



令和5年度

原子力機構安全研究・防災支援部門-原子力規制庁長官官房技術基盤グループ
合同研究成果報告会

東京電力福島第一原子力発電所1号機2号機共有 スタックドレン水等に含まれる放射性核種の分析

令和5年11月21日

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
安全研究・防災支援部門 規制・国際情報分析室

島田 亜佐子

本研究は原子力規制庁からの受託事業「東京電力福島第一原子力発電所プラント内核種移行に関する調査」の成果である。

試料分析に係る研究の全体像

東京電力福島第一原子力発電所事故の分析に向けた多様な試料の採取
(原子力規制庁等)

試料の調整・核種組成分析 及び結果の解釈

報告・共有
専門家との議論

- 東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会 (原子力規制委員会)
- FACE*プロジェクト (OECD/NEA)

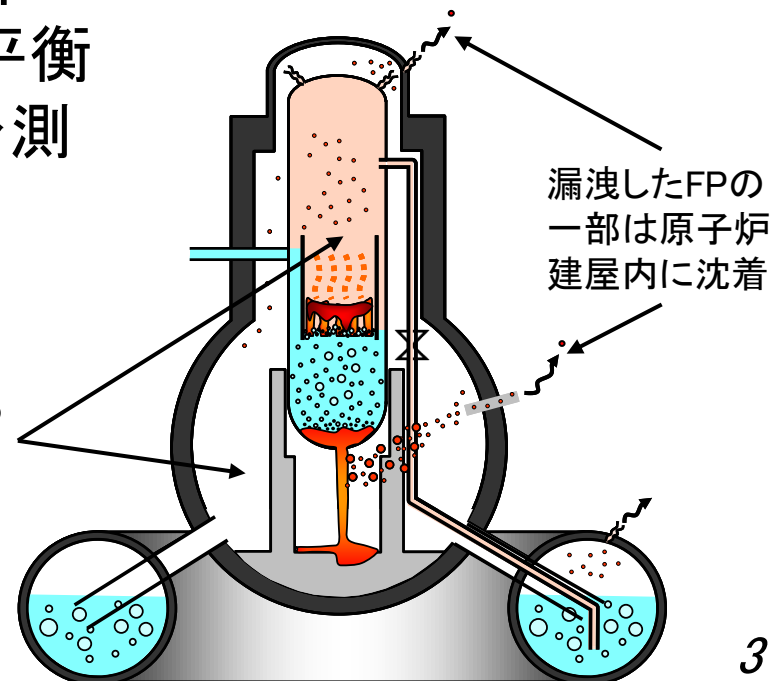
活用

- 分析結果を含む知見に基づいた事故シナリオの推定
- 追加試料の検討
- シビアアクシデント解析モデルの整備

目的

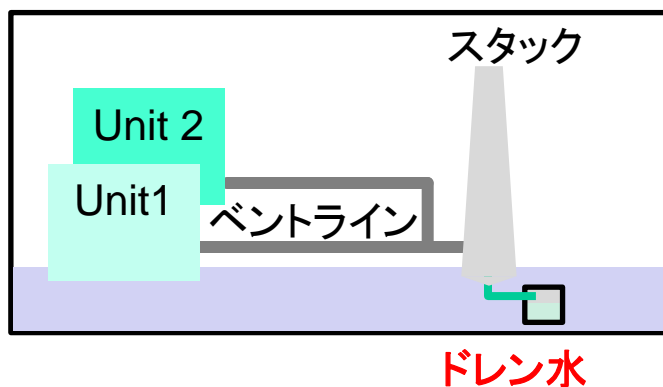
- 測定対象に応じた分析手法を確立する。
- 揮発性の高い核分裂生成物(FP)に加え、炉心損傷(燃料からのFP放出)時の雰囲気条件を推定する指標になり得るFPを分析し、核種組成を把握する。
- 炉心損傷時の雰囲気条件や燃料から放出された後の移行挙動に影響を及ぼすFP(主にCs)の化学形を推定する。
- シビアアクシデント総合解析コード(THALES2)に導入した熱化学平衡計算モデルによるCs化学形の予測性能を評価する。

