

JAEAにおける試料分析について(2)

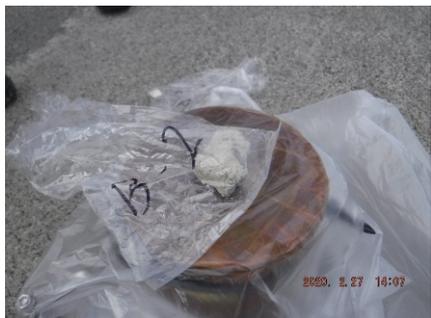
2020年11月12日

日本原子力研究開発機構
安全研究センター

試料の概要

○3号機タービン建屋内コンクリート瓦礫試料

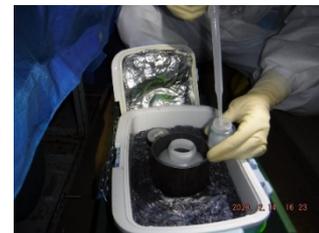
3号機原子炉建屋の水素爆発により生じた瓦礫が隣接するタービン建屋の天井を突き破ってタービン建屋内に落下したと推定されるもの(2020年2月採取)

U3TBC-A1	U3TBC-A2	U3TBC-A3	U3TBC-B2
			
青塗装	塗装なし	白塗装	塗装なし
220 μ Sv/h (2020/4/9測定)	45 μ Sv/h (2020/4/9測定)	32 μ Sv/h (2020/4/9測定)	34 μ Sv/h (2020/4/9測定)
56.0g	58.5g	14.7g	47.0g

○1号機及び2号機共用スタック基部ドレンサンプル水試料

スタック内の凝縮水や雨水が溜まったと推定されるもの(2016年9月採取)

約30 mlを分取して輸送(試料ID: U12SDW)



分析の概要

○目的

コンクリート瓦礫試料及びドレンサンプル水試料の分析を通じて3号機の原子炉建屋内に放出された放射性物質及び1号機の格納容器ベント時に共用スタックに流入した放射性物質の組成や化学形の推定に有用な情報を取得する。

- 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、 Cs_2MoO_4 がCsの主要な化学形になる可能性がある)。
- MCCIIにより中・難揮発性の放射性物質(Srや α 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)の瓦礫等への沈着密度(単位面積当たりの沈着量)が判ると、健康影響評価上重要なI-131(短半減期)の放出量を概略評価できる可能性がある。

○着目核種

Cs-134/137、Sr-90、Tc(Mo)-99、I-129、
 α 核種(Th、U、Pu、Am)、他

分析フロー（瓦礫試料）

瓦礫試料

試料調整（切断）

第14回会合において報告

γ 線放出核種分析
(Ge検出器)

SEM観察/元素分析
(SEM/EPMA)

