

# 福島第一原子力発電所における ストロンチウム-90分析の評価について

平成26年2月6日  
東京電力株式会社



## 1. 概要

- H25年6月採取分の港湾内海水試料のストロンチウム-90分析結果が7月下旬に判明し、ストロンチウム-90濃度が全ベータ放射能濃度を上回る状況（データの逆転）が散見されたため原因究明を実施。
- 調査の結果、データの逆転は5・6号機のホットラボの低バックグラウンドガスフロー型計数装置（LBC）でストロンチウム-90分析に偏っていることが判明した。
- 当該装置を含め、更に詳細調査を実施した。

## 2. 要因分析

- 日本原燃殿の協力をえながら、ストロンチウム-90分析のプロセスで結果に影響を与える要因として、以下の3つを抽出。

- ①分析を行う際に作成した、ストロンチウム標準液の濃度
- ②分析を行う際に作成した、イットリウム標準液の濃度
- ③イットリウム-90の計測効率

### 3. 検証結果

- 手順書通りの操作を行えば、ストロンチウム標準液もイットリウム標準液も正しく作成されることを確認。
- 福島第一の同一地下水試料から分取し各計測器で計測したところ、5・6号機LBCの計数値は環境管理棟LBCより高い値であった。
- 次に、標準線源を用いてイットリウム-90効率（ストロンチウム-90濃度を計算する際に使用する換算定数）を測定したところ、計測器導入当時の設定値よりも高いことが判明した。なお、環境管理棟の検出効率は導入当時の計数効率と同等であった。

|   | 5・6号機ホットラボ        | 環境管理棟             |
|---|-------------------|-------------------|
| 導入時に設定した<br>検出効率                          | 47.9%<br>(H15.12) | 48.8%<br>(H19.12) |
| 現在の設定値<br>(H26.1)                         | 同上                | 同上                |
| 今回標準線源で<br>確認したあるべき<br>検出効率※<br>(H26.1確認) | 60.4%             | 49.8%             |
|   | 60.5%             | 51.2%             |
|   | 59.1%             | 49.0%             |
|   | 61.7%             | 49.3%             |

※ 確認値は3回の平均値

### 4. 低いLBC効率を使用していた原因

5・6号機LBCのイットリウム-90の効率測定に関係した者への聞き取り調査を実施し、本件の原因に直接係わる点として以下を確認した。

- LBCのイットリウム-90効率の評価は、当時定めた手順で実施していた。
- 効率測定を行った結果、「ストロンチウム-90+イットリウム-90」の値が旧式同型装置に比べて低かったため、同じ試料とあわせてイットリウム-90を再度測定したところ、イットリウム-90については低い値となった。  
\* 3種類の試料に対する効率測定を行う（「ストロンチウム-89」、「ストロンチウム-90+イットリウム-90」、「イットリウム-90」）。このうちの「ストロンチウム-90+イットリウム-90」の値が低かった。
- その後、イットリウム-90について再測定を2回実施し、計4回実施した測定のうち3回目と4回目が同程度の値だったため、4回目の値を同装置の効率として採用。
- 旧装置と同型の当該計測器で得たイットリウム-90の効率は旧装置より低いものだったが、当時、当該機器固有の特性として効率が低い装置と考えた。
- 4回の測定で効率が70~50%と評価されたが、効率にばらつきがある原因について、当時は更に考察を行うことについて考えが至らなかった。

## 5. 過去の分析結果に対する影響

- 当該計測装置を使用して震災以前に分析した放射性廃棄物（全755試料）のうち、ストロンチウム-90を検出したのは1件のみ（H16年1月採取の1、2号機共用排気筒試料\*）。  
※ストロンチウム-90分析値： $1.4E-10\text{Bq/cm}^3$
- その他は全て検出限界未満で影響なし。
- 検出した1件は関係箇所に報告し記録を訂正する。

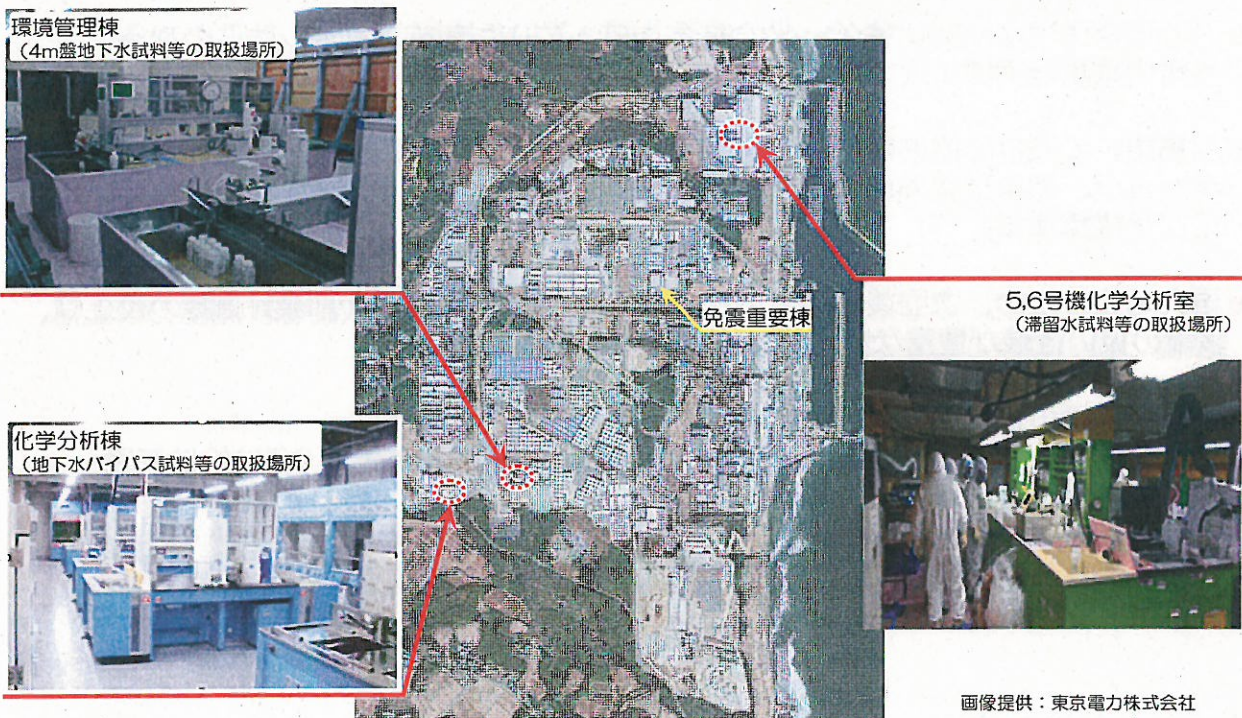
## 6. 今後の対応

- ストロンチウム-90が全ベータの値を上回っていた原因が判明したことから、分析の確定を中断していた試料について、速やかに確定作業を再開する。
- 福島第一における放射能分析の品質向上として、定期的に所内分析室間クロスチェック、および社外機関クロスチェックを実施し、分析品質が維持されていることを確認する。
- 再発防止のため、次回装置導入より、納入時の化学分析用放射線計測器の校正は、装置の扱い経験が豊富な計測器メーカーにて実施する。
- 当該装置での分析は以下の扱いとする。
  - ・5・6号機LBCは、再校正を行うまでの間はストロンチウム-90分析に使用しない。
  - ・当該機器で分析した試料はピコベータで再分析を実施する。
  - ・分析員の力量によるばらつきが小さい分析方法の導入を検討する。