炉心損傷時の雰囲気条件(H_2/H_2O や温度、FP組成)に応じてCs等は多様な化学形を形成



報告内容

(1) 1号機及び2号機共有スタック基部ドレン水試料の分析



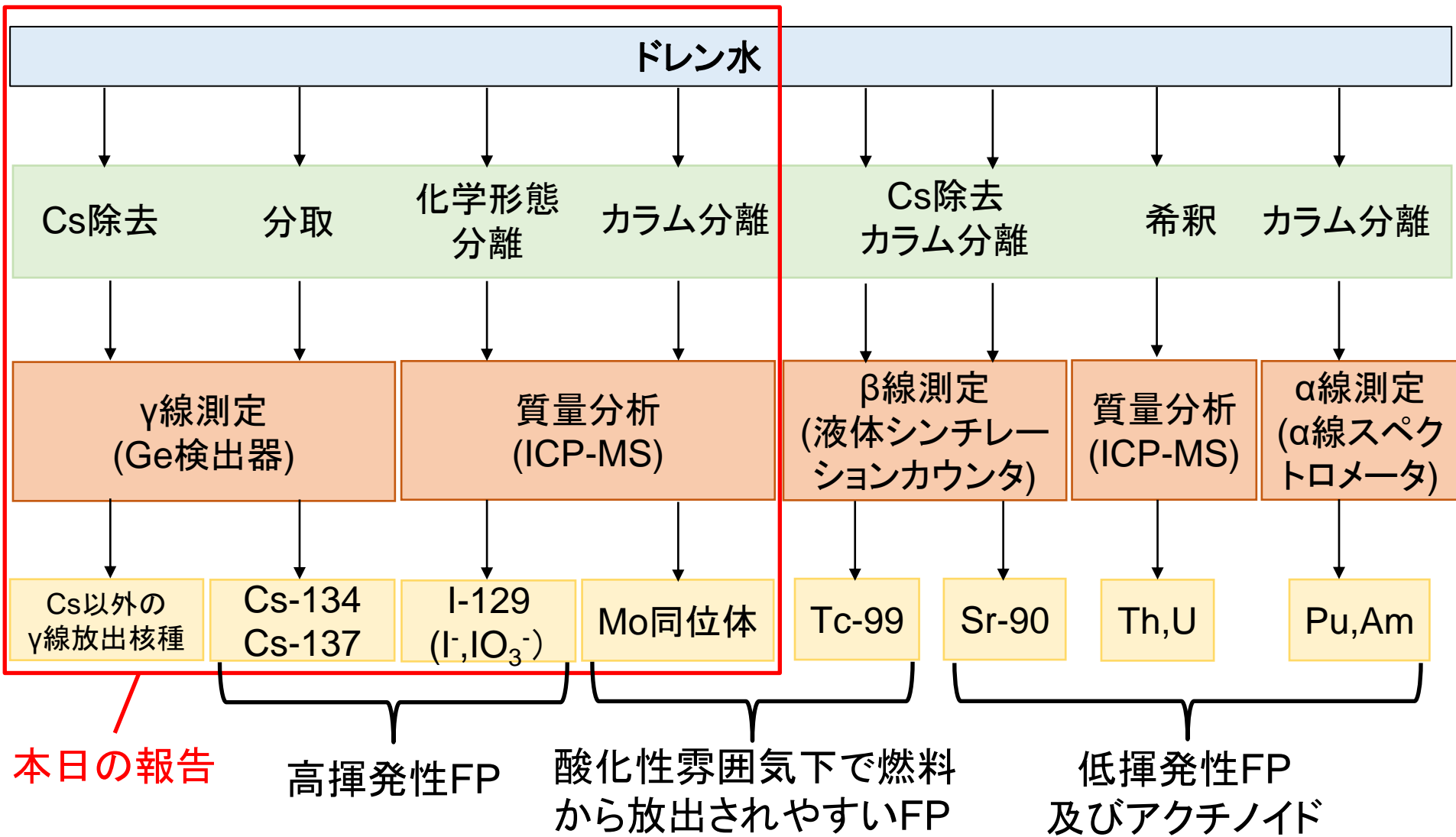
1号機のベントにより放出された核種が残存

(2) 2号機原子炉建屋スミヤ試料の分析



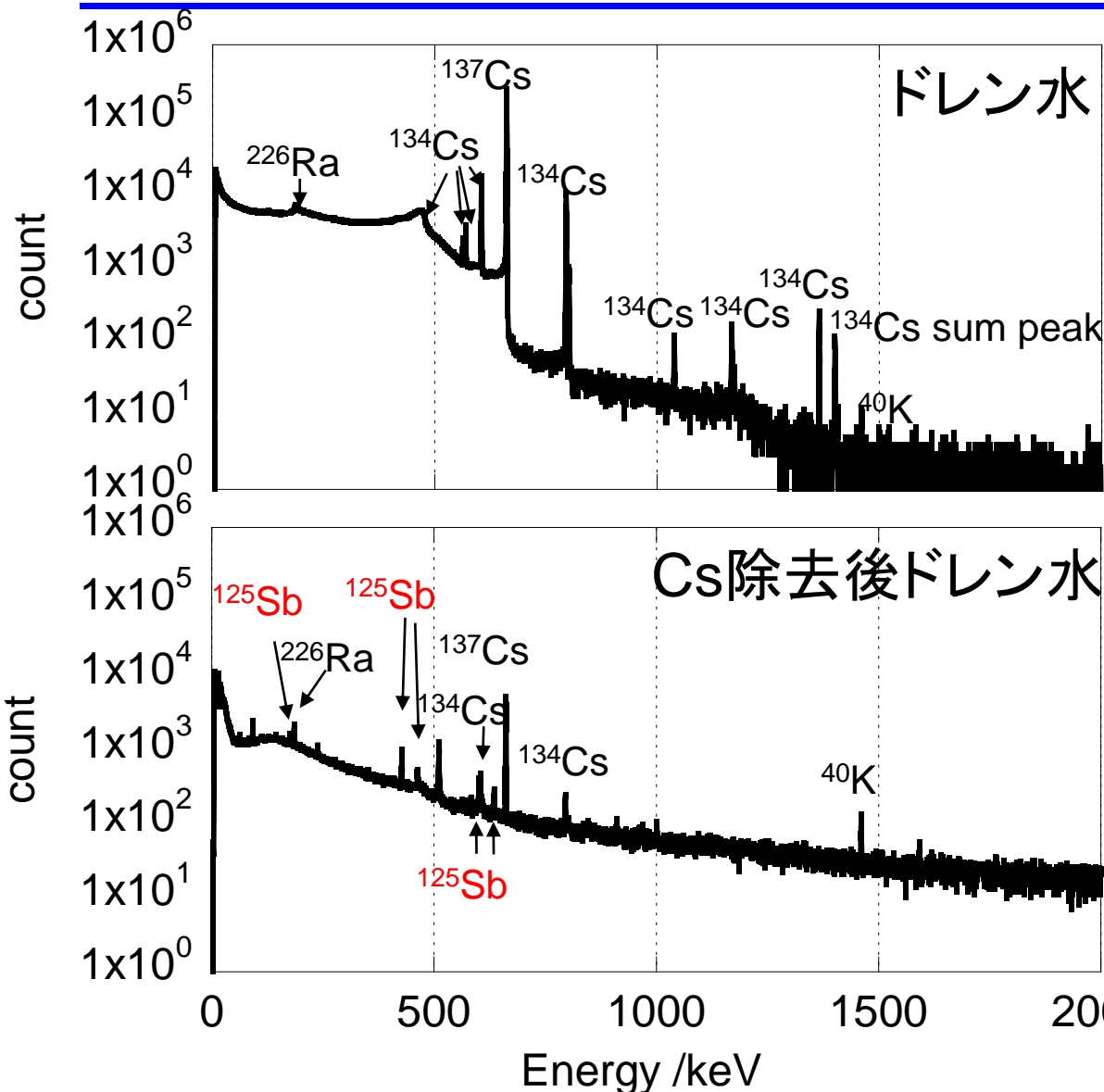
1階から5階の各階で採取

分析対象及び分析フロー



(分析値は2011/3/11時点の値に減衰補正)

γ線測定結果



定量分析結果

^{134}Cs : 5.1×10^4 Bq/ml

^{137}Cs : 5.9×10^4 Bq/ml

^{125}Sb : 1.5×10^2 Bq/ml

→ ^{137}Cs : 1.3×10^{-10} mol/ml

燃焼計算コードによる1号機炉内インベントリ*1

^{133}Cs : 41.12 (mol比)

