

# JAEAにおけるスミヤ試料分析の状況

2024年3月12日

日本原子力研究開発機構  
安全研究センター

島田亜佐子、邊見光、本多真紀、飯田芳久

# スミヤ試料分析のねらい

---

---

原子炉建屋等の床面や壁面に付着した核種の組成に関するデータを取得する。



- 同一号機における異なる位置での比較により、格納容器から建屋への漏洩経路や建屋内の移行経路を推定するための情報を得る。
- 号機間の比較により、炉心損傷進展時における雰囲気条件等の違いを推定する。

# 分析対象の核種

## ○着目核種

Cs-134/137、Tc-99、Mo同位体、Sr-90、 $\alpha$ 核種(U等)、I-129、他

- Csの化学形は原子炉容器内の雰囲気依存し得る(原子炉容器内に水蒸気が十分にある酸化雰囲気条件下で事故が進展した場合、Moが燃料から放出されやすくなり、 $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ がCsの主要な化学形になる可能性がある)。
- Tc-99及びMo同位体は、酸化物の形態になると燃料から放出され易くなる性質を有しているため、炉心損傷・溶融進展時の雰囲気条件を推定する上で指標的な核種になり得る。
- MCCI等により中・難揮発性の放射性物質(Srや $\alpha$ 核種)がエアロゾルとして放出される可能性がある。
- I-129(長半減期)を分析することにより、健康影響評価上重要なI-131(短半減期)の放出挙動を概略評価できる可能性がある。

# スミヤ試料の概要 (2023/10/25原子力機構に受入)

優先	No*	試料ID	採取場所	採取日	材質
	43	U1RB-1FS(Rag)	1号機原子炉建屋 (1階階段裏1)	2021/11/26	紙ウエス 
○	44	U1RB-1FW(Rag)	1号機原子炉建屋 (1階壁面2)	2021/11/26	
	45	U1RB-2FS(Rag)	1号機原子炉建屋 (2階階段裏3)	2021/11/26	
○	46	U1RB-2FW(Rag)	1号機原子炉建屋 (2階壁面4)	2021/11/26	
	47	U1RB-3FS(Rag)	1号機原子炉建屋 (3階階段裏5)	2021/11/26	
○	48	U1RB-3FW(Rag)	1号機原子炉建屋 (3階壁面6)	2021/11/26	
	49	U1RB-3FC(Rag)	1号機原子炉建屋 (3階格納容器壁面7)	2021/11/26	
	50	U1RB-4FS(Rag)	1号機原子炉建屋 (4階階段裏8)	2021/11/26	
○	51	U1RB-4FW(Rag)	1号機原子炉建屋 (4階壁面9)	2021/11/26	
	52	U3RB-2FS	3号機原子炉建屋 (2階階段裏1)	2021/12/17	
	53	U3RB-2FW-2(1)	3号機原子炉建屋 (2階壁面2)	2021/12/17	
	54	U3RB-2FW-3	3号機原子炉建屋 (2階壁面3)	2021/12/17	
	55	U3RB-2FC-4	3号機原子炉建屋 (2階格納容器壁面4)	2021/12/17	
	56	U3RB-2FC-5	3号機原子炉建屋 (2階格納容器壁面焦げ跡5)	2021/12/17	
◎	57	U3RB-2FW-1	3号機原子炉建屋 (2階壁面1)	2022/6/17	
	58	U3RB-2FW-2(2)	3号機原子炉建屋 (2階壁面2)	2022/6/17	
◎	59	U3RB-3FW-3	3号機原子炉建屋 (3階壁面3)	2022/6/17	
	60	U3RB-3FW-4	3号機原子炉建屋 (3階壁面4)	2022/6/17	
◎	61	U2RB-FHM-RT	2号機FHM操作室 (屋上部8)	2022/8/24	
◎	62	U2RB-FHM-2FF	2号機FHM操作室 (2階操作室床面11)	2022/8/24	
	63	U2RB-FHM-Con	2号機FHM操作室スミヤ (操作卓表面15)	2022/8/24	