浸漬試験

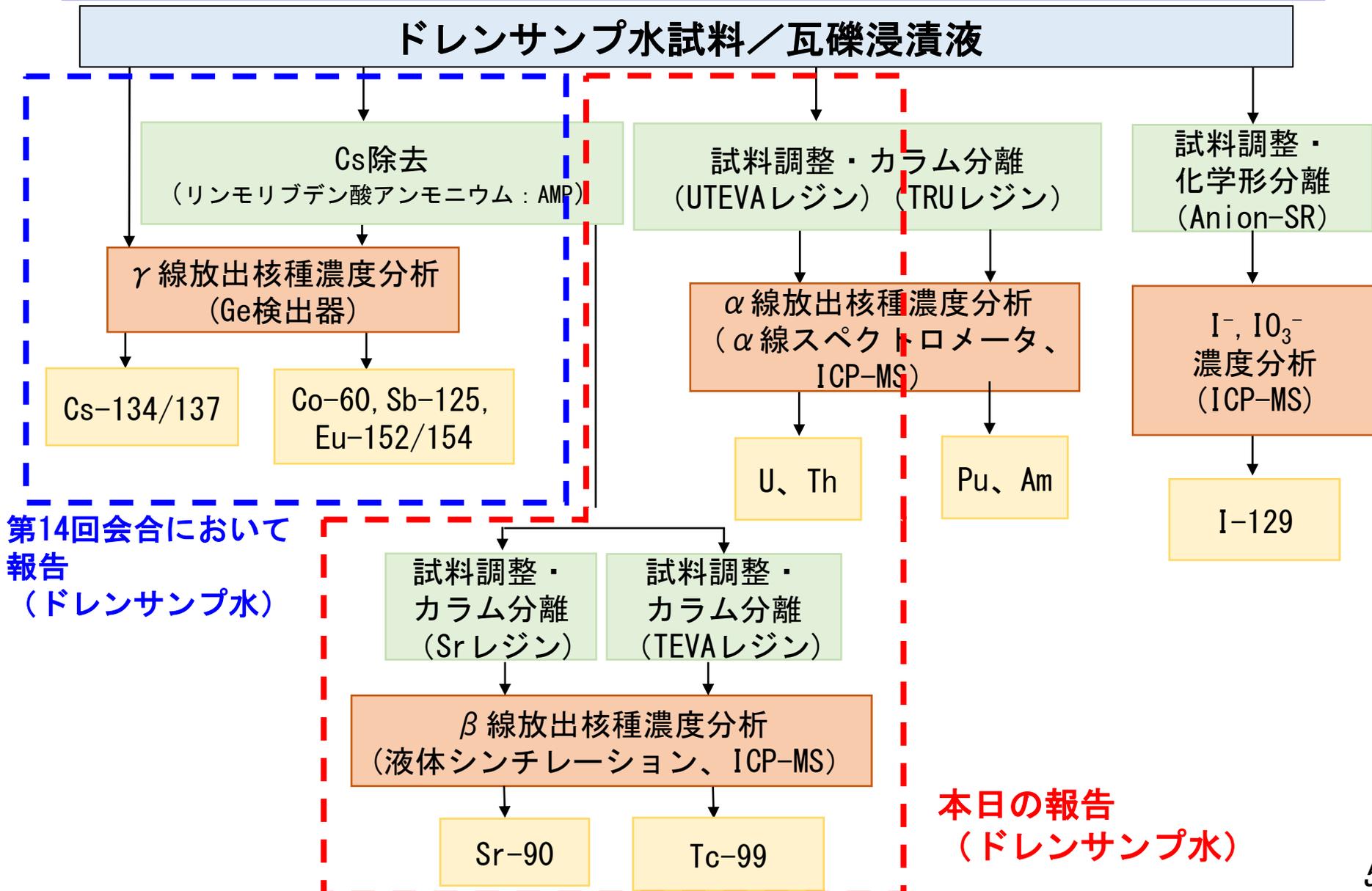
浸漬液（表面の可溶性核種）

核種分析



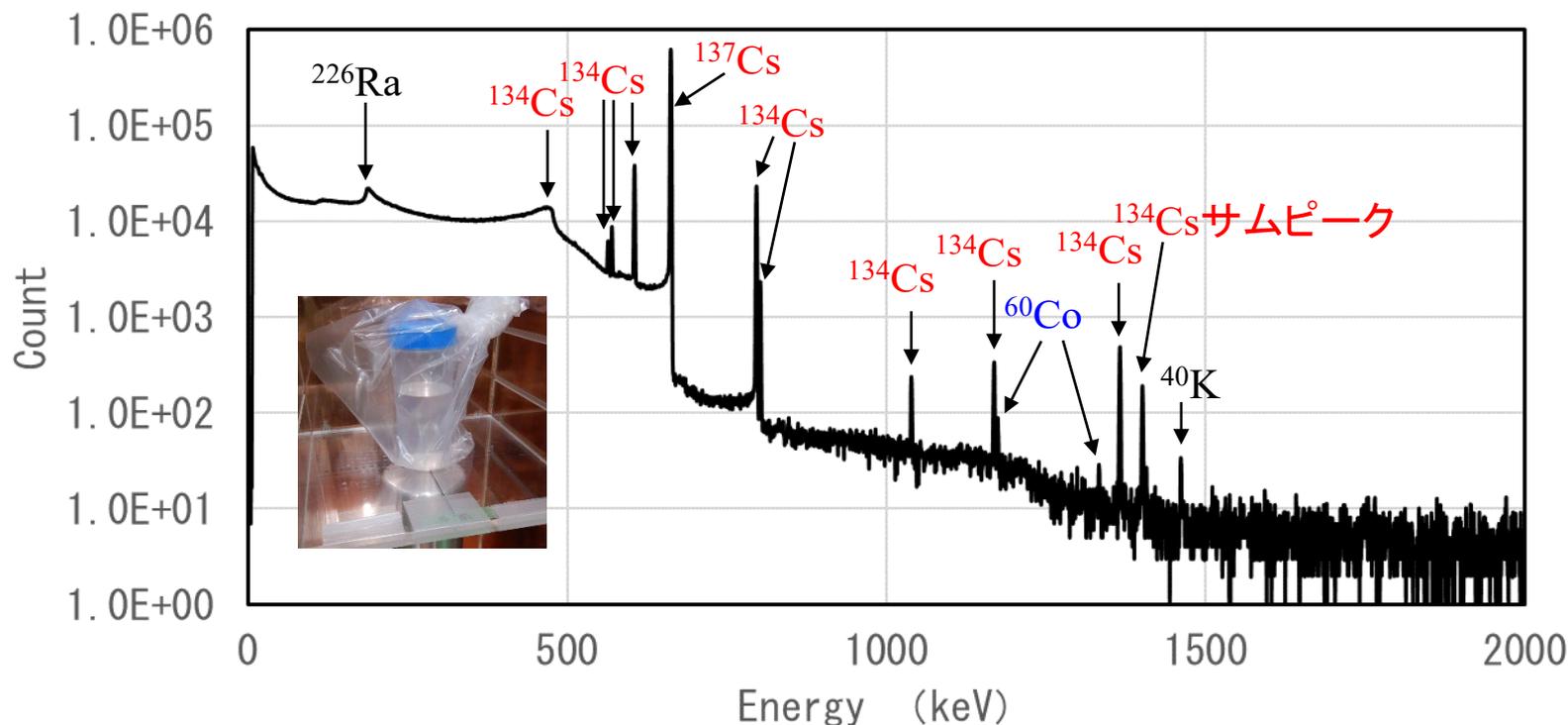
本日の報告
浸漬液の γ 線放出核種分析（定性分析）

分析フロー(ドレンサンプル水試料／瓦礫浸漬液)



瓦礫試料の浸漬液分析（定性分析）

- 瓦礫試料U3TBC-B2 (47.0 g)を7日間純水(91.4 g)に漬けて得た浸漬液の γ 線測定(約26万秒)を実施



- ✓ $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 、 ^{60}Co のピークを検出(瓦礫試料分析と同じ核種)
- ✓ 浸漬液の定量分析及び取り出した瓦礫試料の γ 線測定を実施予定

^{90}Sr 及び ^{99}Tc の分析フロー

Cs除去後ドレンサンプル水試料 (Sr、Re* 標準液添加 / 2M HNO_3)

*: Tcの回収率を
求めるため、
同様の化学挙動
を示すReを添加

0.1 ml分取

HNO_3 溶液 →

^{90}Sr 分析用試料
(8M HNO_3)

洗浄液 →
(8M HNO_3)

0.5 ml
Srレジソ

Sr以外を除去
(廃棄)

Sr溶離液 →
(0.01M HNO_3
3 ml)

0.2 ml分取 Sr回収液

ICP-MS測定
(Sr回収率)

液体シンチレーション測定
(^{90}Sr 濃度)

2.5 ml分取

純水 →

^{99}Tc 分析用試料
(1M HNO_3)

洗浄液 →
(1M HNO_3)

0.5 ml
TEVAレジソ

Tc、Re以外を除去
(廃棄)

Tc溶離液 →
(8M HNO_3
1.5ml)

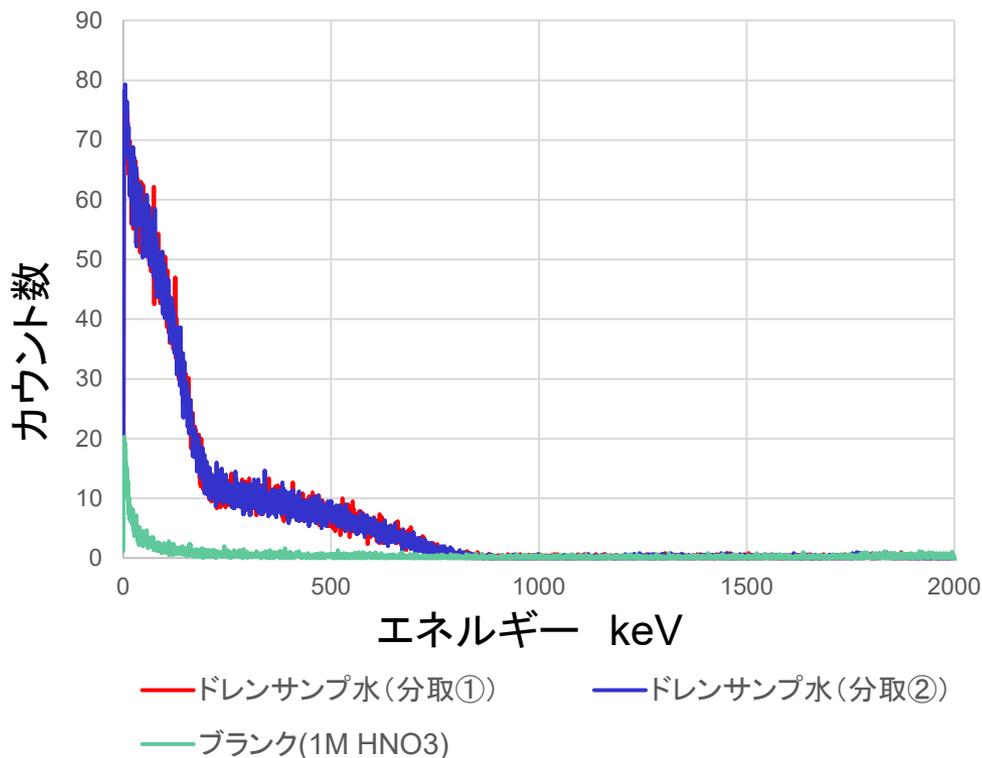
0.05ml分取 Tc回収液

ICP-MS測定
(Re*回収率)

液体シンチレーション測定
(^{99}Tc 濃度)

ドレンサンプル水試料の分析結果 (Sr)

^{90}Sr の液体シンチレーションスペクトル



- ✓ Srの回収率: $92 \pm 8 \%$
- ✓ 回収率補正後の ^{90}Sr 濃度 :
 $47 \pm 4 \text{ Bq/ml}$
 $(51 \pm 4 \text{ Bq/ml}^{*1}、59 \pm 5 \text{ Bq/ml}^{*2})$
 $\rightarrow 1.3 \times 10^{-13} \text{ mol/ml}^{*2}$