^{134}Cs : 2.60

^{135}Cs : 15.99

^{137}Cs : 40.27

Cs元素濃度:

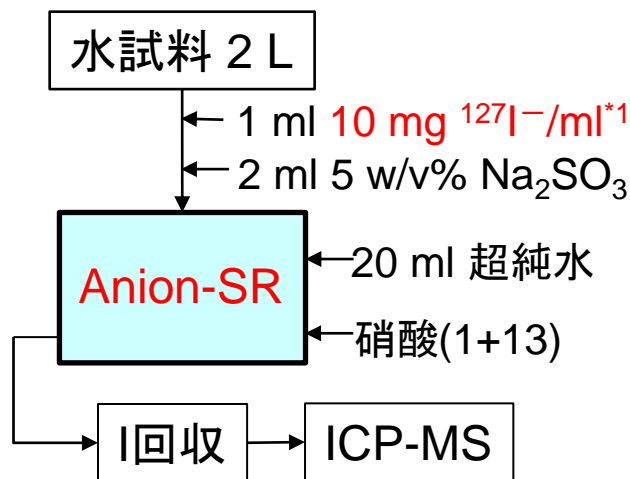
3.3×10^{-10} mol/ml

*1 :ORIGEN22UPJによる計算値
(JAEA-Data-Code-2012-018)

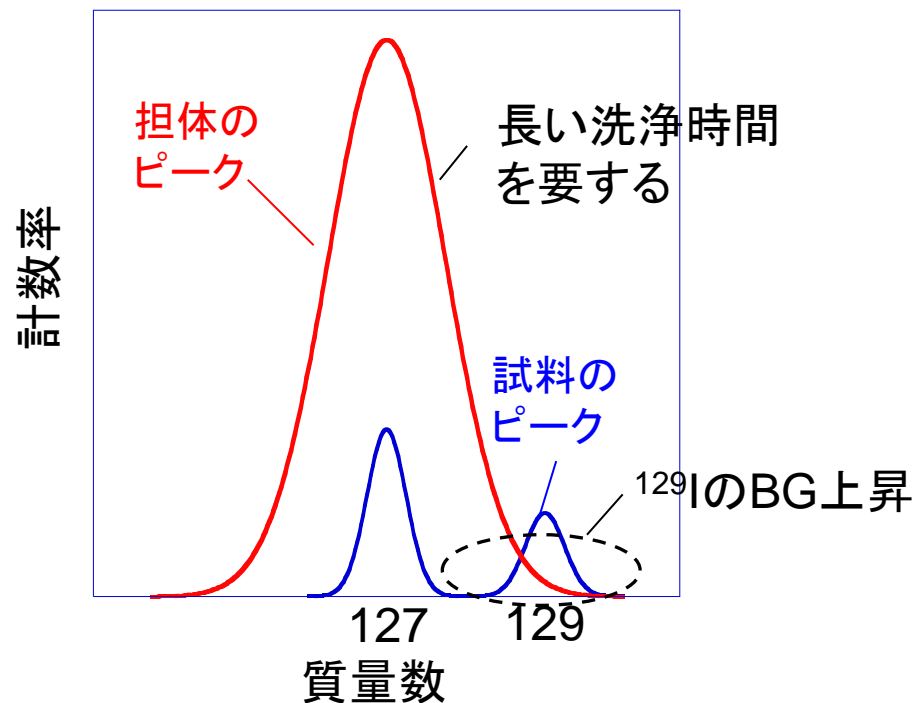
図 ドレン水及びCs除去後ドレン水のγ線スペクトル

^{129}I の化学形態分析法開発(1/3)

放射能測定シリーズ32
環境試料中ヨウ素129迅速分析法



*1担体:微量の放射性物質を運ぶために加えられる安定同位体
回収率補正などにも使用する



- Iの全量評価 (I⁻及びIO₃⁻)
- 担体量の低減 (1/200000)

^{129}I の化学形態分析法開発(2/3)

➤ I⁻の全量評価(I⁻及びIO₃⁻)

