構築できた。

また、処理対象水は Sr-90 が支配的で、Co-60、Eu-152、Eu-154 は検出されない傾向があり、固体系では Co-60、Cs-137、Eu-152、Eu-154 が主体の傾向がある。

本調査は、定量限界を目的としたが、そのような公開データは少ないので、測定結果が ND であつた ND の数値を記載している資料から、数値を参照している。したがって、測定結果が ND を超えた場合、ND に関する記載はないが、実際は、すべての測定に定量限界はあると考える。

注) 指数表示のうち E-03 は  $10^{-3}$  を示す。

## 参考文献

- [1] 西原健司ほか, 福島第一原子力発電所の燃料組成評価, JAEA-Data/Code 2012-018, 2012, 190p.
- [2] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 福島第一原子力発電所構内で採取した瓦礫の分析, [https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisaku/team/2016/pdf/0428\\_3\\_4d.pdf](https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisaku/team/2016/pdf/0428_3_4d.pdf) (参照: 2021年2月19日).
- [3] 宮本泰明, 福島第一原子力発電所事故廃棄物の処理・処分研究開発, [https://irid.or.jp/\\_pdf/20150911\\_2.pdf](https://irid.or.jp/_pdf/20150911_2.pdf) (参照: 2021年2月19日).
- [4] 宮本泰明, 放射性廃棄物の処理処分, 日本原子力学会誌 ATOMOS, vol. 58, no. 1, 2016, pp. 19-21.
- [5] 東京電力ホールディングス株式会社, サブドレン他水処理施設の排水管理に関する運用について, <https://www.nsr.go.jp/data/000120893.pdf> (参照: 2021年2月19日).
- [6] 東京電力ホールディングス株式会社, 増設多核種除去設備(増設ALPS)実施計画補足説明資料, <https://www.nsr.go.jp/data/000153130.pdf> (参照: 2021年2月19日).
- [7] 東京電力ホールディングス株式会社, 3号機廃棄物地下貯蔵建屋原子炉冷却材浄化系廃樹脂貯蔵タンク室漏えい樹脂の回収について, <https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisaku/team/2021/02/3-1-3.pdf> (参照: 2021年2月26日).
- [8] 東京電力ホールディングス株式会社, ALPS処理水データ集(タンク群毎), 4. K4エリアタンクの62核種測定結果, pp. 29-34, [https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/osensuitaisaku/committee/takakusyu/pdf/010\\_04\\_03.pdf](https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/osensuitaisaku/committee/takakusyu/pdf/010_04_03.pdf) (参照: 2021年2月19日).
- [9] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 福島第一原子力発電所構内で採取した建屋内瓦礫、立木、落葉及び土壌の放射能分析, [https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2015/03/20150326\\_2.pdf](https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2015/03/20150326_2.pdf) (参照: 2021年2月19日).
- [10] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 福島第一原子力発電所の固体廃棄物試料分析(現状までの成果報告), [https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2017/05/20170525\\_2.pdf](https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2017/05/20170525_2.pdf) (参照: 2021年2月19日).
- [11] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 廃棄物試料の分析結果(水処理設備処理二次廃棄物・滞留水), <https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/03/20180329.pdf> (参照: 2021年2月19日).
- [12] 東京電力ホールディングス株式会社, 多核種除去設備等処理水の全ベータ値と主要7核種合計値とのかい離調査結果について, [https://www4.tepco.co.jp/decommission/information/committee/evaluation\\_review/pdf/2019/evaluation\\_review\\_2019061701.pdf](https://www4.tepco.co.jp/decommission/information/committee/evaluation_review/pdf/2019/evaluation_review_2019061701.pdf) (参照: 2021年2月19日).

- [13] 東京電力株式会社, 多核種除去設備のホット試験について,  
[https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2013/images/handouts\\_130419\\_07-j.pdf](https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2013/images/handouts_130419_07-j.pdf) (参照: 2021年2月19日) .
- [14] 東京電力ホールディングス株式会社, 多核種除去設備等処理水の二次処理性能確認試験等の状況について, <https://www.nsr.go.jp/data/000334474.pdf> (参照: 2021年2月19日) .
- [15] 宮本泰明, 9-1 福島第一原子力発電所の廃炉に伴う廃棄物の種類と量, テキスト「核燃料サイクル」,  
[http://www.aesj.or.jp/~recycle/nfctxt/nfctxt\\_9-1.pdf](http://www.aesj.or.jp/~recycle/nfctxt/nfctxt_9-1.pdf) (参照: 2021年2月19日) .
- [16] 東京電力ホールディングス株式会社, 多核種除去設備 (ALPS) 処理水タンクの放射能濃度について, <https://www2.nsr.go.jp/data/000261368.pdf> (参照: 2021年2月19日) .
- [17] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 廃棄物試料の分析結果 (瓦礫, 水処理設備処理二次廃棄物, 汚染水, 処理水, 土壌),  
[https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/07/20180726\\_3.pdf](https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/07/20180726_3.pdf) (参照: 2021年2月19日) .
- [18] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 福島第一発電所構内で採取した建屋内瓦礫の放射能分析, <https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2015/10/201510011.pdf> (参照: 2021年2月19日) .
- [19] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 廃棄物試料の分析 1号機原子炉建屋5階瓦礫・1号機タービン建屋地下1階スラッジ・多核種除去設備 HIC スラリー, <https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2016/09/20160929.pdf> (参照: 2021年2月19日) .
- [20] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 2号機及び3号機原子炉格納容器 (PCV) 内滞留水の分析結果,  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisaku-team/2016/11/3-04-03.pdf> (参照: 2021年2月19日) .
- [21] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 汚染水処理二次廃棄物の放射能評価のための多核種除去設備スラリー試料分析,  
[https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisaku-team/2015/pdf/0827\\_3\\_4c.pdf](https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisaku-team/2015/pdf/0827_3_4c.pdf) (参照: 2021年2月19日) .
- [22] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 廃棄物試料の分析結果 (4号機建屋原子炉建屋ボーリングコア、土壌、多核種除去設備処理水),  
[https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2019/04/20190425\\_No.60.pdf](https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2019/04/20190425_No.60.pdf) (参照: 2021年2月19日) .
- [23] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構/国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 廃棄物試料の分析結果 (土壌、焼却灰、並びに水処理設備 (セシウム吸着装置、多核種除去設備) 出入口水),  
[https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2019/04/20190425\\_No.40.pdf](https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2019/04/20190425_No.40.pdf) (参照: 2021年2月19日) .