*1 : 半減期を考慮して推定した試料採取時
(2016年9月12日)の値
 *2 : 半減期を考慮して推定した事故当時の値
 *3 : ORIGEN2による評価
(JAEA-Data-Code-2012-018)

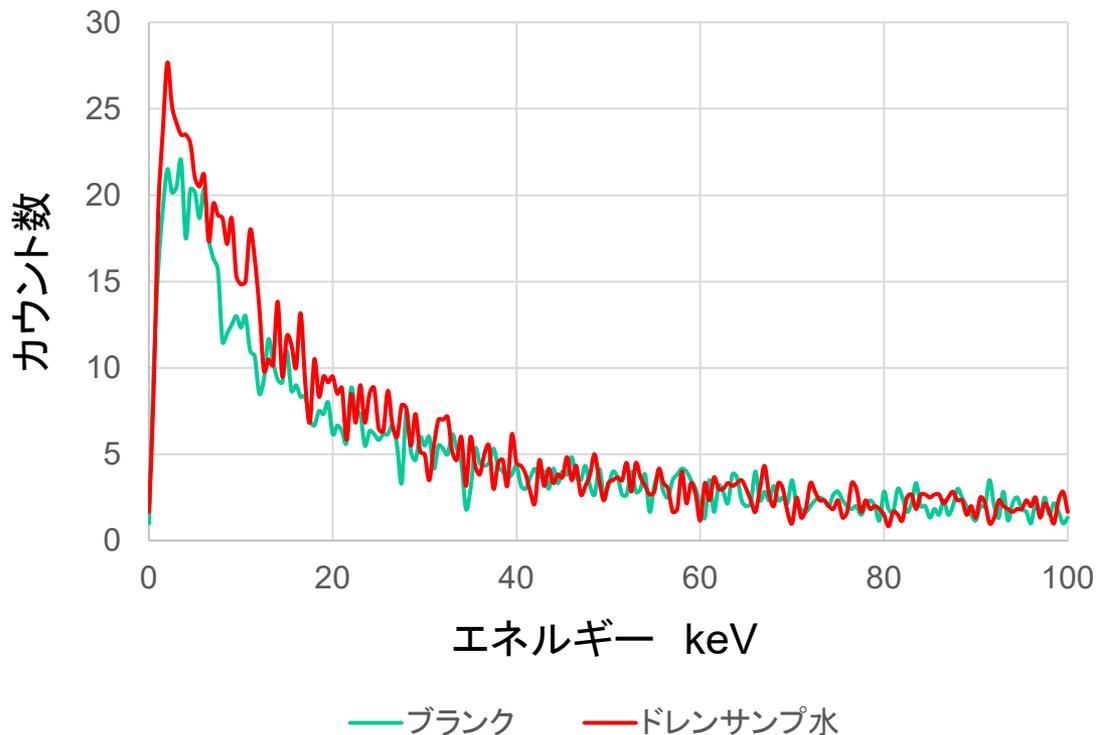
- ✓ 第14回会合で報告した ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{125}Sb の濃度:

^{134}Cs : $5.1 \times 10^4 \text{ Bq/ml}^{*2}$ ($8.0 \times 10^{-12} \text{ mol/ml}$)、 ^{137}Cs : $5.9 \times 10^4 \text{ Bq/ml}^{*2}$ ($1.4 \times 10^{-10} \text{ mol/ml}$)

^{125}Sb : $1.5 \times 10^2 \text{ Bq/ml}^{*2}$ ($3.3 \times 10^{-14} \text{ mol/ml}$)

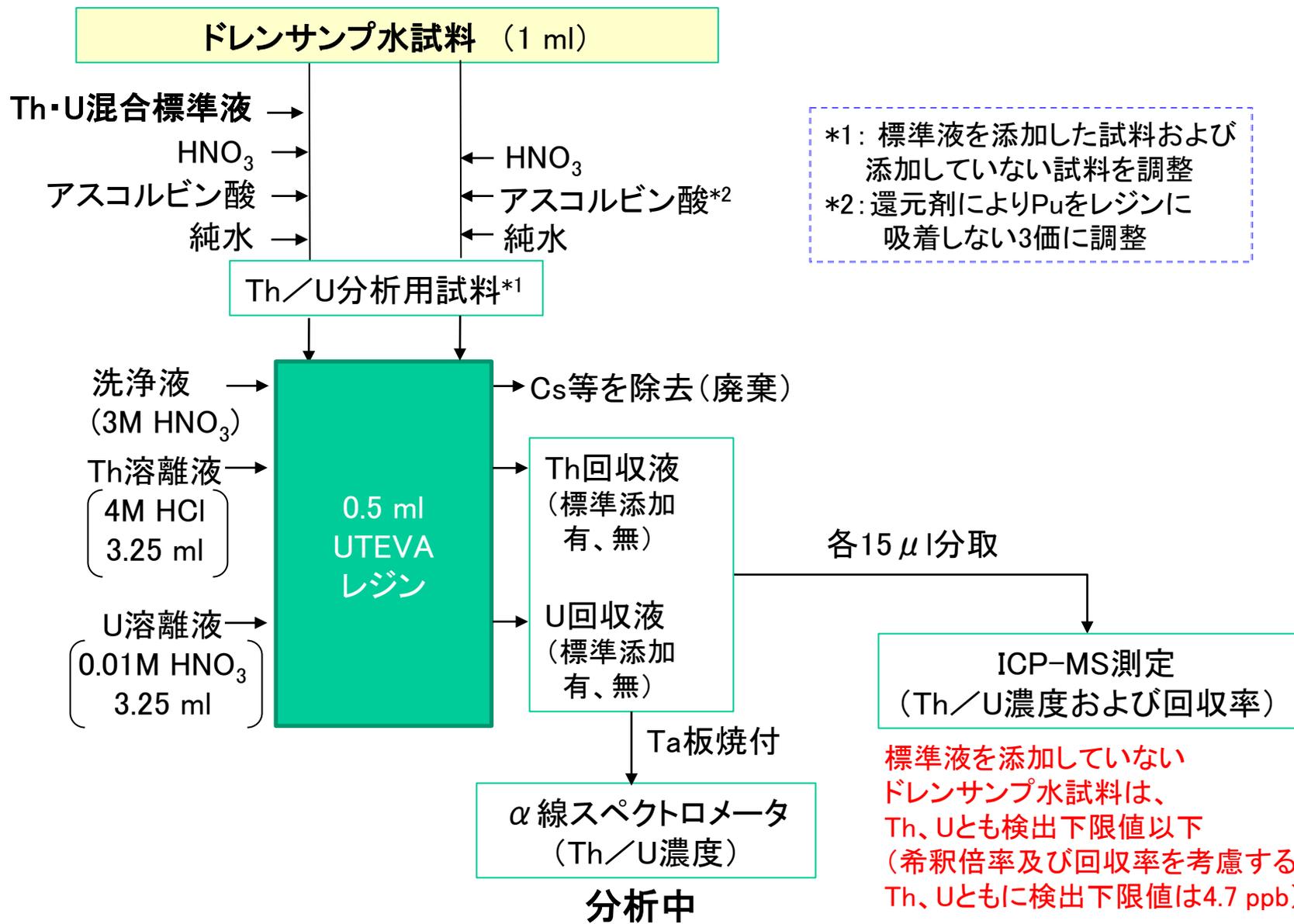
- ✓ ^{137}Cs を基準としたモル比 $^{137}\text{Cs}:^{134}\text{Cs}:^{90}\text{Sr}:^{125}\text{Sb} = 1.0:5.9 \times 10^{-2}:9.5 \times 10^{-4}:2.4 \times 10^{-4}$
 (1号機初期インベントリのモル比 *3 $^{137}\text{Cs}:^{134}\text{Cs}:^{90}\text{Sr}:^{125}\text{Sb} = 1.0:6.5 \times 10^{-2}:7.1 \times 10^{-1}:4.9 \times 10^{-3}$)

