

JAEA-Review 2023-022 DOI:10.11484/jaea-review-2023-022

β、γ、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4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 β, γ, and X-rays (Contract Research) – FY2022 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

KOVIDN

December 2023

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。(<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</u>) 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(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) 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 〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49 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.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan

E-mail: ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2023

β、γ、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)
 一令和4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

(2023年9月20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4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始めとした原 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・基盤的研究およ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、令和2年度に採択された研究課題のうち、「β、γ、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年度から令和4年度分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γ線検出法など の最新計測システムを整備し、スペクトル定量法(Spectral Determination Method:以下、「SDM 法」という。)を開発する。令和4年度の研究においては、令和3年度に引き続き、LSC、シング ルス Ge、2D スペクトル(多重γ)の測定データを統一的に扱うコードを開発するとともに、40核 種のそれぞれの測定におけるスペクトルデータを実測およびシミュレーション計算により求め、 統合データベースを整備した。粗化学分離法については、最終的に7分離法-12ステップを経由 し、10個のフラクションとすることで、39核種の定量が可能であることがわかった。SDM 法はス ペクトル分析一般に適用できるため、今後広い分野への応用が期待される。また、SDM 法の高精度 化のため、畳み込みニューラルネットワーク(CNN)を用いた複数核種の核種識別法を本研究で対象 とする全 y 核種について対応を行った。

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

JAEA-Review 2023-022

Development of Rapid and Sensitive Radionuclide Analysis Method by Simultaneous Analysis of

β, γ, and X-rays

(Contract Research)

- FY2022 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 September 20, 2023)

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 FY2022.

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 β , γ , and X- rays" conducted from FY2020 to FY2022.

The present study aims to enable rapid analysis of radionuclides in fuel debris and waste, we have established the latest measurement system, such as the multiple γ -ray detection methods, and the Spectral Determination Method (hereinafter referred to as "SDM") was developed. In the research in 2022, we developed a code that handles measurement data of LSC, singles Ge, and 2D spectra (multiple γ). In addition, to develop an integrated database, spectral data of 40 nuclides were obtained by actual measurements and simulation calculations. In chemical separation development for SDM, it was finally found that quantification of 39 nuclides is possible by separating into 10 fractions via 7 separation methods-12 steps. Since the SDM method can be applied to spectrum analysis in general, it is expected to be applied to a wide range of measurement fields in the future. In addition, to improve the accuracy of the SDM method, a multi-nuclides identification method using a convolutional neural network (CNN) was applied to all gamma nuclide of the target in this study.

Keywords: β, γ, 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	,
5.	令和3年度 採択課題 10	1
6.	令和4年度 採択課題 12	;
付約	録 成果報告書	,)

Contents

1.	Outline of	Nuclear	Energy	Science &	Technology	v and Human	Resource	Development	Project
									1
2.	Accepted P	Proposal	in FY20)18					2
3.	Accepted P	Proposal	in FY20)19					5
4.	Accepted P	roposal	in FY20	020					8
5.	Accepted P	roposal	in FY20	021					10
6.	Accepted P	Proposal	in FY20	022		•••••••	•••••		12

Appendix	Result	Report	1	5
----------	--------	--------	---	---

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	山﨑 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
ー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 (~R2.3.31) 大曲 新矢 (R2.4.1~)	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 号機ペデ スタル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	渡邉 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 (~R3.6.30) 塚原 剛彦 (R3.7.1~)	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 (~R3.3.31) 岡山大学 (R3.4.1~)

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	淺間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティックスを融合した 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 (~R2.3.31) 竹下 健二 (~R3.6.30) 塚原 剛彦 (R3.7.1~)	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 (~R4.7.31) 村上 健太 (R4.8.1~)	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
α / β / γ 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	渡邉 豊	東北大学
β、γ、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

5. 令和3年度 採択課題

令和3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3年3月16日~令和3年5月17日(課題解決型) 令和3年4月13日~令和3年7月1日(国際協力型日英共同研究) 令和3年7月12日~令和3年8月18日(国際協力型日露共同研究)

課題数:12課題

課題解決型廃炉研究プログラム	8 課題			
国際協力型廃炉研究プログラム	2 課題	(日英)、	2 課題	(日露)

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・日露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) 会議及びステアリ ングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

令和3年度 採択課題一覧

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
建屋応答モニタリングと損傷イメージング技術を 活用したハイブリッド型の原子炉建屋長期健全性 評価法の開発研究	前田 匡樹	東北大学
燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブ リの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明 と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性デー ターベースの高度化	宇埜 正美	福井大学
ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び 安定化に関する研究	鈴木 俊一	東京大学
世界初の同位体分析装置による少量燃料デブリの 性状把握分析手法の確立	坂本 哲夫	工学院大学
アルファ微粒子の実測に向けた単一微粒子質量分 析法の高度化	豊嶋 厚史	大阪大学

課題名	研究代表者	所属機関
連携計測による線源探査ロボットシステムの開発 研究	人見 啓太朗	東北大学
中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニ タリング手法の開発	安原 亮	自然科学 研究機構
福島原子力発電所事故由来の難固定核種の新規ハ イブリッド固化への挑戦と合理的な処分概念の構 築・安全評価	中瀬 正彦	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
福島第一原子力発電所の廃止措置における放射性 エアロゾル制御及び除染に関する研究	Erkan Nejdet (~R4.1.31) 三輪 修一郎 (R4.2.1~)	東京大学
燃料デブリ取り出しのための機械式マニピュレー タのナビゲーションおよび制御	淺間 一	東京大学

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
福島第一発電所2、3号機の事故進展シナリオに基 づくFP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状 況・デブリ性状の把握	小林 能直	東京工業 大学
非接触測定法を用いた燃料デブリ臨界解析技術の 高度化	小原 徹	東京工業 大学

JAEA-Review 2023-022

6. 令和4年度 採択課題

令和4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4年3月1日~令和4年5月6日(課題解決型) 令和4年4月7日~令和4年6月16日(国際協力型 日英共同研究)

課題数:8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)

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・日露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)会議及びステアリ ングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

令和4年度 採択課題一覧

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	
革新的アルファダスト撮像装置と高線量率場モニ タの実用化とその応用	黒澤 俊介	東北大学
3 次元線量拡散予測法の確立と γ 線透過率差を利 用した構造体内調査法の開発	谷森 達	京都大学
α汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技 術開発	樋口 幹雄	北海道大学
高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射 線場マッピング観測システム開発	奥野 泰希	京都大学
障害物等による劣悪環境下でも通信可能なパッシ ブ無線通信方式の開発	新井 宏之	横浜国立 大学

課題名	研究代表者	所属機関
無線 UWB とカメラ画像分析を組合せたリアルタイ ム 3D 位置測位・組込システムの開発・評価	松下 光次郎	岐阜大学

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
耐放射線プロセッサを用いた組み込みシステムの 開発	渡邊 実	岡山大学
マイクロ・ナノテクノロジーを利用したアルファ 微粒子の溶解・凝集分散に及ぼすナノ界面現象の 探求	塚原 剛彦	東京工業 大学

本報告書は、以下の課題の令和2年度から令和4年度分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
β、γ、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4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

β、γ、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 R04I020)

成果報告書

令和5年3月

公益財団法人日本分析センター

JAEA-Review 2023-022

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「β、γ、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年度から令和4年度分の研究成果 を取りまとめたものである。

目次

概略vü
1. はじめに
2. 業務計画 2.1-1 2.1 全体計画 2.1-1 2.2 実施体制 2.2-1 2.3 令和4年度の成果の目標および業務の実施方法 2.3-1
 3. 実施内容および成果
和4年度)
 3.3 分析法バリデーション(令和2年度~令和4年度)
3.3.3 SDM 法のバリデーション(連携先:JAEA)(令和2年度~令和4年度)3.3.3-1 3.4 研究推進3.4-1
4. 結言
参考文献

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
	グループサブリーダー	佐野 友一
	主任技術員	鈴木 勝行
	主任技術員	小林 慧人
	グループ員	沈 海峰

委託先

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
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
大成建設株式会社	専任課長	谷口	雅弘
連携先			
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
	研究主幹	浅井	雅人

表一覧

表 3.2.1-1	標準線源の測定スペクトルの再現度の評価	 3.2.1-3
表 3.2.1-2	令和4年度に整備した RayTrek マシンのスペック一覧	 3.2.1-9
表 3.2.1-3	SDM-BGG コードの精度	 3.2.1-9
表 3.2.1-4	元素の回収割合	 3. 2. 1-14
表 3.2.1-5	フラクションごとの回収率(理論値)	 3.2.1-15
表 3.2.1-6	改善した化学分離フローをもとにした SDM 法におけるフ	
	ラクションごとの定量精度	 3.2.1-16
表 3.2.1-7	分析に掛かる工程数の比較	 3.2.1-17
表 3.2.1-8	核種ごとの定量限界	 3.2.1-19
表 3.2.3-1	令和2年度に整備した GPU マシンのスペック一覧	 3.2.3-1
表 3.3.1-1	解析対象となる核種	 3.3.1-2
表 3.3.1-2	仮想試料1(左)と仮想試料2(右)の解析結果	 3.3.1-5
表 3.3.1-3	仮想試料3(左)と仮想試料4(右)の解析結果	 3.3.1-7
表 3.3.2-1	SDM 法と TPA 法の定量限界比較	 3.3.2-3
表 3.3.2-2	TPA 法による解析データ	 3.3.2-5
表 3.3.3-1	基準スペクトルを作成した核種の一覧	 3.3.3-3
表 3.3.3-2	各 SDM 解析で得られた(出力値)/(入力値)の値の荷重	
	平均と標準偏差	 3.3.3-8

义	一覧	
---	----	--

	山 見	
図 2.1-1	全体計画図	 2.1-1
図 2.2-1	実施体制図	 2.2-1
図 3.1-1	BGO-Ge 体系の全体図	 3.1-1
図 3.1-2	BG0-Ge 体系による 2 次元スペクトル	 3.1-2
図 3.1-3	4Ge 体系による 2 次元スペクトル	 3.1-2
図 3.1-4	多重 γ 線検出装置の上部遮蔽	 3.1-2
図 3.1-5	Ge 検出器の冷却棒	 3.1-2
図 3.1-6	多重 γ 線検出装置の全体図	 3.1-3
図 3.2.1-1	本法による測定スペクトルの再現(核種:Mn-54)	 3.2.1-2
図 3.2.1-2	本法による測定スペクトルの再現(核種 : Co-60)	 3.2.1-2
図 3.2.1-3	本法による測定スペクトルの再現(核種 : Cs-134)	 3.2.1-3
図 3.2.1-4	本法により処理したスペクトル(核種:Ag-110m)	 3.2.1-4
図 3.2.1-5	本法により処理したスペクトル(核種:Cd-113m)	 3.2.1-4
図 3.2.1-6	本法により処理したスペクトル(核種 : Sn-119m)	 3.2.1-4
図 3.2.1-7	本法により処理したスペクトル(核種 : Pm-146)	 3.2.1-5
図 3.2.1-8	本法により処理したスペクトル(核種 : Eu-154)	 3.2.1-5
図 3.2.1-9	本法により処理したスペクトル(核種 : Eu-155)	 3.2.1-5
図 3.2.1-10	本法により処理したスペクトル(核種:Gd-153)	 3.2.1-6
図 3.2.1-11	LSC 基準スペクトル	 3.2.1-7
図 3.2.1-12	γ線基準スペクトル	 3.2.1-7
図 3.2.1-13	y y 基準スペクトル	 3.2.1-8
図 3.2.1-14	統合基準スペクトル	 3.2.1-8
図 3.2.1-15	理想的な化学分離スキームのイメージ	 3.2.1-13
図 3.2.1-16	化学分離スキーム	 3. 2. 1-13
図 3.2.2-1	シミュレーション検出器配置	 3.2.2-2
⊠ 3.2.2-2	シミュレーションで作成したγ線検出器配置 A(Ge 検出	
	器)でのシングルスペクトルおよび多重γ2次元スペクト ルの例	 3. 2. 2-4
図 3.2.2-3	シミュレーションで作成したγ線検出器配置 B(NaI 検出	
	器)でのシングルスペクトルおよび多重γ2次元スペクト ルの例	 3. 2. 2-5
図 3.2.2-4	シミュレーションで作成したγ線検出器配置 C(CeBr₃検	
	出器)でのシングルスペクトルおよび多重γ2次元スペク トルの例	 3.2.2-6
図 3.2.2-5	実測データを SDM 法で解析した結果	 3.2.2-7
図 3.2.2-6	SDM-BGG 法の全核種の解析結果	 3.2.2-7
図 3.2.2-7	SDM-BGG 法の y 線核種の解析結果	 3.2.2-8
図 3.2.3-1	令和2年度に開発した1次元畳み込みニューラルネット	3, 2, 3-2
	ワークの構成	 0. 2. 0 2
図 3.2.3-2	従来法であるコベル法に対する1次元畳み込みニューラルネ	
	ットワークの計測時間増倍係数	 3. 2. 3-2

図 3.2.3-3	Gaussian negative log likelihood lossを損失関数とし		0 0 0 0
	て用いる際の1次元 CNN モデルの構成		ა. ∠. ა−ა
図 3.2.3-4	24 核種の存在する条件で取得したスペクトルをコベル法		
	(左)および今回開発した機械学習モデル(右)で解析		3.2.3-4
	して得られた放射能の正解値に対するばらつき		
図 3.2.3-5	学習中のスクリーニング成功率(含有、負含有の判定の		0 0 0 5
	正答率)の変化	••••	3.2.3-5
図 3.3.1-1	仮想試料1のスペクトルの一部		3.3.1-3
図 3.3.1-2	仮想試料2のスペクトル		3.3.1-4
図 3.3.1-3	仮想試料3のスペクトル		3.3.1-6
図 3.3.1-4	仮想試料4のスペクトル		3.3.1-6
図 3.3.2-1	解析用スペクトル		3.3.2-2
図 3.3.2-2	ピークスペクトルと BG		3.3.2-4
図 3.3.2-3	TPA 法と SDM 法の解析イメージ比較		3.3.2-4
図 3.3.3-1	多重γ線検出装置の4台の Ge 検出器と線源の配置		3.3.3-2
⊠ 3.3.3-2	SDM 解析に使用した 40 核種混合スペクトル		3.3.3-4
🗵 3. 3. 3-3	分析対象 40 核種に対する SDM-B 法、SDM-BG 法、SDM-BGGG		0 0 0 F
	法の解析結果	• • • • •	3. 3. 3-5
図 3.3.3-4	Ge 検出器でγ線が観測できる 17 核種を抽出して比較した		0 0 0 C
	SDM-B 法、SDM-G 法、SDM-BG 法の解析結果		3. 3. 3-0
図 3.3.3-5	Ge 検出器でγ線が観測できる 17 核種を抽出して比較した		0 0 0 7
	SDM-G 法、SDM-GGG 法、SDM-BGGG 法の解析結果	••••	J. J. J ⁻ /

略語一覧

SDM 法	:Spectral Determination Method (スペクトル定量法)
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

用語解説

- SDM法: LSC による β線、X線および Ge 検出器等による γ線の測定スペクトルは核種ごと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、β、γ、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。組み込まれた基準スペクトルとそのスペクトルサイズの違いで、以下の分類がある。
- SDM-B : LSC によるスペクトル
- SDM-G : Ge 検出器によるスペクトル
- SDM-GGG : Ge 検出器によるスペクトルおよび Ge 検出器 4 台による γγ2D スペクトル
- SDM-BG : LSC および Ge 検出器によるスペクトル
- SDM-BGNN: LSC, Ge 検出器によるスペクトルおよび NaI 検出器 6 台による γ γ 2D スペクト
 ル
- SDM-BGCC: LSC, Ge 検出器によるスペクトルおよび CeBr₃検出器 6 台による γ γ 2D スペクト ル
- SDM-BGGG: LSC, Ge 検出器によるスペクトルおよび Ge 検出器 4 台による γγ2D スペクトル

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、LSC による β線、X線と Ge 検出器等による γ線の測 定スペクトルは核種ごと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、β、γ、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。

3 カ年計画の1年目(令和2年度)および2年目(令和3年度)の成果の概要は次のとおりである。

【令和2年度】

γ線測定装置の整備

SDM 法開発のための y 線検出器体系(Ge 検出器、CeBr₃、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 次元および同時計数データ取得を可能にし た。

