

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

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

令和 4 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.	1F プラント内核種移行に係る実施項目 .....	2-1
2.1	1F プラント内核種移行に係る試料分析手法の整備 .....	2-1
2.1.1	スミヤ試料の分析手法について検討 .....	2-1
2.1.2	$\beta$ 線スペクトロメータによる $^{90}\text{Sr}$ 分析手法の検討 .....	2-9
2.1.3	Tc-99 の分析手法の検討 .....	2-12
2.1.4	イメージングプレート読み取りおよび分析手法の整備 .....	2-16
2.1.5	まとめ .....	2-21
2.2	重大事故解析 .....	2-23
2.2.1	目的 .....	2-23
2.2.2	解析方法 .....	2-23
2.2.3	解析結果 .....	2-29
2.2.4	まとめ .....	2-39
2.3	データベース作成 .....	2-41
2.3.1	情報ソースデータベース .....	2-41
2.3.2	サンプルデータベース .....	2-46
2.3.3	まとめ .....	2-47
2.4	OECD/NEA プロジェクトの運営 .....	2-50
2.5	関連情報の収集 .....	2-70
3.	1F 事故分析検討会に係る実施項目 .....	3-1
3.1	1F 試料分析 .....	3-1
3.1.1	スミヤ試料分析 .....	3-1
3.1.2	有機材料の熱分解生成気体の分析 .....	3-86
3.1.3	まとめ .....	3-121
3.2	配管内流動解析 .....	3-123
3.2.1	目的 .....	3-123
3.2.2	解析方法 .....	3-123
3.2.3	解析結果 .....	3-124
3.2.4	まとめ .....	3-126
4.	原子炉建屋内等の汚染データの分析 .....	4-1
5.	おわりに .....	5-1

## 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試料の分析並びに重大事故解析を実施している。さらに、整理した情報及び取得した知見を、1F 事故分析に係る経済協力開発機構／原子力機関（OECD/NEA）プロジェクトに提供するためのデータベースを作成するとともに、OECD/NEA プロジェクトの運営を行っている。

本年度の事業では、現在進められている 1F 廃止措置の過程で取得される様々な試料の情報に基づき 1F プラント内における核種の移行経路や FP 分布を推定するため、東京電力その他により公開された情報の収集及び整理を行うとともに、過年度の事業において検討された分析手法を踏まえて、水試料や固体試料を対象とした分析手法の整備を行った。また、重大事故解析により、今後の試料採取や分析に反映すべき知見を整理した。これらにより整理した情報及び取得した知見を、1F 事故分析に係る OECD/NEA プロジェクトに提供するためのデータベースを作成した。加えて、原子力規制庁が 1F 事故の継続的な調査・分析を行う目的で設置及び開催している 1F 事故の分析に係る検討会（1F 事故分析検討会）で求められた 1F 試料の分析、配管内流動解析を実施した。具体的には、以下の通りである。

### (1)1F プラント内核種移行に係る実施項目

#### ① 1F プラント内核種移行に係る試料分析手法の整備

1F プラント内の核種移行挙動を把握するため、汚染水試料、コンクリート瓦礫試料及びスミヤ試料等における核種や元素の量や形態を分析するための手法の整備等を行った。特にスミヤ試料については、スミヤ濾紙のアルカリ溶融手法及びアルカリ溶融後溶液からの核種分離手法に関する技術的知見を整備した。

#### ② 重大事故解析

1F 事故クロノロジーに基づく重大事故解析を実施し、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と解析結果の比較により放射性物質移行経路を検討するとともに、今後の試料採取や分析に反映すべき知見を整理した。

#### ③ データベース作成

1F 事故分析に係る OECD/NEA プロジェクトに提供するため、現時点で把握可能な核種の移行挙動について、次の情報のデータベースを作成した。

- ・①及び②で取得した情報
- ・1F プラント内の汚染水、建屋内線量、がれき、土壌等を分析した結果及び OECD/NEA プロジェクトの成果等の 1F プラント内における種核の濃度や分布に関する公開情報（原子力規制庁から指定されたものの他、有用と認めて収集した関連情報を含む。）

#### ④ OECD/NEA プロジェクトの運営

1F 原子炉建屋及び格納容器内情報の分析プロジェクト（ARC-F プロジェクト）を運営し、会合を 2 回開催した（令和 3 年 7 月及び令和 4 年 1 月、いずれも Web 会議）。

#### ⑤ 関連情報の収集

ARC-F プロジェクト会合に出席し、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、各種サンプル分析状況等の情報を収集した。

(2)1F 事故分析検討会に係る実施項目

① 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。

② 配管内流動解析

1F 事故における配管内の流動や配管内の核種沈着状態を推定するための解析を実施し、測定された線量当量率等の汚染データを合理的に説明する事故状況を検討した。

③ 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. 1F プラント内核種移行に係る実施項目

### 2.1 1F プラント内核種移行に係る試料分析手法の整備

#### 2.1.1 スミヤ試料の分析手法についての検討

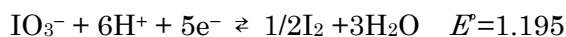
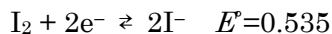
スミヤ試料における核種・元素の量を分析するための手法整備を目的とし、スミヤ試料に含まれる元素・核種定量のための前処理法の検討のため、ガス追気法によるヨウ素 (I) の分離試験、アルカリ溶融と固相抽出剤による I の分離試験、ろ紙の灰化・酸分解及び化学分離試験を実施した。回収率などから適用性を判断し、実際に 1F で採取されたスミヤ試料の分析に利用できる前処理法を選択した。

##### 2.1.1.1 ガス追気法による I の分離試験

###### (1) 緒言

I は酸により揮発する性質があるため、固体試料に含まれる I を分析する場合には、アルカリを用いた溶融法、または、電气管状炉で加熱して揮発させた後アルカリ等に捕集する燃焼法により前処理が行われるのが一般的である。この場合、対象試料を均質化した後、Sr や Mo、アクチノイド等の酸分解により固体を溶液化して分析する元素とは別に取り分けた試料を用いて分析を行うことになる。ここで、前処理方法を統一できれば、分析手法が簡略化されるとともに、ろ紙のように均質化が難しい形態の試料の分析においては、試料中で対象元素が不均一に分布している可能性を考慮する必要がなくなる。そこで、ろ紙の酸分解と I の揮発・捕集を同時に行える前処理手法について検討した。

溶液中での I の主な化学形態として  $I^-$  と  $IO_3^-$  が考えられるが、これらが  $I_2$  となる半反応と標準酸化還元電位は下記の通りである。



加藤ら[2.1-1]によると、硝酸( $HNO_3$ )溶液の還元電位は  $27^\circ C$  付近では  $1.12 V$  ほどであり、 $I^-$  は  $HNO_3$  溶液中で容易に  $I_2$  になると考えられる。他方、 $IO_3^-$  に対してはピロ亜硫酸カリウム( $K_2S_2O_5$ )や過酸化水素( $H_2O_2$ )を加えて  $I^-$  にした後、 $I_2$  とできるか検討した。また、I を揮発させた後のろ紙試料と酸をビーカーに回収し、ろ紙を溶解させた後、溶解液中への I 以外の元素の残存率を求めるとともに、その後の化学分離操作へのろ紙成分の影響についても確認を行った。

###### (2) 実験法

###### 分析対象元素

I の化学形として  $I^-$  と  $IO_3^-$  を想定し、 $KIO_3$  または  $KI$  から溶液を調製し、 $10 \mu g$  相当をろ紙にしみこませた。また、I 以外の核種の揮発性についても確認するため、Co、Sr、Mo、Sb、Cs、Eu、Re、Ru についても各  $10 \mu g$  相当量の市販の標準液(富士フィルム和光純薬製、 $1000 \mu g/ml$  溶液)をろ紙にしみこませた。

###### 酸溶液

I の揮発試験では、反応溶液として、 $HNO_3$ 、 $HNO_3+H_2O_2$ 、 $HNO_3+K_2S_2O_5$ 、王水( $HNO_3$ :塩酸( $HCl$ )=1:3)について検討を行った。I を揮発させた後の反応溶液はメンブレ

ンフィルタでろ過してろ紙の残留物を除去し、希釈して反応溶液に残った元素濃度を ICP-MS(パーキンエルマー製、ELAN-DRC)により定量した。

#### トラップ溶液

I<sub>2</sub>を捕集するため、酸溶液に乾燥空気を通気させ、排気ガスを 0.5~3 M の NaOH 水溶液または 2~5% のテトラメチル水酸化アンモニウム(TMAH)水溶液を 10 ml 入れたインピンジャー(1~3 段)に通気させてトラップした。実験終了後、トラップ溶液を適宜希釈し、トラップされた元素を ICP-MS(パーキンエルマー製、ELAN-DRC)により定量した。

#### 揮発回収試験

I を揮発・回収する実験装置の概要図を示す。

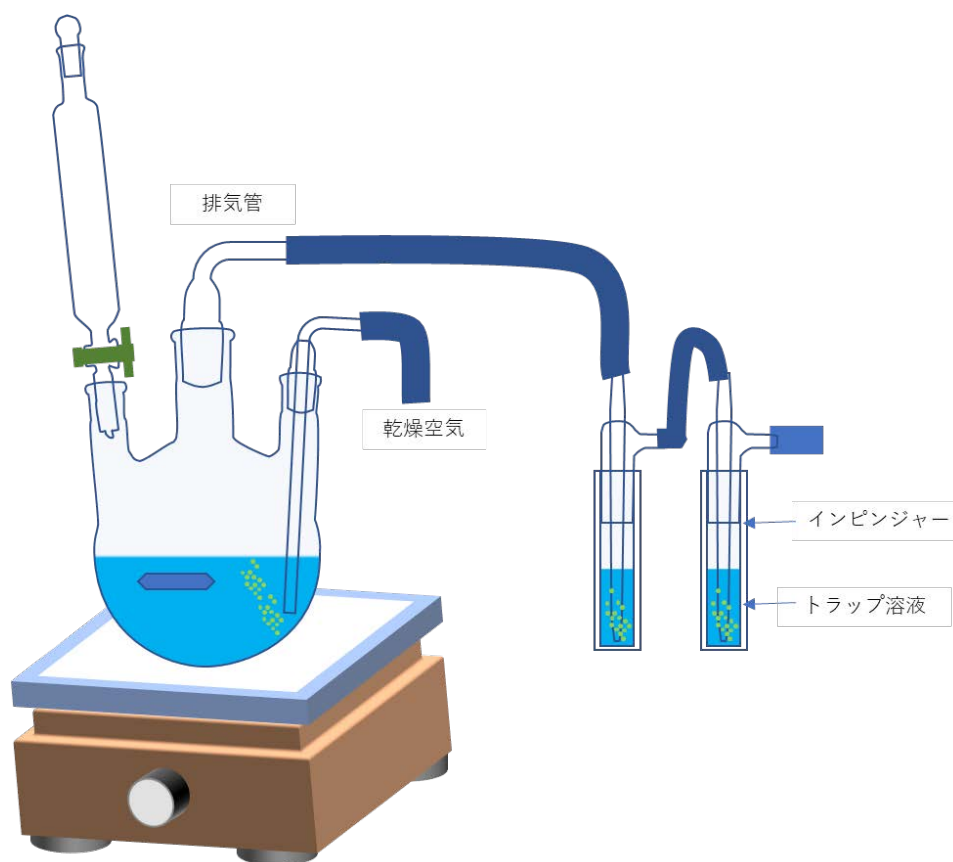


図 2.1.1.1-1 ガス追気法の試験装置概要図

三口フラスコの底にろ紙を入れ、測定対象となる元素を含む溶液をろ紙に染み込ませた。その後、図 2.1.1.1-1 に示すように機器類を接続した。滴下ロートに反応溶液である酸を入れ、コックを開いて三口フラスコに導入した。三口フラスコの底をホットプレートで加熱しながら、ポンベの乾燥空気をガス吹き込み管により反応溶液中に通気し、揮発性核種はガス排気管からインピンジャーへ導入した。

実験条件について表 2.1.1.1-1 にまとめた。

表 2.1.1.1-1 ガス追気法の各実験条件

No	I 化学形	添加元素	元素添加量	溶液	流速 (ml/min)	トラップ	段数	ホットプレート設定温度 (°C)	終了時溶液温度 (°C)	加熱時間 (h)
1	KIO <sub>3</sub>	Co,Sr,Mo,Sb, I,Cs,Eu,Re	各 10µg	HNO <sub>3</sub> (68%) 10ml	150	3M NaOH	2	135	-	2
2	KIO <sub>3</sub>	Co,Sr,Mo,Sb, I,Cs,Eu,Re	各 10µg	HCl(20%) 7.5ml + HNO <sub>3</sub> (68%) 2.5ml	150	1M NaOH	2	135	52	2
3	KI	Co,Sr,Mo,Sb, I,Cs,Eu,Re	各 10µg	HCl(20%) 7.5ml + HNO <sub>3</sub> (68%) 2.5ml	150	0.5M NaOH	2	135	56	2
4	KIO <sub>3</sub>	Co,Sr,Mo,Sb, I,Cs,Eu,Re,Ru	各 10µg	HNO <sub>3</sub> (68%) 9.5ml + H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (30%) 0.5ml	150	1M NaOH	2	200	72	1
5	KIO <sub>3</sub>	Co,Sr,Mo,Sb, I,Cs,Eu,Re,Ru	各 10µg	HNO <sub>3</sub> (68%) 9.9ml + 1M K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 0.1ml	150	1M NaOH	2	200	-	1
6	KIO <sub>3</sub>	Co,Sr,Mo,Sb, I,Cs,Eu,Re,Ru	各 10µg	HNO <sub>3</sub> (68%) 9.5ml + H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (30%) 0.5ml	150	3M NaOH	1	メモリ 1	95	2
7	KIO <sub>3</sub>	Co,Sr,Mo,Sb, I,Cs,Eu,Re,Ru	各 10µg	HNO <sub>3</sub> (68%) 9.5ml + H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (30%) 0.5ml +H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 0.5ml×2	100	3M NaOH	1	メモリ 1	95	1.5
8	KIO <sub>3</sub>	Co,Sr,Mo,Sb, I,Cs,Eu,Re,Ru	各 10µg	HNO <sub>3</sub> (68%) 9.5ml + H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (30%) 0.5ml +H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 0.5ml×4	200	2%TMAH	3	メモリ 1	94	1
9	KIO <sub>3</sub>	Co,Sr,Mo,Sb, I,Cs,Eu,Re,Ru	各 1µg	HNO <sub>3</sub> (68%) 9.5ml + H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (30%) 1ml +H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 0.5ml×4	50	5%TMAH	3	メモリ 1	94	2.25



## 結果

実験結果を表 2.1.1.1-2 にまとめた。今回の試験の範囲では、トラップでは I 以外の測定対象元素は検出されなかった。酸分解による処理の後、化学分離を行って分離精製して測定を行う予定の  $^{90}\text{Sr}$  や  $\text{Mo}$  同位体の他、 $\text{Tc}$  の代替物質である  $\text{Re}$  についても揮発が認められなかったことから、これらの核種の分析に酸分解により調製した溶解液を供することが可能であると考えられる。

0.5 M  $\text{NaOH}$  と 2%  $\text{TMAH}$  をトラップとして使用した場合、試験終了時にトラップが酸性になっていることが判明した。トラップの I 捕集能力を維持するためには、アルカリ性に保つ必要があるため、 $\text{NaOH}$  濃度は 1 M 以上、 $\text{TMAH}$  濃度は 5% 以上が必要であることが分かった。また、これは反応溶液である酸が揮発してトラップに捕集されていることを示す。ICP-MS による濃度測定は試料溶液の液性により感度が変わるため、液性を統一する必要があるが、揮発により混入した酸による感度の変化をどのように見積もるかが課題として残る。また、Anion-SR を用いた I の分離・精製を行う場合にも、 $\text{NO}_3^-$  により I が Anion-SR 上に吸着しなくなることが考えられるため、検討が必要である。

2 段目以降のトラップにはほとんど I が捕集されておらず、トラップの数は 1 段でよいことが分かった。

反応溶液として王水を用いた試験では、I はトラップでは確認されず、反応溶液中に残る結果となった。液性の影響が考えられるが、これらの試験時には反応溶液の温度が  $52^\circ\text{C}$  と  $56^\circ\text{C}$  とやや低いことから、温度の影響も考えられる。I の回収率が 100% を超えているのは、I の添加量を誤ったものと考えられる。

今回の試験条件下では、 $\text{HNO}_3$  に  $\text{H}_2\text{O}_2$  を添加した場合に 70% 前後の I をトラップで回収できたが、30% ほどが反応溶液中に残る結果となった。また、追加で  $\text{H}_2\text{O}_2$  を加えたところ、反応溶液中の I 濃度は低下したが、トラップでの回収率も低下していることから、滴下ロートの方へ I を含むガスが逆流した可能性と、 $\text{H}_2\text{O}_2$  追加試験ではトラップを  $\text{TMAH}$  にしているが、 $\text{TMAH}$  では十分 I をトラップできていない可能性が考えられる。

No.6 と No.8 の試験では、反応溶液として  $\text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$  を使い、加熱時間を変化させたが、反応時間を長くしても I の回収率があまり上がらないことが分かった。

本試験ではホットプレートを用いて丸底フラスコを加熱したが、加熱効率が悪いので、マントルヒーターなどを用いることが望ましい。また、反応溶液に I が残っているので、これが無視できる程度に少なくなるような条件を得ることが実試料分析に適用させるために必要となる。

表.2.1.1.1-2 ガス追気法終了後の各元素の反応容器中残存率(%)とトラップでの回収率(%)

No	反応溶液中残存率									トラップ回収率								
	I	Co	Sr	Mo	Sb	Cs	Eu	Re	Ru	I	Co	Sr	Mo	Sb	Cs	Eu	Re	Ru
1	45	105	104	104	102	104	104	100	-	38	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	-
2	142	101	102	101	101	103	102	101	-	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	-
3	214	106	105	104	108	106	103	105	-	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	-
4	36	94	95	93	95	96	95	94	94	73	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
5	73	102	104	103	101	103	102	103	102	41	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
6	28	103	102	104	100	103	103	103	104	67	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
7	15	102	103	102	100	103	102	100	102	53	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
8	25	100	102	103	99	101	100	99	104	19	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
9	23	99	105	100	98	100	100	97	99	15	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND

### 2.1.1.2 アルカリ溶融と固相抽出剤による I の分離試験

#### (1) 緒言

I は揮発性の高い元素であるが、アルカリ中では安定に存在し、比較的高温にしても揮発しないため、固体試料中の I 分析の前処理としてアルカリ溶融法が広く利用されている。アルカリ溶融で用いられる融剤として炭酸ナトリウム( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ )や過酸化ナトリウム( $\text{Na}_2\text{O}_2$ )など様々なものがあるが、今回は、比較的溶融温度が低く、反応が激しくない NaOH をろ紙試料中の I 分析へ適用するための検討を行った。また、I-129 を分析するためには溶融物を超純水で溶解した溶液から、I を分離・精製する必要がある。この分離・精製には、ドレン水中の I の分離で使用した固相抽出剤(3M 社製、Anion-SR)を用いる手法の適用を検討した。

#### (2) 実験法

顆粒状の NaOH を乳鉢ですりつぶして粉末状にし、Ni ルツボの底に約 1 g または 2 g を敷き詰めた。その上に 1/4 に分割したスミヤろ紙(アドバンテック製スミヤ法濾紙、杓子型、No.63)を置き、KI または  $\text{KIO}_3$  から調製した溶液を I が 0.1  $\mu\text{g}$  となるよう添加した。粉末状にした NaOH をさらに約 4 g または 8 g をろ紙にかぶせるように加えた。Ni ルツボにふたをし、加熱時に NaOH が吹きこぼれた場合に受けとめるために Ni ルツボをガラスビーカーに入れ、電気炉内に入れた。NaOH を乾燥させるため、室温から 10 分かけて 110°C にした後、30 分間 110°C を保持した。その後、20 分かけて 450°C に昇温し、450°C で 30 分保持した。300°C ほどまで電気炉の温度が下がるのを待ってから電気炉からビーカーと Ni ルツボを取出し、耐熱皿の上において放冷した。ある程度温度が下がってから、Ni ルツボに超純水を加えて溶融物を溶解し、溶解液を Ni ルツボを入れていたビーカーに入れた。Ni ルツボの内面の他、外側やふたも超純水で洗浄し、洗液をビーカーに加えた。回収した溶解液の量は約 40 ml とした。

アイクロム社の resolve フィルターの PTFE メンブレンを外し、直径 25 mm の円に切った Anion-SR をセットした。Resolve フィルターを吸引ろ過器にセットし、アセトン 5 ml を通液した。その後、5 ml のメタノールを加え、数 ml 通液したところで一度止め、1 分ほど待って膨潤させたあと残りを排出した。超純水 5 ml 通液した後、5 ml の 1 M  $\text{HNO}_3$  をゆっくり通液して、 $\text{HNO}_3$  で溶出される不純物を溶出させるとともに、陰イオン交換基を  $\text{NO}_3^-$  形にした。超純水 10 ml を 3 回通液して洗浄した後、アルカリ溶融物の溶解液を通液した。ビーカーを 1 ml の超純水で 3 回洗浄し、洗液も通液した。また、Anion-SR のみによる分離・回収について考察するため、5 g の NaOH を 40 ml の超純水に溶解し、I を 0.1  $\mu\text{g}$  含む KI 溶液を添加して調製した溶液も試料として通液した。5 ml の超純水を 6 回通液して Anion-SR を洗浄した後、吸着した I を 9.95 ml の 1 M  $\text{HNO}_3$  で回収した。I の化学形態を  $\text{IO}_3^-$  にするために 50  $\mu\text{l}$  の  $\text{NaClO}$  を添加した。これを 10 倍希釈して ICP-MS(パーキンエルマー製 ELAN-DRC)で I-127 を定量し、添加量に対する百分率として回収率を得た。

#### (3) 結果

各試料に対する I の回収率を表 2.1.1.2-1 にまとめた。昨年度までの検討で、NaOH 溶液を用いた Anion-SR による I の分離では、I<sup>-</sup>は分離・回収されるが  $\text{IO}_3^-$ は分離・回収さ

れない結果となったが、アルカリ溶融を実施した後の溶液では、出発物質の違いによる回収率の有意な差は認められなかった。アルカリ条件下では酸化還元電位が低いため、 $\text{IO}_3^-$  は還元されて  $\text{I}^-$  になったと考えられる。

溶融に用いる  $\text{NaOH}$  の量を 5 g から 10 g に増量すると回収率が数%程度減少した。融剤量の増加は加熱時の  $\text{I}$  の保持能力については増大させる方向にあると考えられるので、Anion-SR による分離において  $\text{NaOH}$  濃度が約 3 M から約 6 M まで高くなったことで回収率がわずかに減少したものと考えられる。

No.5 の試験は、0.1  $\mu\text{g}$  の  $\text{I}$  を含む 40 ml の約 3 M  $\text{NaOH}$  水溶液の Anion-SR による  $\text{I}$  分離試験になる。1  $\mu\text{g}$  相当の  $\text{I}^-$  を含む 5 ml の 3 M  $\text{NaOH}$  溶液に対する  $\text{I}$  分離試験の回収率は 92%[2.1-2]、0.1  $\mu\text{g}$  相当の  $\text{I}^-$  を含む 10 ml の 2.5 M  $\text{NaOH}$  溶液に対する回収率は 76%[2.1-3]であるが、今回の試験での回収率は 29.7%であった。液量が 40 ml まで増加したことで  $\text{I}$  の濃度が低下したことや  $\text{NaOH}$  の量が増えたことなどにより回収率が低下したと考えられる。

表 2.1.1.2-1 試料条件と Anion-SR による分離後の回収率

No	試料	回収率(%)
1	5 g $\text{NaOH}$ $\text{KI}$ アルカリ溶融後溶解液	15.7
2	5 g $\text{NaOH}$ $\text{KIO}_3$ アルカリ溶融後溶解液	14.1
3	10 g $\text{NaOH}$ $\text{KI}$ アルカリ溶融後溶解液	11.4
4	10 g $\text{NaOH}$ $\text{KIO}_3$ アルカリ溶融後溶解液	11.9
5	5 g $\text{NaOH}$ $\text{KI}$ 水溶液	29.7

アルカリ溶融後に電気炉から取り出した  $\text{Ni}$  ルツボの写真を図 2.1.1.2-1 に示す。左から、 $\text{KIO}_3$ 、ブランク( $\text{I}$  添加無、 $\text{NaOH}$  とろ紙のみ)、 $\text{KI}$  を添加した試料になる。それぞれ、黄銅、青銅、紫を呈しており、 $\text{KIO}_3$  や  $\text{KI}$  が  $\text{Ni}$  ルツボと反応していることが考えられる。No.1 や 2 の試験では No.5 の試験より低い回収率となったが、揮発による損失もある可能性がある。

一般的には  $\text{mg}$  オーダーの  $\text{I}$  を担体としてアルカリ溶融を実施されるが、今回の開発では、測定器への負荷を低減させる目的で担体量を 1  $\mu\text{g}$  とした。その結果、回収率が低く、現状では実試料分析に適用できない。実用化のためには、今後、担体量を増やすなどの検討の必要がある。

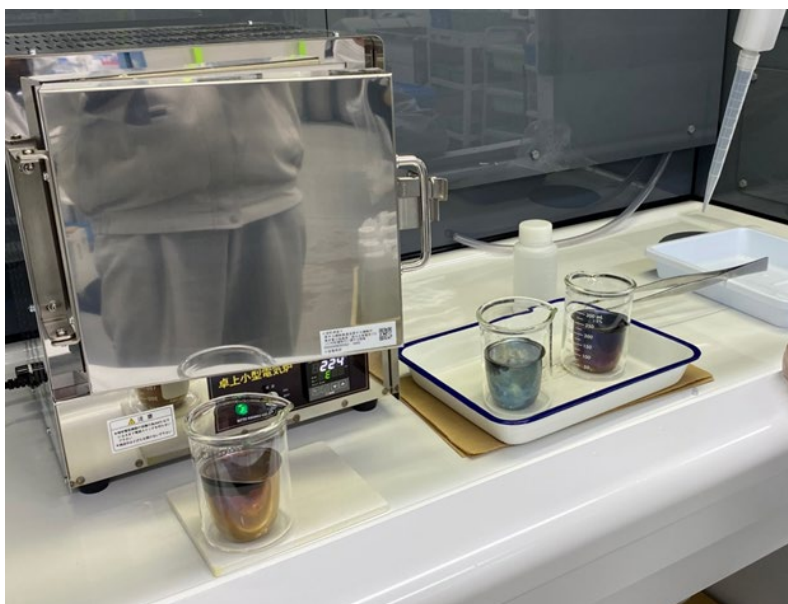


図 2.1.1.2-1 アルカリ溶融試験後の Ni ルツボの外観写真

### 2.1.1.3 ろ紙の灰化・酸分解及び化学分離試験

#### (1) 緒言

有機物を含む試料の場合、有機物が化学分離の効率を低減させる恐れがあるため、電気炉で加熱して有機物を二酸化炭素と水に分解して除去する手法が採用される。ろ紙試料においても主成分が有機物となるため、電気炉加熱による有機物の除去を行うこととし、本手法の適用性を確認した。

#### (2) 実験法

##### 灰化・溶解試験

3つのスミヤろ紙(アドバンテック製スミヤ法濾紙、杓子型、No.63)をそれぞれ石英ビーカーに入れた。そのうちの2つに1000 ppmのCo, Sr, Mo, Ru, Sb, Cs, Eu, Reの各標準液(富士フィルム和光製)各10 µlをろ紙に染み込ませた。また、1000 ppmのIを含むKI溶液及びKIO<sub>3</sub>溶液も調製し、他の元素を染み込ませたろ紙に染み込ませた。KI溶液を添加した試料をS1、KIO<sub>3</sub>溶液を添加した試料をS2とした。1つのろ紙試料はブランク試料とした。この時、添加量と等量の標準液を1 M HNO<sub>3</sub>で希釈した溶液も調製した。石英ビーカーに時計皿でふたをし、電気炉に入れて450℃で1時間加熱した。電気炉から取り出して放冷後、残渣にHNO<sub>3</sub>とH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>を添加し、ホットプレート上で加熱して残渣を溶解した。乾固直前まで蒸発させた後、1 M HNO<sub>3</sub>で溶解し、5 mlの溶解液とした。溶解液を希釈してICP-MS(パーキンエルマー製、ELAN-DRC)で元素濃度を測定し、添加量と比較して回収率を求めた。

##### 化学分離試験

上記のろ紙の溶解液に対して昨年ドレン水に含まれる<sup>90</sup>Srと<sup>99</sup>Tcを分離した化学分離スキームを適用し、化学分離が問題なく行えることを確認した。

### (3) 結果

ろ紙灰化後の溶解液における各元素の回収率を表にまとめた。I は加熱により大部分が揮発し、KI では 4%、KIO<sub>3</sub> では 8% しか溶解液中に残っていないことが分かった。また、Ru や Sb も 50% ほどの回収率となった。一方、Co、Sr、Cs、Eu、Re は定量的に回収できることが分かった。Mo は 89% ほど回収できることが分かった。

表 2.1.1.3-1 ろ紙の灰化・酸分解後の溶解液における各元素の回収率(%)

回収率	Co	Sr	Ru	Sb	Cs	Eu	Re	I	Mo
S1	100	100	49	48	97	99	94	4	88
S2	92	97	52	51	98	97	93	8	89

ろ紙の溶解液を用いて Sr レジンによる化学分離試験を行った結果、回収フラクションにおける Sr の回収率は 90±5% であり、ろ紙試料に対してもドレン水で用いた Sr の分離法が適用可能であることが確認された。