ドレンサンプル水試料の分析結果 (Tc)



✓ ドレンサンプル水試料のカウント数はblankと同程度

Th/U分析フロー及びICP-MS測定結果



*1: 標準液を添加した試料および添加していない試料を調整
 *2: 還元剤によりPuをレジんに吸着しない3価に調整

まとめ

黒字: 第14回会合で報告
青字: 今回追加

➤ 瓦礫試料

- ・ γ 線分析: $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 、 ^{60}Co を検出
- ・ SEM/EPMA分析: コンクリートに起因する成分のみ検出。核種の検出は無し
- ・ 浸漬液の γ 線分析(定性分析): $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 、 ^{60}Co を検出

➤ ドレンサンプル水試料

- ① 未処理試料の定量分析: ^{134}Cs (2.4×10^3 Bq/ml)、 ^{137}Cs (4.8×10^4 Bq/ml)
- ② Cs除去後定性分析: ^{125}Sb 、 ^{60}Co の存在可能性
- ③ Cs除去後定量分析: ^{125}Sb (14 Bq/ml)、 ^{60}Co (<0.68 Bq/ml)
- ④ Sr-90: 47 ± 4 Bq/ml
- ⑤ Tc-99: ブランクとの差は僅少
- ⑥ ICP-MS測定による α 核種 (Th、U): 検出下限値(4.7 ppb)以下

➤ 今後の予定

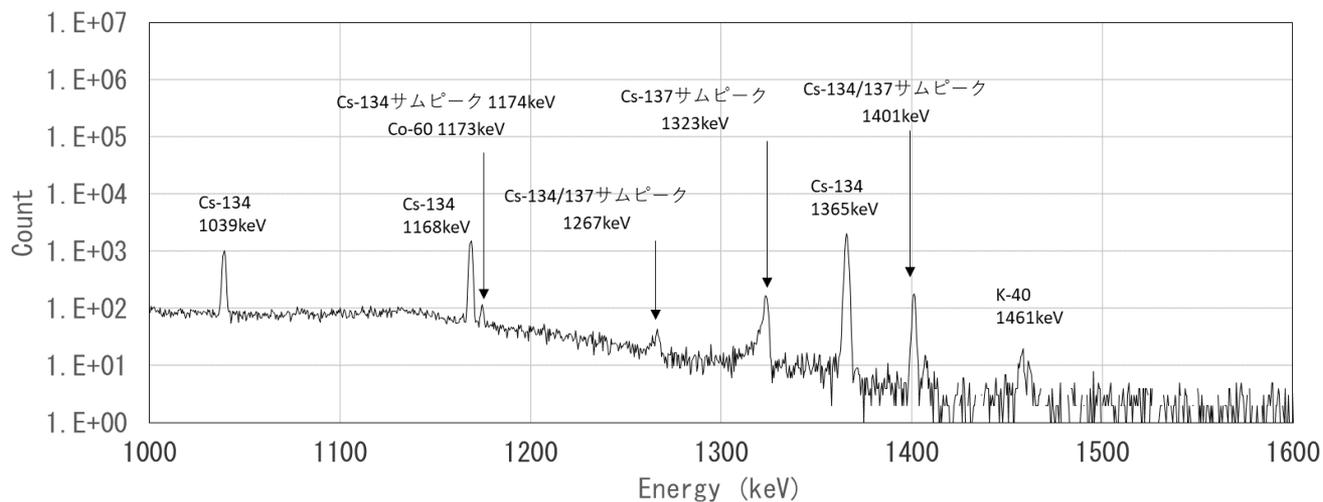
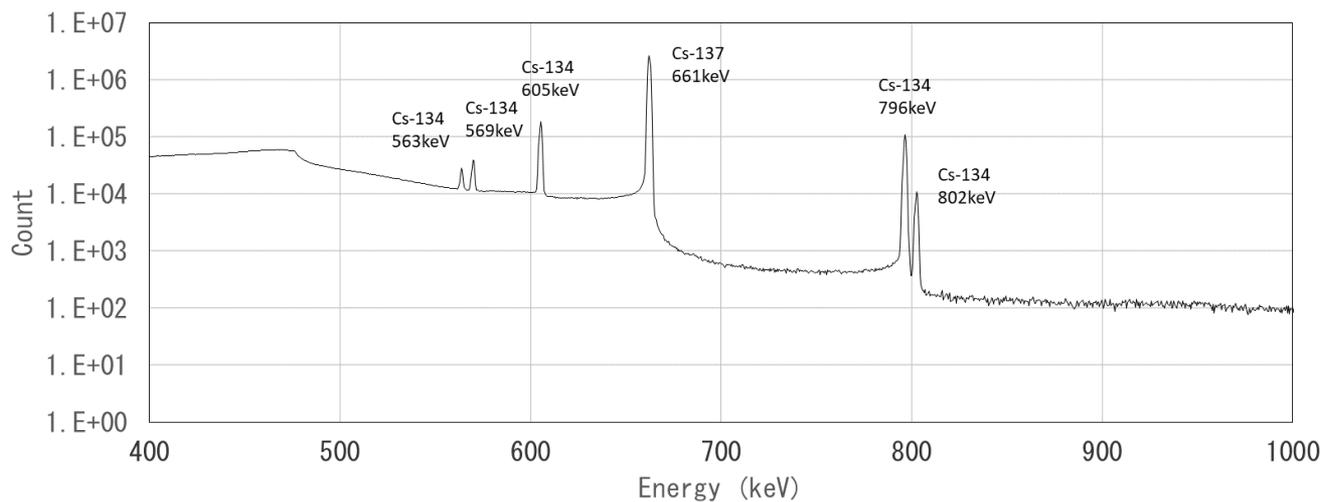
- ・ 瓦礫試料: 浸漬液の核種濃度分析、浸漬後瓦礫試料の核種分析
- ・ ドレンサンプル水試料: ^{129}I 、Pu、Amの定量分析