導入したγ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 γ線 SDM 法開発

 β 線と γ 線を統合解析する SDM-BG 法の準備研究のために、 γ 線のみを解析する γ 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、CeBr₃検出器を用いたγ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。 標準線源がな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。畳み込みニューラルネットワークを用いて、複数核種(測定可能 なエネルギーの y 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 法および解析結果の検証(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 γ線 SDM 法のバリデーション(再委託先:大成建設)

1F 廃棄物および燃料デブリ中のγ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γ線検出法および 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。

【令和3年度】

(1) γ 線測定装置の整備

前年度に引き続き、γ線測定装置を整備し、Ge 検出器、CeBr₃検出器、NaI 検出器からなる各 計測システムを完成させた。また、高速データ収集システムを整備し、1 次元および同時計数デ ータ取得を可能にした。

(2) SDM 法に関する研究

① γ線 SDM 法開発

標準γ線源を購入し、既存線源とともに、γ線シングルス、多重γ線測定を行い、γ線標準スペクトルとした。また、LSCを使用した測定を外注し、 β (+X)線の標準スペクトルを得るとともに、測定が困難な核種については、新潟大学と協力して、シミュレーションにより標準スペクトルを生成し、全40核種のスペクトルデータベースを整備した。 β (+X)線、γ線を統合解析する SDM 法(SDM-BG 法)を開発した。 β 、γおよび β γ核種について、沈殿分離や必要に応じて各種クロマトグラフィーを組み合わせた粗化学分離スキームを想定し、安定元素を用いた実験により、SDM 法の検討に用いる試験スペクトルの生成に必要な分離後の化学組成を求めた。

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)

Ge 検出器、NaI 検出器、CeBr₃検出器を用いた γ 線測定試験結果をもとに、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。測定が困難な核種について、シ ミュレーションにより、 β (+X) 線、 γ 線、多重 γ 線基準スペクトルを導出した。これらを統 合解析する SDM 法 (SDM-BGG 法)を開発した。

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)

畳み込みニューラルネットワーク (CNN) を用いて、複数核種 (Co-60, Cs-134, Cs-137, Eu-152 等7 核種)の核種識別が可能なモデルを構築した。計算パラメータのチューニングを実施し、 高精度化を図った。また、玄米認証標準物質から放出されるγ線スペクトルの実測データをもと に、本モデルの実証試験を行った。

(3) 分析法バリデーション

① SDM 法および解析結果の検証(再委託先:量研機構)

日本分析センターが開発した SDM 法コードの検証を行った。GAGG 検出器のスペクトルを用意 し、解析結果のいくつかの例について検証した。また、保有する Ge 検出器 1 台を修理した後、 日本分析センターが整備する y 線測定装置に使用した。 燃料デブリ中のγ線放出核種について、多重γ線検出装置を用いたシングルス測定を行い、得られたスペクトルの SDM-G 法および SDM-BG 法による解析を開始した。

③ SDM 法のバリデーション (連携先: JAEA)

燃料デブリ中のγ線放出核種について、多重γ線検出装置を用いたシングルスおよび多重γ 線測定を行った。得られたスペクトルの SDM-BG 法および SDM-BGG 法による解析を開始した。九 州大学が実施する機械学習を用いた定性分析法とその結果について、評価を実施した。

(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。

前年度までの成果報告書:

JAEA-Review 2021-060, β、γ、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, 105p, 2022, URL: https://doi.org/10.11484/jaea-review-2021-060

JAEA-Review 2022-037, β、γ、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3年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業, 118p, 2023, URL: https://doi.org/10.11484/jaea-review-2022-037 1. はじめに

1Fの廃炉において、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、非常に大量の試料の放射性核種分析が必要となる。 それらの分析には迅速性が要求されると同時に、核種濃度の不確かさが大きい場合、処理・処分 においては安全側に立って過大評価する必要が出てくることから、不確かさの小さい高確度の定 量法が必要である。

放射性核種分析は現在、試料の溶解後、元素に特化した精密な化学分離を行った後に、放射能 測定や質量分析により定量しているが、化学分離には高度なスキルと長い作業時間が必要である と同時に、作業者の被曝量の問題が伴う。これらの課題解決のため、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、化学分離における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。

 β 線、X線測定には、吸収のないLSCを、 γ 線測定はGe,NaI検出器等を使用し、個別に測定す る。これらの放射線は、核種ごと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、 核種ごと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。このスペクトル定量法 (Spectral Determination Method、以下、SDM 法と略す。)を β 線 (X線)、 γ 線および多重 γ 線測定におけるスペクトルデータ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、精密な化学分離を不要とし、化学分離プロセスの負担を大幅に軽 減できることを実証する。また、SDM 法に特化した実効的な粗化学分離法を提案し、40 核種の定 量限界を導出する。

令和4年度の研究においては、令和3年度に引き続き、LSC,シングルスGe,2Dスペクトル(多 重γ)の測定データを統一的に扱うコードを開発するとともに、40核種のそれぞれの測定におけ るスペクトルデータを実測およびシミュレーション計算により求め、統合データベースを整備し た。粗化学分離法については、最終的に7分離法-12ステップを経由し、10個のフラクションと することで、39核種の定量が可能であることがわかった。この方法は従来法により同じ核種を分 析した場合と比較して、大幅に分析操作を軽減でき、さらに、対象核種を限定することでより効 率的な分析スキームを構築できるため、広く応用が期待される。また、SDM法はスペクトル分析一 般に適用できるため、今後広い分野への応用が期待される。また、SDM法の高精度化のため、畳み 込みニューラルネットワーク(CNN)を用いた複数核種の核種識別法を本研究で対象とする全γ核 種について対応を行った。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全体計画図を図 2.1-1 に示す。

年度項目	令和2年度	令和3年度	숚	和4年度
	要素研究フェーズ (要素開発、原理検討	()	検証フロション	エーズ
(1) _Y 線測定装置の整備	ガンマ線検出器整備	多重γ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 γ 線 SDM 法開発 	 SDM-G法 	データベース整備 SDM-BG 化学分離(粗分離)スキー	法開発、 <u> ム検討</u> ■ ■ ■ ■	評価まとめ
②放射線シミュレーションに関する研究	シミュレーション準備	データベース整備 SDM-BG	G法開発 改善及	び評価まとめ
(新潟大学) ③機械学習を用いた核種認識法の開発	モデリング	モデリングと実証試験	改善及	び評価まとめ
(九州大学) (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) 	SDMG法検証 ◆	SDM-BG法模訨	SDM-BGG;	支援証券の有効性評価
(2) γ線 SDM 法のパリテーション (大成建設)	<u>文献調査</u> ◆	SDM分析試験上解析	分析試験 →	及び評価まとめ
③SDM 法のバリデーション (JAEA)	文献調査 ◆	SDM分析試験、定性分析		平面及びまとめ
(4)研究推進	進捗確認等の打合せの実施	進捗確認等の打合も	せの実施 進捗	灌認等の打合せの実施
	まとめ・評価	ŧ	とめ・評価	まとめ・評価 くまたので、

図 2.1-1 全体計画図

2.2 実施体制

本業務の実施体制図を図 2.2-1 に示す。



図 2.2-1 実施体制図
- 2.3 令和4年度の成果の目標および業務の実施方法
- (1) γ線測定装置の整備

多重γ線検出装置について、必要な改造等を行い、γ線の高精度測定を可能にする。

- (2) SDM 法に関する研究
- γ線 SDM 法開発

LSC 測定が可能な核種について、外注により混合溶液を調製し、β、X 線スペクトルデータ を取得し、SDM 法の検証を進める。β、γ、X 線のシングルスおよび多重γ線同時計数シミュレ ーション計算の高精度化を行い、統合基準スペクトルデータベースを更新し、SDM 法解析の高 精度化を果たす。新潟大学と協力して、統合基準スペクトルを解析する SDM-BGG 法の高度化と 実証を行う。

いくつかの想定した粗化学分離スキームにおいて、各核種の定量限界を求める。

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)

日本分析センターで得られたスペクトルデータをもとに、シミュレーション計算の高精度化 を行う。整備された多重γ線検出装置で得られた実測データを SDM 法で解析し、性能の確認と 向上を目指す。日本分析センターと協力して、SDM-BGG 法の高度化と実証を行う。

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3年度までに開発した畳み込みニューラルネットワーク(CNN)を用いたγ線核種認識 技術(7核種)を発展させて、全γ線放出核種への対応を可能にし、その性能評価を行う。ま た、核種認識の性能評価を行う。JAEA が実施する定性分析法と分析結果の評価に対応する。

- (3) 分析法バリデーション
- ① SDM 法および解析結果の検証(再委託先:量研機構)
- 日本分析センターが開発した SDM-BGG 法のコード自体の検証を行う。また、このコードを用いて解析した結果のいくつかの例について検証する。最終的に、これら分析法の有効性を評価する。
- ② γ線 SDM 法のバリデーション(再委託先:大成建設)

γ線放出核種 24 核種のうち標準線源が用意できる核種について、シングルスγ線測定を行 う。得られたスペクトルより、各核種の定量限界を求める。

③ SDM 法のバリデーション (連携先: JAEA)

整備された多重γ線検出装置で得られた実測データおよび SDM 法で解析した結果に対して、 β-γデータを扱う SDM-BG 法とそれに加え、γ-γデータも含めた SDM-BGG 法の分析結果のバ リデーションを行う。九州大学が実施する機械学習を用いた定性分析法とその結果について、 評価を実施する。

(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. 実施内容および成果
 - 3.1 γ線測定装置の整備(令和2年度~令和4年度)
 - (1) 令和3年度までの実施内容および成果(概要)

令和2年度において、γ線測定装置架台を整備し、令和3年度はそれに引き続き、架台内部の検出器治具および上部構造体の整備を行った。これにより、4台のGe検出器、6台のCeBr₃検出器、6台のNaI検出器からなる各計測システム構築を可能にした。また、令和2年度に整備した高速データ収集システムの自動エネルギー校正ソフトウェアおよび同時計数測定モード追加により、1次元および同時計数データ取得を可能にした。

(2) 令和4年度実施内容および成果

まず、PopTop 用ポータブルデュワーを整備した。これまで整備した多重 y 線検出装置は 4Ge、 6NaI、6CeBr₃の 3 体系であるが、4 番目の体系として、BGO-Ge 体系を試験することとした。これ は PopTop 型 Ge 検出器の周りに大型の BGO シンチレータで取り囲む配置を可能とし、前 3 者に 比べて効率よく y 線の同時計数測定を可能にする。しかし、既存の検出器架台には設置できな いことから、図 3.1-1 に示すように鉛ブロック中に BGO 検出器を収め、ポータブル型液体窒素デ ュワーを整備して、これに接続した Ge 検出器を BGO 検出器中に挿入した。

以上の体系を用いて得られた y y 2 次元スペクトル図を図 3.1-2 に載せる。放射能標準線源 JSAC0731 を使用した。比較のために、4Ge 体系を用いて得られた y y 2 次元スペクトル図を図 3.1-3 に載せる。



図3.1-1 BGO-Ge体系の全体図



図3.1-2 BGO-Ge体系による2次元スペクトル 図3.1-3 4Ge体系による2次元スペクトル

Channel-Energy 対応は 0.25 ch/keV なので、線源中に含まれる Cs-134 の 604.7-795.9 keV 同時計数ピークは、図 3.1-3 で顕著にわかるように、151-199 ch 付近に現れる。図 3.1-2 では横軸が Ge 検出器、縦軸が BGO 検出器に対応するため、後者の分解能の低さを反映して、縦にシャープな線が現れる。その強度とピーク対バックグラウンド比を評価した結果、4Ge 体系の方が優れていることがわかった。これは分解能の違いおよびシンチレータ結晶自体に含まれる不純物放射能によるものであり、最終的に BGO-Ge 体系の SDM 解析への適用は見送ることとした。

次に、多重 y 線検出装置の改造を行った。まず上部遮蔽体について、図 3.1-4 の赤丸部分を整備し、一体構造とすることで、遮蔽性能を改善した。また、図 3.1-5 の同じく赤丸部分を整備し、 ゲルマニウム検出器の冷却棒の長さを揃えることで、液体窒素の安定補給を確保した。合わせて、 y 線の高精度測定を可能にした。

図 3.1-6 に完成した多重γ線検出装置の全体図を載せる。



図3.1-4 多重γ線検出装置の上部遮蔽



図3.1-5 Ge検出器の冷却棒



図3.1-6 多重γ線検出装置の全体図

(3) まとめ

多重γ線検出装置の新たな体系として、BG0検出器および Ge 検出器を用いた体系を実現し、 同時計数測定による検討を行ったが、BG0 検出器結晶に起因するバックグラウンド値の高さに より採用には至らなかった。多重γ線検出装置について、遮蔽性能向上のための改造および液 体窒素による検出器冷却能力の安定化のための改造等を行い、多重γ線検出装置を完成させた。 この装置は6台の NaI、6台の CeBr₃、4台の Ge 検出器の3種の体系に対応でき、γ線のシング ルスおよび同時計数の高精度測定を可能にする。 3.2 SDM 法に関する研究(令和2年度~令和4年度)

3.2.1 γ線 SDM 法開発(令和2年度~令和4年度)

(1) 令和3年度までの実施内容および成果(概要)

Mn-54 および Ru-106 標準 γ 線源を購入した。これにより、既存の Co-60、Ba-133、Cs-134、Cs-137、Eu-152 線源と合わせて、計7種のデブリ分析対象核種が揃った。また、エネルギー校 正用線源として、Na-22 を購入した。既存線源とともに、 γ 線シングルス、多重 γ 線測定を行 い、 γ 線標準スペクトルとした。

測定が困難な核種については、新潟大学と協力して、シミュレーションにより標準スペクト ルを生成し、全 40 核種のスペクトルデータベースを整備した。基準スペクトルデータベース を以下の形式で整備した。

(2) 令和4年度実施内容および成果

① γ線 SDM 法開発

<u>i β (+X) 線の基準スペクトルデータベースの整備</u>

令和3年度はGeant4を用いたシミュレーションにより得られたスペクトルからLSCの測定 スペクトルを再現するコンボリューション法を開発した。これにより標準線源の測定が困難な 核種の基準スペクトルの作成が可能となり、SDM-B法で使用するLSCにおける本事業40核種 のβ(+X)線基準スペクトルのデータベースを整備した。

令和4年度はコンボリューション法に用いる関数であるコンボリューションファンクション の最適化を実施し、データベースに用いる基準スペクトルの高精度化を図った。

前年度ではコンボリューションファンクションとして次の式(1)で示される疑似フォーク ト関数 (Pseudo-Voigt function)を採用していた。

$$g(x) = f_{v} \left[\eta \frac{1}{\pi} \left\{ \frac{f_{\sigma}}{(x - x_{0} - f_{h})^{2} + f_{\sigma}^{2}} \right\} + (1 - \eta) \frac{1}{\sqrt{2\pi f_{\sigma}^{2}}} \exp\left\{ -\frac{(x - x_{0} - f_{h})^{2}}{2f_{\sigma}^{2}} \right\} \right]$$
(1)
$$f_{v} = a + bE + cE^{2}$$
$$f_{\sigma} = \sqrt{d + eE + fE^{2}}$$

Т

Т

 $f_h = \mathbf{g} + \mathbf{h}E + \mathbf{i}E^2$

Г

なお、 f_v 、 f_σ 、 f_h はチャンネルごとの計数効率、エネルギー分解能、エネルギー直線性を考慮 したパラメータでエネルギー(E)の関数である。本年度では次の式(2)で示されるガウス関 数を2つ組み合わせた関数(以下、Double Gaussian という。)を用いてコンボリューション 法を実施し、疑似フォークト関数を用いた場合と結果を比較した。

$$g(x) = f_{v} \left[\eta \frac{1}{\sqrt{2\pi f_{\sigma_{1}}^{2}}} exp \left\{ -\frac{(x - x_{0} - f_{h})^{2}}{2f_{\sigma_{1}}^{2}} \right\} + (1 - \eta) \frac{1}{\sqrt{2\pi f_{\sigma_{2}}^{2}}} exp \left\{ -\frac{(x - x_{0} - f_{h})^{2}}{2f_{\sigma_{2}}^{2}} \right\} \right]$$
(2)
$$f_{v} = a + bE + cE^{2}$$
$$f_{\sigma_{1}} = \sqrt{d + eE + fE^{2}}$$
$$f_{\sigma_{2}} = gf_{\sigma_{1}}$$
$$f_{h} = h + iE + jE^{2}$$

なお、 f_{v} 、 $f_{\sigma 1}$ 、 $f_{\sigma 2}$ 、 f_{h} はチャンネルごとの計数効率、エネルギー分解能、エネルギー直線性 を考慮したパラメータでエネルギー(E)の関数である。コンボリューションファンクション