<参考>5,6号機ホットラボの低バックグラウンドガスフロー型計数装置に係る時系列

| 時期          | 事象  |
|-------------|---|
| 平成15年8月     | 当該計測器納入   |
| 平成15年9月～12月 | 当該計測器の校正実施  |
| 平成23年3月     | 被災により当該機器使用停止   |
| 平成24年1月     | 当該機器のメーカー点検実施   |
| 平成24年10月    | 当該機器を用いたストロンチウム分析を再開  |
| 平成25年7月     | 福島第一港湾内海水ストロンチウム-90濃度と全ベータ放射能濃度の関係に従来と異なる傾向を確認したためデータ確定作業を中断し、当該試料の再分析を実施 |
| 平成25年8月     | 再分析試料および7月採取分の試料も前回分析と同様の傾向を示したためストロンチウム-90分析の妥当性検証開始                     |
| 平成25年9月     | ベータ核種分析装置運用開始   |
| 平成26年1月     | 当該機器のイットリウム-90効率が平成15年当時よりも高いことが判明  |

<参考>福島第一原子力発電所内の分析室



提供：日本スペースイメージング（株）、(C)DigitalGlobe

画像提供：東京電力株式会社

＜参考資料＞  
平成 26 年 2 月 5 日  
東京電力株式会社  
福島第一原子力発電所

## 福島第一原子力発電所におけるストロンチウム-90 分析の評価について

### 1. はじめに

福島第一原子力発電所（以下、福島第一）におけるストロンチウム-90（純ベータ線放出核種）の放射能濃度測定には、低バックグラウンドガスフロー計数装置（以下、LBC）を用いてきた。平成 25 年 7 月末、福島第一港湾内海水試料のストロンチウム-90 の LBC 分析結果について、全ベータ放射能濃度を上回る状況が散見されたため、その原因調査を進めてきた。今般その結果がまとまったことから原因および今後の対応について報告する。

### 2. 経緯

平成 25 年 6 月以降から対応中の 1-4 号機タービン東側護岸からの汚染水の海洋流出に関連して、1-4 号機取水口近傍開渠などの海水の監視強化を実施している。その際、『放射能測定シリーズ 1 全ベータ放射能測定法』（以下、『文部科学省マニュアル』）の記載を参考に、簡便かつ迅速に分析可能な全ベータ放射能の挙動で護岸付近の放射能濃度傾向を監視するとともに、環境への影響評価を行うためのストロンチウム-90 分析は 1 回/月の頻度で実施してきた。平成 25 年 6 月に採取した港湾内海水試料について福島第一にてストロンチウム-90 分析を実施したところ、5 月以前より実施してきた社外機関等での分析結果とは明らかに異なる割合で全ベータ放射能を上回る濃度を示していることが 7 月 24 日に判明した。8 月下旬、当該試料の再分析結果や翌 7 月採取の港湾内海水試料の分析結果についても同様の傾向が認められた。全ベータ放射能測定で得られる放射能濃度にはある程度のばらつきがあるため、放射能濃度比（ストロンチウム-90/全ベータ放射能）が常に一定となるわけではないが、これまでの傾向とは異なることから、ストロンチウム分析の妥当性について調査を開始した。

（添付資料-1）

### 3. 要因分析

日本原燃殿のご協力により、ストロンチウム-90 および全ベータ放射能分析手法について要因分析図案を平成 25 年 8 月に作成した。これをふまえて実際の分析手順において生じる分析値の変動要因を抽出し、本件（放射能濃度比が従来傾向と異なる件）の背後要因となりうる以下の項目について、検証試験計画を作成した。

- (1) ストロンチウム標準濃度
- (2) イットリウム標準濃度
- (3) イットリウム-90 効率

放射能比の傾向が変動する場合は、「測定値のばらつき」よりも「測定値の偏り」が影響していると考えことから、クロスコンタミネーションや計測装置自体の汚染といった偶然誤差、計測試料や担体量の取り違い、計測試料の乾燥不足といった過失誤差は要因外と考えた。しかしながら、これら誤差の影響の有無を確認するため、同一試料の再分析を実施した。

再分析結果は初回分析と概ね一致したことから、偶然誤差、過失誤差を除外することとした。

（添付資料-2, 3, 4, 5）

#### 4. 検証試験方法および結果

上記3項の検証試験の結果から、以下の結論を得た。

##### [ストロンチウム-90 分析検証結果]

5, 6 号機ホットラボにて実施しているストロンチウム分析については、放射能計算時に用いるイットリウム-90 効率（計測器導入時に測定し現在まで継続して使用：以下、設定値）が、現状の効率よりも低い値であり、放射能濃度を3割程度過大評価していた。

##### (1) ストロンチウム標準濃度

分析過程で使用するストロンチウム標準液が適切に作成されていない場合、ストロンチウム-90 濃度を正しく計算できないことから、ストロンチウム標準液中のストロンチウム濃度を測定した。

**【結果】** 10.0mg/ml の値付に対して測定値は9.7mg/ml であり、問題はなかった。

##### (2) イットリウム標準濃度

分析過程で使用するイットリウム標準液が適切に作成されていない場合、ストロンチウム-90 濃度を正しく計算できないことから、イットリウム標準液<sup>※1</sup>中のイットリウム濃度を測定した。

<sup>※1</sup> ストロンチウム-90 濃度はストロンチウム-90 と放射平衡にあるイットリウム-90 の計測値から算出する。イットリウム標準液はイットリウム-90 の計測過程で使用する試薬である。

**【結果】** 1.00mg/ml の値付に対して測定値は0.97mg/ml であり、問題はなかった。

(添付資料-6, 7)

##### (3) イットリウム-90 効率

###### [試験-1：分析室間比較]

実際の分析試料（4m 盤地下水観測孔採取試料）を用いてイットリウム-90 計測用試料を作成し、5, 6 号機ホットラボおよび環境管理棟それぞれにて同一試料を測定し、不具合が生じている可能性のある計測器の推定を行った。

**【結果】** 計測器に設定されたイットリウム-90 効率は、5, 6 号機ホットラボの LBC が約 48.0%、環境管理棟の LBC が約 48.8%とほぼ同等である。

しかしながら、イットリウム-90 計測用試料を両方の機器で測定した結果、5, 6 号機ホットラボの LBC 計測値 (cps) は環境管理棟のそれより3割程度高い値であった。これは、検出器構造（検出器窓の有無）の違い（イットリウム-90 効率は、窓無型 [5, 6 号機ホットラボ LBC] が薄窓型 [環境管理棟 LBC] よりも高効率）からも妥当と判断された。

以上から、『現状の5, 6号機ホットラボのLBCに設定されているイットリウム-90 効率が低い（濃度を実際より高めに算出）』可能性が判明した。

(添付資料-8)

###### [試験-2：計数効率確認試験]

現状におけるイットリウム-90 効率を確認するため、ストロンチウム-90 標準試料を用いてシュウ酸イットリウム沈殿を作成し、イットリウム-90 効率を測定した。

**【結果】** 5, 6 号機ホットラボの LBC イットリウム-90 効率測定値は約 60%であり、設定値が低いことが判明した。また環境管理棟の測定値は約 49.8%であり、設定値と差異はなかった。

(添付資料-9)