- [24] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構／国立研究開発法人日本原子力研究開発機構，  
廃棄物試料の分析結果（2及び3号機原子炉格納容器内滞留水、1号機タービン建屋内滞留  
水・スラッジ、1号機原子炉建屋オペレーティングフロアボーリングコア），  
[https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisaku  
team/2017/02/3-04-04.pdf](https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisaku<br/>team/2017/02/3-04-04.pdf)（参照：2021年2月19日）。
- [25] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構，東京電力福島第一原子力発電所において採取  
された汚染水および瓦礫等の分析データ集，JAEA-Data/Code 2017-001，2017，78p.
- [26] 東京電力株式会社，多核種除去設備に関する補足説明資料，  
<https://www.nsr.go.jp/data/000050832.pdf>（参照：2021年2月19日）。
- [27] 水中の放射性セシウムのモニタリング手法に関する技術資料検討委員会，環境放射能モニ  
タリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法，2015，  
[https://unit.aist.go.jp/georesenv/information/20150917/TechRep\\_Cs\\_Monitoring\\_Water.  
pdf](https://unit.aist.go.jp/georesenv/information/20150917/TechRep_Cs_Monitoring_Water.<br/>pdf)（参照：2021年2月19日）。
- [28] 東京電力株式会社，1，2号機トーラス室滞留水および堆積物分析結果について，  
[https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/130828/130828\\_01gg.pdf](https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/130828/130828_01gg.pdf)（参照：2021年  
2月19日）。
- [29] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構／国立研究開発法人日本原子力研究開発機構，福島第  
一原子力発電所の固体廃棄物試料分析（現状までの成果報告），  
[https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2017/05/20170525\\_2.pdf](https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2017/05/20170525_2.pdf)（参照：2021年2月19  
日）。
- [30] 宮本泰明，福島第一原子力発電所事故廃棄物の処理・処分研究開発，  
[https://irid.or.jp/\\_pdf/20150911\\_2.pdf](https://irid.or.jp/_pdf/20150911_2.pdf)（参照：2021年2月19日）。
- [31] 宮本泰明，福島第一原子力発電所事故廃棄物の処理・処分技術開発の概要，  
[http://wchem.sakura.ne.jp/wp/wp-content/uploads/2019/09/%E7%AC%AC27%E5%9B%9E%E5  
%AE%9A%E4%BE%8B%E7%A0%94%E7%A9%B6%E4%BC%9A\\_3.pdf](http://wchem.sakura.ne.jp/wp/wp-content/uploads/2019/09/%E7%AC%AC27%E5%9B%9E%E5<br/>%AE%9A%E4%BE%8B%E7%A0%94%E7%A9%B6%E4%BC%9A_3.pdf)（参照：2021年2月19日）。
- [32] 東京電力ホールディングス株式会社，除染装置スラッジおよび多核種除去設備スラリーの  
安定化・固化処理の検討状況，<https://www.nsr.go.jp/data/000167363.pdf>（参照：2021年  
2月19日）。
- [33] 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格納容器内等で採取された試  
料の分析，  
[https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisaku  
team/2019/05/3-3-2.pdf](https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisaku<br/>team/2019/05/3-3-2.pdf)（参照：2021年2月19日）。
- [34] Qiao, J. et al., Speciation Analysis of  $^{129}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}$  in  
Environmental Soil and Sediment, Applied Radiation and Isotopes, vol. 70, no. 8, 2012,  
pp. 1698-1708, <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2012.04.006>.
- [35] Matsuda N. et al., Depth Profiles of Radioactive Cesium in Soil Using a Scraper  
Plate over a Wide Area Surrounding the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant,  
Japan, Journal of Environmental Radioactivity, vol. 139, 2015, pp. 427-434,  
<https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.10.001>.

