

JAEAにおける試料分析の状況

- 中間とりまとめ未掲載の令和2年度成果 -

2021年7月8日

日本原子力研究開発機構
安全研究センター

報告内容

- (1) 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(試料ID: U12SDW)に関する Pu、Am、I-129、Moの分析結果
- (2) 2号機原子炉建屋スミヤ試料の採取位置情報(前回検討会資料への情報追加)

分析の概要

○目的

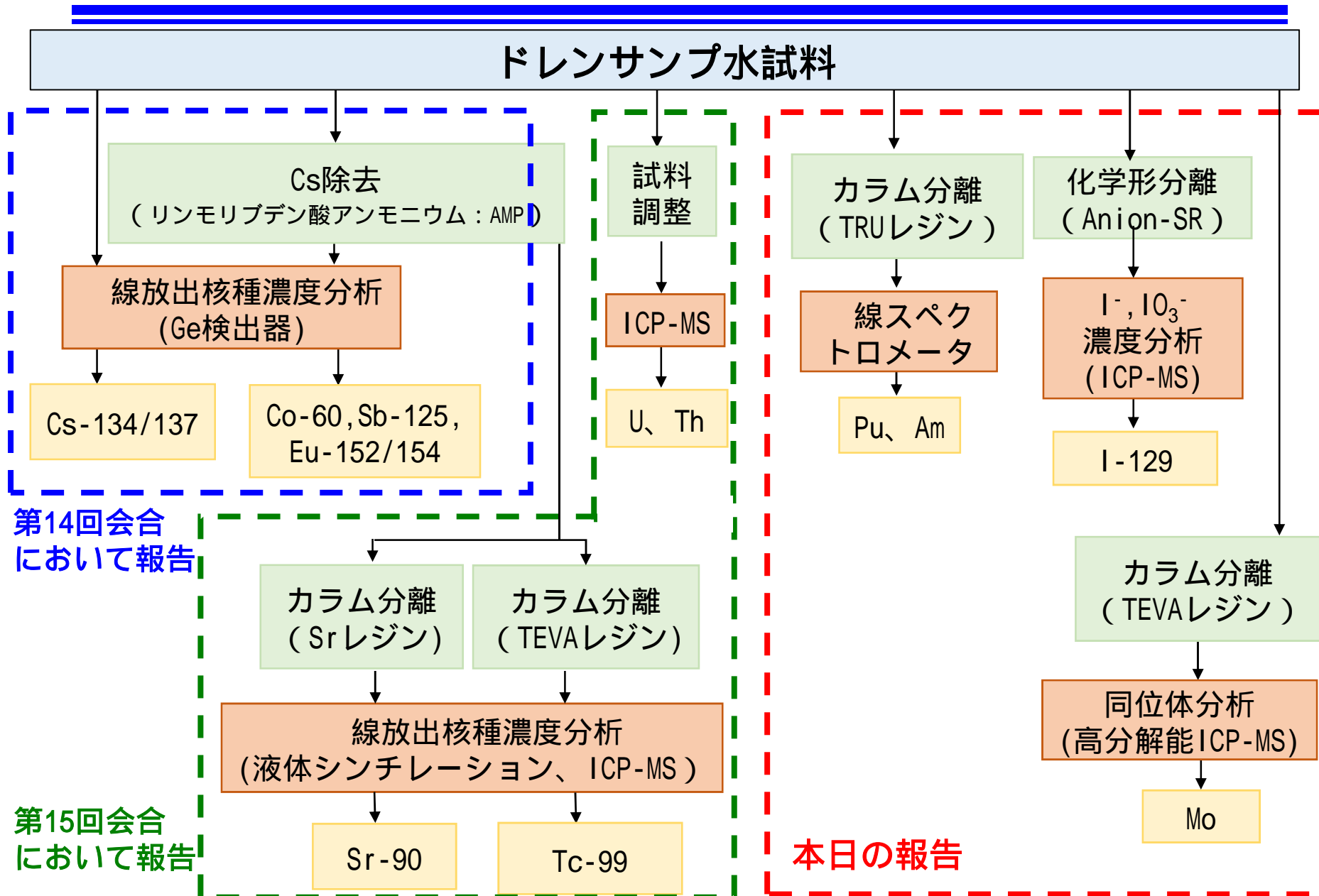
1 / 2号機共用スタックのドレンサンプル水試料の分析を通じて1号機の格納容器ベント時に共用スタックに流入した放射性物質の組成や化学形の推定に有用な情報を取得する。

- 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 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)の濃度が判ると、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。