試験-1 及び試験-2 の結果より、5, 6 号機ホットラボで使用している LBC の現状でのイットリウム-90 効率が低く設定されているため、ストロンチウム-90 濃度を3割程度高く算出していた。なお、環境管理棟で使用している LBC については標準試料を用いた効率確認で変化が認

められず、ストロンチウム-90 濃度の算出に問題は無かった。

## 5. 5,6号機ホットラボのLBC イットリウム-90 効率が高くなっていた原因

5,6号機ホットラボで使用していたLBCのイットリウム-90効率が、設定値よりも高くなっていた点について、効率取得に従事した者への聞き取り調査にて確認されたものは以下のとおり。

### (1) 背景

当該機器は、平成15年8月に購入した窓無型のLBCである。一般的に窓無型は薄窓型に比べて効率がいが、放射線検出部が試料に対して露出しているため試料等で汚れやすく計数が安定しない場合がある。なお、当該機器の購入前に使用していた計測器（以下、旧装置）も窓無型である。

放射性ストロンチウム分析における計数効率の取得には【ストロンチウム-89線源】、【ストロンチウム-90+イットリウム-90線源】および【イットリウム-90線源】の3種類の効率取得用線源が必要<sup>\*2</sup>である。このうち【ストロンチウム-89線源】は、核種が短半減期であることから迅速に作業を行うことが要求されるため、ストロンチウム-89とベータ線の最大エネルギーが近似しているカリウム-40（天然核種：塩化カリウム使用）で作成し、【ストロンチウム-90+イットリウム-90線源】および【イットリウム-90線源】は非密封放射性同位元素を購入し、いずれも実際の分析試料形状を模擬するべく『文部科学省マニュアル』に基づく前処理を経て同じジオメトリになるよう作成した。

ここで、【ストロンチウム-90+イットリウム-90線源】および【イットリウム-90線源】は、当時、非密封放射性同位元素を用いた線源作成ができる1,2号機ホットラボにて作成し、線源が飛散しないよう薬品（コロジオン<sup>\*3</sup>）で定着させて計測器設置場所である5,6号機ホットラボへ搬入した。福島第一でコロジオンを使用した線源作成は、当時初めてのことであった。

### (2) 効率測定

当該機器の計数効率は平成15年9月から12月にかけて当社にて測定した（協力会社への委託）。効率測定は合計4回実施しており、その経緯は以下のとおり。

#### ① 初回測定時

測定した3種類の効率のうち、【ストロンチウム-90+イットリウム-90効率】について、旧装置の同効率との間に差異があった（旧装置：約40～70%、導入装置＝当該LBC：約35～40%）。当該薬品を使用していない【ストロンチウム-89効率】の測定結果のみを採用した。

#### ② 2回目測定時

1回目の測定結果が旧装置と異なる値となった【ストロンチウム-90+イットリウム-90効率】は『薬品有り／薬品無し』2種類の試料を作成し、1回目の測定結果が旧装置とほぼ同一の値となった【イットリウム-90効率】は『薬品無し』のみ試料を作成した。

【ストロンチウム-90+イットリウム-90効率】の測定結果から、薬品有無によって効率に差異は無く、この測定値を採用した。

【イットリウム-90効率】は、得られた測定値が初回測定より低下し、かつ試料重量依存性にも差異が認められたことから、再測定することとした。

#### ③ 3回目測定時

【イットリウム-90効率】について、あらためて『薬品有り／薬品無し』2種類の試料を作成し効率を測定した。得られた測定値は2回目測定値よりさらに低下し、また測定値のばらつきが大きいことから再測定することとした。

#### ④ 4回目測定時

4回目計測前に、計測器内部清掃を実施した。

【イットリウム-90効率】について、『薬品無し』線源を再作成し効率を測定した。

得られた測定値は3回目の取得時とほぼ同等であり、計測値のばらつきも小さいことから、この測定値を採用した。

※2 この他に、機器効率の取得のため密封線源（酸化ウラン：U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>）を使用する。

※3 「コロジオン」はセルロース系の定着剤。コロジオンの使用による試料定着方法は『文部科学省マニュアル』に記載。

### 5, 6号機ホットラボ LBC の効率取得にかかる経緯まとめ

| 効率種別                      | 初回                                     | 2回目                                       | 3回目   | 4回目   |
|---------------------------|--|---|---|---|
| ストロンチウム-89                | <b>採用</b> (約 50~60%)<br>・薬品無<br>・旧装置同等 |   |   |   |
| ストロンチウム-90<br>+ イットリウム-90 | 不採用 (約 35~40%)<br>・薬品有<br>・旧装置より低い     | <b>採用</b> (約 35~50%)<br>・薬品有無混合<br>・初回と同等 |   |   |
| イットリウム-90                 | 不採用 (約 70%)<br>・薬品有<br>・旧装置同等          | 不採用 (約 60%)<br>・薬品無<br>・初回値より低い           | 不採用 (約 50%)<br>・薬品有無混合<br>・計測値ばらつき大<br>・2回目より低い | <b>採用</b> (約 50%)<br>・薬品無<br>・計測値ばらつき小<br>・3回目と同等 |

聞き取り調査による以上の経緯より、5, 6号機ホットラボ LBC の【イットリウム-90 効率】について、今回確認した効率よりも低い値を採用した原因を以下のとおり推定した。

#### 【推定原因】

- 4回にわたって実施した測定で得られた計測データから、旧装置との効率差異について「計測用線源作成時の薬品使用は効率に影響しないこと」、また「窓無型計測器は放射線検出部の汚れにより計数が安定しない場合があること」と推定したが、旧装置との効率差の直接原因は解明できなかった。このため、「当該装置の効率は旧装置と同型であるが、機器固有の特徴として効率が低い」と判断し、最終回計測で得られた効率を採用した。
- 4回の測定で得られた効率が 50%~70%とばらつきが生じた原因については、さらに考察することに考えが至らなかった。
- 効率測定作業は計測器導入時にのみ実施するものであるため不慣れな作業であり、一連の作業プロセスの中で立ち止まるには至らなかった。

## 6. 過去の分析結果に対する影響

5, 6号機ホットラボにて実施したストロンチウム-90 分析については、3割程度の過大評価であったが、数値を保守的に見積もっていることをふまえ、環境影響評価において大きな影響は無いと考える。

震災以前に分析した放射性廃棄物分析（放射性気体廃棄物：平成 15 年 11 月から平成 19 年 2 月に試料採取した 572 件、放射性液体廃棄物：平成 15 年 10 月から平成 19 年 12 月及び平成 22 年 4 月から 10 月に試料採取した 183 件）では、平成 16 年 1 月に採取した 1, 2 号機共用排気筒試料を 5, 6 号機ホットラボの当該 LBC にて計測しストロンチウム-90 を検出している実績が 1 件であった。本件については、今後、関係箇所に報告し記録の訂正を行う。