- [36] Hou X. et al., A Review on Speciation of Iodine-129 in the Environmental and Biological Samples, *Analytica Chimica Acta*, vol.632, no.2, 2009, pp.181-196, <https://doi.org/10.1016/j.aca.2008.11.013>.
- [37] Muramatsu Y. et al., Analysis of  $^{129}\text{I}$  in the soils of Fukushima Prefecture: Preliminary Reconstruction of  $^{131}\text{I}$  Deposition Related to the Accident at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP), *Journal of Environmental Radioactivity*, vol.139, 2015, pp.344-350, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.05.007>.
- [38] Andris B. et al., The Development of  $^{126}\text{Sn}$  Separation Procedure by Means of TBP Resin, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol.308, 2016, pp.781-788, DOI:10.1007/s10967-015-4599-y.
- [39] Yang G. et al.,  $^{135}\text{Cs}$  Activity and  $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  Atom Ratio in Environmental Samples before and after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, *Scientific Reports*, vol. 6, 24119, 2016, DOI:10.1038/srep24119.
- [40] Zheng J. et al., Triple-Quadrupole Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry with a High-Efficiency Sample Introduction System for Ultratrace Determination of  $^{135}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Environmental Samples at Femtogram levels, *Analytical Chemistry*, vol.88, no.17, 2016, pp.8772-8779, DOI:10.1021/acs.analchem.6b02150.
- [41] 青野竜士ほか, 福島事故廃棄物を対象とした  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{93}\text{Mo}$ ,  $^{107}\text{Pd}$  及び  $^{126}\text{Sn}$  分析法の開発, *JAEA-Technology* 2017-025, 2017, 40p, DOI:10.11484/jaea-technology-2017-025.

### 3.3.3 SDM法のバリデーション（連携先：JAEA）

#### (1) 目的及び概要

多重 $\gamma$ 線検出法及びSDM法による定量結果との比較を行うため、従来分析法に関して過去の文献を調べ、定量限界について調査を行った。また、1F廃棄物中測定対象核種に対する調査を行った。

#### (2) 調査対象

調査対象の文献は、主に以下の項目を含むものとした。

- ・環境試料中の放射性核種に対する分析法に関するもの
- ・放射性廃棄物試料中の放射性核種に対する分析法に関するもの
- ・1Fに関連する放射性核種に対する分析法に関するもの

#### (3) 文献調査の基本的な方針

多重 $\gamma$ 線検出法及びSDM法による定量結果との比較を行うため、 $\gamma$ 線放出核種に対する分析法として、主に多重 $\gamma$ 線検出法を適用している文献を中心に調査するとともに、 $\beta$ 線放出核種に対する分析法として、主に液体シンチレーション法を適用している文献を中心に調査した。このほか、測定法として放射能測定を用いた文献を中心に調査することとし、誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）や加速器質量分析法（AMS）等の放射能測定以外の手法については、基本的には除外することとした。ただし、従来法との比較のために必要な場合や1Fに関連する放射性核種に対する分析法として適用されている場合には、ICP-MSやAMS等の放射能測定以外の手法についても調査対象に含めた。

#### ① 文献調査の項目

次の観点で情報を整理した。著者名、出典、発行年、タイトル、対象核種、対象試料、供試量、前処理法、分離精製法、測定法、測定器の校正に関する情報、系統分析の有無、分析所要時間、回収率、除染係数、検出限界値、分析法の妥当性に関する確認等を項目別にまとめることとした。

#### (4) 文献調査の結果

文献調査の結果を表3.3.3-1に示す。結果の概要を次に示す。

#### ① 多重 $\gamma$ 線検出法による定量限界について

##### i 環境試料への適用

環境試料（地質試料等）を対象として、多重 $\gamma$ 線検出法を適用した例が、公開文献[1][2][3]に報告されている。主に安定元素に対する分析法として利用されており、サブppbレベルの検出限界値が報告されている。また、公開文献[4]では、多重 $\gamma$ 線検出装置の高度化が提案されており、検出限界値の改善効果が報告されている（検出限界値は記載無し）。

##### ii 放射性廃棄物試料への適用

このほか、公開文献[24]には、研究施設等から発生した廃棄物試料に含まれる放射性核種のうち、Co-60、Nb-94、Ag-108m、Ba-133、Eu-152、Eu-154、Ho-166mを対象として、多重 $\gamma$ 線検出法を実廃棄物試料に適用した例が報告されている。廃棄物試料中に多量にCo-60（190 kBq）が含まれる条件でも化学分離を行うことなく、7～17 Bq/g程度の検出限界値が得られており、多重 $\gamma$ 線検出法によって、煩雑な化学分離操作を省略できた例が示されている。

本文献調査の範囲において、多重 $\gamma$ 線検出法を用いることにより、化学分離操作を省力化した例が報告されているが、1F廃棄物のようにCs-137が多く含まれる条件で、多重 $\gamma$ 線検出法を実廃棄物に対して適用した例はないことがわかった。

## ② 液体シンチレーション法による定量限界について

### i 環境試料への適用

環境試料を対象とした $\beta$ 線放出核種の分析法として、液体シンチレーション法を適用した例は、公開文献[5]ほか多数報告されている。コンクリート、レンガ、金属、アスベスト、プラスチック、有機物、生物試料、堆積物、土壌等、様々な試料に対する適用例が報告されている。検出限界値については、測定時間や供試料量等にも依存するため、例えば、公開文献[17]の総説においては、Sr-90の場合には、測定時間1~2時間程度で、0.1 Bq以下の検出限界値が得られている。

### ii 放射性廃棄物試料への適用

放射性廃棄物試料を対象とした $\beta$ 線放出核種の分析法としても、液体シンチレーション法を適用した例が多数報告されている。公開文献[20]及び公開文献[25]では、廃液、セメント固化体、焼却灰、金属、コンクリート等の様々な試料に対して液体シンチレーション法を適用し、例えば、Sr-90の場合には、分離後放射平衡まで2週間以上経過した後の測定において、測定時間3万秒で、検出限界値0.01 Bq/gが得られている（供試料量1 g）。