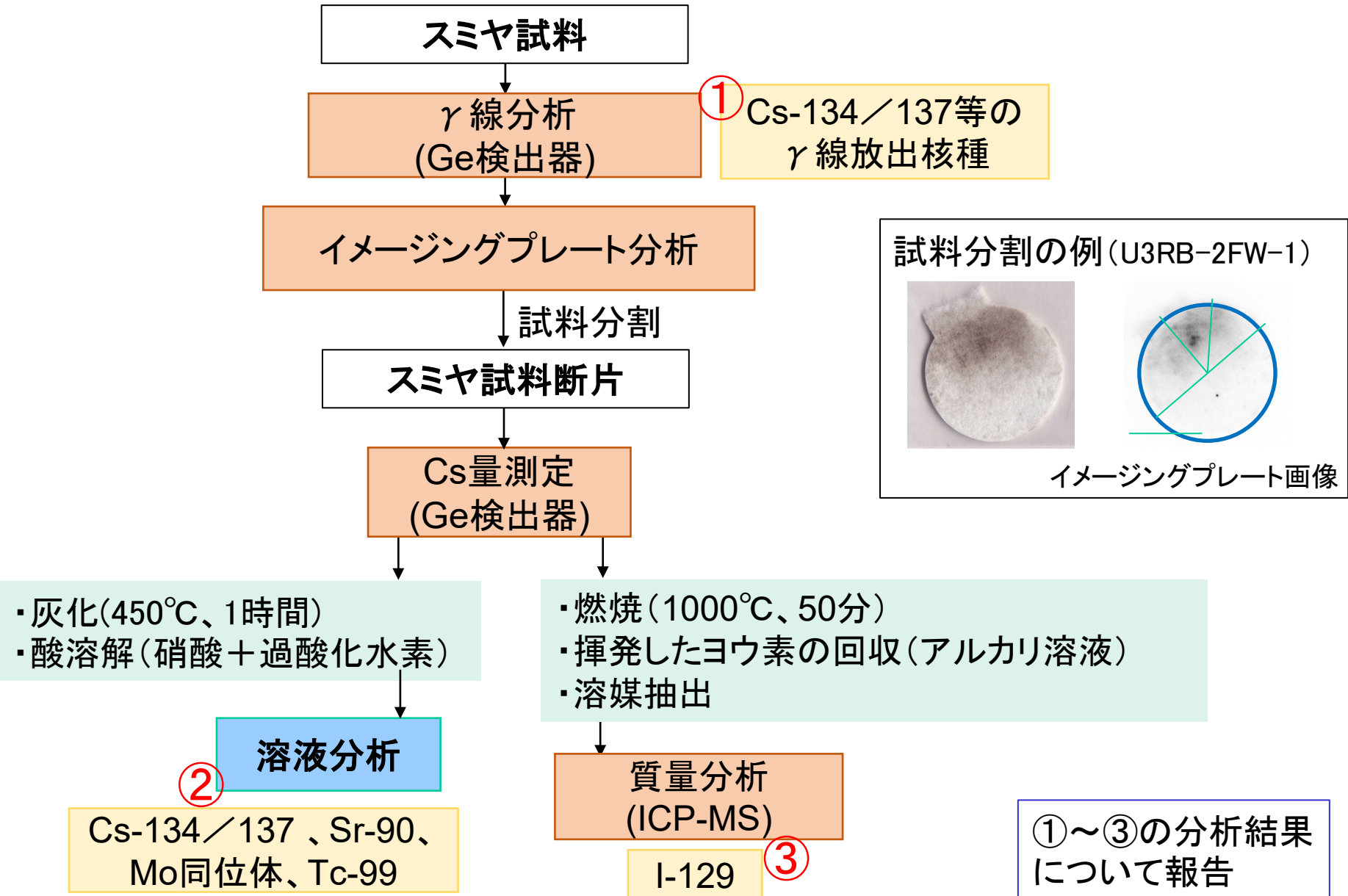
◎: 溶解・分析を実施

○: 予備検討後に溶解・分析予定

\*: 福島第一原子力発電所廃炉・事故調査に係る連絡・調整会議(第12回)資料1-1

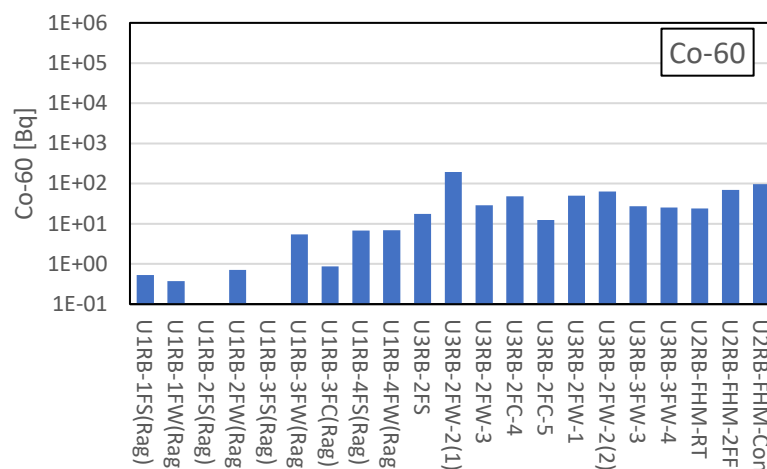
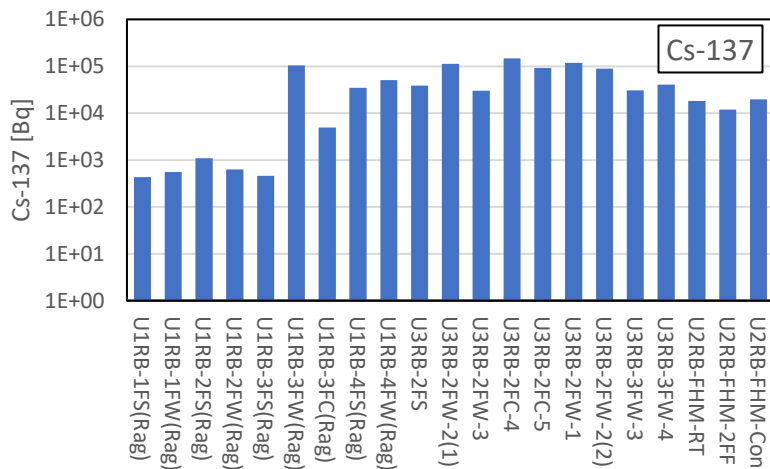
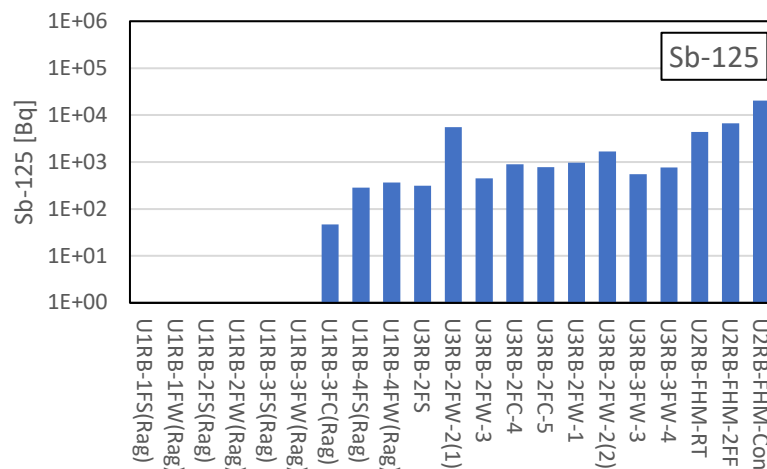
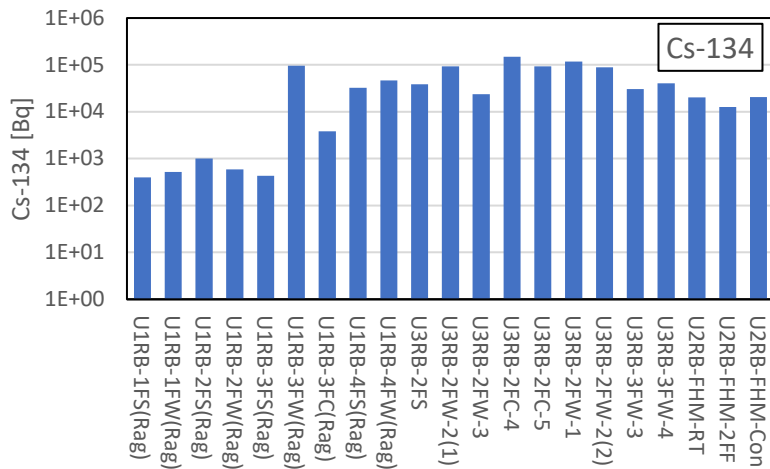
**赤字で示した4試料を優先的に分析**