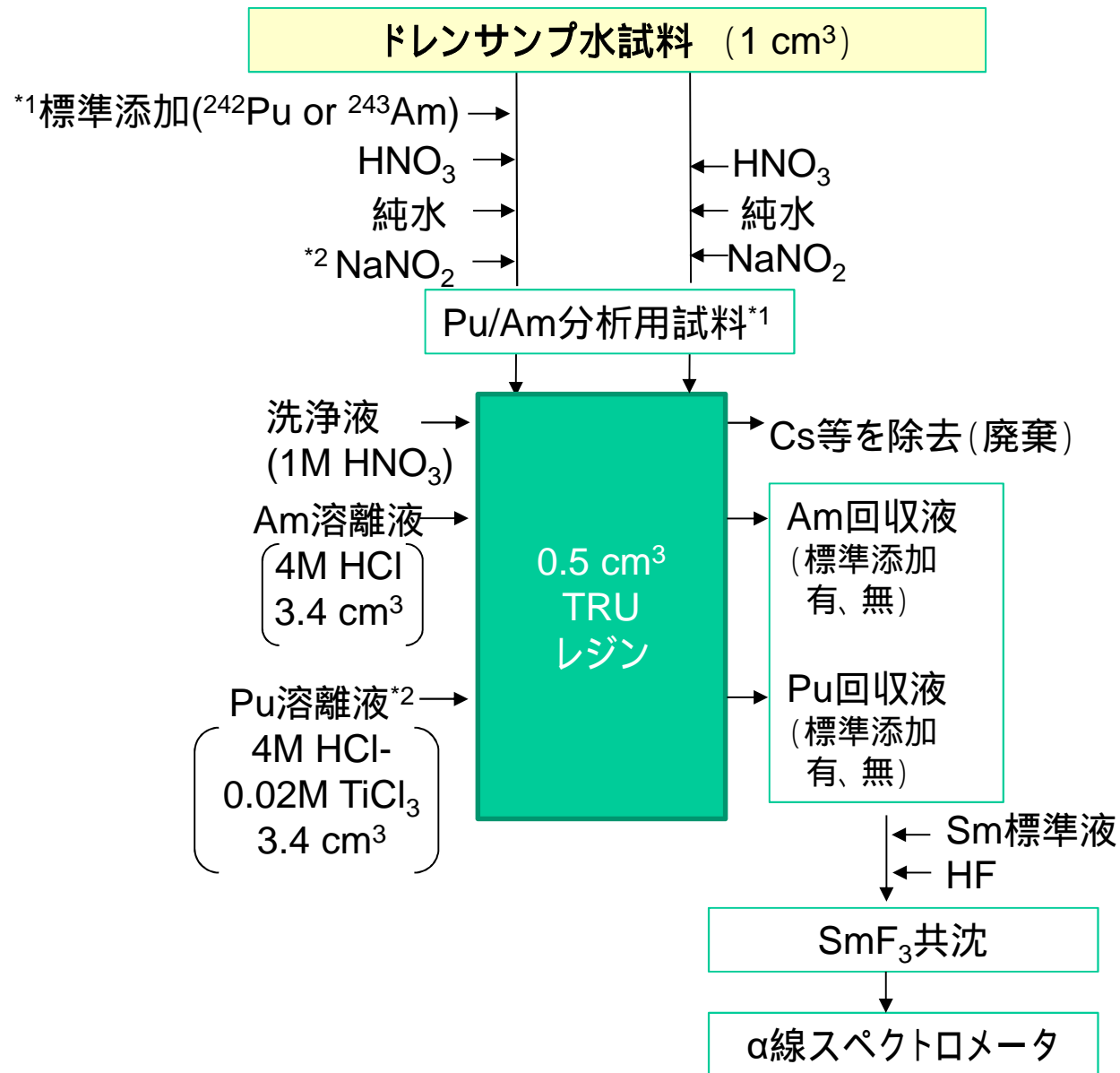
着目核種

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

分析フロー



Pu、Amの分析フロー



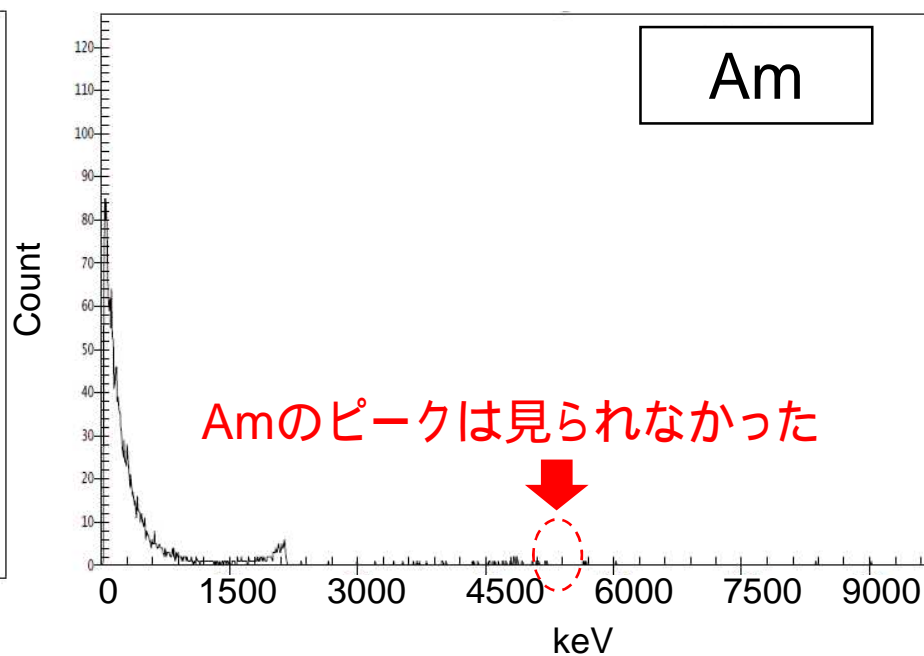
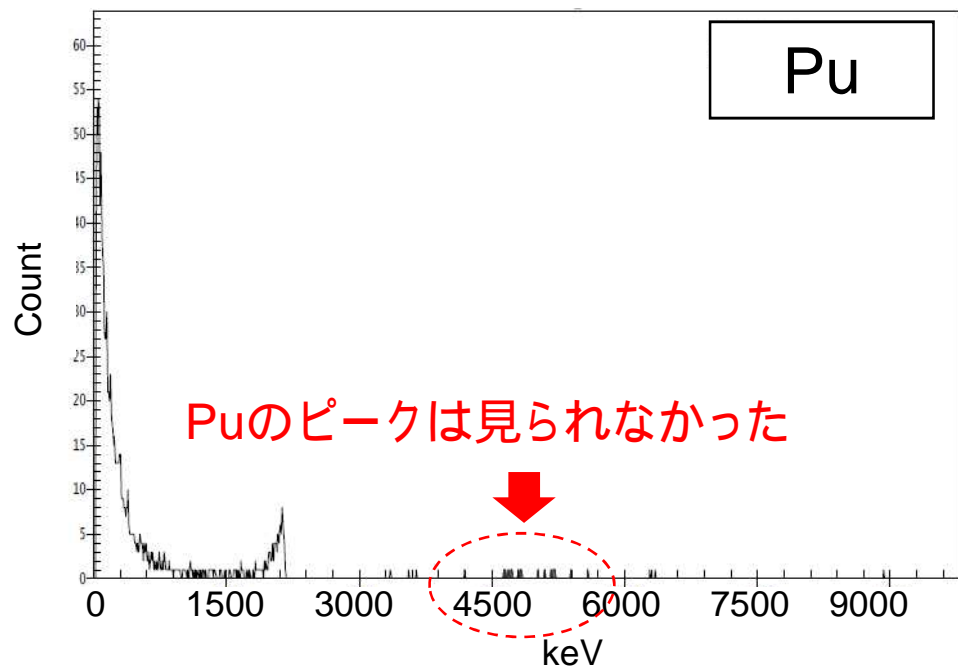
*1: PuまたはAm標準を添加した試料(2試料)および添加していない試料(1試料)を調整

