

令和 6 年度原子力規制庁委託成果報告書

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

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

令和 7 年 3 月

本報告書は、原子力規制委員会原子力規制庁からの委託により実施した業務の成果を取りまとめたものです。

本報告書に関する問合せは、原子力規制庁までお願いします。

1. はじめに.....	1-1
2. 重大事故解析.....	2-1
2.1 目的.....	2-1
2.2 MELCOR による 3 号機解析.....	2-1
2.3 THALES2/KICHE による 2 号機解析.....	2-6
2.4 まとめ.....	2-10
3. 関連情報の収集.....	3-1
4. 1F 試料分析.....	4-1
4.1 原子炉建屋内スミヤ試料分析.....	4-1
4.2 ALPS 処理水分析.....	4-46
4.3 まとめ.....	4-52
5. 核種移行解析.....	5-1
5.1 目的.....	5-1
5.2 シールドプラグ汚染に係る検討.....	5-1
5.3 まとめ.....	5-5
6. 原子炉建屋内等の汚染データの分析.....	6-1
6.1 目的.....	6-1
6.2 2 号機の事故進展（燃料熔融時期）.....	6-1
6.3 FP 核種及び FP 化学種の蒸気圧の推定.....	6-2
6.4 事故進展中の各 FP 挙動に関する考察.....	6-4
6.5 スミヤ分析結果との比較.....	6-4
6.6 まとめ.....	6-5
7. おわりに.....	7-1

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故等を踏まえた重大事故時の対策や安全評価手法並びに安全対策の高度化に関連する技術的知見を取得するために、1Fプラント内における核種の移行に関する情報整理を行うとともに、重大事故時のソースターム評価に有益と考えられる1Fプラント内核種移行挙動の把握を目的とした重大事故解析を実施している。

本年度の事業では、1F 事故の分析に係る検討会での議論に資する情報や技術的知見を取得するため、1F プラント内における核種の移行や分布に関する情報整理を行うとともに、核種移行挙動のための重大事故解析を実施した。また、1F 事故分析検討会で求められる 1F 試料の分析、核種移行に係る解析、原子炉建屋内等の汚染データの分析等を実施した。具体的には、以下の通りである。

(1) 重大事故解析

原子炉建屋内の汚染状況に関し、1F プラント内における核種の濃度や分布に関連する公開情報を参照し、シビアアクシデント総合解析コードによる感度解析を通じて考える事故シナリオの検討を行った。

(2) 関連情報の収集

1F 事故に関連する OECD/NEA プロジェクト会合、ワークショップに出席し、本事業の遂行に有用な情報の収集を行うとともに、日本原子力学会秋の大会に出席し、重大事故解析や各種サンプル分析の状況等の情報を収集した。

(3) 1F 試料分析

1F 事故分析検討会に求められる技術情報を提供するため、1F 試料の分析等を行った。

(4) 核種移行解析

2号機シールドプラグ熱流動解析結果等を活用した狭隘流路内 FP 移行挙動解析を実施し、2号機シールドプラグ領域における高い汚染の発生要因を推定した。

(5) 原子炉建屋内等の汚染データの分析

原子炉建屋内、非常用ガス処理系配管、排気筒等で測定された表面汚染密度や線量当量率等の汚染データに基づき放射性核種等の移行挙動を推定した。

2. 重大事故解析

2.1 目的

東京電力福島第一原子力発電所（1F）における事故進展を把握するため、原子炉建屋や格納容器等の内部調査やシビアアクシデント（SA）解析など様々な取組みが行われており、これら活動により徐々に事故進展の詳細の検討を行える状況になりつつある。このような活動のうち、原子炉建屋の線量測定に加え、壁や床表面からのサンプル採取を想定し、原子炉圧力容器内のセシウム(Cs)の化学挙動やウェットウェルプール内のヨウ素(I)化学挙動を考慮できる THALES2/KICHE([2-1], [2-2])を用いて、原子炉建屋内 I 及び Cs の化学種ごとの沈着量のような参考情報の整備を令和 5 年度まで実施してきた。しかしながら、調査により詳細が明らかになるにつれ、THALES2/KICHE の計算速度のために利用している簡素化された熱流動モデルのため、詳細な検討が難しくなっている。そこで世界的に利用者が多い SA 総合解析コード MELCOR[2-3]による事故進展解析も行い、THALES2/KICHE の解析の参照にすることを目的に MELCOR の入力を整備する。本年度は 3 号機について解析を実施した。

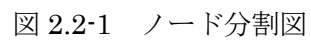
また、昨年度 2 号機のシールドプラグで観測された Cs による汚染の再現に向け、Cs の RPV から D/W への移行タイミングと漏洩面積で多くの Cs を D/W に移行させた。本年度の事故進展に係る調査において、炉内構造物への Cs 付着により RPV から D/W への漏洩のタイミングが調整できる可能性を得た。そこで、2 号機の事故進展解析に炉内構造物への移行を考慮した解析を行い、シールドプラグへの Cs 移行に関する検討を行った。

2.2 MELCOR による 3 号機解析

2.2.1 入力作成

MELCOR の入力の作成にあたり、効率的に作業を進めるため、公開されている文献[2-4]に付属している入力を基に THALES2 の入力作成に利用した情報等を反映することとした。参照する MELCOR の入力は VTT フィンランド技術研究センターの Sevon 氏が 2015 年に公開したものであり、2013 年までに公開されている情報を基に作成している。この段階では、フィンランドは OECD/NEA BSAF2 プロジェクトに参画しておらず原子炉建屋等の詳細な情報は反映されていない。このため、まずは原子炉建屋情報を反映させることとした。また、最新の MELCOR（R2024）では解析できなかったことから、その対応も検討しつつ作業を進めた。作成した解析ボリューム分割を図 2.2-1 に、解析上修正した項目を以下に示す。

- ・原子炉建屋の追加（フロアごとの面積、体積、熱構造体の追加）
- ・格納容器体積及び表面積の調整
- ・S/C 解析ボリュームの分割（温度成層化表現のため）
- ・再循環ポンプからの 1 次系冷却水漏えいする仮定の取りやめ
- ・格納容器から原子炉建屋への漏洩パスの追加及び制御の追加
- ・HPCI 注水履歴の調整
- ・代替注水量を BSAF2 における圧力・吐出量曲線に変更



2.2.2 解析結果

図 2.2-2 に原子炉压力容器内圧力、図 2.2-3 に格納容器圧力、図 2.2-4 に RPV 内水位を示す。近年の MELCOR は入力と同じでもバージョンが異なると解析結果が異なることが FACE プロジェクト内でスペイン CIMAT の Luis 氏から報告があったように過去の MELCOR の入力をそのまま最新版に利用できてもその結果は異なり、元の論文における挙動とは異なる挙動となった。そこで、RPV 圧力履歴を再現できるよう RCIC 及び HPCI の注水量及び蒸気流出量の調整を行い、圧力履歴の再現を行った。得られた注水・蒸気流出量を基に D/W 及び S/C 圧力履歴の再現を目指したが、以下の点が課題である。

(1) スクラム後からの D/W の圧力上昇

基とした入力では、スクラム後の D/W の圧力上昇は再循環ポンプのシールからの 1 次系冷却水の漏洩で再現している。近年の調査や事故進展の解釈では、この初期の D/W 圧力の上昇は S/C 内水相上部だけが加熱されていたことによる温度上昇であることにコンセンサスが得られている。本入力でも再現できるよう S/C 水相を 3 層に分割し、RCIC/HPCI 蒸気の出口である層とその上部層の温度が高く、下部の温度が低い状況は再現できた。一方その上部の気相の温度上昇が進まず D/W の圧力上昇に寄与しなかった。

(2) スクラム後 40 時間付近の D/W スプレイの効果

対象とする時間帯で D/W スプレイを行うが、観測データでは D/W 圧力は一定である。このことから非凝縮性ガスである水素が D/W に移行していたものと考えられている。今回の MELCOR の解析結果でも炉心で生じた水素は S/C を経由して D/W に移行していた。D/W スプレイを行う前に S/C スプレイを行っており蒸気凝縮が促されている状況だが、D/W スプレイにより圧力が低下していることをみると S/C 内での蒸気の凝縮が進んでいないことが伺える。

(3) ベント後の圧力低下

RPV の ADS による減圧により D/W 圧力が上昇し、そのタイミングで S/C ベントが行われた。今回の解析でも圧力上昇が S/C ベントにより低下する挙動を示したが、観測データほど D/W 及び S/C 圧力の低下が見られない。ベント弁の開度は東京電力の調査により判明した開度に合わせており S/C ベント弁の流量面積にて調整することはできない。また、東京電力による調査・検討[2-5]によると一回目のベント時には S/C 内水位は真空破壊弁より高い位置にあるとされておりこの点については図 2.2-5 のように再現している。以上から本件に関してベント前の格納容器圧力の挙動に依存していると考えため、ベント前の観測データの挙動との整合性についてまずは検討を進める必要がある。

(4) ベント（2 回目）以降の圧力挙動

2 回目の S/C ベント以降に格納容器圧力の低下が見られるが、これらはベント操作によるものではないとされている。この圧力挙動を再現するには、D/W からの漏洩や代替注水が他の場所へ流入するような注水が有効でないような状況を検討する必要がある。過去の調査でこのような注水挙動を注水のためのフローパスの開閉で再現した。

今回の解析では、先の検討結果をそのまま移植したため効果的に再現することができていない。

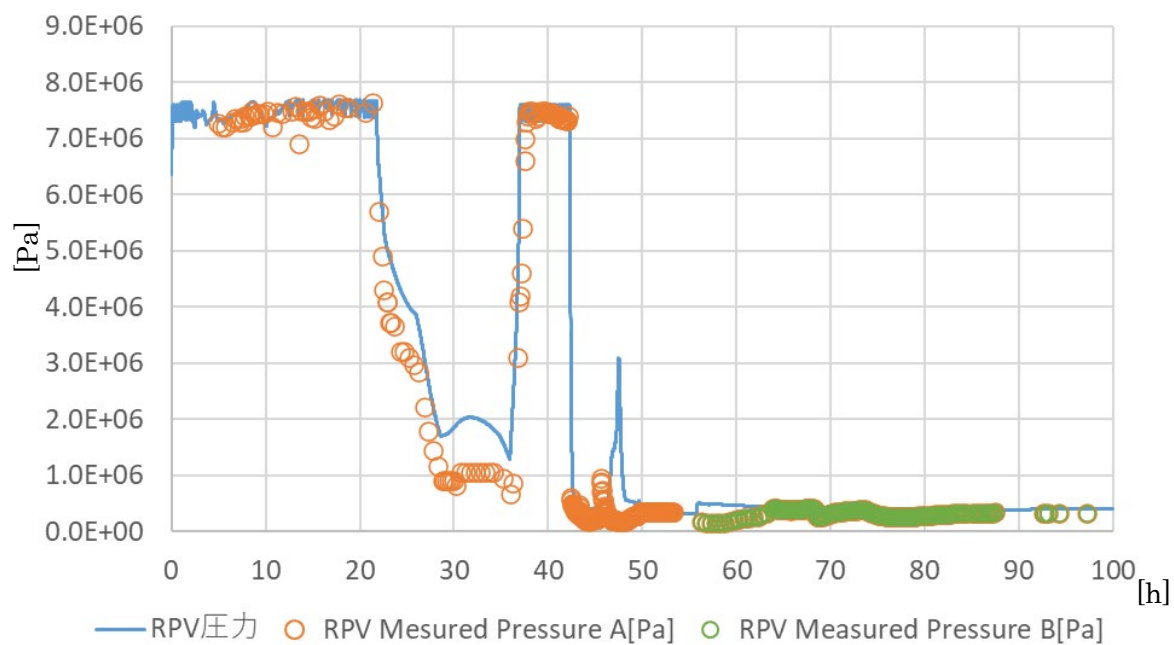


図 2.2-2 RPV 圧力

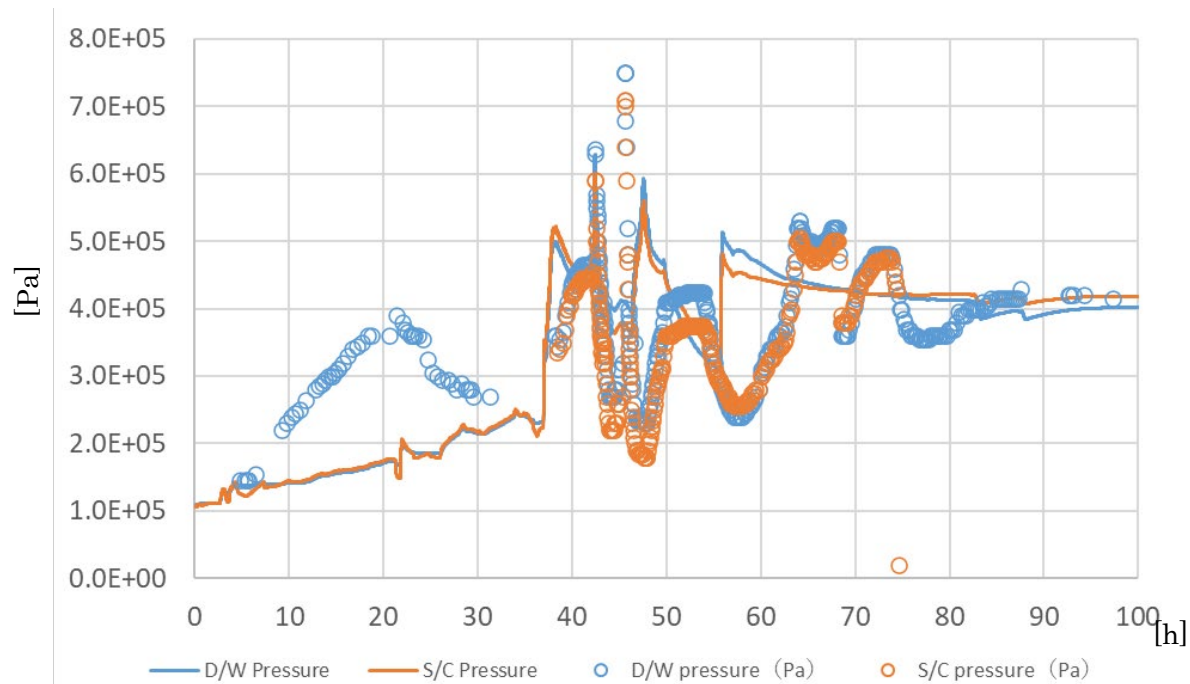


図 2.2-3 格納容器圧力

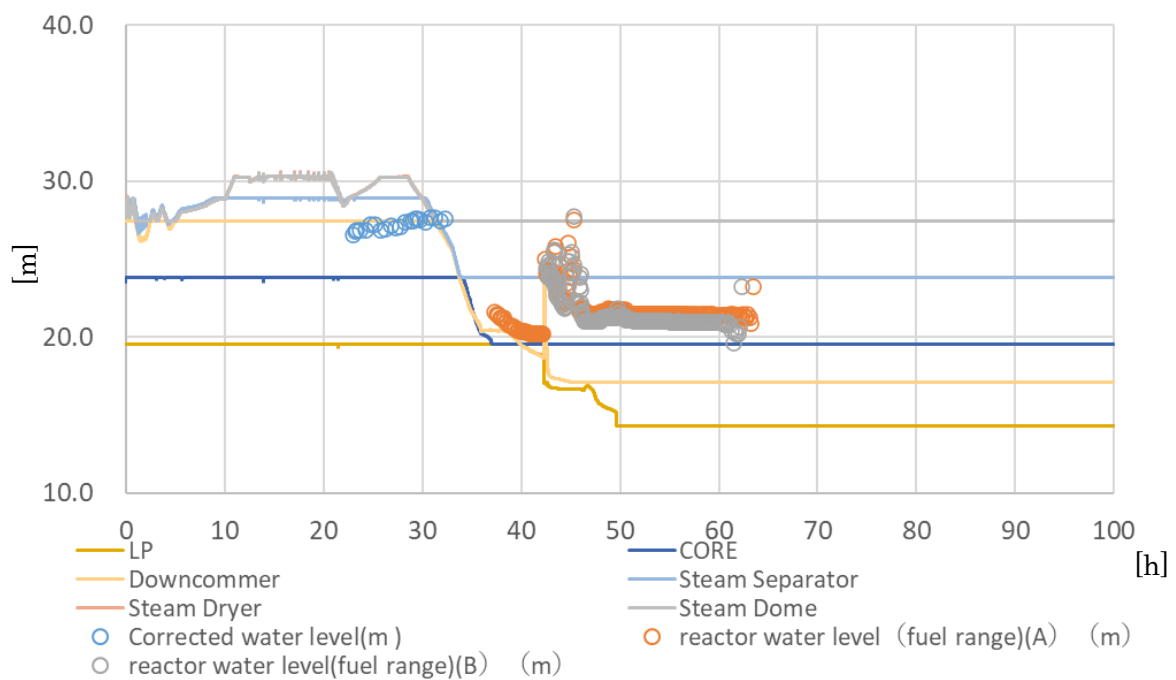


図 2.2-4 RPV 内水位

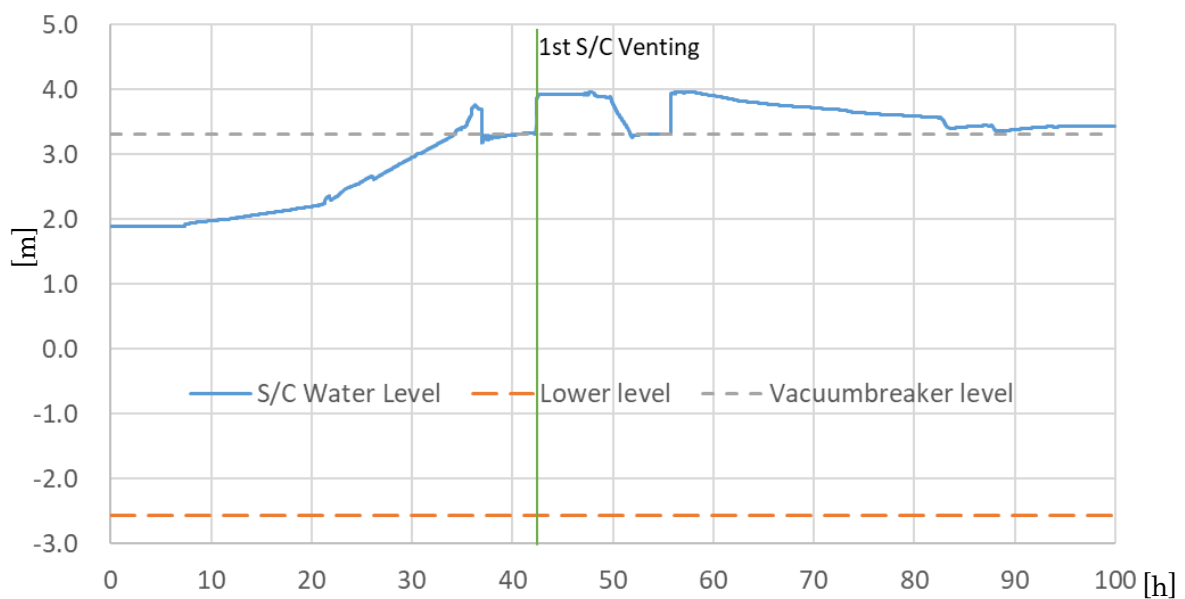


図 2.2-5 S/C 水位

2.2.3 MELCOR 入力作成に関するまとめ

公開情報を基に 3 号機の解析のための MELCOR 入力の作成を行った。入手した MELCOR の入力情報が古いものであるため、最新版への適用及び近年の調査結果の反映を行った。最新版への適用はできたが、バージョンの違いによる圧力等の挙動の違いがあり、これを是正するため、注水量や漏洩パスの面積、タイミング等の調整を行ったが 3 号機で観測された圧力挙動等の再現には至らなかった。再現できていない点についてその挙動が

らパラメータ絞り込みを行い、再現性を向上させるとともに THALES2/KICHE のベンチマークに利用できるよう入力整備を継続する。

2.3 THALES2/KICHE による 2 号機解析

2 号機のシールドプラグの Cs による汚染を引き起こすような事故進展挙動について昨年度の検討を行い、シールドプラグに Cs が多く流入するよう D/W 内への Cs の滞留が多くなるよう RPV から D/W への漏洩のタイミングやその漏洩面積を仮定した解析を行った。その結果 D/W 内 Cs の滞留は増えたが、RPV から D/W への漏洩の仮定により RPV 減圧後の圧力挙動の再現性が低下した。本年度はこれを是正するため RPV から D/W に移行できるよう SRV 開のタイミングをずれるような挙動を検討し解析を行った。

2.3.1 Cs の D/W への移行のための検討

昨年度の検討では、燃料からの Cs の放出後の SRV の開により S/C に移行してしまうため、運転記録における SRV の開操作の前に RPV から D/W への漏洩を想定するとともに SRV 開操作の前に Cs の多くが燃料より放出されるような RCIC の注水量の調整を試みた。本年度は燃料から放出された Cs が SRV 開の後でも RPV 内に留まるような状況として気水分離器への Cs の沈着を検討した。このような試みは原子力学会の口頭発表表[2-6]でも確認できた。THALES2/KICHE の従来の入力では、気水分離器は熱容量として体積を考慮しており、FP 移行に寄与する面積としては、1 側面の面積のみを与えていた。そこで気水分離器として考慮していた体積から気水分離板の厚さや流路を考慮しておよそ $1500\text{m}^2 \sim 3000\text{m}^2$ 程度と見積もった。ここでは約 1500m^2 と 3000m^2 について解析を行いその感度を確認することとした。

2.3.2 解析

図 2.3-1 に気水分離器を熱構造体として入力した際の表面積の違いによる Cs の沈着量の違いを示す。なお、本比較図は表面積だけの違いではなく、RPV 圧力等の挙動をある程度再現できる注水量等のパラメータ調整を含んでいるため同じ事故進展ではない。図 2.3-1 が示すように気水分離器の表面積を増やすことでベースケースよりも約 7 倍程度の Cs が燃料溶融開始後から沈着する。 1500m^2 、 3000m^2 とともに同程度の沈着量であった。一旦沈着した Cs は SRV もしくは RPV からの漏洩が生じると減少し始める。THALES2 における再蒸発のモデルは、核種の気相の分圧が蒸気圧を下回ると蒸気圧分まで沈着表面から蒸発する。沈着表面積が大きくなると沈着量が多くなり、SRV の閉期間においても RPV から D/W への漏洩を仮定することで D/W 内の Cs 濃度を従来より上昇させる可能性を示すことができた。

以下では沈着面積として余裕が見込める 3000m^2 を仮定した場合の挙動について示す。

図 2.3-2 に RPV 圧力、図 2.3-3 に格納容器圧力を示す。

2 号機は RCIC の意図しない稼働により炉心冷却が継続した。RCIC の停止により RPV 圧力が上昇し、SRV により一定圧に維持された。その後手動にて RPV 減圧により RPV 圧力は減少し、D/W 圧力は上昇する。2 号機のシールドプラグ隙間空間への漏洩パスとしては、D/W 内部に浮遊する Cs が D/W ヘッドフランジを經由して原子炉ウェルに漏洩する必要がある。以前の解析では 2 号機の運転記録に従い SRV の開閉を入力として与えていた。2 号機では RPV 減圧から RPV 内で観測された 3 つの圧力上昇挙動の時期に燃料の損傷/ありロケーションが進んだものと考えられている。この時期に SRV の開閉があると RPV 内

に存在する Cs は SRV を経由して S/C プールに導かれ、S/C プールに取り込まれる。このため燃料溶融による Cs 放出時期と SRV の開のタイミングの前に RPV から D/W への漏洩を仮定しつつ、RPV 及び D/W の圧力挙動に大きな影響を与えない漏洩面積が必要となる。

今年度の解析では、RPV から D/W への漏洩パスとして、SRV ガスケットからのリークを想定した。その面積は感度解析や文献調査から 13cm^2 とした。また、漏洩開始時期としては、スクラム後約 75 時間に行われた SRV による RPV 減圧中に生じたと仮定した。この仮定により、図 2.3-4 に示すように、RPV 減圧により水位が低下し、燃料から Cs が放出し始める。この時期には減圧に用いた SRV は一旦全閉している。Cs 放出が始まると減圧時に仮定した小規模な RPV から D/W への漏洩により D/W に Cs が移行し始める。SRV の開操作により RPV 内 Cs は S/C にも移行する。その後代替注水が炉心に到達すると圧力上昇が生じ、SRV が閉じている時期は D/W に、SRV が開のときは S/C に移行する。このような事故進展を仮定することにより D/W にスクラム時に存在していた Cs 量の約 50% が移行し、その量は約 130PBq に相当する。この量のうち一部が原子炉ウェルへ流入するとしてシールドプラグ隙間解析の境界条件として利用する。

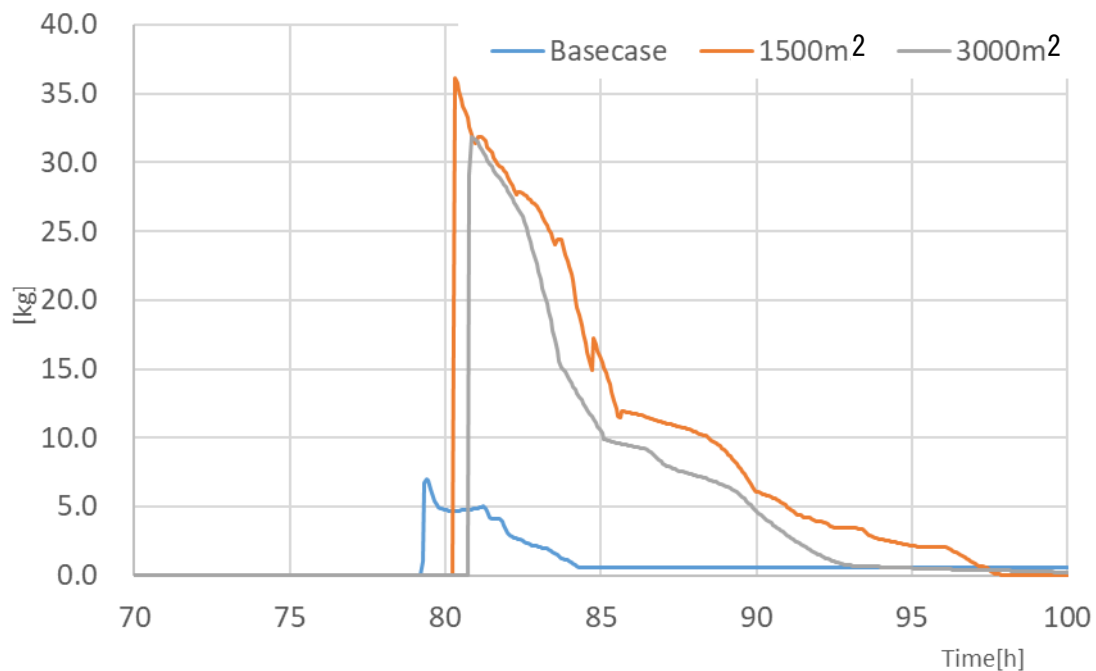


図 2.3-1 気水分離器に沈着する Cs 量[kg]

