

ALPS処理水海洋放出時の 測定・評価対象核種に係る検討について

2022年09月09日

TEPCO

東京電力ホールディングス株式会社

1. 概要
2. ALPS処理水等の核種分析結果について
3. インベントリ評価の状況について
4. 汚染水への移行評価について

1. 概要

- ALPS処理水中のトリチウム以外の放射性核種の特定及びその後の測定・評価の対象とする放射性核種の選定の考え方は、ALPS処理水審査会合での議論を踏まえて、7/22に認可された実施計画に、以下の通り記載。

(5) 排水管理の方法

① 排水前の分析

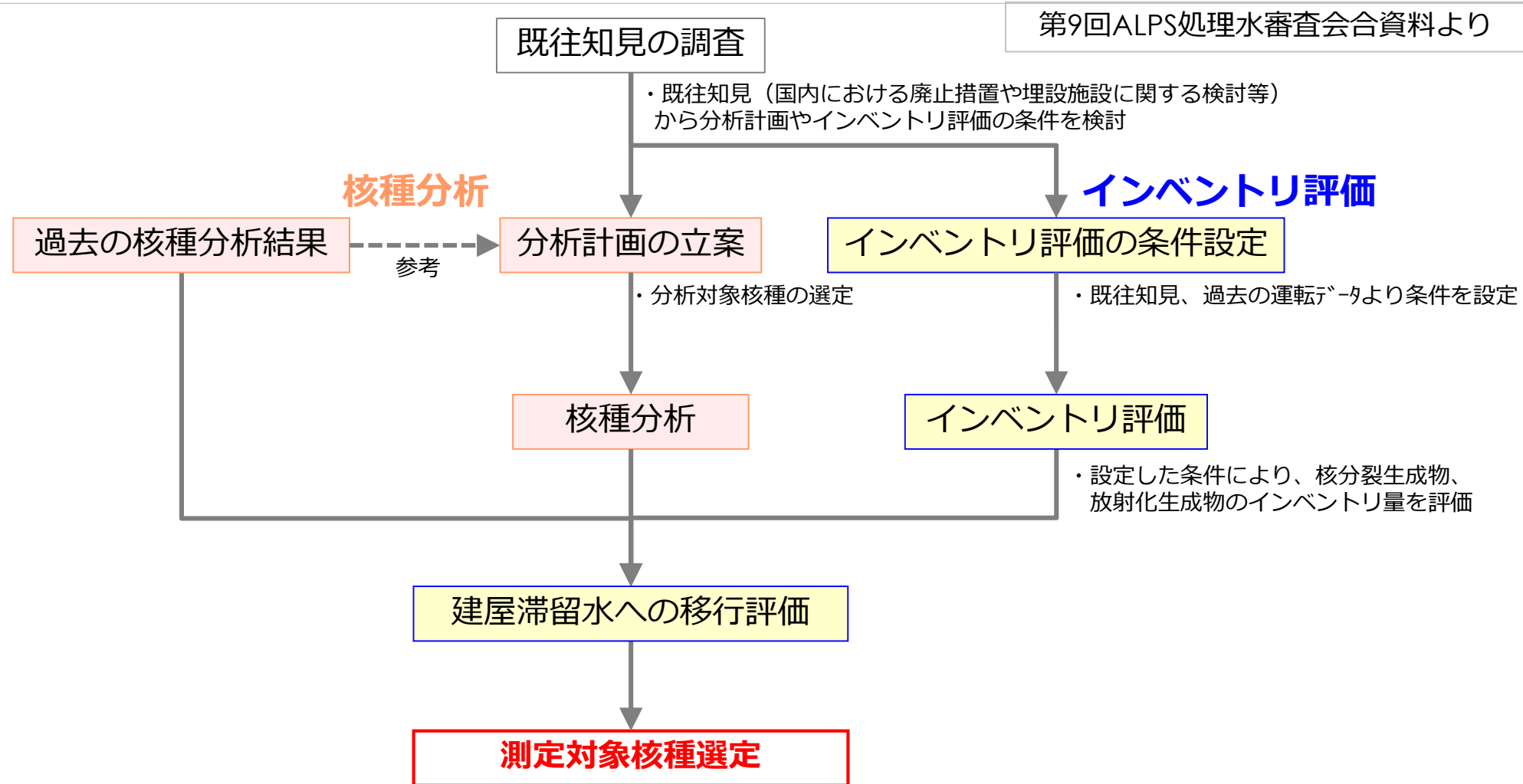
- 多核種除去設備等処理水の主要7核種に炭素14及びテクネチウム99を加えた放射能濃度の分析結果の合計値と全β測定値において、現行の64核種以外の放射性核種の存在を疑わせるようなかい離は認められていないことや、ALPS処理水を海洋放出する時点においては、十分に減衰して存在量が十分少なくなっているALPS除去対象核種も考えられること等から、トリチウム以外の放射性核種の告示濃度限度比総和1未満を満足すると考えている。
- この上で、告示濃度限度比総和1未満を満足することを確実なものとするため、国内における廃止措置や埋設施設に関する知見を踏まえ、汚染水中に有意に存在するか徹底的に検証を実施した上で、測定・評価の対象とする放射性核種を選定する。

(実施計画：Ⅲ-3-2-1-2-6～7より)