に疑似フォークト関数および Double Gaussian を用いて標準線源の測定が可能な核種につ いてコンボリューション法を実施し、それぞれの測定スペクトルの再現度を reduced chisquare χ_{ν}^2 を用いて評価した。図 3. 2. 1–1 から図 3. 2. 1–3 にコンボリューションファンク ションに疑似フォークト関数および Double Gaussian を用いたときの本法による標準線源 の測定スペクトルの再現の例を示す。また、表 3. 2. 1–1 に χ_{ν}^2 による標準線源の測定スペ クトルの再現度の評価一覧を示す。



(左:疑似フォークト関数、右:Double Gaussian)

図 3.2.1-3 本法による測定スペクトルの再現(核種:Cs-134) (左:疑似フォークト関数、右:Double Gaussian)

- 衣 3, 4, 1-1 「宗 毕脉係の別に ヘッシントルの分子 坑反の計	表 3.2.1-1	標準線源の測定スイ	ペク ト	ルの再現度の評
--	-----------	-----------	------	---------

核種	評価領域*(keV)	x ² (疑似フォークト関数)	$\chi^2_ u$ (Double Gaussian)
C1-36	$20 \sim 950$	593.59	547.04
Ca-41	$10 \sim 40$	14644.57	30656.23
Mn-54	$20 \sim 1000$	7.68	7.31
Fe-55	$20 \sim 80$	344.35	1318.35
Co-60	$20 \sim 2000$	2.30	1.89
Ni-63	$20 \sim 170$	52.92	172.38
Sr-90	$20 \sim 2000$	5.74	4.09
Y -90	$20 \sim 2000$	2.77	2.65
Tc-99	$20 \sim 500$	1287.45	984.02
Ru-106	$20 \sim 2000$	7.64	4.48
Sb-125	$20 \sim 800$	8.33	11.13
I -129	$20 \sim 300$	869. 55	1214.40
Cs-134	$20 \sim 1700$	25. 41	21.61
Cs-137	$20 \sim 1200$	54.00	53.07
Ba-133	$20 \sim 600$	100. 43	152.03
Eu-152	$20 \sim 1800$	10.90	16.19

* 0~20 keV は測定値と Geant4 の計数値のズレが大きいため(LSC の LLD に起因すると考えられる)、評価領域を 20 keV(Ca-41 は 10 keV)からとした。

再現度の評価から、コンボリューションファンクションは Double Gaussian を採用した。なお、C1-36、Ca-41、Fe-55、Tc-99、I-129 および Cs-137 は再現度が低い結果となった。この結果に関して、Ca-41 および Fe-55 については数 keV の特性 X 線のみを放出する核種であり、そのエネルギー領域では LSC の LLD との関係から本法を用いて測定スペクトルを再現するのは困難である。また、C1-36、Tc-99、I-129 および Cs-137 についてはβ崩壊の遷移形式のシミュレーションに起因するとものと推測される。図 3.2.1-4 から図 3.2.1-10 に標準線源の測定が困

難な核種のシミュレーションスペクトルを Double Gaussian を用いて本法により処理した例を示す。

図 3.2.1-6 本法により処理したスペクトル(核種: Sn-119m)

3.2.1-4 - 38 -

図 3.2.1-9 本法により処理したスペクトル(核種: Eu-155)

3.2.1-5 - 39 -

図 3.2.1-10 本法により処理したスペクトル(核種: Gd-153)

ii SDM 法コードの開発

LSC測定が可能な5核種(C1-36, Sr-90, Sb-125, Cs-137, Ba-133)について、(株) 化研への外注により、8種類のクエンチングレベルの混合溶液を調製し、 β 、 γ 、X線 スペクトルデータを取得した。これにより、昨年度までに整備した核種を含め、全 16核種のLSC基準スペクトルの測定データを整備した。

今回の研究の対象である、1Fの燃料組成評価における事故後10年で強い方から40 核種は以下である。これらの放出するβ、γ、X線の種類とエネルギー、強度は核種 ごとに全て異なり、それらは以下のように大別される。

- β核種(β線放出、13種)
 - H-3, C1-36, Ni-63, Kr-85, Sr-90, Y-90, Zr-93, Tc-99, Ru-106, Cd-113m, Sn-121, Pm-147, Sm-151
- EC核種 (X線放出2種)
- Ca-41, Fe-55 〇 β-γ核種(β-γ線放出、19種) Co-60, Rh-106, Ag-110, Ag-110m, Sn-126+Sb-126m, Sb-126, Sb-125, I-129, Cs-134, Cs-137+Ba-137m, Ce-144+Pr-144m, Pr-144, Pm-146,
 - Eu-152, Eu-154, Eu-155 〇 γ核種(X、γ線放出、6種) Mn-54, Sn-119m, Sn-121m, Te-125m, Ba-133, Gd-153

対象40核種の中には以下の6セットの連鎖崩壊核種が存在する。中間状態の寿命により、以下のように取り扱うこととする。

- Cs-137 (30.1 y) → Ba-137m (2.55 m)
 → 両スペクトルを足してCs-137とする。
 Ce-144 (285 d) → Pr-144 (17 m), Pr-144m (7.2 m)
 → 3スペクトルを足し合わせる。
- Sr-90 (28.8 y) → Y-90 (2.67 d)
 - → 独立に扱う。
- Ru-106 (1.02 y) → Rh-106 (30.1 s)
 → 独立に扱う。

3.2.1-6 - 40 -

- Sn-126 (2.3×10⁵ y) → Sb-126m (19 m) → Sb-126 (12.4 d)
 → 3者を足し合わせる。
- Sb-125 (2.76 y) → Te-125m (57.4 d)
 → 独立に扱う。

以上の見直しにより、核種スペクトル数は40種から36種に縮小できた。

整備した基準スペクトルを以下に紹介する。

 a. LSC 基準スペクトル(図3.2.1-11) 16核種については、Parkin Elmer社製 Tri-Carb 3110TR型LSC装置を用い て実測し、それ以外の24核種については、Geant simulation 計算(新潟大 学 後藤氏)およびConvolution計算(日本分析センター 鈴木氏)による計 算値を使用した。LSCはβ、γ、X線に感ずるため、上記40核種すべてに応答 がある。

b. γ基準スペクトル (図3.2.1-12)

7核種については、AMETEK社製GMX4020型Ge検出器を用いて実測し、それ 以外の30核種については、Geant simulation 計算(新潟大学 後藤氏)に よる計算値を使用した。Ge検出器はアルミ製キャップに覆われているため、 高エネルギー β 線、 γ 線に感度があり、低エネルギー β 線、X線には応答が ない。

c. γγ基準スペクトル (図3.2.1-13)

12核種については、多重 γ 線検出装置を用いて実測し、それ以外の28核種については、Geant simulation 計算(新潟大学後藤氏)による計算値を使用した。多重 γ 線検出装置として、6NaI, 6CeBr₃, 4Geの3種の体系を用いたが、すべての検出器はアルミ製キャップに覆われているため、高エネルギー β 線、 γ 線に感度があるが、低エネルギー β 線、X線には応答がない。

JAEA-Review 2023-022

d. 統合スペクトルデータベース (図3.2.1-14)

測定対象核種40種について、LSC、Geシングル、 $\gamma \gamma 2$ 次元(4Ge, 6NaI, 6CeBr₃)スペクトルデータをすべて連結して、1列のテキストからなる統合スペクトルデータベースを作成した。昨年度はLSCに対して、100倍強度の γ 線データを用いたが、 γ 核種に対する β 核種の感度向上のため、今回は同強度に改めた。

図3.2.1-14 統合基準スペクトル

令和3年度に整備したSDM-BGGコードのFile Sizeは約1GBであるが、読込みに 4分45秒、処理時間1分15秒であった。これには令和3年度に整備したTEGARAワー クステーションを使用したが、より迅速処理のために、RayTrekマシンを整備し た。表3.2.1-2にその仕様を示す。これにより、上記ファイルの読込みに2分20 秒、処理時間32秒と、約2倍高速化することができた。

表3.2.	1-2 令和4年度に整備したRayTrekマシンのスペック一覧
電源	700 W [80PLUS BRONZE 認証] / ATX 電源
CPU	インテル Core i9-13900KF プロセッサー
	[5.80 GHz(P3.00 GHz-5.40 GHz/E2.20 GHz-4.30 GHz)/24 コア
	(P8+E16)/32 スレッド/36 MB キャッシュ/TDP 125 ₩-253 ₩]
本体メモリ	64 GB(32 GB×2) [DDR5-4800 / デュアルチャンネル]
本体ストレージ	1TB SSD / NVMe M.2 [PCIe 4.0 \times 4]
ネットワーク	10 GB $ imes$ 2 (on board)
グラフィックア	クセラレーター NVIDIA GeForce RTX 3060 12 GB GDDR6
OS	Windows 11 Pro (DSP)
ソフトウェア	Microsoft Office Professional 2021

開発したSDM-BGGコードの精度検証を以下のように行った。入力スペクトルとして、36個の基準スペクトルすべてを足し合わせて、SDM解析を行った結果が表3.2.1-3である。定量値がすべて1.0000、定量誤差が3×10⁻⁴以下となり、充分な精度であることがわかった。

Output/Input	σ	Nuclide	Output/Input	σ	Nuclide
1.0000	1.27E-07	H-3	1.0000	5.49E-08	Sn-121m
1.0000	6.17E-08	CI-36	1.0000	7.56E-08	Sn-121
1.0000	3.32E-08	Ca-41	1.0000	6.54E-10	Sn-126+Sb
1.0000	9.00E-10	Mn-54	1.0000	3.89E-10	Sb-126
1.0000	2.46E-07	Fe-55	1.0000	6.85E-10	Sb-125
1.0000	4.24E-10	Co-60	1.0000	1.02E-09	Te-125m
1.0000	2.89E-08	Ni-63	1.0000	5.52E-09	I-129
1.0000	8.93E-08	Kr-85	1.0000	3.91E-10	Cs-134
1.0000	3.99E-08	Sr-90	1.0000	2.98E-08	Cs-137+Ba
1.0000	4.26E-08	Y-90	1.0000	2.26E-10	Ba-133
1.0000	1.06E-08	Zr-93	1.0000	2.33E-09	Ce-144+Pr
1.0000	2.71E-08	Tc-99	1.0000	4.45E-10	Pm-146
1.0000	4.59E-08	Ru-106	1.0000	9.08E-06	Pm-147
1.0000	1.91E-09	Rh-106	1.0000	2.02E-04	Sm-151
1.0000	3.85E-10	Ag-110m	1.0000	3.77E-10	Eu-152
1.0000	1.85E-08	Ag-110	1.0000	5.22E-10	Eu-154
1.0000	7.13E-08	Cd-113m	1.0000	1.14E-09	Eu-155
1.0000	4.34E-09	Sn-119m	1.0000	2.85E-10	Gd-153

表3.2.1-3 SDM-BGGコードの精度

上記で作成した統合スペクトルデータベースを用いて、複数の核種が混在するスペクトルを合成し、SDM解析を行うことで、解析法の評価を行った。まず、40核種すべて10⁹ decaysの場合の以下の4つのSDM法の比較を行った。SDM-BG法はLSC, Ge singles, $\gamma \gamma 2D$ スペクトル解析の総称であるが、多重 γ 線検出装置の3種の体系により、 $\gamma \gamma 2D$ スペクトルの違いがあるため、以下の議論においては、下記名称を用いることとした。

- SDM-BG:LSC, Ge singles
- \bigcirc SDM-BGCC : LSC, Ge singles, $\gamma \gamma 2D$ with 6CeBr₃
- \bigcirc SDM-BGNN: LSC, Ge singles, $\gamma \gamma 2D$ with 6NaI
- \bigcirc SDM-BGGG : LSC, Ge singles, $\gamma \gamma 2D$ with 4Ge

以上の4つの解析コードの検証は、量研機構、大成建設、JAEAの3機関において実施された。それについては3.3節に詳述されているが、それぞれ異なる条件を想定し、解析コードの検証と、複数解析コード間の比較・評価を実施した。

新潟大学は、以下の測定条件で合成したスペクトルを異なる手法(BGNN, BGC C, BGGG法)で解析した結果を比較した。

 \bigcirc Totally 10⁸ decays, 1% for 40 nuclides except Cs-137 (60%)

○ 10⁴ Bqの試料を10⁴ sec測定することで、崩壊数10⁸のスペクトルを計算 し、乱数を用いて、正規分布の誤差を加えることで、実測に近い(と思われる) スペクトルを合成した。

40核種について、各々崩壊数10⁶ decays(1%強度)とし、主成分として、Cs -137が6×10⁷ decaysが含まれることを想定した。

量研機構は、日本分析センターが開発したSDM法コードについて、既存のデー タを入れ変える操作により、正常に動作することを確認した。γ核種およびβ 核種について、いくつかの強度分布を想定して入力スペクトルを作成し、乱数 を用いて、正規分布の誤差を加えることで、実測に近い評価スペクトルを合成 した。出力結果が入力値を再現することを確認した。

大成建設は燃料デブリ中のγ線放出核種について、多重γ線検出装置を用い たシングルス測定を行い、γ線の実測スペクトルとLSC測定を行いβ線の実測 スペクトルを作成し、得られたスペクトルを個別のSDM-B法、SDM-G法および統 合したSDM-BG法による解析を実施した。

その結果、SDM-B法またはSDM-G法による個別解析と比較して、SDM-BG法による統合解析の方がより精度の高い定量値を得られ、この統合解析SDM-BG法の有効性が示された。また、y線核種を対象のスペクトルを得て、2つの手法により定量下限を調査した結果、従来法に比較してSDM法が優位な状況であった。

JAEAは、以下の測定条件で合成したスペクトルを異なる手法(B,G,GGG,BG, BGGG法)で解析した結果を比較した。

 \bigcirc Totally 10⁸ decays, 1 for 40 nuclides except Cs-137 (60%)

○ 10⁴ Bqの試料を10⁴ sec測定することで、崩壊数10⁸のスペクトルを計算 し、乱数を用いて、正規分布の誤差を加えることで、実測に近い(と思われる) スペクトルを合成した。

iii 粗化学分離スキームの検討

(1) 令和3年度までの概要

SDM 法では、測定試料中の核種間の濃度レベルの差が大きい場合、低濃度核種の定量精度が 低くなることが分かっている。そのため、令和3年度は、デブリ中の測定対象核種を SDM 法に よる測定に適した濃度レベルにするための化学分離スキームの検討を開始した。図 3.2.1-15 に理想的な化学分離スキームのイメージを示す。

デブリ中測定対象核種のうち、安定元素を入手可能な核種を対象とし、8 種類の化学分離方 法での回収割合を ICP-AES または ICP-MS 測定により求めた。また、この結果から化学分離ス キームを提案した。 (2) 令和4年度実施内容および成果

令和3年度に提案した化学分離スキームの改善を目的として実施した具体的な内容および 成果は、以下のとおり。

化学分離方法の追加

令和4年度は、以下のとおり令和3年度までに検討した8種類の化学分離方法に加え、2種 類の化学分離方法を追加で検討を行った。

- AMP (リンモリブデン酸アンモニウム) による分離
- 炭酸塩沈殿による分離
- 水酸化物沈殿による分離(水酸化ナトリウム使用)
- 水酸化物沈殿による分離(アンモニア水使用)
- Sr レジンによる分離
- Ni レジンによる分離
- 硫化物沈殿による分離(塩基性溶液)
- 硫化物沈殿による分離(酸性溶液)
- RE レジンによる分離 【R4 年度追加分】
- MetaSEP AnaLigTE-05 による分離 【R4 年度追加分】

令和3年度と同様に、Ba、Ca、Cd、Ce、Co、Cs、Eu、Fe、Gd、Mn、Ni、Pr、Rh、Ru、Sb、Sm、 Sn、Sr、Te、Y、Zrの21元素について、これらを混合した溶液で検討実験を行った。なお、混 合溶液は、調製後1週間程度で沈殿が形成されるので、溶液の調製は実験の直前に行うことと した。

測定は、ICP-AES または ICP-MS を使用した。ICP-AES は 0、0.1、0.5、1、2 ppm の濃度で検 量線を作成した。ICP-MS は 0、1、2、5、10 ppb の濃度で検量線を作成した。試料溶液は、検 量線のレンジ内に入るように希釈調製した。