*2: Puを4価に調整

*3: 還元剤(TiCl₃)によりPuを3価に調整して溶離

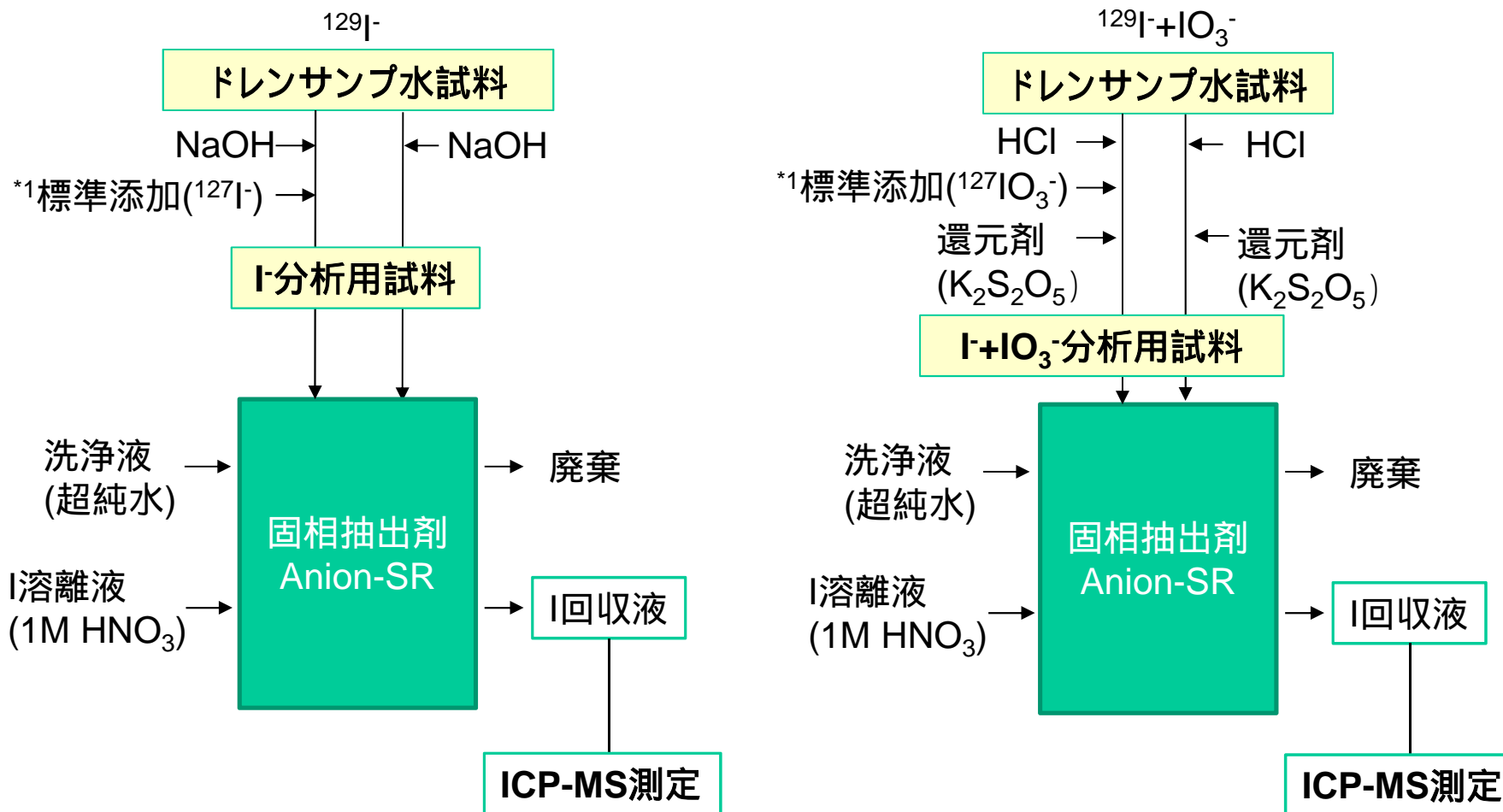
Pu、Amの分析結果 (試料ID: U12SDW)

- ドレンサンプル水試料: U12SDW
- α線測定時間: 20万秒



Pu及び Am濃度 : 検出下限値 (2mBq cm⁻³) 以下

^{129}I の分析フロー



*1: 標準を添加した試料および
添加していない試料を調整

^{129}I の分析結果 (試料ID: U12SDW)

➤ ^{129}I 濃度^{*1} : $1.6 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$

$$\left(\begin{array}{l} ^{129}\text{I}^- : 1.5 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3} \\ ^{129}\text{IO}_3^- : 1.9 \times 10^{-11} \text{ mol cm}^{-3} \end{array} \right)$$

➤ ^{137}Cs 濃度^{*2} : $1.4 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$
(第14回会合で報告)

I及びCsの元素濃度を、 ^{129}I 及び ^{137}Cs 濃度と1号機炉心内の同位体存在率から算出。

✓ $I_{(\text{total})} : 2.1 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$

✓ $\text{Cs}_{(\text{total})} : 3.4 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$

1号機炉心内の同位体存在率^{*3}

I		Cs	
質量数	存在率 (mol%)	質量数	存在率 (mol%)
127	18.13	133	41.12
129	78.69	134	2.60
130	0.00	135	15.99
131	2.40	136	0.01
132	0.04	137	40.27
133	0.55		
134	0.03		
135	0.16		



ドレンサンプル水中の元素濃度比^{*4} : $I_{(\text{total})} / \text{Cs}_{(\text{total})} = 0.6$

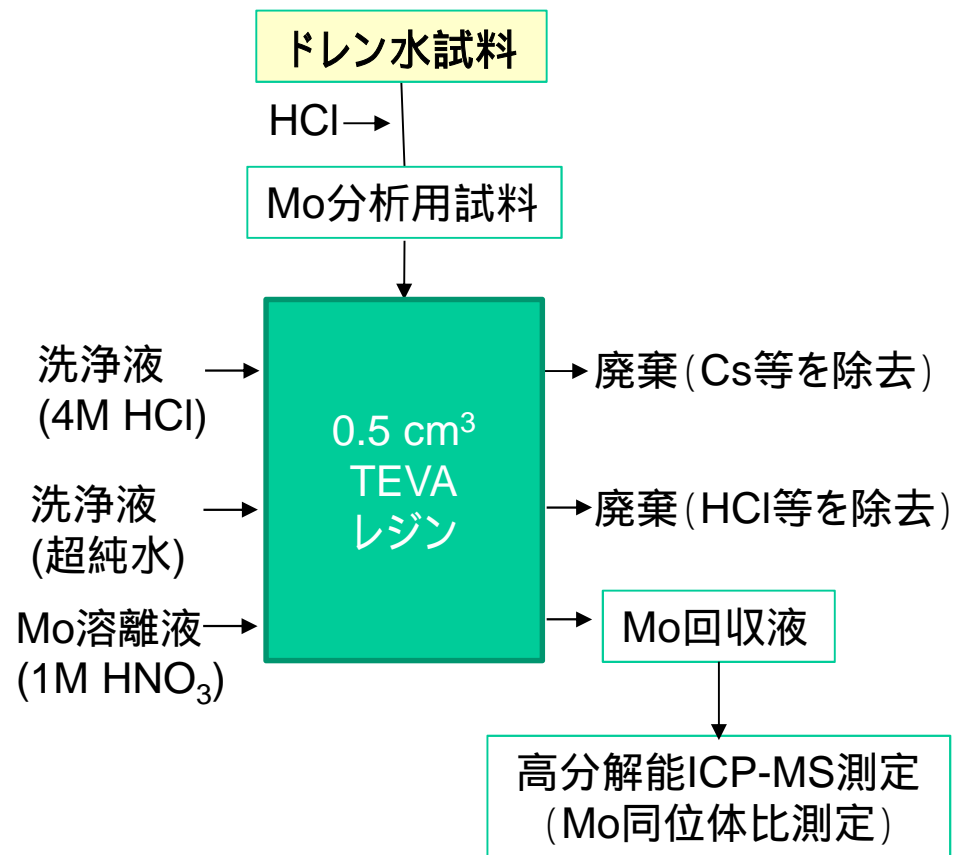
*1 : ^{129}I は長半減期(1570万年)のため、事故時から現在までの減衰を無視