本文献調査の範囲において、 $\beta$ 線放出核種の分析に対して、液体シンチレーション法を用いた測定では、測定の妨害となる核種を除去するための化学分離操作が必須であった。特に、放射性廃棄物試料のように、測定を妨害する核種が多数、かつ、それらの濃度も様々である試料においては、妨害核種の化学的性質等に従って、様々な前処理法、分離法が適用されている。イオン交換分離法や固相抽出分離法、沈殿分離法、揮発性核種に対する加熱分離法等、様々な分離法が適用され、かつ、複数の分離法が併用されていた。

## ③ 1F 廃棄物中測定対象核種について

1F 廃棄物中測定対象核種に関する報告として、公開文献[15]では、1F 構内の瓦礫、木片等を対象として、16核種（H-3、C-14、Cl-36、Co-60、Se-79、Sr-90、Nb-94、Tc-99、I-129、Cs-137、Eu-152、Eu-154、Pu-238、Pu-239、Am-241、Cm-244）の分析結果について報告されている。この中で、 $\gamma$ 線放出核種の分析では、シングルス $\gamma$ 線測定法が用いられており、 $\beta$ 線放出核種の分析では、主に液体シンチレーション法が採用されている。また、公開文献[26]には、1F 構内に保管されている瓦礫や植物を対象として、18核種（H-3、C-14、Cl-36、Ni-63、Co-60、Se-79、Sr-90、Nb-94、Tc-99、I-129、Cs-137、Eu-152、Eu-154、Pu-238、Pu-239、Pu-240、Am-241、Cm-244）の分析法及びその適用性について報告されている。この中でも、 $\gamma$ 線放出核種の分析では、シングルス $\gamma$ 線測定法が用いられている。また、 $\beta$ 線放出核種のうち、H-3、C-14、Ni-63、Se-79、Sr-90、Tc-99に対しては、液体シンチレーション法が採用されており、Cl-36に対しては、低バックグラウンドガスフローカウンタ（LBC）が採用され、I-129に対しては、ICP-MSが用いられていた。いずれも1F 構内にて採取された試料であり、Sr-90やCs-137等の核分裂生成物が多く含まれているため、それぞれの分析対象核種と放射能測定の妨害となる核種とを十分に分離する必要がある。そのため、研究施設から発生した放射性廃棄物試料に対する分析法（公開文献[20]）を基に、化学分離フローの改善や測定法の改善等を取り入れて分析法が開発され、実試料を用いて開発した分析法の適用性が報告されていた。

## (5) 結言

多重 $\gamma$ 線検出法及びSDM法による定量結果との比較を行うため、従来法として、主に環境中及び放射性廃棄物中の放射性核種に対する分析法に関する文献を調査するとともに、1Fに関連した放射性核種に対する分析法に関する文献を調査し、合わせて表3.3.3-1に示した26報について結果をまとめた。

その結果、環境試料や放射性廃棄物試料に含まれる $\gamma$ 線放出核種に対して、多重 $\gamma$ 線検出法の適用例を収集するとともに、 $\beta$ 線放出核種に対する液体シンチレーション法の適用例を多数収集することができた。また、1F 廃棄物中測定対象核種に関する調査では、1Fの構内に保管されている瓦礫等に対する分析法の報告例を収集できたことから、本研究で開発する新しい分析法と従来法を比較するための基礎的なデータを整備することができた。

本文献調査の範囲において、多重 $\gamma$ 線検出法を用いることにより、化学分離操作を省力化した例が報告されているものの、1F廃棄物のようにCs-137が多く含まれる条件下で、多重 $\gamma$ 線検出法を実廃棄物試料に対して適用した例はないことがわかった。また、 $\beta$ 線放出核種の分析では、液体シンチレーション測定妨害となる核種を除去するための化学分離操作が必須であり、1F廃棄物のように、測定を妨害する核種が多数、かつ、それらの濃度も様々である試料においては、妨害核種の化学的性質等に従って、多段階の化学分離操作が避けられず、分析操作を煩雑化させていることがわかった。本研究のテーマにおいて新規分析法を開発することにより、1F廃棄物に対する分析法の迅速化・効率化が十分に見込めることがわかった。















表3.3.3-1 文献調査結果(8/13)