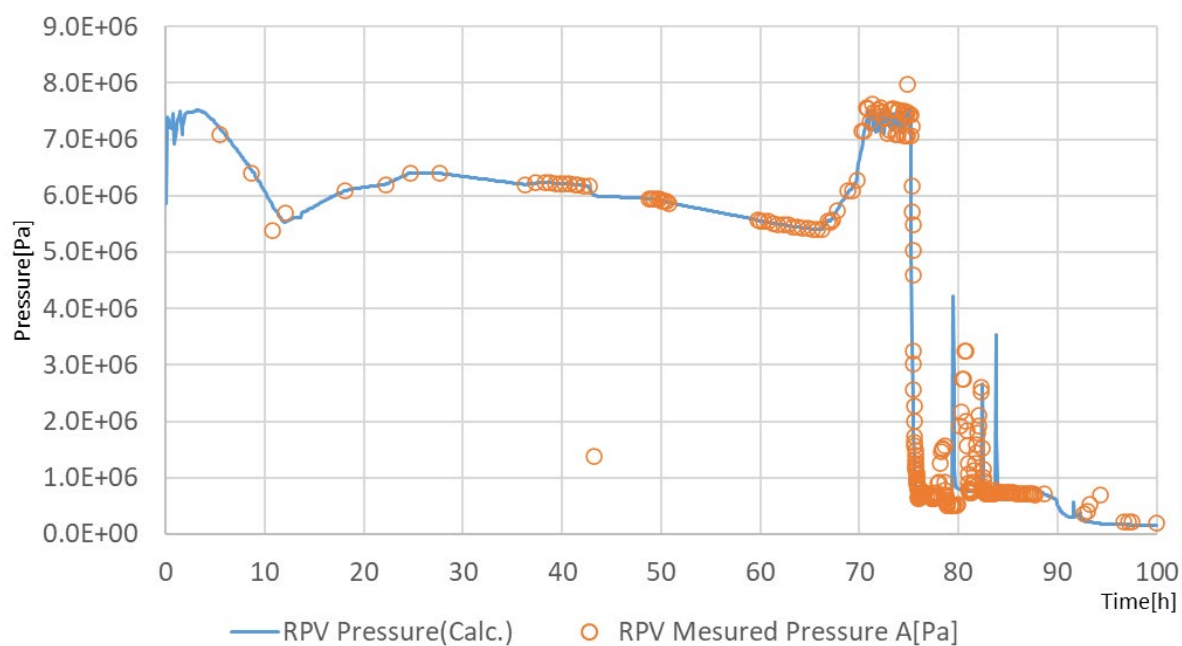


图 2.3-2 RPV 压力

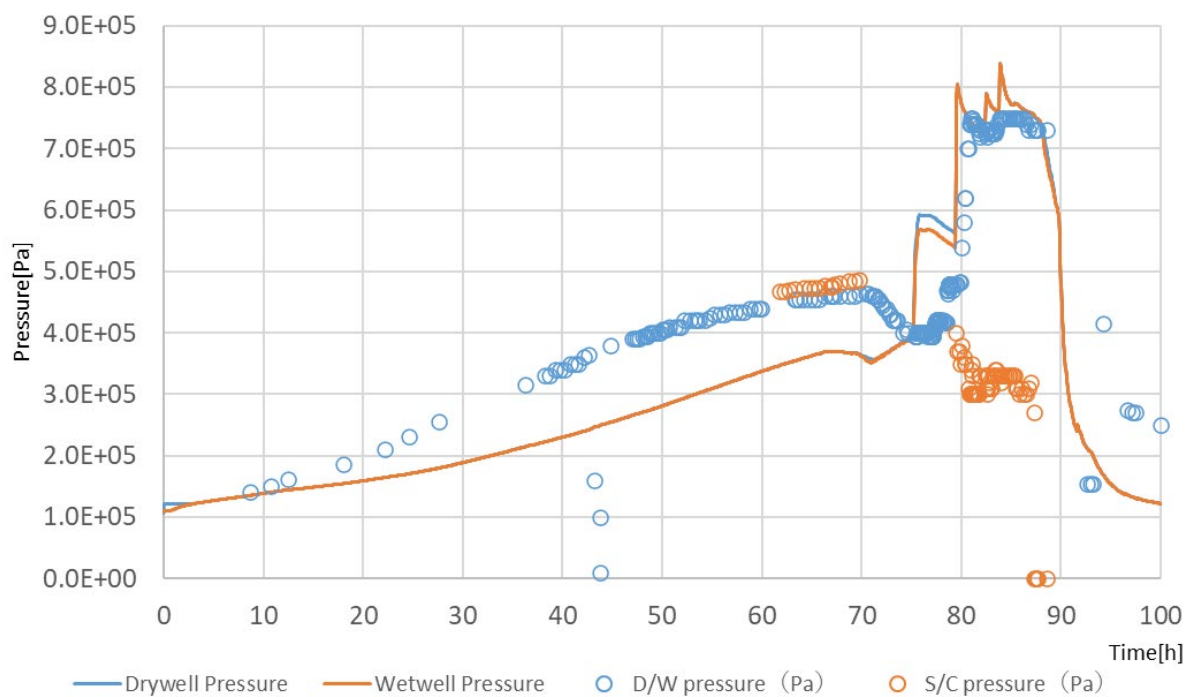


图 2.3-3 格納容器压力

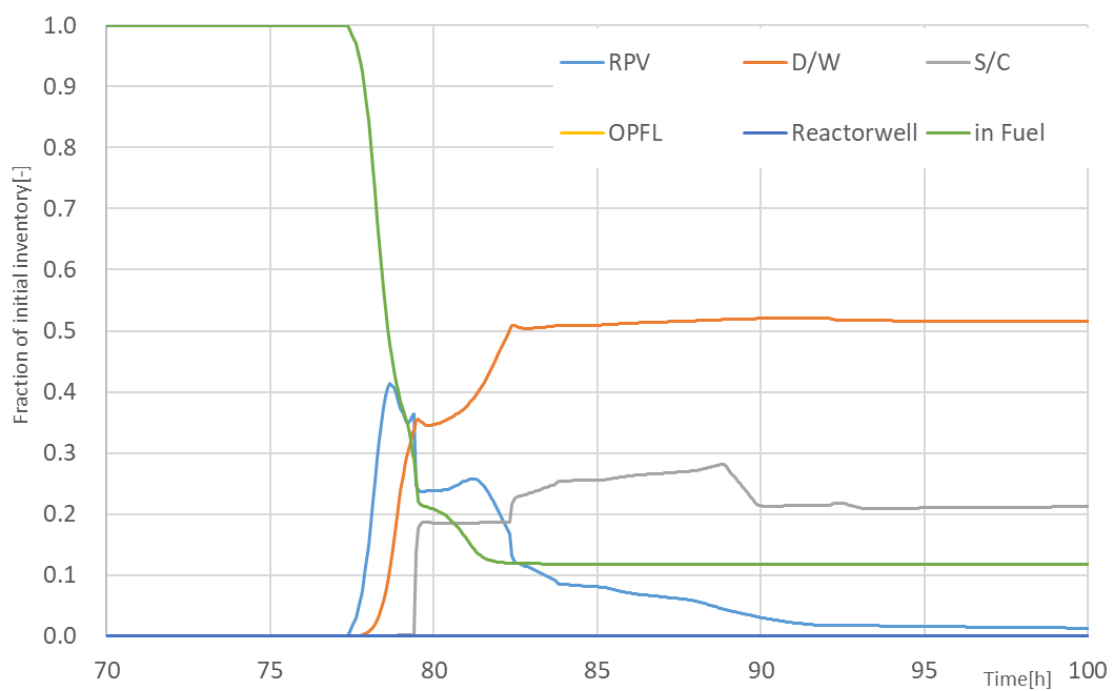


図 2.3-4 Cs 存在量[初期インベントリに対する割合]

2.4 まとめ

本事業では、これまで THALES2/KICHE による解析を実施してきた。一方シビアアクシデント解析としては、例えば OECD/NEA の BSAF/BSAF2 プロジェクトにおいて、米国で開発された MELCOR を利用している参加機関は多い。そこで本年度は THALES2/KICHE とのベンチマークを今後行うことができるように MELCOR を用いた事故解析用の入力を作成を進めた。公開されている MELCOR2.1 の 3 号機の入力を最新版の MELCOR で解析できるよう修正を加えるとともに近年の調査等により得られた知見を入力に反映した。

また、2 号機のシールドプラグが Cs により汚染されている状況を再現するような事故進展の検討として、RPV 内に沈着した Cs が RPV から D/W への漏洩パスを經由して D/W に移行するよう、RPV 内の構造材の面積や漏洩タイミング、漏洩面積について感度解析を行った。RPV 内構造材による沈着を考慮することで RPV 内浮遊量を減らすとともに RPV 減圧に伴い再蒸発していく傾向を得られた。一方で SRV による RPV 減圧が行われると RPV 雰囲気は S/P プールに導かれるため、D/W 内に Cs を移行させるためには燃料からの Cs 放出開始から SRV 開操作までに D/W への漏洩パスを形成することで D/W 内 Cs 濃度を高めることができた。この結果をシールドプラグに流入する Cs の境界条件として、その挙動の検討に資する。

2.の参考文献

- [2-1] 石川, 森山, "BWR4/Mark-I プラントのヨウ素化学挙動を考慮した格納容器内ソースターム評価に係わる検討", JAEA-Research 2010-051, 日本原子力研究開発機構, February 2011.
- [2-2] Moriyama, et al., "Kiche : A Simulation Tool for Kinetics of Iodine ,Chemistry in the Containment of Light Water Reactors under Severe Accident Conditions (Contract Research)", JAEA-Data/Code 2010-034, Japan Atomic Energy Agency, March 2011.
- [2-3] L.L.Humphries, et al, "MELCOR Computer Code Manuals Vol. 1 Primer and User's Guide Version 2.2.9541 2017", SAND2017-0455O, Jan. 2017
- [2-4] T.Sevon, "A MELCOR model of Fukushima Daiichi Unit 3 accident", NED 284, 80-90, April, 2015.
- [2-5] 福島第一原子力発電所 1 ～ 3 号機の炉心・格納容器の状態の推定と未解明問題に関する検討第 6 回進捗報告（報告書）
(https://www.tepco.co.jp/decommission/information/accident_unconfirmed/pdf/221110j0103.pdf)
- [2-6] 木野他「福島第一原子力発電所廃棄物の放射能推算のための核種挙動モデル（1）開発の狙いとそのアプローチ」、2H08、原子力学会秋の大会 2024

3. 関連情報の収集

(1) OECD/NEA の FACE プロジェクト会合および関連ワークショップ

FACE (Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident Information Collection and Evaluation) プロジェクトは、OECD/NEA の原子力施設安全委員会 (CSNI) に設置された SAREF (Senior Expert Group on Safety Research Opportunities Post-Fukushima) において提案された 1F 事故の調査・分析に係わる 2 つの短期プロジェクト (ARC-F 及び PreADES) を一本化して後継するものであり、令和 4 年 7 月から令和 8 年 7 月までの 4 年間で予定している。本プロジェクトの主なタスクは以下の 3 つである。

- ・タスク 1: 事故シナリオ及び関連する FP 挙動や水素燃焼に係わる詳細な検討
- ・タスク 2: ウラン含有粒子の特性評価及び廃止措置に向けた燃料デブリ分析技術の確立
- ・タスク 3: データ及び情報の収集・共有

令和 6 年 9 月に実施された第 5 回会合において、各タスクの進捗状況が報告された。本事業との関連性が高いタスク 1 について概要を示す。

タスク 1a のアクティビティとして、Cs の挙動及び FP 移行挙動の解釈に関する発表があった。Cs 移行挙動では、3 号機のシールドプラグ汚染を起こすような事故進展を検討しており、その一例として汚染水からの気相への Cs 移行に着目するとのことであった。このような視点を含めた解析についても検討を進めることとしたい。

FP 移行挙動に関しては、昨年度事業で得られた、2 号機原子炉建屋より採取したスミヤ試料分析結果の解釈において燃料溶融が生じたと考えられる期間に着目し、当該期間の炉内雰囲気について、Sr が還元雰囲気では放出しやすい化学形を取り得ること、酸化雰囲気では燃料から放出された Cs と Mo がモリブデン酸化合物 (Cs_2MoO_4 等) の形態で存在しやすいこと、酸化雰囲気が続き Cs が少なくなると Mo 酸化物の形態で放出が継続することを示し、スミヤ分析結果と矛盾しない挙動が得られることを説明した。また、第 2 回 FACE 会合で報告された不溶性 Cs 粒子に付着する UO_2 粒子の形成には還元雰囲気から酸化雰囲気に変化することが示唆されており、これとも整合している。このような試みは有益であり、米国においても VICTORIA コードを用いて行われているというコメントがあった。今後も同様な手順を用いた検討を継続する。

また、3 号機水素爆発に係る大型模擬格納容器 CIGMA (Containment InteGral Measurement Apparatus) 実験に関し、蒸気凝縮により原子炉建屋の下層階で可燃性雰囲気になる可能性があることを、実験で実証したことを報告した。シビアアクシデント時の格納容器及び原子炉建屋内での混合ガスの輸送及び可燃性雰囲気形成過程に関しては、スイスの PSI、ドイツのベッカーテクノロジーが OA を担っている OECD/NEA の別プロジェクトでも注目されていることから、協力の打診を受けた。

その他、前プロジェクトである ARC-F から現在に至るまでの MCCI に関する理解を深めるためのベンチマーク解析について報告があった。報告では、参加した 5 機関による 1 号機を対象とした MCCI 解析の結果、解析コードのモデルや解析の仮定がコンクリート浸食量に影響を与えることから、今後 1 号機ペDESTアルのコンクリートの組成や熱的性質について定量化していく必要があることが示された。加えて、MCCI に関する最新

情報やメンバーに提供されたコンクリートサンプル分析の最新情報、MCCI ベンチマーク解析における液相線/固相線温度の改良の必要性について報告があった。

FACE 会合に加え、関連するワークショップとして FRAME (Future Research for Accident Management Enhancement in operating and future reactors, informed by Fukushima Daiichi insights) が開催された。FRAME ワークショップは、1F 事故で得られた教訓を基に、運転中及び将来の原子炉のアクシデントマネジメントの向上を念頭に、国際的な協力を通じて原子力安全に関連する研究成果を共有し、実践的な安全規制を促進することを目的として開催された。本ワークショップの 3 つのセッションを以下に示す。

- ・アクシデントマネジメントの向上：1F 事故の教訓を基に、原子炉のアクシデントマネジメントにおける安全知識のギャップと新たな課題の検討
- ・国際協力：関連する OECD/NEA プロジェクトの OA からの研究プロジェクト内容、将来に向けた研究能力及び共同研究の可能性
- ・パネルディスカッション：福島第一原発事故に関する知見、主要な研究能力、関連する枠組みに関連する議論

各機関の出席者から、1F 事故で得られた教訓のアクシデントマネジメントへの寄与、及び各機関が提供できる研究能力（施設・設備等）に関して報告があり、これに対する議論が行われた。

(2) 日本原子力学会 秋の大会

1F 事故に関するセッションが設定され、3 つの講演が行われた。以下にその概要を示す。

- ・2 号機圧力抑制室下部からの地震動起因漏えいについての発表では、RPV 圧力が 7.5MPa を越え、SRV が作動しているにもかかわらず D/W 圧力が降下する現象についての考察として、地震動を受け S/C 下部から漏洩が生じたことによる水位の低下によるものと推定していた。漏洩面積を約 9cm² とすると RCIC が機能喪失したと考える時刻に RCIC 吸い込み口が露出するとして、RPV 圧力挙動も説明ができるとしていた。本発表の解析の仮定は今までにないものであるが、本解析のターゲットより遅い時刻の D/W 挙動等の再現について疑問視された質問があり、本事業での解析への反映は検討しない。
- ・1F 廃棄物の放射能推定のための核種移行モデルについての発表では、廃棄物のインベントリ推算の不確実性を低減するため、放射性核種の移行挙動を SA 解析及び局所的には CFD 解析を用い、短期的な移行挙動について分析で得られたデータを利用した補正係数を利用して評価を行っていた。この評価の中でシールドプラグの汚染状況も再現したとしており、その仮定は RPV 内構造物に沈着した Cs が一定の速度で継続的に再浮遊するとしており、この結果 PCV に 70TBq ほどの Cs が滞留することで D/W ヘッドフランジから多量の Cs が原子炉ウェルに流入するとしていた。本アプローチは本事業における THALES2 による解析と同様であり、コードの違いはあるが参考となる。
- ・上記の発表に続き、1F 廃棄物の核種組成評価にあたり、Sr-90、Ni-63 などの長寿命非ガンマ線放出核種の評価のため、Co-60 を指標とすることの検討状況について発表された。燃料棒表面における Co の挙動が薄膜蒸発乾固モデルを利用して再評価され、再評価を通じて Co-60 の総放射能は ORIGEN2 の評価値の約 300 倍となることが示された。

4. 1F 試料分析

4.1 原子炉建屋内スミヤ試料分析

4.1.1 目的

東京電力福島第一原子力発電所(1F)の原子炉建屋内の汚染分布や核種組成などから、事故進展や核種放出経路、放出核種の化学形などについての情報を得ることを目的とし、原子炉建屋内で採取されたスミヤ試料に含まれる以下の核種を対象として分析を行っている。

- ・ ^{134}Cs 及び ^{137}Cs : 揮発性の高い核分裂生成物(FP)であり、健康影響評価上重要な核種である。
- ・ ^{129}I : ^{129}I (長半減期)を分析することにより、同じく健康影響評価上重要な ^{131}I (短半減期)の放出挙動を概略評価できる可能性がある。
- ・ Mo 同位体及び ^{99}Tc : 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。加えて、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は、Cs の主要な化学形が Cs_2MoO_4 等の Mo 化合物になる可能性があるなど、Cs の移行挙動に影響を及ぼす。
- ・ ^{90}Sr 及び α 核種 : 中・難揮発性であるが、MCCI 等によりエアロゾルとして放出される可能性がある。特に、Sr は還元性雰囲気中で燃料から放出されやすい元素であるため、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。

令和 5 年度のスミヤ試料分析では[4-1]、一部の試料において ^{137}Cs が不溶解残渣として溶け残ったこと及び、1F 事故では放射性 Cs 含有微粒子が環境中に放出されたと報じられていることから、酸溶解時にフッ化水素酸(HF)を用いることで全溶解する手法を検討した。検討した手法を用い、2 号機の 1 階～4 階及び 1 号機の 1 階～4 階の壁(高さ 1 m)で採取された試料に含まれる核種分析を実施した。また、1 号機原子炉建屋から採取した 28 試料を受け入れ、これら全てについて γ 線測定、イメージングプレート分析、 β 線スペクトル測定を実施した。

また、令和 5 年度[4-1]はスミヤろ紙を 1000°C で焼成する焼成法を実施し、大部分の ^{137}Cs がセラミックボートに残り、揮発しなかったことから、 ^{137}Cs が耐熱性の化学形をしていることが明らかとなった。スミヤ試料に含まれるヨウ素の化学形については未知であるため、一部の ^{129}I も難分解性の化学形で存在する可能性が考えられた(遊離しやすい ^{129}I はすでに遊離し、遊離しづらい ^{129}I が主に残っている)。従って本年度は、難分解性の物質(酸化物鉍物、ケイ酸塩鉍物、ジルコン等)を分解する一方で、分解したヨウ素はアルカリ性の融剤に捕集する手法(アルカリ溶融法)の分析手順を検討し、分析方法を決定した。

4.1.2 分析手法の検討

4.1.2.1 スミヤろ紙全溶解法の検討

令和 5 年度のスミヤろ紙の分析において[4-1]、2 号機の燃料取扱機室の 2 階で採取された試料(No.62)及び 3 号機の 2 階と 3 階の壁(高さ 1 m)で採取された試料(No.57 及び 59)において ^{137}Cs が有意に不溶解残渣として残り、ケイ酸塩を基質とする放射性 Cs 含有微粒子の存在が考えられたため、HF を用いるスミヤろ紙の溶解法を検討することとした。同時に、これまでは 450°C で 1 時間加熱することでスミヤろ紙を灰化し、有機物成分を除去する手法をとってきたが、加熱により揮発性物質が損失する恐れがあるため、灰化の工程を削除し、硝酸と過酸化水素による酸分解のみでスミヤろ紙を溶解することとした。図 4.1.2-1 に令和 5 年度と令和 6 年度の溶解法の違いを示す。

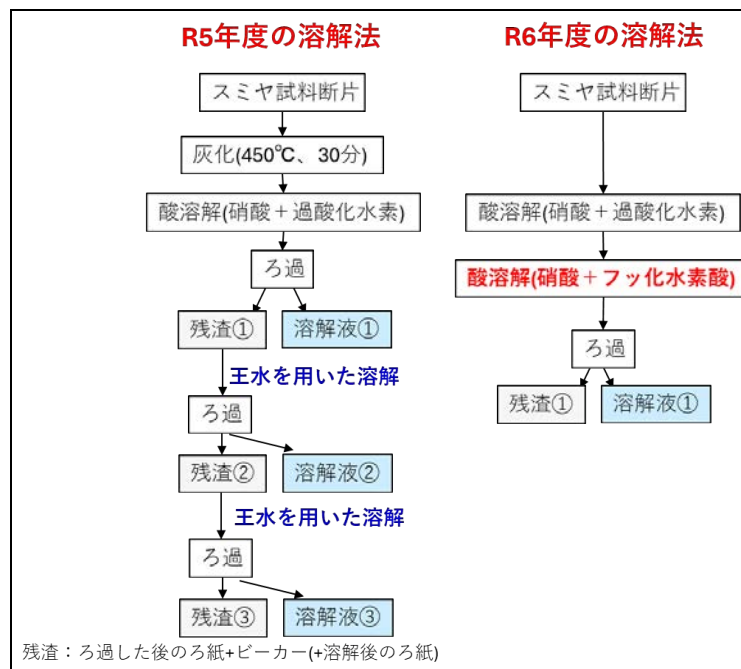


図 4.1.2-1 令和 5 年度と令和 6 年度の溶解法の比較

まず、測定対象となる元素が酸分解工程で損失せずに回収できること及びスミヤろ紙が溶解することを確認するために①ブランク試料(スミヤろ紙のみ)と、②Sr、Mo、Cs、Re(Tcの代替)を添加したスミヤ試料(2 試料)、③Pu と Am を添加したスミヤ試料(2 試料)を用いて溶解試験を実施した。

スミヤ試料の切断片をテフロンビーカーに置き、分析対象とする標準試料を添加した後、5 mL の HNO_3 (68%、TAMAPURE-AA-10)及び 1 mL の H_2O_2 (31%)を添加して加熱した。この有機成分の分解操作を 2 回繰り返した後、ケイ酸塩の溶解を促進するために 3 mL の HNO_3 (68%、TAMAPURE-AA-10)及び HF(38%、TAMAPURE-AA-10)を添加し、蒸発乾固する作業を 1~2 回行った。ここで、Pu や Am はフッ化物を形成して沈殿する恐れがあ

ったため、HF の量が 2 mL のケース①と 0.1 mL のケース②について検討を行った。乾固物に 5 mL の HNO_3 添加し、蒸発乾固して HNO_3 系とした後、10 mL の 1 mol/L HNO_3 溶液に調製し、一部を採取して測定試料を調製し、回収率を求めた。表 4.1.2-1 に各元素の回収率をまとめた。

表 4.1.2-1 HF を使用した酸分解における各元素の回収率 (%)

	Sr	Mo	Cs	Re	Pu①	Am②
1 回目	97±2	102±4	97±2	96±2	52±2	92±3
2 回目	100±2	97±3	95±1	94±3	85±2	103±3
平均	98±2	100±4	96±2	95±2	68±23	98±8
					Pu②	Am②
				1 回目	76±5	87±1
				2 回目	76±4	91±3
				平均	76±1	88±4

各測定では測定における標準偏差と誤差の伝搬式から求めた標準偏差、平均値では 2 回の測定のばらつきを付した

Pu①の 1 回目のみ低い回収率となったが、それ以外では良好な回収率が得られた。加えて、HF の多いケース①と少ないケース②で比較をしたときに、必ずしも HF の多いケース①で Pu や Am の回収率が低くなっているわけではないことから、HF による Pu や Am の損失は少ないと考えられる。

また、検討した全分解法では灰化を行わないため、溶解液中にスミヤロ紙由来の有機成分が残存し、それがその後の化学分離に影響する可能性がある。そこで、上記によって得られた溶解液を用いて令和 5 年度と同様の手法で Sr、Mo、Re (Tc の代替) の化学分離を行い、対象元素が化学分離されるかを調べた。化学分離後の回収率を表 4.1.2-2 に示す。

表 4.1.2-2 化学分離における Sr、Mo、Re の回収率 (%)

	Sr	Mo	Re
1 回目	80±2	84±2	70±2
2 回目	82±1	95±2	66±1
平均	81±2	89±8	68±3

令和 5 年度[4-1]までの化学分離と同程度の良好な回収率が得られたことから、スミヤロ紙由来の有機物は化学分離に大きくは影響しないことが確認された。

以上のことから、フッ化水素酸を用いた酸分解をスミヤロ紙の分析に適用できる見込みが得られたため、令和 5 年度の試験[4-1]で不溶解残渣が観測された No.57 及び No.62 の切断片を用いて新たに検討した全溶解法で溶解を行い、残渣(溶解液をろ過した時にろ紙上に捕集された残渣と溶解に用いたビーカーへの付着物の和)の ^{137}Cs 放射能を調べたところ、元の切断片の放射能に対して $1.2\pm0.9\%$ 及び $4.1\pm3.7\%$ であり、残渣が生じなくなることが確認された。

また、No.57 及び No.62 の溶解液に含まれる ^{90}Sr 、Mo 同位体、 ^{99}Tc 、 ^{137}Cs の mol 濃度及び各核種等と ^{137}Cs との比を求めて昨年度の結果と比較した。その結果を表 4.1.2-3 に示す。なお、放射性核種の濃度を 2011 年 3 月 11 日に補正して比を求めている。

表 4.1.2-3 溶解法による核種分析値の比較

	令和 5 年度		令和 6 年度	
	No.57	No.62	No.57	No.62
^{90}Sr	3.7×10^{-15}	3.3×10^{-14}	3.5×10^{-15}	1.2×10^{-14}
Mo_{total}	2.7×10^{-12}	1.0×10^{-10}	2.2×10^{-12}	6.7×10^{-11}
^{99}Tc	5.4×10^{-12}	7.2×10^{-12}	ND	2.0×10^{-12}
^{137}Cs	3.1×10^{-12}	6.1×10^{-13}	3.4×10^{-12}	2.7×10^{-13}
$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$	0.0012	0.054	0.0010	0.045
$\text{Mo}_{\text{total}}/^{137}\text{Cs}$	0.88	165	0.63	249
$^{99}\text{Tc}/^{137}\text{Cs}$	1.8	12	ND	7.4

$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 、 $\text{Mo}_{\text{total}}/^{137}\text{Cs}$ のモル比は令和 5 年度[4-1]及び令和 6 年度でオーダーでは同程度となり、溶解残渣が残ったとしても大きな影響がないものと考えられる。

他方、 ^{99}Tc については、令和 6 年度の分析では No.57 で不検出、No.62 においても令和 5 年度[4-1]より低くなり、このことから 450°C での燃焼よりも高濃度酸溶液中での加熱の方が ^{99}Tc は揮発することが分かった。また、同族元素である Re では高い回収率が得られたことから、Re と Tc の高濃度酸溶液中での揮発特性には相違があることがわかった。このように、新たに検討した手法において ^{99}Tc がうまく定量できなかったことから、 ^{99}Tc についてはアルカリ溶融法による溶解とそれに続く化学分離法を検討することとした。

4.1.2.2 スミヤろ紙に含まれるヨウ素の定量分析に向けた検討

^{127}I 及び ^{129}I の測定は ICP-MS/MS (Agilent 8900) を使用した。 ^{129}I ($m/z=129$) については妨害となる ^{129}Xe を効率よく除去する酸素ガスを流して実施した。使用した主な標準液は ^{127}I 標準溶液 (1000 $\mu\text{g/g}$, Sigma-Aldrich) と ^{129}I 放射能標準溶液 (0.686 kBq/g, 7.64 $\mu\text{g/g}$ ヨウ素担体含, Eckert&Ziegler) である。当初の予定では、ヨウ素の分析を目的とした固体試料のアルカリ溶融については一般的な分析方法があるので[4-2]、 ^{127}I の担体添加を除くその他の手順はこれを踏襲する予定であった。スミヤ試料は核燃料物質の規制対象になっているため、本分析には核燃料物質使用の許可を得ている ICP-MS/MS を用いる。 ^{127}I 担体量について、常法では 1mg 以上であるが、ICP-MS/MS でヨウ素を測定する本分析では無担体で実施する予定であった。しかし、まず常法と同じ手順でアルカリ溶融を実施したところ、ヨウ素の回収率が想定外に低い結果となってしまった(表 4.1.2-4, ID-0)。そこで融剤を変更することにより、高い回収率を得られるようになった(表 4.1.2-4, ID-1)。次に、

^{127}I 担体量を減らすことを試みたところ、常法より桁で少ない ^{127}I 担体量ではヨウ素を安定的に回収することが難しいことがわかったため、最適な ^{127}I 担体量を決定するため試験を実施した（表 4.1.2-4, ID-2~7）。このように、少ない ^{127}I 担体量で効率的にヨウ素を回収するために、細かに分析方法を試行錯誤する必要が生じた（表 4.1.2-4, ID-8~14）。詳細は以下の通りである。