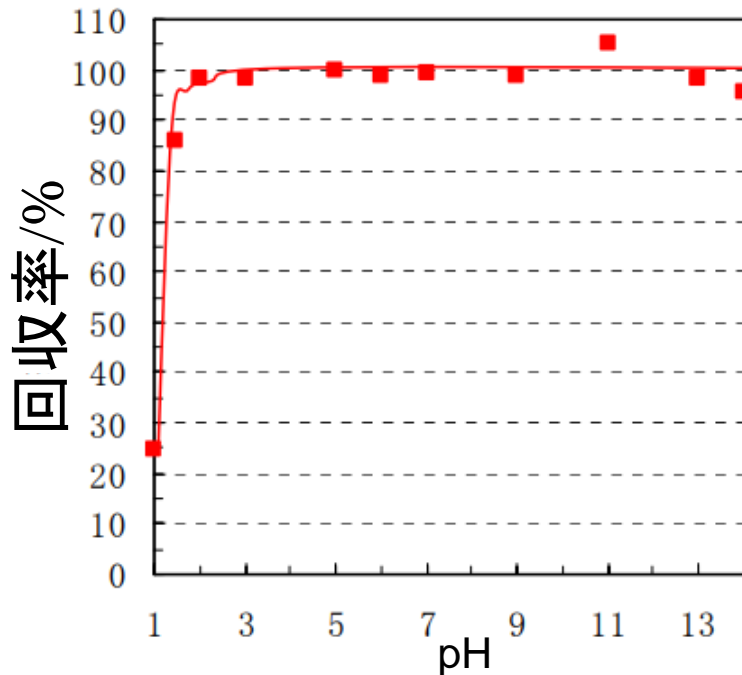


図 1⁻回収率のpH依存性*1

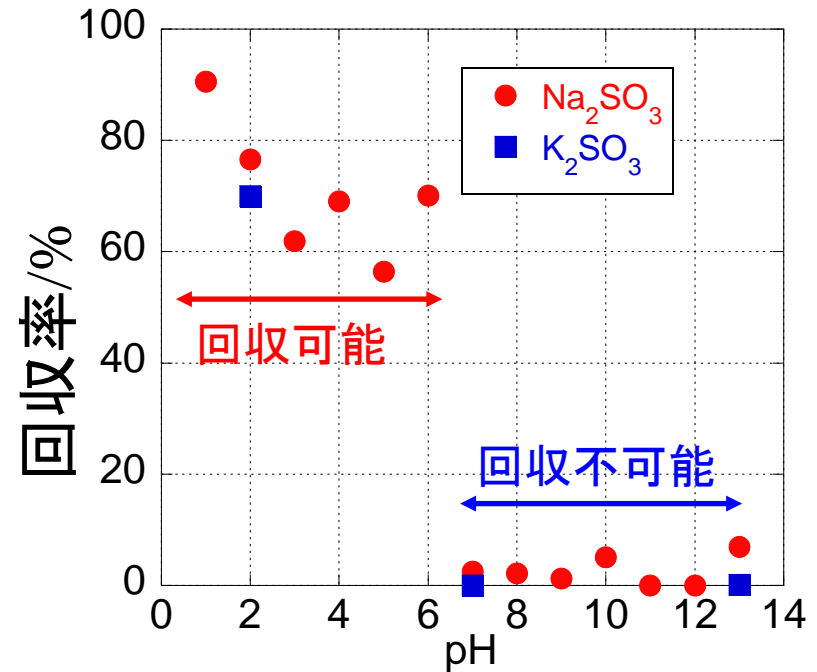


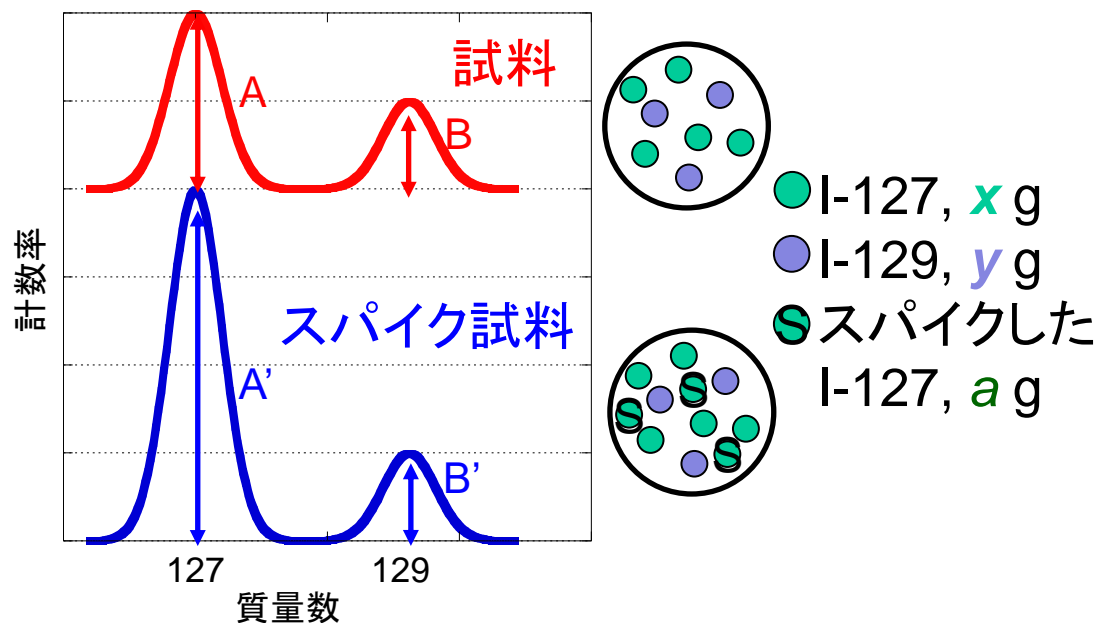
図 IO₃⁻回収率のpH依存性

*1 放射能測定シリーズ32 環境試料中ヨウ素129迅速分析法

- pHを酸性とすることで全I(I⁻及びIO₃⁻)を評価可能
- 化学形態ごとの評価も可能
- K₂SO₃等を適用可能

^{129}I の化学形態分析法開発 (3/3)