文献番号	著者名	出版	発行年	タイトル	掲載雑誌	試験種類	供試量	前処理(分務)	分離精製	測定	加算器校正	系統分析の有無	分析所要時間	回収率	除染係数	検出下限値	分析方法に係る妥当性評価	前処理の適用性*	予測の適用性*	分離精製の適用性*	概要	
21					Si-90	分溶液	セメント固化体0.05g 分取量0.01g相当	-	Seレンジウム2週間放置	LSC	記載なし	無	記載なし	-	-	-	-	-	-	-		
					PuAm, CmNp	分溶液	セメント固化体0.2g 検取量0.001~0.01g	-	TRUレンジから相互分離、各プルトニウムとAmとPuを分離	α線スペクトロメトリ	記載なし	有	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	-	-	-		
					H-3 C-14	セメント固化体 (分取指針と同様)	セメント固0.27g 検取量0.25~0.27g	酸素気流中で加熱	LSC	LSC	記載なし	有	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	-	-	-		
					Cr-36	セメント固化体、焼却灰	セメント固0.5g 検取量0.27g	水酸化ナトリウム前処理	硫酸塩沈殿、ハロゲン化銀沈殿、溶解、PVA含有SDBD、イソク、塩化銀	LSC	記載なし	無	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	-	-	-	
					I-129	セメント固化体、焼却灰	セメント固1g	酸素気流中で加熱、ナトリウム前処理、セメント成分抽出	反応セル型ICP-MS	記載なし	記載なし	無	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	10 <sup>-6</sup> Bq	-	-	-		
22	安田麻里 田中究 渡辺幸一 星玉裕子 辻智之 龍尾裕	JAEA-Date/Code 2014-011	2014	JDDR保管廃棄物試料に対する放射化学分析(3)		7核種 Co-60 Nb-94 AsF 109m Cs-137 Eu-152 Hf-178 Hf-180m	金属片屑粉末 分溶液 100 ml	-	-	Ge	記載なし	一部の材料 Nb-94とEuHoを分離	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	-	-	-	JAEAが保管するJDDR保管廃棄物の放射化学分析を実施した。また平成25年度に実施した分析結果と照らし合わせて放射能濃度データをとりまとめに整理した。	
					Ni-59 Ni-63	分溶液	-	-	乾留、陰イオン交換樹脂カラム、Niレンジウムカラム、Ge(LSC)電算(Ni-59)	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	-	-	-		
					Si-90	分溶液	-	-	乾留、陰イオン交換樹脂カラム、リンモリブデンカラム、リンモリブデンカラム、アンモニウム、Seレンジウムカラム	LSC LSC 2週間放置後	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	-	-	-		
					Te-99	粉末 金属片	-	湿酸溶解	リンモリブデンカラム、ニウム名O除去、炭焼培沈殿、Niレンジウムカラム、TEVAL、Seレンジウムカラム、塩化銀沈殿	LSC	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	-	-	-	
					H-3 C-14	粉末 金属片	-	酸素気流中で加熱、H-3トランプ	H-3 LSC C-14 LSC	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	-	-	-	
					Cr-36	粉末 金属片	-	酸素気流中で塩化銀加熱、炭焼培沈殿、Naトリウムで精製	ガスフロー計数管	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	記載なし	-	-	-	
					全α	分溶液	-	-	Ta酸に焼付	Si	記載なし	無	記載なし	-	-	記載なし	記載なし	-	-	-		



表3.3.3-1 文献調査結果(10/13)

文献番号	著者名	出典	発行年	タイトル	掲載誌	材料種類	供試量	精加工程序(分解)	分離精製	測定	測定器校正	系統分析の有無	分析所要時間	回収率	除去係数	検出下限値	分析方法に係る妥当性確認	前処理妥当性	分離精製妥当性	概要
24	河内山 眞 美原寛 智 子亀屋 裕 高橋邦明	JAEA-Technology 2011-038	2011	実放射線測定装置の性能評価	Nb-94 Ag-108m Ba-133 Eu-152.15 4 Ho-166m	金属	記載なし	-	-	多重ガンマ線測定	RI標準線源	-	70時間	-	-	Nb-94:10 Bq/g Ag-108m:8.7 Bq/g Ba-133:7.0 Bq/g Eu-152.154:12 Bq/g Ho-166m:17 Bq/g	実試料	-	-	廃棄物の放射線測定装置の性能評価に必要であるため、Ge検出器とBCGO検出器を組み合わせた検出器ユニットを用いた多重ガンマ線測定装置を新たに構築した。この装置は、Ge検出器とBCGO検出器の組合せによるコンプトン散乱低線に加え、カスケード崩壊で連続的に放出されるガンマ線を複数の Ge 検出器で同時に検出することにより、そのエネルギーの組み合わせから核種を特定する。多重ガンマ線測定装置を多量の Co-60を含む廃棄物試料に適用したところ、従来の Ge 検出器に比べ、試料中に含まれる対象核種の検出限界が 1/4 から 1/12 に低減した。また、同試料中の Nb-94 の放射線測定に有効であることを確認した。
25	亀屋 裕、石森健一、原寛 智、島田 亜佐子、片山 淳、中島 健、高橋邦明	日本原子力学会和文論文誌、Vol. 10, No. 3, p. 216-225 (2011)	2011	研究施設から発生する廃棄物に対する体系的な放射線分析法	Nb-94, Ag-108m, Ba-133, Eu-154, Ho-166m, Cs-41	金属 生体組織 コンクリート	記載なし	マイクロ波加熱分解	イオン交換及び陽イオン交換樹脂による分離	多重ガンマ線測定 レーザー共鳴質量分析法(RIMS)	記載なし	無	分離3日 測定1時間	60%	記載なし	1 Bq/g	実試料	○	○	日本原子力研究開発機構から発生する低レベル放射性廃棄物を対象として、処分安全評価上重要核種として予備評価された核種の8核種について、日本原子力研究開発機構が開発した分析法を実験廃棄物試料へ適用した結果をまとめたものである。
					Nb-94, Ag-108, Ba-133, Eu-154, Ho-166m	廃液、セメント固体化体、煤、却灰、金属	記載なし	マイクロ波加熱分解	イオン交換樹脂、NULソルゲル	Ni-59, Ge-LEPS Ni-43, LSC	記載なし	無	廃液、セメント固体化体、煤、却灰、金属 測定5日 3.0×10 <sup>4</sup> s	記載なし	記載なし	Ni-59:0.07 Bq/g Ni-63:0.03 Bq/g	実試料	○	○	
					Sr-90	廃液、セメント固体化体、煤、却灰、金属	記載なし	マイクロ波加熱分解	SrチタスクまたはSRレジンカラムミルキープ	β線スペクトロメトリ LSC	記載なし	無	廃液、セメント固体化体、煤、却灰、金属 LSC液 射平衡状態で2週間以上静置 測定3.0×10 <sup>4</sup> s	記載なし	記載なし	β線スペクトロメトリ 1.2 Bq/g LSC:0.01 Bq/g	実試料	○	○	
					U, Pu, Am, Cm	廃液、セメント固体化体、煤、却灰、金属	記載なし	マイクロ波加熱分解	UTEVALJIN, Pu, Am, Cm, TRUレジン	U-238, ICP-MS Pu, Am, Cm: α線スペクトロメトリ	記載なし	無	廃液、セメント固体化体、煤、却灰、金属 測定3日 測定、測 定:2.0×10 <sup>5</sup> s U:74-89 %、Pu:74-100% Am:69-94 %	記載なし	記載なし	U-238:5×10 <sup>-4</sup> Bq/g Pu:0.2 Bq/g Am, Cm: 0.07 Bq/g	実試料	○	○	