ろ紙の溶解液を用いて TEVA レジンを用いた化学分離を行った結果、回収フラクションにおける Re の回収率は 104±2% となり、ろ紙試料に対してもドレン水で用いた Tc の分離法が適用可能であることが確認された。しかし、質量数 99 の同位体を持つ Ru についても Tc の回収フラクションに混入することが分かり、Ru が多量に含まれる試料において質量分析で定量する場合には注意が必要であることも分かった。ただし、Ru 含有量が少ない試料や測定を液体シンチレーションカウンタで行う場合は問題ない。以上のことから、スミヤろ紙の分析に灰化・酸溶解とドレン水で使用した化学分離法が適用可能であることが分かった。そこで、本手法を 1F プラント内で採取されたスミヤ試料の分析に適用した (3.1.1.3(4)参照)。

## 2.1.2 β線スペクトロメータによる <sup>90</sup>Sr 分析手法の検討

### (1) 緒言

1F 試料の分析では、放射能の大部分は放射性セシウムに起因しており、<sup>90</sup>Sr 含有量は少ないことから、<sup>90</sup>Sr を定量するためには、試料を溶液化し、溶液から <sup>90</sup>Sr を分離・精製する必要があった。γ線分析において検出された <sup>60</sup>Co、<sup>125</sup>Sb、<sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs が放出する β線と比べ、<sup>90</sup>Sr の子孫核種である <sup>90</sup>Y が放出する β線のエネルギーは高いため、適切にエネルギー範囲 (ROI) を設定して β線スペクトロメータを用いて <sup>90</sup>Y を分析することで、<sup>90</sup>Y と放射平衡にある <sup>90</sup>Sr を試料の溶液化や化学分離なしに定量できる可能性がある。そこで、<sup>137</sup>Cs と <sup>90</sup>Sr を含む試料の β線スペクトルを取得し、<sup>90</sup>Sr の定量性を検討した。

### (2) 実験法

10 Bq の <sup>90</sup>Sr のみを含む単独線源、2 Bq 及び 100 Bq の <sup>137</sup>Cs の単独線源と、10 Bq の <sup>90</sup>Sr に対して 2、10、100 Bq の <sup>137</sup>Cs を含む混合線源を調製し (計 6 線源)、β線スペク

トロメータによりβ線スペクトルを取得した。図 2.1.2-1 に単独線源、図 2.1.2-2 に混合線源のβ線スペクトルを示す。図 2.1.2-1 に示すとおり、 $^{137}\text{Cs}$  単独のスペクトルではチャンネル数（エネルギーと相関）が 250 以上のところではほとんど計数（カウント数の合計）がないのに対し、 $^{90}\text{Sr}$  では 320 付近まで計数がある。また、図 2.1.2-2 に示すとおり、混合線源のスペクトルでは  $^{137}\text{Cs}$  の放射能の増加に比例して 250 以下のところの計数が上がっていくが、250-320 チャンネルの範囲では  $^{90}\text{Sr}$  に起因する計数のみで一定している。そこで、250-320 チャンネルの計測により  $^{137}\text{Cs}$  共存下での  $^{90}\text{Sr}$  の定量が可能か検討を行った。

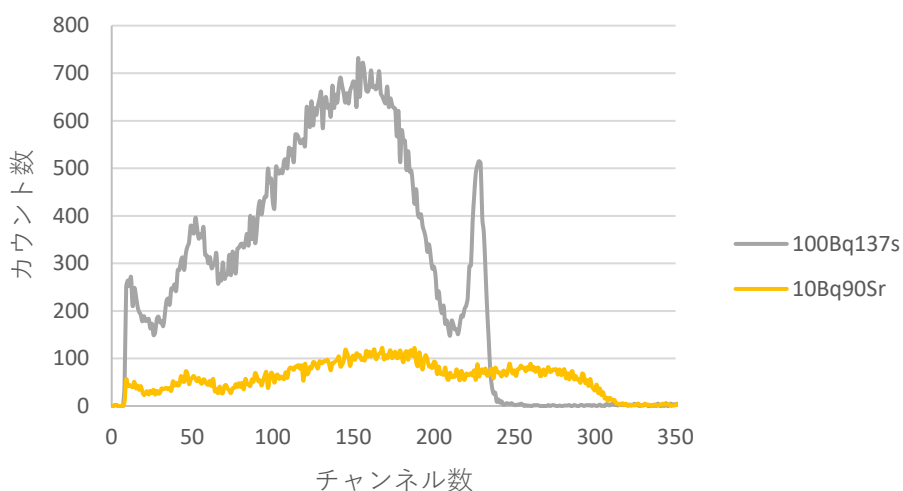


図 2.1.2-1  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の単独線源のβ線スペクトル

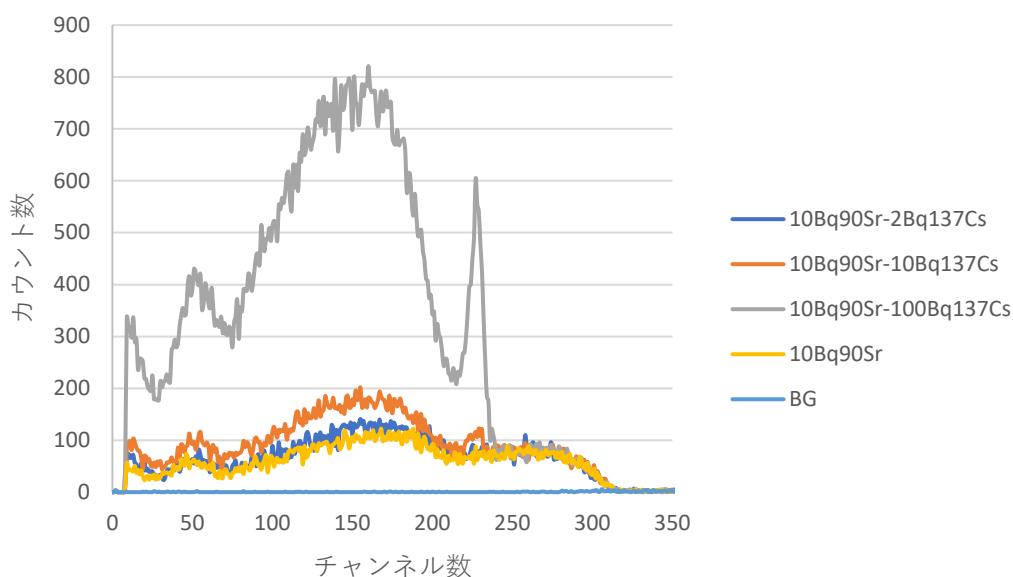


図 2.1.2-2  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の混合線源のβ線スペクトル

表 2.1.2-1 に各線源の 250-320ch の 3600 秒測定における計数をまとめた。250-320 チャンネルにおける混合線源の計数は 3833~3883 とほぼ一定で、 $^{90}\text{Sr}$  単独の計数である 3752 と同程度の値となったことから、本手法により  $^{90}\text{Sr}$  を定量できる可能性が示された。今後は  $^{90}\text{Sr}$  に対し  $^{137}\text{Cs}$  や  $^{134}\text{Cs}$  が何倍程度まで定量可能かを検討する。

また、スミヤ試料などでは天然放射性核種も含まれる可能性があるが、トリウム系列の  $^{212}\text{Bi}$  やウラン系列の  $^{234}\text{Pa}$  や  $^{214}\text{Bi}$  の  $\beta$  線がそれぞれ 2.07、2.269、3.27MeV であるため、定量が難しくなる可能性がある。しかし、 $^{90}\text{Sr}$  と比べ存在量が少なければ問題ないと考えられるため、量比と影響について検討する必要がある。

表 2.1.2-1  $^{90}\text{Sr}$  を含む線源の計数

線源	250-320ch の計数
10 Bq $^{90}\text{Sr}$ – 2 Bq $^{137}\text{Cs}$	3833
10 Bq $^{90}\text{Sr}$ – 10 Bq $^{137}\text{Cs}$	3883
10 Bq $^{90}\text{Sr}$ – 100 Bq $^{137}\text{Cs}$	3861
10 Bq $^{90}\text{Sr}$	3752



### 2.1.3 Tc-99 の分析手法の検討

#### (1) 緒言

$^{99}\text{Tc}$  の半減期は  $2.111 \times 10^5$  年と比較的長いため、液体シンチレーションカウンタによる  $\beta$  線測定その他、質量分析による定量も比較的良好に行われている。検出下限値は測定条件によるが、液体シンチレーションカウンタによる測定では数 mBq～数十 mBq 程度、最新の質量分析計では ppt オーダーであると考えられる。例えば、ドレン水の分析における  $^{99}\text{Tc}$  の検出下限値であった  $0.012 \text{ Bq}$  は  $1.9 \times 10^{-11} \text{ g}$  に相当する。質量分析計では 2 ml 程度の試料量が必要であるとする、 $9.5 \times 10^{-12} \text{ g/ml}$ 、つまり、9.5ppt に相当し、妨害元素 ( $^{99}\text{Ru}$ 、 $^{59}\text{Co}$ 、 $^{40}\text{Ar}$ 、 $^{87}\text{Sr}$ 、 $^{12}\text{C}$ 、 $^{87}\text{Rb}$ 、 $^{12}\text{C}$ 、 $^{51}\text{V}$ 、 $^{16}\text{O}_3$ 、 $^{98}\text{Mo}^1\text{H}$ ) の影響を受けなければ、定量できる可能性がある。

1F 事故由来の試料を分析する場合、放射性 Cs の放射能レベルが極めて高いため、予めリンモリブデン酸アンモニウム(AMP)により Cs を除去する手法が広く使用されている。しかし、AMP から Mo が溶出するため、 $^{98}\text{Mo}^1\text{H}$  の生成が  $^{99}\text{Tc}$  の定量に影響する可能性がある。そこで模擬試料を AMP で処理した後の溶液への Mo の溶出量を調べ、質量数 99 のバックグラウンドを ICP-QQQ(Agilent 社製、Agilent8900)で測定して  $^{98}\text{Mo}^1\text{H}$  の影響の有無を確認した。

また、ICP-QQQ(Agilent 社製、Agilent8900)を用いた同重体の分析では、1 段目の四重極質量分析計で特定の質量数の同重体を透過させたのち、リアクションセルにおいて特定の核種のみ酸化物等にして異なる質量数にし、2 段目の四重極質量分析計で分離・分析する ICP-MS/MS 分析が可能である。例えば、 $^{99}\text{Tc}$  と同じ質量数の  $^{99}\text{Ru}$  は 1 段目の四重極質量分析計では分離することができないが、リアクションセルでの Tc と Ru の反応が異なっていれば、2 段目の質量分析計で分離して別々に定量することができる可能性がある。そこで、基礎検討として Mo、Tc、Ru に対して  $\text{O}_2$  ガスをリアクションセルで反応させた場合の生成物を調べた。

#### (2) 実験法

##### AMP による Cs 除去

金属標準液から 5  $\mu\text{g}$  相当の Co、Se、Sr、Ru、Rh、Sb、Cs、Eu、Re を含む 2 M  $\text{HNO}_3$  溶液および Cs を含む 2 M  $\text{HNO}_3$  を 5 ml 調製し、これに 0.02 g の AMP を添加して 1 時間マグネチックスターラーで攪拌した。孔径 0.45  $\mu\text{m}$  のシリンジフィルターで AMP をろ過し、ろ液を回収した。ろ液にさらに 5  $\mu\text{g}$  相当の Cs を添加した後、さらにもう一度 0.02 g の AMP を添加して 1 時間攪拌し、シリンジフィルターでろ過した。

##### TEVA レジンによる Re の分離

超純水で膨潤させた 0.5 ml の TEVA レジン(アイクロム社製)をカラムにつめ、5 ml の 1 M  $\text{HNO}_3$  を通液してコンディショニングを行った後、上述の AMP 処理後のろ液 2.5 ml に超純水を 2.5 ml 加えたものを試料として導入した。通液試料を入れていた容器を 0.5 ml の超純水で 3 回洗浄し、洗液も通液した。2.5 ml の超純水で 4 回カラムを洗浄した後、1.5 ml の 8 M  $\text{HNO}_3$  を通液して Re を回収した。

AMP 処理後のろ液や TEVA レジン通液後の Re 回収液を適宜希釈し、各試料に含まれる Co、Se、Sr、Mo、Ru、Rh、Sb、Cs、Eu、Re を ICP-QQQ(Agilent 社製、Agilent8900)で測定した。

リアクションセルでの生成物の確認

Mo と Ru の金属標準液(富士フィルム和光純薬製 1000 µg/ml)と <sup>99</sup>Tc 放射能標準液(210 Bq/g、相対拡張不確かさ 3.1%、校正基準日 2020/8/17、TC050)から、それぞれの元素濃度が 1 ppb の 1 M HNO<sub>3</sub> 溶液を調製した。リアクションセルに O<sub>2</sub> ガスを 0.1~1 ml/min まで 0.05 ml/ml 刻みで流して反応させながら、以下の質量数を測定した。

表 2.1.3-1 測定試料溶液と測定対象質量数

試料	測定質量数
1 ppb Mo	95、99、111(95+16)、127(95+16×2)、143(95+16×3)、159(95+16×4)
1 ppb <sup>99</sup> Tc	99、115(99+16)、131(99+16×2)、147(99+16×3)、163(99+16×4)
1 ppb Ru	99、115(99+16)、131(99+16×2)、147(99+16×3)、163(99+16×4)

(3) 結果

AMP 処理後の溶液中の Mo 濃度は 64±18 ppm であり、無視できない量の Mo が AMP から溶出することが分かった。その後の TEVA レジンを用いた分離で Tc 回収液に混入する Mo は 1.5±0.3% であり、大部分が除去されるが、それでも回収溶液中には数百 ppb オーダーの Mo が含まれることが分かった。

表 2.1.3-2 に AMP 処理前の元素量に対する AMP 処理後の元素量の百分率(残存率)と TEVA レジン通液前溶液に対する各元素の回収率(%)を示す。

表 2.1.3-2 AMP 処理による各元素の残存率(%)と TEVA レジン分離後の Tc 回収液中への各元素の回収率(%)

	Co	Se	Sr	Ru	Rh	Sb	Cs	Eu	Re
AMP	92	89	94	92	91	52	ND	91	85
TEVA	ND	ND	ND	0.97	0.005	0.1	ND	ND	104

Tc の ICP-MS における妨害元素のうち、<sup>59</sup>Co<sup>40</sup>Ar と <sup>87</sup>Sr<sup>12</sup>C を生成する可能性がある Co と Sr に関しては TEVA レジンによる分離で除去されることが確認できた。ただし、少量の Co や Sr が測定試料に混在した場合に有意な量の分子イオンが生成しないことを確認する必要はある。

<sup>99</sup>Ru の天然同位体比は 12.76% であり、TEVA レジンを用いた分離により Ru は 1/100 ほどまで減少するが、元の試料に含まれる Ru の量が <sup>99</sup>Tc よりも数百倍以上多い場合には測定に対して有意な <sup>99</sup>Ru が混入すると考えられる。例えば、1 ppm の Ru が元の試料に含まれていた場合、約 1.3 ppb の <sup>99</sup>Ru が回収液に混入するため、数 Bq/ml オーダーの <sup>99</sup>Tc の分析には影響する。

Csのみを含む試料を用いた一連の試験のTc回収溶液に対して質量数99を測定したところ、有意な計数がなかったことから、MoHの生成は少なく、Moの影響は小さいことが確認された。

図2.1.3-1にセルガス中のO<sub>2</sub>ガス流量を変化させたときのMoとTc、Ruの各酸化物の存在率を示す。

MoはO<sub>2</sub>ガス流量の増加と共に急激にMo<sup>+</sup>の存在率が低下し、0.3 ml/mlをこえると95%以上がMoO<sub>2</sub><sup>+</sup>となった。MoO<sup>+</sup>の生成はO<sub>2</sub>ガス流量が0.1 ml/minにおける14%をピークに減少し、0.3 ml/min以上のところでは2%以下であった。MoO<sub>3</sub><sup>+</sup>の生成は全体を通じて0.2%以下であった。

TcはO<sub>2</sub>ガスによりあまり酸化されず、O<sub>2</sub>ガス流量が0.2 ml/min以上でも77%以上がTc<sup>+</sup>のままであった。生成する酸化物はO<sub>2</sub>ガス流量によって変わり、流量が0.1 ml/min程度ではTcO<sup>+</sup>が主な酸化物であったが、O<sub>2</sub>ガス流量が0.2 ml/min以上ではTcO<sub>2</sub><sup>+</sup>が主な酸化物になった。また、O<sub>2</sub>ガス流量が増加するにつれTcO<sub>4</sub><sup>+</sup>の比率が徐々に増えた。Moが妨害となる場合は、O<sub>2</sub>ガスによりMoを酸化物にすることで水素化物の生成を抑え、Tcと分離できると考えられる。

RuはO<sub>2</sub>ガスによりあまり酸化されず、O<sub>2</sub>ガス流量が0.2 ml/min以上でも92%以上がRu<sup>+</sup>のままであった。生成する酸化物は主にRuO<sup>+</sup>であり、6%ほどであった。O<sub>2</sub>ガス流量が0.2 ml/minの時のRuO<sub>2</sub><sup>+</sup>の生成は0.3%以下であった。

TcとRuはいずれも酸化されにくい、O<sub>2</sub>ガス流量が0.25 ml/minの時、Tcは17.8%がTcO<sub>2</sub><sup>+</sup>になるのに対し、RuO<sub>2</sub><sup>+</sup>の生成は0.3%以下であるので、試料条件によっては適用可能であると考えられる。

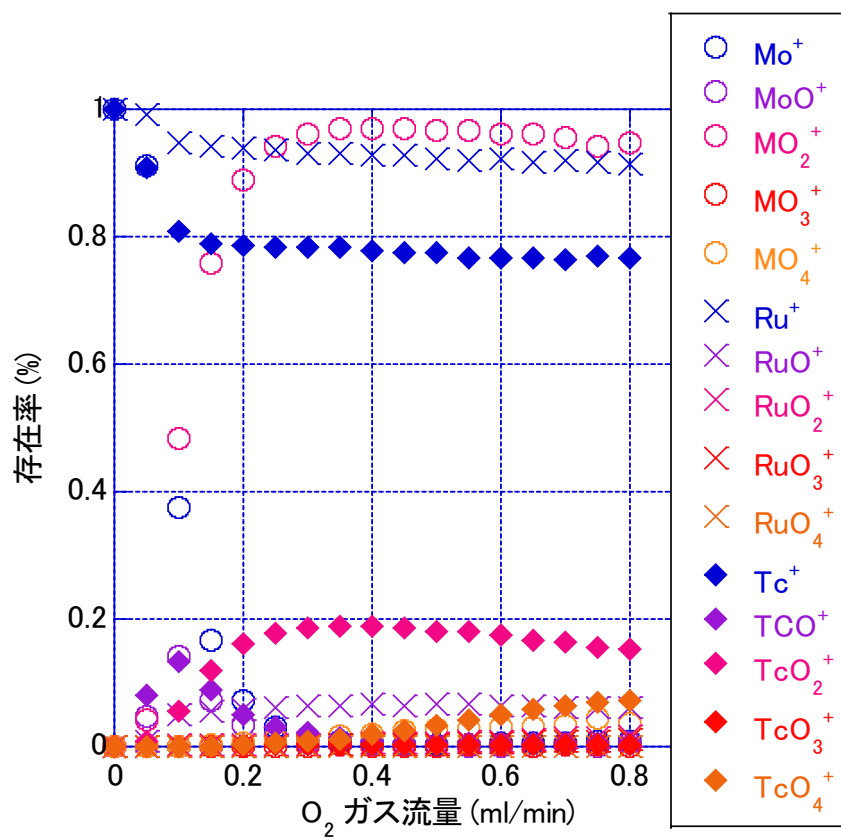


図 2.1.3-1 Mo、Tc 及び Ru の各酸化物の存在率と  
リアクションセルの O<sub>2</sub> ガス流量の関係

## 2.1.4 イメージングプレート読み取り装置および分析手法の整備

### 2.1.4.1 緒言

1F プラント内から採取したスミヤク紙やコンクリート片などの固体試料の放射性核種分析にあたり、試料の調整を行うためには、試料中の放射能分布を把握する必要がある。そこで、放射性同位元素 (RI) を用いた生物体内のトレーサー位置を把握するためのオートラジオグラフィ等に用いられる [2.1-4]、イメージングプレート (IP) 分析法を用いることとした。IP 分析法は、放射線が当たると電子が励起されることにより放射線情報が蓄積記録されるプレートを用いて、試料内の RI の局在位置を視覚的に確認可能な放射線検出法であり、1F プラント内試料の放射能分布の把握についても適用可能であると考えられる。

### 2.1.4.2 分析原理および装置概要

IP 分析の原理を図 2.1.4-1 に示す [2.1-5]。IP は有機フィルムの上に放射線 ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  線) に感度がある輝尽性蛍光体のバリウムフッ化ハイライド ( $\text{BaFBr}:\text{Eu}^{2+}$ ) を高密度で塗布したプレートである。放射線を露光すると蛍光体が励起され、放射線情報が蓄積記憶される。放射線情報が蓄積記憶されたプレートを読み取り装置にセットし、表面にレーザーを照射すると放射線情報に応じた発光があり、IP に記録された潜像が 2 次元画像 (IP 画像) として得られる。読み取り後の IP は消去機 (イレイサー) 内にセットし、可視光を照射することで、励起したすべての蛍光体が基底状態に戻るため、IP の記録情報を完全に消去すること (初期化) が可能である。

整備した装置の外観を図 2.1.4-2 に示す。本研究で用いた読み取り装置 (Typhoon scanner IP) の仕様は、光源波長 635 nm、読み取り階調数 65,536 階調 (16 bit)、ダイナミックレンジ 5 桁である。また本研究で使用した IP の仕様は、大きさ 20 × 25 cm、画素分解能 50  $\mu\text{m}$  以上 100  $\mu\text{m}$  以下である。

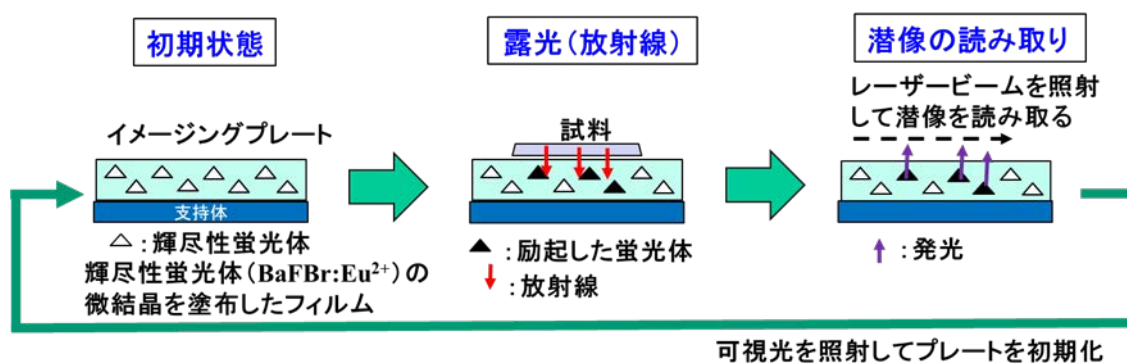


図 2.1.4-1 イメージングプレートによる放射能分布分析の概要



図 2.1.4-2 イメージングプレート (IP) 読み取り装置およびイレイサーの概観

#### 2.1.4.3 露光時間および試料と IP との距離の影響の検討

IP 分析を行う際には、適切な露光時間を設定する必要がある[2.1-6]。 $^{137}\text{Cs}$  を主たる放射線源とする 1F プラント内試料を分析する際の露光時間を設定するため、線量が既知の 1F 試料 (1 号機及び 2 号機共用スタック基部ドレンサンプル水を浸透させたろ紙線源 ( $1.5 \times 10^3$  Bq) [2.1-7]に対して、露光時間を変化させて IP 画像を取得するとともに、放射エネルギーと露光時間の積算放射エネルギーを用いた解析を行った。IP 画像の個々のピクセルのデータは、読み取り画素サイズ  $50 \mu\text{m}$ 、ダイナミックレンジ (5 桁)、濃度諧調 (16 bit) で読み取った潜像を対数圧縮した QL (Quantum Level) 値として保存される。解析においては、QL 値を放射線量に比例した値にするために、以下の式 (2.1.4-1) で PSL (Photo Simulated Luminescence) 値に換算する必要がある[2.1-6]。

$$\text{PSL} = \left( \frac{\text{Psize}}{100} \right)^2 \times \frac{4000}{S} \times 10^{L \times \left( \frac{\text{QL}}{2^B} - \frac{1}{2} \right)} \quad \dots \text{式 (2.1.4-1)}$$

ここで、Psize は読み取り画素サイズ ( $50 \mu\text{m}$ )、S は IP の感度設定値 (4000)、L は QL 値のダイナミックレンジ (5 桁)、B は濃度諧調設定値 (16 bit) を表す。

QL 値から PSL 値への変換は、IP 読み取り装置の付属の画像解析ソフト Image J により行った。IP 画像を図 2.1.4-3 に、積算放射エネルギー (放射エネルギー (Bq) と露光時間 (分) の積) と PSL 値合計の相関を図 2.1.4-4 に示す。IP 画像は、露光時間 10 分以上では濃淡が大きく変化していないものの (図 2.1.4-3)、PSL 値合計は、露光時間 10 分に相当する 15000 (Bq・min) 以上の積算放射エネルギーの領域でも増加を示している (図 2.1.4-4)。なお、PSL 値の上限を超えると、放射線情報がそれ以上記録されなく、放射能分布を正確に把握できない恐れ

があるが[2.1-8]、それぞれの測定で得られた最大 PSL 値 (0.77~1.5) は PSL 値の上限値 (79.046) よりも小さい値であった。以上から、放射能分布を把握するためには、IP 画像の濃淡が得られ、最大 PSL 上限を超えていない露光時間として 10 分、すなわち、積算放射エネルギーとして 15000 (Bq・min) が適切であると判断した。この積算放射エネルギーにより、試料の放射エネルギーに応じた露光時間を以下の式により設定可能である。

$$\text{露光時間 (分)} = 15000 \text{ (Bq・分)} \div \text{試料の放射エネルギー (Bq)} \cdots \text{式 (2.1.4-2)}$$

1F スミヤ試料の分析においては、式 (2.1.4-2) から放射エネルギー ( $2 \times 10^2 \sim 4 \times 10^6$  Bq) に応じ、 $2 \times 10^2 \sim 10^3$  Bq の試料は 120 分、 $10^3 \sim 10^4$  Bq の試料は 10 分、 $10^4 \sim 4 \times 10^6$  Bq の試料は 1 分の露光時間を設定することとした。

2 号機原子炉建屋内のスミヤ試料は図 2.1.4-5 のように、ポリエチレン製の袋の他にシャーレ (厚さ 約 2 mm) に封入されている。IP と試料を密着して露光しないと IP 画像の解像度が低下することが知られている[2.1-9]ものの、シャーレを開封せずに測定できれば簡便であり、かつ作業時の汚染拡大のリスクを低減できる。そこで、シャーレと同等の厚さ (2 mm) のプラスチックケースを用いて、シャーレにより生じる距離の IP 画像への影響を検討した。検討の際、シャーレに封入されていない 3 号機 SGTS B 系のスミヤ試料 (U3SGF-B6-1) を用いた。U3SGF-B6-1 試料は汚染拡大防止のため厚さ 0.04 mm のポリエチレン製の袋に封入された状態であり、袋入りの試料を IP に接触させた場合と間に 2 mm のケースを挟み測定した場合について、それぞれ 1 分で露光した。得られた IP 画像を図 2.1.4-6(a) 及び(b)に示す。ケース無の場合は粒子状の放射能分布を把握可能であるが、ケース有の場合は把握が困難なほど IP 画像が不明瞭になることが分かった。さらに、ケース有の状態でも 10 分間露光を試みたところ、得られた IP 画像 (図 2.1.4-6(c)) はケース無の状態 (図 2.1.4-6(a)) よりも不鮮明ではあるが、画像の濃淡 (放射能分布) は概ね把握可能であった。

以上から、スミヤ試料を IP 分析する際は、シャーレを取り除き、汚染拡大防止のためのポリエチレン製の袋 (0.04mm 程度) のみに封入することとした (3.1.1.3(3)参照)。なお、やむを得ず数 mm 程度の距離が生じる場合でも、露光時間を長く取る事でおおよその放射能分布を把握する事が可能であると考えられる。