① 融剤

アルカリ溶融による ^{129}I の分析手法については先行研究[4-2]を参考にして、融剤に水酸化ナトリウムを使用し、 ^{127}I を 1 mg 添加して ^{127}I の回収率を求める試験を実施したが、 ^{127}I の回収率は～6%と低かった。そのため、別の一般的なアルカリ性の融剤である炭酸ナトリウムで試験した結果、 ^{127}I の回収率は 57%になった。また、アルカリ融解の際にヨウ素が揮発するのを防ぐために、溶けた融剤で試料上部をコーティングし、この上に融剤を追加で添加し、アルカリ溶融をする方法に変更した（図 4.1.2-2）。手順を変更した結果、 ^{127}I の回収率は 93%に向上した。



図 4.1.2-2 スミヤろ紙のアルカリ溶融の方法

(1)炭酸ナトリウムにスミヤろ紙を載せ、(2)スミヤろ紙が浸る程度の超純水を添加し、(3)120℃で 30 分間加熱して水分を蒸発させ、(4)上部に炭酸ナトリウムを更に追加で添加して 850℃で 60 分間加熱し、室温で放冷（固形化）させた。

② ^{127}I 添加量

次に、 ^{127}I の添加量を検討した。先行研究では化学分離における ^{129}I の回収率を担保する等の目的で約 1 mg の ^{127}I 担体を加えている。一方で、本試験は ICP-MS/MS を使用するために、装置（測定）に影響する ^{127}I 担体の添加量は可能な限り少なくする必要がある。従って、 ^{129}I の添加量は一定にして、 ^{127}I の添加量を変化させた複数の条件で、 ^{127}I 及び ^{129}I の回収率を求めた（表 4.1.2-4、図 4.1.2-3）。各試験の回収率については、一部の試験を除いて、3 試料を分析した結果の平均値である。試験結果から、 ^{127}I の添加量が増えると ^{127}I 及び ^{129}I の回収率は高くなる傾向がみられた。 ^{127}I 担体の添加量については、 ^{129}I の回収率が約 50%と比較的高く、かつ ICP-MS/MS に残る ^{127}I 担体由来の影響（ ^{127}I のバックグラウンド）が低い $0.3\mu\text{g}$ に決定した。 ^{127}I 担体を $0.3\mu\text{g}$ 添加した場合、ICP-MS/MS での ^{127}I 濃度は約 10ppb であり、希釈せずに試料を測定した場合でも、超純水等を一定時間 ICP-

MS/MS に流すことで比較的容易に ^{127}I のバックグラウンドを低下させることができるため、装置への影響は小さいと考えられる。なお、 ^{129}I の干渉イオンである ^{127}I の二水素イオン ($^{127}\text{I}^1\text{H}_2^+$) の影響については、 ^{129}I を含まない ^{127}I 標準溶液 (0–200 ppb 間で 7 種類の濃度) を ICP-MS/MS で測定して $m/z=129$ のカウントに有意な差がなかったことから、 ^{127}I 濃度が ≤ 200 ppb では ^{129}I に影響がないことを確認した。先行研究[4-3]で ^{127}I の二水素イオンの影響 ($m/z=129$ の有意なカウント) は ^{127}I の濃度が ppm の範囲で得られており、生成率 ($129/127$ のカウント比) は 10^{-8} と報告されている。従って、 ^{127}I の二水素イオンの干渉に関する本試験結果は先行研究と矛盾しない。更に、溶媒抽出や ICP-MS で使用している PP 容器表面へのヨウ素吸着を防ぐことで回収率を向上させるため、PFA 容器を使用した溶媒抽出及び ICP-MS/MS を実施した。結果、PP 容器と比較して PFA 容器では ^{127}I 及び ^{129}I の回収率が高くなった。従って、アルカリ溶融である程度のヨウ素の損失はあるものの、アルカリ溶融手順の改良と PFA 容器の採用によってある程度の ^{129}I 回収率は得られるようになったので、本方法に決定した (図 4.1.2-4)。

表 4.1.2-4 ヨウ素の回収率に関する試験の概要 (1/2)

ID	作業概要	試料数	¹²⁷ I 添加量	¹²⁹ I 添加量	経緯
			g	g	
0	アルカリ溶融_溶媒抽出 (PP 容器)	5	1×10^{-3}	なし	固体試料に含まれるヨウ素の定量分析では、融剤に NaOH を用いるアルカリ溶融が一般的である。本方法の ¹²⁷ I 担体量は $\geq 1 \times 10^{-3}$ g であり、中性子放射化分析等でヨウ素を定量する。本研究では、 1×10^{-3} g の ¹²⁷ I 担体量と NaOH でアルカリ溶融をした結果、 ¹²⁷ I 回収率は～6%と低かった。従って従来のアルカリ溶融法を変更する必要があった。
1	アルカリ溶融_溶媒抽出 (PP 容器)	1	1×10^{-3}	なし	融剤を Na ₂ CO ₃ に変更し、更に Na ₂ CO ₃ の添加方法を改良することで、 ¹²⁷ I 担体量が 1×10^{-3} g の条件でアルカリ溶融及び溶媒抽出の ¹²⁷ I 回収率が 93%に達した。
2	アルカリ溶融_溶媒抽出 (PP 容器)	3	2×10^{-9}	3×10^{-8}	本分析では ICP-MS/MS で ¹²⁷ I と ¹²⁹ I を定量するので担体量には制約がある。 ¹²⁷ I 担体が少量の本番試料に近い条件として、 ¹²⁷ I 担体が無く、更に ¹²⁷ I と ¹²⁹ I 量が少ない条件で試験し、 ¹²⁷ I、 ¹²⁹ I の回収率は 13～21%に下がった。まずは溶媒抽出作業における ¹²⁷ I 担体量と ¹²⁷ I、 ¹²⁹ I の回収率の関係性を評価することにした。
3	溶媒抽出(PP 容器)	1	1×10^{-9}	2×10^{-8}	
4	溶媒抽出(PP 容器)	3	2×10^{-9}	3×10^{-8}	
5	溶媒抽出(PP 容器)	3	3×10^{-5}	2×10^{-8}	
6	溶媒抽出(PP 容器)	3	3×10^{-7}	8×10^{-8}	¹²⁷ I 担体量が増えるとヨウ素の回収率は高くなると評価でき、少量の担体量ではヨウ素の回収は困難だとわかった。ICP-MS/MS への影響が最小限で、ある程度の ¹²⁹ I が回収できる担体量を決定し、更に容器表面へのヨウ素吸着を防ぐ為に PFA 容器を試すことにした。
7	溶媒抽出(PP 容器)	3	3×10^{-6}	1×10^{-8}	
8	溶媒抽出(PFA)_ICP-MS(PP)	1	2×10^{-9}	1×10^{-8}	PFA 容器を用いて溶媒抽出及び ICP-MS をすることで、ICP-MS への影響が最小限である ¹²⁷ I 担体量 (0.3 μg) で、78%の ¹²⁷ I と ¹²⁹ I 回収率を達成した。
8-1	溶媒抽出(PFA)_ICP-MS(PFA)	1	2×10^{-9}	1×10^{-8}	
9	溶媒抽出(PFA)	3	3×10^{-7}	2×10^{-8}	

表 4.1.2-4 ヨウ素の回収率に関する試験の概要 (2/2)

ID	作業概要	試料数	¹²⁷ I 添加量	¹²⁹ I 添加量	経緯
			g	g	
10	アルカリ溶融_溶媒抽出(PFA)	3	6×10^{-7}	4×10^{-8}	¹²⁷ I 担体量 0.3 µg 及び、PFA 容器でアルカリ溶融及び溶媒抽出を実施した結果、 ¹²⁷ I、 ¹²⁹ I の回収率は約 52%に下がった。アルカリ溶融でヨウ素の損失はあるが、少ない担体量である程度の回収率を達成したので、本方法に決定した。
11	溶媒抽出(PFA)	3	3×10^{-6}	2×10^{-8}	
12	溶媒抽出(PFA)	3	3×10^{-5}	2×10^{-8}	
13	溶媒抽出(PP 容器)	3	3×10^{-8}	2×10^{-8}	
14	溶媒抽出(PFA)	3	3×10^{-8}	2×10^{-8}	

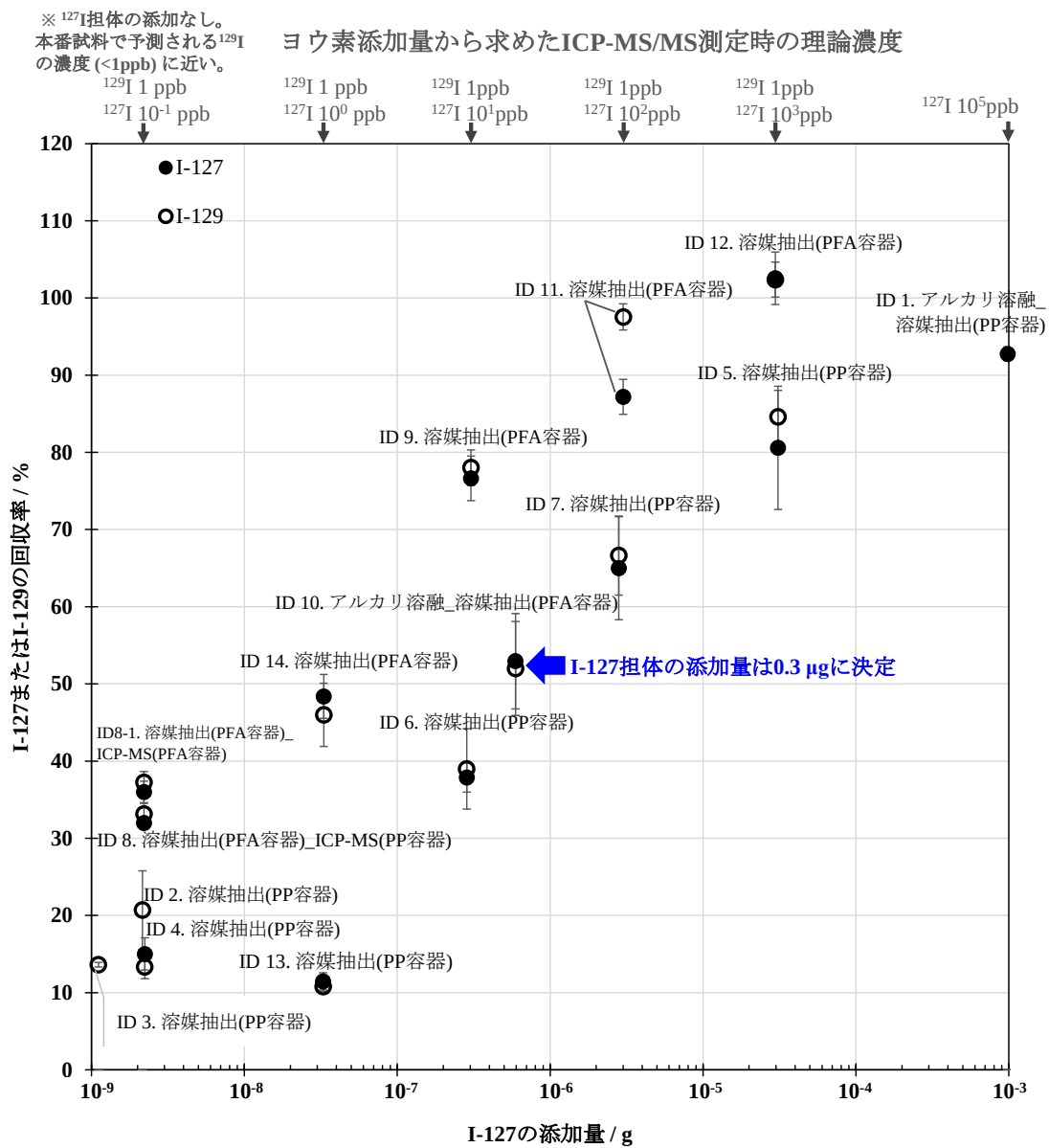


図 4.1.2-3 ^{127}I の添加量 vs ヨウ素の回収率
(一部の試験を除いて、3 試料を分析した結果の平均値とばらつき (標準偏差) を示す)

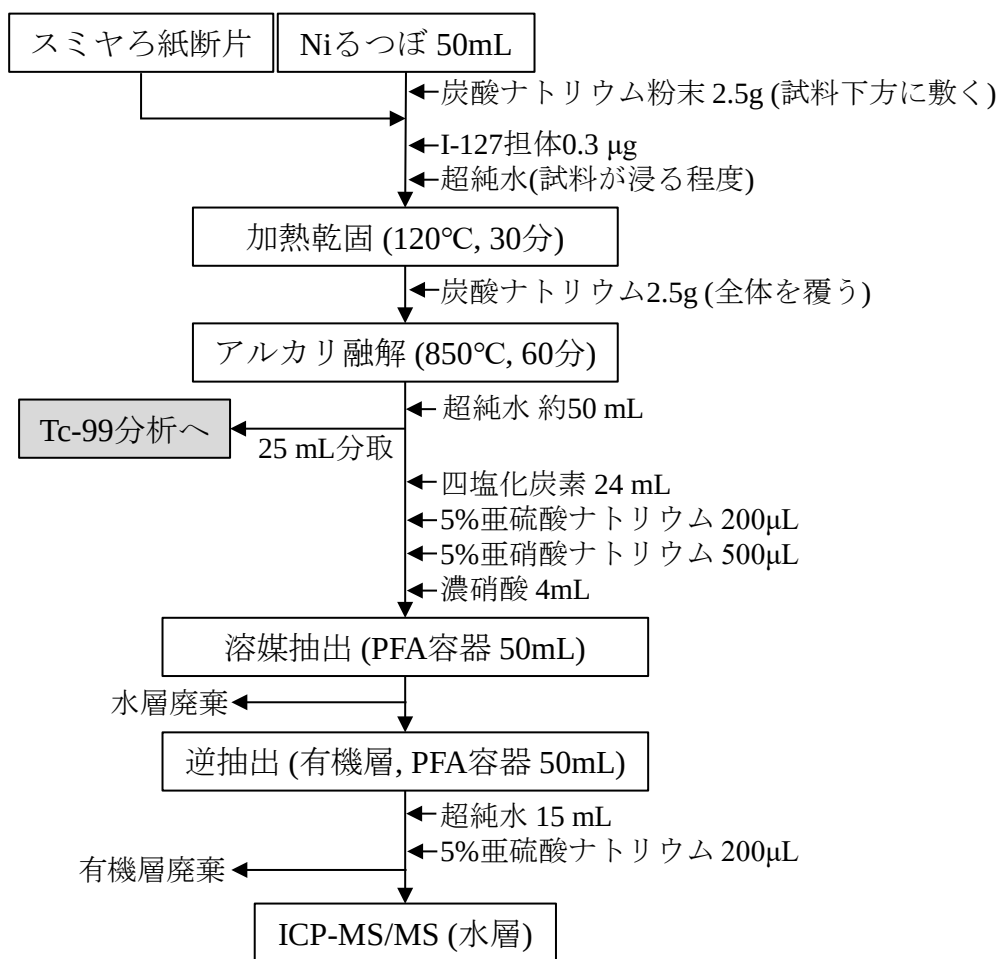


図 4.1.2-4 スミヤろ紙試料中 ^{129}I の分析スキーム

4.1.2.3 アルカリ溶融を用いた ^{99}Tc 分析法の検討

アルカリ溶融による溶解液は多量の塩を含むことから、鉄共沈等で測定対象元素を沈殿として回収し、塩を除去してから、沈殿を酸で溶解してから化学分離を行う手法が使用されている。百島らは、海水中に存在する 7 価の過テクネチウム酸イオンを pH4 条件下で 1.0 g/L のピロ亜硫酸カリウムで還元して 4 価のテクネチウムとすることで水酸化鉄と共沈できると報告している[4-4]。また、周期表において Tc の下段に来る Re は、安定同位体のない Tc の担体や回収率補正用元素として広く使用されている[4-5]。そこで、まずはコールド試験として Re を用い、 Na_2CO_3 によるアルカリ溶解液からの水酸化鉄共沈による回収試験を実施した。この時、スミヤろ紙に含まれ、Tc の分析に影響する可能性がある元素の挙動についても調べるため、Cs、Sr、Mo、Eu についても添加して試験を行った。

Ni るつぼの底に 1 g の Na_2CO_3 を敷き詰め、その上に 1/4 に切ったスミヤろ紙を載せた。Cs、Sr、Mo、Re、Eu の 1000 ppm 標準溶液を各 0.1 mL 添加してから、4 g の Na_2CO_3 をスミヤろ紙にかぶせるようにのせた。ホットプレート上で加熱して水分を飛ばしてから、Ni

るつぼにふたをし、電気炉に入れて 850℃で 30 分加熱した。電気炉の電源を切り、350℃程度まで温度が下がるのを待ってから Ni るつぼを取り出し、るつぼのふたを取り 70 mL の温水を加えて溶融物を溶解した。溶解液をビーカーに移し、洗液も加えて約 100 mL 程度の溶解液に Fe 担体溶液(10 mg Fe/mL)を 1 mL 加えた。攪拌子で攪拌しながら試料に硝酸を加え、pH を 4 程度に調製した。ピロ亜硫酸カリウムを 0.1 g 添加し、10 分間還元のために攪拌を続けた。10 M NaOH を加えて pH 9 とし、水酸化鉄沈殿を生成させた。沈殿をろ過し、沈殿を 1 M 硝酸で溶解した。沈殿溶解液に過酸化水素を加え、乾固直前まで蒸発させてから 1 M 硝酸に溶解し、この溶液を希釈して測定試料を調製した。同様に、沈殿をろ過した時のろ液も希釈して測定試料を調製した。その結果、ほぼ 100%の Mo と Cs、66～78%の Re がろ液中に存在することが分かった。沈殿溶解液中には Re が検出されなかったことから、一部の Re は揮発した可能性があり、また、沈殿として Re を回収する予定であったが、本試験条件ではほとんど溶液中に残ることが分かった。

そこで、アルカリ溶融後の溶解液から Re を分離・精製する方向で検討を行った。ここで、スミヤろ紙の分析において、 ^{129}I と ^{99}Tc を同じ試験片からアルカリ溶融によって分析するため、アルカリ溶融法としては統一する必要がある。Re を担体として用いる場合に、富士フィルム和光純薬の Re 標準液は 5%硝酸溶液であり、I が酸によって揮発する恐れがあるため、酸を含まない Sigma-Aldrich 社製の過レニウム酸水溶液を購入し、担体として用いることにした。

Ni るつぼに Na_2CO_3 を 2.5 g を入れ、その上に 1/4 に切断したスミヤろ紙を載せた。Re として 2 mg 相当の過レニウム酸水溶液と 1 mg 相当の ^{127}I を含む標準液を添加し、120℃の電気炉内で 30 分加熱して水分を蒸発させた。一度るつぼを取り出し、さらに 2.5 g の Na_2CO_3 をろ紙にかぶせるように添加してから、Ni るつぼにふたをして、電気炉に入れ、850℃で 60 分保持して溶融した。溶融後速やかにるつぼはさみを用いてるつぼを取り出し、試料を壁面に移動させながら固形化させた。断熱材の上で放冷後、超純水を約 10 mL 入れ、ホットプレート上で加温して溶解した。溶解液を質量測定済みの 50 mL の digitube に移し、超純水での溶解を繰り返し、50 mL 水溶液に調製した。I 分析用に一部の試料を採取した後、残りの試料に硝酸を加えて中性にし、さらに過酸化水素 1 mL を添加して加温し、放冷後にろ過した。ろ液に硝酸と超純水を添加して、50 mL の 1 M 硝酸溶液に調製し、リンモリブデン酸アンモニウム(AMP)を 1 g 添加して、攪拌子で 1 時間攪拌してからろ過した。

2 mL の TEVA レジンのカラムに詰め、1 M 硝酸 5 mL を通液してコンディショニングを行った後、AMP 処理後のろ液を全量通液した。1M 硝酸でカラムを洗浄後、受けを 20 mL 液体シンチレーションカウンタ用ガラスバイアルに変え、10 mL の 8 M 硝酸で Re を回収した。回収液に過酸化水素を 1 mL 添加した後、ホットプレートで穏やかに(80℃以下)で加熱して回収液を蒸発乾固した。その後、1 M 硝酸で溶解し、適宜希釈して ICP-MS 測定用試料を調製した。

同様のアルカリ溶融とその溶解液からの化学分離試験(AMP 処理、TEVA レジンによる精製)を、無担体の ^{99}Tc 及び ^{129}I を添加した試料で実施した。

Re 及び ^{99}Tc の回収率はそれぞれ 44% と 40% で同程度であり、やや低い回収率であるが、Re と ^{99}Tc の挙動は同様であり、本手法においては ^{99}Tc の回収率補正を Re で行えると考えられる。また、 ^{99}Tc についてはトレーサー量での試験であったが、マクロ量の Re と同様の挙動を示しており、壁面への吸着などによる損失は少ないと考えられる。

本手法の検討において、回収率が低くなった原因として、 Na_2CO_3 に硝酸を加えるところで発泡するなどあったため、その部分での損失を考慮して、酸性にして AMP 処理をする部分を排除し、アルカリ溶融の溶解液をそのまま化学分離できるかの検討を行った。その際に、多量に存在する ^{137}Cs を AMP で除去する工程を省くため、TEVA レジンでの分離のみで ^{137}Cs が十分除去可能かについて確認することとした。また、 ^{99}Tc は LSC 以外にも ICP-MS での測定も広く行われており、その際には同重体の ^{99}Ru が問題となることから、Ru の除染計数についても放射性の ^{106}Ru の添加試験で確認することとした。

炭酸ナトリウム 2.5 g に 10.5 Bq の ^{99}Tc を添加し、超純水で 25 mL とした溶液(T1, T2) 及び炭酸ナトリウム 2.5 g に 1761 Bq の ^{137}Cs と 15.3 Bq の ^{106}Ru を添加し、超純水で 25 mL とした溶液(CR1, CR2)を試料とした。また、操作ブランクとして、2.5 g の炭酸ナトリウムを超純水で溶解して 25 mL とした溶液を用いた。2 mL の TEVA レジンをカラムに詰め、8 mL の超純水を通液してコンディショニングを行った。その後試料を通液し、超純水を 25 mL 通液した。Ru を除去し、かつ、Re を担体として用いるには 1 M 硝酸での洗浄が良いとの報告があるため[4-5]、超純水での洗浄後に 1 M 硝酸での洗浄を行う予定であったが、超純水を 25 mL 通液した後もカラムの通過液がアルカリ性を示しており、試しに操作ブランク試料を通液したカラムに 1 M 硝酸を通液したところ、TEVA レジンの層の中で発泡し、レジンの層が 2 つに分断した上、通液速度が著しく遅くなってしまった。そのため、1 M 硝酸での洗浄をあきらめ、通過液が中性になるまで超純水を通液することとした。合計 60 mL の超純水を通液したところ、通過液が中性になったため、8 M 硝酸を通液して Tc を回収した。発泡は認められなかったが、通液速度が著しく低下し、TEVA レジン層が 2 つに分断した。8 M 硝酸の密度は 1.25 g/mL であるのに対し、TEVA レジンの密度は 1.09 g/mL であるため、レジンが浮いてしまったことによると考えられる。しかし、Tc の回収率は $85 \pm 2\%$ と高かった。図 4.1.2-5 に各試料の回収液及び各核種について試料に添加量と等量の RI で作成した試料(マテバラ)の液体シンチレーションスペクトルを示す。茶線で示す ^{137}Cs マテバラと CR1 や CR2 の比較から、明らかに ^{137}Cs が除去されていることが分かる。一方、灰色で示す ^{106}Ru のマテバラと CR1 及び CR2 は形状が同じで計数の少ないスペクトルとなっていることから、 ^{106}Ru が除去されていないことが分かる。 ^{137}Cs は無視できるとして全て ^{106}Ru であるとして計算した回収液中の ^{106}Ru の回収率は $50 \pm 2\%$ であり、半分ほどの Ru が残る結果となった。

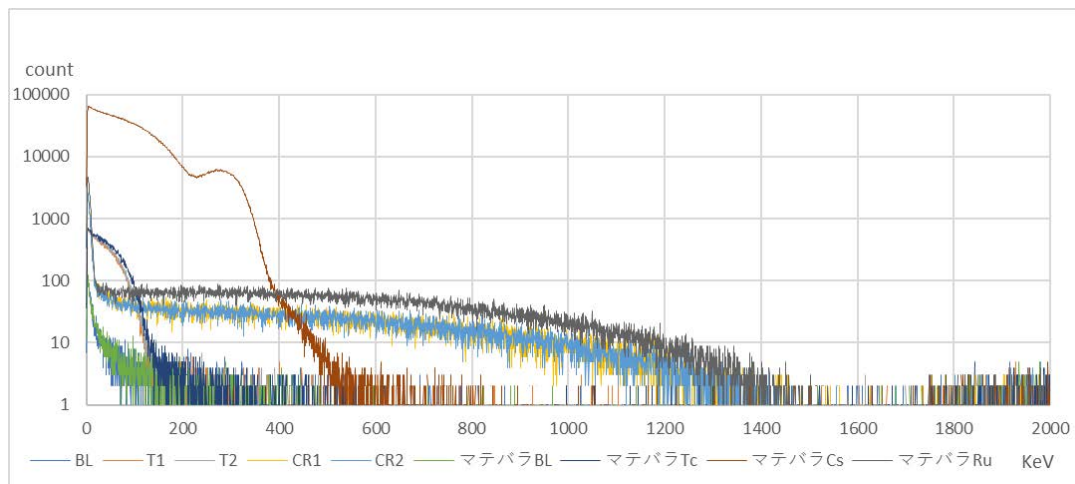


図 4.1.2-5 回収液及び各マテバラ試料の液体シンチレーションカウンタのスペクトル

通液中に TEVA レジンのカラムが詰まることを避けるためにカートリッジタイプの TEVA レジン(1 mL)をマニホールドに装着し、真空引きによって通液する手法の検討を行った。炭酸ナトリウム 2.5 g に 10.5 Bq の ^{99}Tc 及び 1 mg 相当の Re を添加し、超純水で 25 mL とした溶液(TR1, TR2)及び炭酸ナトリウム 2.5 g に 1761 Bq の ^{137}Cs と 15.3 Bq の ^{106}Ru を添加し、超純水で 25 mL とした溶液(CR1, CR2)を試料とした。スキーム①として、超純水で TEVA レジンカートリッジのコンディショニングを行った後、試料溶液(TR1 又は CR1)を通液し、25 mL の超純水で洗浄後、25 mL の 1 M 硝酸で洗浄してから、5 mL の 8 M 硝酸で Tc を回収する、と、スキーム②として、試料溶液(TR2 又は CR2)をスキーム①と同じスキームで処理した後、回収液に超純水を 35 mL 加えて約 1 M 溶液後、これを再び TEVA レジンカートリッジに通液し、25 mL の 1 M 硝酸で洗浄した後、5 mL の 8 M 硝酸で Tc を回収するスキームを検討した。その結果、 ^{99}Tc と Re の回収率は、1 回通液のスキーム①ではそれぞれ 95% と 88%、2 回通液のスキーム②では 86% と 62% となった。また、CR1 及び CR2 を通液した試料での Ru の回収率は 0.9% 及び検出下限値以下であった。 ^{137}Cs は AMP 処理なしで TEVA レジンによる通液のみでも十分除去できることが分かった。 ^{106}Ru の半減期は 371.8 日であり、事故から 14 年たった今ではほとんど減衰していなくなっていると考えられるため、回収率の高い 1 回通液で行い、 ^{99}Ru の影響がない液体シンチレーションカウンタによる測定を行うことが妥当であると考えられる。

4.1.2.4 電着装置を用いたアルファ線分析用試料の調製法の検討

これまではアルファ線を放出する核種の測定を行うために、試料溶液を直接金属板に焼き付けて測定用試料を作製してきたが、今年度、通電により溶液中のイオンを電極の表面に付着させる電着装置を導入したことから、電着による測定用試料を作製し、予備的な試験を実施した。

溶液試料として汎用混合標準液をステンレス板（φ 25 mm）に電着した試料（電着試料）と、同じくステンレス板にホットプレート及び電気炉で焼付した試料（焼付試料）を作製した。これらをアルファ線スペクトロメーターで測定し、測定結果を比較した。図 4.1.2-6 に電着装置の外観、表 4.1.2-5 に測定試料の概要を示す。