- 本資料では、ALPS処理水審査会合後の分析やインベントリ評価の進捗についてご報告する。

【参考】測定・評価対象核種の検討の全体像

- 第9回ALPS処理水審査会合において、測定・評価対象核種の検討の全体像として、既往知見の調査を元に、核種分析とインベントリ評価の2本立てで検討していくことを説明。

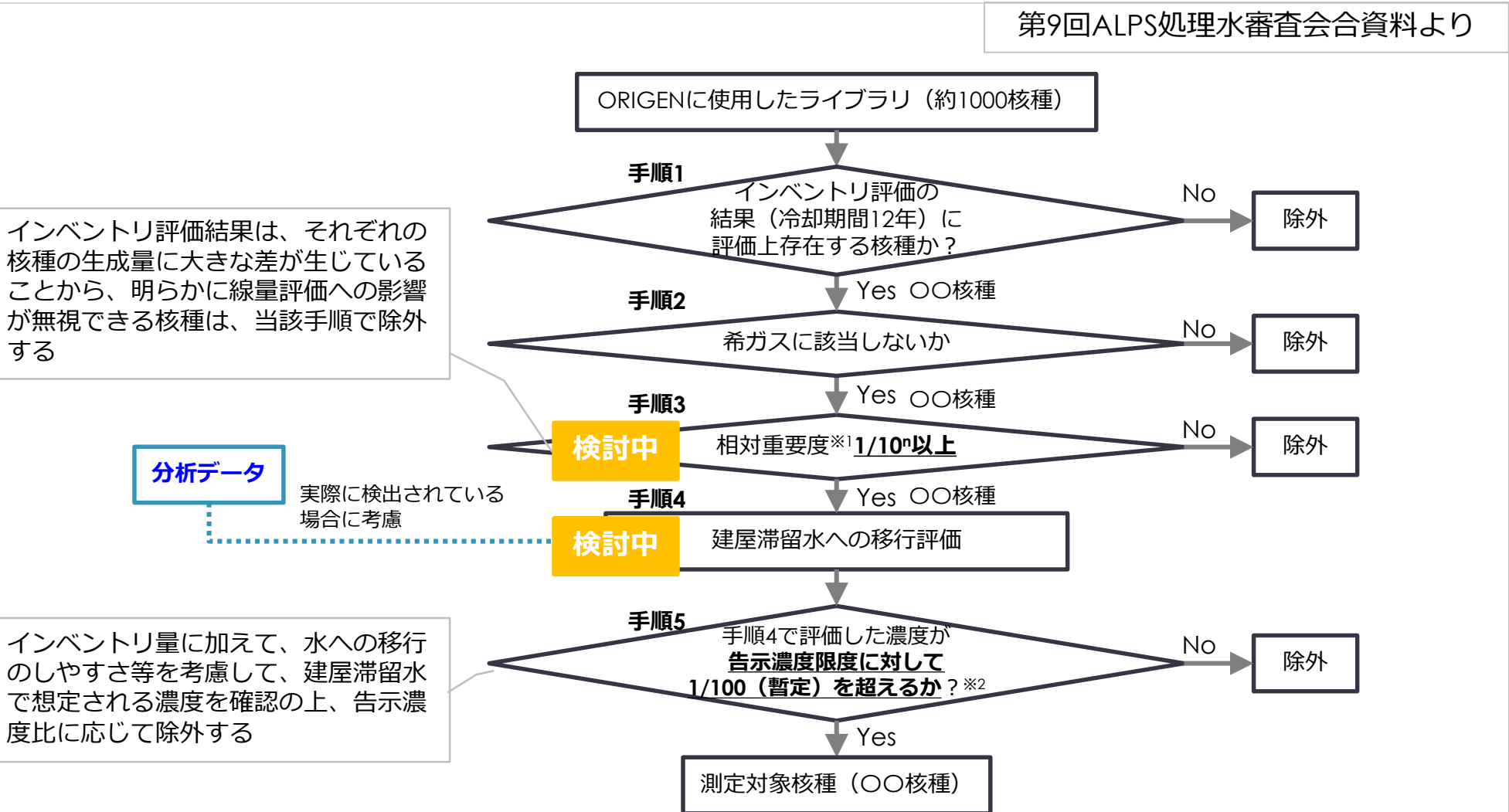


- ・ β ・ γ 核種は、告示濃度限度比を基準に測定対象核種を選定
- ・ α 核種は、全 α で測定を行うことから、全 α の結果に含まれることを確認

【参考】ALPS処理水の測定対象核種選定の考え方（案）

- また、第9回ALPS処理水審査会合では、核種分析とインベントリ評価を行った結果、下図のフローに従い核種を選定していく考え方についても説明。

第9回ALPS処理水審査会合資料より



※1：それぞれの核種のインベントリ量を告示濃度限度で除した値と、その総和に対する比により、線量評価に影響を与える核種を確認

※2：α核種は全αで測定するため、α核種の全Bq数に対して、最も厳しい告示濃度（4Bq/L）に対する比により評価する

- これまでに、EPRIとも測定・評価対象核種の検討方法を相談する中で、P4, 5で説明した核種の選定方法や選定フローは、廃止措置等で国際的に実施されている、下表の核種選定の①～④の考えと合致しているという意見を頂いている。