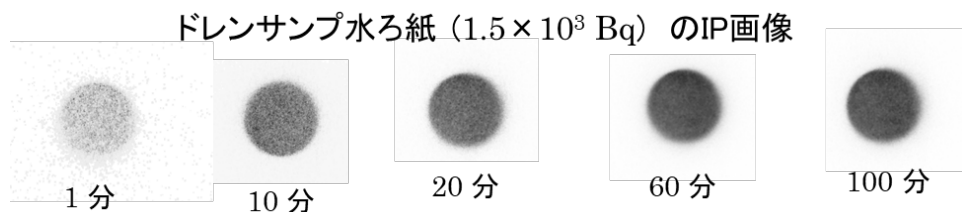


図 2.1.4-3 ドレンサンプル水ろ紙の露光時間の違いによる IP 画像の変化

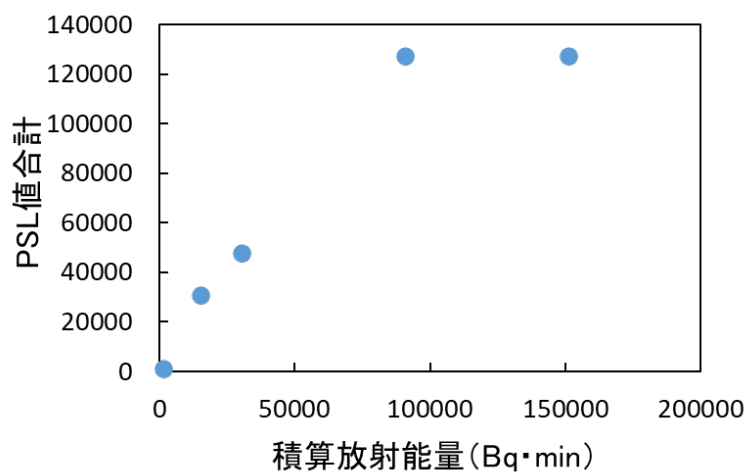


図 2.1.4-4 積算放射エネルギーに対するドレンサンプル水ろ紙の PSL 値合計

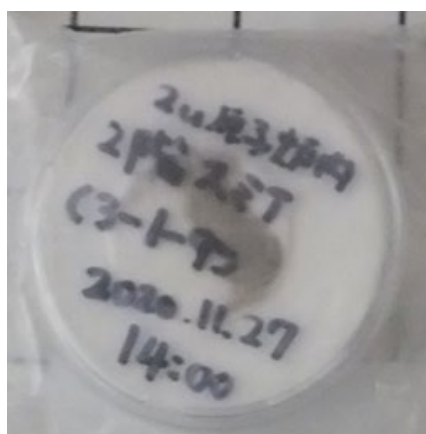


図 2.1.4-5 2号機原子炉建屋内のスミヤ試料を封入しているシャーレ外観

(a): ケース無、露光 1 分      (b) : ケース有、露光 1 分      (c) : ケース有、露光 10 分

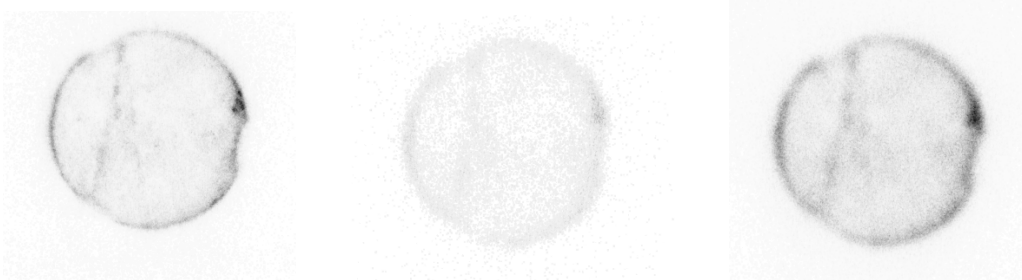


図 2.1.4-6 U3SGF-B6-1 ( $2.4 \times 10^5$  Bq) を用いた IP と試料の距離 (ケースの有無) による IP 画像の差



#### 2.1.4.4 固体状サンプル調整の検討

これまでに 1F からコンクリート瓦礫やスミヤ試料を受け入れて非破壊試験や溶解試験等の分析を実施してきた。試料に切断等の加工を施すことで、バルクの情報だけでなく断面情報も得ることができ、放射能分布状態をより正確に把握することができる。しかしながら、試料を切断等の加工をする際には粉末の飛散を伴うため、これらの調整作業はフードではなくグローブボックス等の密閉性の高い環境で実施する必要がある。そこで、グローブボックス内で切断等の調整作業が実施できるようにグローブボックスの保守を実施した。

試験の一例として、3号機タービン建屋から採取したコンクリート瓦礫（建屋外壁と推測される青色塗装面を含む瓦礫）を切断した後のイメージングプレート（IP）の分析結果を図 2.1.5-1 に示す。本瓦礫試料は、2020年2月に3号機タービン建屋内で採取したものの一つで、青色塗装面を含むように約 15mm サイズに切り出したものである。Ge 分析で約  $10^5$  Bq オーダーの  $^{137}\text{Cs}$  が確認されている。IP 結果より、青色塗装面と塗装裏面（切断面）を比較すると、青色塗装面の放射能強度が高く、さらに元々表面であった面（オリジナル面）においても高い強度を示した。放射能分布状態は、試料表面に対して均一というよりは局所的に付着している様子が観察された。側面（切断面）の結果より、放射性核種は表面層に付着しており、コンクリート内部に浸透しないように見えた。なお、本瓦礫試料は、3号機タービン建屋で事故から採取日まで風雨にさらされていたことから、事故当時の環境は維持できていないと考える。今年度は2号機原子炉建屋内のスミヤ試料を中心に分析試験を実施しており、今後コンクリート瓦礫や金属瓦礫等の多様な試料形状を調整する際にも活用される

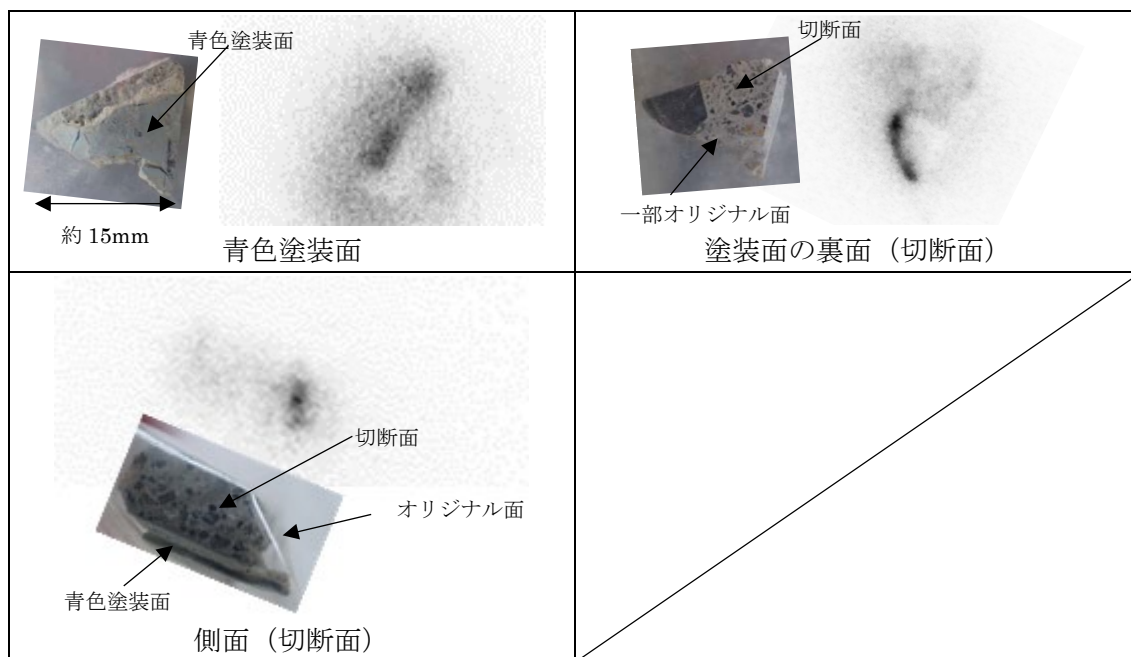


図 2.1.5-1 瓦礫切断後のイメージングプレート（IP）の分析結果

### 2.1.5 まとめ

スミヤ試料における核種分析手法の整備のため、ガス追気法及びアルカリ溶融法による I 分析手法、I 以外の対象核種分析のためのスミヤろ紙灰化・酸溶解法、β線スペクトロメータによる  $^{90}\text{Sr}$  定量の簡易化、および ICP-QQQ を用いた Tc 測定法の高度化について検討を行った。また、イメージングプレートを用いたスミヤ試料内の汚染分布確認手法の整備を行った。具体的には以下の通りである。

ガス追気法では、反応溶液として  $\text{HNO}_3+\text{H}_2\text{O}_2$  を用いた場合に、初期 I 量の 70%ほどがトラップ溶液に捕集できるが 30%ほどが反応容器に残る結果となった。反応容器中の I をすべて揮発させる条件の検討と、反応溶液として用いた酸も含まれているトラップ溶液中の I を正確に定量する手法を開発することが課題として残った。

アルカリ溶融法では測定器への負担を軽減することを目的に I の量を  $1\ \mu\text{g}$  として実験したが、回収率が低い結果となった。また、I の化学形による影響を調べるため、KI と  $\text{KIO}_3$  で実験を行ったが、回収率に有意な差がみられず、酸化還元電位の低いアルカリ中で溶融されることで  $\text{IO}_3^-$  は  $\text{I}^-$  に還元されたと考えられる。実試料を分析するためには回収率を上げる必要があり、そのためには担体量を増やすなどの検討の必要があると考えられる。

I 以外の核種分析のために、灰化・酸溶解法を検討した。スミヤろ紙を電気炉で灰化した後、 $\text{HNO}_3+\text{H}_2\text{O}_2$  で溶解した結果、Co、Sr、Cs、Eu、Re、Mo は 89%以上が酸溶液中に回収できることが確認された。また、その酸溶液を用いて Sr と Re の化学分離を行った結果、90%以上の回収率が得られたことから、スミヤろ紙に対して灰化・ $\text{HNO}_3+\text{H}_2\text{O}_2$  で溶解による前処理法を適用可能であることを確認できた。そこで、本手法を 1F プラント内で採取されたスミヤ試料の分析に適用した (3.1.1.3(4)参照)。

放射性 Cs が多量に存在する試料に対して、β線スペクトル測定により簡易に  $^{90}\text{Sr}$  を定量する基礎検討を行った。その結果、100 Bq の  $^{137}\text{Cs}$  存在下で 10 Bq の  $^{90}\text{Sr}$  を定量できることが示された。今後は、その他の β線放出核種の影響や、量比について検討を進める必要がある。

ICP-QQQ を用いた Tc 測定法の高度化について検討を行った。Cs 除去のために AMP を用いると AMP から Mo が溶出し、化学分離後も Tc 測定用試料中に数百 ppb ほどの Mo が含まれたが、質量数 99 の計数値はバックグラウンドレベルであり、 $^{99}\text{Mo}^1\text{H}$  の生成は無視できることが確認できた。他方、元の試料に 1 ppm の Ru が含まれた場合、化学分離後の Tc 測定用試料に ppb オーダーの  $^{99}\text{Ru}$  が含まれ、妨害となることが分かった。リアクションガスとして  $\text{O}_2$  ガスを用いた ICP-MS/MS 分析では、Mo の大部分は  $\text{MoO}_2^+$  になることが確認されたが、Tc は 77%、Ru は 90%が酸化されずに  $\text{Tc}^+$  と  $\text{Ru}^+$  であることが分かった。Tc と Ru の主な酸化物は  $\text{TcO}_2^+$  と  $\text{RuO}^+$  であり、効率は低くなるが、生成する酸化物の違いを用いた分離ができるため、測定試料中の Tc と Ru の濃度条件によって液体シンチレーションカウンタとの使い分けが可能である。

イメージングプレート (IP) を用いたスミヤろ紙内の放射能分布確認のため、IP 読み取り装置を整備するとともに、1F 試料を対象とした分析条件の最適化を行った。放射エネルギーが分かっているろ紙試料を用いた分析を実施するとともに、分析結果から最適な積算放射エネルギーを算出し、これに基づきスミヤ試料の放射エネルギー ( $2\times 10^2 \sim 4\times 10^6$  Bq) に応じた適切な露光時間を決定した。また、試料と IP との距離については、試料と IP との間に 2 mm のケー

スがあると粒子状の放射能分布を把握できず IP 画像が不明瞭になることが確認されたことから、2号機原子炉建屋で採取されたスミヤ試料は、シャーレから取り出して測定することとした(3.1.1.3(3)参照)。

今後、多様な試料形状に対応するために、切断等の調整作業ができるようにグローブボックスの保守を実施した。

#### 参考文献

- [2.1-1] 加藤千明、木内清、杉本克久、材料と化学、52, 44-52 (2003)
- [2.1-2] A. Shimada, K. Sakatani, Y. Kameo, K. Takahashi, J. Radioanaly. Nucl. Chem. 303(2), 1137-1140, (2015)
- [2.1-3] 原子力規制庁受託事業、令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(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)事業、日本原子力研究開発機構, (2021).
- [2.1-4] H. Ishibashi et al., RADIOISOTOPES, 59, 2, 75-79 (2010)
- [2.1-5] 吉岡ら、非破壊検査、第39巻、第8号、p667 (1990)
- [2.1-6] 佐川ら、JAEA-Technology 2010-051
- [2.1-7] 原子力規制庁受託事業、令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(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)事業、日本原子力研究開発機構, (2021).
- [2.1-8] 高崎ら、JAEA-Technology 2008-028
- [2.1-9] 石井ら、RADIOISOTOPES, 48, 441-449 (1999)

## 2.2 重大事故解析

### 2.2.1 目的

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、壁や床表面からサンプルを取ることも考えられることから、原子炉压力容器内のセシウムの化学挙動やウェットウェルプール内のヨウ素化学挙動を考慮できる THALES2/KICHE([2.2.1-1], [2.2.1-2])を用いて、原子炉建屋内ヨウ素及びセシウムの化学種ごとの沈着量のような参考情報を、重大事故解析を通じ得ることとした。本年度は次節に示すように THALES2 のエアロゾル挙動に関するパラメータの見直しを行ったことから、1号機から3号機までの再解析を行い、特に2号機については本事業の初年度に実施していること、及び原子炉建屋内調査の進捗から解析へのフィードバックがあることから再解析を行うとともに、感度解析を通じ格納容器損傷個所の影響等が原子炉建屋内FP沈着に及ぼす影響を調査した。

### 2.2.2 解析方法

THALES2/KICHEには原子炉冷却システム内でのセシウム等の化学挙動解析モデルが近年組み込まれたが、FP移行挙動に関する拡散係数等のパラメータが同一コード内で統一されていないことが明らかになったためこれを是正し、また、熱流動解析の安定性を目指し基本式のモデル化等について最適化を行い、加えて、プログラム上の最適化、バグ修正等を行った。このため、本事業においてはこの改良した THALES2/KICHE を用いた解析を行った。また、解析の実施においては、福島第一原子力発電所の原子炉建屋等の内部調査結果を参照に解析事故シーケンスへの反映を行った。

#### 2.2.2.1 1号機解析

1号機に関しては平成31年度に解析を実施したが、今回、以下の見直しを行った上で再解析を行った。まず、THALES2はMCCIによるコンクリートの浸食を過大評価する傾向があったことから、MCCI反応式やコンクリート熱分解に関連するパラメータの見直しを行った。一方、OECD/NEAのBSAF2計画[2.2.2-1]における解析結果の比較によると、原子炉压力容器（RPV）内の水素発生量についてTHALES2は参加機関の中でもっとも少ない400kgH<sub>2</sub>という結果を示した。この解析では、RPV内での水素発生に加え、下部ヘッド破損後の熔融燃料とペデスタル床とのMCCIにより建屋の水素爆発に見合う量の水素が生成していた。しかし、MCCIの過大評価に関するパラメータ見直しにより、水素発生量が大幅に減少する可能性が生じた。以上を考慮し、RPV内でより多くの水素が発生する事故進展を再検討することとした。BSAF2での解析ではSBOの発生及び直流電源の喪失により注水ができなかったため、移動式炉心計装装置（TIP）案内管が熔融温度に達し損傷することでRPV内水相が流出し、その後気相漏洩が生じる仮定に基づく解析を実施した。しかし、RPV内で水素を生じる要因は燃料被覆管のジルコニウムと高温の蒸気による反応であることから、この仮定では炉心付近の蒸気が流出してしまい、また、炉心領域への導管は炉心熔融に至るころには熔融物により閉塞している可能性があることから、TIP損傷個所による漏洩は一時的なものに限定される可能性があると考えられた。このため、

本年度の解析では TIP 損傷による RPV からドライウエル (D/W) への漏洩を仮定するのではなく、高温の蒸気が逃がし安全弁 (SRV) を通じてサブプレッションチェンバー (S/C) プールに導かれる際、SRV のガスケットが高温になり D/W への漏洩が開始[2.2.2-2]すると仮定した (THALES2 では SRV をモデル化していないため SRV 近傍のスチームドーム構造材温度が 450°C を超えたとき漏えいするとした)。さらに、炉心損傷に至る事故の場合はより高温の気体が通過するため、文献[2.2.2-3]における仮定を参考に、構造材温度が約 630°C に達すると漏洩箇所が拡張するとした。これらの仮定により、RPV 内での水素発生量が約 400kg から約 670kg と増える結果を得た。さらに、文献[2.2.2-4]を参考に、初期の D/W ヘッドフランジからの漏洩によりフランジボルトに変形が生じたという仮定を導入し、格納容器ベントの開始時及び停止時の圧力変化の再現性を向上させた。

以上の再検討に基づくスクラム発生から 150 時間までの解析結果を図 2.1 に示す。図では格納容器圧力の実測値と解析値との比較であるが、水素発生量や MCCI によるコンクリート浸食の範囲など解析に用いた仮定の根拠となるような結果を得ており、事故進展解析の精度は向上していると考えられる。なお、本解析結果は、ベント及び関連する配管内流動解析及び放射性物質分布解析 (3.2 項及び 4 章) の境界条件として提供した。

0.75MPa以上でDWヘッドフランジボルトの圧力による延伸により  
R/Bに漏洩が生じたと仮定 (0.75MPaを下回ると開口部が閉じる)

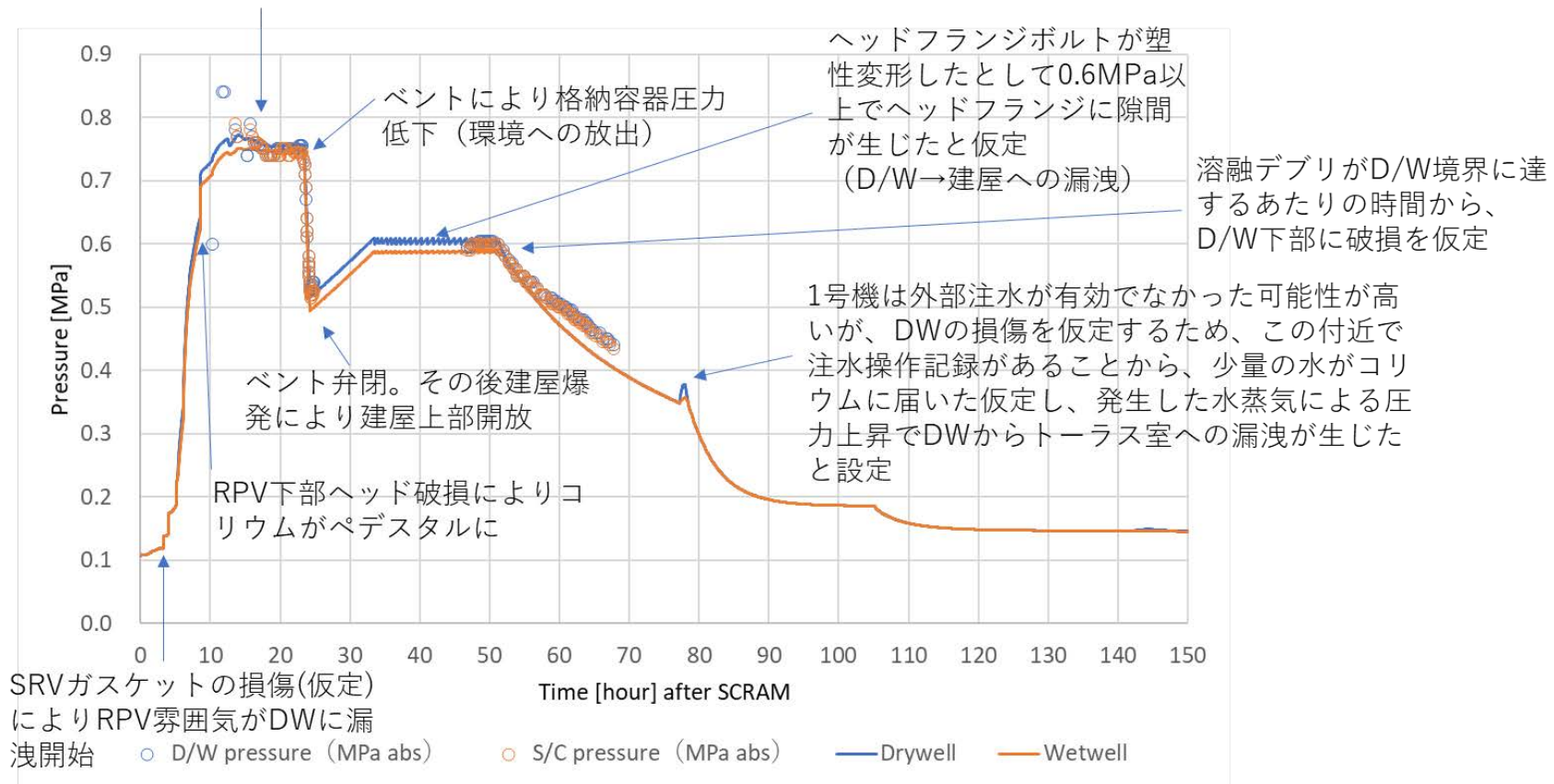


図 2.2.2-1 1号機解析結果 (格納容器圧力) と実測値との比較

### 2.2.2.2 3号機解析

昨年度の3号機解析における感度解析において、53時間付近のD/W圧力減少をRPV内水位の喪失によって水蒸気発生が抑えられることにより表現できることを示した。本年度はこのケースを基に、改良したTAHLES2への適合のためのパラメータサーベイに加え、解析時間を昨年度の70時間から150時間まで延長した。

パラメータサーベイは、高圧注水系(HPCI)及び代替注水の注水量、SRVガスケットの損傷面積や損傷のタイミング、D/Wヘッドフランジからの漏洩開始圧力を対象に実施した。パラメータサーベイに基づき設定した条件に基づいた格納容器圧力の解析結果を図2.2.2-2に示す。

本年度の解析では、原子炉建屋及び環境への漏洩量を評価指標としてパラメータの調整を行った。具体的な調整パラメータは、D/W内FPを原子炉建屋に同伴する流れを作る代替注水の流量や、D/Wヘッドフランジからの漏洩のタイミングである。1号機及び2号機ではD/Wヘッドフランジからの漏洩はボルトの延伸により0.75MPa付近から開始すると仮定している。3号機に関しても同様なメカニズムにより漏洩が生じると考えるが、同じ閾値ではD/W圧力の実測値を再現できない。そこで、昨年度と同様、自動減圧系

(ADS)の動作及び溶融燃料のリロケーションにより2回のスパイク状の高圧を経験したことでボルトが変形し、低圧条件で漏洩が生じるようになったと考えた。この仮定に基づき漏洩開始D/W圧力の感度解析を行った。なお、THALES2の解析モデルの制限のため複数の圧力依存漏洩量の設定ができないため平均的な挙動になるよう調整している。

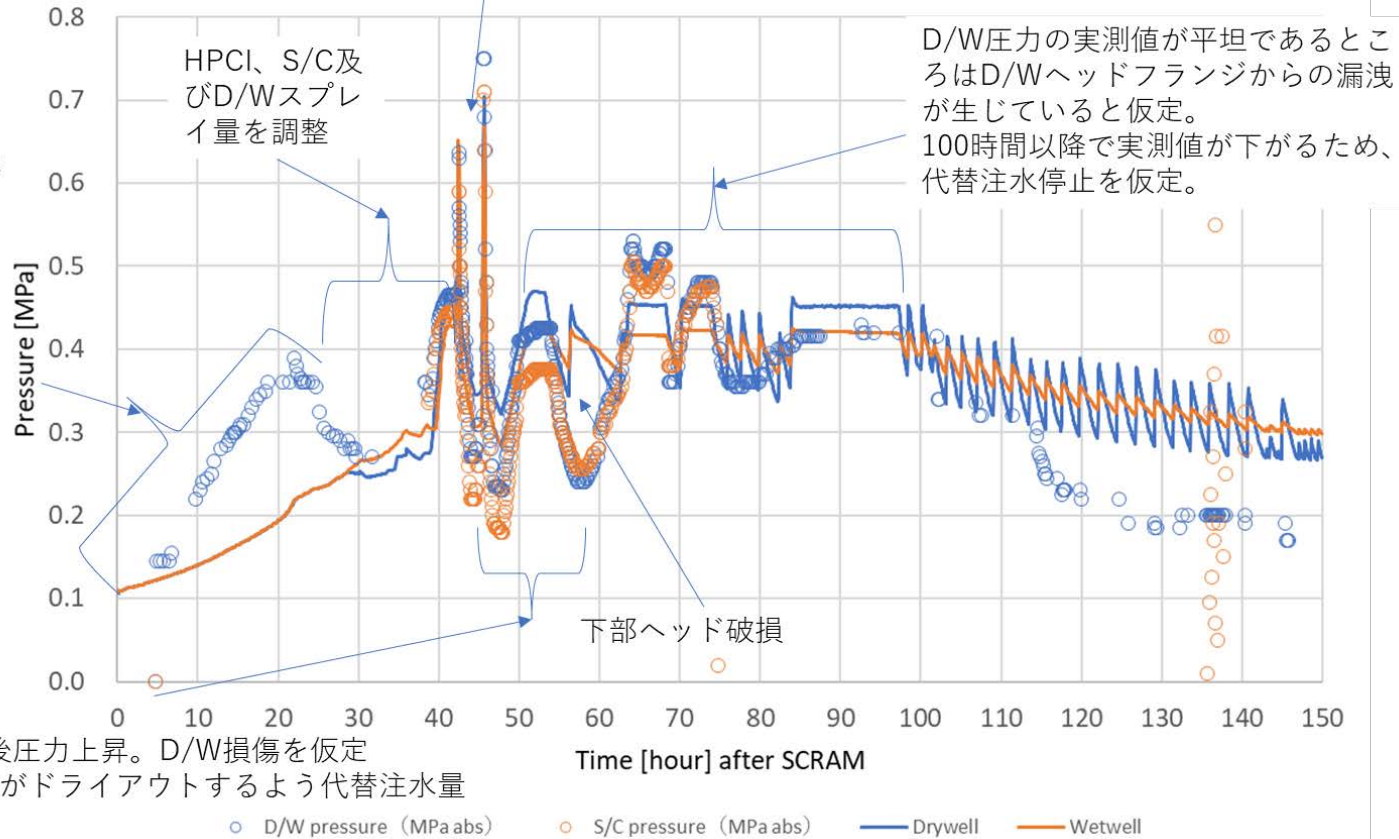
図2.2.2-2の格納容器圧力履歴において、解析結果は鋸状の挙動を示している。これは昨年度導入した仮定により以下の挙動を繰り返しているためである。

- ①コリウムに代替注水等の水が接すると圧力上昇を起し、注水の停止及びD/W内水をS/Cに押し戻す。
- ②コリウムの付近に水が無くなると水蒸気の生成が止まりD/Wの圧力低下を引き起こす。
- ③D/W圧力よりS/C圧力が高くなるとベント管を通じてS/Cの水がD/Wに流入する。
- ④S/Cより流入した水がコリウムに接触しD/W圧力を上昇させる。

今回の解析では、注水が継続している85時間から100時間付近まではコリウムと水の接触による水蒸気発生で圧力が上昇し、D/Wヘッドフランジからの漏洩により圧力が維持されている。100時間以降については、記録上注水が継続されているがD/W圧力は徐々に低下している。ここではベント弁の開操作などが無いことから注水停止を調整することでD/W圧力の低下を再現した。しかし実測データは解析結果より早く減圧していることからD/Wに新たに損傷が生じた可能性がある。今後、D/W損傷の発生個所やその規模、さらに発生メカニズムについての考察も含め感度解析を行う必要がある。

ADSによるRPVの減圧に伴いD/W圧力上昇。その後ベントで圧力低下。  
 外部からの注水も行いつつ、ベント弁閉に伴い再度D/W圧力上昇。その後2回  
 目のベント実施。以降のベント操作は失敗と仮定

この期間、RCICによる注水。蒸気の出口がS/C水位の上方のため成層化していると考えている。  
 (THALESのモデルの制限のため再現できず)



2回目のベント弁閉後圧力上昇。D/W損傷を仮定  
 55時間付近でRPV内がドライアウトするよう代替注水量  
 を調整

図 2.2.2-2 3号機格納容器圧力履歴結果



### 2.2.2.3 2号機解析

本年度実施した解析に用いた事故進展及び仮定について以下に記す。図 2.2.2-3 には THALES2 で用いたボリュームの分割図を示す。また、測定された 2 号機 RPV 及び格納容器の圧力履歴と THALES2 による解析結果を比較したものを図 2.2.2-4 及び図 2.2.2-5 に示す。

地震発生後、2 号機はスクラムにより正常に制御棒が挿入された。その後、原子炉隔離時冷却系 (RCIC) による冷却が開始された。津波がサイトに達したことにより非常用電源及び直流電源を失った。RCIC は蒸気駆動であるが、回転制御及び水位制御に直流電源を用いているため直流電源喪失時に機能を失うと考えられていた。しかし、測定された水位や RPV 圧力挙動を見ると、制御を失ったまま蒸気発生量に相当する流量で注水が行われていたと考えられる。注水により原子炉水位は主蒸気管高さにまで達し、主蒸気管を通じて水が RCIC 駆動タービンに移行することで注水量が減り、水位が下がると蒸気が主蒸気管を通じ RCIC 駆動タービンを回し注水量が回復するという挙動を繰り返していたと考えられている。本挙動について、BSAF において提供された時系列の蒸気量及び注水量テーブルを基に THALES2 で RPV 圧力履歴を再現するように調整した。

何らかの原因により注水量が低下してくると RPV 圧力は上昇を開始し、RCIC が停止したと思われる時刻から急激に RPV 圧力が上昇し SRV の開放圧である 7.5MPa に至った。RPV はしばらくこの圧力を維持し、外部からの注水の準備ができたことで手動による RPV の減圧操作が行われ RPV 圧力は低下した。