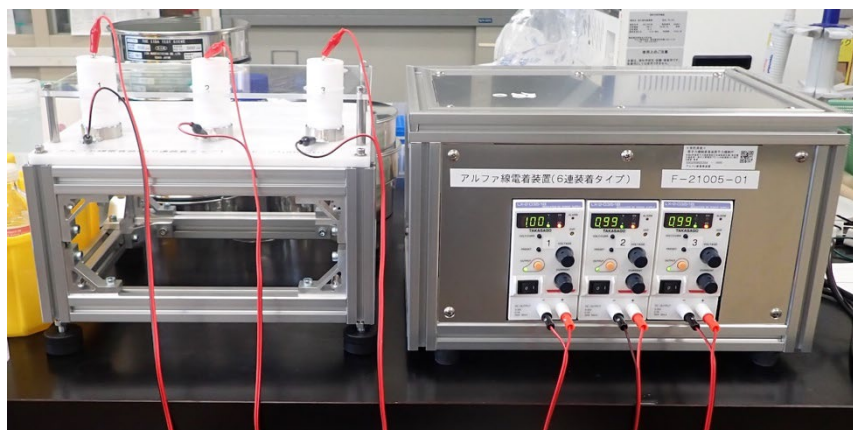


図 4.1.2-6 電着装置の外観

表 4.1.2-5 測定試料の概要

番号	名称	調製内容
#1-1～2	操作ブランク	BG 測定用、1 M 硝酸 1 mL を#1-1 は電着、#1-2 は焼付。
#2-1	電着試料	汎用混合標準液 1 mL を φ 10 のセルで電着。
#3-1	焼付試料	汎用混合標準液 1 mL を焼付。

汎用混合標準液は、ICP-MS 等での分析で一般的に用いられている西進商事製 XSTC-13 を用いた。XSTC-13 には Th、U を含む 31 元素が各 10 mg/L 溶解されており、これを希釈や分離・精製操作を行わずに、電着及び焼付試料作製として用いた。また、電着試料及び焼付試料の操作ブランクとして 1 M 硝酸を用いた。

石英ビーカーに 1 M 硝酸または XSTC-13 を 1 mL 分取し、ホットプレート上で蒸発乾固させ、これらを「放射能測定法シリーズ 14 ウラン分析法」[4-6]の電着操作に準じて溶解及び調製した。孔径 φ 10 mm の電着セルを採用し、通電は、電流 1.0 A で 2 時間実施した。電着後、600℃で 15 分、電気炉で加熱し、電着試料とした（図 4.1.2-7）。



図 4.1.2-7 電着試料 (#2-1)

焼付試料は、120℃に設定したホットプレートにステンレス板を載せ、1 M 硝酸または XSTC-13 を 1 mL ずつ容器に計りとり、ピペットで 1 滴ずつ滴下し、蒸発乾固させた。XSTC-13 の容器は 1 M 硝酸 200 μ L で 3 回洗浄し、洗液も蒸発乾固させた。蒸発乾固は、1 試料あたり約 1 時間要した。これらを電着試料と同様に 600℃で 15 分、電気炉で加熱し、焼付試料とした（図 4.1.2-8）。



図 4.1.2-8 焼付試料 (#3-1)

放冷後、ミリオンテクノロジー・キャンベラ製アルファ線スペクトロメーター Alpha Analyst 7200-06 で測定した。測定時間は、48 時間とした。図 4.1.2-9～10 にアルファ線スペクトロメーターによる測定結果を示す。

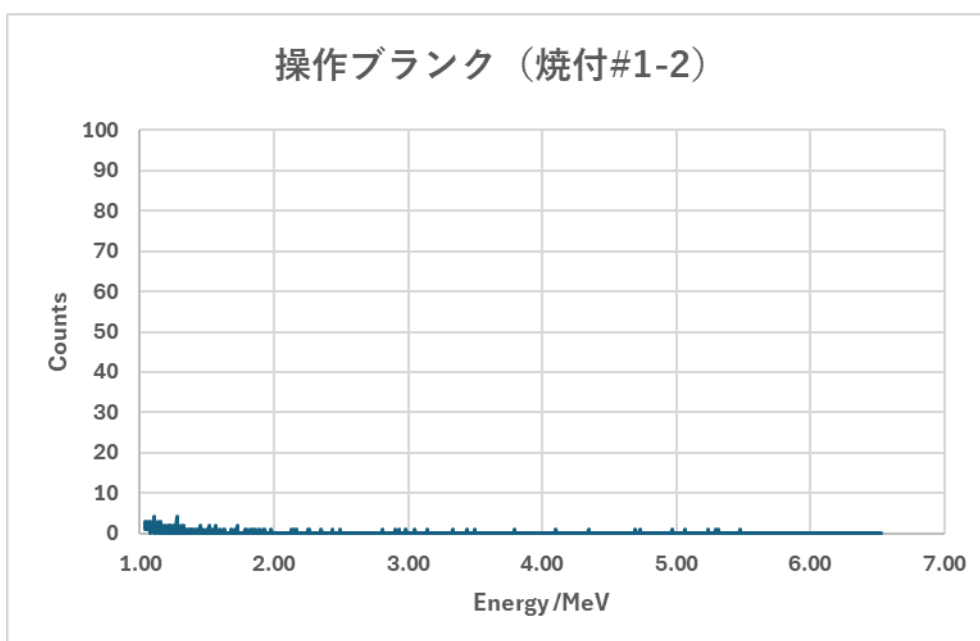
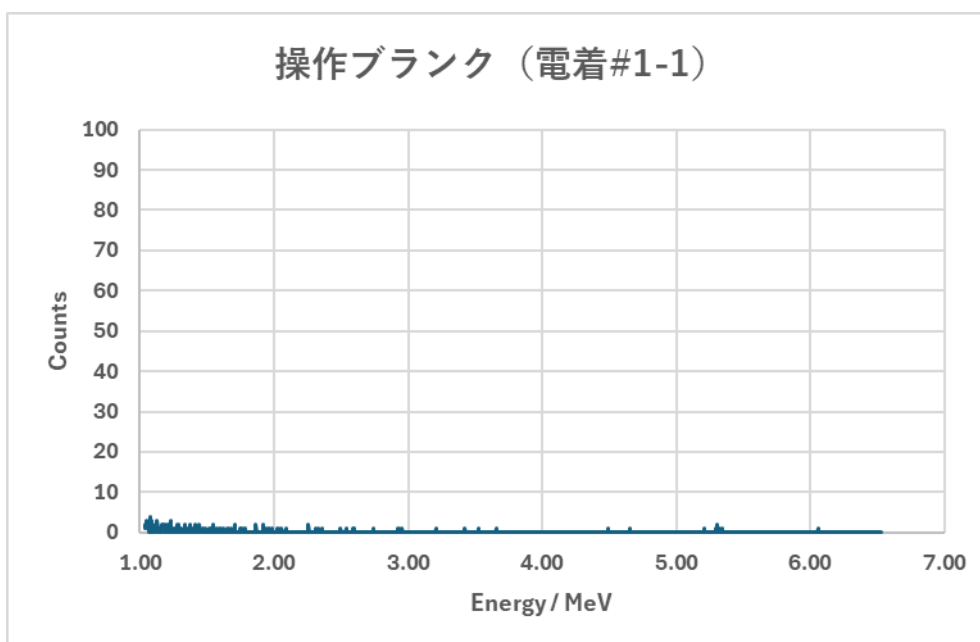


図 4.1.2-9 アルファ線スペクトロメーターによる測定結果（操作ブランク）

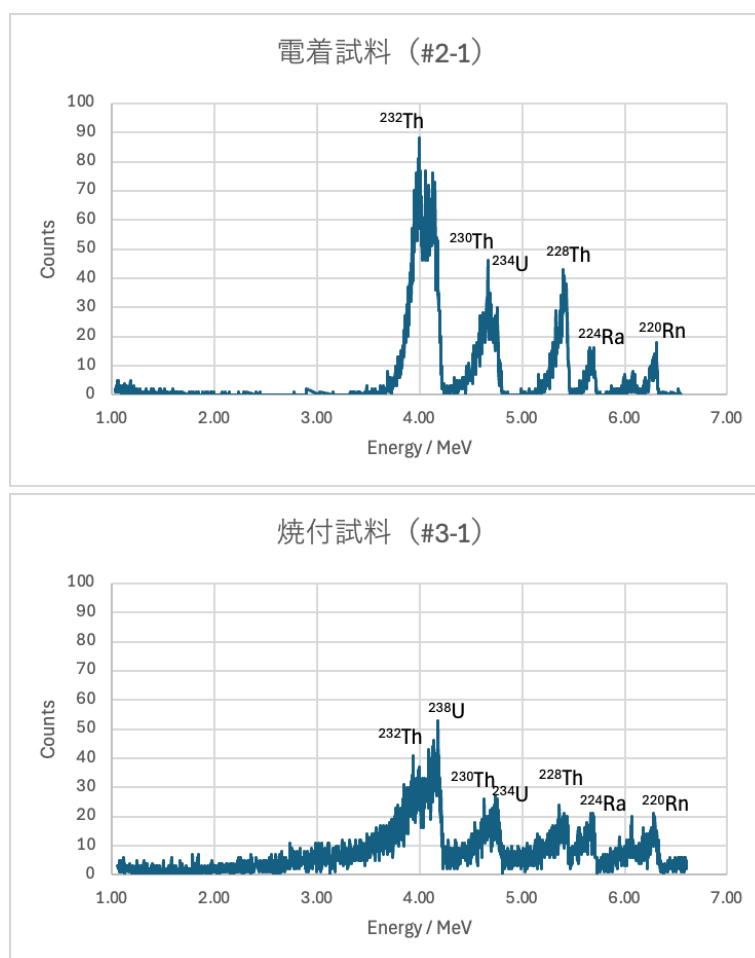


図 4.1.2-10 アルファ線スペクトロメーターによる測定結果（電着及び焼付試料）

Th と U が一つの試料溶液に含まれるため、4.000 MeV 付近で ^{238}U (4.197 MeV、放出割合 77%[4-7]) と ^{232}Th (4.013 MeV、放出割合 77%[4-7]) のピークが重なっており、両者の分別・定量は困難であるが、これら核種のピークが大きいことから、電着試料の方が高い計数効率が得られていると思われる。電着試料に比べ、焼付試料には塩の析出が多く、厚みのある試料となったため（図 4.1.2-7）、アルファ線の自己吸収が発生し、焼付試料のカウント数が低くなったと考えられる。Th や U の分離・精製操作をしてから電着試料や焼付試料を作製することにより、より明瞭なピークが得られる可能性がある。

4.1.3 スミヤ試料及び分析手順の概要

1 号機原子炉建屋内で採取されたスミヤ試料、合計 28 試料を令和 6 年 9 月 11 日に原子力科学研究所内に受け入れた。受け入れたスミヤ試料の試料 No. 試料名、採取場所及び採取日を表 4.1.3-1 に示す。また、放射化学分析の概要を図 4.1.3-1 に示す。受け入れた全ての試料に対して Ge 半導体検出器を用いた γ 線測定、イメージングプレート分析及び β 線スペクトルの解析による ^{90}Sr 分析を行った。また、1 号機の 1～4 階で採取された 4 試料および

令和 3 年度に受け入れた 2 号機の 4 試料について[4-8]、4.1.2.1 で検討した方法で酸溶解を行い、 γ 線放出核種、 ^{90}Sr 、Mo 同位体、U の分析を行った。また、令和 5 年度に分析を行った 2 号機の FHM 操作室および 3 号機原子炉建屋 2 階で採取された試料について[4-1]、溶解における回収率がやや低かったため、 γ 線放出核種その他、 ^{90}Sr 、Mo 同位体、U の再分析を行い、結果を比較した。

表 4.1.3-1 1号機原子炉建屋内で採取されたスミヤ試料の試料 No.*、試料名、採取場所
及び採取日

試料 No.	試料名	採取場所	採取日
No.84	U1RB-2FW1.0-1_231222	2 階西側壁 1	2023/12/22
No.85	U1RB-2FW0.2-2_231222	2 階西側壁 2	2023/12/22
No.86	U1RB-1FW1.0-3_231222	1 階 SCH ポンプ室外側壁 3	2023/12/22
No.87	U1RB-1FW1.0-4_231222	1 階 SCH ポンプ室外側壁 4	2023/12/22
No.88	U1RB-1FW1.0-5_231222	1 階西側壁 5	2023/12/22
No.89	U1RB-1FW0.2-6_231222	1 階西側壁 6	2023/12/22
No.90	U1RB-1FW1.0-7_231222	1 階南側壁 7	2023/12/22
No.91	U1RB-1FW0.2-8_231222	1 階南側壁 8	2023/12/22
No.101	U1RB-2FS-1_240517	2 階北西側階段裏面 1	2024/5/17
No.102	U1RB-2FW1.0-2_240517	2 階北側壁 2	2024/5/17
No.103	U1RB-2FW0.2-3_240517	2 階北側壁 3	2024/5/17
No.104	U1RB-2FF-4_240517	2 階北側床 4	2024/5/17
No.105	U1RB-3FS-5_240517	3 階北西側階段裏面 5	2024/5/17
No.106	U1RB-3FW1.0-6_240517	3 階北側壁 6	2024/5/17
No.107	U1RB-3FW0.2-7_240517	3 階北側壁 7	2024/5/17
No.109	U1RB-3FF-9_240517	3 階北側床 9	2024/5/17
No.110	U1RB-4FS-10_240517	4 階北西側階段裏面 1 0	2024/5/17
No.111	U1RB-4FW1.0-11_240517	4 階北側壁 1 1	2024/5/17
No.112	U1RB-4FW0.2-12_240517	4 階北側壁 1 2	2024/5/17
No.113	U1RB-4FF-13_240517	4 階北側床 1 3	2024/5/17
No.114	U1RB-3FW1.0-14_240517	3 階格納容器外側壁 1 4	2024/5/17
No.115	U1RB-3FW0.2-15_240517	3 階格納容器外側壁 1 5	2024/5/17
No.117	U1RB-3FF-17_240517	3 階格納容器外側床 1 7	2024/5/17
No.118	U1RB-4FW1.0-18_240517	4 階東側壁 1 8	2024/5/17
No.119	U1RB-4FW0.2-19_240517	4 階東側壁 1 9	2024/5/17
No.120	U1RB-4FW1.0-20_240517	4 階東側壁 2 0	2024/5/17
No.121	U1RB-4FW0.2-21_240517	4 階東側壁 2 1	2024/5/17
No.122	U1RB-4FF-22_240517	4 階東側床 2 2	2024/5/17

※ 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 4 2 回会合資料 3
(<https://www.nra.go.jp/data/000469225.pdf>)

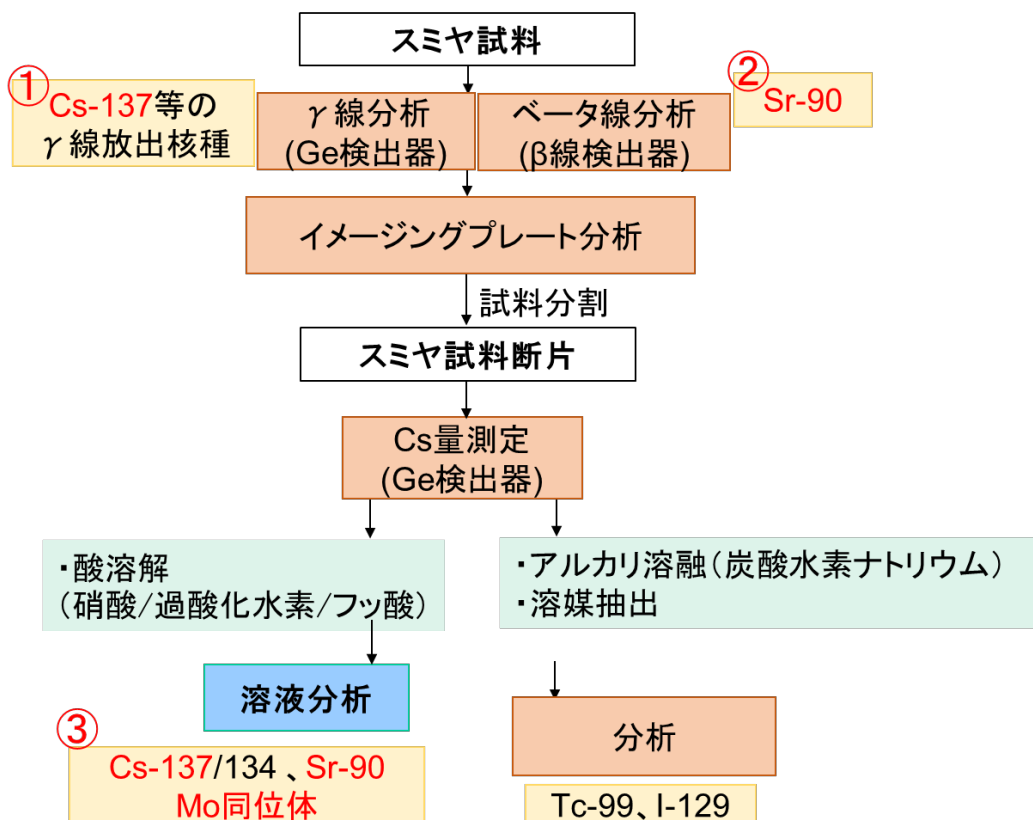


図 4.1.3-1 スミヤ試料の放射化学分析の概要

4.1.4 γ線分析結果

全てのスミヤ試料において ^{134}Cs 及び ^{137}Cs が検出された。No.118 において ^{125}Sb が検出された。No.109、118、120 において ^{60}Co が検出された。表 4.1.4-1 に ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{125}Sb 、及び ^{60}Co の測定結果を示す。

表 4.1.4-1 スミヤろ紙試料の γ 線測定結果 (1/2)

試料 No.	試料名	測定開始日	^{134}Cs		^{137}Cs		^{125}Sb		^{60}Co	
			測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)
No.84	U1RB-2FW1.0-1_231222	2024/11/7	1.43E+01	1.84E-01	1.13E+03	2.22E+00	ND		ND	
No.85	U1RB-2FW0.2-2_231222	2025/3/10	1.27E+01	1.74E-01	1.10E+03	2.16E+00	ND		ND	
No.86	U1RB-1FW1.0-3_231222	2025/1/31	7.36E-01	3.56E-02	7.03E+01	3.17E-01	ND		ND	
No.87	U1RB-1FW1.0-4_231222	2025/3/15	1.57E+00	4.41E-02	1.35E+02	4.29E-01	ND		ND	
No.88	U1RB-1FW1.0-5_231222	2024/11/6	4.27E+00	9.92E-02	3.44E+02	1.09E+00	ND		ND	
No.89	U1RB-1FW0.2-6_231222	2024/11/13	5.53E+00	1.31E-01	4.35E+02	1.47E+00	ND		ND	
No.90	U1RB-1FW1.0-7_231222	2024/11/14	4.44E-01	6.35E-02	3.00E+01	3.95E-01	ND		ND	
No.91	U1RB-1FW0.2-8_231222	2024/11/15	4.94E+00	1.21E-01	3.88E+02	1.40E+00	ND		ND	
No.101	U1RB-2FS-1_240517	2024/11/18	1.99E+01	2.28E-01	1.56E+03	2.78E+00	ND		ND	
No.102	U1RB-2FW1.0-2_240517	2024/11/19	5.47E-01	6.21E-02	5.33E+01	5.22E-01	ND		ND	
No.103	U1RB-2FW0.2-3_240517	2025/1/24	5.79E+00	6.78E-02	4.91E+02	7.92E-01	ND		ND	
No.104	U1RB-2FF-4_240517	2025/2/5	4.19E+01	2.99E-01	3.56E+03	3.84E+00	ND		ND	
No.105	U1RB-3FS-5_240517	2025/2/17	7.80E+00	1.37E-01	6.54E+02	1.65E+00	ND		ND	
No.106	U1RB-3FW1.0-6_240517	2024/11/12	2.91E+01	2.74E-01	2.28E+03	3.37E+00	ND		ND	
No.107	U1RB-3FW0.2-7_240517	2025/2/18	1.72E+01	1.95E-01	1.42E+03	2.43E+00	ND		ND	
No.109	U1RB-3FF-9_240517	2025/2/19	6.87E+02	1.20E+00	5.85E+04	1.60E+01	ND		1.11E+00	8.86E-02
No.110	U1RB-4FS-10_240517	2025/3/11	8.52E+01	4.10E-01	7.40E+03	5.45E+00	ND		ND	
No.111	U1RB-4FW1.0-11_240517	2024/11/8	4.03E+01	1.69E-01	3.17E+03	2.09E+00	ND		ND	

表 4.1.4-1 スミヤろ紙試料の γ 線測定結果 (2/2)

試料 No.	試料名	測定開始日	^{134}Cs		^{137}Cs		^{125}Sb		^{60}Co	
			測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)
No.112	U1RB-4FW0.2-12_240517	2025/2/20	1.96E+01	4.91E+00	1.69E+03	2.72E+00	ND		ND	
No.113	U1RB-4FF-13_240517	2025/1/24	5.79E+00	6.78E-02	4.91E+02	7.92E-01	ND		ND	
No.114	U1RB-3FW1.0-14_240517	2025/3/12	1.68E+00	4.93E-02	1.47E+02	4.65E-01	ND		ND	
No.115	U1RB-3FW0.2-15_240517	2025/2/21	1.41E+00	3.79E-02	1.18E+02	3.63E-01	ND		ND	
No.117	U1RB-3FF-17_240517	2025/2/27	4.11E+01	3.34E-01	3.51E+03	4.36E+00	ND		ND	
No.118	U1RB-4FW1.0-18_240517	2025/2/28	3.62E+01	1.58E-01	3.12E+03	2.04E+00	2.71E+00	4.54E-01	7.30E-01	4.43E-02
No.119	U1RB-4FW0.2-19_240517	2025/3/3	1.10E+02	4.74E-01	9.51E+03	6.25E+00	ND		ND	
No.120	U1RB-4FW1.0-20_240517	2024/12/27	4.73E-01	1.75E-02	4.06E+01	1.33E-01	ND		1.49E-01	1.61E-02
No.121	U1RB-4FW0.2-21_240517	2025/3/6	2.94E+00	9.21E-02	2.52E+02	9.82E-01	ND		ND	
No.122	U1RB-4FF-22_240517	2025/3/7	1.44E+00	4.58E-02	1.19E+02	4.25E-01	ND		ND	

※測定値は測定時の値で減衰補正は行っていない。

4.1.5 イメージングプレート分析結果

スミヤ試料のどの部位に放射性物質が付着しているかを確認するため、イメージングプレート分析を行った。図 4.1.5-1～4.1.5-3 にスミヤ試料の写真とイメージングプレート画像を示す。