- 担体量を低減する(1/200000)→回収率の低下、試料中の ^{127}I の影響
回収率に関係なく定量可能な同位体希釈法を適用



試料の計数率の比

$$\frac{x}{y} = \frac{A}{B}$$

スパイク試料の計数率の比

$$\frac{x+a}{y} = \frac{A'}{B'}$$

$$y = \frac{a}{\left(\frac{A}{B} - \frac{A'}{B'}\right)}$$

ドレン水中 ^{129}I 濃度 : 1.6×10^{-10} mol/ml

燃焼計算コードのモル比*1

^{129}I : 78.69%

I元素濃度:

2.1×10^{-10} mol/ml

$\left(\begin{array}{l} ^{129}\text{I}^- : 1.5 \times 10^{-10} \text{ mol/ml} \\ ^{129}\text{IO}_3^- : 1.9 \times 10^{-11} \text{ mol/ml} \end{array} \right)$

Mo分析の課題

表 ドレン水中、計算値、及び天然のMo同位体比の比較

| 核種 | ドレン水 | 炉心計算値*1 | 天然由来 |
|--------|------|---------|-------|
| Mo-92 | 12.5 | — | 14.77 |
| Mo-94 | 8.0 | — | 9.23 |
| Mo-95 | 16.6 | 21.3 | 15.9 |
| Mo-96 | 14.7 | 1.1 | 16.68 |
| Mo-97 | 11.6 | 24.3 | 9.56 |
| Mo-98 | 24.6 | 25.0 | 24.19 |
| Mo-100 | 12.1 | 28.2 | 9.67 |

*1 ORIGEN22UPJによる計算値 (JAEA-Data-Code-2012-018)

- FPと天然由来のMoが混合していると考えられる
- ⁹²Moは、天然由来では15%あるが、炉内ではほとんど生成しない

⁹²Moを指標に天然由来分を見積り、FP由来を推定

ドレン水中Moの評価結果

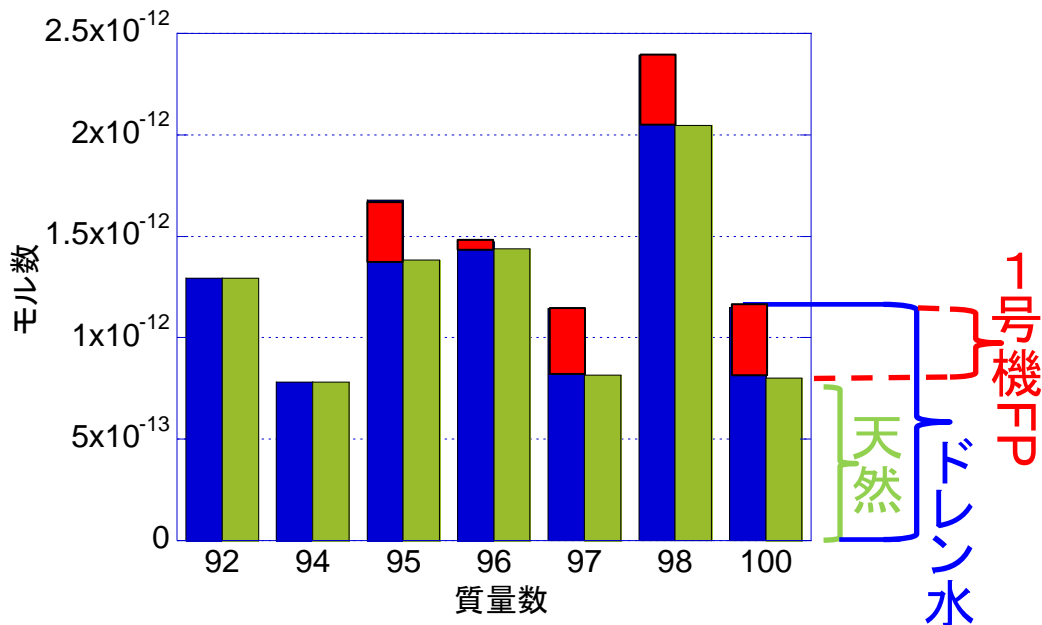


図 ドレン水及びMo標準液のMo同位体測定結果

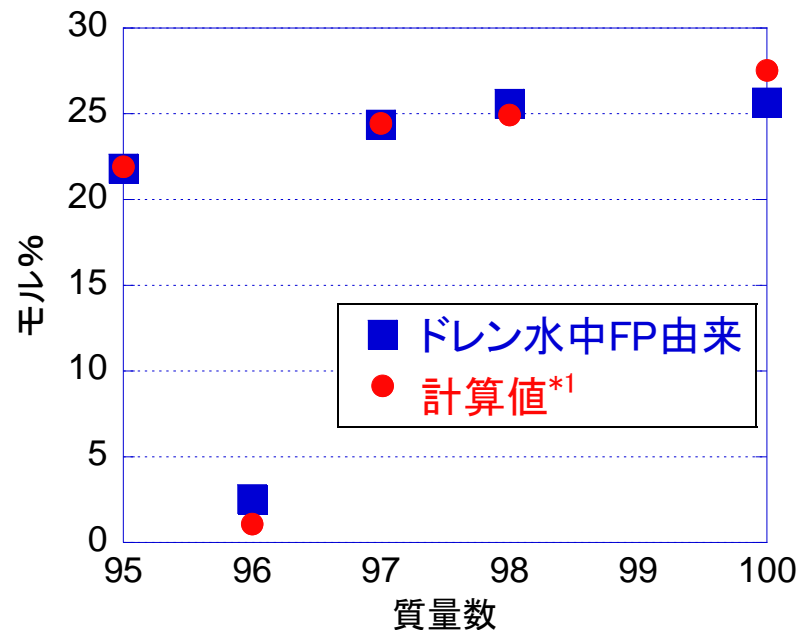


図 ドレン水中の1号機FP由来及び炉心計算値のMo同位体のモル比の比較

ドレン水 - 天然 = 1号機FP

FP由来のMo同位体を評価

ドレン水中1号機FP由来Mo濃度(⁹⁵⁺⁹⁶⁺⁹⁷⁺⁹⁸⁺¹⁰⁰Mo)