ロジック	内容
① プラント内に存在する放射性核種の確認	廃棄物の分析、インベントリ評価およびその他利用可能な方法を用いて、プラント内に存在する放射性核種を確認
② 短半減期の放射性核種の除外	
③ 線量影響を無視可能な放射性核種の除外	
④ 支配的な核種との比較での除外	Co-60, Sr-90, Cs-134, Cs-137などの支配的な放射性核種と比較して、非常に低濃度で存在する放射性核種の除外

2. ALPS処理水等の核種分析結果について

2.1 ALPS処理水等の核種分析結果（速報）の概要

- ALPS処理水等について、これまで当社で測定を実施しているALPS除去対象核種（62核種）、H-3、C-14、それ以外にJAEA殿及び当社で分析した20核種があるが、今回改めて廃止措置や埋設施設に関する研究において着目されている核種（下表参照）が、ALPS処理水等に有意に存在するか否か確認した（Se-79については追加分析の位置づけ）。
- Se-79とPd-107は分析中であるものの、それ以外の核種（α核種を含む）は、**ALPS処理水において、告示濃度限度比の1/100以下で検出限界値未満※であることを確認した**。※：ウランについては、天然ウランを検出

今回の分析核種（下記以外にALPS処理水等に有意に含まれる可能性のあるα核種の確認も実施）

Fe-55	Ni-59	Nb-93m	Mo-93	Sn-121m	Cl-36	Ca-41	Zr-93	Ba-133	Se-79	Pd-107
-------	-------	--------	-------	---------	-------	-------	-------	--------	-------	--------

過去に測定を実施した核種

第9回ALPS処理水審査会合資料より

核分裂生成物：56核種

Rb-86	Sr-89	Sr-90	Y-90	Y-91	Nb-95	Tc-99
Ru-103	Ru-106	Rh-103m	Rh-106	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	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	Pu-238	Pu-239	Pu-240
Pu-241	Am-241	Am-242m	Am-243	Cm-242	Cm-243	Cm-244

腐食生成物：6核種

Mn-54
Fe-59
Co-58
Co-60
Ni-63
Zn-65

左記以外の核種：2核種

H-3	C-14
-----	------

64核種以外の核種：20核種

Cl-36	Ca-41	Ni-59
Se-79	Nb-94	Mo-99
Tc-99m	Te-132	I-131
I-132	La-140	U-233
U-234	U-235	U-236
U-238	Np-237	Pu-242
Cm-245	Cm-246	

2.2 ALPS処理水等の核種分析結果（ γ ・ β 核種等）

- 告示濃度限度の1/100以下まで測定を試み、ALPS処理後においては、いずれの分析結果も告示濃度限度の1/100以下で検出限界値未満であった。
- 建屋滞留水やALPS処理前においても、ほとんどの核種で検出限界値未満であることを確認しているものの、Ni-59について告示濃度限度の約1/1000、1/5000である、 $9.4E+00$ 、 $2.2E+00$ Bq/Lで検出されている。なお、今回検出された値は非常に低濃度であること、ALPSでは同位体のNi-63を除去対象としていることから、ALPS処理水ではさらに低濃度でN.D.となっている。

核種	告示濃度限度 [Bq/L]	ALPS処理後			ALPS処理前	建屋滞留水
		K4-A10 タンク水濃度 [Bq/L]	H4-B7 タンク水濃度 [Bq/L]	増設ALPS 処理後水濃度 [Bq/L]	増設ALPS 処理前水濃度 [Bq/L]	プロセス主建屋 水濃度 [Bq/L]
		2021/11/1, 2022/1/26	2021/11/1, 2022/1/26	2021/10/28, 2022/2/10	2021/10/28, 2022/2/10	2021/11/2, 2022/2/4
Fe-55	$2.0E+03$	< $2.7E+00$	< $2.3E+00$	< $3.0E+00$	< $1.5E+01$	< $4.1E+00$
Ni-59	$1.0E+04$	< $2.3E+00$	< $6.6E+00$	< $2.3E+00$	$2.2E+00$	$9.4E+00$
Nb-93m	$7.0E+03$	< $8.6E+00$	< $1.5E+01$	< $7.8E+00$	< $5.6E+01$	< $5.2E+01$
Mo-93	$3.0E+02$	< $1.1E+00$	< $2.0E+00$	< $1.0E+00$	< $1.7E+00$	< $1.2E+00$
Sn-121m	$2.0E+03$	< $1.7E+00$	< $5.3E+00$	< $2.0E+00$	< $1.2E+01$	< $9.2E+00$
Cl-36	$9.0E+02$	< $4.2E+00$	< $5.5E+00$	< $3.9E+00$	< $3.7E+00$	< $4.3E+00$
Ca-41	$4.0E+03$	< $7.9E+00$	< $7.9E+00$	< $7.4E+00$	< $1.9E+01$	< $1.4E+01$
Zr-93	$1.0E+03$	< $8.5E-01$	< $8.5E-01$	< $8.5E-01$	< $8.5E-01$	< $8.5E-01$
Ba-133	$5.0E+02$	< $7.3E-01$	< $7.0E-01$	< $7.0E-01$	< $4.3E+00$	< $2.6E+00$
Se-79	$2.0E+02$	—※1	—※1	測定中※2	測定中※2	測定中※2
Pd-107	$2.0E+04$	—※1	—※1	測定中※2	測定中※2	測定中※2