表3.3.3-1 文献調査結果(11/13)

文献番号	著者名	出典	発行年	タイトル	掲載媒体	掲載種類	試料種類	供試量	前処理(分拆)	分離精製	測定	測定器校正	系統分析の有無	分析時間	回収率	除染係数	検出下限値	分析手法に係る妥当性確認	前処理の適正性	予備測定の適正性	分離精製の適正性	概要	
25					H-3, C-14 C-14	試料種類 H-3, C-14 C-14	1g 1g 1g	加除法 アルカリ融解	H-3:蒸留 H-3:蒸留 アルカリ融解	LSC LSC	記載なし 記載なし	無 無	1-2日測定:3.0×10 <sup>5</sup> s 4材料/日測定:3.0×10 <sup>5</sup> s	H-3:84-93% C-14:100%	記載なし 記載なし	0.03 Ba/g 0.05 Ba/g	実試料	○	○				
					Cl-36	試料種類 Cl-36	1g	アルカリ融解 苛性	塩化銀沈殿分離	LBC	記載なし	無	分離3日 測定:7.2×10 <sup>4</sup> s	溶液,セメント固化物,焼却灰:77-99% 金属:66-100%	記載なし	0.005 Ba/g	実試料	○	○				
					Tc-99	試料種類 Tc-99	1g	酸分拆	溶液:TeRadDisk, 変質:TEVALンソ	TeRadDisk, LBC, TEVALンソ, LSC	記載なし	無	TeRadDisk:4分種:3日測定:36-85% LBC:測定:7.2×10 <sup>4</sup> s TEVALンソ:4分種:3日測定:3×10 <sup>4</sup> s	溶液,セメント固化物,焼却灰:36-85% 金属:72-88%	記載なし	0.03 Ba/g	実試料	○	○				
					I-129	試料種類 I-129	1g	酸分拆 セメント固化物,焼却灰,金属:加除法	溶液:Anem-SR Disk, セメント固化物,焼却灰,金属:加除法	溶液:AMS, Diet:分種3日間, AMS測定:1日測定:1日測定:加除法半日測定, DRG-ICP-MS:1日測定	記載なし	記載なし	無	Anem-SR Diet:分種3日間, AMS測定:1日測定:加除法半日測定, DRG-ICP-MS:1日測定	溶液:AMS:70% セメント固化物,焼却灰,金属:90%	記載なし	0.03 Ba/g 10 <sup>5</sup> Ba/g 10 <sup>5</sup> Ba/g	実試料	○	○			

表3.3.3-1 文献調査結果(12/13)