参考資料

第14回会合資料4-2の抜粋

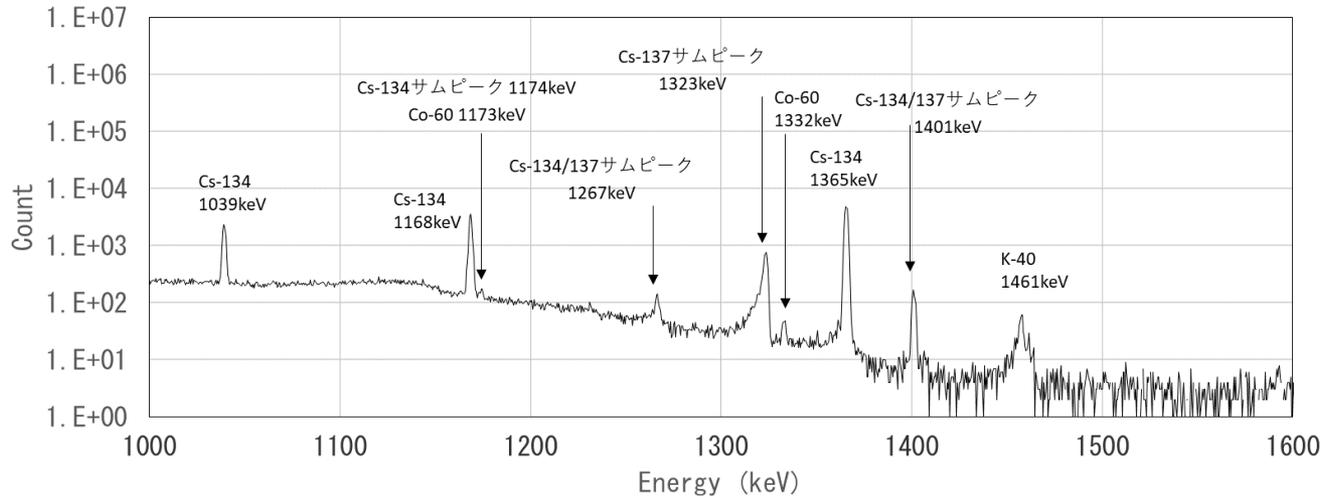
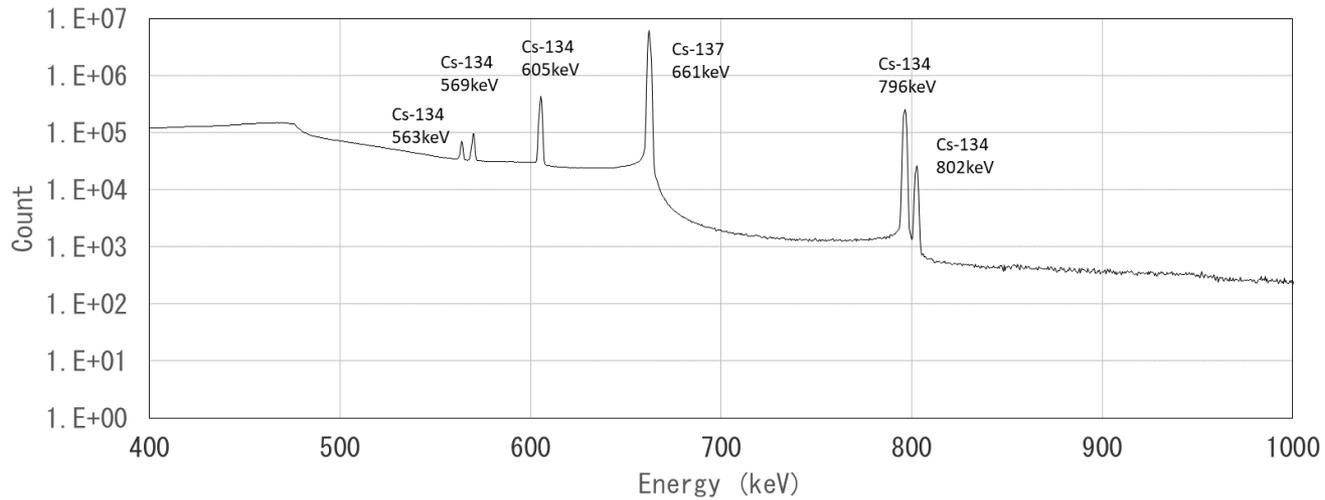
瓦礫試料の γ 線分析結果 (1/4)

U3TBC-A1



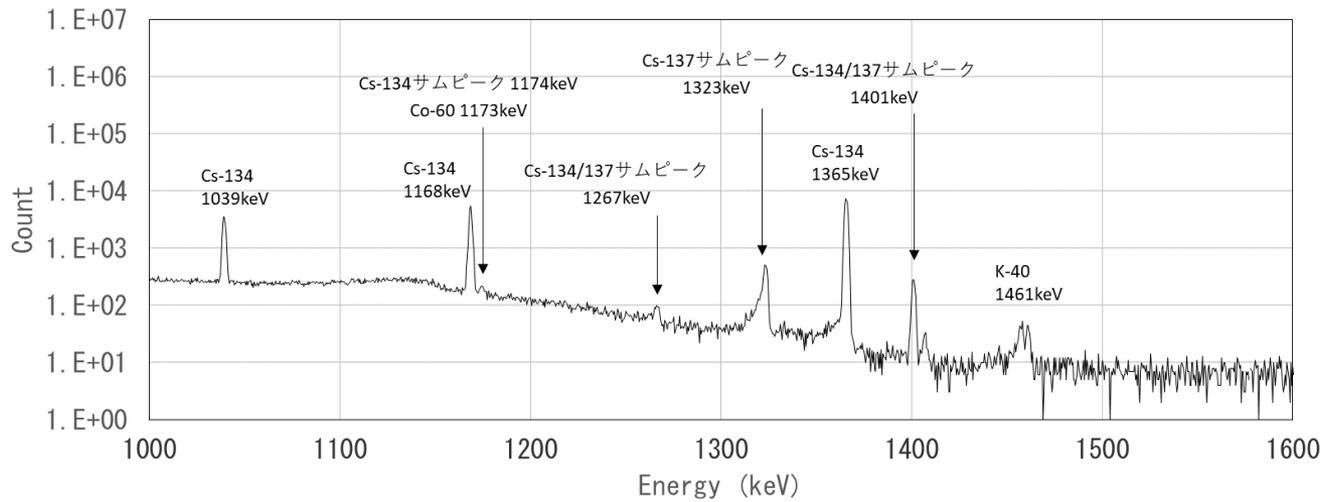
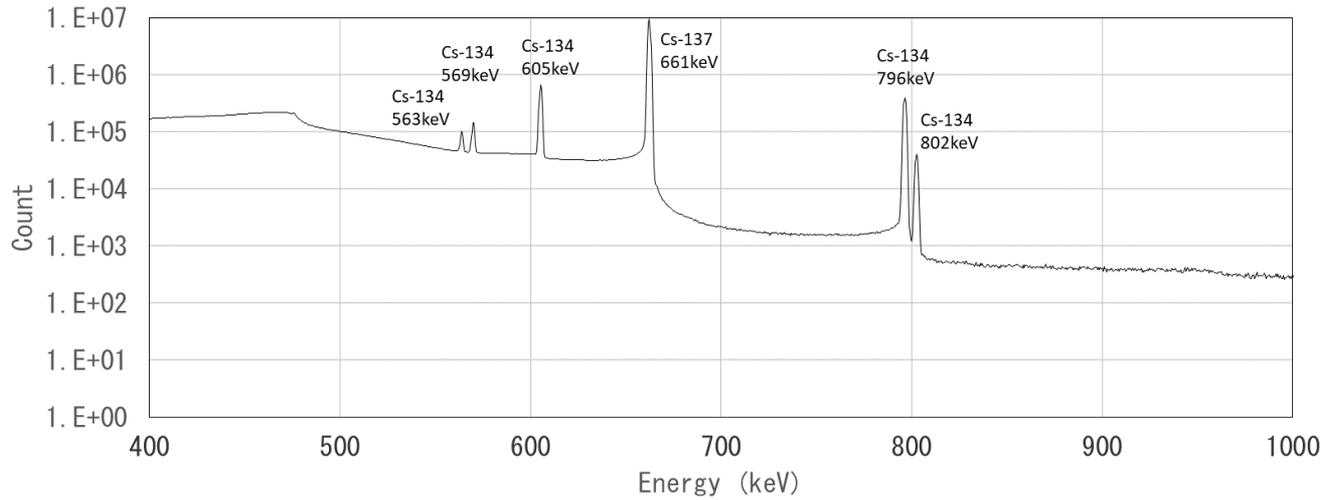
瓦礫試料の γ 線分析結果 (2/4)