RPV 圧力の実測値の履歴をみると低下した後再び上昇に転じ、その後再度低下している。また、その後大きく 3 つの圧力ピークが生じている。最初の RPV 圧力低下の停止に関しては SRV が閉じたためとした。SRV が閉じたことにより圧力上昇は再現でき、その後の圧力低下に関しては SRV が一部開となったとして解析を行った。その後の 3 つの圧力ピークに関しては、SRV の操作記録と RPV 及び D/W 圧力の履歴から開閉のタイミングを得て、これを解析に反映した。THALES2 ではこの挙動を詳細には再現できなかったが、この期間に燃料溶融、下部プレナムへのリロケーションが生じたと考えられる。その後 RPV からの水蒸気及び水素の移行により格納容器圧力は上昇し約 0.75MPa を維持する。

この格納容器圧力は設計圧力を大幅に超えるため、D/W ヘッドフランジのボルトが伸び、隙間が生じて格納容器内雰囲気漏洩したと考えられる。放出先は原子炉ウェルであり、放出された FP はシールドプラグを通じてオペレーションフロアに漏洩したと考えられる。なお、この漏洩に関しては格納容器圧力が低下すると D/W ヘッドの重みで生じた隙間が閉止するとしている。THALES2 による解析では格納容器圧力が 0.75MPa を超える時間帯が少ないという結果であった。2 号機のシールドプラグには多量のセシウムが堆積していることが観測されていることから、より多くの格納容器雰囲気が漏洩する状況を再現するため、0.75MPa より低い圧力 (約 0.71MPa と仮定) でボルトの伸びが生じるとした解析を行った。

スクラムから約 90 時間で格納容器圧力の急激な低下が生じた。原因は明らかになっていないが、格納容器の損傷が生じたと考えられている。減圧速度から気相漏洩であると考えられる一方、後に行われる 2 号機格納容器への窒素ガス注入の際に 1、3 号機では格納容器圧力がほとんど上がらない状況に対し、2 号機は格納容器圧力の上昇が観測された。

このことから、気相漏洩が D/W にあったとしても大きな損傷ではないと推察される。2号機の原子炉建屋内調査において格納容器のペネトレーションシールが溶けた跡が確認されており、この部位から原子炉建屋に漏洩が生じた可能性がある。また、2号機トラス室内の水位は S/C の水位とほぼ同等であることから、S/C に損傷があると考えられる。本解析では格納容器漏洩箇所による建屋汚染への影響を検討するため、前述の状況を考慮し、D/W ヘッドフランジガasketの損傷と S/C 下部の損傷が生じる事故シーケンスを基本とし、S/C 損傷の代わりに格納容器ペネトレーションシールの損傷を考慮したケース及び想定するすべての格納容器損傷が生じた場合を感度解析として加えることとした。格納容器損傷が生じた時刻は不明であるが、本解析では実測の S/C 圧力が 0 を示したとき、ほぼ同時期に破裂音が確認された時刻に損傷が生じたと仮定した。なお S/C 圧力が 0 を示しても D/W 圧力が維持されていることから、計測器にトラブルが生じていたと考えられ、実際に S/C 圧力が 0 であるとは考えられていない。また、D/W ヘッドフランジガasketの損傷時刻は、観測された D/W 圧力低下時刻とした。S/C 損傷の仮定に関して、破損位置は未だ確認されていないが、本解析では FP 放出が多くなる場合を想定し、ベント管より下部に破損口を設定した。この仮定により、スクラビングされないガスがトラス室に流出する状況を作り出している。

S/C 下部の破損により、漏洩した水はトラス室に蓄積することになるが、トラス室は満水にはなっていない。このことから、トラス室の水が原子炉建屋の外部に漏洩していると考えられる。ここではトラス室の下部からタービン建屋に漏洩するものと仮定し、漏洩先の解析ボリュームを設定した。ここに一旦水がたまり、設定した水位（現在測定されているトラス室の水位）を超えた水が環境に漏れ出るというモデルを追加した。

格納容器減圧以降の実測データを見ると、一旦低下し、0.15MPa 程度が数点観測されたのち 0.4MPa を超え、次に 0.3MPa 程度となり、その後ゆっくりと低下している。このような圧力挙動の原因は明らかになっていないが、2号機原子炉建屋の内部調査によって下部ヘッドの破損が確認されていることから、この時間帯で RPV から熔融燃料がペDESTALに移行したと推察されている。THALES2 による解析では外部からの注水により RPV 内に水位が形成され下部ヘッド破損に至らない。このため上記時間帯に下部ヘッドに損傷が生じたと仮定し、RPV 下部から D/W への漏洩パスを設定した。これにより燃料から放出された FP は RPV 破損箇所を通じて格納容器、原子炉建屋そして環境と漏洩することになるが、その量は下部ヘッド破損が生じてコリウムがペDESTALに落下した場合に比較して少なくなる。このため解析による結果は化学種の量ではなく比で整理した。対象とする核種及び化学種はセシウムに着目し、CsI、CsOH、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> 及び CsBO<sub>2</sub> とした。

### 2.2.3 解析結果(2号機セシウム化学種移行挙動)

前節で示した条件に基づき解析を実施し、RPV 及び格納容器の圧力挙動について示した。本節では、上記仮定に基づく各原子炉建屋におけるセシウムの沈着状況について記す。なお、解析対象時間はスクラムから 100 時間までとした。BSAF2 計画において 500 時間までの解析を行っているが、格納容器圧力が 0.75MPa 付近から 0.15MPa 付近まで下がる 100 時間以降は、熱水力挙動や FP 移行挙動に顕著な変化が生じないことがわかっている。

原子炉建屋各フロアにおける床の沈着、並びに壁及び天井への付着の履歴について図 2.2.2-6 に示す。

地震発生後のスクラムから 70 時間付近までは RCIC により RPV 内に水位が形成されていたため、格納容器は健全であり建屋への漏洩は生じない結果であった。このため横軸の時間軸は 70 時間を開始点としている。原子炉建屋への漏洩は格納容器圧力が上昇し 0.71MPa を超えたときに、D/W ヘッドフランジボルトが伸び原子炉ウェルに漏洩する。原子炉ウェルに漏洩するセシウムの化学種は、制御棒に用いられている  $B_4C$  のホウ素との化合物である  $CsBO_2$  と核分裂により生じる Mo との化合物である  $Cs_2MoO_4$  が主な成分であった。これらの化学種は、燃料溶融に伴い RPV 雰囲気へ放出されたセシウムが他の成分の濃度及び温度に従い生成され、RPV 圧力が 7.5MPa を超えると SRV を経由して S/C プールに導かれる。プール水によるスクラビング効果により移行したセシウムのほとんどが S/C プールに留まり、D/W には燃料中の初期インベントリの 1.5%弱が移行する。D/W に移行したセシウムのうちの 1/10,000 程度が原子炉ウェルの床及び壁に沈着する。原子炉ウェルに漏洩したセシウムはシールドプラグの隙間を経由してオペレーションフロアに漏洩する。シールドプラグの汚染状況からパーツの継ぎ目から漏洩したと考えられるが、本解析では解析モデルの制限もあり、シールドプラグの円周に沿って漏洩する場合の漏洩面積をフローパスの面積とした与えた。解析結果では D/W 圧力が 0.71MPa を超え漏洩が生じた後すぐに圧力が下がり 0.7MPa 付近を推移している。このため原子炉ウェルに漏洩したセシウムのほとんどがここに留まり床に沈着している。

スクラム後約 86 時間に炉心部に残っていた燃料が下部プレナムに形成されていたプールに落下することで多量の蒸気及び水素が生成され、SRV、S/C プールを経由、もしくは SRV ガスケットの損傷個所を通じて D/W 圧力を約 0.75MPa まで上昇させる。この時に再び D/W ヘッドフランジボルトの伸びにより漏洩が生じ、漏洩する際の D/W 圧力が高いことからオペレーションフロアへの漏洩もこのタイミングで始まる。

その後 D/W 圧力が低下を示す 88 時間付近で D/W ヘッドフランジガスケットに損傷を仮定していることから原子炉ウェルからオペレーションフロアを通じ、ブローアウトパネルを通じて環境、もしくは 4 階への階段等の開口部を通じて下層に移行する。D/W ヘッドフランジの損傷を仮定する時刻より少し前 (S/C 実測圧力が 0 を示す時刻) S/C 下部からの漏洩を仮定している。このため、トーラス室にプール水が漏洩し、90 時間付近で S/C 下部に設定した漏洩箇所が気相に露出し、セシウム化学種の壁及び床 (ここでは水相への取込みを含んでいる) が顕著になる。漏洩初期のプール水中のセシウムの大部分は解析モデルの都合上セシウムイオンの形で取り込まれており、化学種の形での存在はごく微量 (初期インベントリの $\cdot 10$ 乗のオーダー) 存在している。

スクラムから 92 時間後、D/W 圧力が上下に振れるタイミングで RPV 下部に損傷を仮定している。この時までは溶融燃料のほとんどが下部プレナムに移行しており、また、代替注水により溶融燃料は水没している。破損口より始めに液相が流出し、破損口高さまで水位が下がると気相漏洩に変わる。RPV 内に付着していた  $CsOH$  がこの水相の流出で再浮遊し、これが D/W 及び S/C に移行する。S/C に移行したセシウムは露出した破損口よりトーラス室に漏洩するため下層のフロアほど  $CsOH$  が存在する結果となった。

原子炉建屋の 100 時間後の汚染状況としては、オペレーションフロアから下降してくるものとトーラス室より上昇してくるものが重なり合う 2 階及び 1 階の壁面への  $Cs_2MoO_4$

の付着が最も多く、3階よりいたの層ではCsOHがCsBO<sub>2</sub>より多く存在する結果を得た。

次に感度解析として実施した2つのケース、1つはD/Wのみに損傷が生じたケース(ケース2)、もう一つは想定される3つの損傷がすべて生じたケース(ケース3)について各々解析を行い、解析終了と設定した100時間における各フロアのセシウム化学種の比について比較する。D/W破損口として想定した追加した個所は原子炉建屋1階の床から約5mの位置を想定した。基本ケースを1として比較したものを表2.2.2-1に示す。

ケース2ではD/Wから原子炉建屋1階への漏洩を仮定したため1階、2階及び3階までの床への沈着が増えており、なかでもCsI及びCsBO<sub>2</sub>の沈着は顕著(20倍以上)となる。支配的な化学種はCs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>であることには変化がなかった。一方壁への付着はケース2の場合、CsBO<sub>2</sub>が支配的となり採取されるサンプルの結果から事故進展中のD/Wの損傷具合を推定する手掛かりを得られる可能性がある。ケース2はS/Cからの漏洩がないためトラス室への付着・沈着は少なくなっている。

ケース3ではD/Wヘッドフランジガasketの損傷、ペネトレーションシールの損傷とS/C下部の破損の3つ損傷が生じたケースである。基本ケースとの大きな違いは、D/Wペネトレーションからの漏洩により漏洩したCs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>が原子炉建屋1階からトラス室へ移行するため、基本ケースで多く付着していたトラス室内でのCsOHの影響がマスクされたことである。また、原子炉ウェルへの沈着量が全体的に増加しているが、その中でもCsBO<sub>2</sub>の増加が多く、原子炉ウェル床への沈着ではCsBO<sub>2</sub>が最も多くその次にCs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>となった。

次に、セシウム化学種の生成はRPV内の気相温度や気相中のFP濃度により決定され、図2.2.2-7に示すようにTHALES2ではこのような化学種の生成モデルを有している。ここでは、RPV内の温度に影響を与える因子として、原子炉冷却系雰囲気漏洩のタイミングの違いによるセシウム化学種の存在比への影響を見る。基本ケースにおける原子炉冷却系からの漏洩は、SRVのガasketが損傷してD/Wに漏洩するものとした。この漏洩の代わりに、炉心領域に挿入しているTIPが炉心溶融に先行して損傷する場合を想定した。この損傷により炉内の水が放出され、水位が損傷位置より低下するとRPV内雰囲気が放出されることになる。このためRPV内温度が異なることが想定される。基本ケースとTIP破損ケース時の炉心領域の温度履歴を図2.2.2-8に示す。ここでは炉心のほとんどが下部プレナムに移行する90時間までの比較を行った。

基本ケースのSRVガasketの損傷は82時間付近で生じていた。TIP破損のケースでは76時間付近から水相の漏洩が始まり、80時間ほどで気相漏洩に至る。このため80時間から徐々にTIP漏洩ケースのRPV内気相温度が上昇しはじめ、ピーク温度で600Kほどの差が生じる。今回のケースでは、TIPからの漏洩のケースの方がCsOHの生成割合が増えると予想される。また、炉心温度が高くなることから燃料からのCsの放出量が多くなることが想定される。基本ケースの原子炉建屋各フロアの沈着量を1とした場合のTIP漏洩のケースの沈着量を表2.3-2にまとめた。沈着量のセシウム化学種の比として推定通りCsOHが多く放出され、特に原子炉ウェルやオペレーションフロアといったD/Wヘッドフランジ経由の漏洩に多く同伴された。原子炉ウェル、オペレーションフロア及び4階の床に沈着しているセシウムの化学種はCsBO<sub>2</sub>であり、基本ケースで支配的であったCs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>を超える量の沈着量を得た。また、燃料からのセシウムの放出量も4%程度多く

放出されており、原子炉建屋全体の沈着量を増やしていた。基本ケースと TIP 漏洩ケースで大きく異なる個所としてはトラス室での沈着が挙げられる。基本ケースでは 92 時間の RPV 損傷(仮定)により炉内 CsOH がトラス室に流れ込み他化学種と同レベルに達するが、TIP 漏洩ケースでは他化学種が増えているにもかかわらず CsOH はおよそ同じであった。これは RPV 内温度が高いことから RPV 内沈着が進まず、原子炉冷却系からの漏洩箇所を通じて D/W に漏洩しているため、破損箇所として先行する D/W ヘッドフランジから漏洩が増えた結果、トラス室には他化学種より低い移行率となったと考える。

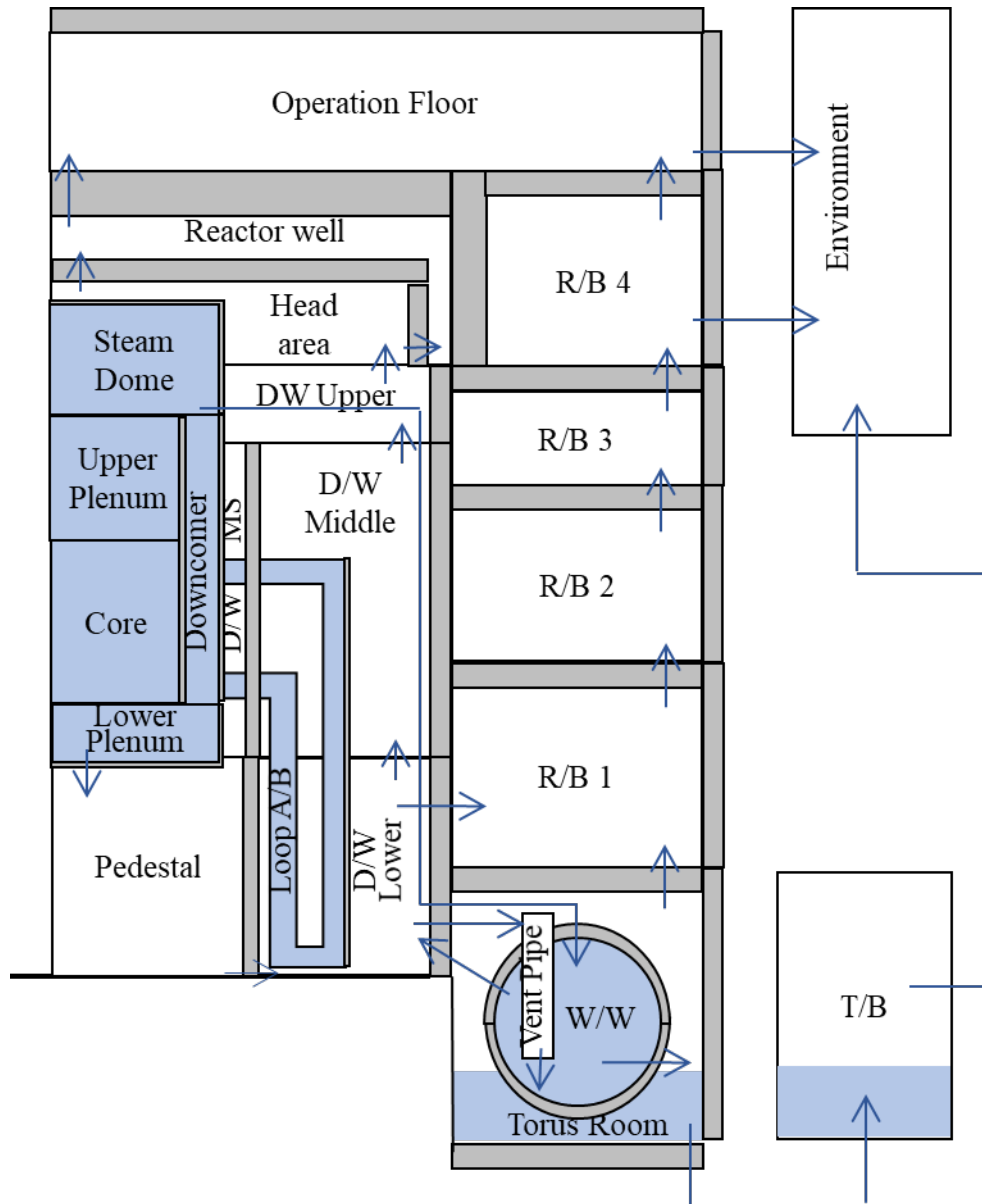


図 2.2.2-3 2号機解析用ボリューム分割

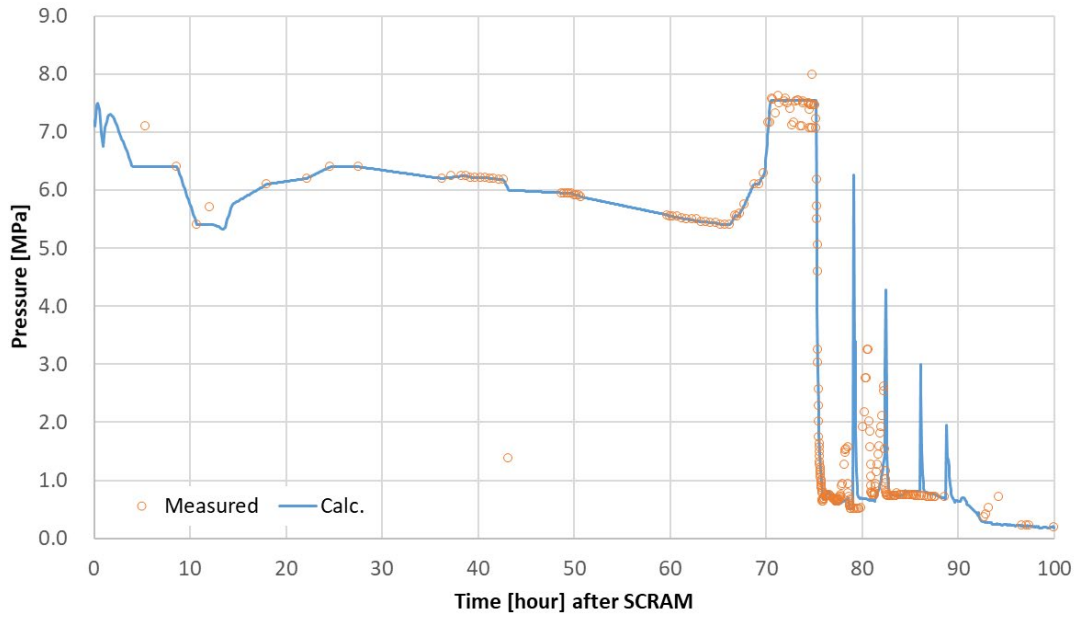


図 2.2.2-4 2号機 RPV 圧力履歴（実測値と解析値との比較）

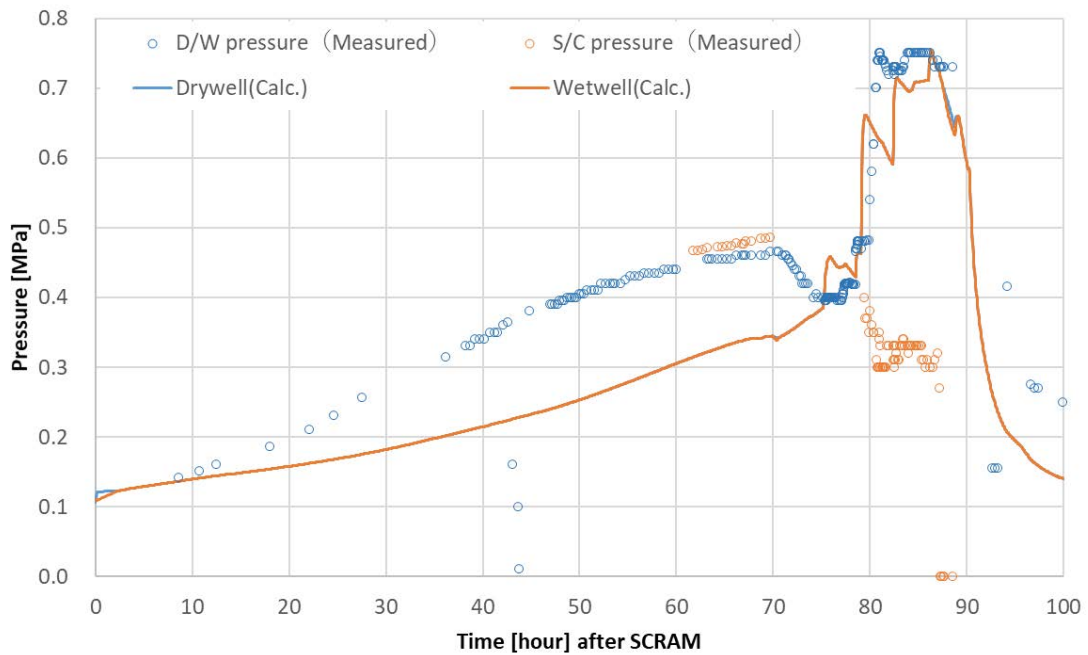


図 2.2.2-5 2号機格納容器圧力履歴（実測値と解析値の比較）

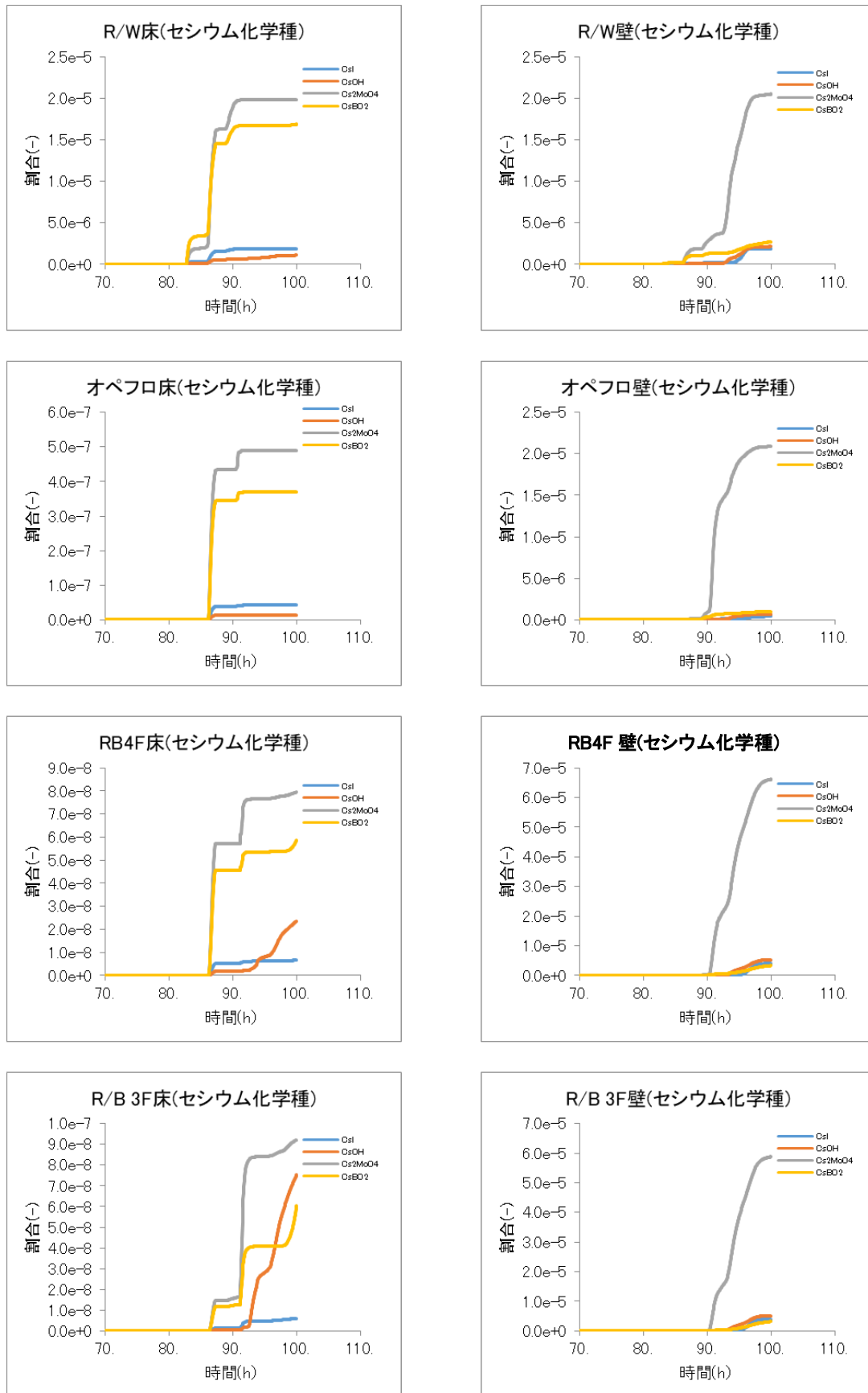


図 2.2.2-6 セシウム化学種移行挙動(1/2)

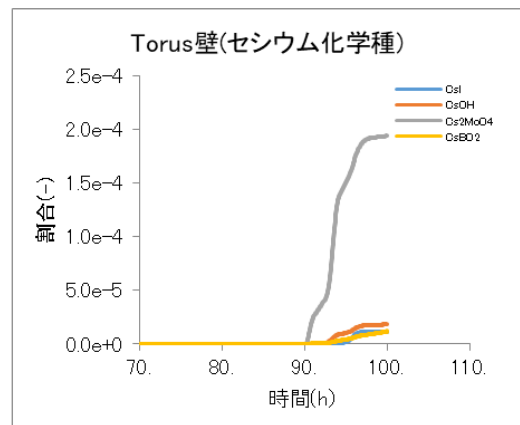
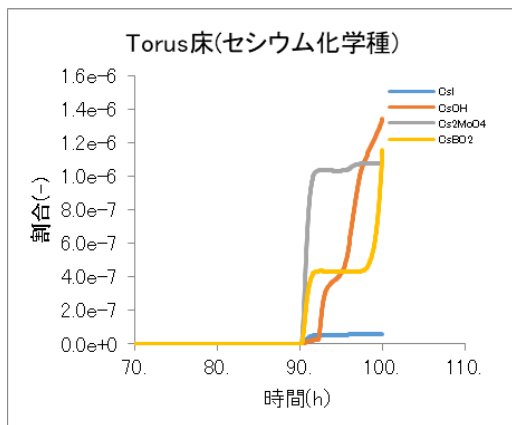
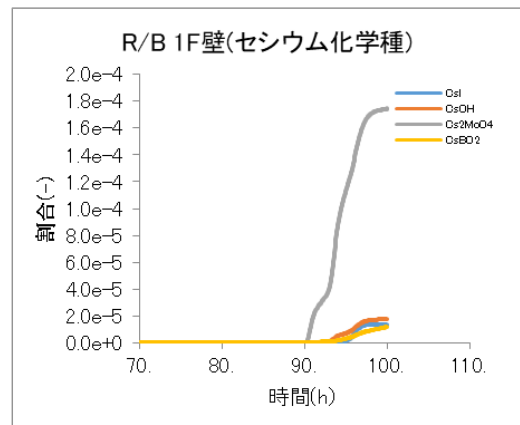
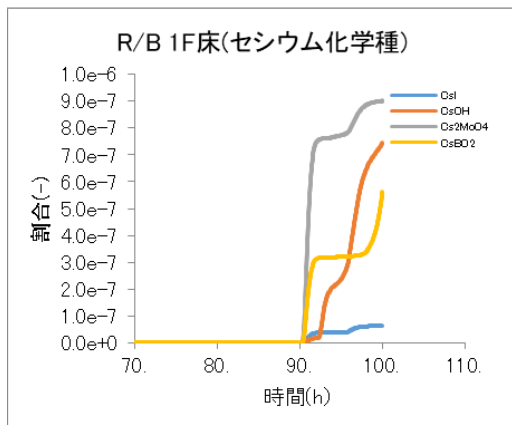
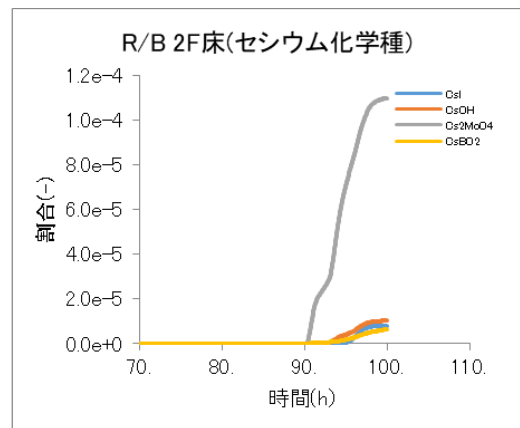
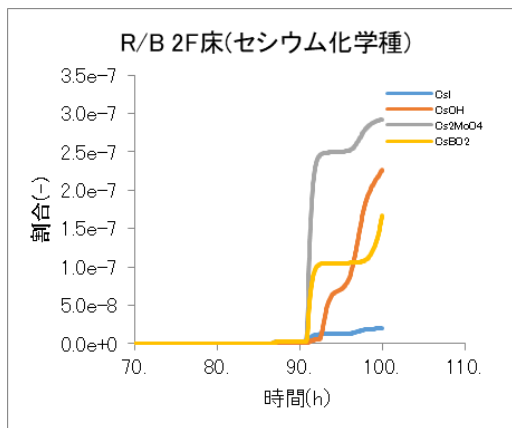