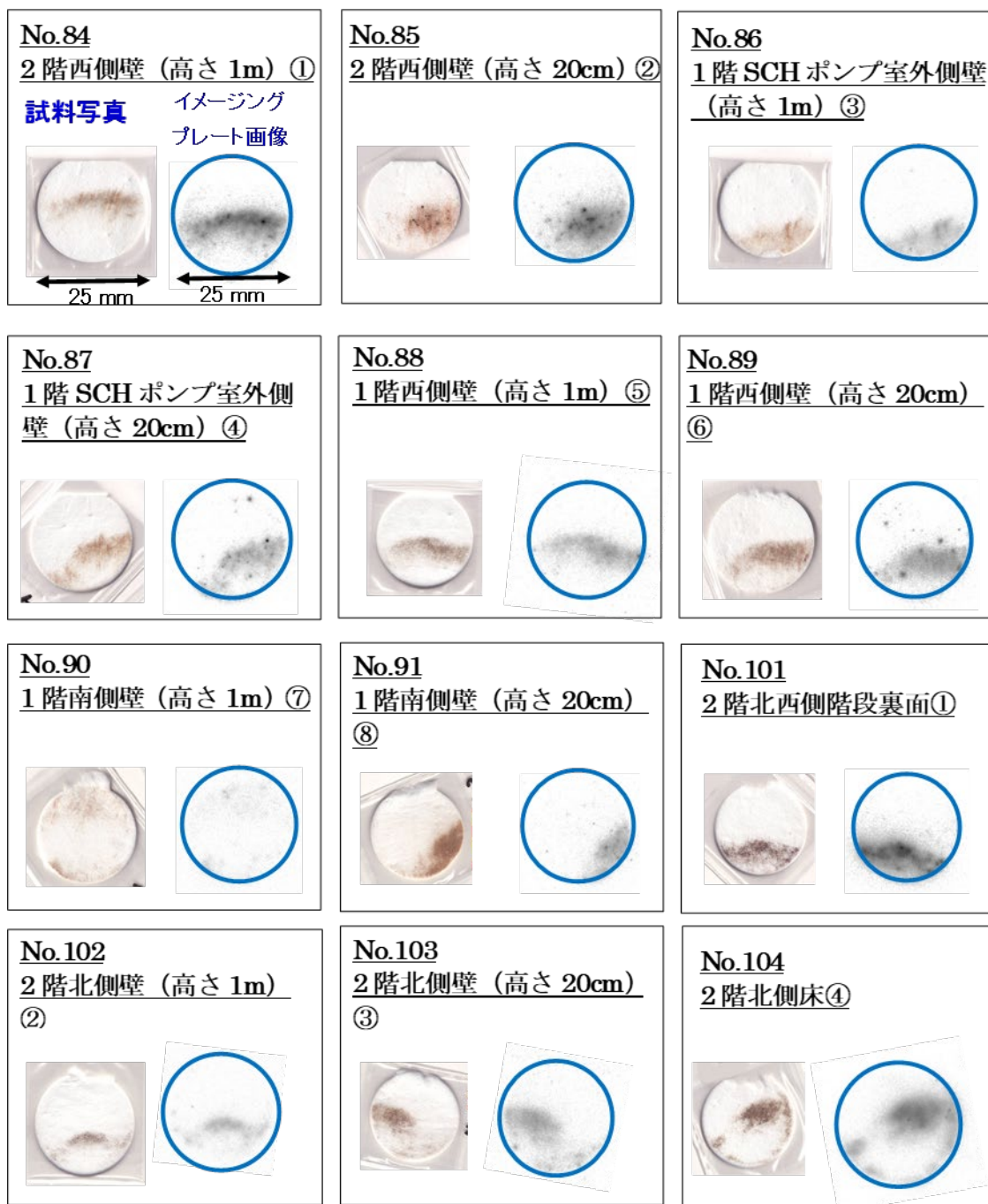


図 4.1.5-1 1 号機原子炉建屋内スミヤ試料の写真及びイメージングプレート画像①

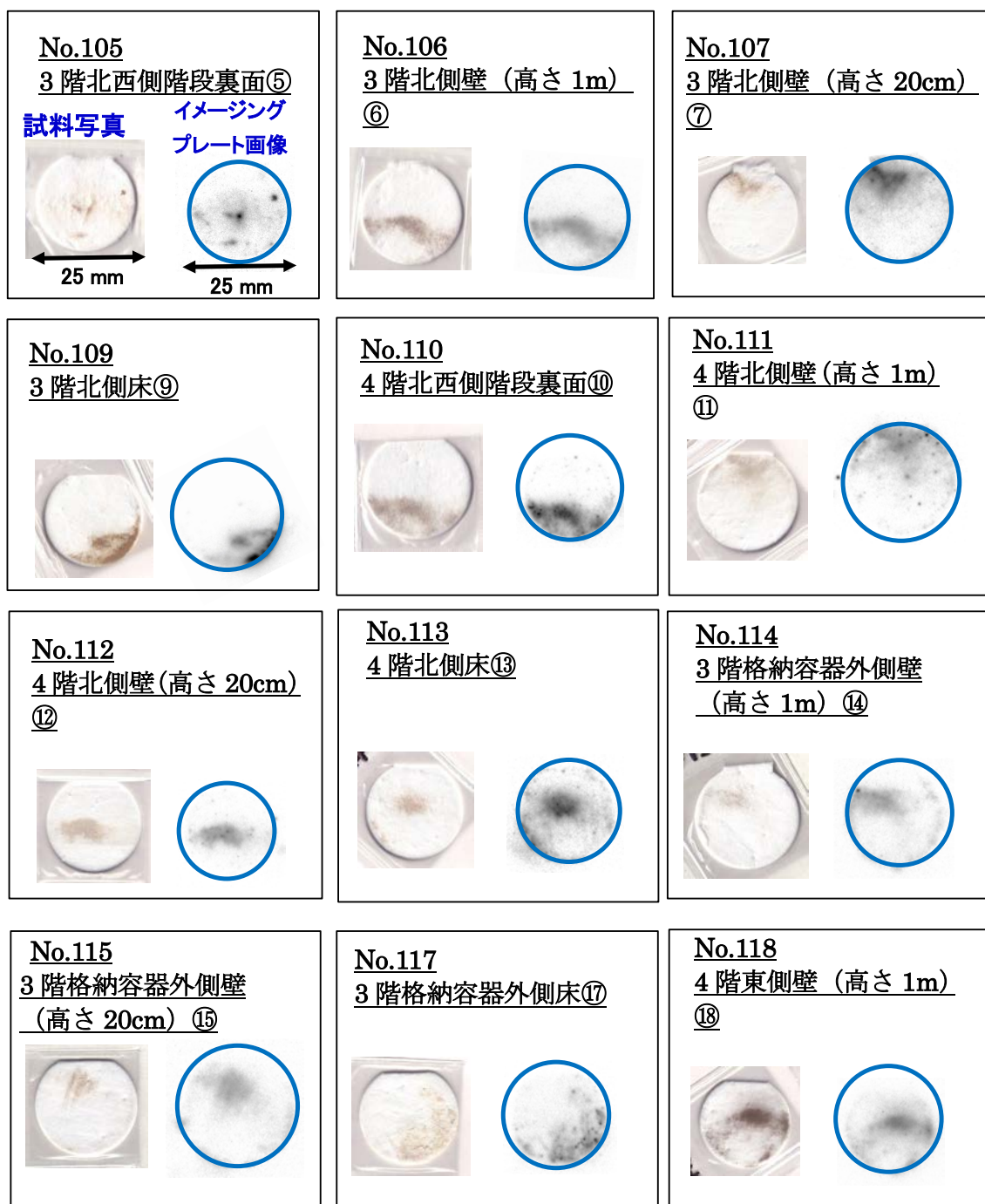


図 4.1.5-2 1 号機原子炉建屋内スミヤ試料の写真及びイメージングプレート画像②

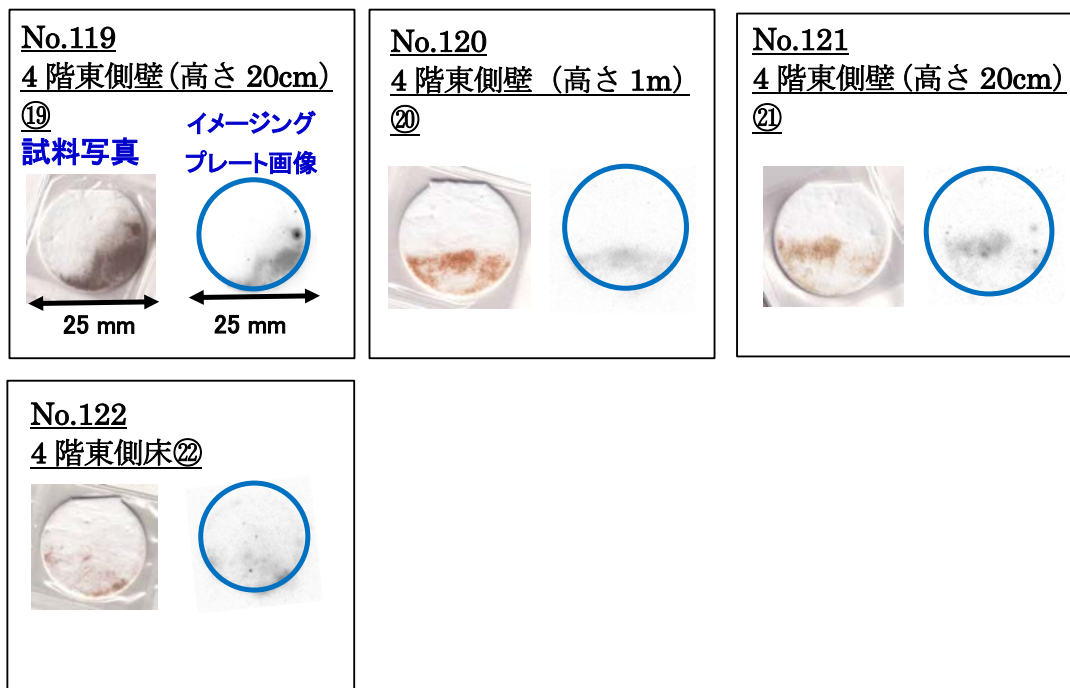


図 4.1.5-3 1号機原子炉建屋内スミヤ試料の写真及びイメージングプレート画像③

全てのスミヤ試料はスミヤろ紙を用いて採取されており、目視で確認される汚れと汚染部位が一致した。加えて、イメージングプレート画像では、目視では分からない黒点状の放射能の高い部位が観察された。

4.1.6 β 線スペクトル解析による ^{90}Sr 分析結果

γ 線測定の結果より、スミヤろ紙に含まれる放射性核種は主に ^{134}Cs と ^{137}Cs であり、一部の試料においては ^{60}Co も検出されることが分かっている。ここで、これらの核種の β 線のエネルギーと放出率を表 4.1.6-1 に示す。

表 4.1.6-1 スミヤろ紙で検出された β 線核種の β 線の最大エネルギー及びその放出率

	^{134}Cs	^{137}Cs	^{60}Co
β 線最大エネルギー (放出率)	88.6 keV (27.3%) 415 keV (2.5%) 658 keV (70.2%)	514 keV (94.4%) 1176 keV (5.6%) 624 keV (9.7% IT)	318 keV (99.9%) 1491 (0.12%)

また、スミヤろ紙中には純 β 核種として、 ^3H 、 ^{14}C 、 ^{63}Ni 、 ^{90}Sr 、 ^{90}Y 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I が含まれている可能性があり、それらの β 線の最大エネルギーはそれぞれ 18.6、66.9、546、2280、294、154 keV である。ここで、 ^{90}Y は ^{90}Sr のみから生成し、現在では ^{90}Sr と放射平衡に達していると考えられる。 ^{90}Y の β 線のエネルギーはそれ以外の β 線エネルギーよりも高いため、高エネルギー領域に ROI を設定することで ^{90}Y のみ由来する β 線を測定することができ、その結果から ^{90}Sr の放射エネルギーを推定することができる。そこで、主要核種である ^{137}Cs と ^{90}Sr を含む試料を調製し、 β 線スペクトロメータ(ピコベータ、富士電機製)で β 線スペク

トルを測定し、 ^{137}Cs の影響を受けない領域を求めたところ、270-32 チャンネルであることが分かった。次に、 ^{137}Cs を 4467 Bq と ^{90}Sr を 0、2、9、18、37 Bq 含む試料を調製して β 線スペクトルを測定し、270-320 ch における計数の積分値を求めた。この積分値を各 ^{90}Sr 放射能に対してプロットしたところ相関係数 0.9998 の直線を得ることができた。これを検量線として用い、スミヤ試料の β 線スペクトルから ^{90}Sr を定量した結果を表 4.1.6-2 に示す。なお、放射エネルギーは 2011 年 3 月 11 日に補正した。また、検出限界値は検量線から求め、1.3 Bq とした。

表 4.1.6-2 スミヤろ紙中の ^{90}Sr の分析結果

試料 No.	試料名	^{90}Sr の放射能 (Bq)
No.84	U1RB-2FW1.0-1_231222	ND
No.85	U1RB-2FW0.2-2_231222	ND
No.86	U1RB-1FW1.0-3_231222	ND
No.87	U1RB-1FW1.0-4_231222	ND
No.88	U1RB-1FW1.0-5_231222	ND
No.89	U1RB-1FW0.2-6_231222	ND
No.90	U1RB-1FW1.0-7_231222	ND
No.91	U1RB-1FW0.2-8_231222	3.064
No.101	U1RB-2FS-1_240517	ND
No.102	U1RB-2FW1.0-2_240517	ND
No.103	U1RB-2FW0.2-3_240517	1.818
No.104	U1RB-2FF-4_240517	0.039
No.105	U1RB-3FS-5_240517	0.639
No.106	U1RB-3FW1.0-6_240517	ND
No.107	U1RB-3FW0.2-7_240517	33.230
No.109	U1RB-3FF-9_240517	16.568
No.110	U1RB-4FS-10_240517	17.198
No.111	U1RB-4FW1.0-11_240517	13.334
No.112	U1RB-4FW0.2-12_240517	5.296
No.113	U1RB-4FF-13_240517	ND
No.114	U1RB-3FW1.0-14_240517	ND
No.115	U1RB-3FW0.2-15_240517	3.717
No.117	U1RB-3FF-17_240517	5.074
No.118	U1RB-4FW1.0-18_240517	11.206
No.119	U1RB-4FW0.2-19_240517	1.032
No.120	U1RB-4FW1.0-20_240517	0.291
No.121	U1RB-4FW0.2-21_240517	1.240
No.122	U1RB-4FF-22_240517	3.806

4.1.7 スミヤ試料の切断と切断片の γ 線及びイメージングプレート分析

No.84、88、106、111 のスミヤ試料を5分割し、枝番を付した。各切断片の γ 線放出核種の放射能を2011年3月11日時点に補正し、表4.1.7-1にまとめた。切断片の ^{137}Cs 放射能の合計の元のスミヤろ紙の ^{137}Cs 放射能に対する百分率は84～92%であった。減少分は元の試料が入っていた袋から検出され、合わせると回収率はほぼ100%であった。

表 4.1.7-1 スミヤ試料切断片に含まれる核種の放射能量（2011/3/11 に減衰補正した値）

試料 No.	^{134}Cs		^{137}Cs		^{125}Sb		^{60}Co	
	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)
84-1	3.64E+02	7.27E+00	4.01E+02	1.08E+00	ND		ND	
84-2	4.23E+02	9.91E+00	4.53E+02	1.49E+00	ND		ND	
84-3	3.39E+02	7.16E+00	3.68E+02	1.06E+00	ND		ND	
84-4	1.60E+02	3.03E+00	1.71E+02	3.99E-01	ND		1.01E+00	2.26E-01
84-5	1.79E+01	5.09E+00	1.60E+01	1.89E-01	ND		1.12E+00	3.18E-01
88-1	1.30E+02	3.09E+00	1.39E+02	4.00E-01	ND		ND	
88-2	1.63E+02	4.39E+00	1.74E+02	5.69E-01	ND		ND	
88-3	8.53E+01	3.95E+00	9.38E+01	4.29E-01	ND		1.37E+00	3.41E-01
88-4	ND		2.25E+01	3.39E-01	ND		ND	
88-5	ND		5.09E+00	1.13E-01	ND		ND	
106-1	4.37E+02	8.56E+00	4.63E+02	1.20E+00	ND		ND	
106-2	7.17E+02	1.22E+01	7.69E+02	1.92E+00	ND		ND	
106-3	6.91E+02	1.33E+01	7.50E+02	2.08E+00	ND		ND	
106-4	4.48E+02	1.04E+01	5.02E+02	1.56E+00	ND		ND	
106-5	1.70E+02	4.23E+00	1.83E+02	6.05E-01	ND		ND	
111-1	7.53E+02	1.37E+01	8.15E+02	2.14E+00	ND		ND	
111-2	1.55E+03	1.89E+01	1.70E+03	3.14E+00	ND		ND	
111-3	7.62E+02	1.38E+01	8.31E+02	2.18E+00	ND		ND	
111-4	1.60E+02	4.73E+00	1.86E+02	6.08E-01	2.36E+01	7.62E+00	ND	
111-5	9.95E+01	4.04E+00	1.11E+02	4.74E-01	ND		ND	

スミヤろ紙の切断の状況と切断片のイメージングプレート画像を図 4.1.7-1 に示す。



図 4.1.7-1 スミヤろ紙切断の様子及びそのイメージングプレート画像（1/2）



図 4.1.7-1 スミヤろ紙切断の様子及びそのイメージングプレート画像 (2/2)

また、令和3年度受け入れのスミヤ試料[4・8]より2号機壁の試料であるNo.8、11、14、17を5分割し、枝番を付した。各切断片の γ 線放出核種の放射能を2011年3月11日時点に補正し、表4.1.7-2にまとめた。切断片の ^{137}Cs 合計の元のスミヤろ紙の ^{137}Cs 放射能に対する百分率は75～91%であった。減少分は元の試料が入っていた袋から検出され、合わせると回収率はほぼ100%であった。

表 4.1.7-2 スミヤ試料切断片に含まれる核種の放射能量（2011/3/11に減衰補正した値）

試料 No.	^{134}Cs -134		^{137}Cs		^{125}Sb		^{60}Co	
	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)	測定値 (Bq)	誤差 (Bq)
8-1	6.31E+01	1.75E+00	3.46E+03	1.81E+01	ND		ND	
8-2	1.07E+02	2.27E+00	6.24E+03	2.45E+01	ND		ND	
8-3	5.95E+01	2.55E+00	3.42E+03	2.70E+01	ND		ND	
8-4	3.34E+01	1.45E+00	1.87E+03	1.49E+01	ND		ND	
8-5	1.04E+01	1.75E-01	5.90E+02	1.65E+00	ND		1.20E+00	1.47E-01
11-1	7.30E+00	6.25E-01	4.35E+02	2.84E+00	ND		ND	
11-2	2.64E+01	2.02E+00	1.47E+03	2.06E+01	ND		ND	
11-3	3.21E+01	1.22E+00	1.89E+03	1.26E+01	ND		ND	
11-4	1.57E+01	8.82E-01	8.60E+02	8.45E+00	ND		ND	
11-5	7.97E+00	3.59E-01	4.63E+02	2.90E+00	ND		ND	
14-1	5.02E+00	9.44E-01	2.76E+02	5.88E+00	ND		ND	
14-2	5.71E+00	5.90E-01	3.94E+02	5.52E+00	ND		ND	
14-3	7.31E+00	8.25E-01	3.96E+02	7.10E+00	ND		ND	
14-4	3.52E+00	2.57E-01	2.23E+02	1.99E+00	ND		ND	
14-5	ND		5.77E+01	1.05E+00	ND		ND	
17-1	1.80E+00	2.33E-01	8.96E+01	1.27E+00	ND		ND	
17-2	1.01E+01	1.45E+00	5.09E+02	1.19E+01	ND		ND	
17-3	6.04E+00	8.86E-01	3.00E+02	5.76E+00	ND		ND	
17-4	5.32E+00	1.47E-01	3.09E+02	1.21E+00	ND		ND	
17-5	6.11E+00	1.16E+00	2.91E+02	7.81E+00	ND		ND	

スミヤろ紙の切断の状況と切断片のイメージングプレート画像を図 4.1.7-2 に示す。

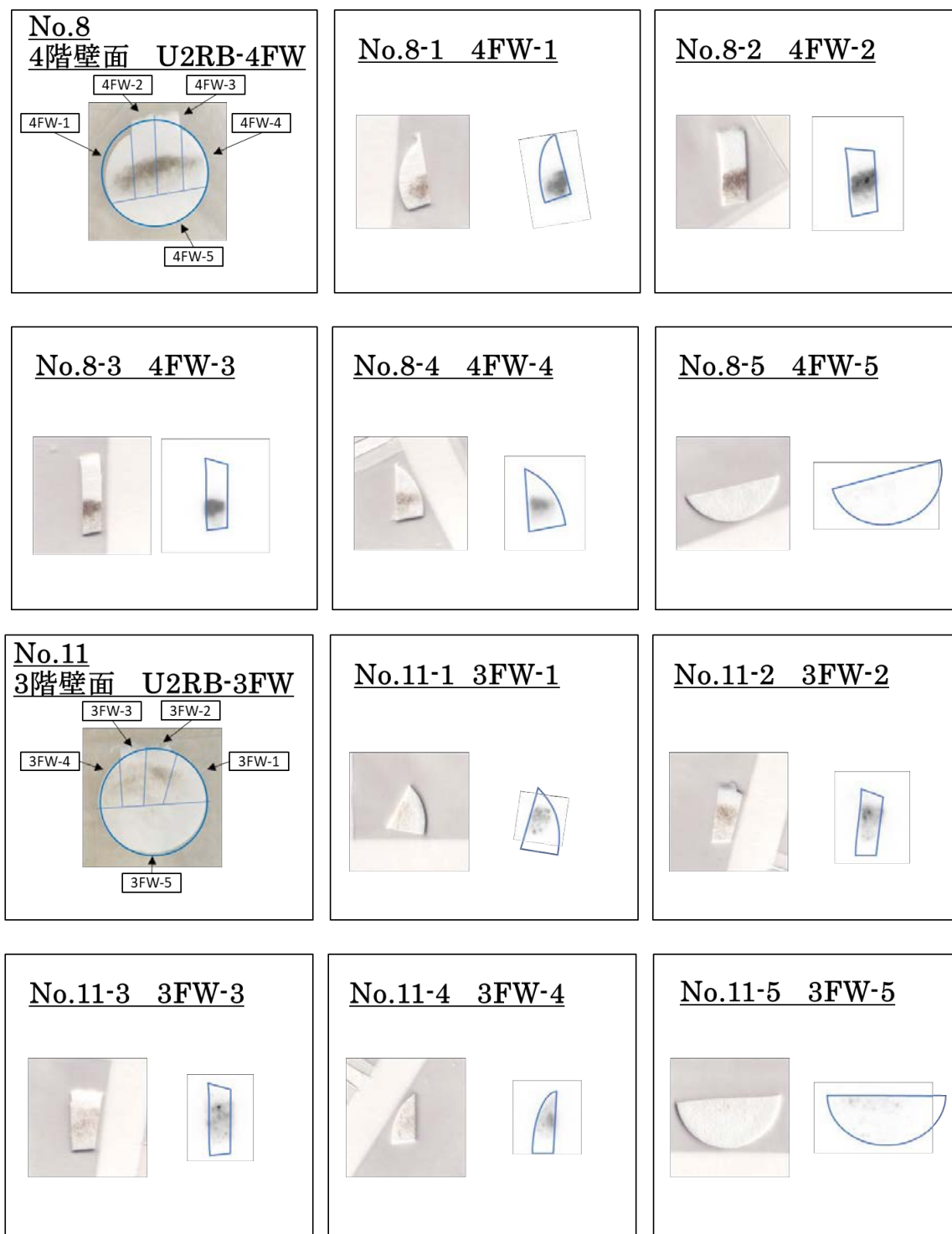


図 4.1.7-2 2号機スミヤろ紙切断の様子及びそのイメージングプレート画像 (1/2)

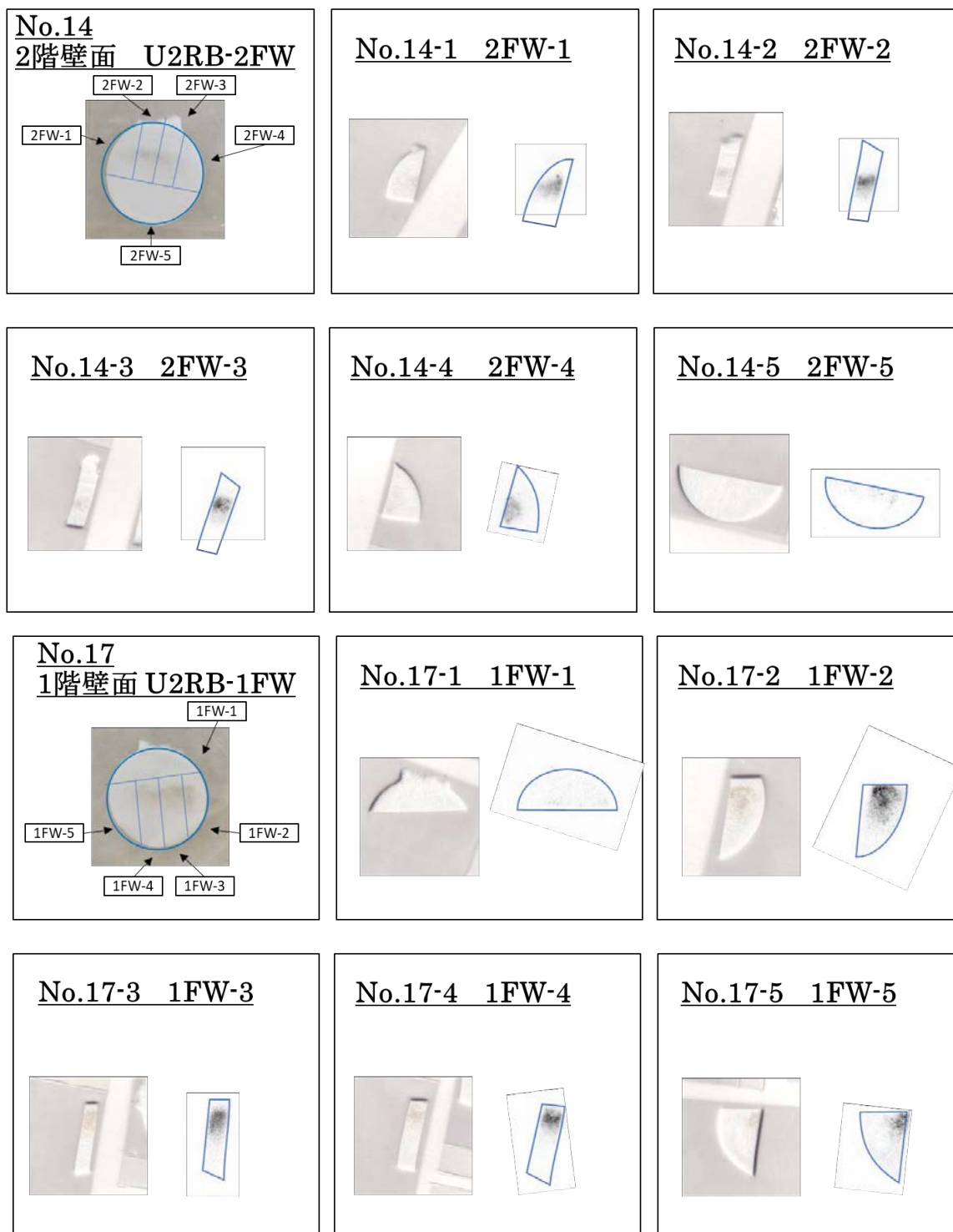


図 4.1.7-2 2号機スミヤろ紙切断の様子及びそのイメージングプレート画像 (2/2)

4.1.8 スミヤろ紙切断片の放射化学分析

(1) 酸分解

1号機の1～4階の壁(No.88-2、84-2、106-2、111-2)、2号機の1～4階の壁(No.17-2、14-3、11-3、8-2)、2号機燃料取扱機室2階床(No.62-3)及び3号機2階壁(No.57-3)のスミヤろ紙切断片について、4.1.2.1で示した溶解法を用いて酸分解を行い、約10 mLの1 mol/L HNO₃溶液として各溶解液を調製した。

全溶解の確認として、①切断片と②切断片を取り出した後の袋、③溶解液に含まれる¹³⁷Csの放射能を測定し、③×100 / (①－②)の式から溶解液への溶解率を求めた。その結果を表4.1.8-1に示す。

表 4.1.8-1 スミヤ試料切断断片中¹³⁷Csの溶解率

試料 No., ID	試料略称	溶解率 (%)
No. 88-2, 23-11W5	U1RB-1FW-5-2	89
No. 84-2, 23-12W1	U1RB-2FW-1-2	91
No.106-2, 24-13W6	U1RB-3FW-6-2	85
No. 111-2, 24-14W11	U1RB-4FW-11-2	89
No. 17-2	U2RB-1FW-2	95
No.14-2	U2RB-2FW-3	98
No. 11-3	U2RB-3FW-3	100
No.8-2	U2RB-4FW-2	100
No.62-3	U2RB-FHM-2FF	77
No.57-3	U3RB-2FW-1	74

このように、溶解に HF を用いることで高い溶解率を得ることができた。この溶解液を⁹⁰Sr、Mo 同位体、U 同位体、Pu 同位体、Am 同位体の分析に供した。

(2) ⁹⁰Sr の分析

⁹⁰Sr については、スミヤろ紙切断片のβ線スペクトル測定による定量と酸分解及び化学分離後の液体シンチレーションカウンタ測定による定量を行った。β線スペクトルによる⁹⁰Sr 定量法は4.1.6に示したとおりである。

⁹⁰Sr の化学分離は以下の通り行った。溶解液1 mLを採取し、0.01 g のリンモリブデン酸アンモニウム(AMP)を添加してマグネチックスターラーで1時間攪拌し、Cs を吸着したAMP を孔径0.45 μm のシリンジフィルターでろ過して放射性Cs を除去した。ろ液から0.8 mL を採取し、高純度 HNO₃ と超純水を加えて試料の HNO₃ 濃度を8 mol/L とし、これをあらかじめ8 mol/L HNO₃ でコンディショニングしたSr レジンカラム(樹脂量: 0.5 mL)に通液した。試料が入っていた容器を8 mol/L HNO₃ で共洗いし、この洗液もSr レジンカラムに通液した。8 mol/L HNO₃ でカラムを洗浄した後、0.01 mol/L HNO₃ によりSr を回収した。回収液の一部を採取し、希釈してICP-MS でSr 濃度を測定し、元の溶解液と回収液に含まれるSr 濃度から化学分離の回収率を求めた。また、残りの回収液は⁹⁰Sr と⁹⁰Y の化学平衡を待ってから液体シンチレーションカウンタ(HIDEX 300SL)で測定し、⁹⁰Y のチェ

レンコフ光により ^{90}Sr を定量した。既知量の ^{90}Sr 標準液の測定試料のチェレンコフ光測定から効率を求め、試料の放射エネルギーを補正した。

(3) Mo 同位体分析

2 号機の壁試料において、はじめは溶解液 1 mL を供試量とし、スパイク試料には 1 ng 相当の Mo 標準溶液を添加して、乾固直前まで蒸発させた後、HCl 系に変換し、4 mol/L HCl 溶液に溶解して化学分離用試料を調製した。あらかじめ 1 mol/L HNO_3 、超純水、4 mol/L HCl でコンディショニングを行った TEVA レジン(0.5 mL)に化学分離用試料を通液し、試料が入っていた容器を 4 mol/L HCl で共洗いして、その洗液も通液した。さらに 4 mol/L HCl と超純水でカラムを洗浄した後、5 mL の 1 mol/L HNO_3 で Mo を回収した。この回収液をそのまま ICP-MS/MS の試料とし、no-gas モードにおいては m/z が 90~101 を、 O_2 ガスモードにおいては +32 となる 122~133 を測定した。スパイク試料の Mo 量からノンスパイク試料の Mo を引いた値をスパイクした Mo 量で割って回収率を求めた。スミヤロ紙に含まれる Mo には天然由来の Mo と炉心由来の Mo が混じっている。質量数 92 の Mo は、天然同位体比は 14.53% と高いが、核分裂によってはほとんど生成しないため、この存在量から各天然由来の各 Mo 同位体の量を算出し、各 Mo の定量値から差し引くことで炉心由来の Mo 量を求めた。しかし、今回の試料は Mo 量が少なかったため、炉心由来の Mo を計測できなかった。そこで、溶解液量を 3.5 mL に増量して、同様の化学分離を行った。ただし、溶解液量が少ないため、ノンスパイク試料に対してのみ再実験を行い、回収率の補正は 1 mL の供試料量で行った実験で求めたものを使用した。

1 号機の壁試料については、溶解液 3 mL を供試料量とし、スパイク試料とノンスパイク試料を調製した。ここで、Mo スパイク量は 0.6 ng とした。2 号機と同様の化学分離を行ったが、回収液量は 5 mL から 3 mL に減じ、回収液をそのまま ICP-MS/MS で測定に供した。

4.1.9 スミヤろ紙溶解液の分析結果 (^{90}Sr 、 Mo 同位体、 ^{137}Cs)

表 4.1.9-1 に放射化学分析で得られた ^{90}Sr 濃度並びに放射化学分析と β 線スペクトル解析で得られた $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ のモル比を示す。ここで、2 号機 5 階の壁試料及び 1 階～5 階の床試料についても令和 3 年度[4-8]及び令和 4 年度[4-9]に測定しているため、その結果も併せて示す。また、これらの値は 2011 年 3 月 11 日に減衰補正した値である。

表 4.1.9-1 化学分離によって得られた溶解液中の ^{90}Sr 濃度(2011/3/11 に減衰補正)