それぞれの元素の回収割合を表 3.2.1-4 に示す。沈殿を使った分離では、上澄みはそのまま 希釈し、沈殿は溶解して希釈・測定した。レジンを使った分離では通過液、洗浄液、溶離液を 希釈・測定した。赤字は 80%以上回収できた元素、青字は回収割合が小さく効果的に除去でき た元素、黄緑字は不検出のため検出下限値を記載した元素を示している。

RE レジンは、デブリ中強度比が高い希土類元素(Eu, Pr, Sm, Y 等)を選択的に分離することが可能であり、本法に適した分離方法であることがわかった。

MetaSEP AnaLig TE-05 は、遷移元素 (Fe, Co, Ni, Mn 等)の分離に適したキレート樹脂であり、 特に EC 核種である Fe-55 と希土類元素の分離の際に適した分離方法であることがわかった。 また、試料溶液の pH により元素の吸着挙動が変化することがわかった。

② 化学分離スキームの改善

化学分離の検討結果から、図 3.2.1-16 の化学分離スキームを提案する。7 つの分離方法を組 み合わせ、分離操作の実施回数(ステップ数)12 回 で、10 個のフラクション(A0, A1, B1, B2, C, D, E, F1, F2, G) が得られる。化学分離の検討を実施していない核種(元素)の挙動 は文献調査をもとに設定し、回収割合は 80%と仮定した。デブリ中強度比が高い核種の目的外 のフラクションへの混入を除くために、必要に応じて同様の分離法を繰り返し行っている。 続いて、提案する化学分離スキームにより得られる 10 個のフラクションごとに、理論的な 回収割合および SDM 法での測定精度を以下の条件で求めた。それぞれ表 3.2.1-5 および表 3.2.1-6 に示す。

- ・初期濃度は JAEA インベントリ濃度を設定した。
- ・中重核種のみを想定(アクチニド核種は含まず。)
- ・提案する化学分離フローにより得られる 10 個のフラクションを測定対象とした。
- ・化学分離での回収率の誤差は2-4%であるため、一律4%を含めた。
- γ線、LSC 測定は各試料について、10⁴ Bq、10⁵ sec 測定とした。

表 3.2.1-6 より、デブリ中の対象 40 核種のうち、36 核種が SDM 法による定量で誤差 30%未 満であり、Ni-63, Pm-146 および Sn-119 が誤差 70%未満であった。また、Gd-153 は同じフラク ションに強度比が 10⁷倍程度高い希土類元素(Eu-154, Y-90 等)が存在することから、SDM 法 による定量では誤差 70%を超えることがわかった。これらの核種は同じ希土類元素同士であり、 分離が難しいことから、改善のためには化学分離とは異なるアプローチが必要となることがわ かった。

③分析に掛かる工程の削減

本法で対象とする核種について、高レベル放射性廃棄物分析に係る文献を調査し、分析に掛かる従来の工程数(ステップ数)を集計した。表 3.2.1-7 に本法との比較を示す。定量可能な 核種あたりの必要ステップ数を比較すると、本法は従来の方法に比べて分析に掛かる工程を大 幅に削減できることがわかった。

また、対象核種を設定すれば、より効率的な分析スキームを提案できるため、今後の応用に ついても期待される。

図 3.2.1-15 理想的な化学分離スキームのイメージ

図 3.2.1-16 化学分離スキーム

集 通過液 洗牛液 通過液 溶離液 通過液 溶離液 通過液 洗牛液 (塩麦柱) 09 0.9 0.1 0.005 1.0 0.01 1.0 0.1 0.06 1.0 0.01 0.005 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.00 1.0 0.01 0.01 0.00 1.0 0.00 0.00 1.0 0.00 0.01 0.00 0.0 0.01 0.00 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01 0.01
支 通過法 洗擦液 通過法 洗漆 0.5 0.5 0.5 0.5 0.5 0.5 0.5 0.00 0.0
09 0.9 0.1 0.005 1.0 0.000 1.0 0.1 1.0 0.0 02 0.9 0.1 0.02 0.9 0.1 0.02 0.9 0.01 1.0 0.0 08 0.9 0.1 0.022 0.9 0.03 0.9 0.00 1.0 0.0 04 0.8 0.1 0.007 0.9 0.01 1.0 0.04 1.1 04 0.8 0.1 0.007 0.9 0.01 0.04 1.1 0.05 0.04 1.1 0.04 1.1 0.04 1.1 0.04 0.04 1.1 0.05 0.04<
000 01 0.02 03 04 05 04 05 05 05 06 07 06 06 07 06 07 06 07 06 07 06 07 06 07 07 06 07
wei wei <thwei< th=""> <thwei< th=""> <thwei< th=""></thwei<></thwei<></thwei<>
04 0.08 0.1 0.00 04 0.08 0.1 0.00 04 0.004 0.03 0
2 2
1000
0.9 0.4 0.5
0.08

表 3.2.1-4 元素の回収割合

3.2.1-14 - 48 -

Fract	ion A0		Fracti	on D				Fracti	on F1				
《禮	成物能比 に	回收率 備考		108	20目			核種	存在比 回収率	備考		1	
(r-85	6.3E-02 8	0%(仮) β	核種	放射能比 回4	Q率 放射能比	回収率		Sr-90	5.7.E-01	17% B -			
			Cs-137	6.5E-03	1% 4.5E-05	θ†%0	夾雑物					I	
Fract	ION AT		Sr-90	3.8E-03	1% 2.1E-05	0% B	夾雑物	Fracti	on F2	[
亥種	放射能比 匠	回収率 備考	Cs-134	2.9E-04	1% 2.0E-06	0% BYY	夾雑物		108	20目			
Ag-110m	9.4E-07 8	0%(仮) ↓ β γ γ	Sb-125	5.3E-03	76% 4.1E-03	59% BYY		核種	放射能比 回収率	· 存在比 放身	时能比 備考		
Ag-110	1.3E-08 8	0%(仮) β γ	Ru-106	3.7E-03	81% 3.0E-03	64% B 1		Cs-137	3.5.E-04	0% 1.4.E-07	$\beta \uparrow \%0$	夾雑物	
-129	3.0E-07 8	0%(仮) β γ	Rh-106	3 4F-03	74% 2.6F-03	57% B V V		Cs-134	1.6.E-05	0% 6.2.E-09	0% BYY	夾雑物	
			Te-125m	2.6E-03	98% 2.5E-03	96% Y Y		Eu-154	1.5.E-06	0% 1.4.E-06	0% BYY	夾雑物	
Fract	ion B1		Tc-99	1.3E-04 8	0%(仮) 1.1E-04	64%(仮) B		Eu-155	5.8.E-07	0% 5.7.E-07	0% B Y Y	夾雑物	
侅種	放射能比 叵	回収率 備考	Sn-121	6.7E-05	79% 5.8E-05	8 %69		Sb-125	3.5.E-06	0% 6.2.E-07	0% B Y Y	夾雑物	
۲-90	6.4E-01	86% <i>B</i>	Sn-121m	1.8E-05	79% 1.6E-05	ハ T %69		Sm-151	4.4.E-08	0% 4.3.E-08	$0\% \beta(\gamma)$	夾雑物	
om-147	1.1E-01	77% B	Sn-126	5.9E-06	79% 5.1E-06	ν <i>B</i> Τ 8 ν		Te-125m	3.2.E-06	0% 2.4.E-06	0% Y Y	夾雑物	
511.154	1 RF-02	77% 8 ~ ~	Sh-126m	5.7F-06	76% 4.4F-06	59% L B V V		Pr-144	4.9.E-08	0% 4.8.E-08	0% B Y	夾雑物	
	10-10-		Cn_110m	2.6E_06	79% 23E-06	60% v		Ce-144	1.1.E-07	0% 1.1.E-07	0% † <i>B Y Y</i>	夾雑物	
-u-155	/.0E-03	11% B Y Y	Ch-126	7 05-07	76% 61F_07	1 0200 50% 8 v v		Ba-133	1.3.E-07	76% 1.1.E-07	65% EC Y Y		
Sm-151	3.4E-03	82% ß(Y)	0.9T-00	1.36-01	10/0 0/11-01	1 1 d wree		Mn-54	1.3.E-07	35% 1.2.E-07	77% EC y		
^o r-144	1.3E-03	89% ß y						Ca-41	4.4.E-08	95% 4.0.E-08	85% EC		
Ce-144	1.3E-03	89% ↓ <i>β</i>	LIACL										i.
Eu-152	2.3E-05	77% BYY		108	2回目			Eracti	y u u				
Ru-106	1.7E-05	0% β↓ 夾雑物	核種	放射能比 回4	又率 放射能比	回収率 備考				ł			
^o r-144m	1.7E-05	89% † β	Cs-137	8.2.E-03	1% 7.2.E-05	Ø↑%0	夾雑物	秋祖 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2	欧野能比 回收率	· 信考		1	
^o m-146	5.3E-06	100% γ	Υ-90	8.5.E-04	0% 4.9.E-04	θ %0	夾雑物	Cs-137	9.8.E-01	38% ↓ β	-		
Gd-153	1.2E-08	100% Ec Y Y	Sr-90	9.2.E-03	1% 1.3.E-04	0% B	夾雑物	Sr-90	5.2.E-02	7% β 灰釉	物		
			Cs-134	3.7.E-04	1% 3.3.E-06	0% BYY	夾雑物	Cs-134	4.4.E-02	38% BYY	-		
Fract	ion B2		Eu-154	3.4.E-06	0% 2.2.E-06	0% BYY	夾雑物	H-3	2.8.E-03 80%	(収) β	142)	I	
核種	放射能比 匠	回収率 備考	Sb-125	4.9.E-05	1% 2.9.E-05	0% BYY	夾雑物						
Fe-55	1.6E-04	96% EC	Ru-106	2.2.E-04	5% 1.9.E-04	4% ß (夾雑物		=<30%				
			Rh-106	7.1.E-05	2% 5.8.E-05	$1\% \beta \gamma \gamma$							
Fract	ion C		Te-125m	1.6.E-04	6% 1.5.E-04	6% Y Y	夾雑物	가	/0/2/				
核種	放射能比 匠	回収率 備考	Cd-113m	1.7.E-04	96% 1.6.E-04	<i>\$</i> %06							
Zr-93	1.8E-05	80% EC <i>β</i>	Ni-63	6.6.E-05	95% 6.1.E-05	88% <i>B</i>							
Nb-93m	1.8E-05	80%(仮) 月	Co-60	4.1.E-06	91% 3.9.E-06	85% BYY		影差	=>70%				

表 3.2.1-5 フラクションごとの回収率 (理論値)

3.2.1-15 - 49 -

JAEA-Review 2023-022

	誤差<30%			<u> </u>				影走>/0%																																
Comments	Gaseous element			Low energy X ray			Gaseous element										Low energy gray	Low energygray								Gaseous element											Interference by Eu-154			Interference by Eu-154
	0.33	1		1	1	1	ı	0.04	1	1	1	1	1	-	1	1	1	1	1	1	ı	-	-	1	-	-	0.04	0.04	0.04	1	1	1	-		1	1	1			1
G	1.14	1	1	-	1	-	ı	0.99	1	1	1	1	-	-	1	1	1	-	-	-	1	1	1	1	-	-	0.99	1.00	1.00	-	-	-	-	-	-	1	1	-		1
	'	0.05	0.04	'	'	'	'	'	'	'	'	'	'	-	1	1	1	1	'	'	1	1	'	0.04	0.04	1	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	•	1	1.39	,	0.04	0.04	1
F2	'	1.04	1.00	'	1	'	'	'	'	'	•	1	1	-	ı	1	1	1	1	'	1	1	1	1.00	1.00	1	0.96	1.00	1.00	1.00	0.98	0.98	0.98	•	1	1.76	,	1.00	1.00	ı
	'	'	1	'	1	'	'	0.04	'	'	'	'	'	1	•	•	•	1	•	'	'	1	1	1	1	1	'	'	1	1	1	•	-	•	1	1	1	'	'	'
F1	'	'	1	'	1	'	1	1.00	'	'	'	'	'	1	1	1	•	1	1	'	'	1	1	1	1	1	'	'	1	1	1	1	-	•	1	'	1	•	'	1
Ц	'	'	•	'	0.04	0.64	'	0.04	0.04	'	1	1	0.04	0.04	1	1	0.19	1	•	'	'	1	1	0.04	0.05	1	0.04	0.04	0.04	1	1	1	-	•	1	'	'	0.05	'	1
ш	'	'	'	'	0.92	1.25	'	1.00	1.00	'	'	'	0.97	0.97	ı	1	0.67	1	1	'	'	1	1	1.04	1.03	1	0.98	1.00	1.00	1	1	1	-	•	1	'	'	0.74	'	'
Ц	'	'	'	'	1	'	'	0.45	'	'	'	0.05	0.04	0.04	'	•	•	0.65	0.07	0.07	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	1	0.05	0.04	0.04	1	1	•	-	'	1	'	'	'	'	'
	'	'	1	'	1	'	'	1.64	'	'	'	1.00	1.00	1.00	1	1	1	0.97	1.03	1.03	0.85	0.85	0.85	1.00	1.00	1	0.79	1.01	1.00	1	1	'	-	'	'	'	'	'	'	'
Ц	'	'	'	'	'	'	'	'	'	0.04	0.04	'	'	1	•	1	1	1	•	'	'	1	'	1	1	'	'	'	1	1	1	•	-	'	'	'	'	'	'	'
U П	'	'	1	1	'	'	'	'	'	1.00	1.00	1	'	1	1	1	1	1	'	'	'	1	'	1	1	1	'	'	1	1	1	1	-	1	1	'	1	1	1	'
	'	'	'	0.06	'	'	'	'	'	'	'	'	'	1	'	1	1	1	'	'	'	1	1	1	1	1	'	'	1	1	1	1	-	'	1	0.16	0.05	0.04	0.04	1
B2	'	'	'	1.0^{2}	1	'	'	'	'	'	'	'	'	'	1	1	1	1	'	'	'	1	'	1	1	'	'	'	'	'	'	'	- 1	- -	'	0.80	96.0	1.00	1.00	· ∞
	'	'	'	'	'	'	'	'	0.0	'	'	'	4 0.7.	4 0.73	'	1	1	'	'	'	'	1	'	1	1	1	'	'	1	'	20.0	20.0	20.0 2	7 0.6(0.0	2 1.16	3 0.19	0.0	0.0	7 385.
B1	'	'	'	'	'	'	'	'	1.0	'	1	1	-2.0	-2.0	' t	- 1	1	1	'	'	1	1	'	1	1	- 1	1	1	'	1	4 0.9	4 0.9	1 0.9	1.4	0.99	1.62	-0.2	4 0.99	4 1.0(753.
	'	'	'	'	'	'	'	'	'	'	'	'	'	'	0.0	0.0	'	1	'	'	'	'	'	1	1	0.0 0	'	'	'	1	0.0.0	0.0 0	0.0 0	'	'	'	1	9 0.0	1 0.0	'
Ă	'	'	'	'	'	'	- _	4	4	'	'	'	' 2	- 9	1.0	1.0	'	'	'	'	'	'	'	4 -	- 9	1.0	4 -	4 -	- 4	'	1 1.0	1 1.0	1 1.0	'	- 2	'	'	4 0.9	4 1.0	'
	'	'	'	'	'	'	5 0.0	0.0	0.0	'	'	'	5 0.0	2 0.0	'	'	'	'	'	'	'	'	'	6 0.0	8 0.2	'	0.0	0.0	0.0 0.0	1	6 0.1	6 0.1	6 0.1		2 0.0	'	'	8 0.0	2 0.0	'
AC		'	'	<u>'</u>	ľ	<u>'</u>	1.2	1.0	1.0	'	'	'	0.7	0.7	'	'	'	'	'	<u>'</u>	'	-	_	1.0	0.8	_	0.9	1.0	1.0	'	0.7	+ 0.7	0.7	-	1.0	Ľ	'	0.9	1.0	'
Fraction	H-3	Ca-41	Mn-54	Fe-55	Co-60	Ni-63	Kr-85	Sr-90	λ-90	Zr-93	Nb-93	Tc-99	Ru-106+	+Rh-106	Ag-110m+	+Ag-110	Cd-113m	Sn-119m	Sn-121m+	+Sn-121	Sn-126+	Sb-126m+	Sb-126	Sb-125	Te-125m	I-129	Cs-134	Cs-137+	+Ba137m	Ba-133	Ce-144+	+Pr-144m	+ Pr-144	Pm-146	Pm-147	Sm-151	Eu-152	Eu-154	Eu-155	Gd-153