# 分析フロー



# スミヤ試料の $\gamma$ 線分析結果 (1/2)

(2011年3月11日に減衰補正した値)



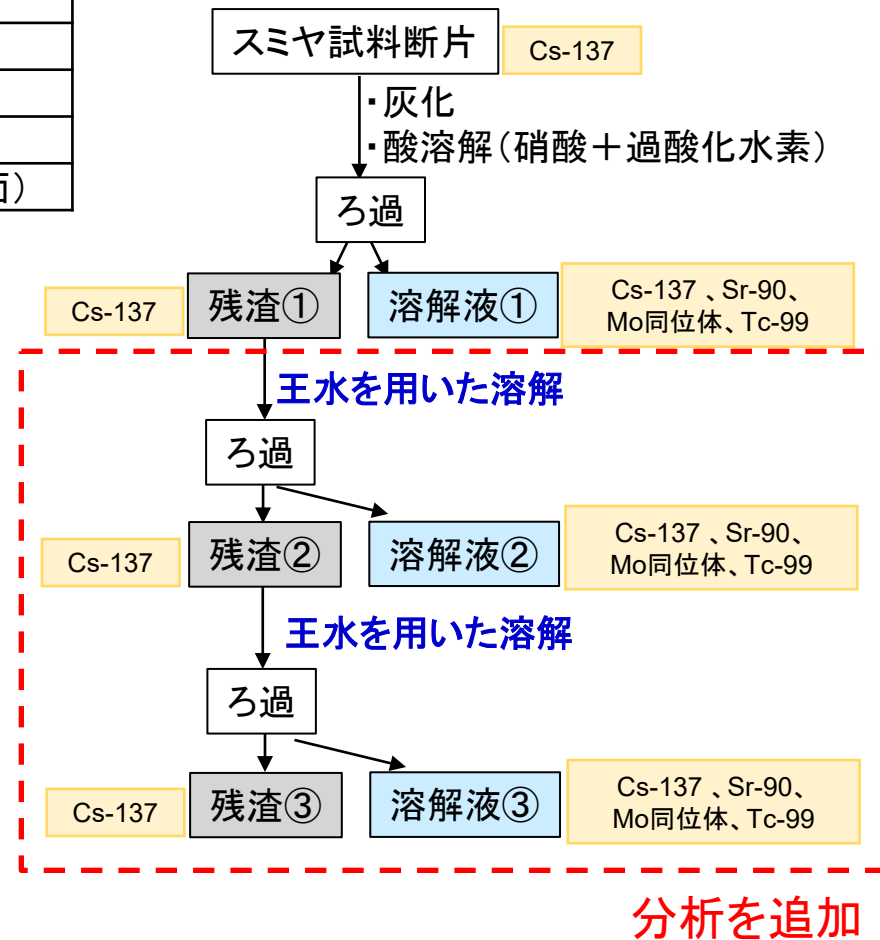
・Cs-134、Cs-137、Sb-125及びCo-60を検出

# スミヤ試料の溶解

## ➤ 4試料を溶解して分析

No	試料ID	採取場所
57	U3RB-2FW-1	3号機原子炉建屋 (2階壁面)
59	U3RB-3FW-3	3号機原子炉建屋 (3階壁面)
61	U2RB-FHM-RT	2号機FHM操作室 (屋上部)
62	U2RB-FHM-2FF	2号機FHM操作室 (2階操作室床面)

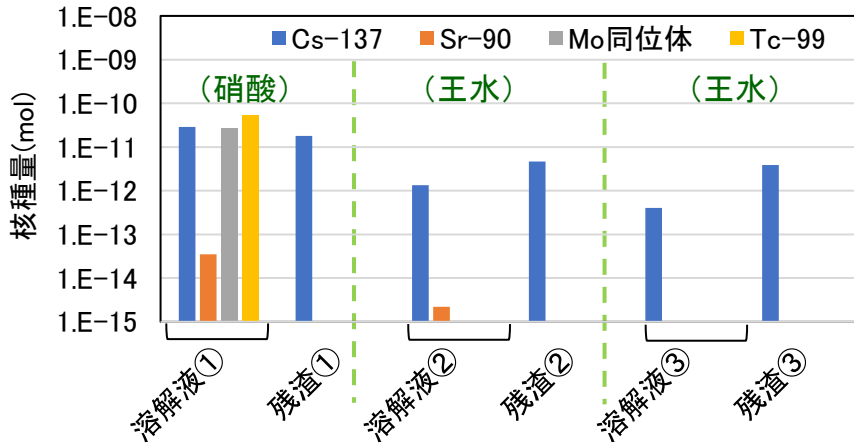
➤ 酸溶解で生成した残渣の  $\gamma$  線分析において顕著な量のCs-137が検出されたため、王水\*を用いて残渣を溶解し、追加分析を実施。



\* 王水: 濃塩酸と濃硝酸を3:1 (体積比) で混合した液体

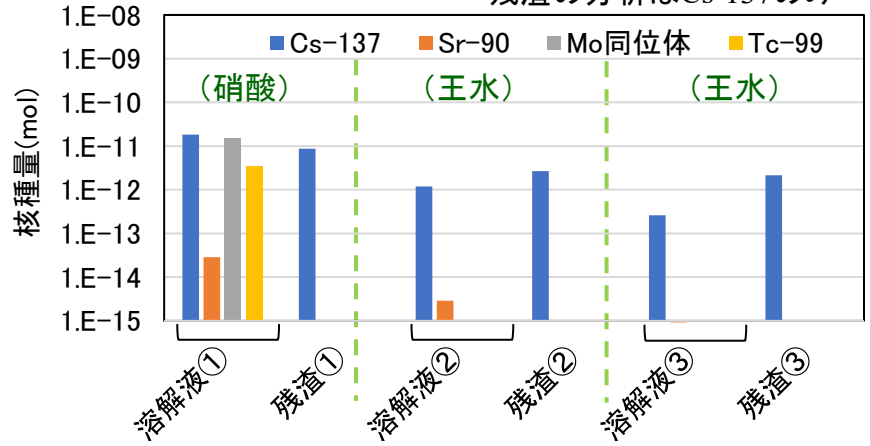
# スミヤ試料溶解液の分析結果(1/4)