*2 : 事故時に減衰補正した値

*3 : ORIGEN2による推定値 (JAEA-Data-Code-2012-018)

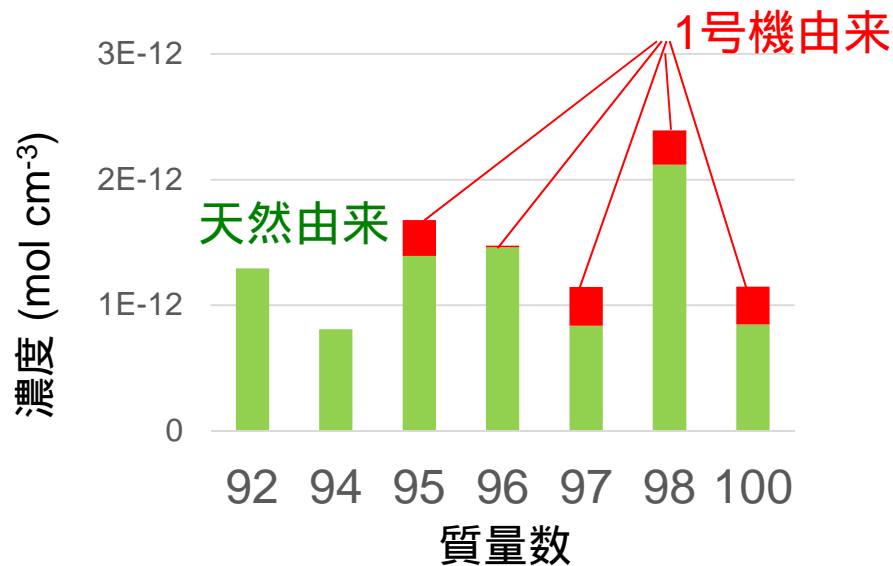
*4 : 現在までにヨウ素が揮発している可能性があるため、事故時の値は現在の値より高い可能性がある

Moの分析フロー

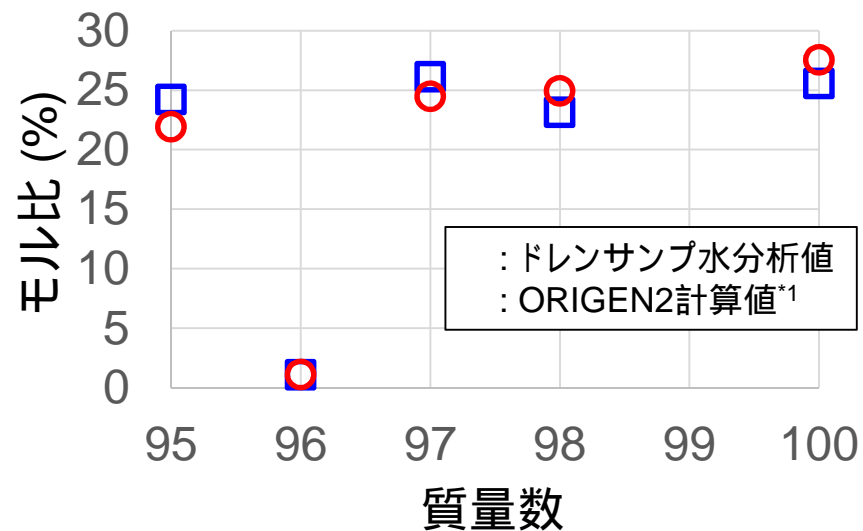


Moの分析結果 (試料ID: U12SDW)

➤ ドレンサンプル水中Mo同位体濃度



➤ 1号機由来のMo同位体比*1



- ・ドレンサンプル水中には天然(雨水等)由来及び1号機由来のMoが混在
 →炉内でほとんど生成しない⁹²Moを全量天然由来とみなし、⁹²Mo濃度と天然同位体比から、ドレンサンプル水中の天然由来のMo同位体濃度を算出
 →ドレン水中Mo濃度から天然由来Mo濃度を引き、1号機由来のMo同位体濃度を算出
- ・得られた1号機由来のMo同位体比は、ORIGEN2計算*1による1号機炉心のMo同位体比と整合

*1 :ORIGEN2による推定値 (JAEA-Data-Code-2012-018)

Mo濃度とCs濃度の比 (試料ID: U12SDW)

➤ Mo濃度 ($\text{Mo}_{(\text{total})}$)^{*1} : $1.3 \times 10^{-12} \text{ mol cm}^{-3}$

✓ Cs元素濃度 ($\text{Cs}_{(\text{total})}$)^{*2} : $3.4 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$

➡ ドレンサンプル水中の元素濃度比:
 $\text{Mo}_{(\text{total})} / \text{Cs}_{(\text{total})} = 0.004$

✓ Csに対してMoの量が極めて低いことから、1号機の炉心溶融が進展した期間においては Cs_2MoO_4 の生成が抑制される条件が支配的であったことが示唆された。

1号機炉心内の同位体存在率^{*2}

Mo		
質量数	半減期	同位体存在率 (mol%)
92	stable	0
94	stable	0
95	stable	21.91
96	stable	1.09
97	stable	24.47
98	stable	24.92
99	2.7 日	0.08
100	8.5×10^{18} 年	27.54