## 7. 今後の対応

今回の検証結果をふまえ、以下のとおり対応する。

### <福島第一における放射能分析の品質向上>

- ① 今後、化学分析用放射線計測器の校正は、装置の扱い経験が豊富な計測器メーカーにて実施する。

実施箇所：福島第一

実施時期：次回計測器購入時より適用（現時点では次回時期は未定）

- ② 定期的に所内分析室間クロスチェック、および社外機関クロスチェックを実施し、分析品質が維持されていることを確認する。

実施箇所：(所内分析室間チェック) 福島第一

(社外機関チェック) 本店担当箇所

実施時期：(所内分析室間チェック) 平成 26 年 2 月より実施、以降定期実施

(社外機関チェック) 平成 26 年度より定期実施

### <ストロンチウム-90 分析の信頼性向上>

- ③ 5,6 号機ホットラボの当該 LBC については、イットリウム-90 効率が機器導入当初と現状において差異があることから、再校正を行うまでの間使用を中止する。当該 LBC にて分析した試料については、ベータ核種分析装置（ピコベータ）を使用して再分析を実施する。ただし、分析に必要な試料量が残存している試料についてのみ再分析を実施することとし、既に廃棄などで存在しない試料の測定結果については関係各所と協議のうえ扱いを確定する。

実施箇所：福島第一

実施時期：(再分析データ確定) 平成 26 年 2 月中

- ④ 分析員の力量によるばらつきが小さい分析方法の導入検討を行う。

実施箇所：福島第一

実施時期：新たな分析方法の適用可否を、平成 26 年度中を目途に検討

## 8. 添付資料

- ・ 添付資料-1：『放射能測定シリーズ 1 全ベータ放射能測定法』
- ・ 添付資料-2：要因分析図（日本原燃殿協力作成）
- ・ 添付資料-3：ストロンチウム-90 分析手順における変動要因図
- ・ 添付資料-4：ストロンチウム-90 分析の変動要因および実証試験判定
- ・ 添付資料-5：偶然誤差および過失誤差の影響試験結果
- ・ 添付資料-6：ストロンチウム標準液試験結果
- ・ 添付資料-7：イットリウム標準液試験結果
- ・ 添付資料-8：4m 盤地下水観測孔試料を用いたイットリウム-90 計数率確認試験結果
- ・ 添付資料-9：ストロンチウム-90 標準試料を用いたイットリウム-90 効率確認試験結果

以上

## <参考> 全ベータ放射能分析における変動の定量評価

『文部科学省マニュアル』の全ベータ計測では、海水等塩分を含む測定試料の場合は乾固時に析出する塩分による遮へい効果や短時間計測による計測誤差（データのばらつき）が測定値に影響することが考えられる。また、懸濁物が混入している試料の場合は試料分取時に懸濁物が沈降し代表性確保が困難な場合がある。全ベータ放射能分析試料についてこれらの影響を定量的に確認するための調査を行った。調査結果は以下のとおりである。

(参考資料-1, 2, 3)

### 【調査項目および結果】

#### (1) 析出する塩分による遮へい効果

海水（ストロンチウム-90 がバックグラウンドとして含まれないと考えられる福島第一構外にて採取）および純水にストロンチウム-90 標準試料を添加して全ベータ放射能計測用試料を作成し、測定対象になる試料表面に蒸発乾固法で析出した塩分による遮へい効果を確認した。

【結果】塩分による遮へい効果は約2割であった。

(参考資料-4)

#### (2) 試料濃度および計測時間が計数誤差に与える影響

##### 【試験-1：試料濃度が計測誤差に与える影響】

放射能濃度の異なる福島第一港湾内海水試料を複数回（5回）計測し、放射能濃度による計数誤差（相対標準偏差）を比較した。

【結果】高濃度試料の相対標準偏差は約2%、低濃度試料の相対標準偏差は約8%であった。

(参考資料-5)

##### 【試験-2：計測時間が計測誤差に与える影響】

海水および純水にストロンチウム-90 標準試料を添加して全ベータ放射能計測用試料を作成した。測定時間をパラメータ（200秒計測および3000秒計測）として複数回（5回）計測し、計数誤差（相対標準偏差）を比較した。

【結果】短時間計測の相対標準偏差は最大約8%、長時間計測の相対標準偏差は最大約2%であった。

(参考資料-6)

#### (3) 懸濁物混入の影響

試料中に懸濁物が認められる地下水試料をよく攪拌し、攪拌後静置時間をパラメータ（直後、1分、3分、5分、10分）として計数率を比較した。

【結果】攪拌直後から5分静置までは、静置時間が長いほど計数率が低下し、低下率は最大2割程度であった。

(参考資料-7)

### 【評価結果】

福島第一での全ベータ放射能分析は、上記「(1) 析出する塩分による遮へい効果」に示すとおり、塩分の遮へい効果が2割程度であることが確認できた。また「(2) 試料濃度および計測時間が計数誤差に与える影響」に示すとおり、最大1割程度のばらつきの範囲で定量できていることが確認できた。

『文部科学省マニュアル』に記載があるとおおり、全ベータ放射能分析は「規則的な偏りが存在する」状況下で試料採取地点における放射能レベルを迅速かつ簡便に経時的な変動を把握することを目的とするものである。定点観測においては常に同程度の遮へい効果であり、その濃度推移の変動を把握することは可能であることから、『文科省マニュアル』の記載に照らして影響は無いと考える。

【参考資料】

- ・ 参考資料-1：要因分析図（日本原燃殿協力作成）
- ・ 参考資料-2：全ベータ放射能分析手順における変動要因図
- ・ 参考資料-3：全ベータ放射能分析の変動要因および実証試験判定
- ・ 参考資料-4：ストロンチウム-90 標準試料を用いた析出塩遮へい効果確認試験結果
- ・ 参考資料-5：全ベータ定量値の試料濃度影響比較試験結果
- ・ 参考資料-6：全ベータ定量値の計測時間影響比較試験結果
- ・ 参考資料-7：全ベータ定量値の懸濁物影響比較試験結果

以 上

添付資料-1：『放射能測定シリーズ1 全ベータ放射能測定法』

【第1章 序論】

(前 略)

考えられる目的としては、(1)核種分析などの精密な測定をすべきかどうかの判断のための材料の提供、(2)法令などに規定された基準レベルを超えたかどうか判断のための材料の提供、(3)特定対象の放射能レベルの時間的空間的な変動傾向の監視、例えば放射性廃棄物による汚染レベルがどう変動しているかを見ること、(4)環境などの放射能の推移状況の概略に関し、公衆への情報の提供などがあげられる。

(中 略)

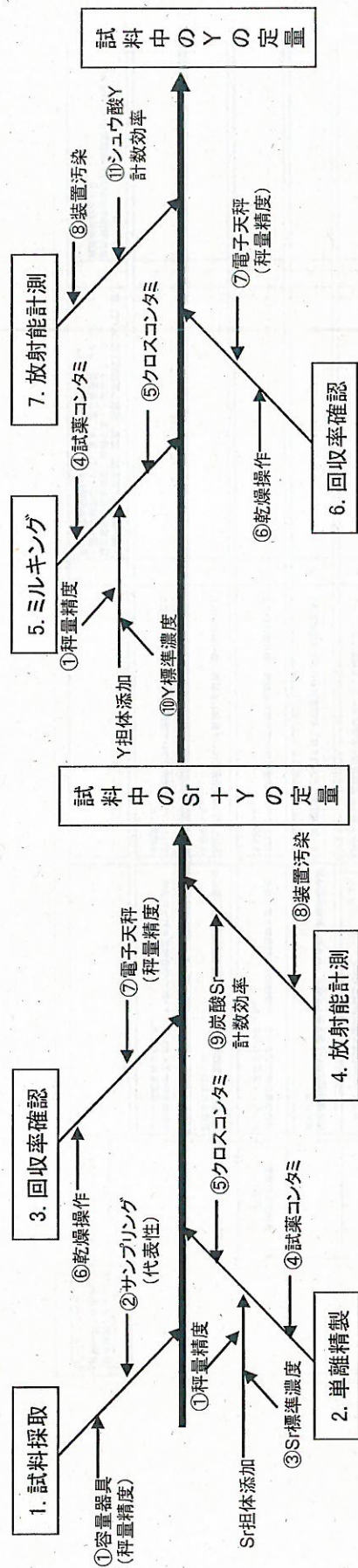
本法は簡易であることから、手順の少ないという意味で再現性または安定性の良好さが期待できる。対象物によっては得られた結果そのまま、正確な値を示さなくとも規則的な偏りが存在するならば、ある傾向を把握することができる。