U3TBC-A2



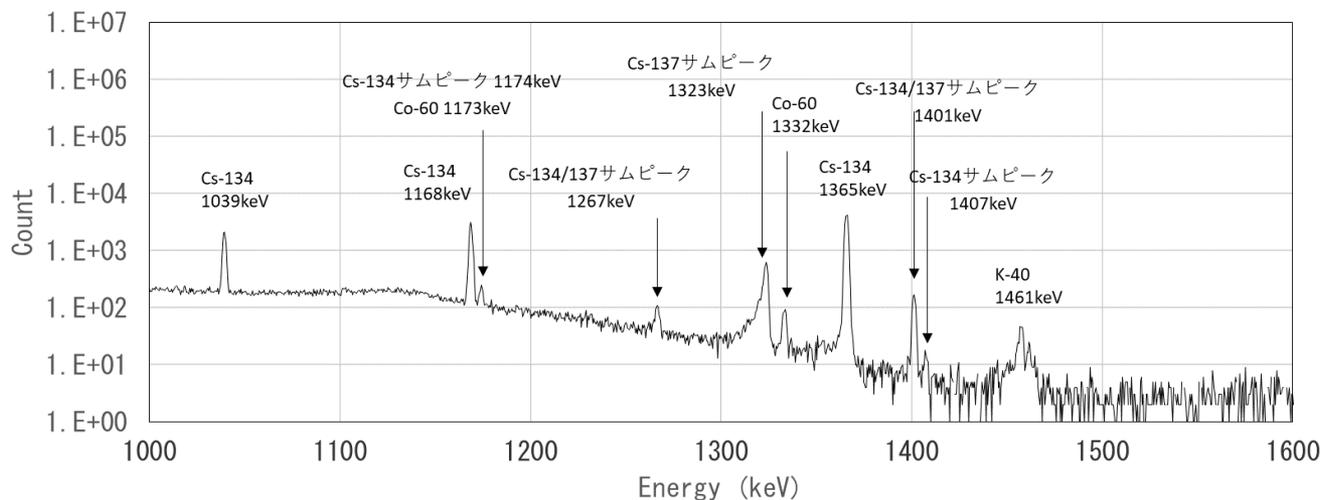
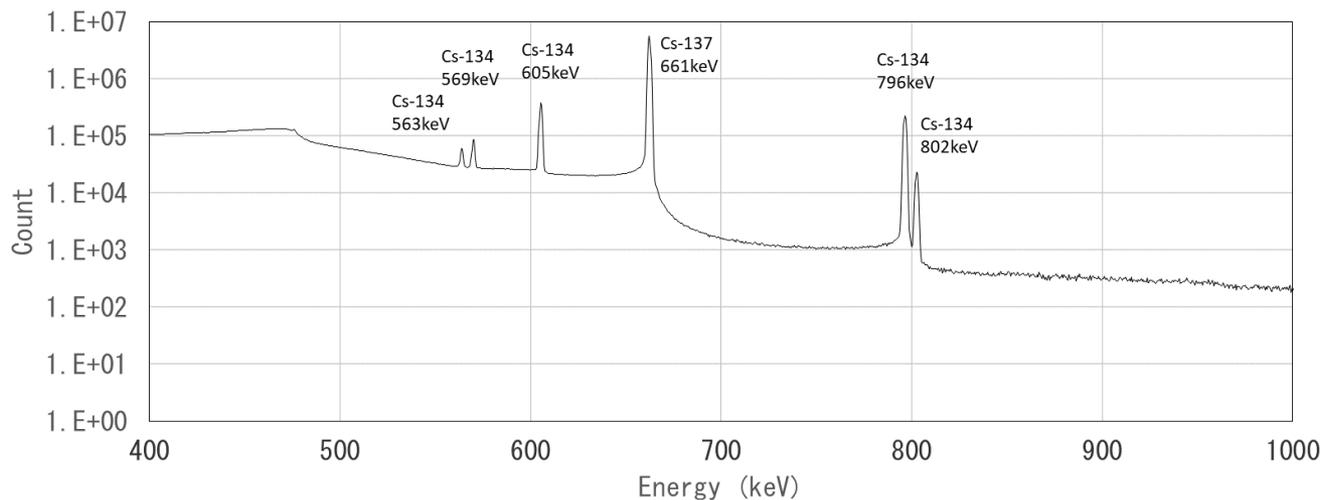
瓦礫試料の γ 線分析結果 (3/4)

U3TBC-A3

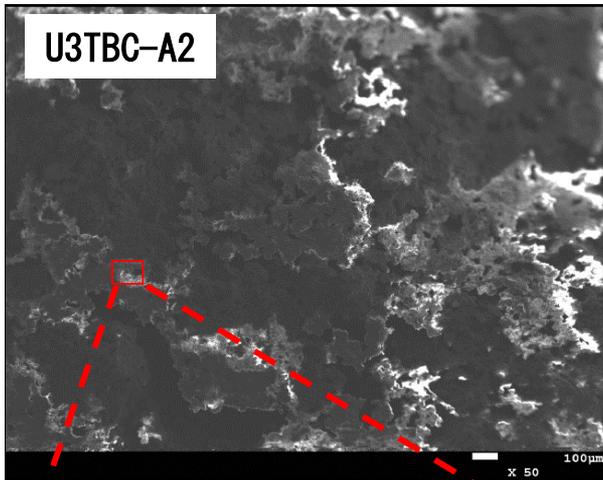


瓦礫試料の γ 線分析結果 (4/4)