## U3RB-2FW-1

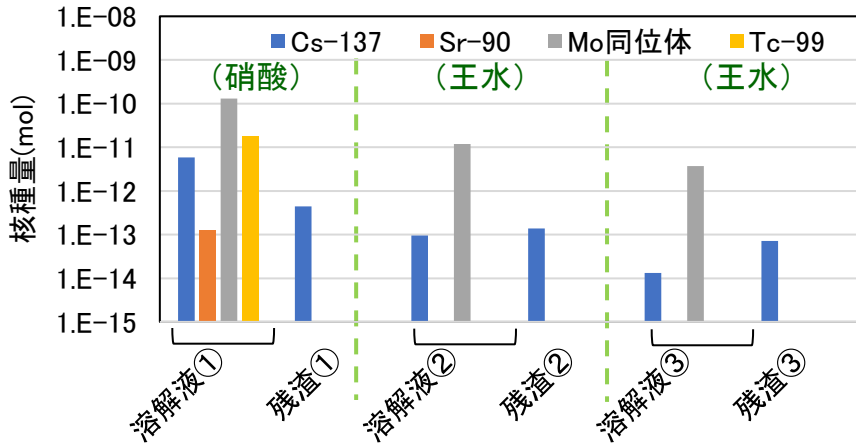


## U3RB-3FW-3

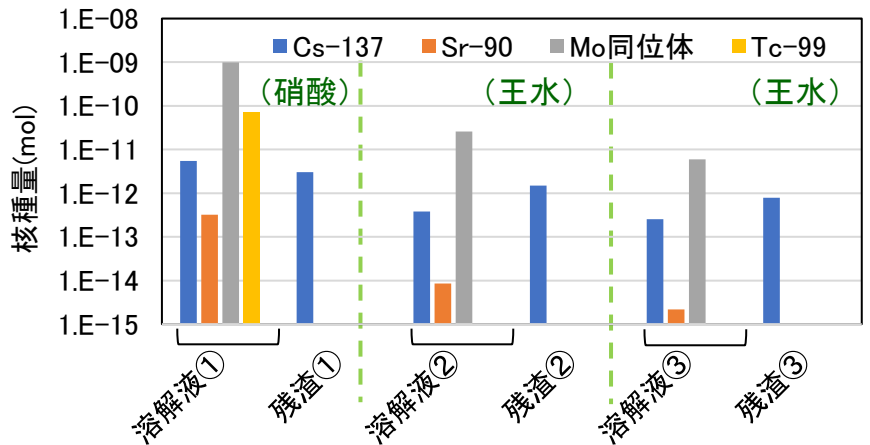
・2011年3月11日に減衰補正した値  
 ・残渣の分析はCs-137のみ



## U2RB-FHM-RT



## U2RB-FHM-2FF



・溶解力の高い王水を用いても残渣中の核種はほとんど溶出しなかった。

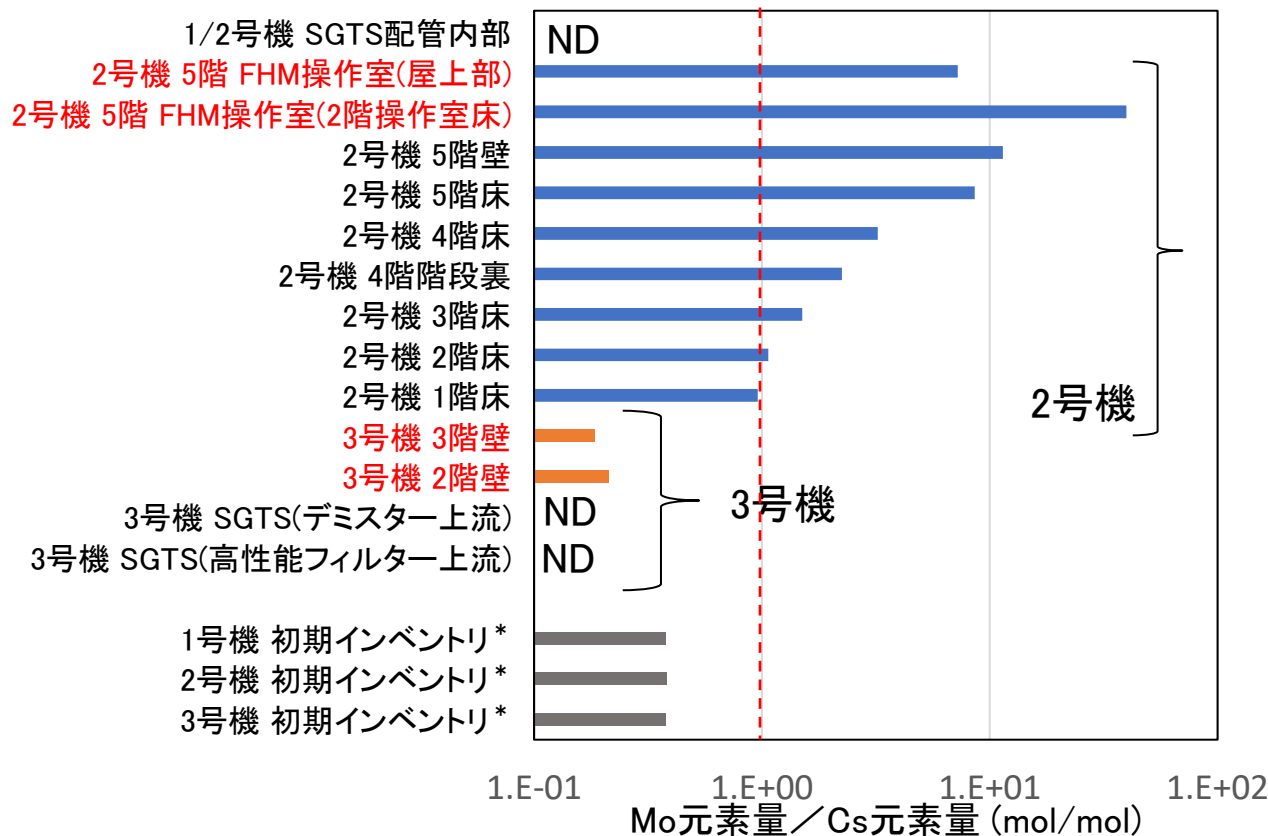
→残渣中にSr-90、Mo同位体、Tc-99は存在しないと仮定し、それぞれの核種についてCsに対する存在比を考察。