(後 略)

添付資料-2：要因分析図（日本原燃協力作成）

| 事象                                  | 大項目                         | 中項目                | 小項目   | 要因   | 原因内容  | 一次判定 | 二次判定 | 調査結果                          |
|-------------------------------------|-----------------------------|--------------------|---|--|---|------|------|-------------------------------|
| 加圧水中分析において、Sf-90の注水、取込と社外機関とで相違がある。 | Sf-90分析において、取込と社外機関とで相違がある。 | 原因によるSf-90分析に誤りがある | 分析手順  | 取込手順の分析手順に誤りがあったため、正しい結果が得られなかった。                            | 取込分析手順は文部科学省マニュアルに従っており、問題ない。                   | X    | X    | 手順書は文部科学省マニュアルに準拠して作成         |
| 化学回収率                               |                             |                    | Y-90同位体試料の分取ミスにより、化学回収率が低下したため、Y-90の測定結果が低下して修正された。 | Y-90の同位体試料の分取を、前年度までのY-90回収率と同様に実施している。                      | Y-90の同位体試料の分取を、前年度までのY-90回収率と同様に実施している。         | O    | O    | 非階層型検定にてY-90の回収率を調査した結果、問題はない |
|                                     |                             |                    | 試料の精製   | 分析試料の精製工程でSf-90のクロマトグラフィーが歪じたため、Y-90の測定結果に影響が生じた（測定結果を修正した）。 | Sf-90のクロマトグラフィーによりY-90の測定結果に影響が生じた可能性がある。       | △    | X    | 同一試料の再分析結果は概ね一致した             |
|                                     |                             |                    | 放射線計測   | Y-90のマウント筒に蓋の交換が測定結果に影響を及ぼしたため、Y-90の計測が歪んでしまった。              | Y-90のマウント筒に蓋の交換が測定結果に影響を及ぼしたため、Y-90の計測が歪んでしまった。 | X    | X    | 同一試料の再分析結果は概ね一致した             |
|                                     |                             |                    | 分析結果の算定（評価）   | 放射線計測において検出限が低かったため、計測が歪んでしまった。                              | Y-90の測定結果から検出限の影響はないことを確認した。                    | X    | X    | 同一試料の再分析結果は概ね一致した             |
|                                     |                             |                    |   | 分析結果の計算において、分析試料の検出限値を誤ったため、正しく算定されなかった。                     | 2018/7/30測定分について検出限の値を誤ったことを確認した。               | X    | X    | 同一試料の再分析結果は概ね一致した             |
|                                     |                             |                    |   | 分析結果の計算において、化学回収率を誤ったため、正しく算定されなかった。                         | 2018/7/30測定分について化学回収率の値を誤ったことを確認した。             | X    | X    | 同一試料の再分析結果は概ね一致した             |
|                                     |                             |                    |   | 社外機関によるSf-90分析に誤りがある。  | -   | -    | -    | 社外機関の分析結果には問題ないとは判断し、調査対象外とする |

添付資料-3：ストロンチウム-90 分析手順における変動要因図



添付資料-4：ストロンチウム-90 分析の変動要因および実証試験判定

| 不確かさ要因       | 影響する値<br>(影響方向)                 | Sr90定量値<br>への影響 | 評価方法<br>(机上)     | 評価結果   | 実証<br>試験 |
|--------------|---------------------------------|-----------------|------------------|--|----------|
|              |                                 |                 |                  |  |          |
| ①秤量精度(容量器具)  | 所定量を採取していない                     | 試料量<br>(±)      | 手順の確認<br>使用機材の確認 | 問題なし：秤量操作は、主にJIS規格のガラス製体積計を使用しており、秤量誤差の影響は小さいと考えられる(相対誤差は0.1%程度とされる)。  | ×        |
| ②サンプリング(代表性) | 不均一性等により、サンプリングが由来していない。        | 試料量<br>(±)      | 手順の確認            | 問題なし：分析時は、ポリビンを攪拌して採取する手順となっており、代表性が確保されている。   | ×        |
| ③Sr標準濃度      | Sr標準が所定濃度となっていない。               | Sr回収率<br>(±)    | 手順の確認            | 要検証：手順では、「硝酸ストロンチウムを12.1gを秤量し、純水500mlで定容して容器保管」になっており、実際には「所定濃度(10mg/ml as Sr)」となっていないか検証する必要がある。              | ○        |
| ④試薬コンタミ      | 汚染した試薬を添加することによるコンタミ            | 計数率<br>(+)      | ブランク試験結果         | 問題なし：ブランク試料(純水)の併行分析の結果、Sr-90は未検出  | ×        |
| ⑤クロスコンタミ     | 操作やガラス器具を介してのコンタミ               | 計数率<br>(+)      | ブランク試験結果         | 問題なし：ブランク試料(純水)の併行分析の結果、Sr-90は未検出  | ×        |
| ⑥乾燥操作        | 沈殿物の乾燥操作が不十分であり、回収率を過大に評価       | 回収率<br>(+)      | 手順の確認            | 問題なし：Sr-90分析手順に準じて実施   | ×        |
| ⑦秤量精度(電子天秤)  | 沈殿物質量を正確に計量できていない。              | 回収率<br>(±)      | 手順の確認<br>使用機材の確認 | 問題なし：使用前に標準分銅による指示値確認を実施   | ×        |
| ⑧装置汚染        | 特定の試料台が汚染しており、計数率を過大評価          | 計数率<br>(+)      | 再現性確認            | 問題なし：装置の汚染はブランク試料で確認<br>試料台を変更した場合の再現性も確認済み  | ×        |
| ⑨放射Sr計数効率    | LBCIにおける放射Sr(Sr-89/90)の計数効率の不確か | 全放射能<br>(±)     | 校正記録確認<br>日常点検   | 関係なし：Sr-89定量値に関する事項である。  | ×        |
| ⑩Y標準濃度       | Y標準が所定濃度となっていない。                | Y回収率<br>(±)     | 手順の確認            | 要検証：手順では、「酸化イットリウムを0.636gを秤量し(1+1)塩酸を加えて溶解して純水500mlで定容して容器保管」になっており、実際には「所定濃度(10mg/ml as Y)」となっていないか検証する必要がある。 | ○        |
| ⑪イットリウム-90効率 | LBCIにおけるシミュレーション(Y-90)の計数効率の不確か | Y-90放射能<br>(±)  | 校正記録確認<br>日常点検   | 要検証：効率はLBCI納入時に取得した値を使用しており、効率を確認する必要はある。  | ○        |