文献番号	著者名	出版	発行年	タイトル	掲載核種	試料種類	供試量	前処理(分齊)	分離精製	測定装置	測定校正	系統分析の有無	分析所要時間	回収率	除染係数	検出下限値	分析方法に係る妥当性確認	前処理の妥当性	分離精製の妥当性	概要
26	岡 野太郎, 佐々木 孝, 幸 秋元, 友 友, 徳永 貴, 仁, 田中 子, 原真 智, 隆, 石森 健一, 郎, 星 亜紀子, 亀尾 裕	JAEA-Technology 2016-013	2016	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	Co-60, Ni-63, Sr-90, Cs-137, Eu-152, Pu-238, 240, Am-241, Cm-244 のための前処理	瓦礫・植物	1g	塩酸12 ml 希釈4 ml 加酸 炭酸分齊	(H-3)蒸留	LSC	記載なし	H-3 C-14	記載なし 90-97 %	Sr-90最大 20 Bq/g, Cs-137最大 10000 Bq/gの試料に対して、LSCに妨害核種の影響ないことを確認済み	0.03-0.04 Bq/g	実試料, 同種者の添加回収試験	-	-	福島第一原子力発電所構内に保管されている瓦礫や植物などは、研究施設等廃棄物に比べてSr-90やCs-137などの核分裂生成物が多く含まれているため、分析対象核種と放射能測定において妨害となる核種とを十分に相互分離可能な分析手法を確立することが必要である。そこで、研究施設等廃棄物を対象に構築した簡易・迅速分析法のもとつき、事故により発生した瓦礫や植物などに適用可能な手法を作成した。新たに作成した手法について適用性を調べた結果、核分裂生成物の影響をよけることなく、種々の分析対象核種を定量することが可能であった。本文献では、福島第一原子力発電所構内に保管されている瓦礫及び植物を対象として、18核種に対する分析法を示すとともに、適用性を評価している。	
					Co-60, Ni-63, Sr-90, Cs-137, Eu-152, Pu-238, 240, Am-241, Cm-244 のための前処理	瓦礫・植物	1g	水酸化ナトリウム アルカリ融解	(H-3)蒸留	LSC	記載なし	H-3 C-14	記載なし 90-97 %	Sr-90最大 100 Bq/g, Cs-137最大 10000 Bq/gの試料に対して、LSCに妨害核種の影響ないことを確認済み	0.03-0.04 Bq/g	実試料, 同種者の添加回収試験	-	-		
					Co-60, Ni-63, Sr-90, Cs-137, Eu-152, Pu-238, 240, Am-241, Cm-244 のための前処理	瓦礫	1g	酸素気流中で加熱	(C-14)精製	LSC	記載なし	H-3 C-14	記載なし 95-100 %	瓦礫のH-3と同様	0.04-0.05 Bq/g	実試料, 同種者の添加回収試験	-	-		
					Co-60, Ni-63, Sr-90, Cs-137, Eu-152, Pu-238, 240, Am-241, Cm-244 のための前処理	植物	1g	酸素気流中で加熱	(C-14)精製	LSC	記載なし	H-3 C-14	記載なし 95-100 %	植物のH-3と同様	0.04-0.05 Bq/g	実試料, 同種者の添加回収試験	-	-		
					Co-60, Ni-63, Sr-90, Cs-137, Eu-152, Pu-238, 240, Am-241, Cm-244 のための前処理	瓦礫	1g	水酸化ナトリウム アルカリ融解	リンモリブデン酸アンモニウムCo除去、ハロゲン化炭素、PVP吸着剤スクワ分齊	ガスフロー計 数管	記載なし	無	記載なし 84-100 %	Sr-90最大 20 Bq/g, Cs-137最大 10000 Bq/gの試料に対して、LSCに妨害核種の影響ないことを確認済み	0.03-0.04 Bq/g	実試料	○	○		
					Co-60, Ni-63, Sr-90, Cs-137, Eu-152, Pu-238, 240, Am-241, Cm-244 のための前処理	植物	1g	水酸化ナトリウム アルカリ融解	リンモリブデン酸アンモニウムCo除去、ハロゲン化炭素、PVP吸着剤スクワ分齊	ガスフロー計 数管	記載なし	無	記載なし 67-88 %	Sr-90最大 100 Bq/g, Cs-137最大 10000 Bq/gの試料に対して、LSCに妨害核種の影響ないことを確認済み	0.03-0.04 Bq/g	実試料	○	○		
					Co-60, Ni-63, Sr-90, Cs-137, Eu-152, Pu-238, 240, Am-241, Cm-244 のための前処理	瓦礫	1g	マイクロ波加熱 炭酸分齊	リンモリブデン酸アンモニウム分齊、Ni/Jn分齊	LSC	記載なし	無	記載なし 81-84 %	瓦礫のH-3と同様	0.04-0.05 Bq/g	実試料	○	-		
					Co-60, Ni-63, Sr-90, Cs-137, Eu-152, Pu-238, 240, Am-241, Cm-244 のための前処理	瓦礫	1g	水酸化ナトリウム アルカリ融解	リンモリブデン酸アンモニウムCo除去、セレン沈殿分齊	LSC	記載なし	無	記載なし 79-89 %	瓦礫のH-3と同様	0.04-0.05 Bq/g	実試料	○	-		
					Co-60, Ni-63, Sr-90, Cs-137, Eu-152, Pu-238, 240, Am-241, Cm-244 のための前処理	植物	1g	水酸化ナトリウム アルカリ融解	リンモリブデン酸アンモニウムCo除去、セレン沈殿分齊	LSC	記載なし	無	記載なし 85-98 %	植物のH-3と同様	0.04-0.05 Bq/g	実試料	○	-		

表3.3.3-1 文献調査結果(13/13)