Cs量: スミヤ試料断片中の量  
 他核種量: 溶解液①中の量



# スミヤ試料溶解液の分析結果 (2/4): Mo

## 核種量から元素量を算出してCs量と比較



赤字: 今回の分析結果

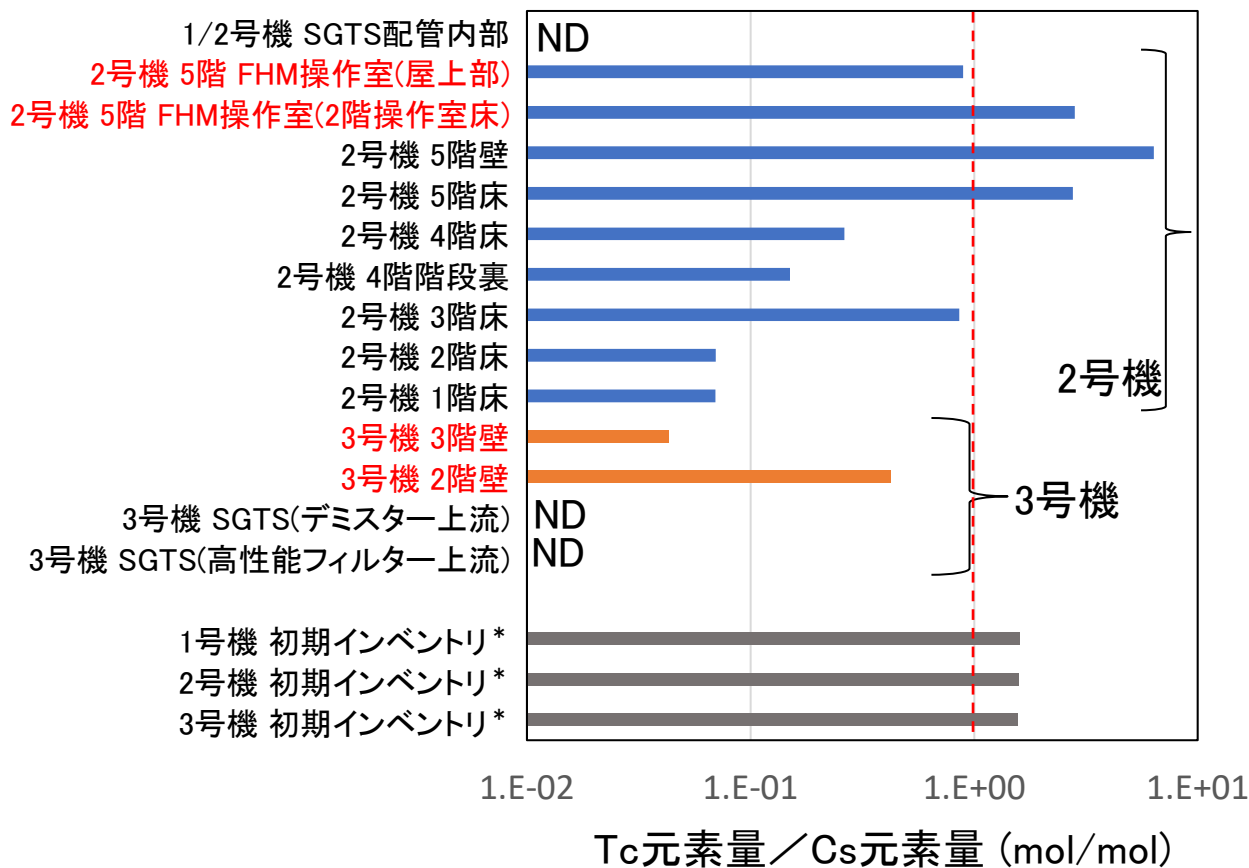
(2011年3月11日に減衰補正した値)

Cs量: スミヤ試料断片中の量  
Mo量: 溶解液①中の量

\* : ORIGEN2コードによる計算値  
(JAEA-Data-Code-2012-018)

- これまでの分析結果と整合する結果が得られた。
    - ・2号機においてMo/Cs比は高層階において高い傾向
    - ・2号機においてMo元素量はCs元素量と同等以上
- ⇒2号機ではCsの主要な化学形が $Cs_2MoO_4$ であった可能性が高い。  
また、過剰のMoは酸化物の形態が主であると推定。

# スミヤ試料溶解液の分析結果 (3/4): Tc



赤字: 今回の分析結果

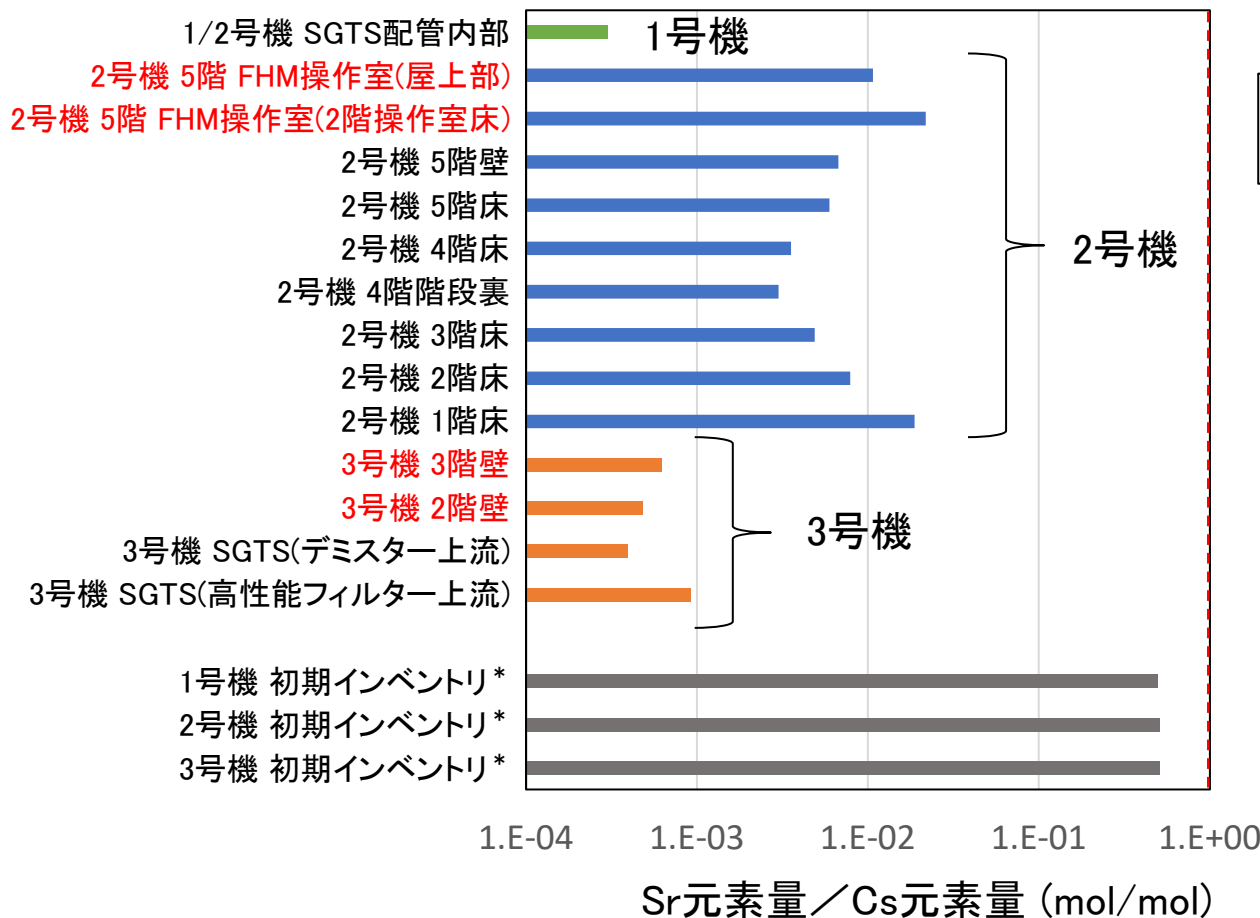
(2011年3月11日に減衰補正した値)