試料略称	^{90}Sr 濃度 (mol/mL)	$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ モル比 (放射化学分析)	$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ モル比 (β 線スペクトル解析)
U1RB-1FW-5-2	$(509 \pm 6) \times 10^{-19}$	0.00068	ND
U1RB-2FW-1-2	$(301 \pm 3) \times 10^{-18}$	0.0095	0.00066
U1RB-3FW-6-2	$(586 \pm 7) \times 10^{-19}$	0.00047	ND
U1RB-4FW-11-2	$(132 \pm 1) \times 10^{-17}$	0.0041	0.0026
U2RB-1FW-2	$(134 \pm 3) \times 10^{-17}$	0.011	0.0077
U2RB-2FW-3	$(127 \pm 3) \times 10^{-17}$	0.011	0.011
U2RB-3FW-3	$(121 \pm 3) \times 10^{-17}$	0.0023	0.0022
U2RB-4FW-2	$(381 \pm 4) \times 10^{-17}$	0.0022	0.0017
U2RB-5FW-2*	$(964 \pm 5) \times 10^{-17}$	0.012	—
U2RB-5FW-1*	$(148 \pm 1) \times 10^{-16}$	0.014	—
U2RB-1FF-2	$(961 \pm 1) \times 10^{-15}$	0.037	0.043, 0.038, 0.043**
U2RB-2FF-2	$(311 \pm 9) \times 10^{-15}$	0.017	0.012, 0.013**
U2RB-3FF-2	$(414 \pm 12) \times 10^{-16}$	0.011	0.011, 0.012**
U2RB-4FF-2	$(515 \pm 1) \times 10^{-16}$	0.0048	0.0074, 0.0079, 0.0082**
U2RB-5FF-2*	$(227 \pm 3) \times 10^{-17}$	0.011	0.010, 0.010**
U2RB-5FF-4*	$(413 \pm 2) \times 10^{-17}$	0.012	0.010, 0.010**

*令和 3 年度分析値、**同じスミヤろ紙の異なる切断片の分析値

2 号機の試料について、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ モル比は床・壁ともに 3 階及び 4 階の試料でやや低い傾向がみられたが、全体として $10^{-2} \sim 10^{-1}$ のオーダーの値となった。また、同じ階層の床と壁では同程度の $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ モル比を示した。1 号機の試料では、2 階と 4 階の試料ではチェレンコフ測定でも定量できたが、1 階と 3 階の試料では検出下限値以下となったため、シンチレータ(エコシンチ XR)を 14.5 mL 添加して再度測定を行ったところ、かろうじて検出限界値を超える計数率が得られた。本条件における検出下限濃度は 2.2×10^{-17} mol/ml であった。

今回 1 号機において、放射化学分析の定量下限値は β 線スペクトル解析の定量下限値よりも低いため、 ^{90}Sr の定量値が低かった試料を中心に分析を行ったが、いずれも 2 試料について定量できなかった。

表 4.1.9-2 に質量数 95、96、97、98、100 の Mo 濃度及びその合計(Mo_{total})並びに得られた Mo 濃度から算出した Mo 同位体比を表に示す。ORIGEN22UPJ によって計算された事故時の炉心中の Mo 同位体重量から求めた Mo 同位体比も併せて示す。また、溶解液中の Mo_{total} と ^{137}Cs のモル比についても表 4.1.9-3 に示す。

表 4.1.9-2 溶解液中の炉心由来 Mo 同位体の濃度(mol/mL)及び同位体比 (カッコ内、%)

試料略称	^{95}Mo	^{96}Mo	^{97}Mo	^{98}Mo	^{100}Mo	Mo_{total}
U2RB-2FW-3	1.7×10^{-13} (20.9)	1.3×10^{-14} (1.5)	2.0×10^{-13} (24.1)	2.1×10^{-13} (26.0)	2.1×10^{-13} (26.6)	8.0×10^{-13}
U2RB-3FW-3	2.2×10^{-13} (22.0)	1.8×10^{-14} (1.8)	2.1×10^{-13} (22.1)	2.4×10^{-13} (25.2)	2.8×10^{-13} (29.7)	9.6×10^{-13}
U2RB-4FW-2	5.7×10^{-13} (20.5)	5.0×10^{-14} (1.8)	6.1×10^{-13} (22.6)	7.4×10^{-13} (27.7)	7.0×10^{-13} (26.7)	2.7×10^{-12}
U2RB-5FW-2*	6.3×10^{-12} (21.7)	3.2×10^{-13} (1.1)	7.1×10^{-12} (24.8)	7.1×10^{-12} (24.9)	7.7×10^{-12} (27.5)	2.9×10^{-11}
U2RB-5FW-1*	3.4×10^{-12} (22.2)	1.3×10^{-13} (0.84)	3.9×10^{-12} (25.2)	3.8×10^{-12} (24.5)	4.2×10^{-12} (27.2)	1.5×10^{-11}
ORIGEN22UPJ	(20.9)	(1.0)	(24.5)	(25.2)	(28.4)	

*令和 3 年度分析値

表 4.1.9-3 溶解液中の Mo_{total} ($^{95}+^{96}+^{97}+^{98}+^{100}\text{Mo}$)と ^{137}Cs の比(2011/3/11 に補正)

試料略称	$\text{Mo}_{\text{total}}/^{137}\text{Cs}$	試料略称	$\text{Mo}_{\text{total}}/^{137}\text{Cs}$
		U2RB-1FF-2*	3.3
U2RB-2FW-3	6.7	U2RB-2FF-2*	4.0
U2RB-3FW-3	1.7	U2RB-3FF-3*	5.9
U2RB-4FW-2	1.5	U2RB-4FF-2*	7.6
U2RB-5FW-2*	34	U2RB-5FF-2*	28
U2RB-5FW-1*	15	U2RB-5FF-4*	34

*令和 3、令和 4 年度分析値

2 号機壁の試料に対しては、1 階の試料では定量値を得ることができなかったが、2、3、4 階の試料では定量値を得ることができた。1 階から 4 階では、 $\text{Mo}_{\text{total}}/^{137}\text{Cs}$ は 1 桁の値であり、 ^{137}Cs が全 Cs に対して約 40%であることを考えても Cs と Mo が同程度存在すると想定される。一方、5 階の試料では、 $\text{Mo}_{\text{total}}/^{137}\text{Cs}$ は 2 桁の値であり、Mo が Cs に対して多い結果となった。

1 号機壁の試料に対しては、Mo は有意に検出されたが、その同位体比は天然同位体比と同じであり、炉心由来の Mo を検出することはできなかった。このように、炉心由来の Mo は 1 号機では検出されず、2 号機では検出される結果となった。

4.1.10 U 分析結果の比較

令和 5 年度[4-1]に γ 核種及び ^{90}Sr 、 Mo 同位体、 ^{99}Tc を分析したスミヤろ紙(No.57、59、61、62)の溶解液 1、2、3 及び本年度開発した溶解法で溶解した No.57 と 62 について、U 同位体の分析を実施した。なお、化学分離法や測定法は令和 4 年度報告書[4-7]に記載の手法を用いた。また、天然の U 同位体が混入するため、操作ブランクとしてスミヤろ紙切断片を同様の手法で処理した時の値を差し引いて定量値を求めた。各溶解液に対して定量された ^{235}U 、 ^{236}U 、 ^{238}U のモル濃度(mol/mL)とそれらの合計として U_{total} 、各溶解液中の ^{137}Cs のモル濃度、 U_{total} の ^{137}Cs に対する比を表 4.1.10-1 にまとめた。また、各分析値について、溶解液 1、2、3 の合計についても記載した。

表 4.1.10-1 各溶解液中の U 同位体のモル濃度(mol/mL)及び ^{137}Cs に対するモル比

		^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{235}+^{236}+^{238}\text{U}$ (U_{total})	^{137}Cs	$U_{\text{total}}/^{137}\text{Cs}$
No.57	溶解液 1	8.1×10^{-15}	1.2×10^{-15}	4.4×10^{-13}	4.5×10^{-13}	3.1×10^{-12}	0.14
	溶解液 2	ND	ND	1.9×10^{-14}	1.9×10^{-14}	1.4×10^{-13}	0.14
	溶解液 3	ND	ND	ND	ND	-	-
	合計	8.1×10^{-15}	1.2×10^{-15}	4.6×10^{-13}	4.7×10^{-13}	3.2×10^{-12}	0.14
	本年度	3.4×10^{-14}	5.3×10^{-15}	1.9×10^{-12}	1.9×10^{-12}	3.5×10^{-12}	0.54
No.59	溶解液 1	7.9×10^{-15}	1.3×10^{-15}	4.2×10^{-13}	4.3×10^{-13}	2.0×10^{-12}	0.21
	溶解液 2	ND	ND	ND	ND	-	-
	溶解液 3	ND	ND	ND	ND	-	-
	合計	7.9×10^{-15}	1.3×10^{-15}	4.2×10^{-13}	4.3×10^{-13}	2.0×10^{-12}	0.21
No.61	溶解液 1	2.6×10^{-16}	3.9×10^{-17}	2.0×10^{-14}	2.0×10^{-14}	6.3×10^{-13}	0.03
	溶解液 2	1.9×10^{-16}	9.8×10^{-18}	1.2×10^{-14}	1.3×10^{-14}	9.8×10^{-15}	1.3
	溶解液 3	1.3×10^{-16}	9.8×10^{-18}	8.9×10^{-13}	9.0×10^{-15}	1.4×10^{-15}	6.6
	合計	5.8×10^{-16}	5.8×10^{-17}	4.1×10^{-14}	4.2×10^{-14}	6.4×10^{-13}	0.07
No.62	溶解液 1	3.9×10^{-15}	6.7×10^{-16}	1.9×10^{-13}	1.9×10^{-13}	5.8×10^{-13}	0.34
	溶解液 2	9.5×10^{-15}	1.6×10^{-15}	4.8×10^{-14}	4.9×10^{-13}	4.0×10^{-14}	12
	溶解液 3	5.5×10^{-16}	7.9×10^{-17}	3.1×10^{-15}	3.1×10^{-14}	2.6×10^{-14}	1.2
	合計	1.4×10^{-14}	2.4×10^{-15}	7.0×10^{-13}	7.2×10^{-13}	6.5×10^{-13}	1.1
	本年度	4.2×10^{-14}	6.9×10^{-15}	2.1×10^{-12}	2.2×10^{-12}	2.7×10^{-13}	7.9

同じ切断片ではないため単純な比較はできないが、No.57 と No.62 において溶解液 1、2、3 の合計と本年度で U_{total} を比較すると本年度の方が 3～4 倍程度のモル濃度となっており、溶解液 1、2、3 の合計の $U_{\text{total}}/^{137}\text{Cs}$ 比よりも本年度の $U_{\text{total}}/^{137}\text{Cs}$ 比の方が大きいことから、HF を使用することで U の溶解がより進んだと考えられる。また、不溶解残渣を王水で処理した溶解液 2 及び 3 において、 $U_{\text{total}}/^{137}\text{Cs}$ 比が大きくなる傾向を示しており、硝酸と過酸化水素を用いた溶解では U の溶解が不十分であった可能性がある。

表 4.1.10-2 に各溶解液中での各 U 同位体の U_{total} に対する比を ORIGEN2 計算の結果から求めた炉心中の相当するモル比とともにまとめた。

表 4.1.10-2 各 U 同位体の $U_{\text{total}}(^{235}\text{U}+^{236}\text{U}+^{238}\text{U})$ に対するモル比

試料情報		^{235}U	^{236}U	^{238}U
No.57	溶解液 1	0.018	0.0027	0.979
	本年度	0.017	0.0028	0.0979
No.59	溶解液 1	0.019	0.0030	0.978
ORIGEN2	3 号機	0.019	0.0030	0.978
No.61	溶解液 1	0.013	0.0019	0.985
	溶解液 2	0.015	0.00078	0.984
	溶解液 3	0.014	0.0011	0.984
No.62	溶解液 1	0.020	0.0034	0.977
	溶解液 2	0.019	0.0033	0.977
	溶解液 3	0.018	0.0025	0.980
	本年度	0.019	0.0032	0.977
ORIGEN2	2 号機	0.019	0.0030	0.978

定量された各 U 同位体の U_{total} に対するモル比は ORIGEN2 計算コードの結果から求めた相当するモル比と同程度となったことから、定量においてブランクの差引がおおむねうまくいっていると考えられる。ただし、No.61 は計算結果よりも ^{235}U や ^{236}U の比率がやや小さいことから、操作ブランクとして差し引いたよりもやや多い天然 U が含まれていた可能性がある。

表 4.1.10-3 に 2 号機と 1 号機の 1 階から 4 階の壁試料溶解液に含まれる ^{235}U と ^{238}U のモル濃度、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比及び $^{238}\text{U}/^{137}\text{Cs}$ モル比をまとめた。ここで、2 号機のスミヤ試料分析時には高質量数側でバックグラウンドの増大があったため存在量の少ない ^{236}U を定量することができなかった。ORIGEN2 コードでの計算結果から求めた $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ モル比は 2 号機において 0.019、1 号機において 0.0017 であるが、U2RB-4FW-2 では一桁大きい値となったことから、溶解液中の U 濃度が低いため、ブランクの差引がうまくいかなかったと考えられる。同様に、1 号機の試料でも 2 階と 3 階の試料では $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ モル比が計算値とくらべてややずれていることから、ブランクの差引が影響して正確な定量ができていない可能性がある。そこで、1 号機では ^{236}U が定量できていたため、 ^{236}U の値と ORIGEN2 コードの計算結果から求めた同位体比を用いて ^{235}U 及び ^{238}U の参考値を算出した。その結果を表 4.1.10-4 にまとめた。ただし、2 階と 3 階の測定値はかなり低濃度であり測定における相対標準偏差が 161%となっており、不確かさが大きい。

表 4.1.10-3 2号機と1号機の1階から4階の壁試料溶解液に含まれる²³⁵Uと²³⁸Uの
モル濃度、²³⁵U/²³⁸U 同位体比及び²³⁸U/¹³⁷Cs モル比

試料略称	モル濃度(mol/ml)		²³⁵ U/ ²³⁸ U モル比	²³⁸ U/ ¹³⁷ Cs モル比
	²³⁵ U	²³⁸ U		
U2RB-1FW-2	2.8×10^{-15}	2.3×10^{-13}	0.012	1.8
U2RB-2FW-3	6.2×10^{-15}	2.8×10^{-13}	0.022	2.4
U2RB-3FW-3	ND	ND	-	-
U2RB-4FW-2	1.6×10^{-15}	8.2×10^{-15}	0.19	0.005
U1RB-1FW-2	ND	ND	-	-
U1RB-2FW-2	1.5×10^{-15}	1.5×10^{-13}	0.0096	1.2
U1RB-3FW-2	3.6×10^{-16}	1.0×10^{-14}	0.035	0.019
U1RB-4FW-2	1.0×10^{-15}	4.5×10^{-14}	0.022	0.026

※ U2RB-4FW-2、U1RB-2FW-2、U1RB-3FW-2 は測定値の不確かさが大きく参考値扱いとする。

表 4.1.10-4 ²³⁶U 定量値から推定した²³⁵U 及び²³⁸U の参考値及び²³⁸U/¹³⁷Cs モル比

試料略称	モル濃度(mol/ml)			²³⁸ U/ ¹³⁷ Cs モル比
	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U	
U1RB-1FW-2	4.1×10^{-17}	8.8×10^{-18}	2.4×10^{-15}	0.020
U1RB-2FW-2	5.0×10^{-16}	1.1×10^{-16}	1.1×10^{-14}	0.226
U1RB-3FW-2	9.8×10^{-17}	2.1×10^{-17}	5.7×10^{-15}	0.010
U1RB-4FW-2	5.0×10^{-16}	1.1×10^{-16}	2.9×10^{-14}	0.016

※ U1RB-2FW-2、U1RB-3FW-2 は測定値の不確かさが特に大きい。

ある程度測定が確からしい2号機の1階と2階の試料の²³⁸U/¹³⁷Cs モル比は2前後の値、1号機の1階と4階の試料の²³⁸U/¹³⁷Cs モル比は0.02ほどであり、号機間で大きく異なる結果となった。ただし、1号機については試料採取場所による違いが大きい可能性があり、号機間の比較をするためには更なる分析結果を待つ必要がある。

4.1.11 過年度試料のPu及びAmの分析並びに分析法開発

令和5年度[4-1]に γ 核種及び⁹⁰Sr、Mo 同位体、⁹⁹Tcを分析したスミヤろ紙(No.57、59、61、62)の溶解液1、2、3について、PuとAmの分析を実施した。化学分離法については令和3年度[4-8]と同様の手法を用いたが、今回使用した α 線スペクトロメータは、核燃を使用する場合は測定試料を密封することとしてフード外に常設されているため、SmF₃と共沈したPuやAmを捕集したろ紙をアクリルディスクの上におき、マイラー膜をかぶせてからテフロンリングで固定して測定した。溶解液1のAmフラクションの α 線スペクトルを図4.1.11-1に示す。

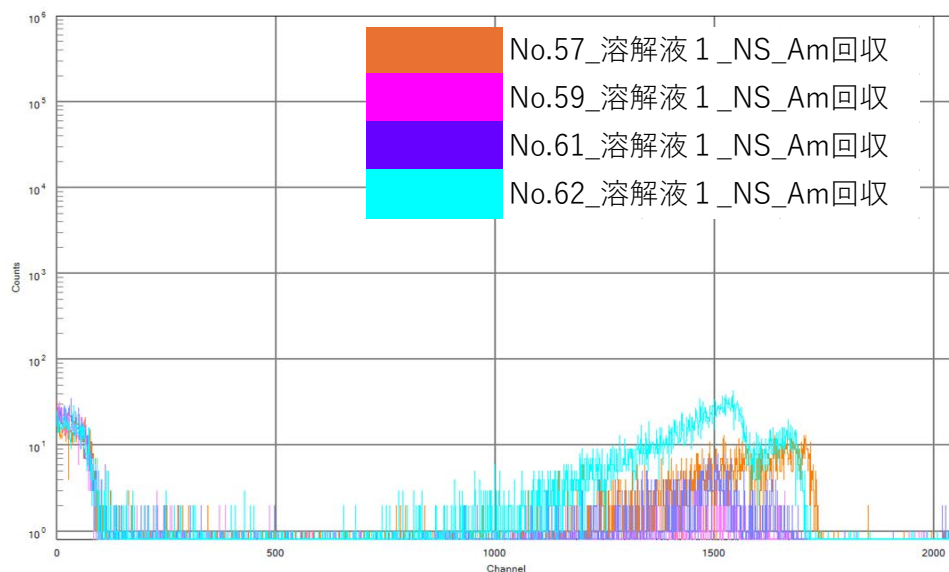


図 4.1.11-1 Am フラクシオンの α 線スペクトル

ピークの立ち上がり位置が 5.5 MeV 付近及び 5.8 MeV 付近であったことから、 ^{241}Am と ^{244}Cm であると同定された。しかし、マイラー膜をかぶせたことによりピークが低エネルギー側にテールリングしてしまい、2 つのピークを分離することができなかった。同様に、Pu のフラクションにおいてもピークの立ち上がり位置から ^{238}Pu 及び $^{239+240}\text{Pu}$ が同定されたが、これらを個別に定量することができなかった。そのため、定量結果については Am+Cm 及び Pu の放射能濃度として表 4.1.11-1 にまとめた。また、半減期が異なる核種が混合しており、減衰補正ができないため、測定時の放射能濃度となっている。No.62 のみ、溶解液 2 や 3 にも有意な Pu と Am が検出されたが、それ以外ではほぼ溶解液 1 のみでの検出であった。

表 4.1.11-1 令和 5 年度溶解スミヤ試料中の Pu 及び Am+Cm の放射能濃度(Bq/mL)

		No.57	No.59	No.61	No.62
溶解液 1	Pu	0.0041	0.0027	0.0040	0.0345
	Am+Cm	0.0310	0.0021	0.0049	0.0173
溶解液 2	Pu	ND	ND	ND	0.0037
	Am+Cm	ND	0.0002	ND	0.0155
溶解液 3	Pu	ND	ND	0.0003	0.0026
	Am+Cm	ND	ND	ND	0.0028

また、令和 3 年度[4-8]及び令和 4 年度[4-9]に報告した 2 号機床のスミヤ試料の α 線スペクトルについて、 ^{244}Cm を定量していなかったことや、報告書提出後に再測定を行っていたことから、再解析を行った。本スペクトルでは ^{238}Pu と $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm のピークを分離可能であったため、それぞれの放射能濃度を 2011 年 3 月 11 日に補正し、表 4.1.11-2 にまとめた。ただし、 $^{239+240}\text{Pu}$ については ^{239}Pu の半減期を用いて補正した。

表 4.1.11-2 令和 3 年度及び令和 4 年度溶解スミヤ試料中の Pu、Am、Cm 核種の放射能濃度(Bq/mL) 再解析の上 2011/3/11 に補正

	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{243}Am	^{241}Am	^{244}Cm
U2RB-5FW	0.0595± 0.0012	0.0222± 0.0007	0.0017± 0.0002	0.0492± 0.0011	0.0411± 0.0000
U2RB-5FF	0.0047± 0.0003	0.0017± 0.0002	0.0004± 0.0001	0.0030± 0.0002	0.0025± 0.0000
U2RB-4FF	0.0140± 0.0005	0.0070± 0.0004	0.0003± 0.0001	0.0124± 0.0005	0.0095± 0.0000
U2RB-3FF	0.0179± 0.0011	0.0078± 0.0007	0.0022± 0.0003	0.0171± 0.0010	0.0135± 0.0011
U2RB-2FF	0.0297± 0.0015	0.0177± 0.0002	0.0030± 0.0005	0.0235± 0.0013	0.0245± 0.0015
U2RB-1FF	0.0266± 0.0009	0.0105± 0.0006	0.0011± 0.0002	0.0186± 0.0007	0.0156± 0.0000

また、 $^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比を示す。

表 4.1.11-3 令和 3 年度及び令和 4 年度溶解スミヤ試料中の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比

試料略称	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
U2RB-5FW	2.68
U2RB-5FF	2.69
U2RB-4FF	2.00
U2RB-3FF	2.30
U2RB-2FF	1.68
U2RB-1FF	2.53
ORIGEN2 コード	2.38 (0 h), 2.42 (10 y)

ORIGEN2 の計算コードで計算された炉心の Pu 同位体の放射能から求めた $^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比は事故時(0 h)では 2.38、10 年後では 2.42 であり、分析値は 1.68～2.69 と比較的近い値となった。

本研究では測定していないが、 β^- 壊変核種である ^{241}Pu は、半減期が 14.329 年と他の Pu 同位体よりも短く、事故後 100 年ほどまでは他の Pu 同位体と比べて放射能が高い。また、壊変により ^{241}Am を生成するため、 ^{241}Am の放射能は事故直後と比べて 10 年後では 1 桁ほど増加する。Pu や Am、Cm の分析は事故から約 11 年後に実施したため、測定時の ^{241}Am は事故時に ^{241}Am であったものと ^{241}Pu が壊変して生成した ^{241}Am が混合していると考えられる。そこで、 $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 放射能比と $^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ 放射能比について、事故から約 11 年後である測定時の放射能比と、測定された放射能を 2011 年 3 月 11 日に減衰補正してから比を算出し、表 4.1.11-4 にまとめた。

表 4.1.11-4 2号機床試料中の $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 放射能比と $^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ 放射能比

試料略称	$^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$		$^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$	
	測定時	2011/3/11 補正	測定時	2011/3/11 補正
U2RB-5FW	0.56	0.84	1.13	1.21
U2RB-5FF	0.57	0.85	1.46	1.57
U2RB-4FF	0.52	0.77	1.06	1.13
U2RB-3FF	0.52	0.79	0.98	1.05
U2RB-2FF	0.69	1.04	1.18	1.26
U2RB-1FF	0.56	0.84	1.33	1.42
ORIGEN2 コード計算値	6.91 (0 h), 0.55 (10 y)		10.5(0 h), 1.18(10 y)	

測定時の $^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ 放射能比及び $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 放射能比は、ORIGEN2 コードの 10 年後の結果から算出した放射能比と同程度となったが、測定された放射能を減衰補正してから比を求めると事故時の放射能比と比べて小さい値となった。これは、分母である ^{241}Am の放射能が高くなったためであり、このことから測定時の ^{241}Am には ^{241}Pu が壊変してできた ^{241}Am が含まれていることが示唆される。

Pu 及び Am については、これまで SmF_3 共沈により測定試料を調製してきたが、マイラー膜で覆い密封した場合には、ピークのブロードニングがあったため、Ta 板への焼付を検討した。この測定試料調製法において、これまでの化学分離法では TiCl_3 により Pu(IV) を Pu(III) に還元することで TRU レジンカラムから Pu を回収していたが、焼付時に TiCl_3 が析出してしまい、薄膜線源を調製できないことから、Pu の還元剤を HBr または HI にして試験を行った。Pu と Am の回収率を表 4.1.11-5 に示す。

表 4.1.11-5 化学分離における Pu 及び Am の回収率 (%)

	還元剤	HBr		HI	
	元素	Pu	Am	Pu	Am
ケース①	1 回目	0.5 ± 0.0	97 ± 2	1.7 ± 3.6	79 ± 1
	2 回目	0.1 ± 0.0	42 ± 1	1.0 ± 0.0	88 ± 1
	平均	0.3 ± 0.4	70 ± 40	1.1 ± 1.0	84 ± 6
ケース②	1 回目	0.4 ± 0.0	95 ± 1	0.8 ± 0.0	92 ± 1
	2 回目	0.1 ± 0.0	55 ± 1	1.2 ± 0.0	

還元剤の検討として 2 mol/L の HBr 及び 0.1 mol/L HI-4 mol/L HCl では Pu が全く回収できないことが分かった。また、化学分離後の回収フラクションを蒸発乾固してから再溶解し、焼付した場合、Am のピークがブロードニングした。TEVA レジンから溶出した成分などが膜のように付着してしまったと考えている。また、Am の回収率のばらつきが大きくなる傾向がみられたが、回収液の蒸発乾固後、再溶解が不十分であったと考えている。Ta 板への焼付は広く使用されている手法ではあるが、比較的濃度の高い試料の一部を採取する

形で実施されることが多く、低濃度試料を濃縮して焼き付ける場合には向かないと考えられる。

電着により測定試料を調製する場合においても TiCl_3 は妨害となると考えられるため、4価を選択的に溶離すると考えられるシュウ酸の使用などについて今後検討する予定である。

4.2 ALPS 処理水分析

4.2.1 目的

ALPS 処理水の海洋放出に際して原子力規制委員会が行う独立モニタリングに資するため、ALPS 処理水中の核種分析を実施した。

4.2.2 試料・測定対象核種

令和 6 年 9 月 4 日 8 時 29 分に東京電力 HD により K4 タンク B 群から採取された ALPS 処理水測定・確認用タンク水を分析試料とした[4-10]。3 L ポリ瓶に採取された ALPS 処理水試料を令和 6 年 9 月 11 日に原子力機構に受け入れ、実験室に搬入した（図 4.2.2-1 参照）。



図 4.2.2-1 ALPS 処理水

これまでに得られた分析結果から、より効果的・効率的に分析の信頼性の確認に資することを目的として、トリチウムを除き検出値の桁数の大きい核種 (^{129}I 及び ^{14}C) 並びに、1 回の測定で複数核種を対象とすることが可能な γ 線放出核種 (Ge 半導体測定) を対象とした。

4.2.3 γ 線分析

γ 線放出核種 (^{60}Co , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs) の分析は、放射能測定シリーズ 7 ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー[4-11]に基づき実施した (図 4.2.3-1 参照)。ALPS 処理水試料の密度を測定 (1.008 g/cm^3) した後、メスシリンダーを用いて 2 L をマリネリバッグ (ポリエチレン製マリネリ容器専用内袋) に移し、これを特注のマリネリ容器に入れた状態で測定を行った (図 4.2.3-2 参照)。