*1 : Moはほぼ安定のため、事故時から現在までの減衰を無視

*2 : 事故時に減衰補正した値

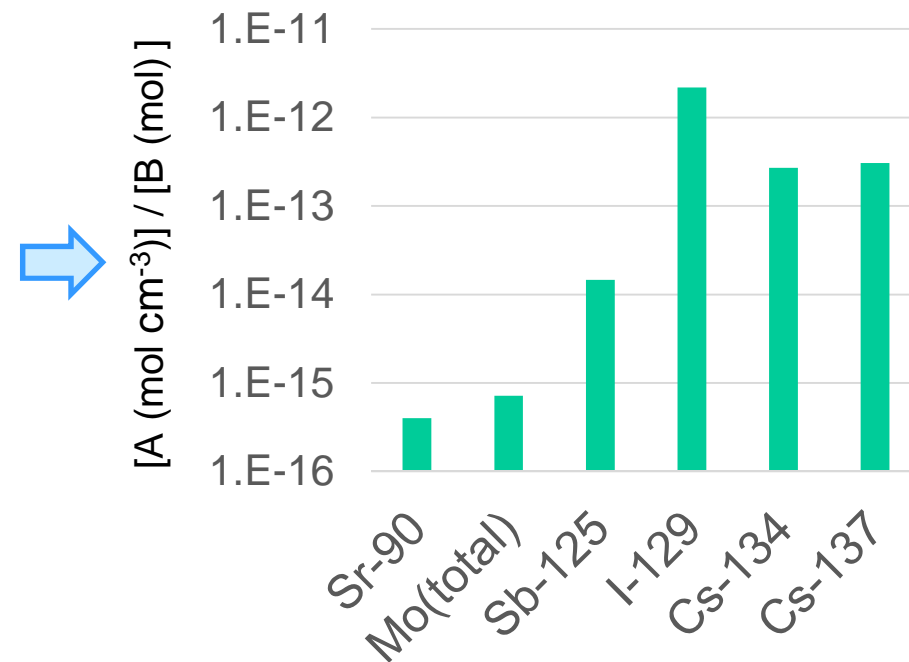
*3 : ORIGEN2による推定値 (JAEA-Data-Code-2012-018)

核種濃度分析結果まとめ

➤ ドレンサンプル水中核種濃度及び1号機炉心インベントリ*2

(試料ID: U12SDW)

核種	濃度 (mol cm ⁻³)*1 [A]	初期インベントリ (mol)*2 [B]
⁹⁰ Sr	1.3 x 10 ⁻¹³	3.3 x 10 ²
Mo _(total)	1.3 x 10 ⁻¹²	1.8 x 10 ³
¹²⁵ Sb	3.3 x 10 ⁻¹⁴	2.3 x 10 ⁰
¹²⁹ I	1.6 x 10 ⁻¹⁰	7.3 x 10 ¹
¹³⁴ Cs	8.0 x 10 ⁻¹²	3.0 x 10 ¹
¹³⁷ Cs	1.4 x 10 ⁻¹⁰	4.6 x 10 ²



(⁹⁹Tc, Th, U, Pu, Am < D.L.)

✓ 1号機炉心インベントリ*2に対するドレンサンプル水中濃度の比:

$$^{129}\text{I} > ^{134}\text{Cs} = ^{137}\text{Cs} > ^{125}\text{Sb} > \text{Mo} > ^{90}\text{Sr}$$

*1 : 事故時に減衰補正した値

*2 : ORIGEN2による推定値 (JAEA-Data-Code-2012-018)



(1) ドレンサンプル水試料

令和2年度分析結果のまとめ

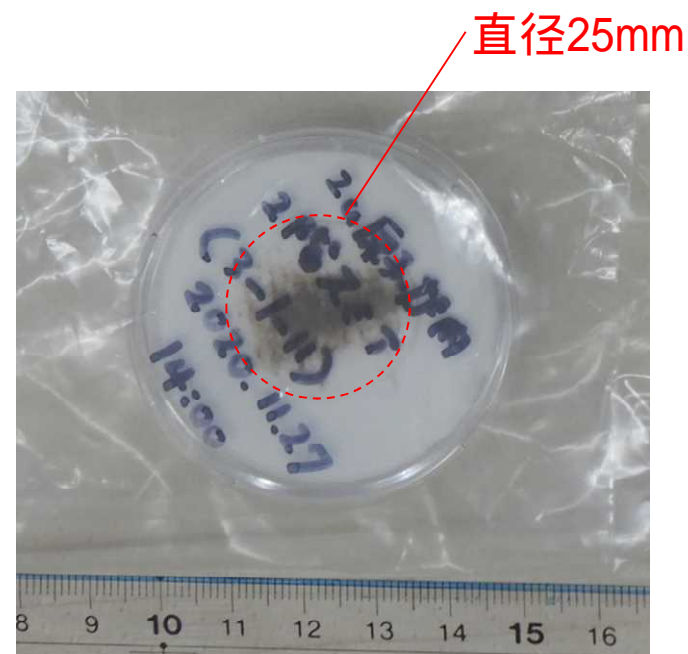
➤ ドレンサンプル水試料 (U12SDW) の分析結果

^{90}Sr : $1.3 \times 10^{-13} \text{ mol cm}^{-3}$ 、 ^{125}Sb : $3.3 \times 10^{-14} \text{ mol cm}^{-3}$ 、
 Mo : $1.3 \times 10^{-12} \text{ mol cm}^{-3}$ 、 ^{129}I : $1.6 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$ 、
 ^{134}Cs : $8.0 \times 10^{-12} \text{ mol cm}^{-3}$ 、 ^{137}Cs : $1.4 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$
(^{99}Tc 、Th、U、Pu、Amは検出限界以下)