Cs量: スミヤ試料断片中の量  
Tc量: 溶解液①中の量

\* : ORIGEN2コードによる計算値  
(JAEA-Data-Code-2012-018)

➤ Moと同様に酸化物の形態になると燃料から放出され易いTcについても、Moと同様の傾向が得られている。

# スミヤ試料溶解液の分析結果(4/4): Sr



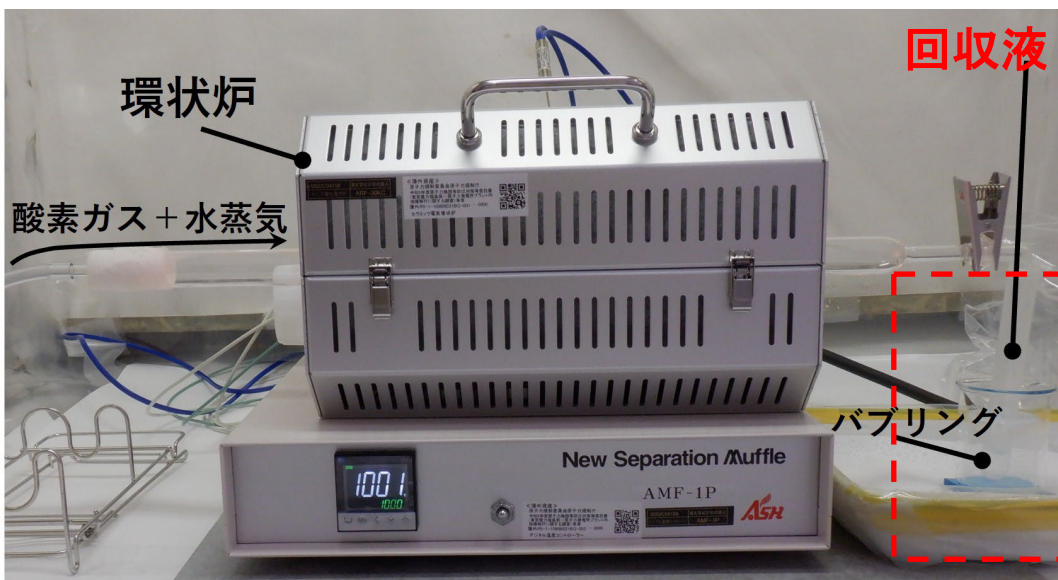
赤字: 今回の分析結果  
(2011年3月11日に減衰補正した値)

Cs量: スミヤ試料断片中の量  
Sr量: 溶解液①中の量

\*: ORIGEN2コードによる計算値  
(JAEA-Data-Code-2012-018)

- これまでの分析結果と整合する結果が得られた。
- ・全ての試料でSr/Cs比は初期インベントリから算出される値と比べて低い。

# 燃焼法によるスミヤろ紙断片の分析 (I-129)



茶色の変色は助燃剤として添加した $V_2O_5$ によるもの

スミヤろ紙断片の燃焼 (1000°C、50分) ⇒ ヨウ素の回収

(水酸化テトラメチルアンモニウム / 亜硫酸ナトリウム溶液)

# スミヤろ紙断片の分析結果 (I-129)

	スミヤろ紙断片中の量 (燃焼前)	回収液中の量 (燃焼後)	
	Cs-137	Cs-137	I-129
3号機 3階壁	$2.17 \times 10^{-12}$ mol ( $9.54 \times 10^2$ Bq)	ND	定量限界以下 ( $< 4 \times 10^{-14}$ mol)
2号機 3階床	$6.61 \times 10^{-11}$ mol ( $2.90 \times 10^4$ Bq)	ND	$9.00 \times 10^{-13}$ mol
1/2号機 SGTS配管内部	$4.23 \times 10^{-11}$ mol ( $1.86 \times 10^4$ Bq)	ND	$3.67 \times 10^{-12}$ mol

(2011年3月11日に減衰補正した値)

- 回収液中のCs-137量は検出限界以下。  
(ほとんどのCs-137がセラミックボートに残っていることをγ線分析により確認)  
⇒Cs-137は1000°Cでも揮発しにくい形態で存在していることを示唆。
- 回収液中のI-129量は、スミヤろ紙断片中のCs-137量に比べ1~2桁程度少ない。
- 現段階では、揮発しにくい形態で存在しているI-129の存在を否定できないことから、今後、アルカリ融解法によるスミヤ試料溶解を検討する。

# まとめ

- 1～3号機原子炉建屋内から採取したスミヤ試料について核種分析を実施し、以下の知見を得た。
  - 分析結果は、これまでの知見と整合するものであった。
    - ・2号機においてMo/Cs比は高層階において高い傾向
    - ・2号機においてMo元素量はCs元素量と同等以上
    - Csの主要な化学形が $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ である可能性が高く、過剰のMoは酸化物の形態が主であると推定
    - ・全ての試料で、Sr/Cs比は初期インベントリから算出される値と比べて低い
  - 酸や熱に耐性のある形態のCsの存在が示唆された。
  