※1：分析期間が短いためALPS処理前後とPMB滞留水の分析を計画、※2：10月末に結果取得予定

2.3 ALPS処理水等の核種分析結果（α核種）

- 告示濃度限度の1/100以下まで測定を試み、ALPS処理水ではほとんどの核種が告示濃度比の1/100以下でN.D.であったが、U-235とU-238については極微量に検出されている。ただ、これは処理の過程で重量比※¹が1.8%（使用済み燃料相当）→1.3%→0.7%（天然組成比）と変化していること等※²から、ALPS処理水もしくは、分析のための添加した試料等に含まれる天然ウランと判断。

核種	告示濃度限度 [Bq/L]	ALPS処理後			ALPS処理前	建屋滞留水
		K4-A10 タンク水濃度 [Bq/L]	H4-B7 タンク水濃度 [Bq/L]	増設ALPS 処理後水濃度 [Bq/L]	増設ALPS 処理前水濃度 [Bq/L]	プロセス主建屋水 濃度 [Bq/L]
		2021/11/1, 2022/1/26	2021/11/1, 2022/1/26	2021/10/28, 2022/2/10	2021/10/28, 2022/2/10	2021/11/2, 2022/2/4
U-233	2.0E+01	< 1.4E-02	< 1.3E-02	< 1.3E-02	< 1.3E-02	< 1.3E-02
U-234	2.0E+01	< 8.7E-03	< 8.7E-03	< 8.7E-03	< 8.7E-03	1.3E-01
U-235	2.0E+01	5.0E-05	9.9E-06	8.8E-06	2.0E-05	3.7E-03
U-236	2.0E+01	< 9.1E-05	< 9.1E-05	< 9.0E-05	1.2E-04	2.2E-02
U-238	2.0E+01	1.2E-03	2.3E-04	2.1E-04	2.3E-04	3.1E-02
Np-237	9.0E+00	< 1.5E-03	< 1.5E-03	< 1.5E-03	1.2E-02	2.1E-01
Pu-238	4.0E+00	< 1.9E-03	< 1.9E-03	< 2.5E-03	6.9E-01	4.0E+00
Pu-239+Pu-240	8.0E+00	< 1.9E-03	< 1.9E-03	< 1.9E-03	2.3E-01	1.3E+00
Pu-242	4.0E+00	< 1.9E-03	< 2.2E-03	< 1.9E-03	< 1.1E-02	< 2.1E-02
Am-241	5.0E+00	< 1.8E-03	< 1.8E-03	< 1.8E-03	1.9E-01	6.1E-01
Am-243	5.0E+00	< 1.5E-03	< 1.5E-03	< 1.5E-03	< 1.3E-02	< 2.2E-02
Cm-242	6.0E+01	< 1.5E-03	< 1.5E-03	< 1.6E-03	7.1E-03	1.2E-02
Cm-243+Cm244	1.3E+01	< 1.5E-03	< 1.5E-03	< 1.8E-03	1.6E-01	4.6E-01
Cm245+Cm246	1.0E+01	< 1.5E-03	< 4.7E-03	< 1.5E-03	< 4.7E-02	< 7.4E-02

※¹：A=λNより算出した結果（A：放射エネルギー、λ：崩壊定数、N：原子数）、※²：他に日本河川の天然ウラン濃度は平均5.0E-04Bq/L（U-238換算）であり、燃料由来のU-236が検出されていないこと

3. インベントリ評価の状況について

3.1 インベントリ評価の結果について[手順1]

- インベントリ評価を実施し、[手順1：インベントリ評価の結果（冷却期間12年）に評価上存在する核種か？]で残った核種は下表の**247核種**。生成量については現在精査中。