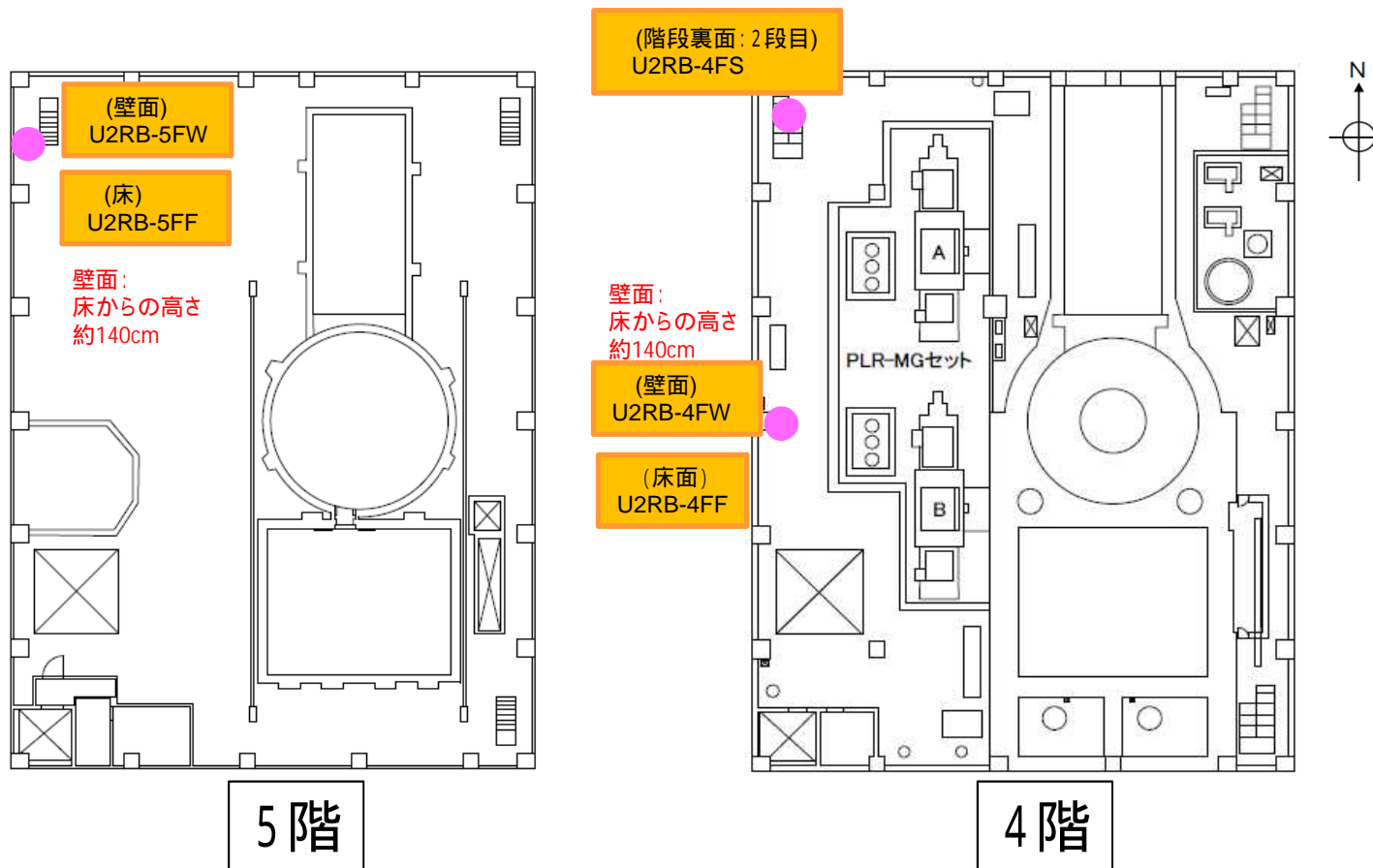
規制庁採取スミヤ試料の概要

2号機原子炉建屋の壁、床、階段裏から採取されたスミヤ試料(2020/10/8採取)：14試料

試料番号	採取場所
U2RB-5FW	5階壁面
U2RB-5FF	5階床面
U2RB-4FW	4階壁面
U2RB-4FF	4階床面
U2RB-4FS	4階階段裏面
U2RB-3FW	3階壁面
U2RB-3FF	3階床面
U2RB-3FS	3階階段裏面
U2RB-2FW	2階壁面
U2RB-2FF	2階床面
U2RB-2FS	2階階段裏面
U2RB-1FW	1階壁面
U2RB-1FF	1階床面
U2RB-1FS	1階階段裏面



試料採取位置(1)

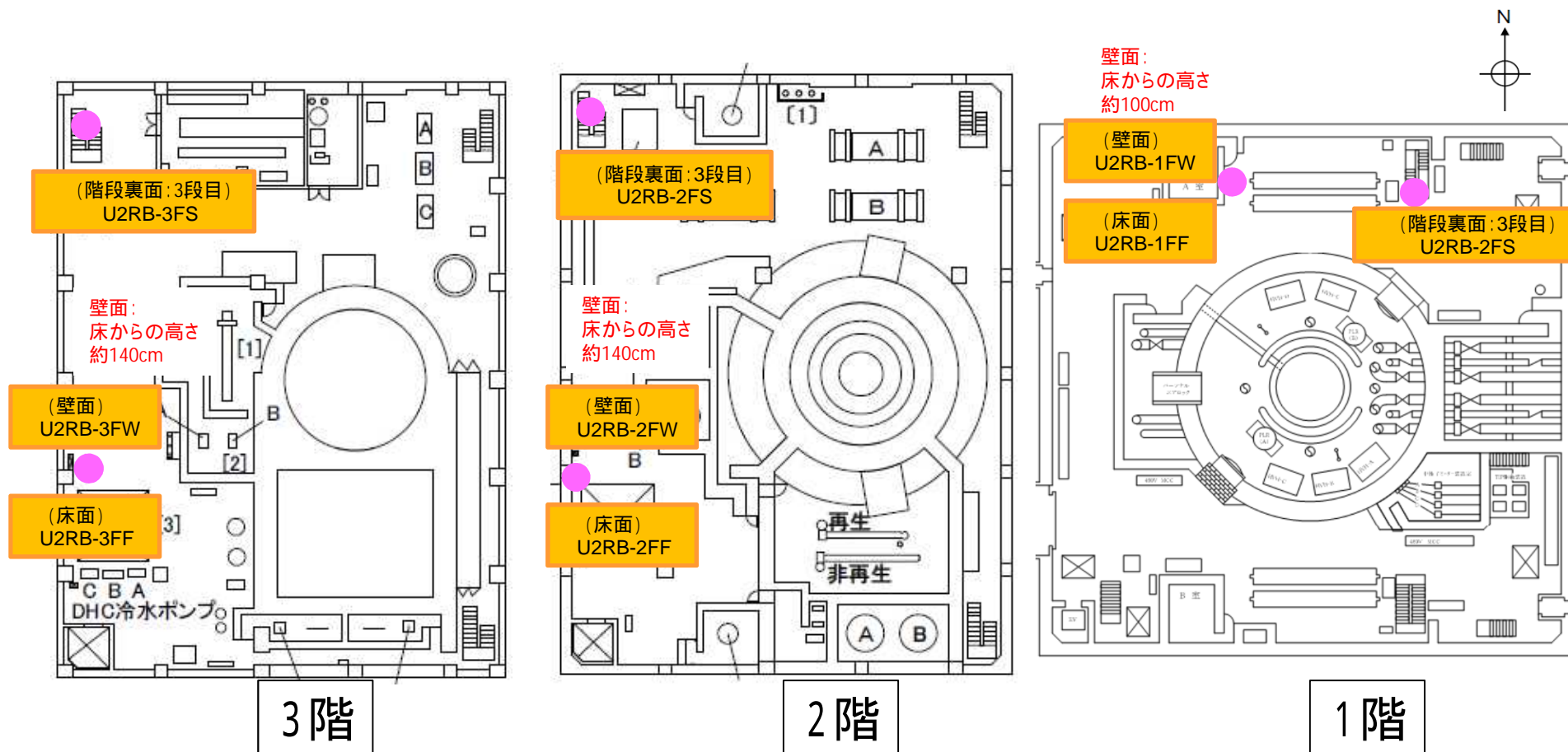


● : スミヤ採取箇所

■ : スミヤ試料番号

※ 図面は第14回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資料3から抜粋一部加工

試料採取位置(2)



(採取場所修正)

- : スミヤ採取箇所
 - : スミヤ試料番号
- ※ 図面は第14回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資料3から抜粋一部加工

今後の分析予定

➤ 令和2年度輸送スミヤ試料

- 2号機原子炉建屋 (14試料)
- 1/2号機SGTS配管内部 (1試料)
- 3号機SGTSフィルタ (23試料)