1.3 x 10⁻¹² mol/ml

*1 : ORIGIN22UPJによる計算値 (JAEA-Data-Code-2012-018)

分析結果のまとめ

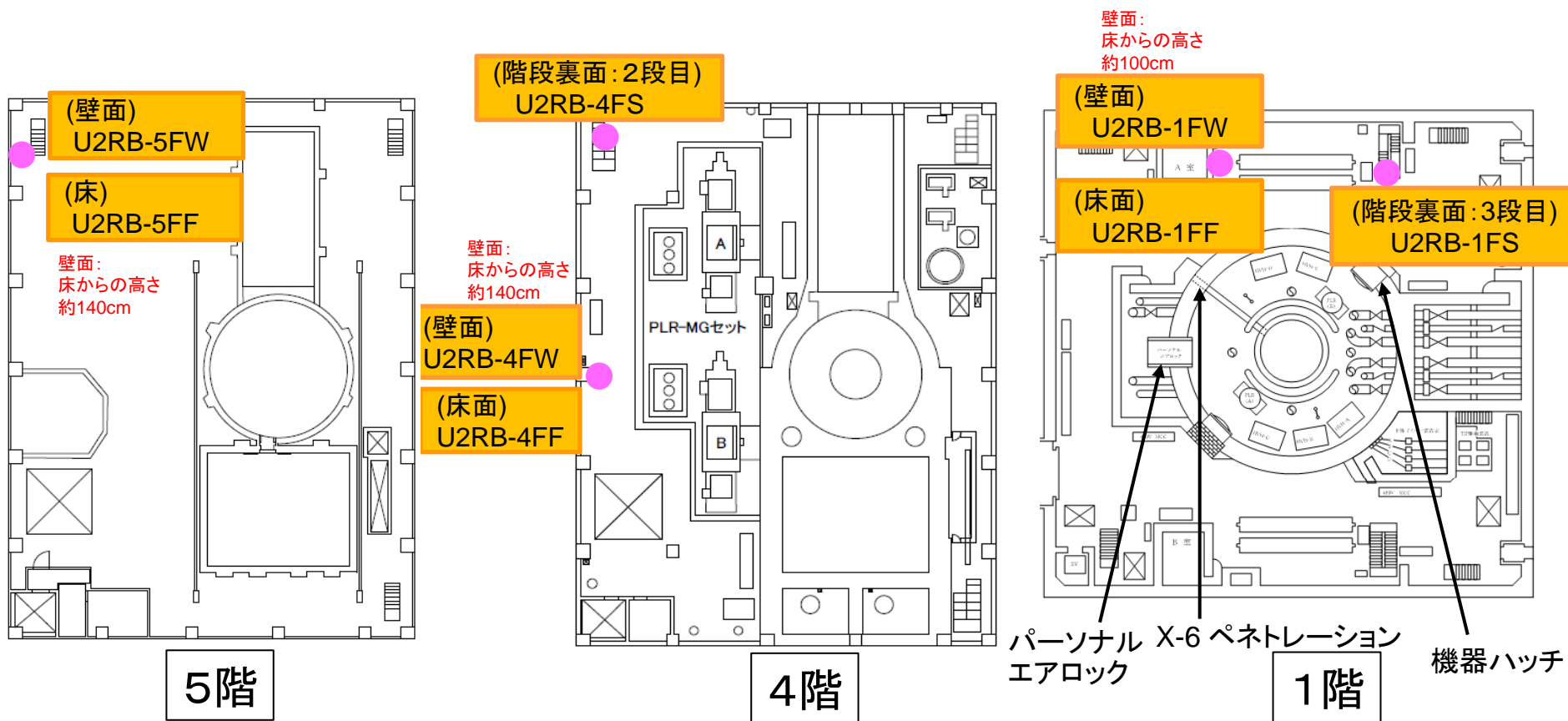
表 分析結果及びインベントリ計算値の比較

| | Cs | I | Mo |
|---------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| ドレン水中濃度 mol/ml | 3.3×10^{-10} | 2.1×10^{-10} | 1.3×10^{-12} |
| 1号機炉心*1 mol/core | 1141 | 93 | 1819 |

- 炉心ではCsに比べIの存在量が1桁低いが、ドレン水中ではCsとIが同程度存在する。
- 炉心ではCsと同程度のMoが存在するが、ドレン水中ではMo量がCsより2桁低い。