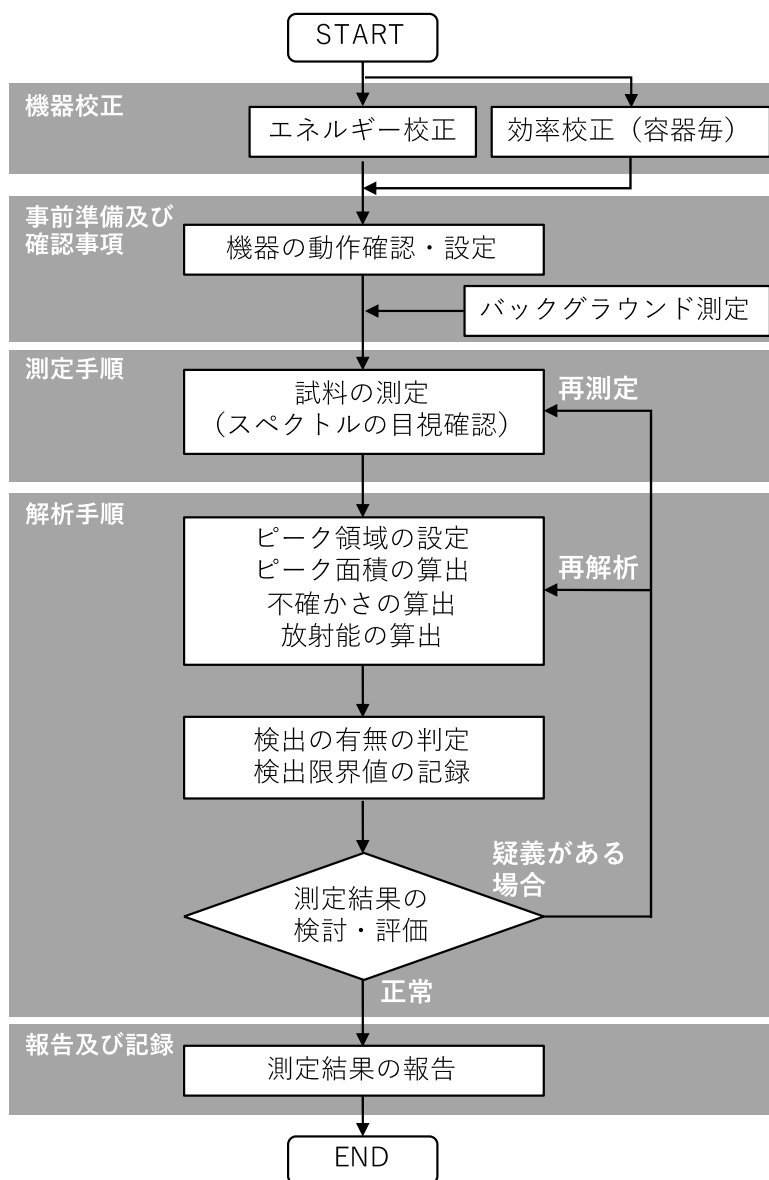


図 4.2.3-1 γ 線分析フロー図



図 4.2.3-2 γ 線分析用試料（特注マリネリ容器に ALPS 処理水試料 2 L を入れたもの）

マリネリ容器を用いることで、測定効率を高く、短時間で定量結果が得られ、検出下限値を低くすることができる。効率校正は、昨年度調製した γ 線放出核種 (^{60}Co , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs) を含む効率校正用線源を用いた(表 4.2.3-1 参照)。試料の測定時間は、1,037,328 秒 (12.0 日) とした。データの解析は、各核種の主ピーク (γ 線放出割合の最も大きいピーク) に着目して実施した。なお、 ^{106}Ru については、陽電子消滅のエネルギー 511 keV と重なるので 2 番目に γ 線放出割合が大きいピークを採用して解析した。検出下限値は Cooper の方法により算出した。誤差は、 2σ を付与した。試料採取日 (2024 年 9 月 4 日) に減衰補正した測定結果を表 4.2.3-2 に示す。

表 4.2.3-1 効率校正用線源の核種と Bq 数

核種	半減期 (y)	調整日 (2023/07/27) 時点の 容積線源中の Bq 数
^{60}Co	5.271	2710
^{106}Ru	1.018	591.1
^{125}Sb	2.758	3000
^{134}Cs	2.065	2315
^{137}Cs	30.08	2947

表 4.2.3-2 γ 線分析結果

核種	解析ピークエネルギー (keV)	分析値 (Bq/L)	告示濃度限度 (Bq/L)
^{60}Co	1332.492	0.222 ± 0.031	200
^{106}Ru	621.93	<0.49	100
^{125}Sb	427.874	<0.17	800
^{134}Cs	604.721	<0.15	60
^{137}Cs	661.657	<0.067	90

^{60}Co のみ有意に検出されたが、全ての分析値は告示濃度限度の 1/100 以下であった。

4.2.4 ^{14}C 分析

^{14}C 分析は、ALPS 処理水試料に溶存している無機炭素を分析する手法としてガス追気法で実施した。

はじめに、ガス追気法により、ALPS 処理水試料に溶存している無機の ^{14}C に酸を加えることで二酸化炭素の形で分離、回収した（図 4.2.4-1 参照）。



図 4.2.4-1 ガス追気法

三口フラスコに ALPS 処理水試料を 25 mL 入れ、スターラーで攪拌しつつ窒素ガスを 50 mL/min の割合で 3 時間通気しながら、分液ロートから 1.5 M 硝酸を滴下した。洗气瓶であるインピンジャーを 4 段に設置し、ガスを回収した。発生したガスのうち 1 段目の 5%硝酸銀・1 M 硝酸溶液 10 mL でハロゲンをトラップし、2 段目の空のインピンジャーを通した後で、3 段目及び 4 段目の二酸化炭素回収剤であるカーバメイト-1 (Carbamate-1、National Diagnostics 製) それぞれ 5 mL で ^{14}C を回収した。これらのカーバメイト-1 を 20 mL バイアル瓶に移した後、シンチレーターであるオキシゾル 306 (Oxosol 306、National Diagnostics 製) 1 mL で 4 段目のインピンジャーを共洗いし、液を 3 段目のインピンジャーに移した。これを 3 回繰り返し、前述の 20 mL バイアル瓶に移した。同様に、1 mL のオキシゾル 306 で 3 段目のインピンジャーを 3 回共洗いし、液をそのバイアル瓶に移した。このバイアル瓶にオキシゾル 306 を 4 mL 加えて液量を 20 mL とし、よく混合した後に、Hidex 製液体シンチレーションカウンタ (LSC) 300 SL/SLI で測定した。測定条件は、5 - 650 channels のエネルギーウィンドウ、60 分×10 回サイクルの測定時間とした。LSC で測定した試料の内容を表 4.2.4-1 に示す。

表 4.2.4-1 測定試料の内容

番号	名称	調整内容
#1	操作ブランク	超純水 25 mL、バックグラウンド測定用
#2	ALPS 処理水	25 mL、1 回目
#3	ALPS 処理水	25 mL、2 回目
#4	回収率算出用試料	超純水 25 mL + ^{14}C 標準線源 (10 Bq/mL) 0.25 mL
#5	マテリアルバランス	カーバメイト-1 9.75 mL+オキシゾル 306 9.75 mL+ ^{14}C 標準線源 (10 Bq/mL) 0.25 mL

#1 操作ブランクの測定結果をバックグラウンドとし、#2～#5 の測定結果から差し引いて正味の計数率を求めた。 ^{14}C の濃度は、#2 と #3 の測定結果を平均して算出した。#4 回収率測定用試料と #5 マテリアルバランスの測定結果に有意な差がなかったので、回収率 (R) を 100%とした。LSC で濃度分析した結果を表 4.2.4-2 に示す。誤差は、 2σ を付与した。

表 4.2.4-2 ^{14}C 濃度分析結果

核種	分析値 (Bq/L)	告示濃度限度 (Bq/L)
^{14}C	11.0 ± 1.7	2000

分析値は告示濃度限度の 1/100 以下であった。

4.2.5 ヨウ素分析

試料に含まれる ^{129}I のヨウ素の定量を検量線法で行なった。操作ブランク（#1、バックグラウンド）、ALPS 処理水試料そのもの（#2、 ^{127}I 添加無）と ALPS 処理水試料に安定同位体である ^{127}I を 50 ng (KIO_3 溶液を添加）添加したもの（#3、 ^{127}I 添加有）の 3 試料を用意し、化学分離後、分析を行った。具体的には、20 mL の超純水（#1）または ALPS 処理水試料（#2, 3）を pH 2 程度に調整後、溶存するヨウ素を、ピロ亜硫酸カリウムを用いてヨウ化物イオン (I^-) の化学形に調整し、コンディショニング済みの陰イオン交換ディスク（Anion-SR）で捕集した。#1～3 をコンディショニング済みの Anion-SR に通液させて化学分離した。通液後、超純水で Anion-SR を洗浄し、1 M 硝酸を 9.5 mL 加えて Anion-SR に吸着している I^- を溶離させ、10 mL メスフラスコに回収した。このメスフラスコに 50 μL の NaClO 溶液を添加し、1 M 硝酸で 10 mL にメスアップした。#1 及び#2 については、これを測定試料とした。#3 については、これを 5 mL 分取し、1 M 硝酸・ NaClO 溶液を 5 mL を加えて 2 倍希釈とし、測定試料とした。試料分析は、ICP-MS/MS（Agilent 製 8900）を用いた。測定にはプラズマガス及びキャリアガスとして、G1 グレード（純度：99.9999% 以上）の高純度 Ar ガスを、リアクションガスには、G1 グレード（純度：99.99995%）の高純度 O_2 ガスを用いた。JIS K0133:2007（高周波プラズマ質量分析通則）に準拠して $m/z = 127$ 及び 129 を測定した。これらの分析スキームを図 4.2.5-1 に示す。

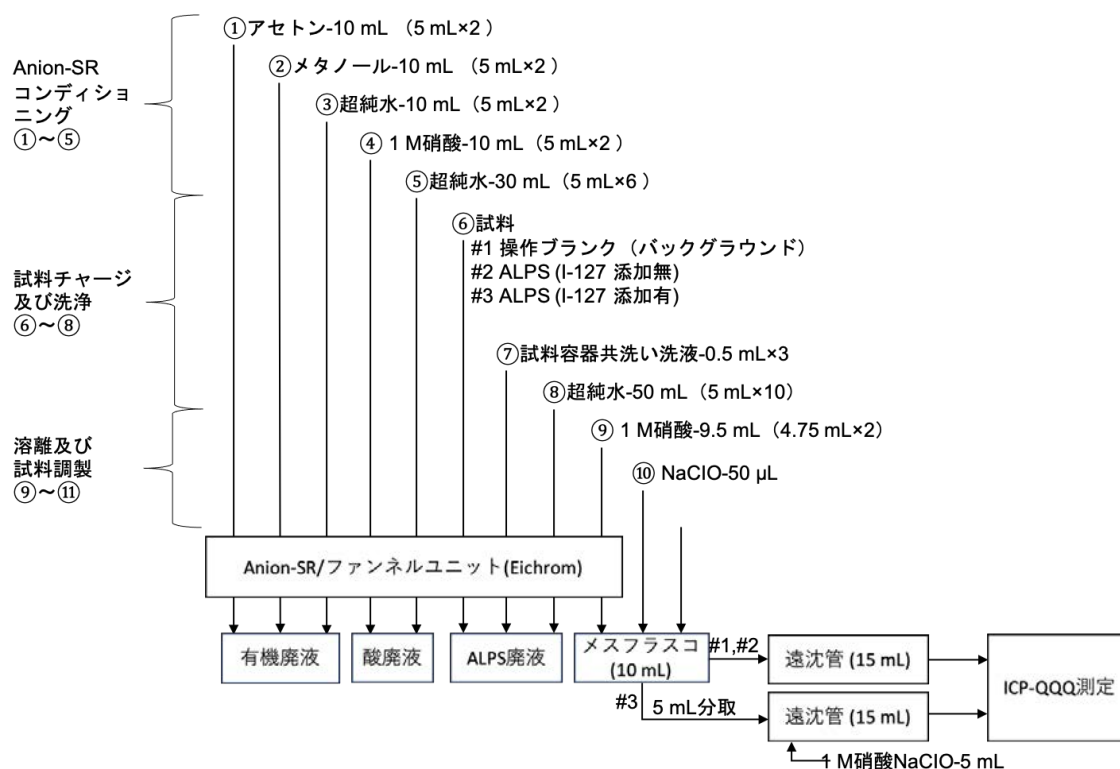


図 4.2.5-1 ヨウ素分析スキーム

#2 及び#3 は n=2 で行い、 ^{129}I の濃度は、#2 と#3 の測定結果を平均して算出した。回収率の平均値は、 93.5 ± 5.3 であった。解析結果を表 4.2.5-1 に示す。誤差は、 2σ を付与した。

表 4.2.5-1 ^{129}I 濃度分析結果

核種	分析値 (Bq/L)	告示濃度限度 (Bq/L)
^{129}I	0.1273 ± 0.0089	9

4.3 まとめ

スミヤ試料分析については、ケイ酸成分を含む試料の溶解を促進させるため、硝酸及び過酸化水素に加えて、フッ化水素酸も使用する酸分解法を検討し、検討した溶解法を適用して、合計 10 試料のスミヤろ紙に含まれる ^{90}Sr 、Mo 同位体、U 同位体、Pu 同位体、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm を定量した。溶解法による分析値の相違を確認するため、令和 5 年度に分析した 2 試料について比較したところ、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ モル比及び Mo 同位体/ ^{137}Cs モル比は同じオーダーとなったことから、影響が小さいと考えられたが、 ^{99}Tc はフッ化水素酸により損失すること、U 同位体はフッ化水素酸により溶解が促進されることが分かった。また、号機間の比較として 1 号機と 2 号機の 1 階から 4 階の壁試料を分析した結果を比較したところ、2 号機では Mo 同位体が検出されたが、1 号機では検出されなかった。また、2 号機では $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ モル比が壁と床でほぼ同じであり、かつ階層間の差も小さかったのに対し、1 号機では場所によって大きく異なる $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ モル比となった。

電着装置で電着試料を作製し、予備的な試験を実施した。焼付による試料も作製し、アルファ線スペクトロメーターによる測定結果を比較した。電着試料の方が比較的高い計数効率が得られたが、分離・精製操作を行うことで、その差は小さくなる可能性が示唆された。

ALPS 処理水の海洋放出に際して原子力規制委員会が行う独立モニタリングに資するため、ALPS 処理水中の核種分析を実施した。分析対象核種は検出値の桁数の大きい核種 ^{129}I 及び ^{14}C 、 γ 線放出核種である ^{60}Co 、 ^{106}Ru 、 ^{125}Sb 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs を対象とした。 ^{129}I は検量線法、 ^{14}C はガス追気法、 γ 線放出核種は Ge 半導体測定器で分析を実施した。その結果、 ^{129}I 及び ^{14}C 、 ^{60}Co が検出されたが、分析値はいずれも告示濃度限度を十分に下回ることを確認した。

4.1 の参考文献

- [4-1] 令和 5 年度原子力規制庁委託成果報告書、「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」
- [4-2] M. Ebihara, Y. Oura, N. Shirai, Y. Nagakawa, N. Sakurai, H. Haba, H. Matsuzaki, H. Tsuruta, Y. Moriguchi, “A new approach for reconstructing the ^{131}I -spreading due to the 2011 Fukushima nuclear accident by means of measuring ^{129}I in airborne particulate matter”, J. Environ. Radioact., 208-209, 106000, 2019.

- [4-3] 杉山尚樹、中野かずみ：Agilent8800 トリプル四重極 ICP-MS による O_2, NH_3, H_2 ガスを用いた 70 元素の反応データ
(https://www.chem-agilent.com/pdf/low_5991-4585JAJP.pdf)
- [4-4] 百島則幸、江藤一郎、ムハマド・サヤド、高島良正、鉄共沈による海水中の ^{99}Tc の濃縮、RDIOISOTOPES、40, 17-22、(1991)
- [4-5] Jose Luis Mas, Keiko Tagami, Shigeo Uchida, Method for the detection of Tc in seaweed samples coupling the use of Re as a chemical tracer and isotope dilution inductively coupled plasma mass spectrometry, *Analytica Chimica Acta* 509, 83-88, (2004)
- [4-6] 文部科学省 科学技術・学術政策局 原子力安全課防災環境対策室、放射能測定法シリーズ 14 ウラン分析法 平成 14 年改訂
- [4-7] 馬淵泰孝、平井昭司： ^{147}Sm を内標準とする α スペクトロメトリーによる鉄鉱石中のウラン及びトリウム同位体放射能の定量, *分析化学*, 793-800, 58(9), 2009.
- [4-8] 令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書、「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」
- [4-9] 令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書、「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」
- [4-10] 特定原子力・施設監視・評価検討会（第 115 回）資料 5-4
- [4-11] 原子力規制庁監視情報課、放射能測定法シリーズ 7 ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー 令和 2 年 9 月改訂

5. 核種移行解析

5.1 目的

福島第一原子力発電所の1号機から3号機のオペレーションフロアにアクセスが可能となってきたことから、原子力規制庁ではオペレーションフロアの線量率測定を詳細に実施した。その結果、3つの部位で構成されるシールドプラグの接合付近に高線量率が確認された[5-1]。本章ではシールドプラグの汚染を引き起こすような事故進展について解析及び検討を行う。

5.2 シールドプラグ汚染に係る検討

昨年度までに2号機を対象にMELCOR及びARTによる変形を考慮しない場合のCs移行解析及びAprosを用いて変形したシールドプラグ隙間の熱流動解析を行った。ARTによるCs移行解析では流入したCsの約95%がオペレーションフロアにまで移行しており、Csの初期インベントリが全量原子炉ウエルに移行しても観測されている20PBqには至らない。このため従来のCsの移行モデルでの説明は難しいことが分かった。また、2号機のシールドプラグでは下に凸に変形していることから、くぼみに凝縮水が滞留することでCsの水相への移行及び水相からコンクリートへの移行の可能性があることから変形したシールドプラグを簡易的に模擬した体系における熱流動解析をフィンランドForum社のAprosを用いて行った。Aprosでは2相流の解析が可能であり、また気液対向流を考慮できる解析コードである。この解析では、図5.2-1に示すように変形量に応じたくぼみを単純化するとともに変形により生じる上下方向の隙間についても変形解析結果を基に設定した。また、中心部に凝縮水が留まるようにした方向のフローパスの接続高さを底面より1mm程度上げた。このような条件による解析では、原子炉ウエルからシールドプラグへの流入が始まると水蒸気の凝縮が始まり徐々に水位を形成するが、流入が継続すると液滴同伴により水位の低下が始まり、一時的に流入が止まると滞留していた水は下層もしくは原子炉ウエルに流出してしまう結果を得た。

本年度はこのような流動条件に本年度実施したTHALES2/KICHEにより推定したCsの流入があった場合にどの程度のCsが液相に移行するか、また、液相からコンクリートに移行するかの検討を行った。

THALES2/KICHEによるCsの原子炉ウエルへの流入量を図5.2-2に示す。原子炉ウエルにCsが移行するタイミングは、格納容器圧力が0.75MPaを超えることでヘッドフランジボルトの延伸による隙間が生じた時、及び約89時間付近の格納容器圧力の低下を模擬するために仮定したヘッドフランジガasketの損傷である。図5.2-3には原子炉ウエルに移行する水蒸気量の積算値を示す。ARTの解析結果からシールドプラグ隙間空間でCsの壁や水相への移行はほとんど生じない。このため本解析では、水蒸気が凝縮する際にその体積に存在するCsも取り込んで凝縮するものとした簡易計算を試みた。具体的には流入する水蒸気に均一にCsが存在するとして凝縮する水蒸気の割合に応じたCsを水相に移行するとした。また、簡便な検討とするため、図5.2-4に示すAprosの凝縮水の溜まる傾向から2つの期間に分け、かつその期間の最大量が続くものとした。次に水相からコンクリートへの移行については調査した範囲では具体的に数値を見ることはできなかったが、文献[5-2]において、Csを含む溶液にコンクリートを58日浸した際に、表面の1/1000の線量になる深さとして約3mmであることが記されていた。この深さ以降には浸透しないとして仮に58日

でこの深さに達したとすると、 $6 \times 10^{-8} \text{cm/s}$ で移行したことになる。ここでは $1 \times 10^{-8} \text{cm/s}$ として与え、感度解析を行うことにした。

Apros の解析でシールドプラグ隙間に溜まる液相がいったん消失するまでに溜まった合計が 0.761kg であった。この間原子炉ウエルには約 7000kg の水蒸気が流入していることから約 0.01% が凝縮し、これと同等な量の Cs が水相に取り込まれたとする。この期間 (約 20,000s) に表面積上下合わせて 200m^2 とすると浸透速度を考慮して 1.3TBq がコンクリートに溜まることとなった。この後凝縮水は下層に流出してしまうが再度流入が始まると再び凝縮水が溜まり始める。ただし流入する Cs 量は初期と比べ少ないため再流入から解析終了時間 (スクラム後 100 時間) の間では 31GBq 程度であった。100 時間以降も格納容器から原子炉ウエルへの流入は継続するが、熔融燃料は代替注水により水没しており多くの Cs の格納容器への再蒸発を想定することは難しい。また、浸透速度を大きくすることでコンクリートへの移行を大きくすることは可能だが、水相にトラップされる Cs が少ないためあまり大きな移行係数を仮定することはできなかった。今回用いた Apros の解析では MELCOR を用いた解析より凝縮量が少ないこともあり強制的に水相にトラップされる Cs 量は少なくなった。今回の検討では ART による拡散を主とした移行挙動と今回試みた水蒸気中の Cs が凝縮時に同割合で水相に移行するとした場合を合わせても観測値には至らなかった。その原因として原子炉ウエルへの流入量が 20PBq 程度であったこと、Apros 解析に用いたボリューム分割等の解析条件が簡易であったことなどが挙げられる。格納容器には 50% 程度の Cs の移行を想定できていることから格納容器内部の構造材等を見直すことでと長期にわたる Cs の漏洩を模擬することで観測された汚染状況を再現できる可能性がある。



図 5.2-1 Apros 解析のためのノード分割図

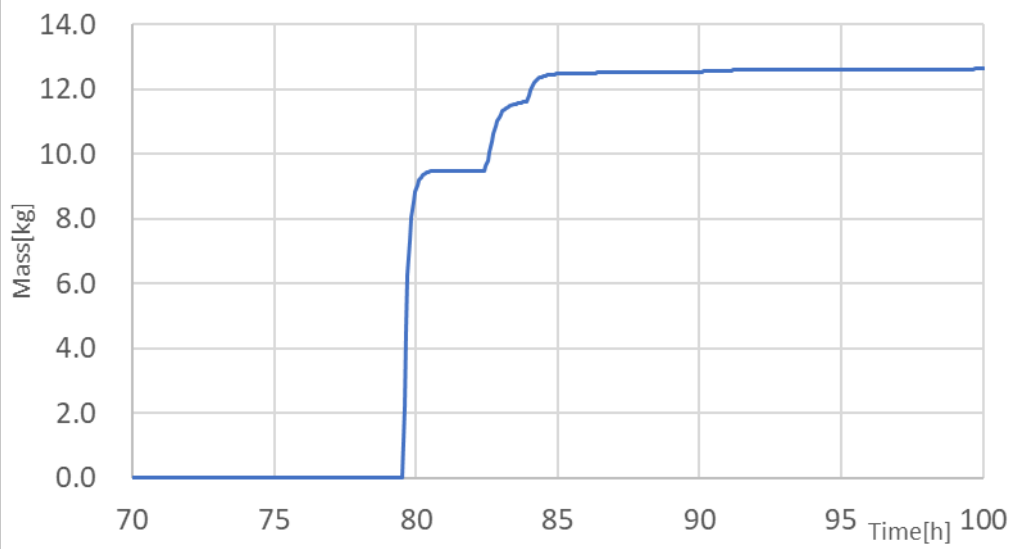


図 5.2-2 原子炉ウェルに流入する Cs 量(積算値)

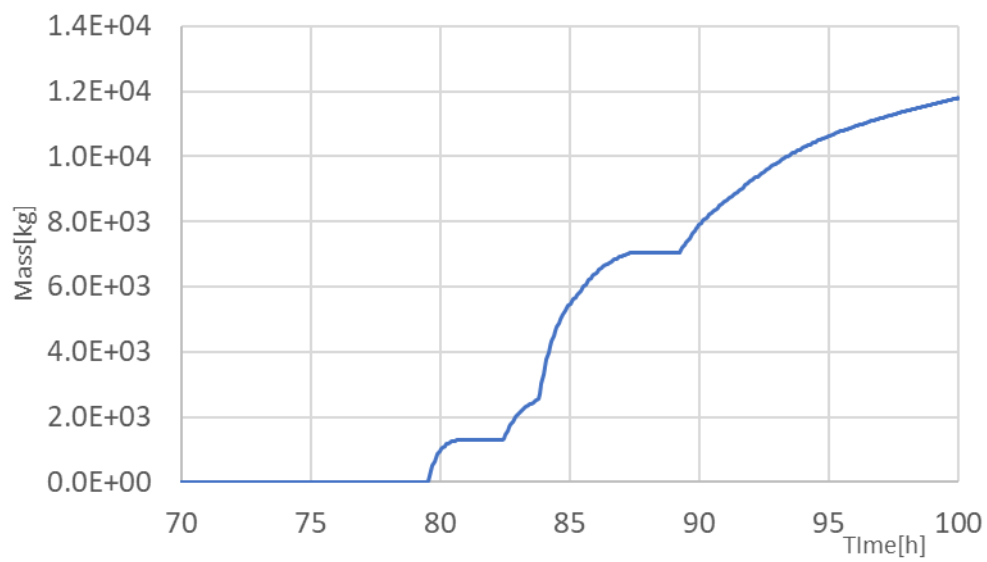


図 5.2-3 原子炉ウェルに流入する水蒸気量(積算値)

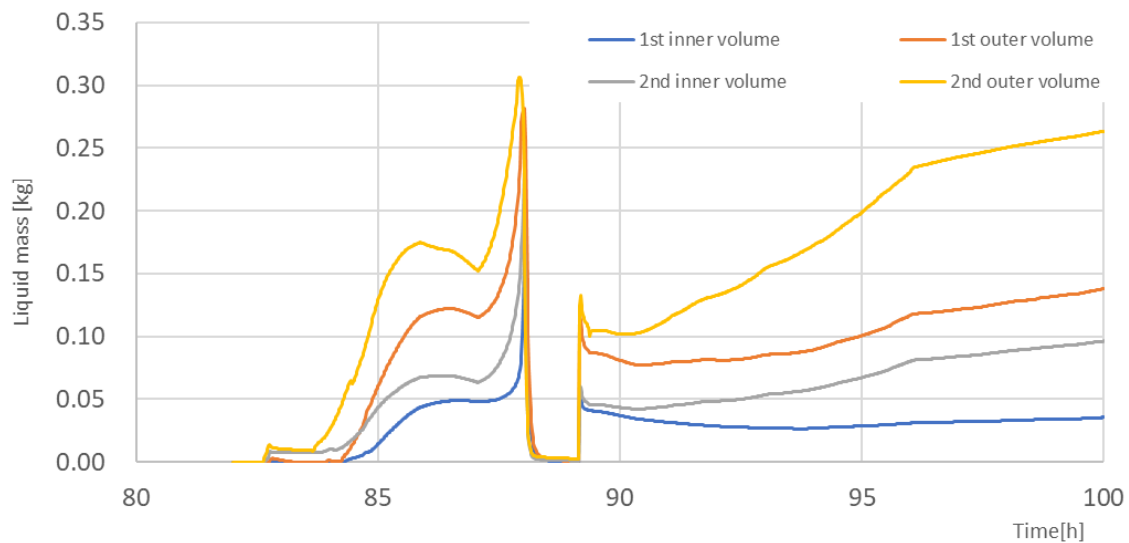


図 5.2-4 Apros 解析によるシールドプラグ隙間空間に存在する水相質量

5.3 まとめ

2 号機シールドプラグ下に Cs が多量に存在するような挙動の検討として、2.3 節で検討した事故進展における Cs の原子炉ウェルへの移行量を境界条件として、また、昨年度検討した Apros による熱流動解析結果を利用して 1)水蒸気の凝縮空間に存在する Cs が水相に移行、2)水相に移行した Cs がコンクリートに浸透するとした場合について、簡易的な試算を行った。この試算では流入する水蒸気のうち凝縮される水蒸気と同じ割合で Cs が水相に移行するとしたが、Apros 解析より得られた凝縮量は小さく水相に移行するであろう Cs 量も限定的となった。今回検討した凝縮によりトラップされコンクリートに移行するという機構による Cs の滞留は限定的な効果しかなかった。一方 Apros 解析に用いた境界条件と今回用いた境界条件が異なること、また、Apros 解析において原子炉ウェルに流入した水蒸気の大部分が凝縮してしまっているためシールドプラグ間隙間での凝縮量も限定的になってしまった可能性もある。1 次元コードの限界もあるが、ボリューム分割の詳細化等により熱流動解析の結果を合理的なものになるよう検討する余地はある。また、格納容器には多くの Cs が移行しているが再蒸発には寄与していないため格納容器圧力低下以降にはあまり寄与していない。RPV 内に炉内構造物の沈着面積を検討したように格納容器内にも沈着面積をモデル化することで 90 時間以降でも Cs が再蒸発する状況が作ることができるのであれば、シールドプラグ汚染への影響は大きくなると考えられる。