図 2.2.2-6 セシウム化学種移行挙動(2/2)



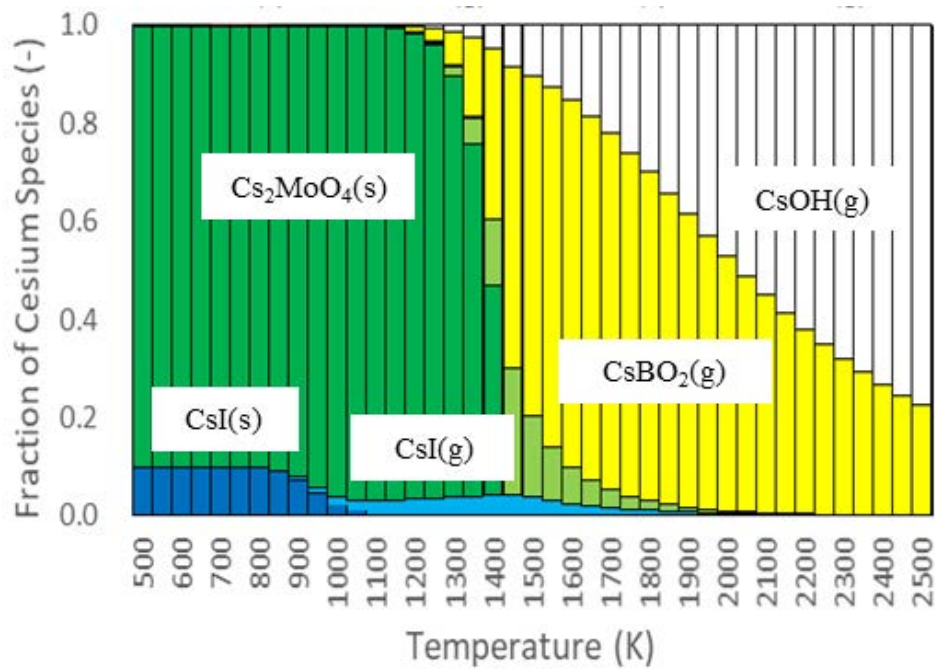


図 2.2.2-7 原子炉冷却系におけるセシウム化学種生成の温度依存性（ホウ素存在下）

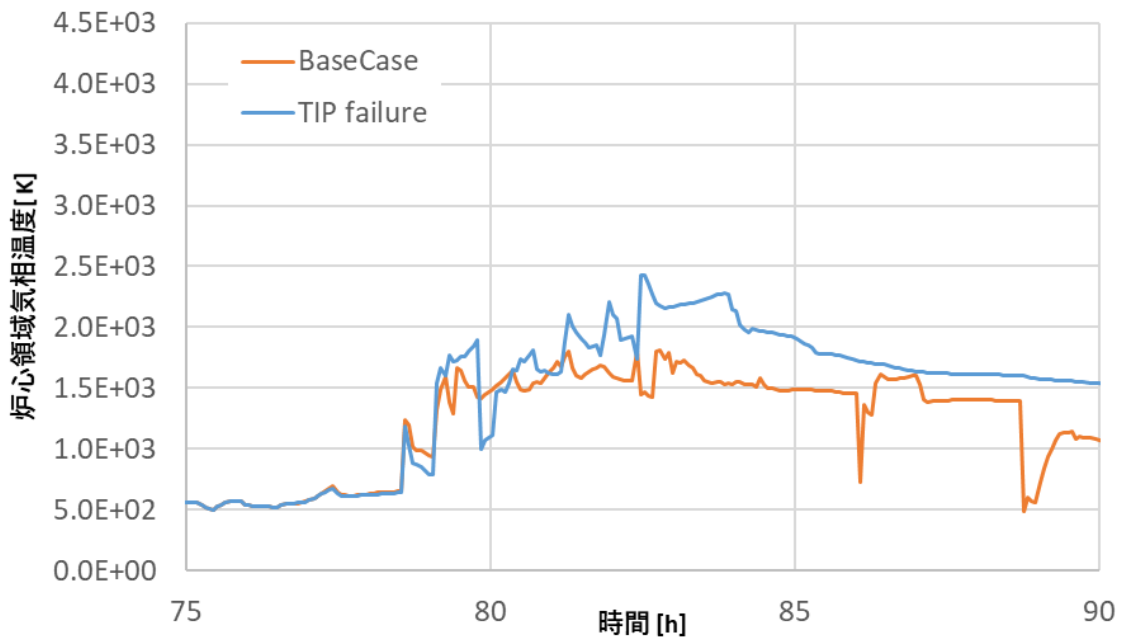


図 2.2.2-8 RPV 内温度履歴（基本ケースと TIP 損傷ケースの比較）

表 2.2.2-1 感度解析における基本ケースを 1 とした場合の各フロアの沈着量

		CsI	CsOH	Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	CsBO <sub>2</sub>
	BaseCase	1.00	1.00	1.00	1.00
オペレーショ	Case2	1.62	4.13	0.64	1.64
ンフロア床	Case3	0.22	0.55	0.25	0.25
オペレーショ	Case2	0.58	0.29	0.10	1.66
ンフロア壁	Case3	1.39	0.75	2.20	2.26
RB4F床	Case2	8.80	4.73	4.73	8.06
	Case3	0.90	0.39	3.25	0.72
RB4F壁	Case2	0.16	0.15	0.15	1.05
	Case3	0.32	0.45	1.45	1.13
RB3F床	Case2	28.60	4.22	12.78	22.72
	Case3	2.74	0.48	7.24	1.61
RB3F壁	Case2	0.14	0.16	0.18	0.79
	Case3	0.35	0.46	1.33	0.87
RB2F床	Case2	23.21	3.24	10.98	22.08
	Case3	2.52	0.55	7.22	1.71
RB 2 F壁	Case2	0.15	0.18	0.21	0.79
	Case3	0.42	0.48	1.29	0.72
RB 1 F床	Case2	23.13	2.97	11.35	20.64
	Case3	3.61	0.60	7.35	2.35
RB 1 F壁	Case2	0.18	0.20	0.24	0.86
	Case3	0.68	0.55	1.31	0.61
RW床	Case2	1.70	2.92	0.64	1.64
	Case3	1.34	1.70	0.76	1.21
RW壁	Case2	2.22	1.43	1.43	10.34
	Case3	2.90	1.12	1.72	7.22
トーラス室床	Case2	1.28	0.30	0.59	0.54
	Case3	2.17	0.41	6.74	0.63
トーラス室壁	Case2	0.05	0.05	0.06	0.08
	Case3	1.82	0.77	1.39	0.57

表 2.2.2-2 原子炉冷却系からの漏洩箇所の違いによる各フロア沈着への影響

	RPV破損 箇所	CsI	CsOH	Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	CsBO <sub>2</sub>
オペレーションフロア床	TIP	24.60	48.22	8.30	21.96
オペレーションフロア壁	TIP	1.19	0.42	0.18	2.92
RB4F床	TIP	20.37	4.15	8.72	16.50
RB4F壁	TIP	0.60	0.23	0.35	0.92
RB3F床	TIP	15.45	1.19	8.87	6.54
RB3F壁	TIP	0.64	0.22	0.39	0.57
RB2F床	TIP	8.01	0.79	5.89	2.91
RB 2 F壁	TIP	0.69	0.22	0.41	0.47
RB 1 F床	TIP	6.53	0.69	5.23	2.13
RB 1 F壁	TIP	0.79	0.22	0.45	0.39
RW床	TIP	18.91	20.94	7.55	16.93
RW壁	TIP	2.61	0.92	1.12	9.01
トーラス室床	TIP	7.48	0.80	6.40	1.20
トーラス室壁	TIP	1.85	0.36	0.68	0.59

#### 2.2.4 まとめ

シビアアクシデント総合解析コード THALES2/KICHE のマイナーアップデート版を用いて 1 号機から 3 号機までの再解析を実施した。

1 号機については従来から懸念であった MCCI によるコンクリート浸食の過大評価や水素生成量の過小評価に対し、関連パラメータ及び事故進展を見直すことで合理的な結果を得るに至った。これに伴い、SGTS 配管内熱流動解析のための境界条件として用いる解析結果も改訂した。また、本年度実施した配管内 FP 移行挙動解析のために必要な情報についても本解析結果を用いた。

3 号機では、サイト外への漏洩という観点では事故進展をおよそ再現したが、原子炉建屋内 FP 挙動の観点では、圧力履歴など再現できていないため、漏洩箇所やそのタイミング、また、代替注水量などのパラメータサーベイが必要である。

2 号機については、THALES2/KICHE 改良版の利用に加えて格納容器内調査等より得られた様々な知見を反映し、さらに、D/W と S/C の漏洩を想定した上で原子炉冷却系から D/W への漏洩箇所に関する感度解析を行い、セシウムの化学種に着目して原子炉建屋の FP 沈着を調査した。以下のその結果の概要を示す。

- ・ D/W ヘッドフランジ以外の D/W 漏洩がない場合（基本ケース）、トーラス室床（水相を含む）に  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  や  $\text{CsBO}_2$  と同程度の  $\text{CsOH}$  が沈着した。
- ・ S/C 漏洩が 100 時間程度の事故進展内に生じない場合(ケース 2)、基本ケースと大きく異なる点は、原子炉建屋上層階床面で  $\text{CsBO}_2$  が  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  より多く沈着した点である。
- ・ 原子炉冷却系における燃料からの FP 放出時の気相温度が高い、つまり TIP 破損が生じた場合、 $\text{CsOH}$  の生成が促されることから、基本ケースにおける  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  と  $\text{CsOH}$  との沈着比が 10:1 程度より  $\text{CsOH}$  が占める割合が増える。ただしトーラス室に関しては、原子炉冷却系が TIP 破損時ほど高温にならない場合は、RPV 内に一旦沈着した  $\text{CsOH}$  が RPV 損傷時に再浮遊により D/W に移行した。このため基本ケースの方が  $\text{CsOH}$  はトーラス室及び 1 階に多く移行した。

#### 参考文献

- [2.2.1-1] 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.
- [2.2.1-2] K. 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.
- [2.2.2-1] L.E.Herranz, "Overview and outcomes of the OECD/NEA benchmark study of the accident at Fukushima Daiichi NPS(BSAF) Phase2 – Results of severe accident analyses for Unit 1", Nucler Engineering and Design, 369, 2020.

- [2.2.2-2] 渡部ら、“シビアアクシデント時の格納容器貫通部リークパスでのFPエアロゾル捕集効果（I）貫通部の損傷クライテリア”、日本原子力学会和文論文誌、Vol.8, No.3, pp254-263 (2009)
- [2.2.2-3] SOARCA: P.Mattie, et al, “ Uncertainty Analysis of the Unmitigated Long-Term Station Blackout of the Peach Bottom Atomic Power Station”, NUREG/CR-7155, May 2016
- [2.2.2-4] N.Andrew, et al, “SANDIA National Laboratories’ Contribution to the OECD/NEA BSAF Phase II Project”, NURETH18, Portland, U.S, Aug. 2019.

## 2.3 データベース作成

1F 事故分析に係る OECD/NEA プロジェクト（1F 原子炉建屋及び格納容器内情報の分析プロジェクト（ARC-F プロジェクト））に提供する事を目的とし、現時点で把握可能な核種の移行挙動について、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試料分析手法の整備並びに重大事故解析で取得した情報に加え、東京電力、原子力機構、国際廃炉研究開発機構（IRID）等によって公開された、1F プラント内の汚染水、建屋内線量、がれき、土壌等の分析結果、さらに OECD/NEA の 1F 関連プロジェクト（燃料デブリの分析に関する予備的研究

（PreADES）等）から情報を収集し、核種の濃度や分布に関するデータベースを作成した。データベース作成にあたり Claris 社のデータベースソフト「FileMaker」を使用した。FileMaker は、データの入力、検索及び抽出、並べ替えといった基本的なデータベースソフトの機能を有しているのは当然であるが、整理したデータを csv 形式のみならずエクセル形式や PDF 形式といった様々なフォーマットで出力が可能な機能を有している点が優れている。本年度に収集したデータに加え、過年度に収集したデータ（エクセルファイル）も FileMaker に取り込むことで、エクセルファイルでの作業よりもデータの共有性、視認性及び操作性が向上したため、データの重複処理や収録した公開 PDF 資料（総数 2,625 件）との整合性確認が効率的に行えるようになった。

### 2.3.1 情報ソースデータベース

公開の情報源として、表 2.3-1 に示す公開の情報源を対象にウェブページから情報（PDF 等の資料）を収集するとともに、プラント内の核種移行に関する A～H の 8 つのキーワード（表 2.3-2）を定めて情報を検索できるようにした。

収集した情報は、「情報ソースデータベース」としてとりまとめ、収納した資料のタイトルを英語に翻訳するとともに、FileMaker からエクセル形式ファイルとして一覧表を出力した。収集した PDF ファイルは情報源ごとにフォルダを作成し、日付でソートできるようにした。また、整理したデータを ARC-F プロジェクト会合へ提供した。

なお、情報ソースデータベースには、2.1 項及び 2.2 項で整備または解析された知見を元に公開された主な情報として、「JAEA における試料分析の状況」[2.3-1]と「1,2 号機 SGTS 配管内汚染の分析」[2.3-2]を収録している。

本年度収集した公開情報のうち、主な情報の概要について、以下に示す。

#### ・1～4 号機 SGTS 室調査の結果について（キーワード：A, B, C, F, H）[2.3-3～2.3-4]

事故時の状態をとどめている非常用ガス処理系（Stand by Gas Treatment System、SGTS）室内の機器や配管には、格納容器ベントに伴い放射性物質を含むガスが流入したため、SGTS 室内の機器や配管等を詳細に調査することで、事故進展過程の解明に資する可能性がある。

1 号機については、ロボットによる調査が行われ、SGTS ラインにあるフィルタトレイン周辺で高線量（880～2,270 mSv/h）が確認され、1 号機のベント時に SGTS へのガス逆流が示唆された。

2 号機についてもロボットによる調査が行われ、同様にフィルタトレイン周辺で高線量（12.6～140 mSv/h）を確認し、1 号機からのベント時のガス逆流が示唆された。また、

フィルタトレインから液体の漏えい痕を確認し、スミヤが採取されたが、詳細な分析結果は示されていない。

3号機については、SGTS室内の線量分布を確認するために複数点にてγイメージャ（ガンマカメラ）を用いた撮影が実施され、スタックへ通じる配管及びフィルタトレイン部、ラプチャディスク部に高線量が確認された。フィルタトレイン内の各フィルタ（プレフィルタ、高性能フィルタ及びチャコールフィルタ）について、スミヤが採取され、原子力機構で詳細な分析が行われた（3.1項参照）。

4号機についても、SGTS室内の線量分布を確認するために複数点にてγイメージャを用いた撮影が実施され、ラプチャディスク部に高線量がみられている。また、フィルタトレイン内部の線量率測定が行われ、フィルタトレイン下流側に上流側よりも高い線量率が確認され、3号機のベント時のガス逆流が示唆される結果となった。

・2号機シールドプラグ高濃度汚染への対応状況について（キーワード：B, C, E, F）[2.3-5～2.3-7]

事故分析及び廃炉作業への知見拡充を目的に、2号機シールドプラグ下部の原子炉ウェル内の調査が実施されている。調査では、原子炉運転中に原子炉キャビティ（原子炉ウェル）とオペレーションフロアの差圧を調整するライン上の原子炉建屋換気空調系排気ダクトに接続されている差圧調整ライン（原子炉差圧調整ライン）を用い、以下の3点について調査が行われた。

(1) 原子炉ウェル内の映像取得及び線量測定

線量測定の結果、ウェルの上部から床面に向かって徐々に高い線量率が観測された。

(2) 西側の原子炉キャビティ差圧調整ラインの配管内部の調査及び配管内の堆積物やダクト腐食部のサンプル採取

原子炉キャビティ差圧調整ラインにある2つの弁が「開」の状態であることが確認され、また、ダクトに劣化が見られた。

サンプル採取の結果、ダクト上部の劣化部分、ダクト点検口裏のゴムパッキン、配管内堆積物が採取され、2021年10月22日に社外分析機関（1F構外）への輸送が行われた。

(3) 東側の原子炉キャビティ差圧調整ライン及びダクトの腐食等の外観調査

外観検査の結果、劣化は確認されなかった。西側と同様に原子炉キャビティ差圧調整ラインにある2つの弁が「開」の状態であることが確認された。

・2号機オペレーティングフロア内シールドプラグ穿孔部調査について（キーワード：B, C, F）[2.3-8～2.3-16]

シールドプラグの汚染状況を把握することは、事故解明の観点や廃炉工程への影響を把握する観点から重要である。過去の調査では、オペレーティングフロア床面の汚染密度はほぼ一定であったのに対し、シールドプラグ上部の線量当量率が他の場所より1桁ほど高く、シールドプラグ上段と中段の隙間に蓄積していると推定されている放射性物質からの影響が大きいと考えられる。そこで、シールドプラグ上段と中段の放射能を高い確度で評価するために、オペレーティングフロア床面の表面汚染から影響を受けにくい状況下として、シールドプラグに穿孔を施し、そこに計測器を入れて線量率測定を行った。

線量調査結果と計算コード egs5 の計算結果から、シールドプラグ上段と中段の隙間に蓄積した総汚染量の評価が行われ、従来の評価結果（数十 PBq の Cs-137 が存在[2.3-8]）と同レベルであることが示された。この結果をもとに、シールドプラグに高汚染部が存在することを前提とした燃料デブリ取り出しの工法が検討される予定である。

・1号機及び2号機 SGTS 配管の一部撤去について（キーワード：B, C, F）[2.3-17～2.3-20]

1号機及び2号機の SGTS 配管には事故直後のベント時に FP を含む空気が流入したため、配管内で採取されたスミヤろ紙やドレン水に含まれる核種、その化学形を分析することで、事故進展過程の解明に資する可能性がある。SGTS 配管のうち屋外に敷設されている配管部については、1/2号機廃棄物処理建屋雨水対策工事及び1号機原子炉建屋大型カバー設置工事に干渉することから配管の撤去が実施されることになった。

撤去にあたり、SGTS 配管外面の線量測定が行われた。線量測定では、散乱線の影響低減を図るために厚さ 50 mm の鉛でコリメートした線量計を線量測定治具内に装着し、クローラークレーンで吊上げ、SGTS 配管直上 0.1 m 及び 1 m 高さで線量測定が実施された。測定の結果、線量率は2号機側配管が高く1号機側が低い結果となった。この原因として、2号機原子炉建屋内の SGTS 系機器（フィルタ、ラプチャーディスク等）が抵抗となり、1号機側配管より流速が抑えられ、放射性物質が滞留したためと推測されている。さらに、測定した線量率から汚染密度を算出し、切断後の配管部ごとに汚染量を試算した。1号機側配管部の汚染量はオーダーで  $10^{10}$ ～ $10^{11}$ Bq、2号機側は  $10^{11}$ ～ $10^{12}$  Bq と評価された。汚染評価及び配管敷設状況（高低差等を考慮）から代表配管として、1号機側については6箇所、2号機については11箇所の採取箇所を抽出した。切断した配管部に対しては、ガンマカメラで高汚染が確認された部位のサンプル採取（幅数 cm の輪切り状）及び内部のスミヤ採取が計画されており、原子力機構でのサンプル及びスミヤ分析が検討されている[2.3-20]。



表 2.3-1 公開の情報源と URL、収録した資料数 (1/2)

公開の情報源	URL (日本語トップページ)	A: 収録総数 (過年度含む)	B: 令和3年度 追加数	C: Bのうち 英語版資料数
特定原子力施設監視・評価委員会	<a href="https://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuu-shikisya/tokutei_kanshi/index.html">https://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuu-shikisya/tokutei_kanshi/index.html</a>	200	49	1
原子力規制庁面談記録	<a href="https://www2.nsr.go.jp/disclosure/meeting/index.html">https://www2.nsr.go.jp/disclosure/meeting/index.html</a>	422	108	0
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	<a href="https://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuu-shikisya/jiko_bunseki01/index.html">https://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuu-shikisya/jiko_bunseki01/index.html</a>	113	62	0
たまり水週報 (福島第一原子力発電所における高濃度の放射性物質を含むたまり水の貯蔵及び処理の状況について)	<a href="http://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/watermanagement/index-j.html">http://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/watermanagement/index-j.html</a>	535	54	97
廃炉・汚染水対策福島評議会	<a href="https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning.html#fukushima_hyogikai">https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning.html#fukushima_hyogikai</a>	32	5	1
廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議	<a href="https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning.html#team_jimukyoku">https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning.html#team_jimukyoku</a>	909	263	41
水処理設備の放射能濃度測定結果	<a href="http://www.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/index-j.html">http://www.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/index-j.html</a> (水処理設備の分析結果)	91	31	0
福島第一 タービン建屋地下階溜まり水の核種分析結果	<a href="http://www.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/index-j.html">http://www.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/index-j.html</a> (その他のサンプリング)	113	0	0

表 2.3-2 公開の情報源と URL、収録した資料数 (2/2)

公開の情報源	URL (日本語トップページ)	A: 収録総数 (過年度含む)	B: 令和3年度 追加数	C: Bのうち 英語版資料数
IRID 情報	<a href="http://irid.or.jp/">http://irid.or.jp/</a>	91	31	8
JAEA 情報	<a href="https://www.jaea.go.jp/">https://www.jaea.go.jp/</a>	14	3	0
BSAF 情報 (f-dada)	<a href="https://fdada.info/home/graph/">https://fdada.info/home/graph/</a>	17	0	0
東京電力資料	<a href="http://www.tepco.co.jp/index-j.html">http://www.tepco.co.jp/index-j.html</a>	111	33	21
その他	原子力学会等	8	1	0

表 2.3-3 情報データベースに付与したキーワード

記号	キーワード
A	水試料
B	固相試料データ
C	線量
D	セシウム以外の元素・核種
E	試料の輸送
F	格納容器/原子炉建屋
G	プラント状態
H	汚染分布

### 2.3.2 サンプルデータベース

本年度も引き続き、OECD/NEAのARC-Fプロジェクト会合へ提供するために、サンプルの採取位置が明確であり、線量率、核種濃度等の分析データが含まれる情報を整理し、英語版のデータベース（サンプルデータベース）として取りまとめた。前述のように、FileMaker上で情報ソースデータベースとサンプルデータベースのデータを突き合わせ、重複するデータを削除するとともに、資料を再度見直し、表2.3-4以外の核種や元素に対しても、核種の移行挙動の把握に有用と考えられる可能性があることから、濃度等の測定結果や測定方法等の情報についても抽出し、コメント欄に情報を補足した。

表 2.3-4 抽出したデータ項目一覧

データ項目	内容
Sample name	文献中のサンプル名
Reactor unit	サンプリングした原子炉
Building name	サンプリングした建屋の名称、R/B（原子炉建屋）、T/B（タービン建屋）等
Sampling location	サンプリングした場所
Sampling date	サンプリングした日
Sample info.	サンプルの情報（材質、量等）
Dose rate	サンプリングした物の線量率（ $\mu\text{Sv/h}$ ）
Possibility of reanalysis	サンプルの再解析可能性
Current location of stored sample	保管されているサンプルの現在場所
f-dada	f-dada ( <a href="https://fdada.info">https://fdada.info</a> ) への文献登録の有無
Analytical body	サンプルの分析機関
Measurement date	サンプルの測定日
Decay correction	半減期補正日
Unit of measurement	サンプルの測定単位（Bq/g 等）
Analysis results of main detected nuclides( $\gamma$ -nuclide)	ガンマ線放出核種(Co-60, Nb-94, Ag-110m, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Eu-152, Eu-154)
Analysis results of main detected nuclides( $\beta$ -nuclide)	ベータ線放出核種(H-3, C-14, Cl-36, Ni-59, Ni-63, Se-79, Sr-90, Tc-99, Sn-126, I-129)
Analysis results of main detected nuclides( $\alpha$ -nuclide)	アルファ線放出核種( $^{233}\text{U}$ , $^{234}\text{U}$ , $^{235}\text{U}$ , $^{236}\text{U}$ , $^{238}\text{U}$ , $^{237}\text{Np}$ , $^{238}\text{Pu}$ , ( $^{239+240}\text{Pu}$ ), $^{242}\text{Pu}$ , $^{241}\text{Am}$ , $^{243}\text{Am}$ , $^{244}\text{Cm}$ )
Comments	上記以外の核種や元素に対する濃度等の測定結果や測定方法等の情報を補足

以上により収集・整理した分析データを ARC-F プロジェクト会合へ提供した。

### 2.3.3 まとめ

ARC-F プロジェクトに提供する事を目的とし、現時点で把握可能な核種の移行挙動について、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試料分析手法の整備並びに重大事故解析で取得した情報に加え、東京電力、原子力機構、IRID 等によって公開された、1F プラント内の汚染水、建屋内線量、がれき、土壌等の分析結果、さらに OECD/NEA の 1F 関連プロジェクト (PreADES 等) から情報を収集し、核種の濃度や分布に関するデータベースを作成した。

収集した情報は、「情報ソースデータベース」としてとりまとめ、エクセルファイルの一覧表を作成した。一覧表の作成にあたり、Claris 社のデータベースソフト「FileMaker」を使用し、効率的なデータの登録及び整理を行った

また、情報ソースデータベースから、サンプルの採取位置が明確で、分析データが含まれる情報を抽出し、英語版の「サンプルデータベース」を作成し、ARC-F プロジェクト会合へ情報提供した。

参考文献

- [2.3-1] 原子力機構: JAEA における試料分析の状況, 2021 年 12 月 21 日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000376556.pdf>
- [2.3-2] 原子力規制庁長官官房技術基盤グループ システム安全研究部門原子力機構: J1,2 号機 SGTS 配管内汚染の分析, 2021 年 12 月 21 日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000376554.pdf>
- [2.3-3] 東京電力: 1-4 号機 SGTS 室調査の結果について, 2021 年 3 月 25 日  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensui taisakuteam/2021/03/3-3-2.pdf>
- [2.3-4] 東京電力: 1-4 号機 SGTS 室調査の結果について, 2021 年 7 月 8 日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000358692.pdf>
- [2.3-5] 東京電力: 2 号機シールドプラグ高濃度汚染への対応状況について, 2021 年 6 月 7 日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000354790.pdf>
- [2.3-6] 東京電力: 【速報】 2 号機シールドプラグ高濃度汚染への対応状況について, 2021 年 6 月 24 日  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensui taisakuteam/2021/06/91-3-3-4.pdf>
- [2.3-7] 東京電力: 2 号機シールドプラグ高濃度汚染への対応状況について, 2021 年 7 月 8 日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000358693.pdf>
- [2.3-8] 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~, 2021 年 3 月 5 日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000345038.pdf>
- [2.3-9] 東京電力: 2 号機オペレーティングフロア調査 シールドプラグ穿孔の検討状況について, 2021 年 7 月 8 日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000358694.pdf>
- [2.3-10] 東京電力: 2 号機オペフロ内シールドプラグ穿孔調査について, 2021 年 7 月 29 日  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensui taisakuteam/2021/07/92-3-4-5.pdf>
- [2.3-11] 東京電力: 2 号機オペフロ内シールドプラグ穿孔調査について, 2021 年 9 月 30 日  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensui taisakuteam/2021/09/94-3-3-3.pdf>
- [2.3-12] 東京電力: 2 号機オペフロ内シールドプラグ穿孔部調査について, 2021 年 10 月 19 日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000367850.pdf>
- [2.3-13] 東京電力: 福島第一原子力発電所 採取試料の社外分析機関への輸送について, 2021 年 10 月 25 日  
[https://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/reference/pdf/2021/2h/rf\\_20211025\\_1.pdf](https://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/reference/pdf/2021/2h/rf_20211025_1.pdf)
- [2.3-14] 東京電力: 2 号機オペフロ内シールドプラグ穿孔部調査について, 2021 年 10 月 28 日  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensui taisakuteam/2021/10/95-3-3-4.pdf>

- [2.3-15] 東京電力: 2号機オペフロ内シールドプラグ穿孔部調査について, 2021年12月21日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000376558.pdf>
- [2.3-16] 東京電力: 2号機オペフロ内シールドプラグ穿孔部調査について, 2021年12月23日  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2021/12/97-3-4-7.pdf>
- [2.3-17] 東京電力: 1号機及び2号機非常用ガス処理系配管の一部撤去について, 2021年8月26日  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2021/08/93-3-4-2.pdf>
- [2.3-18] 東京電力: 福島第一原子力発電所1号機及び2号機非常用ガス処理系配管の一部撤去について, 2021年9月14日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000364993.pdf>
- [2.3-19] 東京電力: 福島第一原子力発電所1号機及び2号機非常用ガス処理系配管の一部撤去について, 2021年10月19日  
<https://www.nsr.go.jp/data/000367852.pdf>
- [2.3-20] 東京電力: 1号機及び2号機非常用ガス処理系配管の一部撤去の進捗状況について, 2021年10月28日  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2021/10/95-3-3-5.pdf>

## 2.4 OECD/NEA プロジェクトの運営及び関連情報の収集

OECD/NEA の国際プロジェクト「1F 原子炉建屋及び格納容器内情報の分析 (ARC-F)」を実施機関として運営し、同プロジェクトの第 5 回及び第 6 回会合を開催した。ARC-F プロジェクトの概要を以下に示す。

### ①目的

- ・福島第一原子力発電所及び関連プロジェクトから得られるデータや情報の分析を行い、シビアアクシデントの進展及び原子炉建屋・格納容器内の状況に対するさらなる理解に向けた参加機関及び専門家の意見を集約する。
- ・国際的な情報共有の仕組みを提供する。

### ②実施項目

タスク 1：1F 事故シナリオ及び関連するプラント内 FP 移行やソースターム解析の更なる検討 (OECD/NEA BSAF 及び BSAF2 プロジェクトの後継)

タスク 2：格納容器及び原子炉建屋内調査等から得られた情報やデータの収集・管理

タスク 3：課題の抽出及び長期プロジェクトの検討

### ③参加国

カナダ、中国、フィンランド、フランス、ドイツ、韓国、ロシア、スペイン、スウェーデン、スイス、米国、日本

### ④第 5 回会合

- ・開催日時：令和 3 年 7 月 5 日(月)～7 日(水)
- ・会場：web
- ・主な議案：解析チームごとの活動計画、1F 試料情報の収集状況及びデータベース整備状況、次期プロジェクト (FACE) について、他
- ・タスク 2 に関連して、データベース作成及び 1F プラント内試料の分析に関する本事業の成果を報告した。報告した内容を次ページ以降に示す。

### ⑤第 6 回会合

- ・開催日時：令和 4 年 1 月 17 日(月)～19 日(水)
- ・会場：web
- ・主な議案：解析チームごとの活動計画、1F 試料情報の収集状況及びデータベース整備状況、ファイナルレポートについて、他
- ・タスク 2 に関連して、データベース作成及び 1F プラント内試料の分析に関する本事業の成果を報告した。報告した内容を次ページ以降に示す。



## Status of Task 2a

### Compilation and management of data and information

Tomoyuki Sugiyama  
Nuclear Safety Research Center  
Japan Atomic Energy Agency

This work is funded by the Nuclear Regulation Authority, Japan.