表 3.2.1-6 改善した化学分離フローをもとにした SDM 法におけるフラクションごとの定量精度

の 内訳 (O内の数字はステップ数)	SDM解析による 誤差 < 30%:36核種 (略) 誤差 < 70%: Ni-63,Sn-119m,Pm-146 誤差 > 70%: Gd-153	Ca-41④, Cs-137(Ba-137m)①,Co-60①, H-3②, I-129②, Tc- 99⑤, Eu-152, Eu-154①, Ni-63④, Sr-90(Y-90)②, Sn- 126(Sb-126m,Sb-126)②, Sm-151②, Zr-93(Nb-93m)③ (Csを除く高存在比核種の除去操作を含まない場合が ある)	Sr-90(Y-90)①, Cs-137(Ba-137m)⑥, I-129②, Co-60③, Zr⑧, H-3②, Ru-106(Rh-106)③, Ce-144③ (Csを除く高存在比核種の除去操作は含まない)	Ag-110), H-3, I-129, Kr-85, Nb-93m (分離・回収の検討外) を含む。 業費補助金 (固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発) 』 師調査等事業 高レベル放射性廃棄物概念・性能評価技術高度化開発 』
核種あたり <i>の</i> ステップ	0.3	1.6	3.1	及び Ag-110m(汚染水対策事業 度地層処分技術 (る対応-報告書。
ステップ	12	28 (合計)	34 (合計)	-147 (文献値) i正予算「廃炉・ 業∬ 平成24年 処理・処分に係 のを含む。
対象核種	40(39)核種*1	18校種 (本法と重複するもの)	11 核種 (本法と重複するもの)	 *1 Tc-99, Pm-146, Pm *2 IRID 『平成30年度補 *3 JAEA (METI委託事: -原子力事故廃棄物の: *4 対象試料が異なるも
	SDM 法のための 化学分離	高レベル放射性 廃棄物分析に係 る参考文献等*23	放射能測定法 シリーズ*4 (文部科学省及び 原子力規制庁)	

表 3.2.1-7 分析に掛かる工程数の比較

3.2.1-17 - 51 - iv. 化学分離スキームにおける各核種の定量限界

前項で想定した化学分離スキームにおける定量限界(DL)を求めた。3.3.2項の補 足説明で紹介する方法で、DLを求めた。従来のピーク解析法(TPA)では、紹介した 方法によりDLを求められるが、SDM法ではスペクトル全体を用いるため、TPA法はそ のまま適用できない。そこで、TPA法をピークだけでなくスペクトル全体に拡張した 拡張TPA法と、SDMのフィッティング誤差を含む定量精度から求めるSDM法の両者によ る評価を行った。これらはいずれのFractionにおいても、試料強度が10⁴ Bqで、10⁴ 秒測定を想定している。その結果を表3.2.1-8に載せる。2つの評価法により、違い がある核種については、大きい方の値をとるのが安全と思われる。

	120.2.1 0	核催しての足重	K J F
Nuclide	Fraction	Determinati (Bq)	on limit
		拡張 TPA	SDM
Н-3	G	1.82	2.25
Ca-41	F2	0.22	0.39
Mn-54	F2	0.73	0.09
Fe-55	B2	2.48	2.12
Co-60	Е	0.23	0.01
Ni-63	Е	0.57	4.62
Kr-85	AO	0.35	3.35
Sr-90	F1	2.16	0.17
Y-90	Е	0.35	2.04
Zr-93	С	3.42	1.18
Nb-93	С	3.42	1.18
Tc-99	D	0.40	1.87
Ru-106	D	0.18	0.25
Rh-106	D	0.18	0.25
Ag-110m	A1	0.20	0.16
Ag-110	A1	0.20	0.16
Cd-113m	Е	0.33	3.47
Sn-119m	D	0.35	0.42
Sn-121m	D	0.26	2.14
Sn-121	D	0.26	2.14
Sn-126	D	0.41	0.01
Sb-126m	D	0.41	0.01
Sb-126	D	0.41	0.01
Sb-125	D	0.27	0.20
Te-125m	D	0.35	0.38
I-129	A1	0.43	0.38
Cs-134	G	0.22	0.05
Cs-137	G	0.26	0.28
Ba-137m	G	0.26	0.28
Ba-133	F2	0.25	0.06
Ce-144	F2	0.29	0.15
Pr-144m	F2	0.29	0.15
Pr-144	F2	0.29	0.15
Pm-146	B1	0.26	0.01
Pm-147	B1	0.31	0.16
Sm-151	B2	0.45	23.33
Eu-152	B2	0.27	0.06
Eu-154	B2	0.23	0.18
Eu-155	B2	0.31	0.23
Gd-153	B1	-	-

表3.2.1-8 核種ごとの定量限界

3.2.1-19 - 53 -

(3) まとめ

LSC 測定が可能な核種について、異なるクエンチングレベルの混合溶液を調製し、β、γ、 X 線スペクトルデータを取得した。β、γ、X 線のシングルスおよび多重γ線同時計数シミュ レーション計算の高精度化を行い、LSC 測定におけるβ線、X 線スペクトルを再現するための 関数の最適化を行った。以上により、統合基準スペクトルデータベースを更新し、SDM 法解析 の高精度化を果たした。新潟大学と協力して、統合基準スペクトルを解析する SDM-BGG 法の高 度化と実証を行った。化学分離方法の追加および対象核種の化学分離時の挙動についての文献 調査等により検討を進め、化学分離スキームを改善した。改善した化学分離フローを想定され る仮想のデブリ試料に適用した際の SDM 法による測定精度を求め、デブリ中の対象 40 核種の うち 39 核種について一定の精度での定量が可能であることがわかった。本法および既存の分 析手法(放射性核種分析の公定法、放射性廃棄物の分析手法)において分析に掛かる工程数を 比較し、本法において工程数を大幅に削減できることを確認した。最終的に確立した粗化学分 離スキームにおいて、各核種の DL を求めた。 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)(令和2年度~令和4年 度)

(1) 令和3年度までの実施内容および成果(概要)

令和 2 年度から令和 3 年度に、放射線シミュレーションツールキット Geant4[1][2][3][4] を実行するために必要な環境を構築し、Co-60 などの標準線源を1 台の Ge 検出器、NaI 検出器、 CeBr₃検出器およびそれらを組み合わせた 3 種類の配置 A~C (図 3.2.2-1 参照) で測定した場 合のシミュレーションを実施した。同条件の実測スペクトルをよく再現するようにシミュレー ションパラメータをチューニングし、高精度化を図った。高精度化したシミュレーションによ り、標準線源がない核種など実測が難しい核種も含めて、β (+X) 遷移、γ線、多重γ線の SDM 用基準スペクトルを作成した。日本分析センターで開発した SDM-G 法解析プログラム[5]を日 本分析センターと協力し、拡張することで SDM-BGG 法用の解析プログラムを開発した。

JAEA-Review 2023-022

配置A (Ge×4台)

配置 B (NaI×6 台+Ge×1 台)

配置 C (CeBr₃×6 +Ge×1 +Ge

図 3.2.2-1 シミュレーション検出器配置

それぞれ配置 A は Ge 検出器 4 台、配置 B は NaI 検出器 6 台と Ge 検出器 1 台、配置 C は CeBr₃検出器 6 台と Ge 検出器 1 台で試料の周囲を囲った。配置 B と配置 C は 6 台のシンチ レーション検出器で周囲を囲われた試料の下側に Ge 検出器が設置されている。検出器周 囲と上部は 10cm 厚の鉛遮蔽で覆われているが、図では見やすくするため、手前の鉛遮蔽 は表示していない。 (2) 令和4年度実施内容および成果

日本分析センターで得られたスペクトルデータをもとに、シミュレーション計算の高精度化 を行った。整備された多重γ線検出装置で得られた実測データを SDM 法で解析し、性能の確認 と向上を目指した。日本分析センターと協力して、SDM-BGG 法の高度化と実証を行った。具体 的な実施内容および成果について以下に記す。

日本分析センターより、整備された多重γ線検出装置で得られた実測データの提供を受け、 シミュレーションで設定する各種パラメータを調整し、シミュレーションの高精度化を図った。 高精度化したシミュレーション配置を決定し、対象 40 核種の計算を各 10 億イベント実行し、 γ線検出器配置 A~C でのシングルスペクトルおよび多重γ2 次元スペクトルを解析プログラ ムで読み込める形式で作成した。図 3.2.2-2~図 3.2.2-4 にそれぞれ配置 A~C 用に作成した スペクトルの例 (Co-60、Cs-134、Ba-133)を示す。それぞれの配置で用いた検出器のエネルギ ー分解能の違いによるスペクトルの変化がよく再現されている。なお、図 3.2.2-3 と図 3.2.2-4 ではシングルスとして、NaI と CeBr₃のスペクトルを参考のために記したが、以下に記した BGNN 法と BGCC 法の解析では、シングルススペクトルは Ge 検出器のスペクトルを用いた。

整備された多重γ線検出装置で得られた実測データを SDM 法で解析した結果を図 3.2.2-5 に 示す。Cs-137 を主成分とし、他の5 核種(Mn-54、Ba-133、Co-60、Ru-106、Eu-152)の強度を 変化させたデータを SDM 法で解析した。5 核種が 1/1000 強度においても、誤差 20%以下の精度 で定量できることを確認した。

SDM-BGG 法の高度化と実証のため、1/100 強度(主成分を Cs-137 (60%) とし、残りの対象核 種がそれぞれ 1%含まれている)での BGGG 法 (LSC シングルス、Ge 検出器シングルス、4 台の Ge 検出器コインシデンスの統合解析)、BGNN 法 (LSC シングルス、Ge 検出器シングルス、6 台 の NaI 検出器コインシデンスの統合解析)、BGCC 法 (LSC シングルス、Ge 検出器シングルス、6 台 の CeBr₃ 検出器コインシデンスの統合解析)の解析を行った。図 3.2.2-6 と図 3.2.2-7 に それぞれ全核種および γ 線核種の解析結果を示す。これらの結果より、BGNN 法および BGCC 法 よりも Ge 検出器を用いた BGGG 法が定量精度に勝ること、また今回仮定した 1/100 強度ではほ ぼ数十%以内の制度で定量できること、BGGG 法では競合核種 (Ag-110g, m と Sn-121g, m)を除く γ 線核種に対しては 3%以内の十分な精度があることがわかった。以上の今回の結果より、競合 核種や β 線最大エネルギーが近い β 線核種および X 線核種のときに精度が低くなることがわか った。さらなる性能向上を目指し、この問題について検討した結果、競合核種については放射 平衡が成立する条件下で測定と解析を実施すること、また β 線最大エネルギーが近い β 線核種 および X 線核種については干渉する核種を化学分離で除くことが有効であるため化学分離スキ ームの検討に考慮した方が良いことがわかった。

図 3.2.2-2 シミュレーションで作成した y 線検出器配置 A (Ge 検出器) でのシングル スペクトルおよび多重 y 2 次元スペクトルの例

図 3.2.2-3 シミュレーションで作成した γ 線検出器配置 B (NaI 検出器) でのシングル スペクトルおよび多重 γ 2 次元スペクトルの例

図 3.2.2-4 シミュレーションで作成した γ線検出器配置 C(CeBr₃検出器) でのシングル スペクトルおよび多重 γ 2 次元スペクトルの例

3.2.2-6 - 60 -

図 3.2.2-5 実測データを SDM 法で解析し た結果

(1)は実測したスペクトルの例。(2)は、 Cs-137 を主成分とし、他の5 核種(Mn-54、Ba-133、Co-60、Ru-106、Eu-152)の 強度を変化させたときの設定強度と定量 結果。(3)は(2)を比で表したもので、 1/1000強度においても、誤差 20%以下の 精度で定量できることがわかる。

図 3.2.2-6 SDM-BGG 法の全核種の 解析結果

(1)~(3)は多重γ線測定を行った検出器の違いで、それぞれ4台のGe検出器(配置A)、6台のNaI検出器(配置B)、6台のCeBr₃検出器(配置C)を用いた配置での解析結果。

(3) まとめ

日本分析センターが多重γ線検出装置で測定した実測データを用いて、シミュレーションの チューニングを行い、高精度化を図った。整備された多重γ線検出装置で得られた実測データ を SDM 法で解析し、性能の確認と向上を目指した。また、高精度化したシミュレーションを用 いて Ge 検出器、NaI 検出器、CeBr₃検出器で構成されるγ線検出器配置に対する対象核種の計 算を実施し、シングルスペクトルおよび多重γ2次元スペクトルを作成した。日本分析センタ ーと協力して、1/100 強度での BGGG 法、BGNN 法、BGCC 法の解析を行い、定量精度を評価した。 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~令和4年度) (1)令和3年度までの実施内容および成果(概要)

この開発課題では、測定試料に含まれていない核種を迅速に識別することで、SDM 法の高精 度な解析に用いることができる機械学習モデルの開発を目的としている。これを達成するため に、以下のような研究開発を実施してきた。

i)開発環境の整備

令和2年度にはまず、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。これは 令和3、4年度も引き続き活用してモデルチューニングや学習データの前処理に用いている。 そのスペックを表3.2.3-1に示す。

表 3.2.3-1	令和2年度に整備した 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 $ imes$ 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 $ imes$ 2 (on board)
VGA	NVIDIA GeForce RTX3090 $ imes$ 2
	(CUDA コア:10496, メモリ:24 GB GDDR6X)
OS	Ubuntu Linux プリインストール

ii)機械学習モデルの核種予測精度の確認

令和2年度は、従来モデルによる解析に比べ、機械学習モデルの方が有意に迅速な核種識別 ができることを示すため、このサーバーを用いて、ゲルマニウム検出器で得られるγ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。順方向全結合型および畳み込みニューラル ネットワーク(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。

iii)機械学習モデルとコベル法の比較による計測時間優位性の確認

計測時間に関して機械学習モデルの優位性を示すための指標として以下の式で定義される 「計測時間増倍係数 c」を提案している。

$$c \equiv (\sigma_{norm} / \sigma_{ML})^2 \tag{A}$$

ここで、 σ_{norm} および σ_{ML} は各々評価用データについて既存の手法で解析した場合と機械学習 モデルで推定した場合の放射能の標準偏差を表す。既存の方法は光電ピークのカウント数によ る統計的不確かさから導出しているため、半減期が計測時間に対して十分に長い場合を考える と計数率は一定とみなすことができ、計測時間増倍係数は、従来法で機械学習モデルと同程度 の標準偏差を得るためには c 倍の計測時間を掛けて光電ピークのカウント数を増加させる必 要があるということを示している。この指標は令和3年度の研究でも引続き使用している。

令和2年度には1次元畳み込みニューラルネットワーク(CNN)モデルによるCs-134, 137 の放射能推定を目的として、妨害核種K-40が含まれる環境のシミュレーションを実施し、学 習および評価用のデータを生成した。この 1 次元 CNN モデルをベースとして実施しているため、その概要図を図 3.2.3-1 に示す。

図 3.2.3-1 令和 2 年度に開発した 1 次元畳み込みニューラルネットワークの構成 (放射性核種ごとに学習済みモデルを整備する。)

新潟大学で作成したシミュレーションデータは、8割を学習データに用いて、残り2割は学習には用いず、評価用のデータとした。この評価用データを学習済みモデルに適用し、正解値が等しい多数のデータの放射能を推定して、その分布からσ_{ML}解析することで、図3.2.3-2 に示すような計測時間増倍係数を得た。その結果、低放射能領域を除いて、機械学習モデルによる解析の方が高速に放射能推定できる性能を有していることを示した。

図 3.2.3-2 従来法であるコベル法に対する1次元畳み込みニューラルネットワークの 計測時間増倍係数(低放射能域を除き1を上回っており、従来法より高速に放 射能推定ができている。)

3.2.3-2 - 64 - iv) 機械学習による推定値の不確かさを導出するモデルの作成

一般的に機械学習モデルの出力には不確かさが含まれない。これは学習データが入力デー タと正解の出力データで与えられているからであり、学習過程では機械学習モデルは正解値と 推測値のずれが小さくなるようにパラメータを調整していくからである。しかし、スクリーニ ングでは核種が含まれていないことを示す必要があり、そのためには許容可能なリスクのもと で、十分含まれていないと判別できる必要がある。リスク計算のためには得られた放射能の標 準偏差、すなわち不確かさが必要となる。