添付資料-5：偶然誤差および過失誤差の影響試験結果

【試験条件】

- Sr-90 測定は、福島第一港湾内海水試料を発煙硝酸法による前処理の後 LBC にて 600 秒計測
- 1 回目と 2 回目は同一の前処理法および計測条件にて測定を実施
- 全  $\beta$  は試料 10mL を SUS 皿に蒸発乾固して LBC で 200 秒計測

【試験結果】

Sr-90 測定は 1 回目測定と 2 回目測定で概ね一致した。

| 試料名      | Sr-90<br>(1回目) |                 | Sr-90<br>(2回目) |                 | 全 $\beta$ |
|----------|----------------|-----------------|----------------|-----------------|-----------|
|          | Bq/mL          | Sr-90/全 $\beta$ | Bq/mL          | Sr-90/全 $\beta$ |           |
| 港湾内海水試料1 | 1.50E-01       | 0.88            | 1.37E-01       | 0.81            | 1.70E-01  |
| 港湾内海水試料2 | 2.68E-01       | 1.03            | 2.26E-01       | 0.87            | 2.60E-01  |
| 港湾内海水試料3 | 1.93E-01       | 0.62            | 1.68E-01       | 0.54            | 3.10E-01  |
| 港湾内海水試料4 | 1.98E-01       | 0.90            | 1.73E-01       | 0.79            | 2.20E-01  |



添付資料-6：ストロンチウム標準液試験結果

【試験条件】

- Sr 標準液 (Sr 担体：10.0mg/mL となるように調整) を 5000 倍に希釈
- 希釈した Sr 標準液に、0 (添加なし), 1, 2 および 3mg/L となるように調整した JCSS 標準標準液を添加して原子吸光度計で吸光度を測定

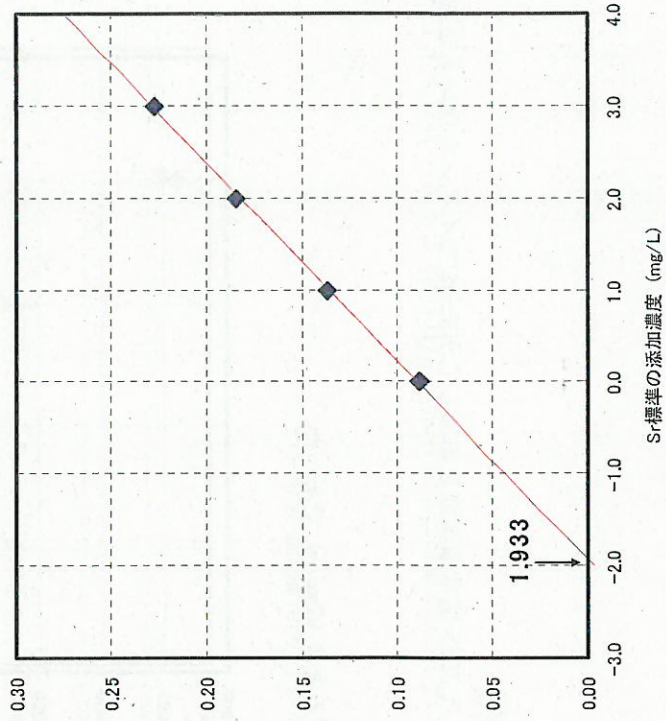
【試験結果】

- Sr 標準液の定量結果は、1.933mg/L であり、希釈倍率 (5000 倍) を乗ざると 9.7mg/mL であった。

表 Sr 標準液(Sr 担体)の濃度確認結果

| Sr 標準の添加濃度<br>(mg/L) | 吸光度<br>(-) |
|----------------------|------------|
| 0.00                 | 0.0883     |
| 1.00                 | 0.1362     |
| 2.00                 | 0.1841     |
| 3.00                 | 0.2265     |

(1) 吸光度



添付資料-7: イットリウム標準液試験結果

【試験条件】

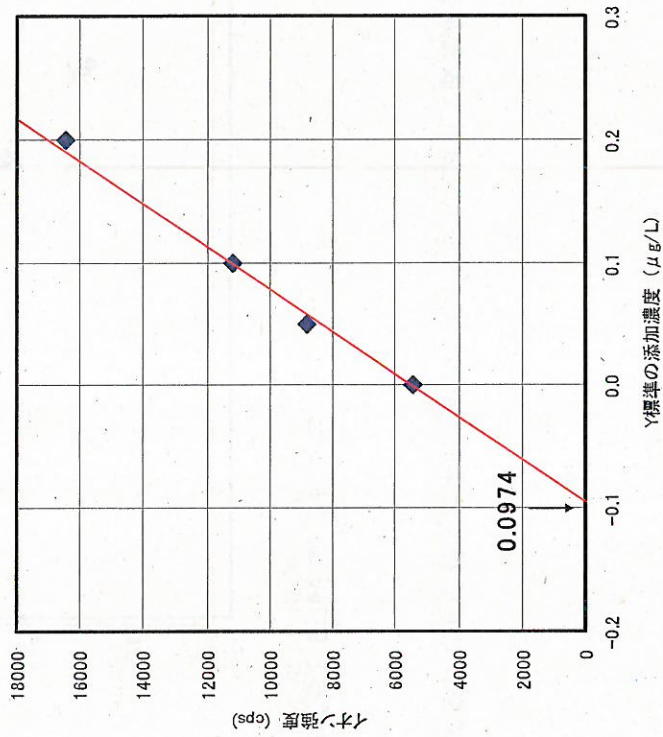
- Y 標準液 (Y 担体: 1.00mg/mL とするよう調整) を 1 千万倍 (E+07) に希釈
- 希釈した Y 標準液に, 0 (添加なし), 1, 2 および 3mg/L とするよう調整した JCSS 標準標準液を添加して ICP-MS でイオンカウントを測定

【試験結果】

- Y 標準液の定量結果は, 0.0974 $\mu$ g/L であり, 希釈倍率 (1 千万倍) を乗ざると 0.97mg/mL であった。

表 Y 標準液(Y 担体)の濃度確認結果

| Y 標準の添加濃度<br>( $\mu$ g/L) | イオンカウント<br>(cps) |
|---------------------------|------------------|
| 0.00                      | 5415.6           |
| 0.05                      | 8788.8           |
| 0.10                      | 11184            |
| 0.20                      | 16465            |



添付資料-8：4m 盤地下水観測孔試験料を用いたトリウム-90 計数率確認試験結果

【試験条件】

- 4m 盤地下水観測孔試験料 2 試験料を，環境管理棟にて Y-90 計測試験料に調整
- Y-90 計測試験料は 5, 6 号機ホットラボの LBC で計測した後，環境管理棟の LBC で計測

【試験結果】

- いずれの試験料についても 5, 6 号機ホットラボの計数率が環境管理棟を上回り，比率は約 1.3 であった。

| 試験料  | 5,6ホットラボ<br>(LBC4211) | 環境管理棟<br>(LBC4202B) | 5,6ラボ/環境管理棟※2 |
|------|-----------------------|---------------------|---------------|
|      | 計数率※1<br>(cps)        | 計数率※1<br>(cps)      |               |
| 試験料A | 4.3                   | 3.4                 | 1.26          |
| 試験料B | 3.0                   | 2.3                 | 1.30          |