### Data collection (1)

- Database of information sources
  - Websites of TEPCO, METI, NRA, IRID and JAEA are the main sources of sample information.
  - Data categories were extended to cover plant-wise information as well as sample information.
    - A: water samples
    - B: solid samples
    - C: dose rates
    - D: elements and radionuclides other than Cs
    - E: transportation of samples
    - F: containment vessels and reactor buildings
    - G: plant status
    - H: contamination map





## Data collection (2)

---

- Database of samples from units 1 to 4
  - Sample information was collected with the following records.
    - Sampling location and date
    - Sample ID, form, quantity (weight, volume, etc.)
    - URLs to the original information sources
    - Backup URLs to the Fukushima Nuclear Accident Archive managed by JAEA
    - Detected nuclides
  - Recently added information:
    - NRA report, “Interim summary of investigation and analysis of TEPCO Fukushima Daiichi NPS Accident”, March 2021. (only Japanese version at the present)

2



## Database building

---

- The database is now maintained on Adobe FileMaker.
- The present data file for distribution is an Excel file without graphical information, produced by FileMaker.
- Web access to the database will be established within the project period.

3

## 第5回 ARC-F 会合における報告内容 (3/10)



### Database building: List of information sources

Document ID	資料名/Title	作成者/ Author	発行日/ Issue date	サイズ/ページ数 Size/Page	会議主催者/ Organizer	会議名称/Meeting	コメント/Comments	URL_U/E	URL_F/NA	A	B	C	D	E	F	G	H	Attached_PDF_U/E
NRA2013.0329	2013.0329 1号機トラス室内線量測定結果に対する考察について consideration results of dose rate in torus room in unit1		2013/03/29	12P/ p.	原子力規制庁	特定原子力施設監視・評価委員会 (第7回)資料4		http://www.nsr.go.jp/data/000050897.pdf		X	X	X	X	X	X	X	X	X
NRA2018.0802	2018.0802 福島第一原子力発電所中核種汚染リスク低減目標マップ作成(作業1)報告 2018.0802 Measures for Mid-term Risk Reduction at TEPCO's Fukushima Daiichi NPS (case of March 2018)		2018/08/02	1P/ p.	原子力規制庁	特定原子力施設監視・評価委員会 (第4回)参考1		http://www.nsr.go.jp/data/00184211.pdf		X	X	X	X	X	X	X	X	X
NRA2018.0425	2018.0425 今後の炉心の運用計画について Plan of task operation in future		2018/04/25	1P/ p.	原子力規制庁	特定原子力施設監視・評価委員会 (第4回)資料2		http://www.nsr.go.jp/data/00184031.pdf		X	X	X	X	X	X	X	X	X
NRA2018.0802	2018.0802 1号機タービン建屋貯留水処理について treatment of accumulated water in TRB unit1		2018/08/02	1P/ p.	原子力規制庁	特定原子力施設監視・評価委員会 (第4回)参考1資料5		http://www.nsr.go.jp/data/00184217.pdf		X	X	X	X	X	X	X	X	X
NRA2018.0802	2018.0802 第一原子力発電所1号機建屋使用済燃料プールからの燃料取出し2024年10月～25年10月のスケジュールについて Action plan for measures to reduce dose on the operating floor toward removal of fuel debris		2018/08/02	1P/ p.	原子力規制庁	特定原子力施設監視・評価委員会 (第4回)資料1-1		http://www.nsr.go.jp/data/00184218.pdf		X	X	X	X	X	X	X	X	X
NRA2018.0802	2018.0802 第一原子力発電所1号機タービン建屋貯留水処理計画について treatment of accumulated water in TRB unit1		2018/08/02	1P/ p.	原子力規制庁	特定原子力施設監視・評価委員会 (第4回)資料1-2		http://www.nsr.go.jp/data/00184219.pdf		X	X	X	X	X	X	X	X	X

English menu will be provided.

4



### Database building: Record of information source

サンプルDB 新規作成	情報ソースDB 主キーコピー	ホーム画面 に戻る
Document_ID: NRA_2013_0329		
資料名/Title: 2013.0329 1号機トラス室内線量測定結果に対する考察について consideration results of dose rate in torus room in unit1		
作成者/Author: A B C D E F G H X X X X X X X		
発行日/Issue date: 2013/03/29		
サイズ/ページ数/Size/Page: KB/p. KB/p.		
会議主催者/Organizer: 原子力規制庁 NRA		
会議名称/Meeting: 特定原子力施設監視・評価委員会(第7回)資料4 The Commission on Supervision and Evaluation of the Specified Nuclear Facilities		
コメント/Comments:		
URL_U: http://www.nsr.go.jp/data/000050897.pdf		
URL_E:		
URL_F/NA:		
Attached_PDF_U:		
Attached_PDF_E:		
主キー: BB6C5F06-41DB-4685-8682-6D41EBC32296 作成情報タイムスタンプ: 2021/07/01 18:48:23 作成者: Admin 修正情報タイムスタンプ: 2021/07/01 18:48:23		

5

第5回 ARC-F 会合における報告内容 (4/10)



Database building: List of samples

ID	主キー	作成情報システムコード	作成者	修正情報システムコード	修正者	情報システムコード	DOB temp	Sample name	Reactor_unit	Building_name
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:55:24	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-SL1		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:55:19	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-SL3		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:55:18	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-SL3		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:55:03	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-SL4		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:54:48	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-SL1		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:53:04	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S1		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:58	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S2		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:27	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S3		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:04	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S4		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:17	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S5		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:06	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S6		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:08	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S7		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:51:03	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S7 (Gold)		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:51:07	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S7 (Gold)		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:51:11	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S8		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:51:19	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S7 (Gold)		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:51:32	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S8 (Gold)		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:01	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S8 (Gold)		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:05	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Mail, each3 was kept		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:09	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Mail, each3 was kept		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:09	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Mail, each3 was kept		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:11	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Mail, each3 was kept		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:12	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Mail, each3 was kept		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:52:13	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Mail, each3 was kept		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Floor		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Floor		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Sand		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Sand		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Sand		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		Sand		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-DE-S1-1		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-DE-S1-2		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-DE-S1		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		N/A		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S1		7/8
0199F0E-0178-4000		2017/07/01 10:47:41	Admin	2017/07/01 10:47:41	Admin	FA2EAE9F-4AE9-4E60		ITB-ME-S1		7/8

6



Database building: Record of sample

ARC-F\_DB\_20210701\_00

主キー: DF4985D5-IASB-4C38-9C08-95A7C7F58F86A

Reactor\_unit: 1 | Building\_name: T/B | Sample\_name: UTB-1TB5-1 | Sampling\_location: T/B OP1910 | Sampling\_date: 2015.9.30

Sample info: Stage 1 (kg/l): 0.00 | Dose\_rate (Gdov/h): 0.00 | Possibility\_of\_reanalysis: N/A

FRAnDL: FRAnDL\_ID: FA142 | f\_data: N/A | Analytical\_body: Measurement\_date: N/A | Unit\_of\_measurement: Bq/g

Gamma: Co-58: < 7E+3 | Nb-94: N/A | A=118m: N/A | Sb-125: N/A  
Co-134: N/A | Co-137: (3.7 ± 0.0E+6) | Eu-152: < 6E+3 | Eu-154: < 9E+3

Figure: Diagram showing reactor units UTB-1TB5-1 and UTB-1TB5-1A.6.

Comments: Elemental analysis by AES. Document\_ID: MET12012\_0220. 和文タイトル: 2017\_0220 廃棄物試験の分析結果. 英文タイトル: Analysis results of waste sample. 和文URL: http://www.met.go.jp/en/quality/nuclear/decommissioning/committee/consultants/2017/02/23-04-04.pdf. 英文URL: FNAA\_URL.

Inputter: 2021/07/01 10:47:41 Admin | Amender: 2021/07/01 10:49:48 Admin

7



## Status of Task 2b

### Radionuclide analyses of on-site samples

Yoshihisa Iida

Nuclear Safety Research Center  
Japan Atomic Energy Agency


This work is funded by the Nuclear Regulation Authority (NRA), Japan for supporting the activities of the NRA associated with "The Committee of Accident Analysis of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station".



### Introduction


1

- Radionuclide analyses of various types of samples taken from various locations of the Fukushima Daiichi NPS (1F) are useful and effective to discuss the distribution, release path and chemical speciation of FPs. Obtained data and information assist the improvement and validation of modeling in severe accident analysis codes.
- The Nuclear Regulation Authority of Japan (NRA) has initiated its own activities to investigate the accident at 1F from a reactor safety point of view.
- Taking samples from potentially important locations and analyzing the samples are part of the **NRA** activity, and the analyses have been made at the hot laboratories of **JAEA**.
- The results of the analyses are to be shared by the project partners and stored in the database constructed in task 2 after becoming publicly available.

 Key radionuclides

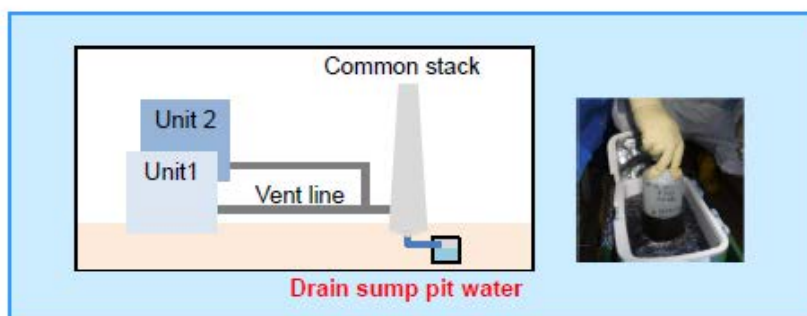
2

- **Highly and semi-volatile FPs ([Cs-134](#), [Cs-137](#), [I-129](#), [Mo-99\(=>Tc-99\)](#))**
  - ✓ [Cesium](#) and [iodine](#) (mainly  $^{131}\text{I}$ ) are important FPs for the consequence analysis of severe accidents.
  - ✓ The analysis for relatively stable  $^{129}\text{I}$  (half-life: 15.7M years) could result in insights on the transport behavior of  $^{131}\text{I}$  (half-life: 8.0 days).
  - ✓ The release of [Mo](#) from the fuel is prone to be increased and to possibly form [Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>](#) as the major chemical form of Cs under the oxidizing atmospheric conditions with sufficient water vapor inside the reactor vessel.
  
- **Lower volatile FPs ([Sr-90](#), [Eu-152/154](#)) and actinides ([Th](#), [U](#), [Pu](#), [Am](#))**
  - ✓ The release of these radionuclides was expected to be low due to their vapor pressures, but possibly to be generated as entrained fine particles (aerosols) in case that MCCI progressed under a dry condition.

 On-site sample

3

**Drain sump pit water at the base of stack shared by Units 1 and 2** were collected (Sep, 2016).

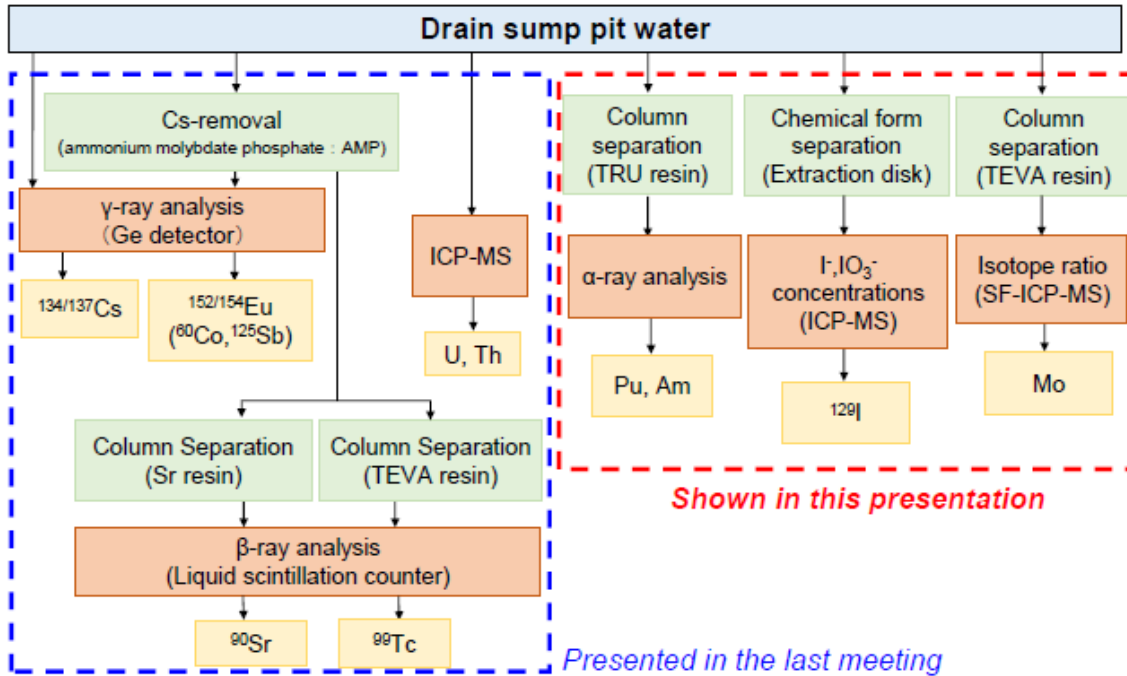


- ✓ It was potential that information for the ratio of radionuclides released during the containment venting of unit 1 was left in this water sample (except for iodine).



Flowchart of analytical procedures

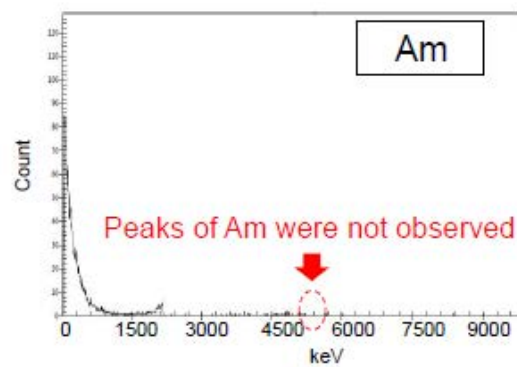
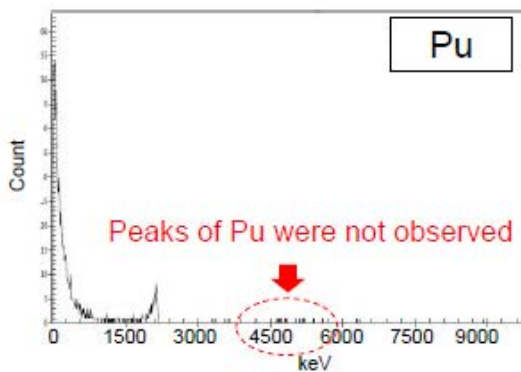
4



Analytical results of Pu and Am

5

➤ α-ray measurement time: 200,000 sec



➤ Concentrations of Pu and Am : below the detection limit (2 mBq cm<sup>-3</sup>)



## Analytical results of <sup>129</sup>I

6

➤ <sup>129</sup>I concentration\*<sup>1</sup> :  $1.6 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$

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

➤ <sup>137</sup>Cs concentration\*<sup>2</sup> :  $1.4 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$   
(reported in the last ARC-F meeting)

The concentrations of total I and total Cs were calculated from the analytical results and the isotope ratios in Unit 1 core\*<sup>3</sup> (78.69 % and 40.27 %, respectively).

- ✓  $I_{(\text{total})}$  :  $2.1 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$
- ✓  $CS_{(\text{total})}$  :  $3.4 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$

Isotope ratios in Unit 1 core\*<sup>3</sup>

I		Cs	
Mass number	Isotope mole ratio (%)	Mass number	Isotope mole ratio (%)
127	18.13	133	41.12
<b>129</b>	<b>78.69</b>	134	2.60
130	0.00	135	15.99
131	2.40	136	0.01
132	0.04	<b>137</b>	<b>40.27</b>
133	0.55		
134	0.03		
135	0.16		

➡ Mole ratio in drain sump pit water\*<sup>4</sup> :  $I_{(\text{total})} / CS_{(\text{total})} = 0.6$

\*<sup>1</sup> : Decay-correction to the time of the accident can be ignored because of the long half-life (15.7 My)

\*<sup>2</sup> : Decay-corrected to the time of the accident

\*<sup>3</sup> : Estimated by ORIGEN2 (JAEA-Data-Code-2012-018 )

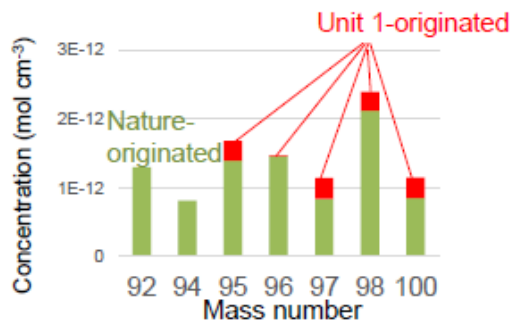
\*<sup>4</sup> : This value may be higher at the time of the accident, because iodine possibly volatilized in this 10 years



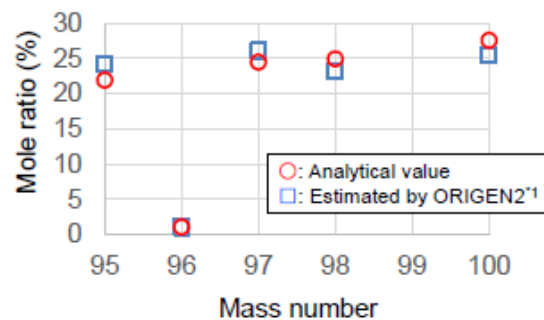
## Analytical results of Mo

7

➤ Concentrations of Mo isotopes



➤ Isotope ratios of Unit1-originated Mo



- ✓ Mo species originated from **Unit 1** and **nature** (e.g. rainwater) coexist in the drain sump pit water.
- ✓ The concentrations of Mo isotopes originated from Unit 1 were estimated by subtracting the nature-originated Mo from the measured concentrations.
- ✓ The concentration of nature-originated Mo isotopes were estimated from natural isotope ratio and the concentration of <sup>92</sup>Mo which is only nature-originated.
- ✓ The obtained isotope ratios agree with the values for Unit 1 core estimated by ORIGEN2 calculation\*<sup>1</sup>.

\*<sup>1</sup> : Estimated by ORIGEN2 (JAEA-Data-Code-2012-018 )



## Ratio of the amount of Mo to that of Cs

8

➤ **Total Mo concentration**\*1 :  $1.3 \times 10^{-12} \text{ mol cm}^{-3}$

✓ Total Cs concentration\*2 :  $3.4 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$

➡ Mole ratio in drain sump pit water :

$$\text{Mo}_{(\text{total})} / \text{Cs}_{(\text{total})} = 0.004$$

✓ The amount of Mo is quite low compared to that of Cs, suggesting that the formation of Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> had been suppressed under the reactor conditions.

Isotope ratios in Unit 1 core\*3

Mo		
Mass number	Half-life	Isotope mole ratio (%)
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 d	0.08
100	$8.5 \times 10^{18} \text{ y}$	27.54

\*1 : Decay-correction to the time of the accident can be ignored because Mo is almost stable.

\*2: Decay-corrected to the time of the accident

\*3 : Estimated by ORIGEN2 (JAEA-Data-Code-2012-018 )

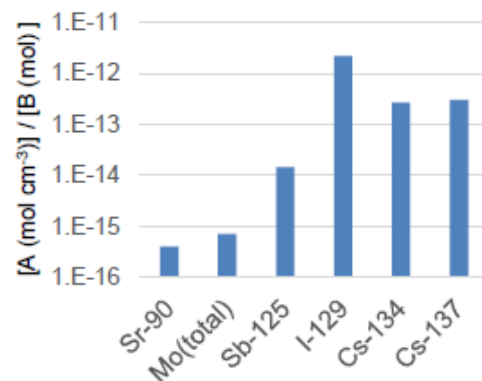


## Concentrations of nuclides

9

➤ Concentrations of nuclides in drain sump pit water and the initial inventories for Unit 1 core

Nuclides	Concentration (mol cm <sup>-3</sup> )*1 [A]	Unit 1 core (mol)*2 [B]
<sup>90</sup> Sr	$1.3 \times 10^{-13}$	$3.3 \times 10^2$
Mo <sub>(total)</sub>	$1.3 \times 10^{-12}$	$1.8 \times 10^3$
<sup>125</sup> Sb	$3.3 \times 10^{-14}$	$2.3 \times 10^0$
<sup>129</sup> I	$1.6 \times 10^{-10}$	$7.3 \times 10^1$
<sup>134</sup> Cs	$8.0 \times 10^{-12}$	$3.0 \times 10^1$
<sup>137</sup> Cs	$1.4 \times 10^{-10}$	$4.6 \times 10^2$



(<sup>99</sup>Tc, Th, U, Pu, Am < D.L.)

✓ The concentrations of nuclides compared to the initial inventories for Unit 1 core :  $^{129}\text{I} > ^{134}\text{Cs} = ^{137}\text{Cs} > ^{125}\text{Sb} > \text{Mo} > ^{90}\text{Sr}$

\*1 : At the time of the accident

\*2 : Estimated by ORIGEN2





➤ **Summary**

- ✓ Pu and Am concentrations : < D.L. (2mBq cm<sup>-3</sup>)
- ✓ <sup>129</sup>I concentration : 1.6 x 10<sup>-10</sup> mol cm<sup>-3</sup>
- ✓ Mo concentration : 1.3 x 10<sup>-12</sup> mol cm<sup>-3</sup>
  
- ✓ The amount of Mo was quite low compared to that of Cs, suggesting that the formation of Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> had been suppressed under the reactor conditions.
- ✓ The concentrations of nuclides compared to the initial inventories for Unit 1 core :  
 $^{129}\text{I} > ^{134}\text{Cs} = ^{137}\text{Cs} > ^{125}\text{Sb} > \text{Mo} > ^{90}\text{Sr}$

➤ **Future work:**

- Analysis of smear samples collected from
- Unit 2 reactor building (floor, wall and back side of stairs)
  - Inside SGTS piping for Unit 1/2
  - SGTS filters in Unit 3



## Status of Task 2a

### Compilation and management of data and information

Tomoyuki Sugiyama  
Nuclear Safety Research Center  
Japan Atomic Energy Agency

This work is funded by the Nuclear Regulation Authority, Japan.



### Data collection (1)

- Database of information sources
  - Websites of TEPCO, METI, NRA, IRID and JAEA are the main sources of sample information.
  - Approximately 2,600 documents were collected.
  - Data categories were extended to cover plant-wise information as well as sample information.
    - A: water samples
    - B: solid samples
    - C: dose rates
    - D: elements and radionuclides other than Cs
    - E: transportation of samples
    - F: containment vessels and reactor buildings
    - G: plant status
    - H: contamination map



## Data collection (2)

---

- Database of samples from units 1 to 4
  - Sample information was collected with the following records.
    - Sampling location and date
    - Sample ID, form, quantity (weight, volume, etc.)
    - URLs to the original information sources
    - Backup URLs to the Fukushima Nuclear Accident Archive managed by JAEA
    - Detected nuclides
  - Records of approximately 300 samples are collected.

2



## Database building

---

- The databases of information sources and samples are provided as CSV files. (So, graphical information on sampling location is missing at the present.)
- Online access to the database with a search function was planned. However, it could not be prepared in the project period, because the database plan has been modified for long-term use and extensive purposes, and determination of its specifications needs more time.
- The database activity is continued in the coming FACE project.

3



## Descriptions on distributed CSV files

### PRG 4.1a JAEA\_Info-Source-DB\_Jan2022.csv

Column A:	Document ID
Column B:	Original document title in Japanese
Column C:	Original or translated document title in English
Columns M-T:	Categories of contents indicated by A-H
Column V:	URL of Japanese document
Column Z:	URL of English document (if available)

### PRG 4.1b JAEA\_Sample-DB\_Jan2022.csv

Column A:	Document ID
Column B:	Original or translated document title in English
Column D:	Sample name or ID
Column E:	Reactor unit
Column F:	Building; R/B=reactor bldg., T/B=turbine bldg.
Column G:	Sampling location
Column H:	Sampling date
Column I:	Sample information such as physical form, weight, etc.
Column J:	Dose rate (if available)
Columns R-AU:	Nuclide information (if available)

4



## Portals of FDNPS information

Information Portal for the Fukushima Daiichi Accident Analysis and Decommissioning Activities  
<https://fdada.info/en/>

TEPCO  
<https://www.tepco.co.jp/en/hd/decommission/information/index-e.html>

METI  
<https://www.meti.go.jp/english/earthquake/nuclear/decommissioning/index.html>

NDF: Information Portal for the Research and Development for the Fukushima Daiichi  
Decommissioning  
<https://www.drd-portal.jp/en/>

International Research Institute for Nuclear Decommissioning (IRID)  
<https://irid.or.jp/en/>

JAEA: Fukushima Daiichi Radwaste Analytical Data Library FRAnDLi  
<https://frandli-db.jaea.go.jp/FRAnDLi/index.php?country=e>

JAEA: Fukushima Nuclear Accident Archive  
<https://f-archive.jaea.go.jp/index.php?locale=eng>

5



## Status of Task 2b

### Radionuclide analyses of on-site smear samples

Yoshihisa Iida

Nuclear Safety Research Center  
Japan Atomic Energy Agency

This work is funded by the Nuclear Regulation Authority (NRA), Japan for supporting the activities of the NRA associated with "The Committee of Accident Analysis of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station".



### Introduction

1

- Radionuclide analyses of various types of samples taken from various locations of the Fukushima Daiichi NPS (1F) are useful and effective to discuss the distribution, release path and chemical speciation of FPs. Obtained data and information assist the improvement and validation of modeling in severe accident analysis codes.
- The Nuclear Regulation Authority of Japan (NRA) investigates the accident at 1F from a reactor safety point of view.
- Taking samples from potentially important locations and analyzing the samples are part of the scope of the NRA activity, and the analyses have been made at the hot laboratories of JAEA.
- The results of the analyses are to be shared by the project partners and stored in the database constructed in task 2 after becoming publicly available.



## Aims of smear sample analysis

2

Radionuclide compositions on the floors and walls of reactor buildings and other structures are analyzed to obtain the following information.



- Comparing the samples collected at **different locations in the same unit**, the information for estimating the [leakage path from the containment vessel to the building](#) and the [migration path inside the building](#) can be obtained.
- Comparing the samples collected at **different units**, the information for estimating the [atmospheric conditions during core damage progression](#) can be obtained.



## Key radionuclides

3

- **Highly and semi-volatile FPs ([Cs-134, Cs-137, I-129, Mo-99\(=>Tc-99\)](#))**
  - ✓ [Cesium](#) and [iodine](#) (mainly <sup>131</sup>I) are important FPs for the consequence analysis of severe accidents.
  - ✓ The analysis for relatively stable <sup>129</sup>I (half-life: 15.7M years) could result in insights on the transport behavior of <sup>131</sup>I (half-life: 8.0 days).
  - ✓ The release of Mo from the fuel is prone to be increased and to possibly form [Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>](#) as the major chemical form of Cs under the oxidizing atmospheric conditions with sufficient water vapor inside the reactor vessel.
- **Lower volatile FPs ([Sr-90](#)) and actinides ([Th, U, Pu, Am](#))**
  - ✓ The release of these radionuclides was expected to be low due to their vapor pressures, but possibly to be generated as entrained fine particles (aerosols) in case that MCCI progressed under a dry condition.