そこで、本研究では、新たな損失関数 Gaussian negative log likelihood loss (GNLLLoss) を適用することで、不確かさを予測するモデルを開発した。GNLLLoss では、入力データおよび 学習済み機械学習モデルに依存する不確かさ $\hat{\sigma}_n(\mathbf{x}_n; \mathbf{w})$ を導入することで、以下のような損失関数の最小化を行う。

$$E_{\text{GNLL}}(\boldsymbol{w}) = \sum_{n=1}^{N} \frac{(\hat{y}(\boldsymbol{x}_n; \boldsymbol{w}) - y_n)^2}{\hat{\sigma}_n(\boldsymbol{x}_n; \boldsymbol{w})^2} - \ln \hat{\sigma}_n(\boldsymbol{x}_n; \boldsymbol{w})$$
(G)

 $\hat{\sigma}_n$ の正解値が損失関数に含まれていないため誤差逆伝播法で学習させる際に、不確かさの正解値は不要となっている。機械学習モデルの出力に対する不確かさの正解値は本質的に求められないため、この条件があることで損失関数として破綻しないようになっている。すなわち、放射能の推定値 \hat{y} と正解 y_n の差のみが学習過程で用いられ、 $\hat{\sigma}_n$ は単に式全体が最小となるように推定されるが、その値が不確かさにガウス分布を仮定した際の標準偏差と自然になるように設計されている。

よって、最終的な機械学習モデルは図 3.2.3-1 の出力に放射能だけではなく、不確かさも出力される図 3.2.3-3 に示すモデルとなる。

図 3.2.3-3 Gaussian negative log likelihood loss を損失関数として用いる際の1次元 CNN モデルの構成

(2) 令和4年度実施内容および成果

i)まず、令和4年度はこれを全γ線放出核種に適用可能とした。学習データの条件は以下の とおりである。

・24 核種 (Mn-54, Co-60, Rh-106, Ag-110, Ag-110m, Sn-119m, Sn-121m, Sn-126, Sb-126m, Sb-126, Sb-125, Te-125m, I-129, Cs-134, Ba-137m, Ba-133, Ce-144, Pr-144m, Pr-144, Pm-146, Eu-152, Eu-154, Eu-155, Gd-153) が混ざっている。

- ・24 核種はそれぞれ 50%の確率で存在する。
- ・計測時間は60 min(3600sec)。
- ・存在する場合の放射能は 0~12 kBq の範囲で一様乱数を用いて決定する。
- ・放射能は離散値(1Bq刻み)
- ・放射能が24核種すべて0Bqのものはデータを出力しない。
- ・低エネルギー y 線しか放出しない核種があるため、検出器は低エネルギー y 用 Ge に変更。
- ・200 万スペクトルを用意し、2 万スペクトルを学習用、20 万スペクトルを評価用として使用

今後、200 万スペクトルをすべて使って、より機械学習モデルの高精度化を目指すことも可 能だが、今回、学習データを10分の1に減らしても十分な性能を有することもわかった。

ii) 24 核種がランダムに含まれるサンプルから得られたスペクトルの解析結果

学習データに含まれる核種数が7核種から24核種に増えたことに伴って、各核種の放射能 を予測する際、妨害核種が増えた形になるため、機械学習モデルの結果にどう影響するかを 調査した。ここでは例として Mn-54の結果を図3.2.3-4に示す。

図 3.2.3-4 24 核種の存在する条件で取得したスペクトルをコベル法(左)および今回開発した 機械学習モデル(右)で解析して得られた放射能の正解値に対するばらつき

コベル法では妨害核種が増えた影響が明確に現れており、解析値が正解値に対して大きく ばらついている一方で、機械学習モデルによる解析結果は主要なγ線放出核7核種(Cs-137, Cs-134, Nb-94, Na-22, Co-60, Eu-154, Eu-152) については、昨年度までの成果とほぼ同等 で、妨害核種の影響を従来法より低減した安定したモデルとなっていることがわかった。一 方で今回追加した核種のうち、特に低エネルギーのγ線しか放出しないものは、精度が低か ったり、ハイパーパラメータの最適化が困難であったりするものがある。現状では、低エネ
ルギーγ線放出核種については、今後のモデルの改良で迅速な核種識別を可能としていく必要がある。

iii) 簡易スクリーニングの実施(含まれていない核種の識別)

リスク率を5%に設定した解析で評価用データを用いた簡易スクリーニングの性能を調査した結果を図3.2.3-5に示す。調査対象核種はCs-137である。検証用データにおいてはリスク率を5%に設定しているため、95%に漸近しており、学習が進むにつれ、ほぼ95%の試料を正確にスクリーニングすることができている。残りの5%はリスク率として設定した値なので、統計学上これを上回ることはない。学習用データは若干過学習の傾向が見られるが、検証用データの正答率が低下していないため、汎化性能は失われていない。今後、SDM法の解析結果の高精度化に必要なリスク率を調査していく必要がある。



図 3.2.3-5 学習中のスクリーニング成功率(含有、負含有の判定の正答率)の変化 青線が学習用データ、赤線が検証用データによる結果

(3) まとめ

令和3年度までに開発した畳み込みニューラルネットワーク(CNN)を用いたγ線核種認識 技術(7核種)を発展させて、全γ線放出核種への対応を可能にし、その性能評価を行った。 また、核種認識の性能評価を行った。JAEAが実施する定性分析法と分析結果の評価に対応した。 3.3 分析法バリデーション(令和2年度~令和4年度)

3.3.1 SDM 法および解析結果の検証(再委託先:量研機構)(令和2年度~令和4年度)

(1) 令和3年度までの実施内容および成果(概要)

令和2年度においては、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。令和3年度においては、日本分析センターが開発した SDM 法コードについて、既存のデータを入れ変える操作および放射能標準試料を GAGG 結晶検出器 で測定した新しいデータを入力して、正常に動作することを確認することで、検証を行った。 また、保有する Ge 検出器 1 台を修理した後、日本分析センターが整備する γ 線測定装置に使 用した。

(2) 令和4年度実施内容および成果

SDM-BGG 法:

Ge 半導体検出器で計測したシングルスγ線スペクトル (G スペクトル)、主にベータ崩壊核 種に対して有効な液体シンチレータによって測定したLSCスペクトルに対しクエンチング補正 を行ったスペクトル (B スペクトル)、4 台の Ge 検出器、6 台の NaI 検出器、6 台の CeBr₃ 検出 器による同時計数測定により得られる2次元γ線スペクトルデータを統合されたスペクトルを 分析対象とする。解析対象となる核種を表 3.3.1-1 に示す。

シングルス y 線スペクトル : Ge 半導体検出器で測定したスペクトル。エネルギー分解能が 高いため、 y 線放出核種に対して有効。

- ベータ線スペクトル : γ線を放出しないベータ核種に対して特に有効。ベータ線の エネルギースペクトルからスペクトルの解析に寄与する。
- γ線の2次元データ : エネルギー分解能が高い Ge 半導体検出器、エネルギー分解能が低いが検出効率が高い NaI (T1) シンチレーターション検出器、Ge 半導体検出器よりはエネルギー分解能が低いが、NaI 検出器よりは分解能が高い CeBr₃ シンチレーション検出器によって、それぞれ 2本以上のγ線を同時に放出する核種に対して同時計数を行ったときの 2次元データスペクトル。シングルスγ線スペクトルに対して、検出効率は落ちるが 2次元データになるため特に弱いγ線放出核種に分析に有効。

これらのうち、γ線を実測した核種はMn-54, Co-60, Ru-106, Cs-134, Cs-137, Ba-133, Eu-152の7核種である。γ線シミュレーション計算で得られた核種は、Ag-110, Ag-110m, Sn-119m, Sn-121m, Sn-126, Sb-125, Sb-126, Sb-126m, Te-125m, I-129, Ce-134, Pr-144, Pr-144m, Pm-146, Eu-154, Eu-155, Gd-153の17核種で、γ核種は合計24核種である。

BGG data 形式

それぞれの核種のデータ構造は下記のようになっている。

1 行目	:核種名
2-10 行目	: 液シンスペクトル情報(測定/計算、測定機器、測定日時、事象数、他)
11-20 行目	:シングルスγ線スペクトル情報(測定/計算、測定機器、測定日時、
	事象数、他)

21-30行目:多重γ線スペクトル情報(測定/計算、測定機器、測定日時、事象数、他)1-1030行目:液シンスペクトル (1000 channel)

1031-2030 行目 :シングルス y 線スペクトル (1000 channel)

2031-64530 行目 : 多重 γ 線スペクトル (250 × 250 = 62,500 channel)

解析するデータのヘッダー(1-30行目)は解析には直接的には用いないため、違っていても 問題ない。

	表 3.3	3.1-	11	解析対象	と	な	る核種
--	-------	------	----	------	---	---	-----

Н-3
C1-36
Ca-41
Mn-54
Fe-55
Co-60
Ni-63
Kr-85
Sr-90
Y-90
Zr-93
Tc-99
Ru-106+Rh-106
Ag-110m+Ag-110
Cd-113m
Sn-119m
Sn-121m+Sn-121
Sn-126+Sbm+Sb
Sb-125
Te-125m
I-129
Cs-134
Cs-137+Ba137m
Ba-133
Ce-144
Pm-146
Pm-147
Sm-151
Eu-152
Eu-154
Eu-155
Gd-153
Nb-93m

まず、解析コードは Excel のスプレッドシートとなっているので、そのセルの中身を追って いった。上記のデータ構造で述べたように、データが約 64530 行あり、その行列演算を行う ために膨大な数のセルが計算に使われている。そのため、通常のパーソナルコンピューター では一つの Excel ファイルの処理(ファイルオープン、セーブ、値の変更)に対して数分間 の時間を要する。そのため、入力値の変更にも同様の時間がかかる。そのため、Excel ファイ ルの操作は慎重を期する必要がある。すべてのセルを確認することは現実的ではないので、 それぞれの処理でいくつかのセルの内容を確認した。本コードは SDM 法の処理コードと本質 的には同じであり、ランダムに選んだセルの内容を確認し正常なコードと判断した。



図 3.3.1-1 仮想試料 1 のスペクトルの一部





1.00000	0.02926	H-3	100.00000		0.01957	H-3
1.00000	0.00517	CI-36	10.00000		0.00212	CI-36
1.00000	+ - 0.00167	Ca-41	10.00000	+ -	0.00123	Ca-41
1.00000	0.00025	Mn-54	1.00000		0.00014	Mn-54
1.00000	0.04204	Fe-55	1.00000		0.03034	Fe-55
100.00000	0.00058	Co-60	1.00000		0.00008	Co-60
1.00000	0.01940	Ni-63	1.00000		0.00961	Ni-63
1.00000	0.01094	Kr-85	1.00000		0.00464	Kr-85
1.00000	0.00286	Sr-90	1.00000		0.00199	Sr-90
1.00000	0.00305	Y-90	1.00000		0.00213	Y-90
1.00000	0.07901	Zr-93	1.00000		0.03223	Zr-93
1.00000	0.00866	Тс-99	1.00000		0.00352	Тс-99
1.00000	0.00037	Ru-106+Rh-106	1.00000		0.00021	Ru-106+Rh-106
1.00000	0.00012	Ag-110m+Ag-110	1.00000		0.00006	Ag-110m+Ag-110
1.00000	0.01025	Cd-113m	1.00000		0.00482	Cd-113m
1.00000	0.00252	Sn-119m	1.00000		0.00092	Sn-119m
1.00000	0.00880	Sn-121m+Sn-121	1.00000		0.00392	Sn-121m+Sn-121
1.00000	0.00012	Sn-126+Sbm+Sb	1.00000		0.00007	Sn-126+Sbm+Sb
1.00000	0.00044	Sb-125	1.00000		0.00016	Sb-125
1.00000	0.00226	Te-125m	1.00000		0.00083	Te-125m
1.00000	0.00375	I-129	1.00000		0.00140	I-129
1.00000	0.00014	Cs-134	1.00000		0.00008	Cs-134
100.00000	0.00097	Cs-137+Ba137m	1.00000		0.00014	Cs-137+Ba137m
1.00000	0.00017	Ba-133	1.00000		0.00009	Ba-133
1.00000	0.00069	Ce-144	1.00000		0.00028	Ce-144
1.00000	0.00025	Pm-146	1.00000		0.00011	Pm-146
1.00000	0.01500	Pm-147	1.00000		0.00554	Pm-147
1.00000	0.08213	Sm-151	1.00000		0.03241	Sm-151
1.00000	0.00022	Eu-152	1.00000		0.00011	Eu-152
1.00000	0.00019	Eu-154	1.00000		0.00010	Eu-154
1.00000	0.00026	Eu-155	1.00000		0.00014	Eu-155
1.00000	0.00019	Gd-153	1.00000		0.00011	Gd-153
1.00000	0.00390	Nb-93m	1.00000		0.00222	Nb-93m

表 3.3.1-2 仮想試料1(左)と仮想試料2(右)の解析結果

次に仮想的にスペクトルを作成して、SDM-BGG 法コードの確認を行った。まず、解析のための基準となるそれぞれの核種のスペクトルに適当な値を掛けて、重ね合わせることで仮想スペクトルを作成した。まず、y線の挙動を確認するために Co-60 および Cs-137 が他の核種より 100 倍多い場合のスペクトルを作成した。これらの核種はy線放出核種であり、強いy線ピークを形成する。Cs-137 は 662 keV の 1 本のy線を放出する一方、Co-60 は 1173 keV と 1332 keV の 2 本のy線を放出するため、y線のコンプトン散乱によるバックグランドが Ge 検出器スペクトルとyy線同時計数のデータ部分で増加する。図 3.3.1-1 に生成されたスペクトルの一部を示す。エネルギーの低い部分(左側)に対応する 1~1000 チャンネルが LSC のスペクトル、次の 1001~2000 チャンネルが Ge 検出器によるシングルスy線スペクトルに対応する。2001 チャンネル以降はyy 同時計数の2 次元スペクトルを1 次元スペクトルで表記した部分に対応する。似たような波形が周期的に現れるのは 2 次元スペクトルを 1 次元スペクトルに変換したためである。





図 3.3.1-4 仮想試料 4 のスペクトル

1.00000	0.04264	H-3	1.00000		0.08029	H-3
1.00000	0.00557	CI-36	1.00000		0.00974	CI-36
1.00000	+ - 0.00305	Ca-41	1.00000	+ -	0.00504	Ca-41
1.00000	0.00014	Mn-54	1.00000		0.00033	Mn-54
1.00000	0.07221	Fe-55	1.00000		0.12354	Fe-55
1.00000	0.00009	Co-60	1.00000		0.00014	Co-60
1.00000	0.01918	Ni-63	300.00000		0.04039	Ni-63
1.00000	0.01172	Kr-85	1.00000		0.02096	Kr-85
1.00000	0.00717	Sr-90	1.00000		0.00929	Sr-90
100.00000	0.00759	Y-90	100.00000		0.00990	Y-90
1.00000	0.06996	Zr-93	1.00000		0.17334	Zr-93
30.00000	0.00749	Тс-99	30.00000		0.01546	Тс-99
1.00000	0.00040	Ru-106+Rh-106	1.00000		0.00081	Ru-106+Rh-106
1.00000	0.00007	Ag-110m+Ag-110	1.00000		0.00013	Ag-110m+Ag-110
1.00000	0.01282	Cd-113m	1.00000		0.02134	Cd-113m
1.00000	0.00202	Sn-119m	200.00000		0.00471	Sn-119m
1.00000	0.00861	Sn-121m+Sn-121	1.00000		0.01667	Sn-121m+Sn-121
1.00000	0.00009	Sn-126+Sbm+Sb	1.00000		0.00018	Sn-126+Sbm+Sb
30.00000	0.00062	Sb-125	30.00000		0.00091	Sb-125
1.00000	0.00183	Te-125m	1.00000		0.00445	Te-125m
1.00000	0.00335	I–129	1.00000		0.00980	I-129
1.00000	0.00010	Cs-134	1.00000		0.00020	Cs-134
1.00000	0.00016	Cs-137+Ba137m	1.00000		0.00035	Cs-137+Ba137m
1.00000	0.00013	Ba-133	1.00000		0.00027	Ba-133
1.00000	0.00057	Ce-144	1.00000		0.00126	Ce-144
50.00000	0.00054	Pm-146	50.00000		0.00076	Pm-146
1.00000	0.01204	Pm-147	1.00000		0.02740	Pm-147
20.00000	0.07091	Sm-151	20.00000		0.17725	Sm-151
1.00000	0.00014	Eu-152	300.00000		0.00130	Eu-152
1.00000	0.00012	Eu-154	200.00000		0.00118	Eu-154
1.00000	0.00022	Eu-155	1.00000		0.00061	Eu-155
1.00000	0.00017	Gd-153	1.00000		0.00050	Gd-153
1 00000	0.00459	Nb-93m	1 00000		0.00995	Nb-93m