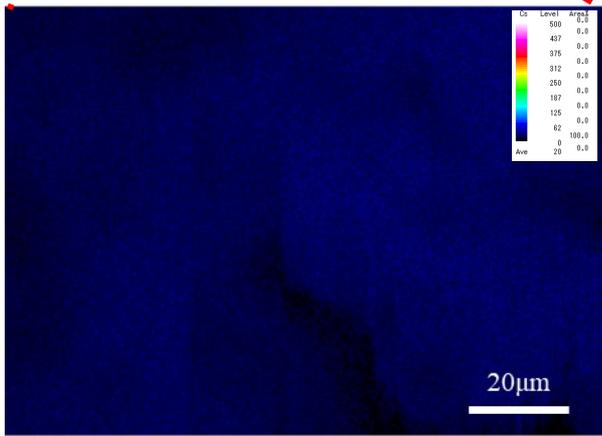
U3TBC-B2



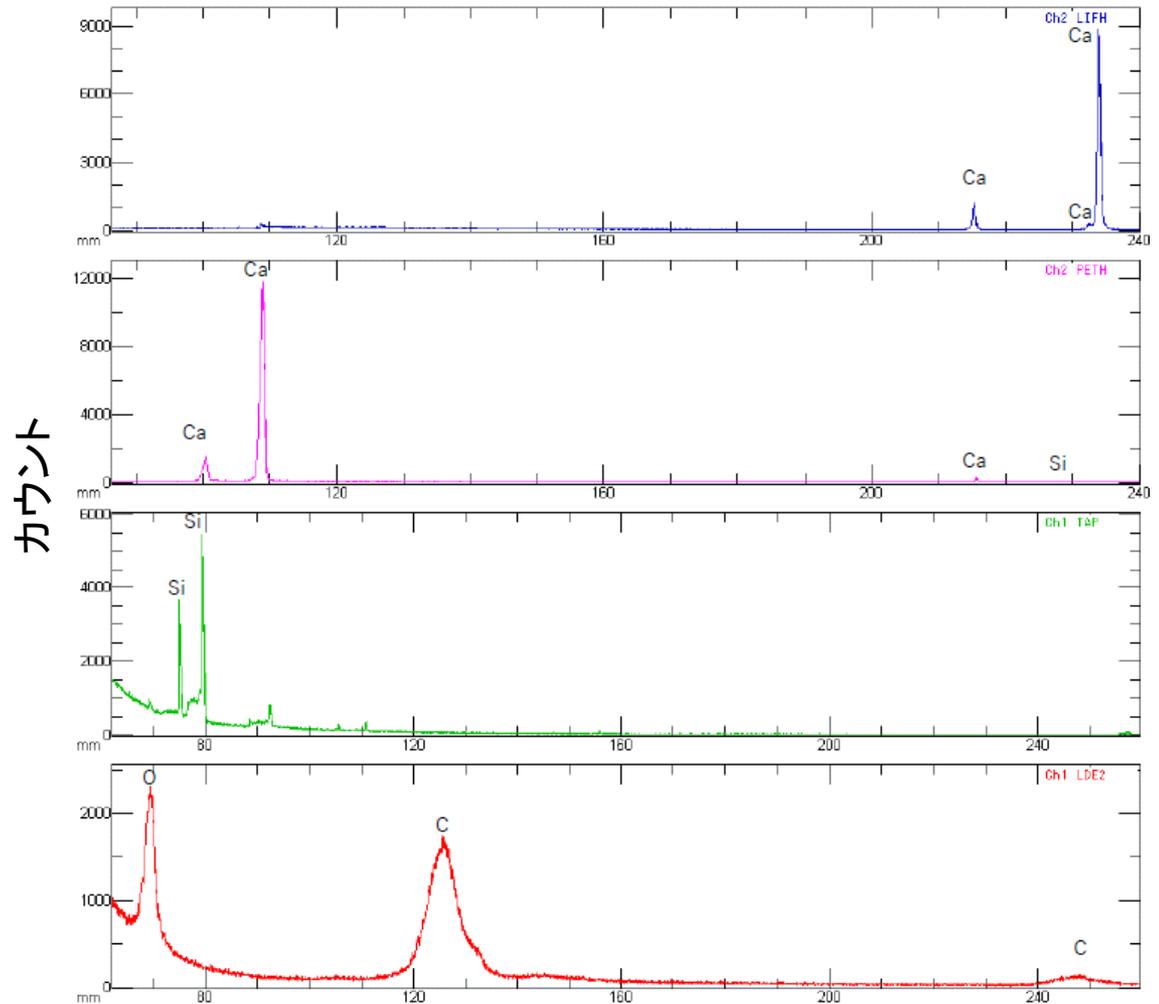
瓦礫試料のSEM/EPMA分析結果



SEM観察



Csマッピング



点分析

- コンクリートに起因した成分を検出
- 核種の検出は無し

ドレンサンプル水試料の調整

ドレンサンプル水の分取

0.03 ml



0.03 ml
分取試料

①γ線測定(定量分析)

ドレンサンプル水の分取/Cs除去

5 ml

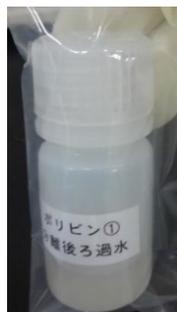
← Co、Ru、Rh、Eu、Cs、Sr、
Re、Sb、Se 標準液
各5 μl (収率確認のため)

← HNO₃ 約0.76 ml

← AMP 約0.02 g

攪拌・ろ過 (Cs除去)

ろ液 (Cs除去液)



Cs除去液 約5 ml

②γ線測定(定性分析)
→Cs以外の核種同定

0.026 ml分取

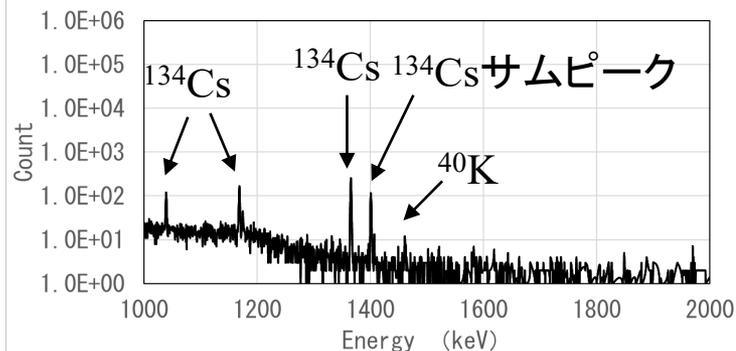
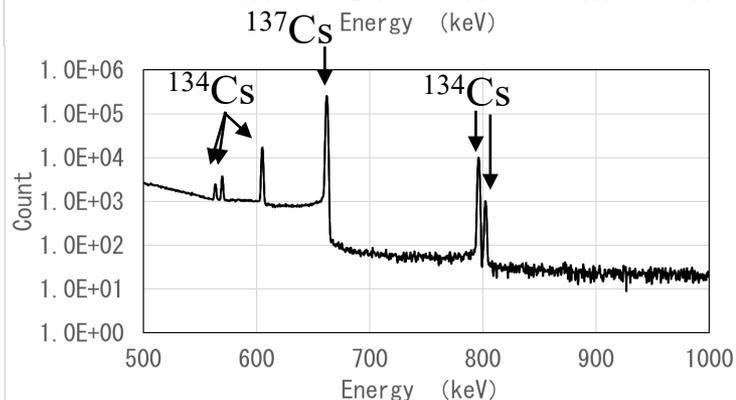
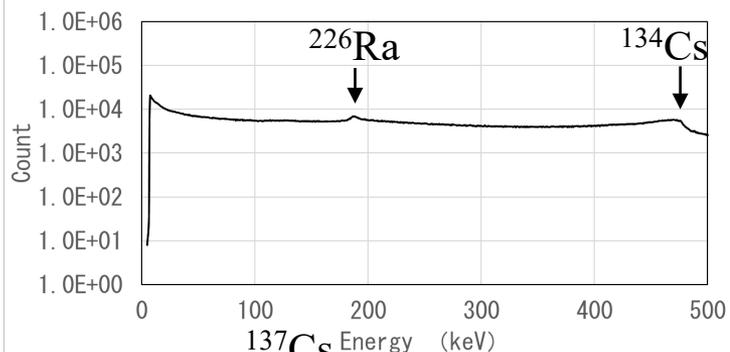