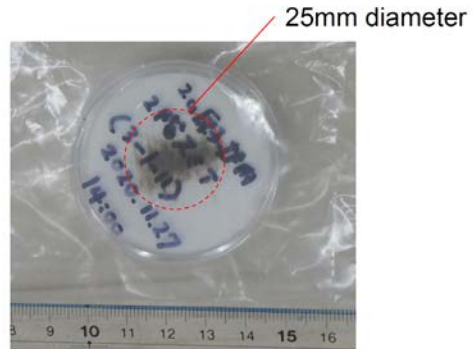


Smear samples - overview -

4

Smear samples collected from 1<sup>st</sup> - 5<sup>th</sup> floor in **Unit 2 reactor building** (floor, wall and back side of stairs): 14 samples

Sample ID	Sampling point
U2RB-5FW	Wall (5F)
U2RB-5FF	Floor (5F)
U2RB-4FW	Wall (4F)
U2RB-4FF	Floor (4F)
U2RB-4FS	Stairs (4F)
U2RB-3FW	Wall (3F)
U2RB-3FF	Floor (3F)
U2RB-3FS	Stairs (3F)
U2RB-2FW	Wall (2F)
U2RB-2FF	Floor (2F)
U2RB-2FS	Stairs (2F)
U2RB-1FW	Wall (1F)
U2RB-1FF	Floor (1F)
U2RB-1FS	Stairs (1F)



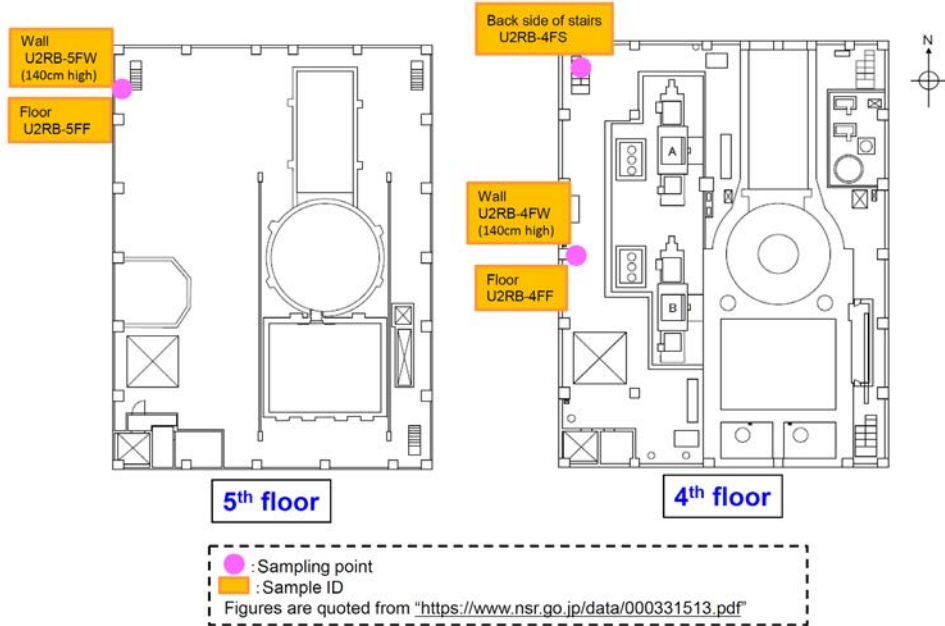
**4 samples shown in red were prioritized for analysis.**  
 -5<sup>th</sup> floor: effect of radionuclide release from the top head flange  
 -1<sup>st</sup> floor: effect of radionuclide release from penetrations (see p.6)  
 -4<sup>th</sup> floor: comparison with the above samples



Smear samples - sampling point (1/2) -

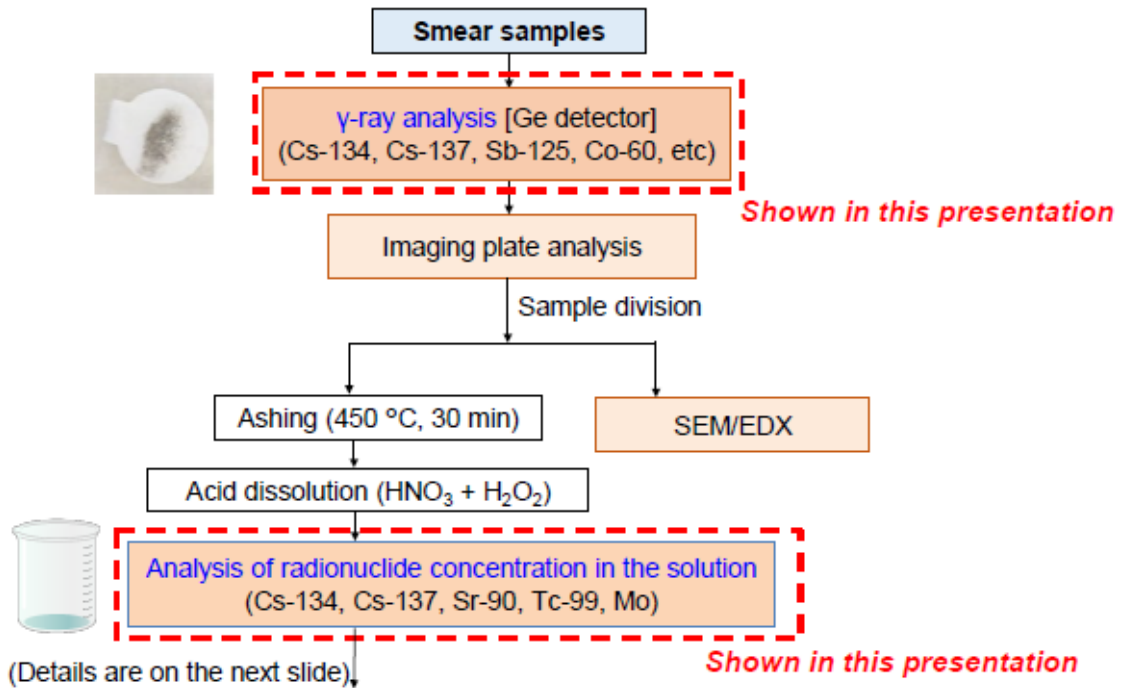
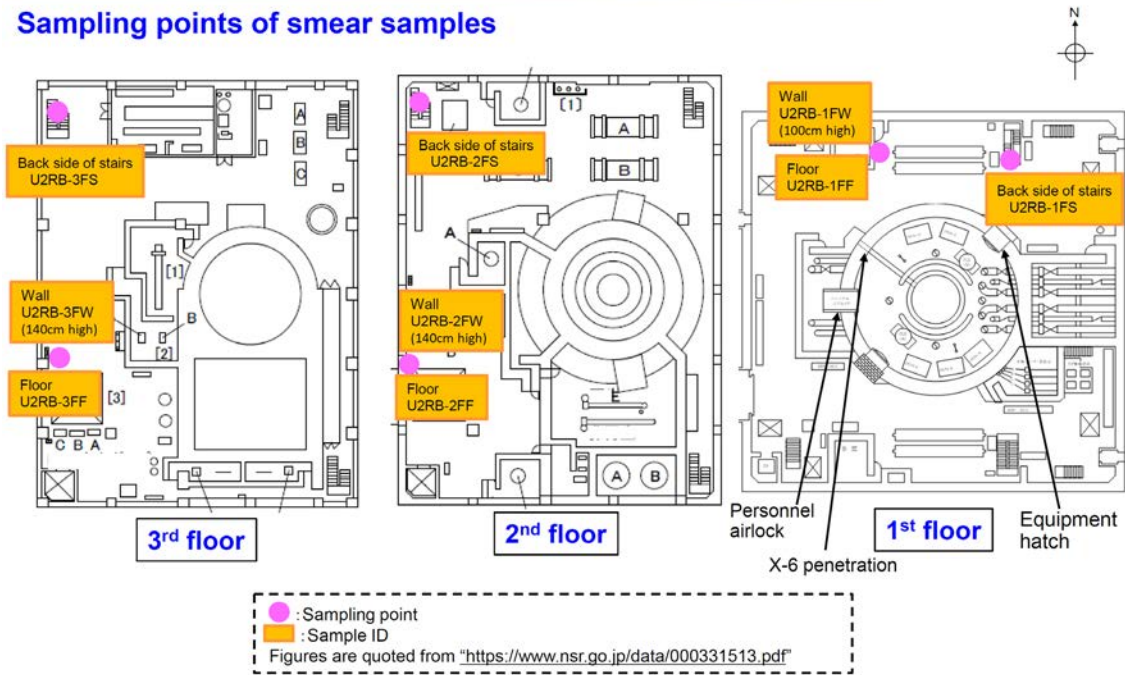
5

Sampling points of smear samples

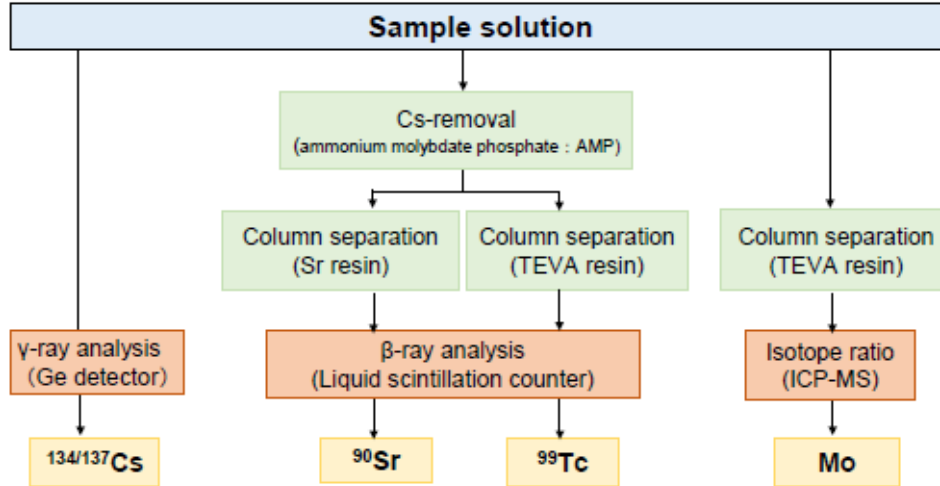




Sampling points of smear samples



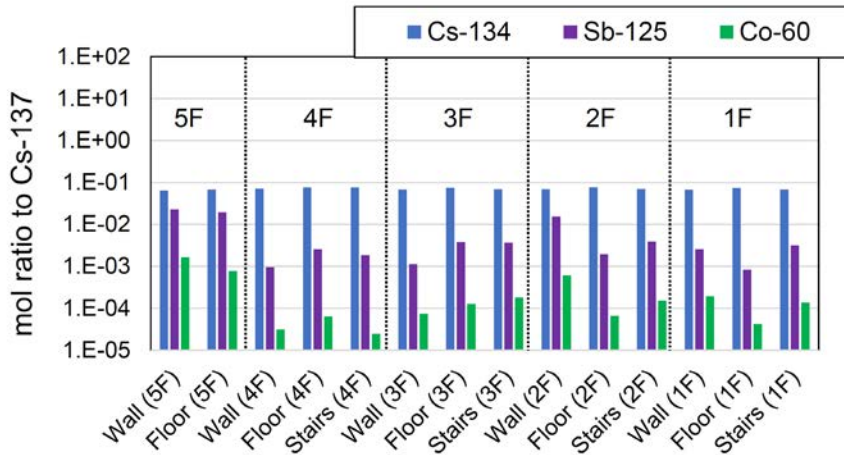




➤ Unit 2 reactor building

mol ratio to Cs-137 = [mol amount of radionuclide\*] / [mol amount of Cs-137\*]

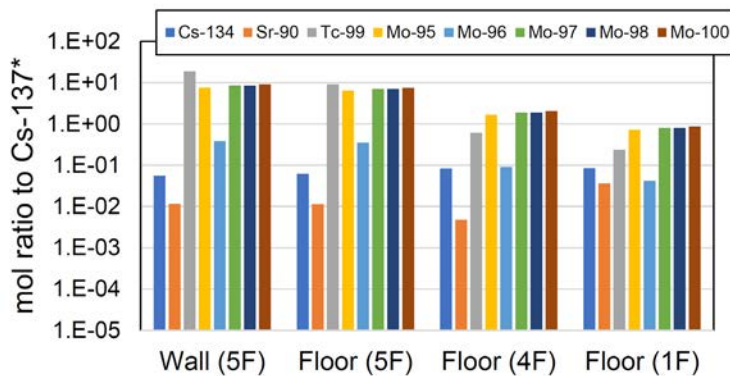
\* : Decay-corrected to the time of the accident



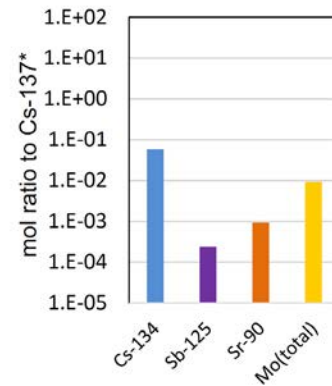
- Amount of radionuclides: Cs-134 > Sb-125 > Co-60
- Significant tendency or systematicity cannot be observed



➤ Unit 2 reactor building



Drain sump pit water at the base of Unit 1/2 common stack (reported in the last meeting)



\* : Decay-corrected to the time of the accident

- For Unit 2 reactor building, compared to the drain sump pit water at the base of Unit 1/2 common stack (originating from Unit 1),
  - The ratio of Sr-90 is about one order of magnitude higher
  - The ratio of Tc and Mo, which are easily released as oxides, are significantly higher



➤ Summary

- ✓ Smear samples were collected from Unit 2 reactor building, and analyzed to quantify  $\gamma$ -nuclides (Cs-137, Cs-134, Sb-125, Co-60).
- ✓ After acid dissolution,  $\gamma$ -nuclides,  $\beta$ -nuclides (Sr-90, Tc-99) and Mo isotopes were analyzed for 4 high-priority samples.
- ✓ The results for Unit 2 reactor building differed significantly from the results for the drain sump pit water at the base of Unit 1/2 common stack (originating from Unit 1).

➡ Tc-99 and Mo isotopes which are easily released as oxides, and Sr-90 are present in high proportions.

➤ Future work:

- ✓ Continuation of radionuclide analysis
- ✓ SEM/EDX analysis of smear samples

## 2.5 関連情報の収集

関連情報の収集においては、ARC-F プロジェクト会合に出席し、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 秋の大会に参加し、以下の情報を入手した。

福島第一原子力発電所2号機のトーラス室の滞留水に含まれる $\alpha$ 核種分析についてシリーズ発表があった[2.5-1]～[2.5-4]。それによると、汚染水をフィルターの孔径を変えてろ過したところ、U及び $\alpha$ 核種の大部分は10 $\mu\text{m}$ 以上の分級成分に含まれ、これらは床部に沈殿していると考えられる。また、Uは2号炉由来でUを主成分とする微粒子状物質であるのに対し、Puなどは鉄酸化物粒子に付着していた。孔径10 $\mu\text{m}$ のフィルターから検出された $\alpha$ 核種は $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{242}\text{Cm}$ 及び $^{244}\text{Cm}$ で、ろ液から検出された $\alpha$ 核種は $^{238}\text{Pu}$ と $^{241}\text{Am}$ であった。

### 参考文献

- [2.5-1] 北辻章浩, 大内和希, 蓬田 匠, 岡 壽崇, 二田郁子, 比内 浩, 駒 義和, 今野勝弘; 福島第一原子力発電所2号機トーラス室滞留水の $\alpha$ 核種分析. (1) 固形分に含まれる $\alpha$ 核種の存在形態分析の概要. 日本原子力学会2021年秋の大会予稿集, 1A05 (2021).
- [2.5-2] 大内和希, 蓬田匠, 岡壽崇, 北辻章浩, 駒義和, 今野勝弘; 福島第一原子力発電所2号機トーラス室滞留水の $\alpha$ 核種分析. (2) ICP-MSによる固形分の $\alpha$ 核種分析. 日本原子力学会2021年秋の大会予稿集, 1A06 (2021).
- [2.5-3] 二田郁子, 比内浩, 柴田淳広, 駒義和; 福島第一原子力発電所2号機トーラス室滞留水の $\alpha$ 核種分析. (3) $\alpha$ 及び $\gamma$ 線スペクトロメトリによる核種, ICP-AESによる元素組成の分析. 日本原子力学会2021年秋の大会予稿集, 1A07 (2021).
- [2.5-4] 蓬田 匠, 大内 和希, 岡 壽崇, 北辻 章浩, 駒 義和, 今野 勝弘; (4)SEM-EDX及びアルファトラック法による $\alpha$ 核種を含有する微粒子の検出. 日本原子力学会2021年秋の大会予稿集, 1A08 (2021).

### 3. 1F 事故分析検討会に係る実施項目

#### 3.1 1F 試料分析

##### 3.1.1 スミヤ試料分析

###### 3.1.1.1 目的

本研究では、1F-1号機から3号機の炉心損傷進展時における雰囲気条件等の違いを推定することを目的として、格納容器から建屋への漏洩経路や建屋内の移行経路を推定するための情報やSGTSフィルター上流側と下流側の比較（格納容器ベントにより放出された気体中に含まれる核種特性の把握）等の知見を蓄積するために、2号機原子炉建屋、1/2号機SGTS管内部、3号機SGTS室フィルター（A系/B系）から採取したスミヤ試料の分析試験を実施した。

###### 3.1.1.2 スミヤ試料の概要

2号機原子炉建屋内の壁、床、階段裏から採取されたスミヤ試料（14試料、2020年10月8日採取）の内訳を表3.1.1.2-1に示す。また、図3.1.1.2-1に2号機原子炉建屋内スミヤ試料の採取場所を示す。採取時の様子はWEBサイトに公開されている

（<https://www.youtube.com/watch?v=xgN2kCOrn9k>） [3.1.1-1]。

1/2号機SGTS配管内部から採取されたスミヤ試料（1試料、2020年5月20日採取）を表3.1.1.2-2に示す。また、図3.1.1.2-2にスミヤ採取場所を示す[3.1.1-2]。

3号機SGTS室のフィルターから採取されたスミヤ試料（A系10試料、2020年11月9日採取/B系13試料、2020年11月16日採取）の内訳を表3.1.1.2-3に示す。スミヤ紙の外観写真を図3.1.1.2-3~図3.1.1.2-6に示す。

表 3.1.1.2-1 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  
(14 試料、2020 年 10 月 8 日採取)

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

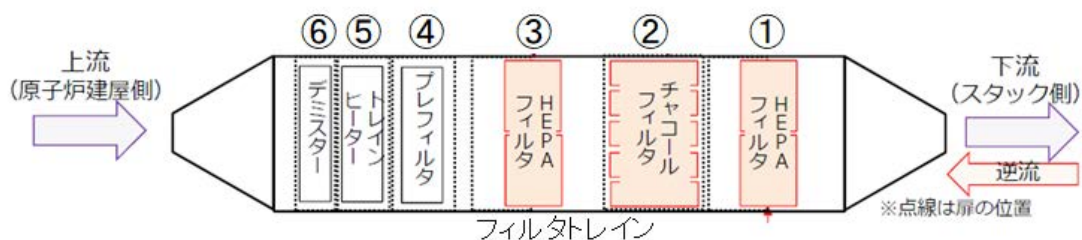
表 3.1.1.2-2 1/2 号機 SGTS 配管内部から採取されたスミヤ試料  
(1 試料、2020 年 5 月 20 日採取)

試料番号	採取場所
U12SGS	1/2 号機 SGTS 配管内部

表 3.1.1.2-3 3号機 SGTS 室のフィルターから採取されたスミヤ試料

(A系 10 試料、2020 年 11 月 9 日採取/B系 13 試料、2020 年 11 月 16 日採取)

試料番号	採取場所 (SGTS A系)	試料番号	採取場所 (SGTS B系)
U3SGF-A1-1	高性能フィルター上流 ①-1	U3SGF-B1-1	高性能フィルター上流 ①-1
U3SGF-A2-1	チャコールフィルター 最上段上流 ②-1	U3SGF-B2-1	チャコールフィルター 最上段上流 ②-1
U3SGF-A2-2	チャコールフィルター 最上段下流 ②-2	U3SGF-B2-2	チャコールフィルター 最上段下流 ②-2
U3SGF-A2-3	チャコールフィルター 最下段上流 ②-3	U3SGF-B2-3	チャコールフィルター 最下段上流 ②-3
U3SGF-A2-4	チャコールフィルター 最下段下流 ②-4	U3SGF-B2-4	チャコールフィルター 最下段下流 ②-4
U3SGF-A3-1	高性能フィルター上流 ③-1	U3SGF-B3-1	高性能フィルター上流 ③-1
U3SGF-A4-1	プレフィルター上流 ④-1	U3SGF-B4-1	プレフィルター上流 ④-1
U3SGF-A4-2	プレフィルター下流 ④-2	U3SGF-B4-2	プレフィルター下流 ④-2
		U3SGF-B5-1	トレインヒーター機器表面 ⑤
U3SGF-A6-1	デミスター上流 ⑥-1	U3SGF-B6-1	デミスター上流 ⑥-1
U3SGF-A6-2	デミスター下流 ⑥-2	U3SGF-B6-2	デミスター下流 ⑥-2
		U3SGF-B7	チャコールフィルター表面 ②
		U3SGF-B8	プレフィルター表面 ④



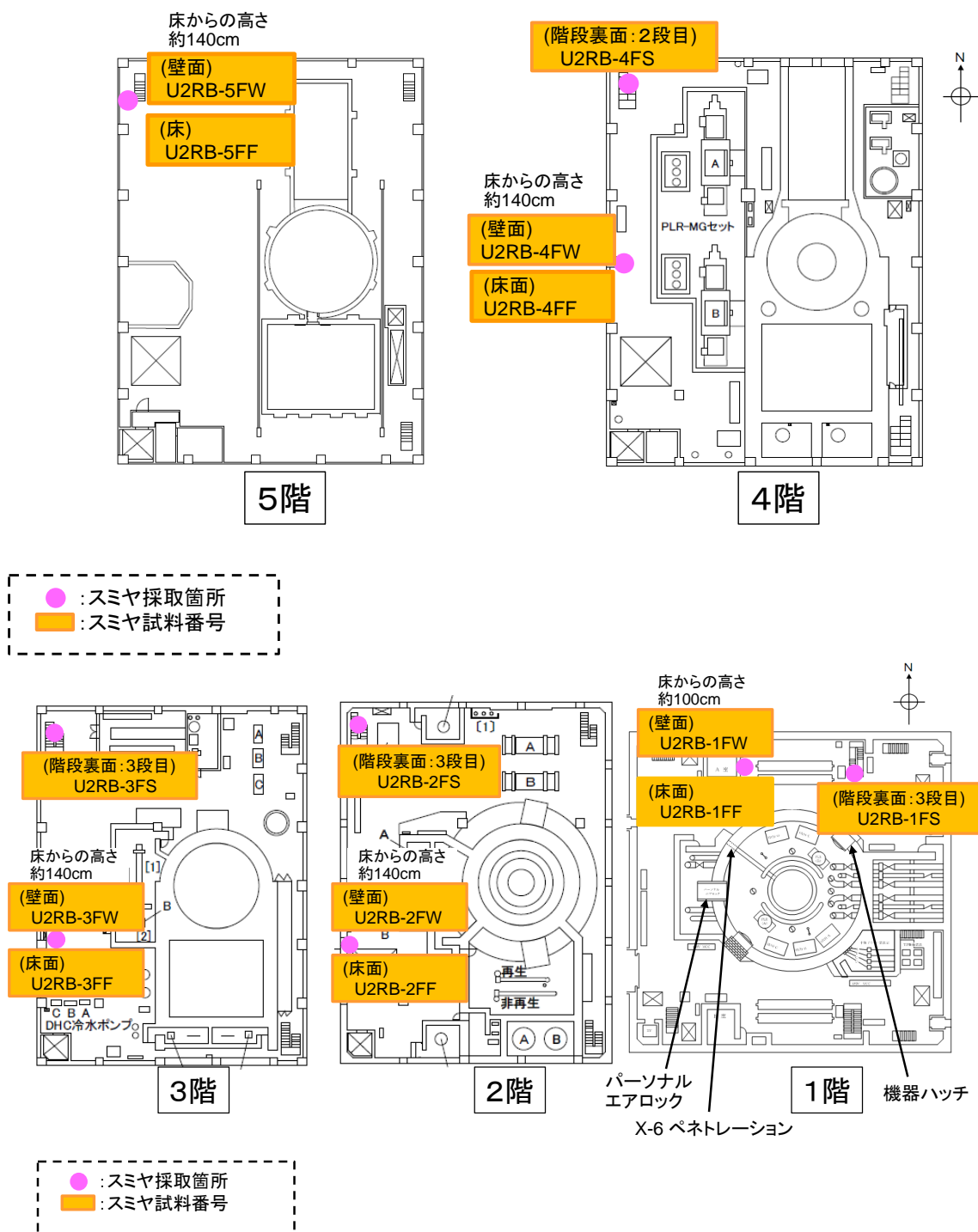
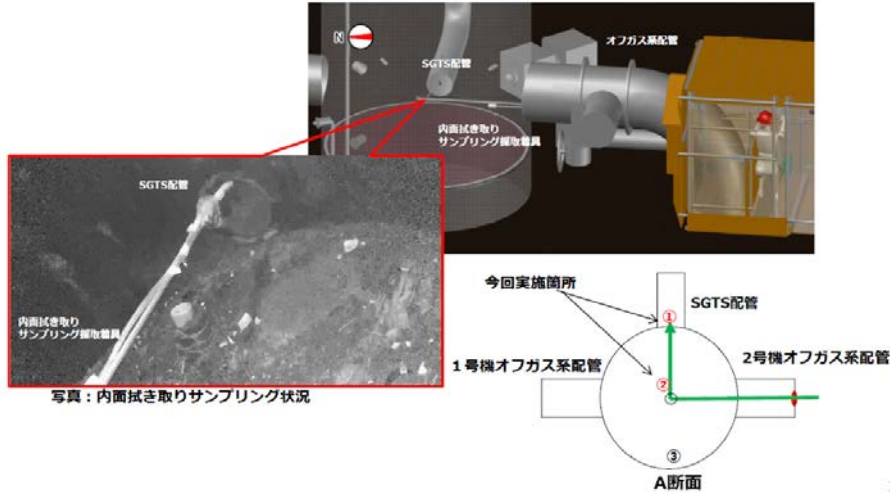


図 3.1.1.2-1 2号機原子炉建屋内スミヤ試料の採取場所

## 6. SGTS配管内部調査について

### (1) 内面拭き取りサンプリング

- ・配管穿孔箇所（直径約10cm）より操作ポールを排気筒内部へ挿入し、SGTS配管内面の拭き取り（スマヤろ紙による）サンプリングを実施。



11

## SGTS配管撤去に向けた現場調査について

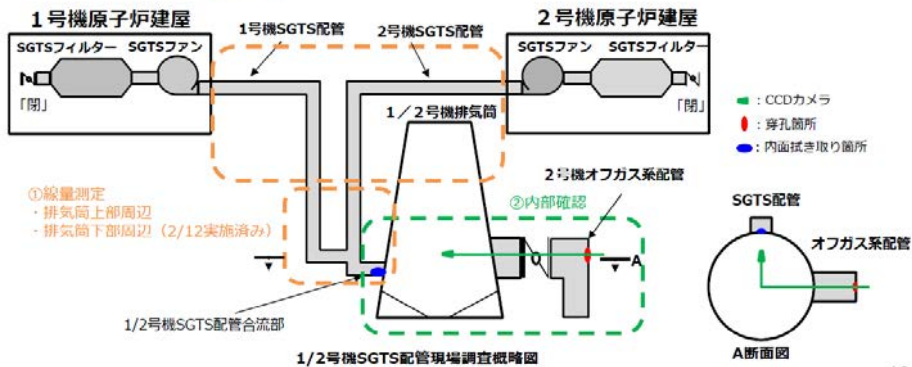
### ■ 調査内容

#### ①線量測定

- ・SGTS配管周辺の線量測定を実施する。

#### ②内部確認

- ・SGTS配管内部に雨水等の流入がある場合、撤去時に雨水等の流入水の対策が必要になるため、雨水等の流入の有無を確認する。
- ・福島第一原子力発電所事故過程の解明に資する調査や、1/2号機排気筒ドレンサンプピット水の放射能濃度が高濃度のまま継続している原因調査の観点から内面拭き取り等のサンプルの採取を行う。



16

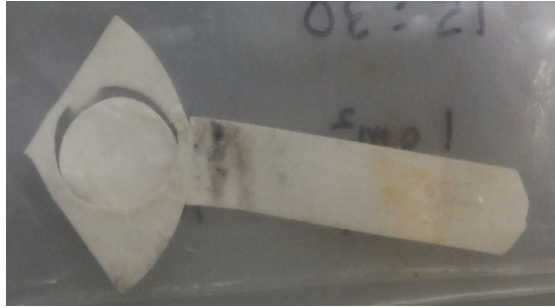
図 3.1.1.2-2 1/2号機 SGTS 配管内部のスマヤ採取場所[3.1.1-2]



A circular white filter paper with a dark, irregular smudge in the lower-left quadrant.	A circular white filter paper with a light brown, irregular smudge in the lower-right quadrant.	A circular white filter paper with a dark, vertical smudge in the center.
A circular white filter paper with a dark, irregular smudge in the lower-left quadrant.	A circular white filter paper with a dark, irregular smudge in the lower-left quadrant.	A circular white filter paper with a dark, irregular smudge in the lower-left quadrant.
A circular white filter paper with a dark, irregular smudge in the lower-left quadrant.	A circular white filter paper with a dark, irregular smudge in the lower-left quadrant.	A circular white filter paper with a very faint, light brown smudge in the center.
A circular white filter paper with a dark, irregular smudge in the lower-left quadrant.	A circular white filter paper with a dark, irregular smudge in the lower-left quadrant.	A circular white filter paper with a dark, irregular smudge in the lower-left quadrant.
A circular white filter paper with a dark, vertical smudge in the center.	A circular white filter paper with a light brown, irregular smudge in the lower-right quadrant.	