H-3	Ni-59	Nb-91	Ag-110	Te-125m	Pm-146	Ho-166m	Pt-190	Po-210	Ac-228	Np-236	Cm-242
Be-10	Ni-63	Nb-92	Ag-110m	Te-127	Pm-147	Tm-168	Pt-193	Po-211	Th-227	Np-237	Cm-243
C-14	Zn-65	Nb-93m	Cd-109	Te-127m	Sm-145	Tm-170	Tl-204	Po-212	Th-228	Np-238	Cm-244
Na-22	Ga-68	Nb-94	Cd-113	I-125	Sm-146	Tm-171	Tl-206	Po-213	Th-229	Np-239	Cm-245
Si-32	Ge-68	Nb-95	Cd-113m	I-129	Sm-147	Lu-176	Tl-207	Po-214	Th-230	Np-240	Cm-246
P-32	As-73	Nb-95m	In-113m	Cs-134	Sm-148	Lu-177	Tl-208	Po-215	Th-231	Np-240m	Cm-247
S-35	Se-75	Mo-93	In-115	Cs-135	Sm-149	Lu-177m	Tl-209	Po-216	Th-232	Pu-236	Cm-248
Cl-36	Se-79	Tc-95m	Sn-113	Cs-137	Sm-151	Hf-175	Pb-204	Po-218	Th-234	Pu-238	Cm-250
Ar-39	Kr-81	Tc-97	Sn-119m	Ba-133	Eu-149	Hf-182	Pb-205	At-217	Pa-231	Pu-239	Bk-249
Ar-42	Kr-83m	Tc-97m	Sn-121	Ba-137m	Eu-150	Ta-182	Pb-209	Rn-219	Pa-233	Pu-240	Bk-250
K-40	Kr-85	Tc-98	Sn-121m	La-137	Eu-152	W-181	Pb-210	Rn-220	Pa-234	Pu-241	Cf-249
K-42	Rb-83	Tc-99	Sn-123	La-138	Eu-154	W-185	Pb-211	Rn-222	Pa-234m	Pu-242	Cf-250
Ca-41	Rb-87	Ru-106	Sn-126	Ce-139	Eu-155	W-188	Pb-212	Fr-221	U-232	Pu-243	Cf-251
Ca-45	Sr-85	Rh-101	Sb-124	Ce-142	Gd-151	Re-187	Pb-214	Fr-223	U-233	Pu-244	Cf-252
Sc-46	Sr-90	Rh-102	Sb-125	Ce-144	Gd-152	Re-188	Bi-208	Ra-223	U-234	Pu-246	Cf-254
V-49	Y-88	Rh-102m	Sb-126	Pr-144	Gd-153	Os-185	Bi-210	Ra-224	U-235	Am-241	Es-254
V-50	Y-90	Rh-106	Sb-126m	Pr-144m	Tb-157	Os-194	Bi-210m	Ra-225	U-236	Am-242	
Mn-54	Y-91	Pd-107	Te-121	Nd-144	Tb-158	Ir-192	Bi-211	Ra-226	U-237	Am-242m	
Fe-55	Zr-88	Ag-108	Te-121m	Pm-143	Tb-160	Ir-192m	Bi-212	Ra-228	U-238	Am-243	
Co-58	Zr-93	Ag-108m	Te-123	Pm-144	Dy-159	Ir-194	Bi-213	Ac-225	U-240	Am-245	
Co-60	Zr-95	Ag-109m	Te-123m	Pm-145	Ho-163	Ir-194m	Bi-214	Ac-227	Np-235	Am-246	