試料の優先順位及び試料毎の分析項目を設定し、効率的に分析を進める。

➤ その他の試料

今後、新たな試料の取得が見込まれる。
既存試料を含めて優先順位を常に見直し、柔軟に対応する。

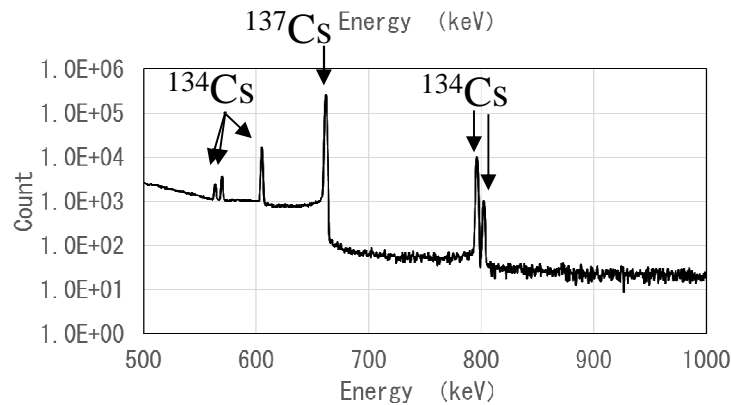
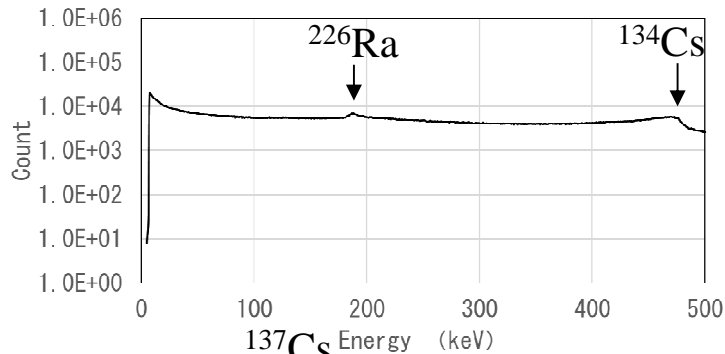
これらにより、検討会での議論に必要なデータを適時提供する。

参考資料

第14回会合資料4 - 2及び
第15回会合資料5の抜粋

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

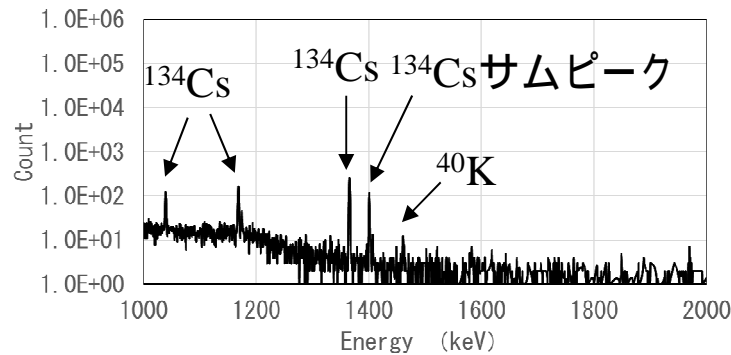


✓ ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の定量分析

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

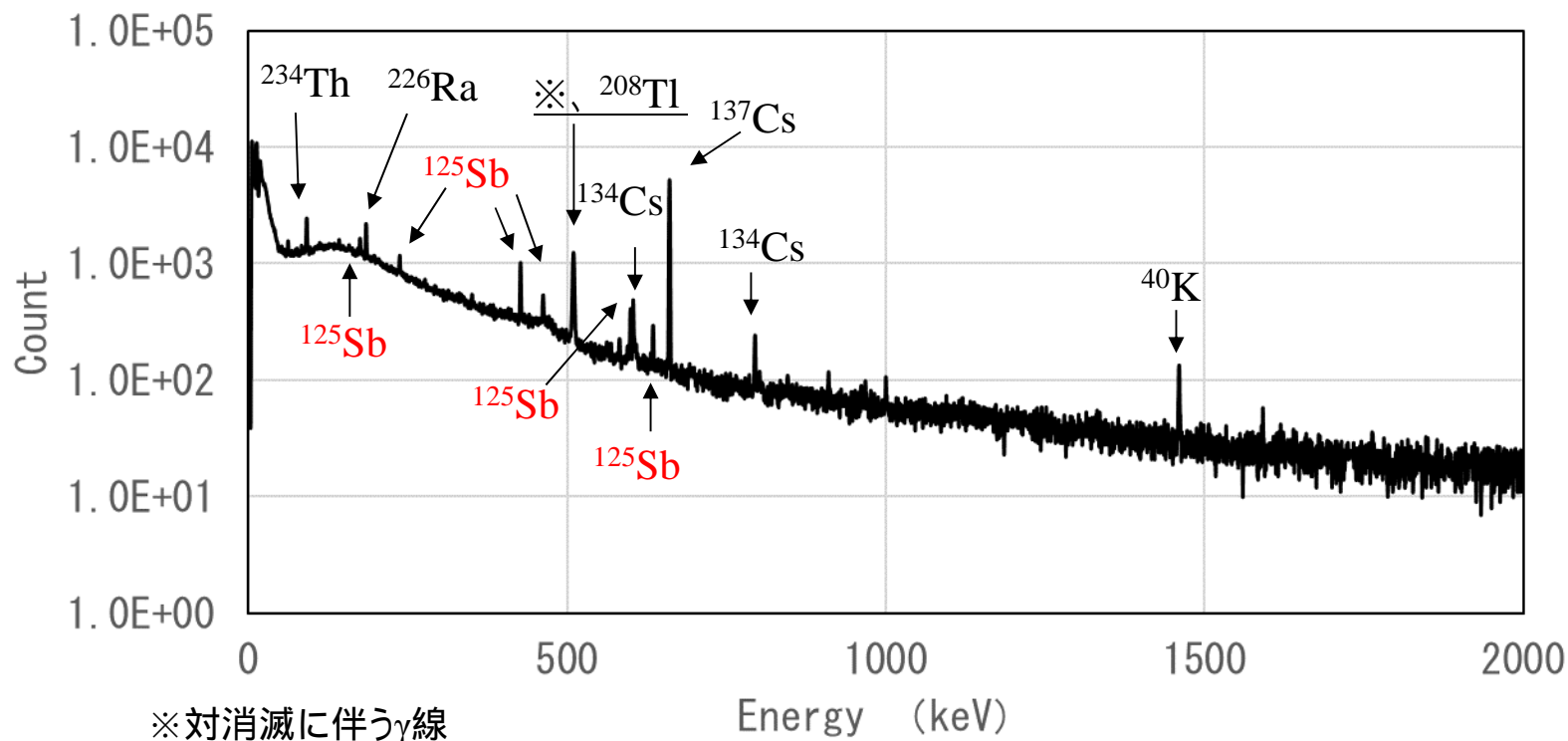
^{137}Cs : 4.8×10^4 Bq/ml (5.9×10^4 Bq/ml)