5.参考文献

- [5-1] 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、「東京電力福島第一原子力発電所事故の調査・分析に係る中間取りまとめ～2019 年 9 月から 2021 年 3 月までの検討～」、(169 ページ)、2021
- [5-2] 木下、他 “様々な核種が浸透したコンクリートにおける各元素の震度分布の推定”、大15巻1号 (46・51)、日本放射線安全管理学会誌、2016年2月

6. 原子炉建屋内等の汚染データの分析

6.1 目的

原子炉建屋内のスミヤ試料の分析から、**Sr** 等の低揮発性の核種が得られた。また、分析より得られた **Mo** や **Tc**、**Sr** と **Cs** のモル比を見ると、計算より得られる初期インベントリ比とは異なる傾向が得られている。また、東京電力による 2 号機の原子炉建屋内分析では、**UO₂** 粒子の側にアモルファスの **SiO₂** が付着しており、その生成過程は、還元雰囲気から酸化雰囲気に変化する過程を経たものと推察されている[6-1]。このような状態になり得る事故進展について、2 号機の事故進展を例に、分析で得られる核種の熱力学解析を組み合わせで検討することにした。

6.2 2 号機の事故進展（燃料溶融時期）

2 号機では地震後の津波により、交流及び直流電源が喪失したが、**RCIC** が意図しない挙動ではあるが地震後 65 時間程度まで稼働していたことが観測データから伺える(図 6.2-1)。65 時間以降では水位の低下が始まり、原子炉圧力容器 (**RPV**) の圧力も上昇を開始し、安全逃し弁 (**SRV**) が稼働する圧力まで上昇したのち圧力のプラトー部を形成している。75 時間付近に運転員による **RPV** 減圧が行われ **RPV** 圧力の低下及び水位の低下が見られる。その後 3 度ほど **RPV** 内圧力上昇が見られた。減圧から 3 つの圧力上昇の期間に燃料損傷が始まり一部が溶融し下部ヘッドに落下したものと考えられる。以上より地震後 75 時間から 95 時間の 20 時間の **RPV** 内雰囲気 (**H₂O/H₂**) について **THALES2** の結果を図 6.2-2 に示す。図から燃料溶融の過程では還元雰囲気を形成するが、**RPV** 圧力が下がり消防車による注水が有効となると酸化雰囲気に変化することが伺える。

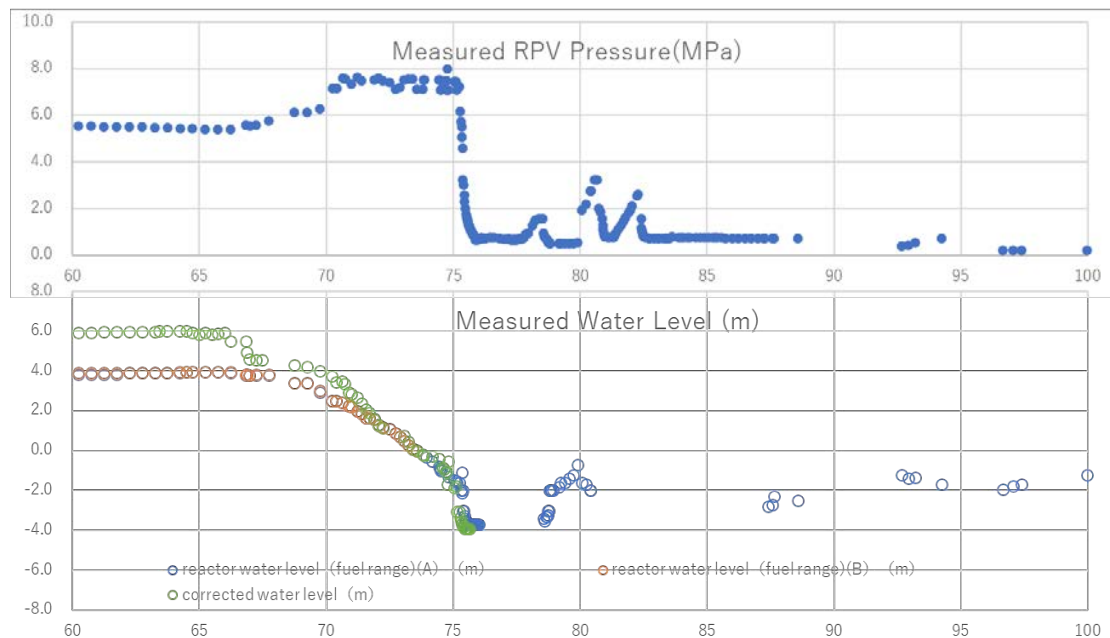


図 6.2-1 RPV 圧力及び水位データ (2 号機)

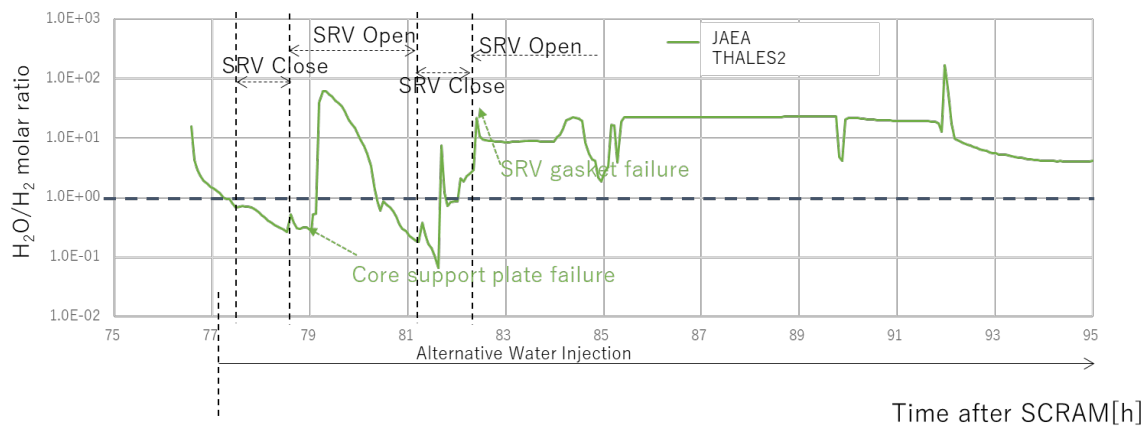


図 6.2-2 2号機燃料損傷進展中の炉心領域雰囲気

6.3 FP核種及びFP化学種の蒸気圧の推定

2号機原子炉建屋内スミヤ分析で得られた核種のうち、Cs, Sr, Mo, Tcについて統合型熱力学計算ソフトウェア Thermo-Calc[6-2]を利用して、データベース上にある考え得る化学形を考慮した蒸気圧を求めた。蒸気圧を求める際に考慮する雰囲気は、事故進展の不確かさを考慮して、 $1\text{E}+4 \sim \text{P}(\text{H}_2\text{O})/\text{P}(\text{H}_2) \sim 1\text{E}-4$ の範囲を2桁ずつステップ上に変化させて得ることとした。

核種ごとの蒸気圧を図 6.3-1 に、化学形も考慮した蒸気圧を図 6.3-2 に示す。図 6.3-1 に示すように Cs は高温であれば雰囲気に依らず揮発されやすい傾向が示された。Mo については燃料溶融が始まるような高温では酸化雰囲気では揮発しやすいが、還元雰囲気では揮発が進まない傾向が見て取れる。Sr は Mo とは逆の挙動で酸化雰囲気では分圧は高くないが、還元雰囲気では Cs と同程度の分圧となっている。

図 6.3-2 から各核種から揮発され得る化学形について考察する。Cs については酸化雰囲気では Cs_2MoO_4 や CsOH の形態での揮発が促され、還元雰囲気では、Cs もしくは CsOH や CsH といった化学形で揮発する傾向が示された。Mo については酸化雰囲気では揮発する傾向から、Cs との化合物や Mo 酸化物としての化学形を形成することが示された。Sr は還元雰囲気での蒸気圧が低いことから Sr の形態が優位であり、酸化雰囲気に近づくとも OH 基を持つ化学形であることが示された。Tc は Mo と同傾向で、酸化雰囲気では酸化物の形態で揮発していることが示された。

High(Oxidizing atmosphere) $\xleftarrow{\text{H}_2\text{O}/\text{H}_2}$ Low(Reducing atmosphere)

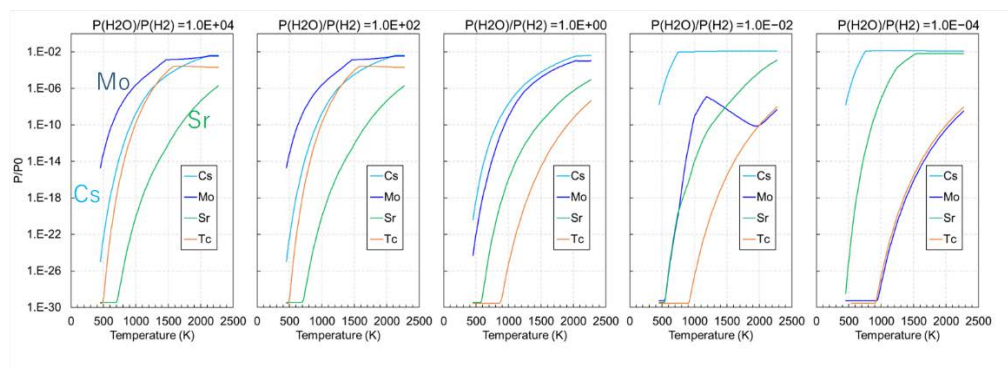


図 6.3-1 Thermo-Calc より得られた核種ごとの蒸気圧

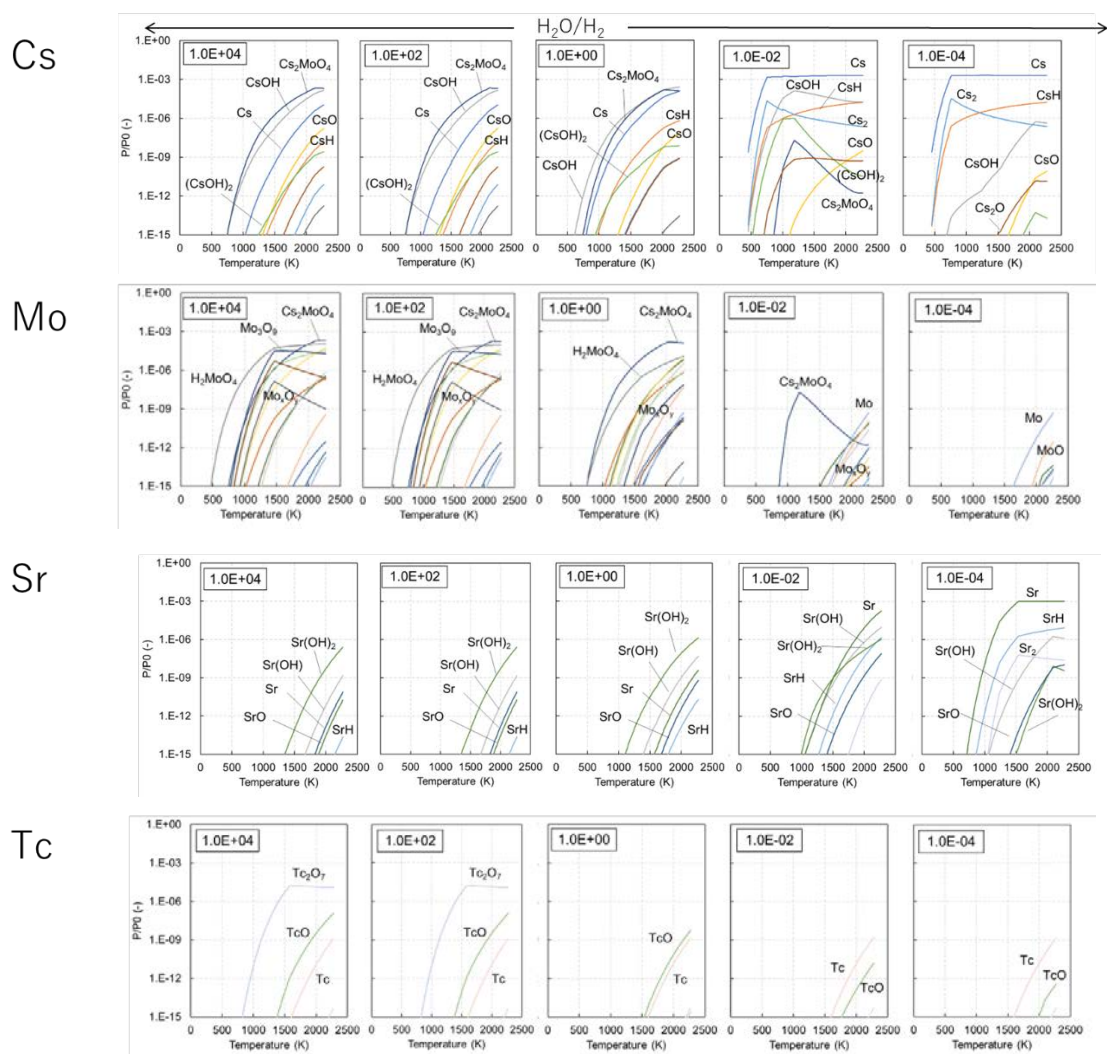


図 6.3-2 核種ごとの化学種の蒸気圧 (Cs, Mo, Sr, Tc)

6.4 事故進展中の各 FP 挙動に関する考察

図 6.2-2 に示したように、2 号機の事故進展において大きく 2 つの期間に分けて FP 挙動について検討を行った。

(1) RPV 減圧から 3 つの圧力上昇が観測されるまで

RCIC が停止し RPV 圧力が一定値を示した後、RPV の減圧が行われ水蒸気・水素の分圧比 $P(\text{H}_2\text{O})/P(\text{H}_2)$ が低下する。この減圧により燃料有効長の下端にまで水位が下がっていることから水蒸気・Zr の酸化反応により水素が生じている。 $P(\text{H}_2\text{O})/P(\text{H}_2)=1.0$ 及び $1.0\text{E-}2$ の Cs に対するモル比を見ると、水素発生が促される 1500K 以降の温度域では、Sr/Cs が 0.1 程度であり、Mo/Cs は還元雰囲気では Mo を含む化学種の揮発が低くなることから Mo/Cs 比は非常に小さくなる。

(2) RPV 圧力上昇後の SRV 開操作以降

SRV により RPV の減圧が進むと消防車による注水が炉心に到達した可能性がある。このことを示すように炉心領域の雰囲気は水蒸気が多くなり酸化雰囲気を形成する。この期間の水蒸気・水素分圧比は 1 から 100 の間であるとする、Mo/Cs から Cs の同程度から 10 倍程度の Mo が存在し、その化学形は Cs_2MoO_4 である可能性が高い。また、Sr に関しては Cs より 3 桁ほど低い存在量と見積もることができる。注水はこの期間以降も継続することから Mo や Cs は酸化雰囲気下で燃料から炉心の気相への移行が促される傾向が続くと考えられる。

6.5 スミヤ分析結果との比較

2 号機原子炉建屋から採取したスミヤサンプルの分析の結果を Cs で規格化し、図 6.5-1 にモル比で示す。また、比較検討を容易にするため、熱力学計算より得られた Cs に対する各核種のモル比を図 6.5-2 に示す。

Sr/Cs では、事故時のインベントリ比と比較して 1~2 桁ほど小さい値となっている。前述の検討から還元雰囲気が形成されている期間に Sr が気相に移行するが、その後の還元雰囲気により Sr の揮発が抑制されたためスミヤサンプル分析の Sr/Cs が小さくなったものと推察する。

Mo/Cs については事故時のインベントリ比と比較して 1 倍弱から 10 倍程度の比がスミヤサンプル分析より得られている。燃料損傷が始まる期間では還元雰囲気を形成しており、この期間は Cs 単体もしくは CsOH の形態で気相に移行していると考えられ、この雰囲気が原子炉建屋下層まで移行した可能性がある。また、消防車による注水が有効になった以降は酸化雰囲気となり Cs_2MoO_4 の形態での移行が考えられる。しかし Cs_2MoO_4 の形態では Mo/Cs モル比が $1/2$ となり分析結果と整合しない。しかしながら初期の Mo/Cs 比が 1 を超えていることから Mo 量の方が Cs より多いため、Mo と結合できる Cs が制限された可能性がある。この場合、Mo は酸化物として移動することとなる。これが多量の水蒸気とともにオペレーションフロアに移行すること、また、2 号機のシールドプラグには大量の Cs がトラップされている可能性があることから、Mo/Cs 比が高く検出された要因である可能性がある。

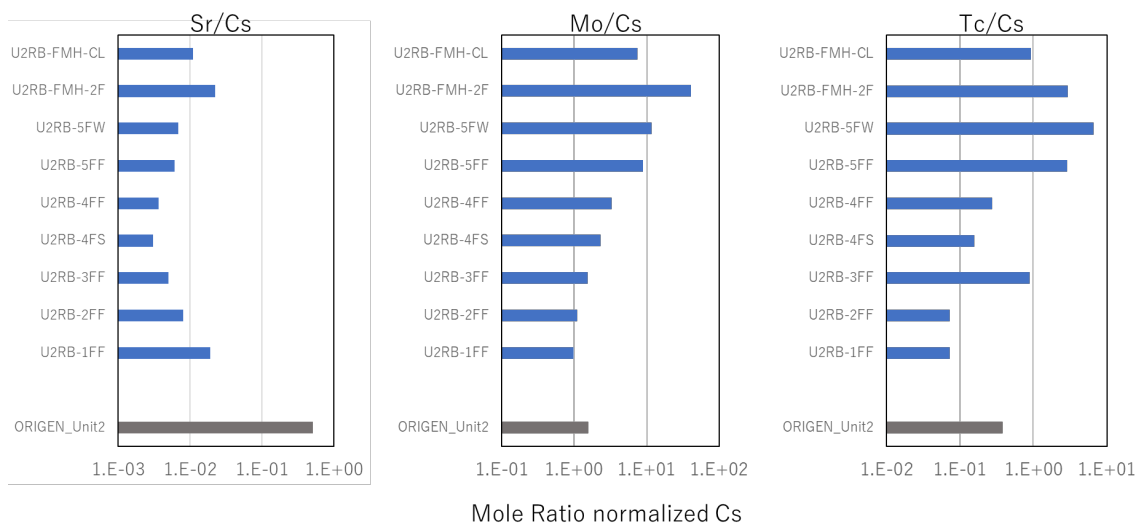


図 6.5-1 2号機原子炉建屋スミヤサンプル分析結果（Cs モル量で規格化）

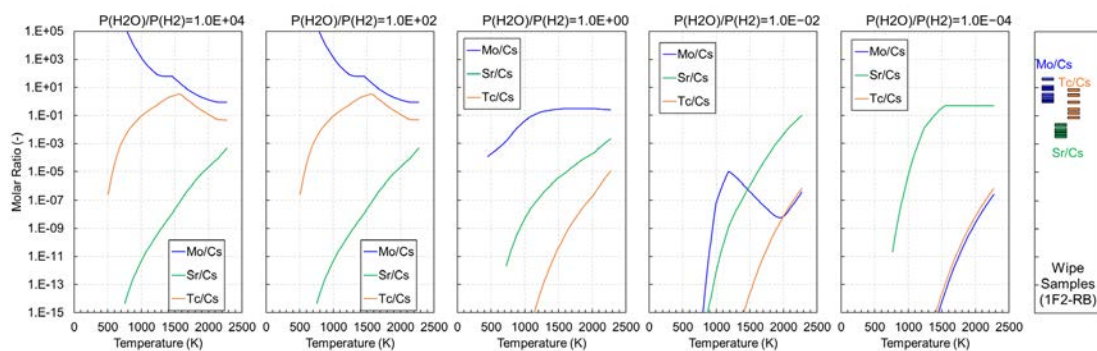


図 6.5-2 熱力学計算より得られた各核種の Cs に対するモル比

6.6 まとめ

原子炉建屋内から採取したスミヤサンプルの分析結果から、事故時の FP 移行挙動を推察するため、着目する核種の雰囲気の違いによる蒸気圧の違いを、統合型熱力学計算ソフトウェア **Thermo-Calc** を用いて求め、これと 2 号機の事故進展における炉心領域の雰囲気とを合わせ、燃料からの FP 放出時の傾向を分析した。2 号機の場合、RCIC が停止して RPV 圧力が約 7.5MPa 付近で推移したのち減圧した際に還元雰囲気が形成され、その後外部からの注水により酸化雰囲気に移行したことを示し、過去の分析結果から推察された状況と一致した。また、燃料損傷が開始してからの雰囲気と蒸気圧の比較、加えて揮発する際の化学種の推定を合わせ、スミヤサンプルの分析結果を事故進展から説明できる可能性を示した。

このような事故進展解析結果と FP の熱力学的計算により建屋内汚染を引き起こす要因の推定が可能であることを示した。しかしながら事故進展解析は未だ不確かさが大きいいため継続した検討が必要である。

6.参考文献

- [6-1] 福島第一原子力発電所事故発生後の詳細な進展メカニズムに関する未確認・未解明事項の調査・検討結果「第6回進捗報告」、添付資料5 サンプル分析による事故状況の把握、2022年11月10日
(https://www.tepco.co.jp/decommission/information/accident_unconfirmed/pdf/221110j0109.pdf)
- [6-2] Thermo-Calc (<https://thermocalc.com/>)

7. おわりに

本事業では、1F 事故等を踏まえた重大事故時の対策や安全評価手法並びに安全対策の高度化に関連する技術的知見を取得するために、1F プラント内における核種の移行に関する情報整理を行うとともに、重大事故時のソースターム評価に有益と考えられる 1F プラント内核種移行挙動の把握を目的とした重大事故解析を実施した。加えて、1F 事故分析検討会で求められた 1F 試料分析、核種移行解析、原子炉建屋内等の汚染データの分析を実施した。主な成果は以下のとおりである。

(1) 重大事故解析

重大事故解析として、THALES2/KICHE による解析を実施してきた。一方シビアアクシデント解析としては、例えば OECD/NEA の BSAF/BSAF2 プロジェクトにおいて、米国で開発された MELCOR を利用している参加機関は多い。そこで本年度は THALES2/KICHE とのベンチマークを今後行うことができるように MELCOR を用いた事故解析用の入力を作成を進めた。公開されている MELCOR2.1 の 3 号機の入力を最新版の MELCOR で解析できるよう修正を加えるとともに近年の調査等により得られた知見を入力に反映した。

また、2 号機のシールドプラグが Cs により汚染されている状況を再現するような事故進展の検討として、RPV 内に沈着した Cs が RPV から D/W への漏洩パスを経由して D/W に移行するよう、RPV 内の構造材の面積や漏洩タイミング、漏洩面積について感度解析を行った。RPV 内構造材による沈着を考慮することで RPV 内浮遊量を減らすとともに RPV 減圧に伴い再蒸発していく傾向を得られた。一方で SRV による RPV 減圧が行われると RPV 雰囲気は S/P プールに導かれるため、D/W 内に Cs を移行させるためには燃料からの Cs 放出開始から SRV 開操作までに D/W への漏洩パスを形成することで D/W 内 Cs 濃度を高めることができた。この結果をシールドプラグに流入する Cs の境界条件として、その挙動の検討に資する。

(2) 関連情報の収集

1F 事故に関連する OECD/NEA プロジェクト会合 (FACE) およびワークショップ (FRAME) に出席し、FP 移行挙動や水素爆発に関する情報の収集を行った。また、日本原子力学会秋の大会に出席し、1F 事故に関するセッションにて報告された重大事故解析等の情報を収集した。

(3) 1F 試料分析

スミヤ試料分析については、ケイ酸成分を含む試料の溶解を促進させるため、硝酸及び過酸化水素に加えて、フッ化水素酸も使用する酸分解法を検討し、検討した溶解法を適用して、合計 10 試料のスミヤろ紙に含まれる ^{90}Sr 、Mo 同位体、U 同位体、Pu 同位体、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm を定量した。溶解法による分析値の相違を確認するため、令和 5 年度に分析した 2 試料について比較したところ、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ モル比及び Mo 同位体/ ^{137}Cs モル比は同じオーダーとなったことから、影響が小さいと考えられたが、 ^{99}Tc はフッ化水素酸により損失すること、U 同位体はフッ化水素酸により溶解が促進されることが分かった。また、号機間の比較として 1 号機と 2 号機の 1 階から 4 階の壁試料を分析した結果を比較したところ、2 号機

では Mo 同位体が検出されたが、1 号機では検出されなかった。また、2 号機では $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ モル比が壁と床でほぼ同じであり、かつ階層間の差も小さかったのに対し、1 号機では場所によって大きく異なる $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ モル比となった。

電着装置で電着試料を作製し、予備的な試験を実施した。焼付による試料も作製し、アルファ線スペクトロメーターによる測定結果を比較した。電着試料の方が比較的高い計数効率が得られたが、分離・精製操作を行うことで、その差は小さくなる可能性が示唆された。

ALPS 処理水の海洋放出に際して原子力規制委員会が行う独立モニタリングに資するため、ALPS 処理水中の核種分析を実施した。分析対象核種は検出値の桁数の大きい核種 ^{129}I 及び ^{14}C 、 γ 線放出核種である ^{60}Co 、 ^{106}Ru 、 ^{125}Sb 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs を対象とした。 ^{129}I は検量線法、 ^{14}C はガス追気法、 γ 線放出核種は Ge 半導体測定器で分析を実施した。その結果、 ^{129}I 及び ^{14}C 、 ^{60}Co が検出されたが、分析値はいずれも告示濃度限度を十分に下回ることを確認した。

(4)核種移行解析

2 号機シールドプラグ下に Cs が多量に存在するような挙動の検討として、2.3 節で検討した事故進展における Cs の原子炉ウェルへの移行量を境界条件として、また、昨年度検討した Apros による熱流動解析結果を利用して 1)水蒸気の凝縮空間に存在する Cs が水相に移行、2)水相に移行した Cs がコンクリートに浸透するとした場合について、簡易的な試算を行った。この試算では流入する水蒸気のうち凝縮される水蒸気と同じ割合で Cs が水相に移行するとしたが、Apros 解析より得られた凝縮量は小さく水相に移行するであろう Cs 量も限定的となった。今回検討した凝縮によりトラップされコンクリートに移行するという機構による Cs の滞留は限定的な効果しかなかった。一方 Apros 解析に用いた境界条件と今回用いた境界条件が異なること、また、Apros 解析において原子炉ウェルに流入した水蒸気の大部分が凝縮してしまっているためシールドプラグ間隙間での凝縮量も限定的になってしまった可能性もある。1 次元コードの限界もあるが、ボリューム分割の詳細化等により熱流動解析の結果を合理的なものになるよう検討する余地はある。また、格納容器には多くの Cs が移行しているが再蒸発には寄与していないため格納容器圧力低下以降にはあまり寄与していない。RPV 内に炉内構造物の沈着面積を検討したように格納容器内にも沈着面積をモデル化することで 90 時間以降でも Cs が再蒸発する状況が作ることができるのであれば、シールドプラグ汚染への影響は大きくなると考えられる。

(5)原子炉建屋内等の汚染データの分析

原子炉建屋内から採取したスミヤサンプルの分析結果から、事故時の FP 移行挙動を推察するため、着目する核種の雰囲気の違いによる蒸気圧の違いを、統合型熱力学計算ソフトウェア Thermo-Calc を用いて求め、これと 2 号機の事故進展における炉心領域の雰囲気とを合わせ、燃料からの FP 放出時の傾向を分析した。2 号機の場合、RCIC が停止して RPV 圧力が約 7.5MPa 付近で推移したのち減圧した際に還元雰囲気が形成され、その後外部からの注水により酸化雰囲気に移行したことを示し、過去の分析結果から推察された状況と一致した。また、燃料損傷が開始してからの雰囲気と蒸気圧の比較、加えて揮発する際の化学種の推定を合わせ、スミヤサンプルの分析結果を事故進展から説明できる可能性を示した。

このような事故進展解析結果と **FP** の熱力学的計算により建屋内汚染を引き起こす要因の推定が可能であることを示した。しかしながら事故進展解析は未だ不確かさが大きいいため継続した検討が必要である。