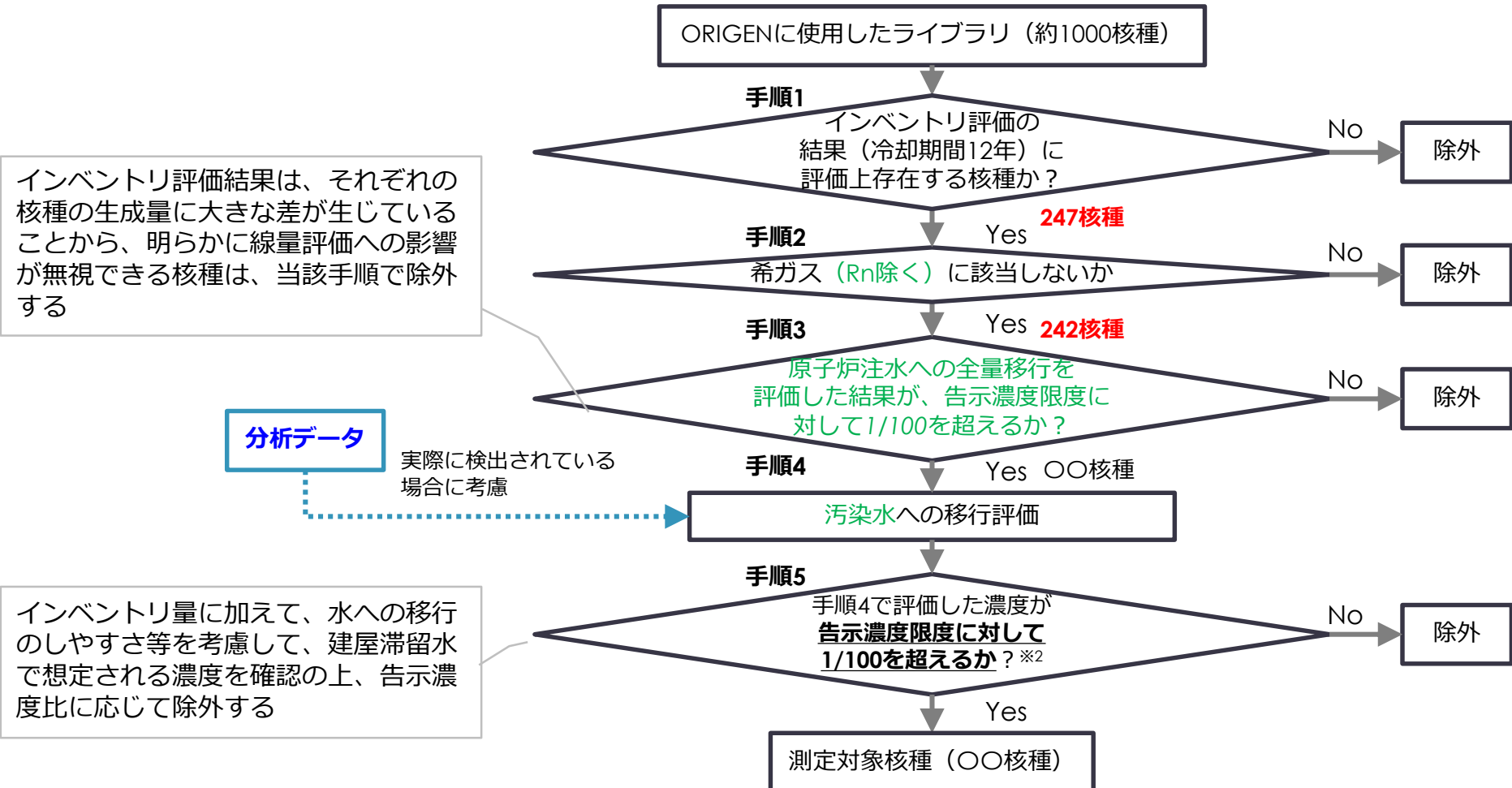
3.2 ALPS処理水の測定対象核種選定の考え方（東電案）

- 選定フローについては、審査会合時より以下の変更を計画中。

[手順2]：ウラン、プルトニウム、トリウム崩壊系列から生成と崩壊が継続されているRnを除くこと。

[手順3]：指標について、“相対重要度”から“原子炉注水への全量移行”へ変更。

[手順4]：確認する分析データを包含する文言へ変更（滞留水 ⇒ 汚染水）



※2：α核種は全αで測定するため、α核種の全Bq数に対して、最も厳しい告示濃度（4Bq/L）に対する比により評価する

3.3 [手順3]の指標について

- 従前、[手順3]の指標として、“相対重要度”を使用することを検討していた。

“相対重要度”：被ばく影響の総和に対する比により、線量評価に影響を与えない核種を除外

$$\text{相対重要度} = \frac{\text{核種 } i \text{ のインベントリ量 (Bq)}}{\text{核種 } i \text{ の告示濃度限度 (Bq/cm}^3\text{)}} \times \frac{\sum_{j=1}^{242} \text{核種 } j \text{ のインベントリ量 (Bq)}}{\sum_{j=1}^{242} \text{核種 } j \text{ の告示濃度限度 (Bq/cm}^3\text{)}} < 10^{-9} \sim 10^{-10} (\%)$$

(被ばくへの寄与率を%表示)

指標として
分かりづらい

- ただし、“相対重要度”には除外の基準がなく（見えづらい）、設定する除外基準で良いことの説明性に乏しいことから、濃度基準で告示と比較する方法への変更を検討中。
- 現在の指標としては、“原子炉注水への全量移行”を想定して、告示濃度限度の1/100未満であるかを確認の上、除外することを検討中。なお、当該指標は、PCV内に存在するインベントリが全量、これまでに実施した原子炉注水に溶けたと想定するため、現実の状況から想定すると非常に保守的な条件と考えている。

“原子炉注水への全量移行”：現在までの原子炉注水に全てのインベントリが溶けたと仮定して、放射能濃度を評価

$$\text{核種 } i \text{ の濃度} = \text{核種 } i \text{ のインベントリ量 (Bq)} \div \text{現在までの原子炉注水量 (m}^3\text{)} < \text{核種 } i \text{ の告示濃度限度} \times 1/100 \text{ (Bq/cm}^3\text{)}$$

約118万m³（～2022年8月4日）
⇒水処理週報第1報～第563報より

告示の濃度との比較が可能

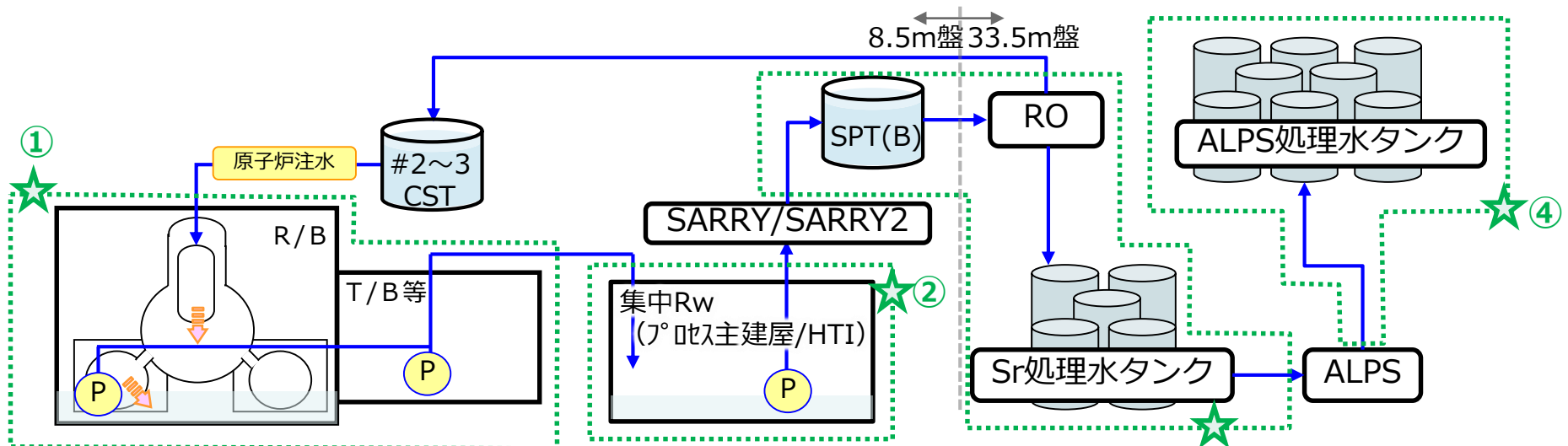
4. 汚染水への移行評価について

4.1 汚染水への移行評価の概要

- インベントリ評価の結果（燃料+放射化した炉内構造物）から、汚染水への移行を評価するに当たり、分析結果を以下4種類に分けて検討中。
- 建屋滞留水は、全て集中Rwを経由することから、No.②の分析データを基本として考えているものの、No.②だけでは全ての核種が揃わないことに加えて、分析データ数が少ない核種があることから、No.①と③のデータで補完することを検討中。