Cs除去液0.026 ml
分取試料

③γ線測定(定量分析)
→定性分析で検出された
核種の定量

ドレンサンプル水試料(未処理)の定量分析結果

➤ ドレンサンプル水の γ 線測定(7万2千秒)を実施



✓ ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の定量分析

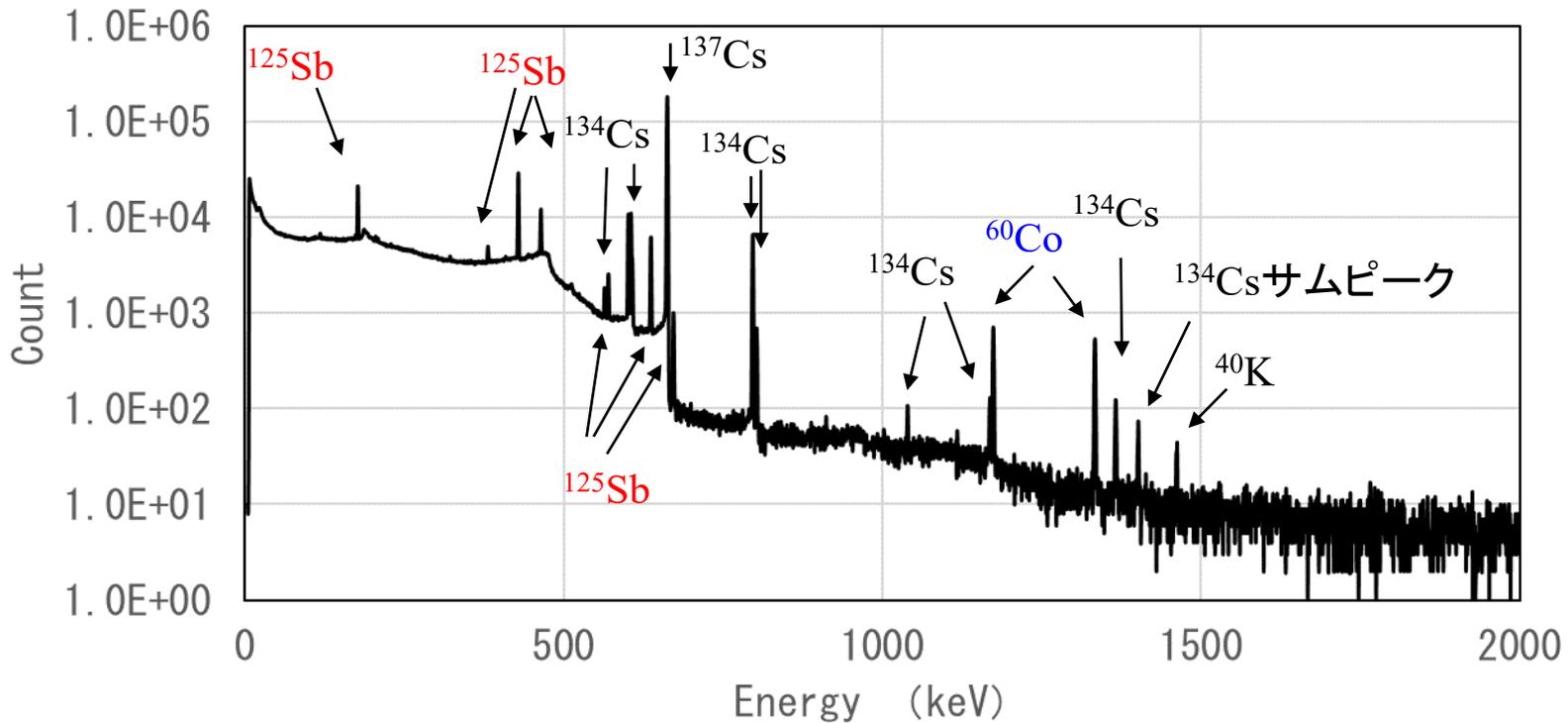
^{134}Cs : 2.4×10^3 Bq/ml (5.1×10^4 Bq/ml ※)

^{137}Cs : 4.8×10^4 Bq/ml (5.9×10^4 Bq/ml ※)

※ : 半減期を考慮して推定した事故当時の値

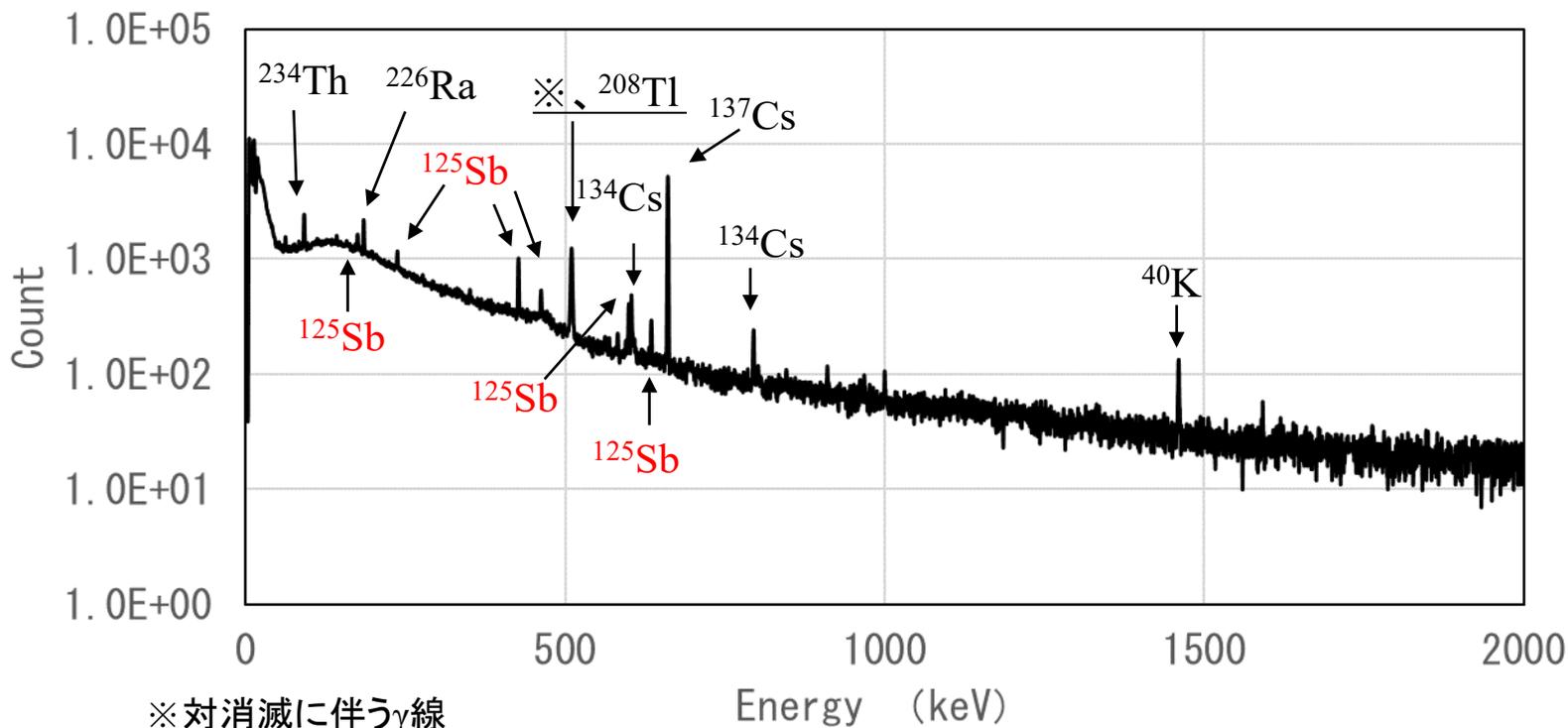
Cs除去液の定性分析結果

- Cs以外の核種を同定するため、Cs除去液の γ 線測定(約35万秒)を実施



Cs除去液の定量分析結果

- Cs除去液で検出された¹²⁵Sbおよび⁶⁰Coの濃度を定量するため、 γ 線測定(約120万秒)を実施



- ¹²⁵Sb: 14 Bq/ml (1.5×10^2 Bq/ml ※ ※)
- ⁶⁰Co: 検出限界 (0.68 Bq/ml) 未満

※ ※ : 半減期を考慮して推定した事故当時の値