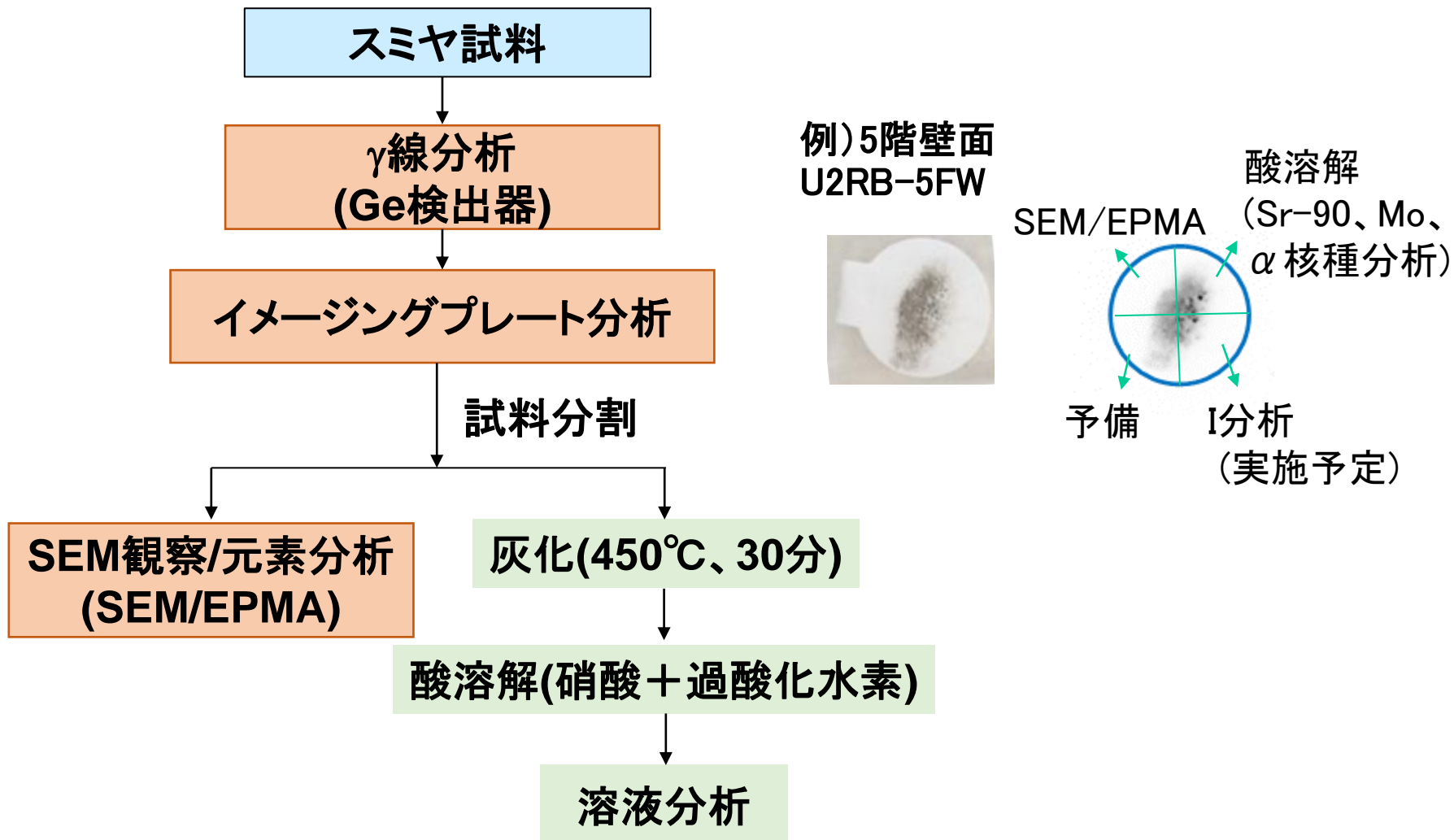
今後、1号機原子炉建屋から採取したスミヤ試料の分析を実施

2号機原子炉建屋スミヤ試料 採取位置

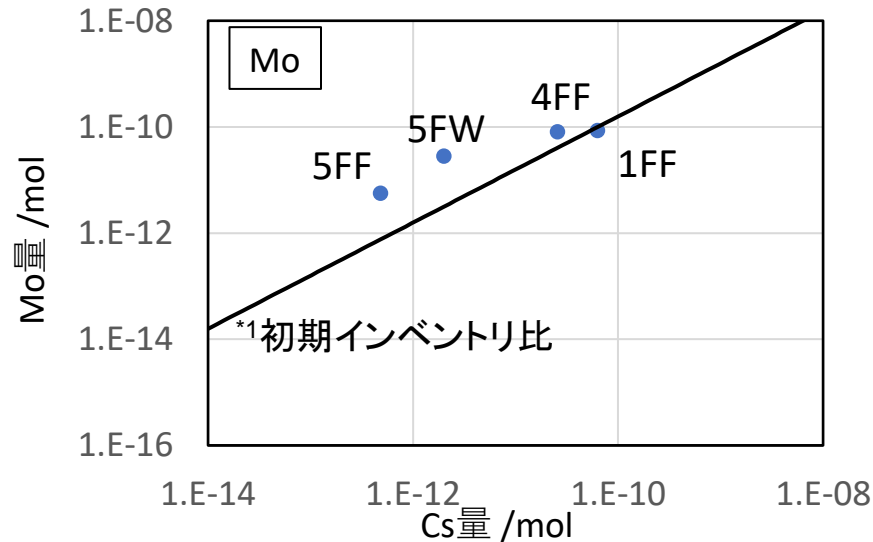


● : スミヤ採取箇所
 : スミヤ試料番号

分析フロー



Mo同位体のCsに対するモル比



- Mo量はすべてCs量と同等もしくはそれ以上であった。
 - Moは酸化物の形態になると燃料から放出され易いことから、酸化性雰囲気(水蒸気リッチ)下で炉心損傷が進展したと推定できる。
 - Csの主要な化学形の一つとして Cs_2MoO_4 であった可能性が高いことを示唆している。