: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

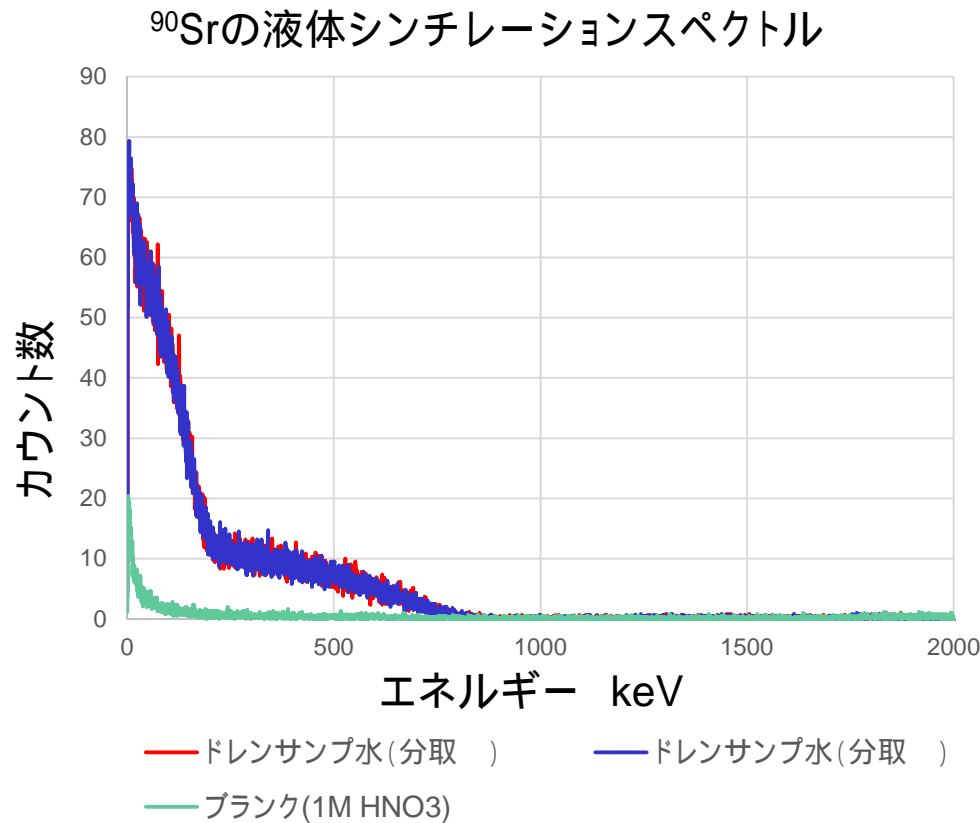
- Cs除去液で検出された¹²⁵Sbおよび⁶⁰Coの濃度を定量するため、線測定(約120万秒)を実施



- ・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

ドレンサンプル水試料の分析結果 (Sr)

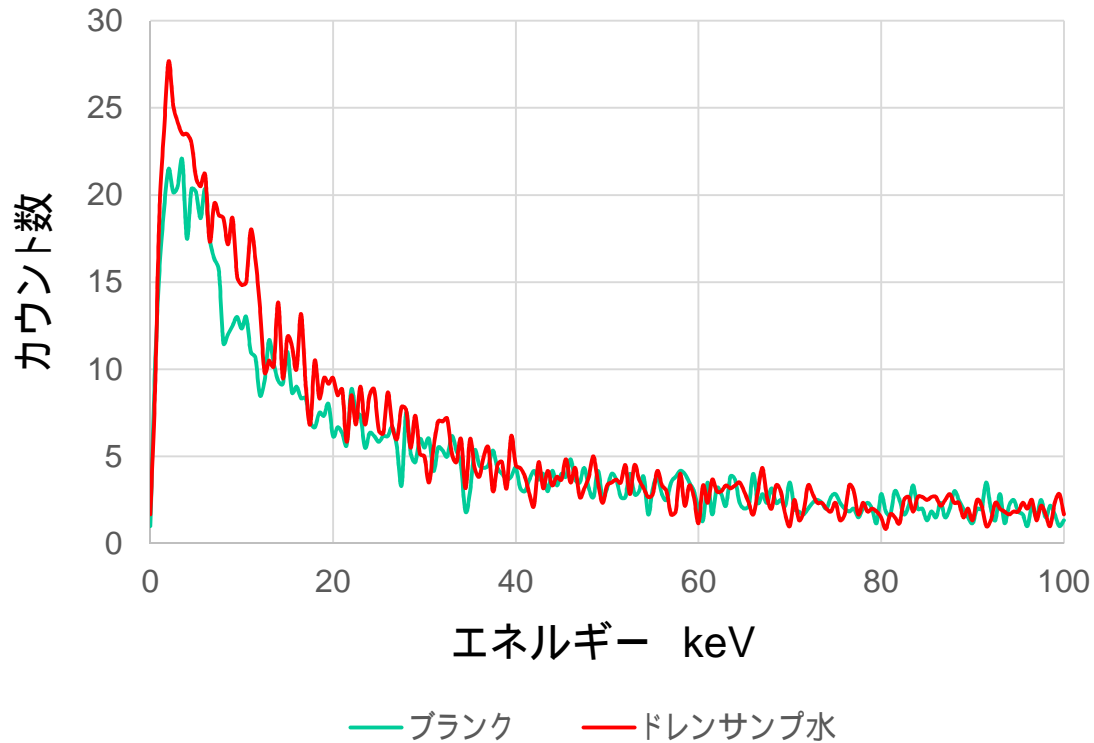


- ✓ Srの回収率: $92 \pm 8 \%$
- ✓ 回収率補正後の⁹⁰Sr濃度:
 $47 \pm 4 \text{ Bq/ml}$
 $(51 \pm 4 \text{ Bq/ml}^{*1}, 59 \pm 5 \text{ Bq/ml}^{*2})$
 $1.3 \times 10^{-13} \text{ mol/ml}^{*2}$

*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¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、¹²⁵Sbの濃度:
¹³⁴Cs: $5.1 \times 10^4 \text{ Bq/ml}^{*2}$ ($8.0 \times 10^{-12} \text{ mol/ml}$)、¹³⁷Cs: $5.9 \times 10^4 \text{ Bq/ml}^{*2}$ ($1.4 \times 10^{-10} \text{ mol/ml}$)
¹²⁵Sb: $1.5 \times 10^2 \text{ Bq/ml}^{*2}$ ($3.3 \times 10^{-14} \text{ mol/ml}$)
- ✓ ¹³⁷Cs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