※1 ミルキング時の計数率に減衰補正した値

※2 計数率の比率

添付資料-9：ストロンチウム-90 標準試料を用いたリットラム-90 効率確認試験結果

【試験条件】

- Sr-90 標準液 10.054Bq/mL を 2mL 用いて計測試料に調整 (試料数 N=3)
- 計測試料は、5,6 号機ホットラボの LBC で計測した後、環境管理棟の LBC で計測

【試験結果】

- 5,6 号機ホットラボの LBC の効率確認値は設定値よりも高い値であった。環境管理棟については設定値と確認値が一致した。

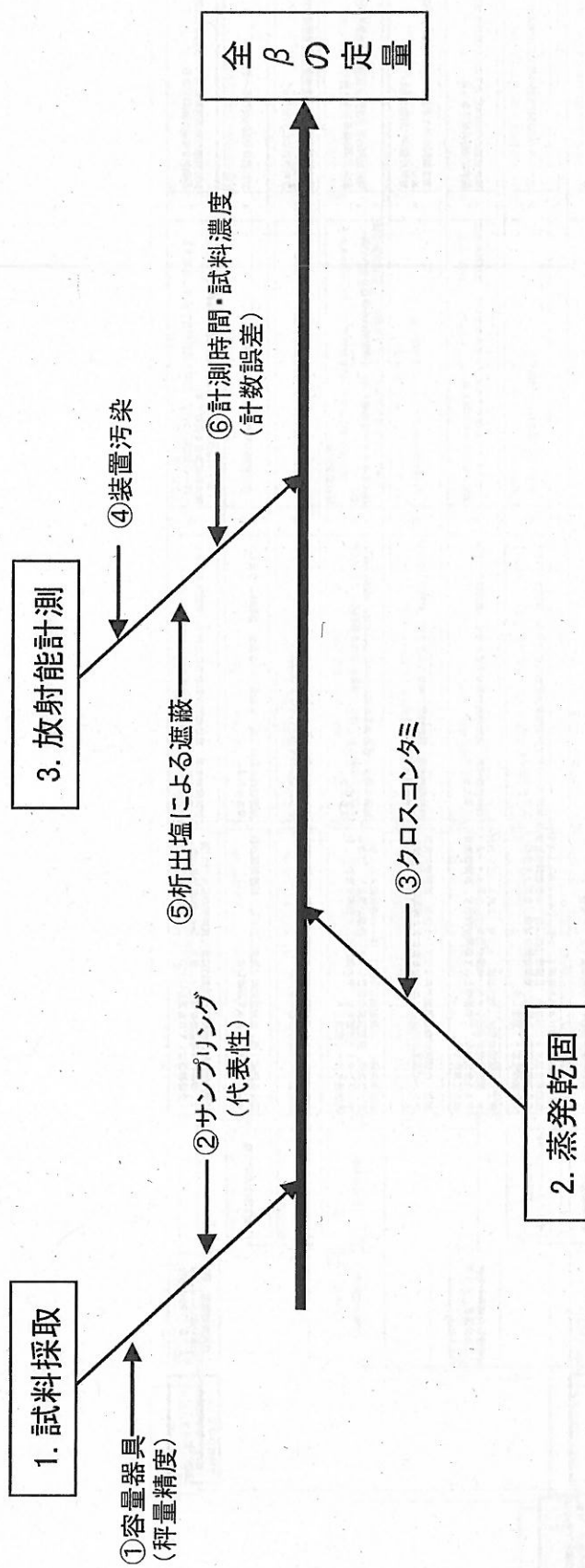
|                            | 5,6号ホットラボ<br>(LBC-4211) | 環境管理棟<br>(LBC-4202B) |       |
|----------------------------|-------------------------|----------------------|-------|
| 導入時検出効率設定値<br>(H15.12)     | 47.9%                   | 48.8%                |       |
| 今回確認した<br>検出効率※<br>(H26.1) | 60.4%                   | 49.8%                |       |
|                            | 60.5%                   |                      | 51.2% |
|                            | 59.1%                   |                      | 49.0% |
|                            | 61.7%                   | 49.3%                |       |

※ 確認値は 3 回の平均値

参考資料-1：要因分析図（日本原燃協協力作成）

|  |            |                           |                            |  |   |   |   |   |
|--|------------|---------------------------|----------------------------|--|---|---|---|---|
| 海水成分分析において、S・B（重量分析）とS・B-90の比が、産線と社分間で異なる。 | 全B測定に問題がある | 故切採取場所（ガスフローカウンタ）         | 全B測定に用いた測定器（ガスフローカウンタ）が異なる | 全B測定に異なる（原因）測定器（ガスフローカウンタ）を用いたため、測定器の個体差によりエネルギー特性が異なる。計数効率が高くなり、計測結果を誤って算出した。 | 用いた測定器は同一である。   | X | X | 全ベータ測定用計測器の計数効率はほぼ同等である                 |
|  |            | 測定した試料の形状（粗分選別、SS等）       | ガスフローカウンタの校正方法             | 測定器の校正方法が異なる。全B測定に用いた測定器（ガスフローカウンタ）のエネルギー特性が異なる。計数効率が高くなり、計測結果を誤って算出した。        | 校正方法に異なるが認めず。   | X | X | 全ベータ測定用計測器の校正には問題ない                     |
|  |            | 試料の採取                     | 試料の採取                      | 測定した試料の形状（粗分選別、SS等）が異なる。エネルギー特性が異なる。計数効率が高くなり、計測結果を誤って算出した。                    | ・アルミニウム板やアルミ箔を用いて、各試料のβ線が大エネルギーを比較する。                                     | O | O | 測定試料の射出面による誤りはない                        |
|  |            | 測定試料の作製方法                 | 測定試料の作製方法                  | 測定した試料の形状（粗分選別、SS等）が異なる。エネルギー特性が異なる。計数効率が高くなり、計測結果を誤って算出した。                    | ・Y線検出器分析によりK-40を測定する。   | X | X | 測定試料のバックグラウンド計数率は0.05cpsであり、試料計数率に影響しない |
|  |            | 測定試料の形状（径）                | 測定試料の形状（径）                 | 測定した試料の形状（径）が異なる。エネルギー特性が異なる。計数効率が高くなり、計測結果を誤って算出した。                           | ・Y線検出器分析によりK-40を測定する。   | X | X | 測定試料のバックグラウンド計数率は0.05cpsであり、試料計数率に影響しない |
|  |            | 分析結果は正しい（試料中の核種組成が実際に異なる） | 分析結果は正しい（試料中の核種組成が実際に異なる）  | 分析結果は正しい（試料中の核種組成が実際に異なる）  | ・S・B-90分析を修正した試料と今回の試料について、Y線の存在割合を比較する。同一の試料について、異なる社分間で分析比較する（クロスチェック）。 | X | X | 計測器の校正結果と全ベータ測定器の測定結果が一致している            |