- 今後の計画
  - 各号機の原子炉建屋内スミヤ試料分析を継続
    - ⇒2号機原子炉建屋壁試料を優先
  - 他手法(アルカリ、フッ酸等)によるスミヤ試料溶解手法の検討

# 参考資料

---

---

# 元素量の算出

スミヤ試料中の核種存在割合\*1は炉心インベントリと同じと仮定して各元素量を算出

<元素量算出の例>:

$$\text{Cs元素量} = [\text{Cs-137分析値(mol)}^{*2}] / [\text{Cs-137存在割合}]$$

元素量	炉心の初期インベントリ*3 (mol)		
	1号機	2号機	3号機
Cs	1.14E+03	1.40E+03	1.32E+03
Sr	5.63E+02	7.12E+02	6.76E+02
Tc	4.31E+02	5.30E+02	5.00E+02
Mo	1.82E+03	2.20E+03	2.07E+03
I	9.30E+01	1.14E+02	1.08E+02

	初期インベントリにおける 核種の存在割合*3		
	1号機	2号機	3号機
Cs-137	0.40	0.42	0.41
Sr-90	0.58	0.58	0.58
Tc-99	1.00	1.00	1.00
Mo-95	0.22	0.21	0.21
Mo-96	0.01	0.01	0.01
Mo-97	0.24	0.25	0.25
Mo-98	0.25	0.25	0.25
Mo-100	0.28	0.28	0.28
I-129	0.79	0.78	0.78

\* 1: 核種の存在割合 = [核種量(mol)] / [元素量(mol)]

\* 2: 事故時に衰補正した値

\* 3: ORIGEN2コードによる計算値 (JAEA-Data-Code-2012-018)



# 溶解液および残渣中の核種量

赤字: 今回の分析結果

試料	分析値 (mol)						溶解率* (%)
	スミヤ試料断片	溶解液①				残渣①	
	Cs-137	Cs-137	Sr-90	Mo同位体	Tc-99	Cs-137	
1/2号機SGTS配管内部	5.7E-11	5.2E-11	2.5E-14	ND	ND	5.4E-13	91
2号機FHM操作室(屋上部)	8.1E-12	5.9E-12	1.2E-13	1.5E-10	1.8E-11	4.4E-13	73
2号機FHM操作室(2階操作室床)	1.0E-11	5.5E-12	3.2E-13	1.0E-09	7.2E-11	3.0E-12	54
2号機5階壁	1.0E-11	8.1E-12	9.6E-14	2.8E-10	1.6E-10	1.1E-11	81
2号機5階床	2.7E-12	2.0E-12	2.3E-14	5.7E-11	1.8E-11	4.9E-13	73
2号機4階床	1.0E-10	1.1E-10	5.1E-13	8.1E-10	6.6E-11	2.3E-12	104
2号機4階階段裏	3.0E-12	2.2E-12	1.3E-14	1.7E-11	1.1E-12	4.6E-15	75
2号機3階床	5.9E-11	5.1E-11	4.1E-13	2.2E-10	1.3E-10	4.8E-12	86
2号機2階床	2.8E-10	2.3E-10	3.1E-12	7.3E-10	4.8E-11	2.9E-11	82
2号機1階床	3.6E-10	2.8E-10	9.6E-12	8.5E-10	6.2E-11	1.6E-11	77
3号機3階壁	3.2E-11	1.8E-11	2.9E-14	1.5E-11	3.4E-12	8.7E-12	57
3号機2階壁	5.1E-11	2.9E-11	3.5E-14	2.7E-11	5.4E-11	1.8E-11	56
3号機SGTS(デミスター上流)	2.1E-11	1.6E-11	1.2E-14	ND	ND	1.2E-12	75
3号機SGTS(高性能フィルター上流)	3.3E-12	2.6E-12	4.3E-15	ND	ND	2.5E-13	80

\*溶解率: [溶解液①中Cs-137量(mol)] / [スミヤ試料断片中Cs-137量(mol)] × 100

# γ線分析結果のまとめ

No	試料ID	採取場所	事故時(2011/3/11)に減衰補正した値(Bq)			
			Cs-134	Cs-137	Sb-125	Co-60
43	U1RB-1FS(Rag)	1号機原子炉建屋 (1階階段裏1)	4.00E+02	4.31E+02	ND	5.28E-01
44	U1RB-1FW(Rag)	1号機原子炉建屋 (1階壁面2)	5.20E+02	5.61E+02	ND	3.78E-01
45	U1RB-2FS(Rag)	1号機原子炉建屋 (2階階段裏3)	1.01E+03	1.09E+03	ND	ND
46	U1RB-2FW(Rag)	1号機原子炉建屋 (2階壁面4)	5.89E+02	6.31E+02	ND	7.11E-01
47	U1RB-3FS(Rag)	1号機原子炉建屋 (3階階段裏5)	4.29E+02	4.61E+02	ND	ND
48	U1RB-3FW(Rag)	1号機原子炉建屋 (3階壁面6)	9.51E+04	1.05E+05	ND	5.43E+00
49	U1RB-3FC(Rag)	1号機原子炉建屋 (3階格納容器壁面7)	3.85E+03	4.98E+03	4.67E+01	8.71E-01
50	U1RB-4FS(Rag)	1号機原子炉建屋 (4階階段裏8)	3.22E+04	3.47E+04	2.85E+02	6.80E+00
51	U1RB-4FW(Rag)	1号機原子炉建屋 (4階壁面9)	4.63E+04	5.07E+04	3.64E+02	6.93E+00
52	U3RB-2FS	3号機原子炉建屋 (2階階段裏1)	3.84E+04	3.91E+04	3.14E+02	1.75E+01
53	U3RB-2FW-2(1)	3号機原子炉建屋 (2階壁面2)	9.24E+04	1.14E+05	5.51E+03	1.94E+02
54	U3RB-2FW-3	3号機原子炉建屋 (2階壁面3)	2.37E+04	3.03E+04	4.46E+02	2.90E+01
55	U3RB-2FC-4	3号機原子炉建屋 (2階格納容器壁面4)	1.49E+05	1.47E+05	8.91E+02	4.85E+01
56	U3RB-2FC-5	3号機原子炉建屋 (2階格納容器壁面焦げ跡5)	9.31E+04	9.19E+04	7.77E+02	1.24E+01
57	U3RB-2FW-1	3号機原子炉建屋 (2階壁面1)	1.18E+05	1.18E+05	9.73E+02	4.98E+01
58	U3RB-2FW-2(2)	3号機原子炉建屋 (2階壁面2)	8.90E+04	8.92E+04	1.67E+03	6.32E+01
59	U3RB-3FW-3	3号機原子炉建屋 (3階壁面3)	3.05E+04	3.06E+04	5.47E+02	2.71E+01
60	U3RB-3FW-4	3号機原子炉建屋 (3階壁面4)	4.06E+04	4.07E+04	7.60E+02	2.54E+01
61	U2RB-FHM-RT	2号機FHM操作室 (屋上部8)	2.03E+04	1.84E+04	4.40E+03	2.42E+01
62	U2RB-FHM-2FF	2号機FHM操作室 (2階操作室床面11)	1.26E+04	1.19E+04	6.66E+03	6.96E+01
63	U2RB-FHM-Con	2号機FHM操作室 (操作卓表面15)	2.07E+04	1.97E+04	2.05E+04	9.69E+01