No.	評価元の分析結果	考え方
①	建屋滞留水@1~4号機	1~4号機PCV内や建屋滞留水での分析結果
②	建屋滞留水@集中Rw	集中Rw（PMB/HTI）での分析結果
③	セウム吸着設備出口～ALPS入口	セウム吸着設備出口～ALPS入口の分析結果
④	ALPS出口	ALPS処理後の分析結果

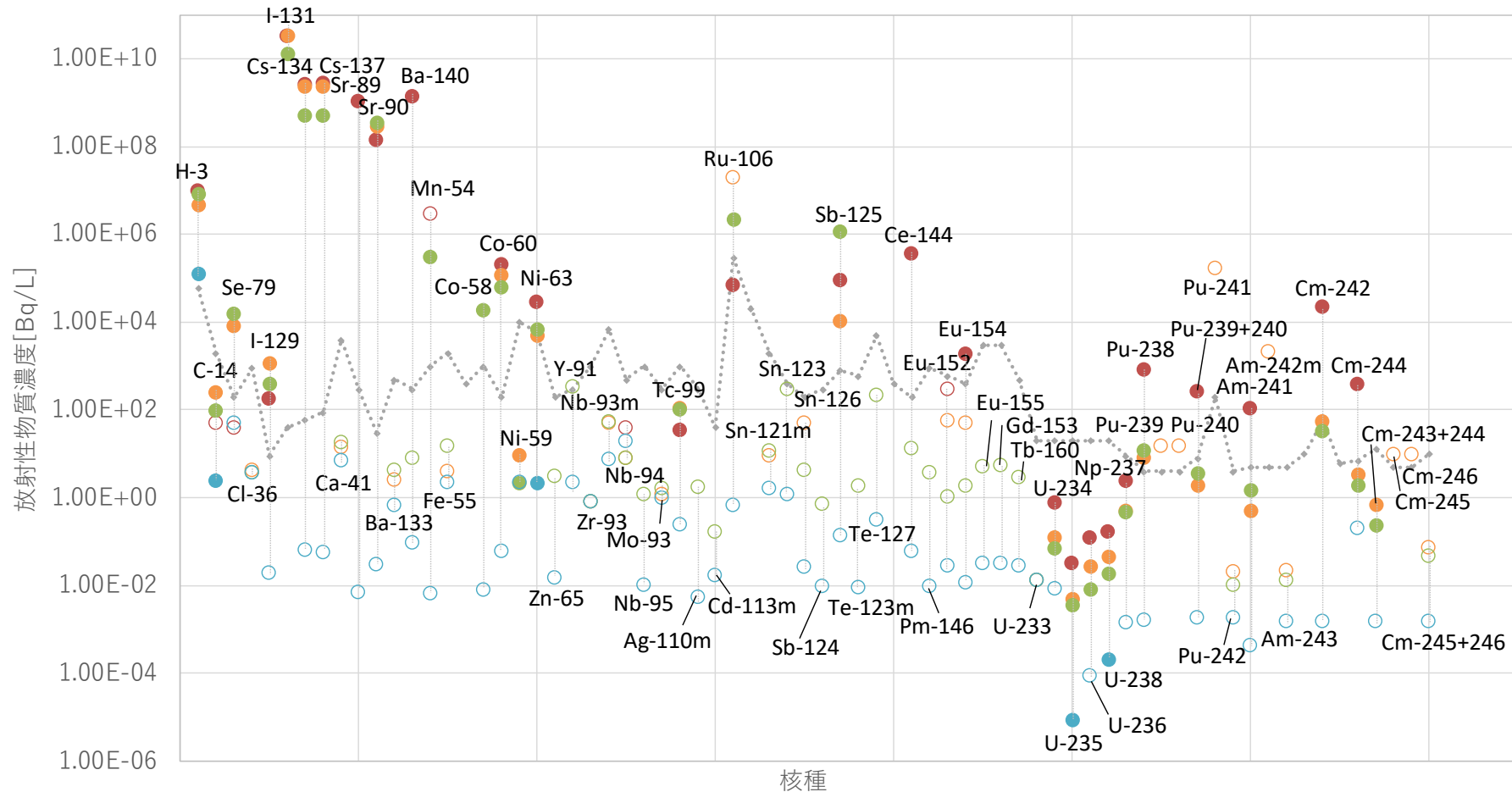
移行係数 = 検出された汚染水中の濃度※ / インベントリ量※
 ※基準日（2011.3.11を想定）を合わせた濃度/インベントリ量で評価することを計画



4.2 分析結果まとめ

- 前頁の4つに分類した分析結果を、まとめて表示すると下図の通り。
- 下記グラフでは、No.①～③は検出値について2011年3月11日まで減衰補正した最大値を、不検出値について生データの最小値を記載。No.④はこれまでの分析結果の最小値を記載。