文献番号	著者名	出典	発行年	タイトル	掲載種類	試料種類	供試量	前処理(分)	分離精製	測定	測定器校正	系統分析の精度	分析所要時間	回収率	除染係数	検出下限値	分析手法に相当性確認	前処理の適用性*	子体濃縮の適用性*	分離精製の適用性*	概要
26					Sr-90	瓦礫	0.5g	マイクロ波加熱分解	種分解液、リンモリブデン酸アンモニウムによるCs除去、Srレンジンガム、2週間放置	LSC	記載なし	無	2週間以上	91-100%	Cs-137最大10000 Bq/gの試料に対して、LSCに妨害核種の影響ないことを確認済み	0.04-0.05 Bq/g	実試料	○	-	○	
					Sr-90	植物	0.5g	マイクロ波加熱分解	種分解液、リンモリブデン酸アンモニウムによるCs除去、Srレンジンガム、2週間放置	LSC	記載なし	無	2週間以上	91-98%	Cs-137最大1000 Bq/gの試料に対して、LSCに妨害核種の影響ないことを確認済み	0.04-0.05 Bq/g	実試料	○	-	○	
					Tc-99	瓦礫	1g	水酸化ナトリウム/アルカリ融解	リンモリブデン酸アンモニウムによるCs除去、TEVALレンジンガム	LSC	記載なし	無	記載なし	92-100%	互換のH-3と同様	0.03-0.05 Bq/g	実試料	○	-	○	
					Tc-99	植物	1g	水酸化ナトリウム/アルカリ融解	リンモリブデン酸アンモニウムによるCs除去、TEVALレンジンガム	LSC	記載なし	無	記載なし	70-90%	植物のH-3と同様	0.03-0.05 Bq/g	実試料	○	-	○	
					I-129	瓦礫	1g	酸素流中で加熱	酸素流中でTMAH溶液に捕集	ICP-MS	記載なし	無	記載なし	90-100%	記載なし	0.01 Bq/g	実試料	-	-	○	
					I-129	植物	1g	酸素流中で加熱	酸素流中でTMAH溶液に捕集	ICP-MS	記載なし	無	記載なし	90-100%	記載なし	0.01 Bq/g	実試料	-	-	○	
					Pu-238, Pu-239+240	瓦礫	0.5g	マイクロ波加熱分解	種分解液、隣イオン交換、UTEVALレンジンガム	SI	記載なし	無	記載なし	40-70%	記載なし	0.002 Bq/g	実試料	○	-	○	
					Pu-238, Pu-239+240	植物	0.5g	マイクロ波加熱分解	種分解液、リンモリブデン酸アンモニウムによるCs除去、Srレンジンガム、2週間放置	SI	記載なし	無	記載なし	80-80%	記載なし	0.002 Bq/g	実試料	○	-	○	
					Am-241, Cm-244	瓦礫	0.5g	マイクロ波加熱分解	種分解液、TRULIレンジン、UTEVALレンジンガム	SI	記載なし	無	記載なし	90-70%	記載なし	0.002 Bq/g	実試料	○	-	○	
					Am-241, Cm-244	植物	0.5g	マイクロ波加熱分解	種分解液、TRULIレンジン、UTEVALレンジンガム	SI	記載なし	無	記載なし	90-70%	記載なし	0.002 Bq/g	実試料	○	-	○	
					Cs-137, Cs-134, Eu-152, 154	瓦礫、植物	~1g	マイクロ波加熱分解	リンモリブデン酸アンモニウムによるCs除去	Cs	記載なし	無	記載なし	95-100%	記載なし	0.07-0.5 Bq/g	実試料、Rf標準の添加回収試験	○	-	○	
					Cs-137	瓦礫、植物	~1g	粉砕・小分け	リンモリブデン酸アンモニウムによるCs濃縮分離	Cs	記載なし	無	記載なし	95-100%	記載なし	0.07-0.5 Bq/g	実試料、Rf標準の添加回収試験	○	-	○	

### 3.4 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。研究推進に係る打合せ等の実施内容は次のとおりである。

令和2年10月28日	九州大学との研究打合せ
11月4日～6日	新潟大学との研究打合せ
11月5日	令和2年度第1回英知事業ワークショップ（CLADS 主催、ウェブ会議）
12月9日	JAEA、量研機構、大成建設との研究打合せ
12月17日	九州大学、新潟大学との研究打合せ（ウェブ会議）
12月21日	燃料デブリ関係英知事業情報交換会（CLADS 主催、ウェブ会議）

#### 4. 結言

この研究では、 $\beta$ 、 $\gamma$ 、X線スペクトルデータを同時に統一的に解析するスペクトル定量法を開発することにより、核種分析能を大幅に改善し、峻別化学分離を不要とすることで、化学処理プロセスを大幅に軽減することを目的としている。以下に、3年計画の1年目である令和2年度の研究成果を述べる。

##### (1) $\gamma$ 線測定装置の整備

SDM法開発のための $\gamma$ 線検出器体系（Ge検出器、CeBr<sub>3</sub>、NaI検出器、鉛シールドを含む検出器架台、Ge検出器用液体窒素容器、液体窒素補給用運搬容器等）を整備した。また、高速データ収集システムを整備し、検出器からの信号を処理し、1次元及び同時計数データ取得を可能にした。

導入した $\gamma$ 線検出器体系、高速データ収集システム各々の性能試験を行った。

##### (2) SDM法に関する研究

###### ① $\gamma$ 線SDM法開発

$\beta$ 線と $\gamma$ 線を統合解析するSDM-BG法の準備研究のために、 $\gamma$ 線のみを解析する $\gamma$ 線SDM法(SDM-G法)を開発した。

###### ② 放射線シミュレーションに関する研究（再委託先：新潟大学）

シミュレーション環境を構築した。Ge検出器、NaI検出器、CeBr<sub>3</sub>検出器を用いた $\gamma$ 線測定試験結果を考慮した計算パラメータのチューニングを実施し、シミュレーションの高精度化を図った。標準線源が無い核種など実測が難しい核種も含めて、SDM用基準スペクトルをシミュレーションで作成した。

###### ③ 機械学習を用いた核種認識法の開発（再委託先：九州大学）

高速電子計算機を整備した。CNNを用いて、複数核種（測定可能なエネルギーの $\gamma$ 線を放出する7核種）の核種識別が可能なモデルを構築した。

##### (3) 分析法バリデーション

###### ① SDM法及び解析結果の検証（再委託先：量研機構）

SDM法について検討を開始した。従来分析法、特に代表的ピーク解析法であるTotal Peak Area法とSDM-G法との比較を行った。日本分析センターに貸与するゲルマニウム検出器の性能試験を実施し、令和3年度の試験に備えた。

###### ② $\gamma$ 線SDM法のバリデーション（再委託先：大成建設）

1F廃棄物及び燃料デブリ中の $\gamma$ 線放出核種24種について、主要核種Cs-137、Sr-90の存在下における定量限界を、過去の文献により調査した。

###### ③ SDM法のバリデーション（連携先：JAEA）

多重 $\gamma$ 線検出法及びSDM法による定量結果との比較を行うため、従来分析法に関して過去の文献を調べ、定量限界について調査を行った。1F廃棄物中測定対象核種に対する調査を行った。

##### (4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびにCLADS等との連携を密にして、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

This is a blank page.