# イメージングプレート分析結果(1)

## ➤ 1号機原子炉建屋内スミヤ(1)

**U1RB-1FS(Rag)**  
**1階階段裏1**

試料写真      イメージングプレート画像

50 mm      50 mm

**U1RB-1FW(Rag)**  
**1階壁面2**

**U1RB-2FS(Rag)**  
**2階階段裏3**

**U1RB-2FW(Rag)**  
**2階壁面4**

**U1RB-3FS(Rag)**  
**3階階段裏5**

**U1RB-3FW(Rag)**  
**3階壁面6**

# イメージングプレート分析結果(2)

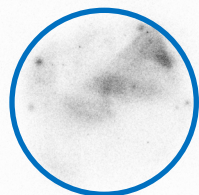
## ➤ 1号機原子炉建屋内スミヤ(2)

U1RB-3FC(Rag)  
3階格納容器壁面7

試料写真      イメージング  
プレート画像

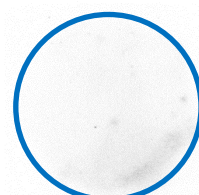


50 mm

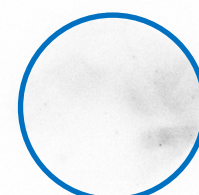


50 mm

U1RB-4FS(Rag)  
4階階段裏8

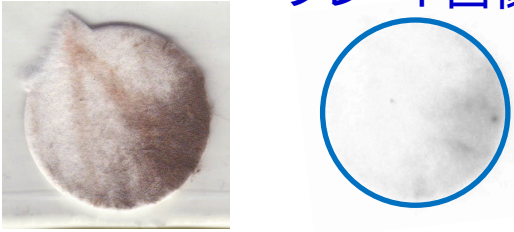
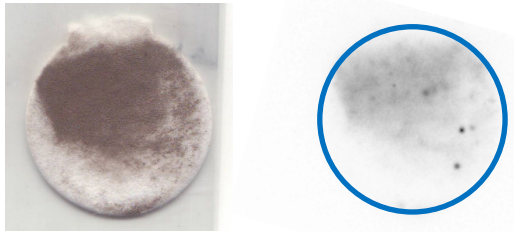
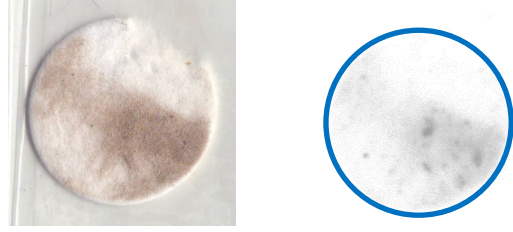
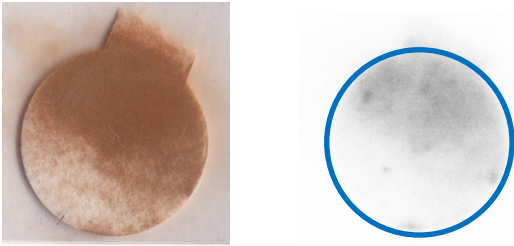
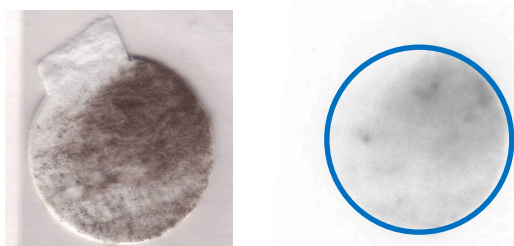
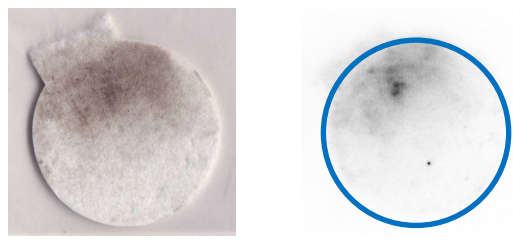


U1RB-4FW(Rag)  
4階壁面9



# イメージングプレート分析結果(3)

## ➤ 3号機原子炉建屋内スミヤ(1)

<p><b>U3RB-2FS</b> <b>2階階段裏1</b></p> <p>試料写真      イメージングプレート画像</p>  <p>25 mm      25 mm</p>	<p><b>U3RB-2FW-2(1)</b> <b>2階壁面2</b></p> 	<p><b>U3RB-2FW-3</b> <b>2階壁面3</b></p> 
<p><b>U3RB-2FC-4</b> <b>2階格納容器壁面4</b></p> 	<p><b>U3RB-2FC-5</b> <b>2階格納容器壁面焦げ跡5</b></p> 	<p><b>U3RB-2FW-1</b> <b>2階壁面1</b></p> 

# イメージングプレート分析結果(4)

## ➤ 3号機原子炉建屋内スミヤ(2)

<p><u>U3RB-2FW-2(2)</u> <u>2階壁面2</u></p> <p>試料写真      イメージングプレート画像</p>  <p>25 mm      25 mm</p>	<p><u>U3RB-3FW-3</u> <u>3階壁面3</u></p> 	<p><u>U3RB-3FW-4</u> <u>3階壁面4</u></p> 
--	--	---

# イメージングプレート分析結果(5)

## ➤ 2号機FHM操作室スミヤ

<p><u>U2RB-FHM-RT</u> <u>屋上部8</u></p> <p>試料写真      イメージングプレート画像</p>  <p>50 mm</p>  <p>50 mm</p>	<p><u>U2RB-FHM-2FF</u> <u>2階操作室床面11</u></p>  	<p><u>U2RB-FHM-Con</u> <u>操作卓表面15</u></p>  
---	--	---