表 3.3.1-3 仮想試料 3 (左) と仮想試料 4 (右) の解析結果

図 3.3.1-1のスペクトルでは、1001~2000 チャンネルの Ge 検出器スペクトル部分で、Co-60 および Cs-137+Ba137m の典型的な γ線ピークが見られるのがわかる。また、7000 チャンネ ルから 10000 チャンネルの 2 次元データ部分においても、類似の波形が繰り返されているが、 その中でもピーク部分が増加していることがわかる。これは、Co-60 の 2 本の γ線の同時計 数のイベントに起因すると思われるが、このスペクトルを見て判断するのは困難である。

表 3. 3. 1-2 (左) に分析結果を示す。設定したように、Co-60 と Cs-137+Ba137m が 100 になっていることがわかる。

次にベータ崩壊核種として H-3 を 100、C1-36、Ca-41 を 10 とし、他の核種を 1 として仮想 スペクトルを作成した。図 3.3.1-2 にそのスペクトルを示す。特に、LSC によるベータ線スペ クトル部分(1~1000 チャンネル)において増加が見られる。表 3.3.1-2(右)に分析結果が 示すが、H-3 が 100、C1-36 と Ca-41 を 10 と分析されており、正常に分析されていることが わかる。

次に、Y-90 を 100、Tc-99 を 30、Sb-125 を 30、Pm-146 を 50、Sm-151 を 20 とし、他の核種 を 1 として仮想スペクトルを作成した結果が図 3.3.1-3 と表 3.3.1-3 (左) である。複雑な 状況でも正常に分析できていることがわかる。さらに、複雑なスペクトルとして、上記の条 件から Ni-63 を 300 に、Sn-119m を 200 に、Eu-152 を 300 に、Eu-154 を 200 に設定した。 γ 線を多数放出する核種が増えているので、図 3.3.1-4 に示すように 1001~2000 チャンネルの γ線シングルス部分も、2001 チャンネル以降のγγ同時計数の2次元スペクトル部分も変化している。表3.3.1-3(右)に示すように正常に分析できている。

以上のように、y線やベータ線が増加した場合や複雑な組み合わせなど、いくつかの例について試験したが正常に動作していることが確認できた。SDM-BGG 法のコードは正常に動作していると結論した。

ただし、本コードの操作には3 GHz のクロックを持つある程度、強力な CPU を持つ PC を使う ことが望ましいことがわかった。128 GB のメモリを搭載した PC で試験を行ったが、メモリは そこまで必要でないことが判明した。また、本試験では27 インチの高解像度の PC 用モニター を用いたが、Excel ファイルの使用されているスプレッドシートの面積が大きいために、可能で あれば30 インチ以上の大きさのモニターを用いることが望ましい。また、操作の前には、その 操作が正しいか入念に確認してから操作を行うことが望ましい。この点に気をつければ簡易に 解析を行うことができ、信頼性の高いコードである。

(3) まとめ

日本分析センターが開発した SDM-BGG 法の解析コード(Excel のスプレッドシート)の内容 を確認し、コード自体の検証を行った。また、仮想的に作成したいくつかのスペクトルについ てこのコードを用いて解析を行い検証した。最終的に、これら分析法の有効性を評価し、正常 な結果を得られること確認した。 3.3.2 γ線 SDM 法のバリデーション(再委託先:大成建設)(令和2年度~令和4年度)
(1) 令和3年度までの実施内容および成果(概要)

令和2年度の実施内容は、1F 廃棄物および燃料デブリ中のγ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 て公開文献調査を行った。これは次年度以降測定に関しての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。

令和3年度においては、本研究の測定対象核種である燃料デブリ中の中重領域放射性核種は β 線、 γ 線のみを放出する β 、 γ 核種と、両方放出する β γ 核種、X線を放出する EC 核種に 大別される。我々はこれまでに、放射線測定スペクトルが複数の核種スペクトルの線形和で表 せるという第1原理を用いたスペクトル定量法(SDM法)[5]を、LSCにより測定した β 線、X 線スペクトルと、Ge 半導体検出器で測定した γ 線スペクトルに独立に適用し、その有効性を実 証してきた。これら2種類のスペクトルデータを新たに開発された SDM法(SDM-BG法)で一括 解析することにより、定量の迅速化と高精度化が図れると考えられた。

○成果

◎令和2年度成果

福島第一原子力発電所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、次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、DL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でかつ 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、実際は全ての測定にDLはあると考えた。

◎令和3年度成果

SDM 解析による C1-36 および Mn-54 の定量結果をまとめた。ここで、LSC、 γ 線スペクトル 解析結果を各々B、G で、統合解析結果を BG で表わした。 β 核種 C1-36 は B 値、 γ 核種 Mn-54 は G 値の精度が優れていた。前者より後者の精度が良いのは、両者のエネルギー分解能の違い によるものと解釈される。しかし BG 値 (SDM-BG の BG) はそれらよりも精度が勝り、 β 、 γ 両 核種への適用性から、この定量法の有効性が示された。

(2) 令和4年度実施内容および成果

① 緒言

複数の核種が混在し、それぞれの放射能量が異なり、観測したスペクトルから、カウント数の低い核種の放射能量を測定することは容易ではないとされる。そこで SDM 法を用いた解析から、そういった課題の解決に向けられることを想定される。

令和4年度は、燃料デブリ中の主要γ線放出核種Cs-137,Cs-134,Eu-152,Ba-133,Na-22(全 吸収ピークのエネルギー順)について、多重γ線検出装置を用いたシングルス測定を行った。 得られたスペクトルを放射能濃度補正とバックグラウンドの削除により合成したスペクトル を用いて TPA 法、SDM-G 法による解析を行い、対象核種の放射能量の導出を行い、定量精度、 DLの観点から、その有効性について調査した。具体的な実施内容および成果について以下に記す。

実験と解析

実験は、日本分析センターにて行い、GE 半導体検出器による既知の放射能量を持つ各核種ご とにシングルス測定を行い、6 核種のスペクトルを放射能量(試験では測定時間で調整)によ る強度調整を行い足し合わせ、バックグラウンドを差し引いた合成スペクトルを設定した。従 来型の TPA 法および SDM 法によるスペクトル解析を行い、各核種の放射能量についての定量下 限、定量精度について調査を行い、検討結果を表に記載する。

測定の条件については、 測定装置:GE半導体検出器(ORTEC 製) 測定時間(Co-60):10,000 sec

測定時間(Cs-137、Cs-134、Eu-152、Ba-133、Na-22):10 sec

3 結果と結論

Co-60 支配環境下に、放射能量が既知であり、放射能量を 1/1000 程度として、存在させた 5 核種 Cs-137、Cs-134、Eu-152、Ba-133、Na-22(全吸収ピークのエネルギー順)の解析用合成 スペクトルを図 3.3.2-1 に示す。



図 3.3.2-1 解析用スペクトル

また、解析用(合成)スペクトルを SDM 法および TPA 法を用いて、スペクトル解析により、 放射能量を求め、既知である各核種の放射能量暫定値と比較することにより、DL について各核 種ごとに比較を行った。その結果を表 3.3.2-1 に示す。

DL を放射能量 R で割ったものを DL/R として、核種ごとに TPA と SDM の比較を表 3.3.2-1 に 示す。

この結果から、SDM が優位な値を示した核種は、Cs-137、Cs-134、Eu-152、Ba-133、Na-22の5 核種(全吸収ピークのエネルギー順)で、TPA が優位な値を示した核種は、Eu-152の1 核種であった。

この比較から、SDM 法が全般的に TPA 法に比べ低い定量下限を示し、相対的に少ない放射能量の核種を測定できるため有効であると考えられる。

核種	TPA結果	SDM結果
Cs-137	0.40	0.19
Cs-134	0.62	0.12
Eu-152	0.19	0.22
Ba-133	0.31	0.18
Na-22	0.08	0.03

表 3.3.2-1 SDM 法と TPA 法の定量限界比較

(3) まとめ

燃料デブリ中のγ線放出核種について、多重γ線検出装置を用いたシングルス測定を行い、 γ線の実測スペクトルとLSC測定を行いβ線の実測スペクトルを作成し、得られたスペクトル を個別の SDM-B 法、SDM-G 法および統合した SDM-BG 法による解析を実施しその結果、SDM-B 法 または SDM-G 法による個別解析と比較して、SDM-BG 法による統合解析の方がより精度の高い定 量値を得られ、この統合解析 SDM-BG 法の有効性が示された。

また、γ線核種を対象にスペクトルを得て、2つの手法により定量下限を調査した結果、従 来法に比較して SDM 法が優位な状況であった。

以上、3カ年計画の3年目である本年度の業務項目を実施し目標を達成した。



図 3.3.2-3 TPA 法と SDM 法の解析イメージ比較

一方の TPA は全吸収ピークの解析、他方の SDM はスペクトル全体の解析の違いはあるが、 領域の違いだけなので、定量精度と DL の関係は同じと考えられ、以下の関係とした。

 $DL = F \cdot DA \cdot R / \sqrt{2}$ $F : \mathcal{T} r \mathcal{D} \mathcal{P} -$

ここで定量精度は

・TPA では、ピークの Gross count と BG count から直接求められる。

・SDM では、最小二乗法のフィッティング誤差から求められる。

TPA 法による各核種のスペクトル解析結果を表 3.3.2-2 に示す。

3	表 3.3.2-2	TPA 法による解析データ

核種	ピークエネルギー	領域	カウント数
Cs-137	661keV	A=	42237.50
		B=	41722.28
Cs-134	604keV	A=	41973.62
		B=	41646.95
Eu-152	344keV	A=	63085.09
		B=	61780.42
Ba-133	356keV	A=	61330.43
		B=	60535.60
Na-22	1274keV	A=	10138.25
		B=	8899.19

3.3.3 SDM 法のバリデーション(連携先: JAEA)(令和2年度~令和4年度)

(1) 令和3年度までの実施内容および成果(概要)

令和2年度は、本事業で新たに開発する SDM 法の有効性を評価するために、比較対象となる 従来分析法に関して過去の文献を調べ、DL について調査を行った。従来分析法として、主に環 境中およ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、IF 廃棄物中測定対象核種の分析に関する文献を調査した。調査対象とした分析手法は、γ線放出 核種に対する分析法として、主に多重γ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、β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。

その結果、環境試料や放射性廃棄物試料に含まれるγ線放出核種に対して、多重γ線検出法 の適用例を収集するとともに、β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。

これらの文献調査の結果、多重γ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γ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、β線放出核種の分析で は、液体シンチレーション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、それらの濃度もさまざまである試料に 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。

令和3年度は、本事業で新たに開発した SDM 法の有効性を評価し、バリデーションを行うた め、実測されたスペクトルデータを用いて SDM 法の解析を開始した。γ線については、本事業 で開発・整備した多重γ線検出装置を用いて、燃料デブリ中のγ線放出核種のうち線源の入手 が容易な6核種について、γ線シングルス測定および多重γ線測定を実施し、γ線シングルス スペクトルおよび多重γ線スペクトルのデータを取得した。β線については、同じ6核種につ いて LSC を用いて測定したβ線スペクトルのデータを取得した。これらのデータを用いて、新 たに開発した SDM-BG 法および SDM-BGG 法による解析を開始した。また同じデータを用いて SDM-G 法および SDM-B 法による解析も実施し、4 者の結果を比較した。異なる種類のスペクトルを 統合解析する SDM-BG 法および SDM-BGG 法は、単一のスペクトルを用いる SDM-G 法や SDM-B 法 と比較して高い定量精度を与えることが明らかになり、SDM-BG 法および SDM-BGG 法の有効性を 確認することができた。

九州大学が実施した機械学習を用いた定性分析法の開発に関する評価では、令和3年度の九 州大学の成果である新しい損失関数を用いた不確かさ評価と有意差検定をもとにした核種識 別について、核種の有無を判断する際の客観的な判断基準をどう定めるか、という問題を解決 する重要な成果であると評価した。

(2) 令和4年度実施内容および成果

令和4年度は、新たに開発した SDM-BG 法と SDM-BGG 法を、分析対象 40 核種全てに対して適用し、その有効性を評価することで、SDM 法のバリデーションを行った。SDM-BGG 法については、JAEA では4 台の Ge 半導体検出器を用いて測定される多重γ線スペクトルを解析に使用す

る SDM-BGGG 法を評価対象とした。40 核種全てが混在したスペクトルデータを作成し、SDM-B 法、SDM-G 法、SDM-GGG 法、SDM-BG 法、SDM-BGGG 法など異なる種類の SDM 法で解析してそれらの定量精度を比較・評価した。また、九州大学が実施した機械学習を用いた定性分析法の開発 とその結果について評価した。

SDM 解析法の概要

SDM 法は、複数の核種が混在したスペクトルの解析において、スペクトルの全体形状を単一 核種のスペクトルの重ね合わせで再現することで含有核種の放射能を最小二乗法によって導 出する方法である。 y線スペクトルの場合、ピークカウントだけを使用する従来法に比べて、 スペクトルの全体形状を使用するため精度の向上が期待できる。またピークが観測されない β線スペクトルやエネルギー分解能が低いシンチレーション検出器のスペクトル解析では特に 有効であると期待される。本研究では、SDM 法をさらに発展させて、 β線スペクトルと y線シ ングルススペクトル、多重 y線スペクトルなど複数の異なる種類のスペクトルを SDM 法で統合 解析する方法を新たに開発した。例えば SDM-BG 法では、放射能が未知の混合試料に対して β線スペクトルと y線シングルススペクトルの2つのデータを取得し、各々を基準スペクトルの 重ね合わせで再現するように放射能の値を決定する。このときフリーパラメータである放射能 値を2つのスペクトルの解析において共通とすることで、1 つの放射能値を導出する。SDM-BGGG 法ではさらに多重 y線スペクトルを追加し、3 種類の測定スペクトルに対して同様のフィッテ ィングを実施する。今回 JAEA では、以下の5 種類の SDM 法解析の定量精度を比較・評価した。

- 1) SDM-B法(β線スペクトルのみ使用して解析)
- 2) SDM-G法 (γ線シングルススペクトルのみ使用して解析)
- 3) SDM-GGG 法 (γ線シングルススペクトルと多重γ線スペクトルの2種類を統合解析)
- 4) SDM-BG法(β線スペクトルとγ線シングルススペクトルの2種類を統合解析)
- 5) SDM-BGGG 法 (β 線スペクトルと γ 線シングルススペクトル、多重 γ 線スペクトルの3種 類を統合解析)

SDM 解析用スペクトルデータの作成

40 核種全てに対して SDM 法を適用し評価するため、 全放射能に対して個々の核種がそれぞれ 1/100 の放射 能強度で含まれる線源を想定し、解析データを作成し た。全体の放射能を 10 kBq とし、主成分の Cs-137 が 6 kBq、残り 39 核種がそれぞれ 100 Bq ずつ含まれる線 源を仮定し、10000 秒間測定すると仮定した。

γ線スペクトルの測定条件は、本事業で整備した 4 台の Ge 検出器を用いた多重γ線検出装置を用いて測 定するものとした。検出器と線源の配置を図 3.3.3-1 に示す。垂直型の Ge 検出器 4 台を束ねて配置し、その 中心に線源を配置した。線源の形状は U8 容器を想定 し、U8 容器がちょうど束ねた 4 台の検出器の中心に入 るように線源ホルダーを作成した。今回の測定では点 線源を使用したため、U8 容器の中心に点線源を配置し



図 3.3.3-1 多重γ線検出装置 の 4 台の Ge 検出器と線源の配 置

て測定した。検出器は厚さ10 cm の鉛で遮蔽し、ルームバックグラウンドを低減した。4 台の 検出器から出力されるプリアンプ信号を、4 チャンネルの DSP (Digital Signal Processer) に入力し、検出された信号の波高値と検出時間を導出した。波高値から4 台の検出器それぞれ の y 線シングルススペクトルを作成し、検出時間から y 線の同時計数関係を判定して、2 次元 の多重 y 線スペクトルを作成した。SDM 法の解析では、 y 線シングルススペクトルは特定の 1 台の検出器のみのデータを使用し、多重 y 線スペクトルはあらゆる 2 台の検出器の組み合わせ に関する同時計数データを加算して一つの多重 y 線スペクトルを作成して使用した。