- 告示濃度限度
- 集中Rw (検出)
- 集中Rw (不検出)
- ALPS処理前 (検出)
- ALPS処理前 (不検出)
- 1~4号機 (検出)
- 1~4号機 (不検出)
- ALPS処理後 (検出)
- ALPS処理後 (不検出)



※：La-140は半減期が短く（1.68日）、分析で確認された2011年4月上旬でも、主にBa-140から生成されているため未記載。

【参考】分析データ数（1/4）

- 前頁のデータは、JAEAが公開しているFRAnDLiのデータ（東電公表分含む）の他、ALPS性能確認時等の62核種分析（2013年度～2022年度）、処理水ポータルで公開しているALPS処理前後のデータ及び、ALPS処理水等貯留タンクのデータを使用（N.D.となっていて数字がないデータは含まず）。

核種	① 1～4号機		②集中Rw		③ALPS処理前		④ALPS処理後	
	検出数	不検出数	検出数	不検出数	検出数	不検出数	検出数	不検出数
H-3	22	0	28	0	432	0	487	0
C-14	5	0	1	14	13	12	341	0
Cl-36	0	0	0	10	0	12	0	3
Ca-41	0	0	0	9	0	5	0	3
Mn-54	0	2	0	0	290	904	14	1879
Fe-55	0	0	0	1	0	1	0	3
Co-58	0	0	0	0	5	21	0	42
Co-60	20	20	27	14	1403	165	2187	145
Ni-59	0	0	1	2	1	11	0	3
Ni-63	3	10	16	5	45	48	1	54
Zn-65	0	0	0	0	0	21	0	42
Se-79	0	10	8	6	12	35	0	4
Sr-89	3	1	0	0	17	48	0	128
Sr-90	40	1	40	0	848	11	775	1007
Y-91	0	0	0	0	0	21	0	42
Zr-93	0	0	0	1	0	1	0	3
Nb-93m	0	0	0	1	0	1	0	3

【参考】分析データ数 (2/4)

核種	① 1～4号機		②集中Rw		③ALPS処理前		④ALPS処理後	
	検出数	不検出数	検出数	不検出数	検出数	不検出数	検出数	不検出数
Nb-94	0	36	0	38	0	67	0	2
Nb-95	0	0	0	0	0	21	0	42
Mo-93	0	0	0	1	0	1	0	3
Tc-99	2	3	7	14	26	221	106	792
Ru-106	1	5	0	2	972	282	1431	945
Pd-107	0	0	0	0	0	0	0	0
Ag-110m	0	0	0	0	0	21	0	42
Cd-113m	0	0	0	0	0	21	0	42
Sn-121m	0	0	0	1	0	1	0	3
Sn-123	0	0	0	0	0	21	0	42
Sn-126	0	0	0	2	0	32	0	42
Sb-124	0	0	0	0	0	21	0	42
Sb-125	9	18	10	4	1622	13	1589	789
Te-123m	0	0	0	0	0	21	0	42
Te-127	0	0	0	0	0	21	0	42
I-129	4	18	10	20	380	70	1550	290
I-131	4	0	2	14	22	21	0	0
Cs-134	190	0	260	0	1268	240	364	2020
Cs-137	224	0	300	0	1755	47	1512	879
Ba-133	0	0	0	1	0	1	0	3

【参考】分析データ数 (3/4)

核種	① 1～4号機		②集中Rw		③ALPS処理前		④ALPS処理後	
	検出数	不検出数	検出数	不検出数	検出数	不検出数	検出数	不検出数
Ba-140	2	2	0	0	0	21	0	42
La-140	3	1	0	0	0	3	0	0
Ce-144	3	0	0	0	0	21	0	42
Pm-146	0	0	0	0	0	21	0	42
Eu-152	0	36	0	40	0	92	0	42
Eu-154	2	36	0	40	0	113	0	44
Eu-155	0	0	0	0	0	21	0	47
Gd-153	0	0	0	0	0	21	0	42
Tb-160	0	0	0	0	0	21	0	42
U-233	0	0	0	3	0	8	0	3
U-234	7	18	11	12	7	15	0	3
U-235	16	7	14	9	13	30	3	3
U-236	7	13	12	11	8	14	0	3
U-238	23	5	18	5	19	24	3	3
Np-237	7	0	9	4	6	9	0	3
Pu-238	17	21	22	19	16	56	0	8
Pu-239	0	0	0	1	0	0	0	0
Pu-240	0	0	0	1	0	0	0	0
Pu-239+240	12	26	12	28	10	62	0	8
Pu-241	0	0	0	1	0	0	0	0

【参考】分析データ数（4/4）

核種	① 1～4号機		②集中Rw		③ALPS処理前		④ALPS処理後	
	検出数	不検出数	検出数	不検出数	検出数	不検出数	検出数	不検出数
Pu-242	0	0	0	4	0	8	0	3
Am-241	11	26	6	35	3	58	0	7
Am-242m	0	0	0	1	0	0	0	0
Am-243	0	0	0	3	0	8	0	3
Cm-242	2	5	1	0	1	0	0	3
Cm-244	7	30	2	38	6	54	0	4
Cm-243+244	0	0	1	0	0	1	0	3
Cm-245	0	0	0	1	0	0	0	0
Cm-246	0	0	0	1	0	0	0	0
Cm-245+246	0	0	0	1	0	1	0	3