参考資料-2：全ベータ放射能分析手順における変動要因図



参考資料-3：全ベータ放射能分析の変動要因および実証試験判定

| 不確かさ要因       |  | 影響する値<br>(影響方向) | 全ベータ<br>定量値<br>への影響 | 評価方法<br>(机上)     | 評価結果   | 実証<br>試験 |
|--------------|--|-----------------|---------------------|------------------|--|----------|
| ①秤量精度(容量器具)  | 所定量を採取していない。                                 | 試料量<br>(±)      | ±                   | 手順の確認<br>使用機材の確認 | 問題なし：秤量操作は、主にJIS規格のガラス製体積計を使用しており、秤量誤差の影響は小さいと考える(相対誤差は0.1%程度とされる)。  | ×        |
| ②サンプリング(代表性) | 不均一性等により、サンプリング<br>が出来ていない。                  | 試料量<br>(±)      | ±                   | 手順の確認            | 要検証：沈殿による影響を確認する。  | ○        |
| ③クロスコンタミ     | 操作やガラス器具を介してのコ<br>ンタミネーション                   | 計数率<br>(+)      | +                   | ブランク試験結果         | 問題なし：ブランク試料(純水)の併行分析の結果、全βは現出<br>限界未満  | ×        |
| ④装置汚染        | 特定の試料台が汚染しており、<br>計数率を過大評価                   | 計数率<br>(+)      | +                   | 再現性確認            | 問題なし：同一試料の分析にて再現性を確認   | ×        |
| ⑤析出塩による遮蔽    | 析出塩によりβ線が遮蔽され、<br>計数率を過小評価                   | 計数率<br>(-)      | -                   | 手順の確認            | 要検証：文科省マニュアルにも測定値に影響する因子として、<br>試料の自己吸収が挙げられている。析出する塩の影響を定<br>量的に評価する必要がある。  | ○        |
| ⑥計測時間・試料濃度   | 計数率が低く(短時間計測、低<br>濃度試料)、計数誤差(ばらつ<br>き)が大きくなる | 計数率<br>(±)      | ±                   | 計算による評価          | 要検証：計数誤差はγ(計数率/計測時間)で表され、環境管理<br>棟の3000秒計測に対して、200秒である3.6ホットラボの計数誤<br>差は3.9倍になる。また、試料濃度が10倍変化すると、計数誤差<br>は3.2倍変化する。試料濃度および計測時間によるパラッキの<br>程度を検証する。 | ○        |

参考資料-4：ストロンチウム-90 標準試料を用いた析出塩遮へい効果確認試験結果

【試験条件】

- ・ ストロンチウム-90 標準液 5.027Bq を純水および海水（どちらも 10mL）に添加して計測試料に調整（試料数 N=5）
- ・ 海水は青森県にて採取したものを使用
- ・ 計測試料は化学分析棟の LBC で計測
- ・ 海水中の全ベータ放射能濃度（バックグラウンド）は約 0.05cps であり試験条件として考慮しない

【試験結果】

- ・ 海水添加試料と純水添加試料の比は 0.8 程度であり，析出塩の遮へい効果は約 2 割であった。

|                   | 200秒計測 |          |         | 3000秒計測 |          |         |
|-------------------|--------|----------|---------|---------|----------|---------|
|                   | カウント   | 計数率(cps) | 相対標準偏差※ | カウント    | 計数率(cps) | 相対標準偏差※ |
| 純水+Sr-90(5.027Bq) | 729    | 3.6      | 4.3%    | 10867   | 3.6      | 1.3%    |
| 海水+Sr-90(5.027Bq) | 609    | 3.0      | 8.3%    | 9478    | 3.2      | 2.0%    |
| 海水/純水             | 0.84   | -        | -       | 0.87    | -        | -       |

※ 5 試料計測の標準偏差を平均値で除して算出



参考資料-5：全ベータ定量値の試料濃度影響比較試験結果

【試験条件】

- ・福島第一港湾内海水試料を蒸発乾固法にて前処理
- ・5, 6号機ホットラボ LBC で5回連続計測

【試験結果】

- ・低濃度試料は高濃度試料に比べ相対標準偏差が大き値であった。

| 試料名             | 試料C<br>(高濃度試料) | 試料D<br>(低濃度試料) |
|-----------------|----------------|----------------|
| 採取日             | 1月20日          | 1月20日          |
| 全ベータ<br>[Bq/mL] | 1回目            | 1.05E-01       |
|                 | 2回目            | 1.05E-01       |
|                 | 3回目            | 9.02E-02       |
|                 | 4回目            | 9.02E-02       |
|                 | 5回目            | 1.03E-01       |
| 平均値             | 5.95E-01       | 9.87E-02       |
| 標準偏差            | 9.95E-03       | 7.91E-03       |
| 相対標準偏差(%)       | 1.7            | 8.0            |

参考資料-6：全ベータ定量値の計測時間影響比較試験結果

【試験条件】

- ・ ストロンチウム-90 標準液 5.027Bq を純水および海水（どちらも 10mL）に添加して計測試料に調整（試料数 N=5）
- ・ 計測時間は 200 秒および 3000 秒とし、計測試料は化学分析棟の LBC で計測
- ・ 海水中の全ベータ放射能濃度（バックグラウンド）は約 0.05cps であり試験条件として考慮しない

【試験結果】

- ・ 3000 秒計測の相対標準偏差は 1~2% であるのに対し、200 秒計測の相対標準偏差は 4~8% と大きい値であった。
- ・ 海水添加試料の相対標準偏差は、純水添加試料の約 2 倍であった。

| 計測時間   | 純水+Sr-90 (5.027Bq) |      |       | 海水+Sr-90 (5.027Bq) |      |          |
|--------|--------------------|------|-------|--------------------|------|----------|
|        | 3000秒              | 200秒 | 3000秒 | 3000秒              | 200秒 | 3000秒    |
| 試料-1   | 10949              | 710  | 9356  | 3.12 cps           | 664  | 3.32 cps |
| 試料-2   | 10695              | 714  | 9481  | 3.16 cps           | 543  | 2.72 cps |
| 試料-3   | 11024              | 721  | 9785  | 3.26 cps           | 651  | 3.26 cps |
| 試料-4   | 10747              | 784  | 9465  | 3.16 cps           | 612  | 3.06 cps |
| 試料-5   | 10918              | 715  | 9302  | 3.10 cps           | 577  | 2.89 cps |
| 平均値    | 10867              | 729  | 9478  | -                  | 609  | -        |
| 相対標準偏差 | 1.3%               | 4.3% | 2.0%  | -                  | 8.3% | -        |

参考資料-7：全ベータ定量値の懸濁物影響比較試験結果

【試験条件】

- ・ 地下水試料を 0.1mL (試料 E), 0.5mL (試料 F) 分取して蒸発乾固法により前処理を実施
- ・ 計測試料は環境管理棟にて計測の LBC で計測

【試験結果】

- ・ 攪拌直後から計数率は減少し、静置 5 分以降に減少傾向が収束した。
- ・ 低下率は最大で 2 割程度

| 試料名<br>(試料量)     | 攪拌直後  | 静置1分後 | 静置3分後 | 静置5分後 | 静置10分後 | 一晚放置  |
|------------------|-------|-------|-------|-------|--------|-------|
|                  |       |       |       |       |        |       |
| 試料E<br>( 0.1mL ) | 331.4 | 317.9 | 307.0 | 300.4 | 296.3  | 267.8 |
|                  | -     | 4.1   | 7.4   | 9.3   | 10.6   | 19.2  |
| 試料F<br>( 0.5mL ) | 2.46  | 2.39  | 2.22  | 2.05  | 2.06   |       |
|                  | -     | 3.0   | 9.8   | 16.9  | 16.5   |       |