分析対象 40 核種のうち、Ge 検出器を用いて γ線を観測できる核種は 17 核種ある。入手でき る線源の制約から、17 核種全てについて γ線スペクトルを実測することができないため、シミ ュレーション計算によりスペクトルを作成した。シミュレーション計算は新潟大学が担当した。 詳細は 3.2.2 項に記載されているが、前述した多重 γ線検出装置を用いて、線源のある 6 核種 について γ線シングルススペクトルおよび多重 γ線スペクトルを実測し、それらのスペクトル を再現するようにシミュレーション計算のパラメータを微調整した。再現精度は非常に高かっ たため、SDM 解析に使用する基準スペクトルは、17 核種全てについてシミュレーション計算で 作成したスペクトルを使用した。

β線スペクトルについては、日本分析センターが依頼して測定した LSC を用いて測定したス ペクトルおよび測定条件を使用した。β線スペクトルは線源が入手できた 19 核種に対して測 定した。これら 19 核種については実測されたβ線スペクトルを基準スペクトルとして SDM 解 析に使用した。実測できなかった 21 核種については、シミュレーション計算と応答関数を用 いたコンボルーション法によりエネルギースペクトルを作成し、基準スペクトルとした。シミ ュレーション計算は新潟大学が、コンボルーション法については日本分析センターが担当した ため、それらの詳細は 3.2.2, 3.2.1 項に詳しく記載されている。なお、LSC はβ線だけでなく γ線に対しても感度があるため、β線を放出しない核種についてもスペクトルを測定できる。 したがってβ線スペクトルについては、40 核種全てについて基準スペクトルを準備した。 表 3.3.3-1 に、基準スペクトルを作成した核種の一覧を示す。

分析対象 40 核種 (β線基	H-3, Cl-36, Ca-41, Mn-54, Fe-55, Co-60, Ni-63, Kr-85, Sr-90,
準スペクトルを作成した	Y-90, Zr-93, Tc-99, Ru-106, Rh-106, Ag-110, Ag-110m, Cd-113m,
核種)	Sn-119m, Sn-121, Sn-121m, Sn-126(Sb-126,126m 含む), Sb-125,
	Sb-126, Te-125m, I-129, Cs-134, Cs-137, Ba-133, Ce-144(娘核
	Pr-144,144m 含む), Pm-146, Pm-147, Sm-151, Eu-152, Eu-154,
	Eu-155, Gd-153 (40 核種)
実測によりβ線基準スペ	H-3, C1-36, Ca-41, Mn-54, Fe-55, Co-60, Ni-63, Sr-90, Y-90,
クトルを作成した核種	Tc-99, Ru-106, Sn-121, Sn-126, Sb-125, I-129, Cs-134, Cs-137,
	Ba-133, Eu-152 (19 核種)
γ線基準スペクトルを作	Mn-54, Co-60, Rh-106, Ag-110m, Sn-126(Sb-126,126m 含む), Sb-
成した核種	125, Sb-126, Te-125m, Cs-134, Cs-137, Ba-133, Ce-144(娘核 Pr-
	144,144m 含む), Pm-146, Eu-152, Eu-154, Eu-155, Gd-153
	(21 核種)

表 3.3.3-1 基準スペクトルを作成した核種の一覧

このようにして作成した個々の基準スペクトルに対して、乱数を用いて統計変動を加えたのち、前述の放射能割合で40核種全てのスペクトルを加算して、SDM解析に使用するスペクトル

を作成した。スペクトルのエネルギー範囲はβ線とγ線についてはどちらも 0~2000 keV とし、 スペクトルのチャンネル数は、β線スペクトル 1000 ch、γ線シングルススペクトル 1000 ch、 多重γ線スペクトル 250 ch×250 ch = 62500 chとした。解析に使用した 40 核種混合のβ線 スペクトル、γ線シングルススペクトル、多重γ線スペクトルを図 3.3.3-2 に示す。



図 3.3.3-2 SDM 解析に使用した 40 核種混合スペクトル(左上:γ線シングルススペクトル、右上:β線スペクトル、下:多重γ線スペクトル)

③ 解析結果

前節で作成したスペクトルに対して実施した SDM 法の解析結果を図 3.3.3-3 から図 3.3.3-5 に示す。混合スペクトルに含まれる放射能の入力値(Cs-137:6 kBq、その他 39 核種:100 Bq) に対して、最小二乗法によって導出された各核種の放射能の出力値およびその不確かさを、入力値に対する比の値としてプロットした。

図 3.3.3-3 には、β線スペクトルを解析に使用する SDM-B 法、SDM-BG 法、SDM-BGGG 法の 3 種類の解析結果を示した。40 核種全てについて結果をプロットし、Ge 検出器でγ線が観測できる 17 核種を青色で示した。図 3.3.3-4 および図 3.3.3-5 には、SDM-B 法、SDM-G 法、SDM-GGG 法、SDM-BG 法、SDM-BGGG 法の 5 種類の解析結果を、Ge 検出器でγ線が観測できる 17 核種の結果のみを抽出して示した。

各 SDM 解析で得られた(出力値)/(入力値)の値の荷重平均とその標準偏差を表 3.3.3-2 に 示す。また標準偏差の値は、図 3.3.3-3 から図 3.3.3-5 の各結果の図中にも示した。



図 3.3.3-3 分析対象 40 核種に対する SDM-B 法、SDM-BG 法、SDM-BGGG 法の解析結果(青色 で示した核種は Ge 検出器でγ線が観測できる核種)



図 3.3.3-4 Ge 検出器でγ線が観測できる 17 核種を抽出して比較した SDM-B 法、SDM-G 法、SDM-BG 法の解析結果

3.3.3-6 - 86 -



図 3.3.3-5 Ge 検出器でγ線が観測できる 17 核種を抽出して比較した SDM-G 法、SDM-GGG 法の解析結果

3.3.3-7 - 87 -

	(出力値)/(入力値)の荷重平均	(出力値)/ (入力値)の標準偏差
SDM-B法 (40 核種)	0.9961	0.0045
SDM-BG 法 (40 核種)	0. 9963	0.0011
SDM-BGGG 法(40 核種)	0. 9996	0.0002
SDM-B法 (γ17核種)	1.1314	0. 0182
SDM-G法 (γ17核種)	1.0032	0. 0006
SDM-GGG 法 (γ17 核種)	0. 9995	0. 0003
SDM-BG 法 (γ17 核種)	0. 9958	0.0011
SDM-BGGG 法(γ17 核種)	0. 9996	0. 0002

表 3.3.3-2 各 SDM 解析で得られた(出力値)/(入力値)の値の荷重平均と標準偏差

④ 考察

最初に、Ge 検出器でγ線が観測できる 17 核種について各 SDM 法の結果を考察する。図 3.3.3-5 に示すように SDM-G 法と SDM-GGG 法の比較では、多重γ線スペクトルを追加した後者の方が 明らかに定量精度が上がっている。標準偏差は 1/2 に減少しており、SDM-G 法で真値から大き くずれていた 2 点の結果も大きく改善している。さらにβ線スペクトルを追加した SDM-BGGG 法では、標準偏差がさらに小さくなっており、異なる種類の複数のスペクトルを使った SDM 統 合解析が極めて有効な解析手法であると評価できる。

次に、SDM-B 法と SDM-G 法および SDM-BG 法の結果を比較する。図 3.3.3-4 に示すように、真 値からのずれは SDM-B 法、SDM-G 法、SDM-BG 法の順に小さくなっている。一方で、標準偏差は SDM-BG 法の方が SDM-G 法よりも大きく、矛盾しているように見える。真値からのずれは SDM-BG 法の方が小さいが、個々の定量値の不確かさはほとんどの核種で SDM-BG 法の方が大きい。 そのため、全体としての標準偏差が大きくなっている。β線スペクトル解析における定量精度 の低さが、統合解析の結果にも影響していることが考えられる。

最後に、40 核種全てに対する SDM-B 法、SDM-BG 法、SDM-BGGG 法の結果を比較する。図 3.3.3-3 に示すように、SDM-B 法、SDM-BG 法、SDM-BGGG 法の順に定量精度が大幅に向上している。真値からのずれは明らかに改善されており、全体の標準偏差も大幅に改善されている。SDM-B 法 と SDM-BG 法の比較では、 γ 線が観測できる核種の定量精度が大幅に向上することは当然として、 γ 線が観測できない核種についても真値からのずれが大きく改善していることは興味深い。この原因は、SDM-G 法による解析で γ 線が観測できる核種の定量精度が上がるため、 β 線スペクトル中に含まれるそれらの核種の β 線スペクトルの強度も精度よく定まり、その効果によってその他の核種の β 線スペクトルの強度についても決定精度が上がるためと考えられる。統合解析の有効性を示す好例である。一方で、SDM-BG 法と SDM-BGGG 法を比較すると、真値からのずれや全体の標準偏差は SDM-BGGG 法によって大きく改善されているが、個々の定量値の不確かさについては SDM-BGGG 法の方が大きい核種が半数以上存在する。不確かさの大きい核種は γ 線が観測できない核種で、 γ 線が観測できる 17 核種については SDM-BGGG 法の方が不確かさが小さい。これは前述の SDM-B 法と SDM-BG 法の比較で考察した説明と矛盾するようにも思えるが、これについては今後より詳細な検討を行う必要がある。

⑤ 機械学習を用いた定性分析法に対する評価

九州大学が実施した機械学習を用いた定性分析法の開発とその結果について、評価を実施した。

機械学習では、解析の際に想定した全ての核種に対して何らかの推定値が得られるため、核 種の有無を判断する場合何らかの判断基準を定める必要があり、その基準をどう客観的に定め るかが問題であった。令和3年度に九州大学は、機械学習に用いる損失関数の改良を行うこと で、得られた推定値の不確かさを正確に評価できるようにし、有意差検定をもとにした核種識 別を可能にした。この改良によって核種識別性能を定量的に比較・評価できるようになり、核 種の有無を判断する際の客観的な判断基準を得られるようになった。この方法を用いて令和4 年度には、y線放出核種全 24 核種がランダムに混合したスペクトルに対して機械学習を用い た定性分析を行った。結果として、多くの核種が混合するスペクトルの解析においても、本事 業で開発した機械学習を用いた定性分析法がよく機能していることが確認され、本手法が定性 分析法として極めて有効であると評価した。

今後、機械学習による核種識別と SDM 法による定量分析を適切に組み合わせることで、分析 精度の向上と実用化への進展が期待できる。

(3) まとめ

分析対象 40 核種全てが混在した線源を想定し、その線源を測定して観測されるβ線スペクトル、γ線シングルススペクトル、多重γ線スペクトルに対して、5 種類の異なる SDM 法(SDM-B 法、SDM-G 法、SDM-GGG 法、SDM-BG 法、SDM-BGGG 法)解析を実施し、それらの定量精度を比較・評価することで、SDM 法のバリデーションを実施した。特に、異なる複数のスペクトルを統合解析する SDM-BG 法および SDM-BGGG 法の定量精度について重点的に考察し、統合解析が定量精度の向上に極めて有効であることを明らかにした。SDM-BG 法および SDM-BGGG 法によって、40 核種ほとんどについて、全放射能の 1/100 の混入率であっても、数十%以内の精度で定量できることもわかった。また、そのうちγ線が観測できる核種に限れば、数%以内の精度で定量できることもわかった。統合解析によって、個々の核種の定量値の真値からのずれと全体的な標準偏差が大きく改善することが明らかとなり、統合解析法の有効性を実証することができた。

九州大学が実施した機械学習を用いた定性分析法の開発とその結果について、評価を実施した。新しい損失関数を用いた不確かさ評価と有意差検定をもとにした核種識別により、γ線放出核種全 24 核種がランダムに混合したスペクトルに対して機械学習を用いた定性分析を行った結果について評価し、この定性分析法が極めて強力な分析法になり得ると評価した。

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4年 5月25日-26日 新潟大学との研究打合せ(@新潟大学) 7月14日 九州大学との研究打合せ(@九州大学) 8月29日 第6回福島第一廃炉国際フォーラム参加(ポスター発表) 8月30日 福島第一原子力発電所構内視察会参加 9月10日 福島第一原子力発電所の廃炉に関する技術戦略ワークショップ参加 11月 1日-2日 新潟大学との研究打合せ(@新潟大学、ハイブリッド会議) 11月 9日-10日 新潟大学との研究打合せ(@日本分析センター) 九州大学との研究打合せ(@日本分析センター) 11月18日 11月22日 再委託先、連携機関との全体会議(ウェブ会議、RS(リサーチサポ ーター) 深澤様 傍聴) 1月12日 量研機構との研究打合せ(@量研機構京都) 新潟大学との研究打合せ(@新潟大学) 2月14日

2月28日 九州大学との研究打合せ(@九州大学)

4. 結言

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γ線検出法などの最新計測 システムを整備した。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β線、X線を含 む核種ごと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 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した。

以下に、3カ年計画の最終年度である令和4年度の業務実績を述べる。

(1) γ線測定装置の整備

多重γ線検出装置について、必要な改造等を行い、γ線の高精度測定を可能にした。

(2) SDM 法に関する研究

① γ線 SDM 法開発

β、γ、X線のシングルスおよび多重γ線同時計数シミュレーション計算の高精度化を行い、 統合基準スペクトルデータベースを更新し、SDM 法解析の高精度化を果たした。LSC 測定が可能 な核種について、外注により混合溶液を調製し、β、X線スペクトルデータを取得し、SDM 法の 検証を進めた。新潟大学と協力して、統合基準スペクトルを解析する SDM-BGG 法の高度化と実証 を行った。検討の結果確立した粗化学分離スキームにおいて、各核種の定量限界を求めた。

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)

日本分析センターで得られたスペクトルデータをもとに、シミュレーション計算の高精度化 を行った。整備された多重γ線検出装置で得られた実測データを SDM 法で解析し、性能の確認と 向上を目指した。日本分析センターと協力して、SDM-BGG 法の高度化と実証を行った。

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)

令和3年度までに開発した畳み込みニューラルネットワーク(CNN)を用いたγ線核種認識技術(7核種)を発展させて、全γ線放出核種への対応を可能にし、その性能評価を行った。また、 核種認識の性能評価を行った。JAEAが実施する定性分析法と分析結果の評価に対応した。

(3) 分析法バリデーション

① SDM 法および解析結果の検証(再委託先:量研機構)

日本分析センターが開発した SDM-BGG 法のコード自体の検証を行った。また、このコードを用いて解析した結果のいくつかの例について検証した。最終的に、これら分析法の有効性を評価した。

② γ線 SDM 法のバリデーション(再委託先:大成建設)

γ線放出核種 24 核種のうち標準線源が用意できる核種について、シングルスγ線測定を行った。得られたスペクトルより、各核種の DL を求めた。

③ SDM 法のバリデーション (連携先: JAEA)

整備された多重 γ 線検出装置で得られた実測データおよび SDM 法で解析した結果に対して、 $\beta - \gamma$ データを扱う SDM-BG 法とそれに加え、 $\gamma - \gamma$ データも含めた SDM-BGG 法の分析結果のバリ デーションを行った。九州大学が実施する機械学習を用いた定性分析法とその結果について、評価を実施した。

(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。

以上、3 カ年計画の最終年度である本年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。本研 究で開発した核種分析法は、対象核種を限定することでより簡便な粗化学分離スキームに変更 が可能であるため、分析の目的に応じてより効率的な核種分析法を迅速に開発することが可能 である。また、SDM 法はスペクトル分析一般に適用できるため、今後 1F 廃炉における核種分析 のみならず幅広い計測分野への応用が期待される。

本技術を将来的に廃炉の現場で使用していくうえで、今後、公的にオーソライズされた分析法 とするためには、放射性核種濃度が既知の廃棄物試料または模擬試料を用いた妥当性確認を行 うことが必要である。また、濃度既知の適当な試料の入手が困難な場合には、濃度未知の試料を 既存の分析手法と本法とで分析を行い、得られた分析値について En スコアなどにより一致の度 合いを評価するなどの方法が考えられる。 参考文献

- [1] Geant4 ホームページ, https://geant4.web.cern.ch (参照:2023 年 3 月 1 日).
- [2] Agostinelli, S. et al., Geant4 a Simulation Toolkit, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, vol. 506, no. 3, 2003, pp.250-303.
- [3] Allison, J. et al., Geant4 Developments and Applications, IEEE Transactions on Nuclear, vol. 53, no. 1, 2006, pp. 270-278.
- [4] Allison, J. et al., Recent Development in Geant4, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, vol. 835, 2016, pp. 186-225.
- [5] Oshima M. et al., Spectral determination method and its application to γ -ray determination, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 59, 2021, pp.472-483.

This is a blank page.