シビアアクシデント解析コードとの比較

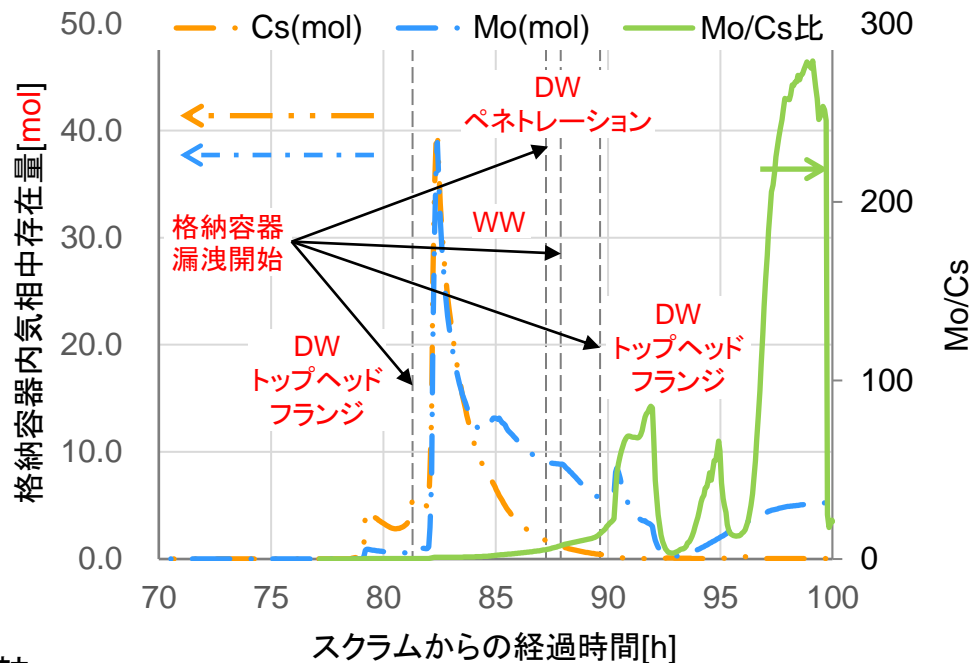
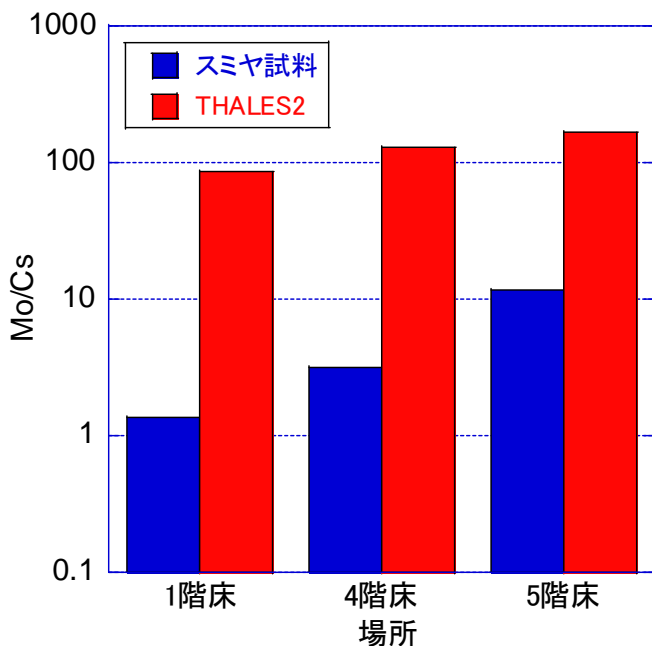


図 スミヤ試料分析値とTHALES2による計算値の比較

(格納容器漏洩箇所及び開始タイミングは解析上の仮定)

- THALES2の解析における格納容器から漏洩する主要な化学形の一つとして Cs_2MoO_4 を得た。
- MoがCsより多く漏洩する傾向は得たが、Mo/Cs比は過大評価であった。
 - ⇒燃料からの放出時の雰囲気を考慮する解析モデルの検討
 - ⇒原子炉建屋への漏洩タイミングや漏洩場所等の事故シナリオの再検討

まとめ

- 水溶液中におけるIの濃度を分析する手法を確立した。本手法を1号機2号機共有スタック基部ドレン水の分析に適用し、Iの主要化学種を定量した。
- 天然由来のMo同位体比を用いて原子炉内核分裂由来のMo同位体を評価する手法を考案し、ドレン水及び2号機原子炉建屋スミヤ試料の分析に適用した。
- ドレン水の分析においては、Mo量がCs量を大きく下回る結果を得た。今後実施する1号機原子炉建屋スミヤ試料の分析と合わせて結果の解釈を進める予定である。
- 2号機原子炉建屋スミヤ試料ではMo量がCs量を大きく上回っており、酸化性雰囲気条件(水蒸気リッチ)で炉心損傷が進展した可能性が示唆された。この結果から、 Cs_2MoO_4 がCsの主要な化学形であったと推定した。
- 2号機原子炉建屋スミヤ試料の分析結果をTHALES2による解析と比較した。Csの主要な化学形は分析結果から推定した Cs_2MoO_4 と整合したが、Mo/Cs比については分析結果との差が大きく改善の余地があることを確認した。

ご清聴、ありがとうございました。

参考資料

- 東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会

第14回会合 資料4-2

第15回会合 資料5

第21回会合 資料4-1

- 島田亜佐子、谷口良徳、大平早希、飯田芳久、“福島第一原子力発電所1・2号機共用スタックドレンサンプル水の核種分析”日本原子力学会、2021年秋の大会
- A. Shimada, et. al, “Radiochemical analysis of the drain water sampled at the exhaust stack shared by Units 1 and 2 of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station”, *Sci. Rep.*, (2022) 12:2086

<https://doi.org/10.1038/s41598-022-05924-2>

参考文献

- 東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会
 - 第20回会合 資料4-1
 - 第22回会合 資料4-1
 - 第29回会合 資料1-3

- 垣内一雄、島田亜佐子、大平早希、飯田芳久、“福島第一原子力発電所2号機原子炉建屋内スミヤ試料の核種分析”
日本原子力学会、2022年秋の大会