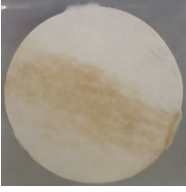


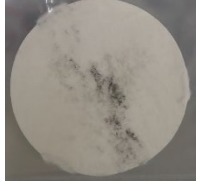
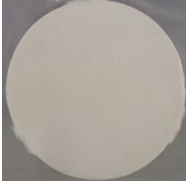
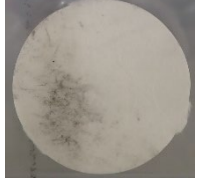

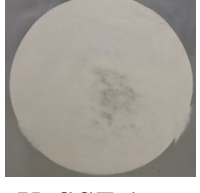

ろ紙サイズ：25mm

図 3.1.1.2-3 2号機原子炉建屋内から採取したスミヤ試料の外観



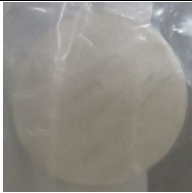
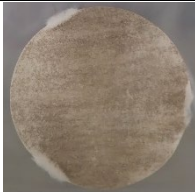
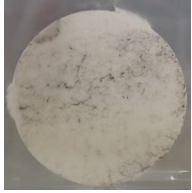
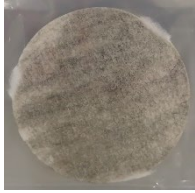






ろ紙サイズ：約 17mm

図 3.1.1.2-4 1/2 号機 SGTS 配管内部から採取されたスミヤ試料の外観

 <p>U3SGF-A1-1 高性能フィルター上流 ①-1</p>	 <p>U3SGF-A3-1 高性能フィルター上流 ③-1</p>
 <p>U3SGF-A2-1 チャコールフィルター最上段上流 ②-1</p>	 <p>U3SGF-A4-1 プレフィルター上流 ④-1</p>
 <p>U3SGF-A2-2 チャコールフィルター最上段下流 ②-2</p>	 <p>U3SGF-A4-2 プレフィルター下流 ④-2</p>
 <p>U3SGF-A2-3 チャコールフィルター最下段上流 ②-3</p>	 <p>U3SGF-A6-1 デミスター上流 ⑥-1</p>
 <p>U3SGF-A2-4 チャコールフィルター最下段下流 ②-4</p>	 <p>U3SGF-A6-2 デミスター下流 ⑥-2</p>

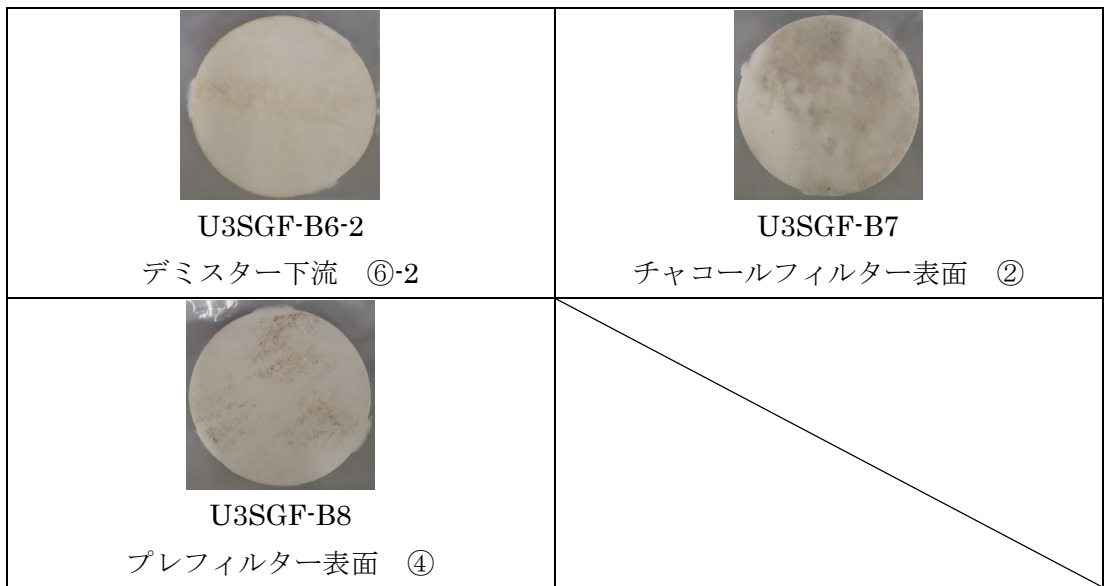
ろ紙サイズ：50mm

図 3.1.1.2-5 3号機 SGTS 室のフィルター (A系) から採取したスミヤ試料の外観

 <p>U3SGF-B1-1 高性能フィルター上流 ①-1</p>	 <p>U3SGF-B3-1 高性能フィルター上流 ③-1</p>
 <p>U3SGF-B2-1 高性能フィルター上流 ①-1</p>	 <p>U3SGF-B4-1 プレフィルター上流 ④-1</p>
 <p>U3SGF-B2-2 チャコールフィルター最上段下流 ②-2</p>	 <p>U3SGF-B4-2 プレフィルター下流 ④-2</p>
 <p>U3SGF-B2-3 チャコールフィルター最下段上流 ②-3</p>	 <p>U3SGF-B5-1 トレインヒーター機器表面 ⑤</p>
 <p>U3SGF-B2-4 チャコールフィルター最下段下流 ②-4</p>	 <p>U3SGF-B6-1 デミスター上流 ⑥-1</p>

ろ紙サイズ：50mm

図 3.1.1.2-6( 3号機 SGTS 室のフィルター (B系) から採取したスミヤ試料の外観 (1/2)



ろ紙サイズ：50mm

図 3.1.1.2-6 3号機 SGTS 室のフィルター（B系）から採取したスミヤ試料の外観  
(2/2)

### 3.1.1.3 分析

#### (1)分析フロー

スミヤ試料の核種分析の分析フローを図 3.1.1.3(1)-1 に示す。スミヤ試料について Ge 半導体検出器を用いたガンマ線核種分析、スミヤ試料内の放射能分布確認のためイメージングプレート分析を実施した。また、一部の試料について各試料を分割し、分割後の一部の試料について酸により溶液化させ溶液中の核種分析を実施するとともに、分割後の一部の試料について走査型電子顕微鏡（SEM）を用いた表面観察及び元素分析（EDS）を実施した。

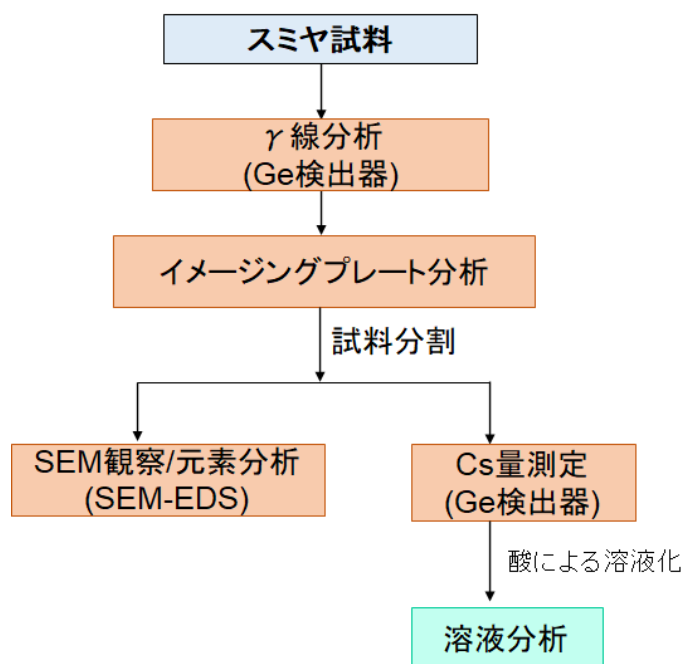


図 3.1.1.3(1)-1 分析フロー

## (2) ガンマ線核種分析

2号機原子炉建屋、1/2号機SGTS管内部、3号機SGTS室フィルター（A系/B系）から採取したスミヤ試料に対してGe分析を用いたガンマ線核種分析を実施した。微量核種の存在有無を把握するために測定時間は20時間とした。2号機原子炉建屋のスミヤ試料は輸送時にシャーレに封入されており、シャーレに入れた状態で測定した。

2号機建屋から採取したスミヤ試料のGe分析結果を図3.1.1.3(2)-1(a)~図3.1.1.3(2)-1(n)、1/2号機SGTS配管内部スミヤ試料のGe分析結果を図3.1.1.3(2)-2、3号機SGTS室のフィルターから採取したスミヤ試料のGe分析結果を図3.1.1.3(2)-3(a)~図3.1.1.3(w)-3(23)に示す。定量評価したものをそれぞれ表3.1.1.3(2)-1~表3.1.1.3(2)-4に示す。図3.1.1.3(2)-4~図3.1.1.3(2)-7は、核種濃度、 $^{137}\text{Cs}$ のモル比で規格化した値を示す。測定された核種は $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{60}\text{Co}$ であった。 $^{125}\text{Sb}$ は、2号機建屋において $^{137}\text{Cs}$ モル比で1/100~1/1000程度、3号機SGTS室フィルターにおいて $^{137}\text{Cs}$ モル比で1/10~1/1000程度であった。図3.1.1.3(2)-8は、減衰補正により事故時に換算した $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ の放射能濃度の関係を示す。同図には、ORIGEN2解析結果[3.1.1-3]も併せて示す。これより2号機建屋から採取したスミヤ試料のCs-134/Cs-137比は、2号機のORIGEN2解析結果と近い値を示した。図3.1.1.3(2)-9は、減衰補正により事故時に換算した $^{125}\text{Sb}$ と $^{137}\text{Cs}$ の放射能濃度の関係、図3.1.1.3(2)-10は、減衰補正により事故時に換算した $^{60}\text{Co}$ と $^{137}\text{Cs}$ の放射能濃度の関係を示す。 $^{137}\text{Cs}$ の増加に伴い $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{60}\text{Co}$ の両者とも増加する傾向が得られた。ただし、 $^{60}\text{Co}$ はORIGEN2解析結果と比較して、その傾きは顕著に大きいように見えるが、これは構造材由来の $^{60}\text{Co}$ も含まれるためと考えられた。

表 3.1.1.3(2)-1 2号機原子炉建屋から採取したスミヤ試料の核種濃度  
(シャーレを含む状態で測定、測定時間：20 時間)

2号機原子炉建屋		核種濃度 [Bq]			
		<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>125</sup> Sb	<sup>60</sup> Co
U2RB-5FW	5階壁面	1.0E+03 ±8.8E-01	2.5E+04 ±6.2E+00	1.1E+03 ±1.9E+00	4.5E+01 ±2.6E-01
U2RB-5FF	5階床面	1.7E+02 ±3.6E-01	4.0E+03 ±2.5E+00	1.5E+02 ±7.4E-01	3.4E+00 ±7.3E-02
U2RB-4FW	4階壁面	7.7E+02 ±7.6E-01	1.8E+04 ±5.3E+00	3.3E+01 ±1.6E+00	6.1E-01 ±6.7E-02
U2RB-4FF	4階床面	8.9E+03 ±8.8E+00	1.9E+05 ±6.0E+01	9.3E+02 ±1.7E+01	1.3E+01 ±5.6E-01
U2RB-4FS	4階階段裏面	2.6E+03 ±4.7E+00	5.7E+04 ±3.2E+01	2.0E+02 ±9.5E+00	1.5E+00 ±3.0E-01
U2RB-3FW	3階壁面	2.7E+02 ±4.5E-01	6.5E+03 ±3.2E+00	1.4E+01 ±8.8E-01	5.2E-01 ±3.7E-02
U2RB-3FF	3階床面	4.0E+03 ±5.9E+00	8.9E+04 ±4.1E+01	6.4E+02 ±1.0E+01	1.2E+01 ±4.9E-01
U2RB-3FS	3階階段裏面	3.7E+01 ±1.7E-01	8.6E+02 ±1.2E+00	6.0E+00 ±2.9E-01	1.7E-01 ±2.2E-02
U2RB-2FW	2階壁面	5.9E+01 ±2.1E-01	1.4E+03 ±1.5E+00	4.1E+01 ±4.3E-01	9.2E-01 ±4.0E-02
U2RB-2FF	2階床面	1.8E+04 ±1.2E+01	3.8E+05 ±8.4E+01	1.4E+03 ±2.4E+01	2.7E+01 ±8.4E-01
U2RB-2FS	2階階段裏面	8.7E+01 ±2.5E-01	2.0E+03 ±1.8E+00	1.5E+01 ±4.5E-01	3.3E-01 ±2.8E-02
U2RB-1FW	1階壁面	7.0E+01 ±2.3E-01	1.7E+03 ±1.6E+00	8.3E+00 ±4.4E-01	3.5E-01 ±3.0E-02
U2RB-1FF	1階床面	1.9E+04 ±1.3E+01	4.2E+05 ±8.9E+01	6.6E+02 ±2.7E+01	1.9E+01 ±7.4E-01
U2RB-1FS	1階階段裏面	1.2E+02 ±3.0E-01	2.8E+03 ±2.1E+00	1.7E+01 ±5.1E-01	4.2E-01 ±3.2E-02

表 3.1.1.3(2)-2 1/2 号機 SGTS 管内部から採取したスミヤ試料の核種濃度

U12SGS	1/2 号機 SGTS 配管内部	核種濃度 [Bq]			
		<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>125</sup> Sb	<sup>60</sup> Co
		2.7E+03 ± 4.9E+00	7.4E+04 ± 3.7E+01	-	-



表 3.1.1.3(2)-3 3号機 SGTS 室フィルター (A系) から採取したスミヤ試料の核種濃度

3号機 SGTS 室フィルター (A系)		核種濃度 [Bq]			
		<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>125</sup> Sb	<sup>60</sup> Co
U3SGF-A1-1	高性能フィルター上流 ①-1	2.6E+01 ±1.4E-01	6.7E+02 ±1.0E+00	-	-
U3SGF-A2-1	チャコールフィルター最上段上流 ②-1	1.4E+00 ±3.6E-02	3.7E+01 ±2.4E-01	2.0E+00 ±8.6E-02	-
U3SGF-A2-2	チャコールフィルター最上段下流 ②-2	5.4E-01 ±2.8E-02	1.3E+01 ±1.5E-01	2.5E+00 ±7.7E-02	-
U3SGF-A2-3	チャコールフィルター最下段上流 ②-3	1.9E+00 ±4.3E-02	5.0E+01 ±2.8E-01	-	-
U3SGF-A2-4	チャコールフィルター最下段下流 ②-4	2.3E+00 ±4.4E-02	6.3E+01 ±3.2E-01	-	-
U3SGF-A3-1	高性能フィルター上流 ③-1	6.4E+01 ±2.3E-01	1.8E+03 ±1.7E+00	1.1E+01 ±4.8E-01	8.0E-01 ±3.7E-02
U3SGF-A4-1	プレフィルター上流 ④-1	8.1E+01 ±2.5E-01	2.3E+03 ±1.9E+00	1.2E+01 ±5.5E-01	9.7E-01 ±4.4E-02
U3SGF-A4-2	プレフィルター下流 ④-2	9.3E+00 ±8.6E-02	2.7E+02 ±6.6E-01	-	8.4E-02 ±2.0E-02
U3SGF-A6-1	デミスター上流 ⑥-1	8.2E+02 ±8.0E-01	2.2E+04 ±6.0E+00	2.8E+01 ±2.3E+00	2.5E+00 ±8.3E-02
U3SGF-A6-2	デミスター下流 ⑥-2	8.3E+01 ±2.6E-01	2.4E+03 ±2.0E+00	5.5E+00 ±9.0E-01	3.8E-01 ±3.3E-02

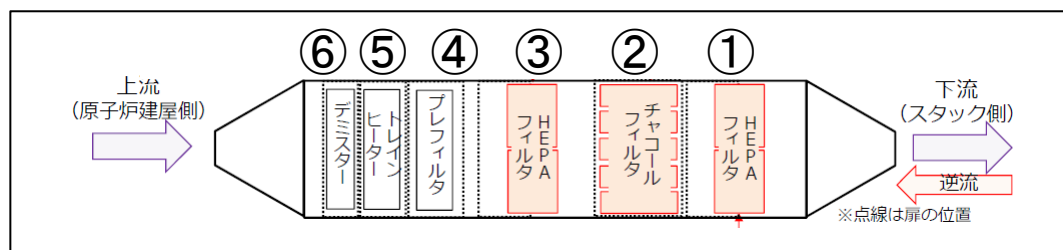
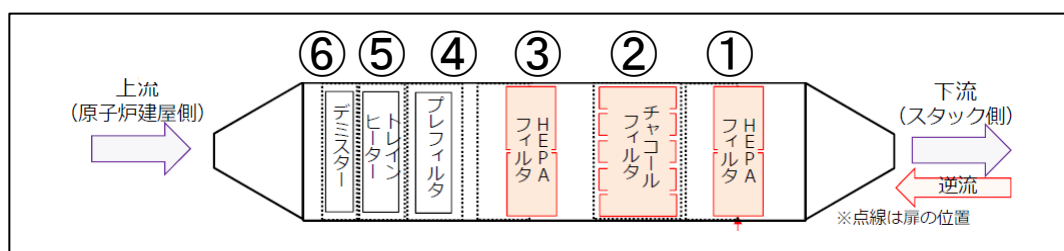


表 3.1.1.3(2)-4 3号機 SGTS 室フィルター (B系) から採取したスミヤ試料の核種濃度

3号機 SGTS 室フィルター (B系)		核種濃度 [Bq]			
		<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>125</sup> Sb	<sup>60</sup> Co
U3SGF-B1-1	高性能フィルター上流 ①-1	1.1E+02 ±2.9E-01	2.7E+03 ±2.1E+00	-	-
U3SGF-B2-1	チャコールフィルター最上段上流 ②-1	1.1E+00 ±3.3E-02	3.1E+01 ±2.2E-01	1.2E+00 ±7.7E-02	-
U3SGF-B2-2	チャコールフィルター最上段下流 ②-2	1.6E+00 ±3.8E-02	4.1E+01 ±2.6E-01	2.6E+00 ±9.1E-02	-
U3SGF-B2-3	チャコールフィルター最下段上流 ②-3	4.4E+01 ±1.8E-01	1.1E+03 ±1.3E+00	-	-
U3SGF-B2-4	チャコールフィルター最下段下流 ②-4	1.3E+01 ±1.0E-01	3.2E+02 ±7.2E-01	-	-
U3SGF-B3-1	高性能フィルター上流 ③-1	1.1E+02 ±3.0E-01	3.0E+03 ±2.2E+00	1.5E+01 ±6.1E-01	1.9E+00 ±5.7E-02
U3SGF-B4-1	プレフィルター上流 ④-1	8.0E+00 ±8.0E-02	2.1E+02 ±5.9E-01	-	-
U3SGF-B4-1	プレフィルター下流 ④-2	3.6E+01 ±1.7E-01	9.8E+02 ±1.3E+00	1.1E+01 ±3.1E-01	1.1E+00 ±4.1E-02
U3SGF-B5-1	トレインヒーター機器表面 ⑤	6.2E+01 ±2.2E-01	1.6E+03 ±1.6E+00	-	2.1E-01 ±2.7E-02
U3SGF-B6-1	デミスター上流 ⑥-1	8.9E+02 ±8.3E-01	2.4E+04 ±6.2E+00	5.4E+01 ±1.6E+00	4.3E+00 ±9.2E-02
U3SGF-B6-2	デミスター下流 ⑥-2	1.3E+02 ±3.2E-01	3.5E+03 ±2.4E+00	-	5.6E-01 ±3.6E-02
U3SGF-B7	チャコールフィルター表面 ②	5.6E+02 ±6.6E-01	1.4E+04 ±4.8E+00	-	-
U3SGF-B8	プレフィルター表面 ④	2.7E+02 ±4.6E-01	7.3E+03 ±3.4E+00	-	-



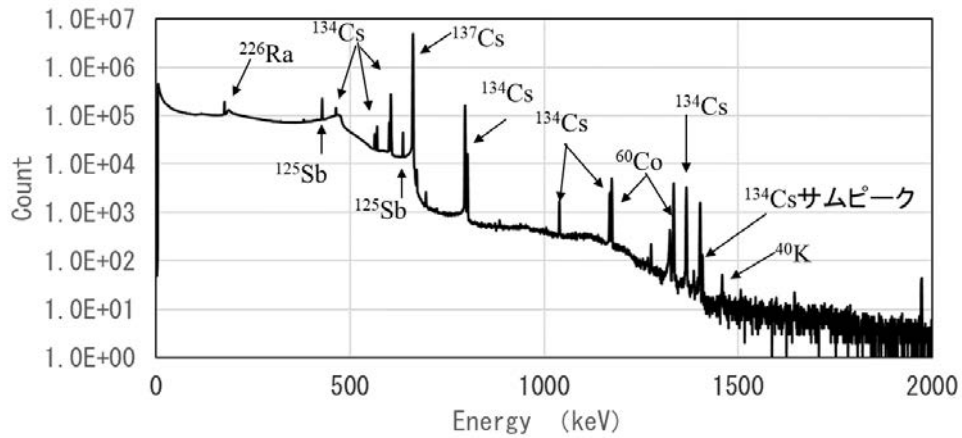


図 3.1.1.3(2)-1(a) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-5FW、5階壁面) の Ge 分析結果

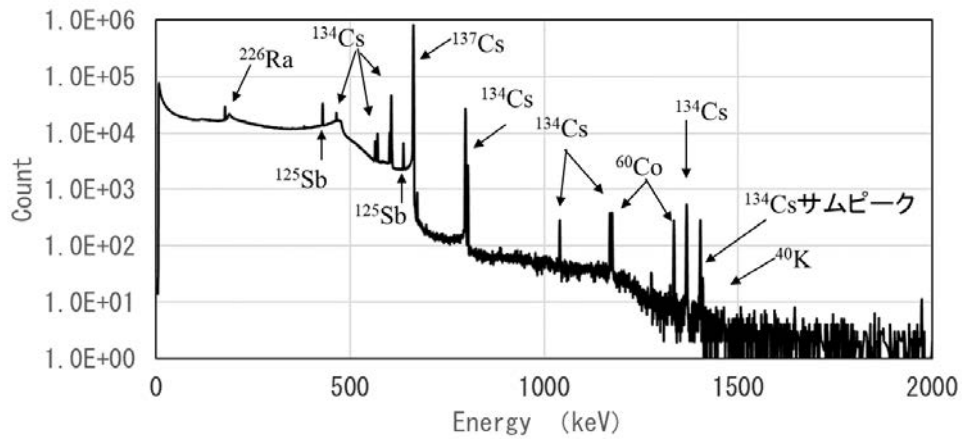


図 3.1.1.3(2)-1(b) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-5FF、5階床面) の Ge 分析結果

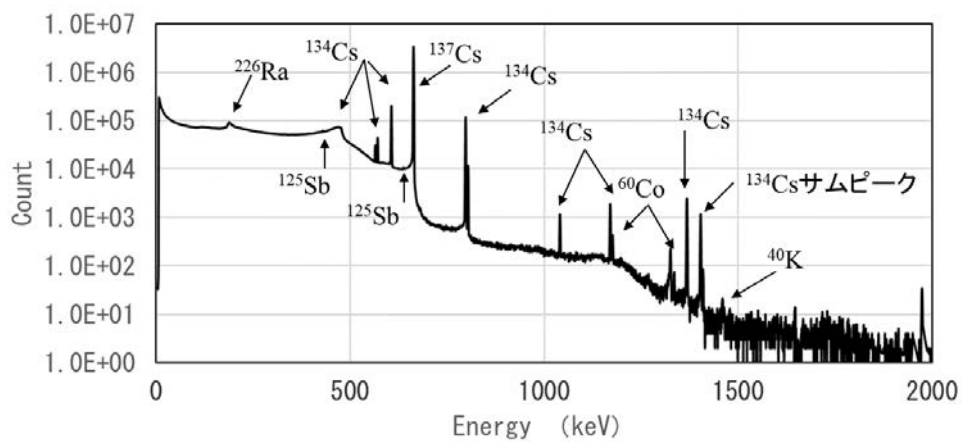


図 3.1.1.3(2)-1(c) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-4FW、4階壁面) の Ge 分析結果

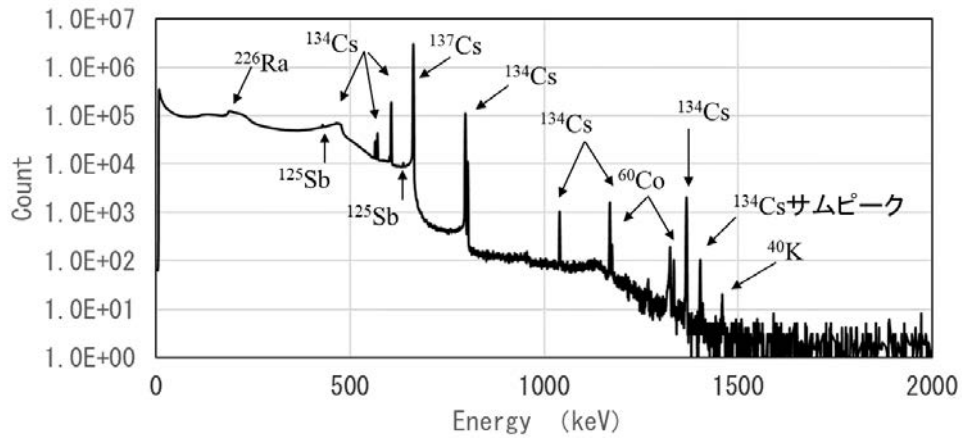


図 3.1.1.3(2)-1(d) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-4FF、4階床面) の Ge 分析結果

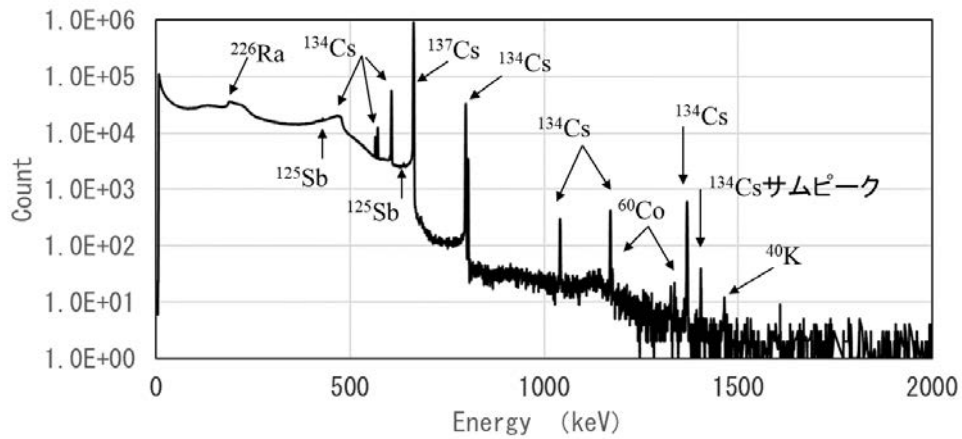


図 3.1.1.3(2)-1(e) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-4FS、4階階段裏面) の Ge 分析結果

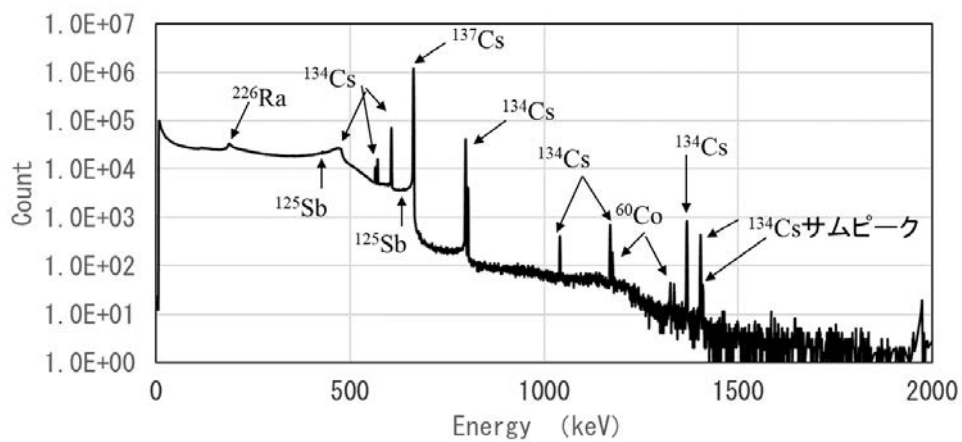


図 3.1.1.3(2)-1(f) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-3FW、3階壁面) の Ge 分析結果

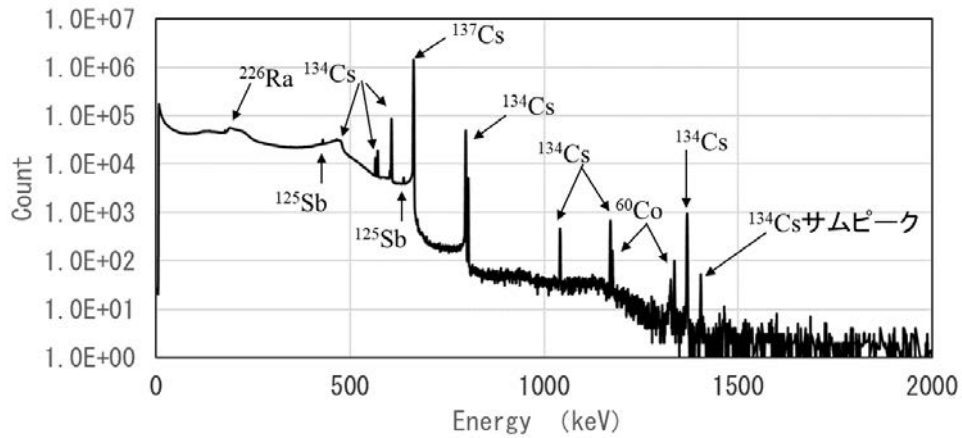


図 3.1.1.3(2)-1(g) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-3FF、3階床面) の Ge 分析結果

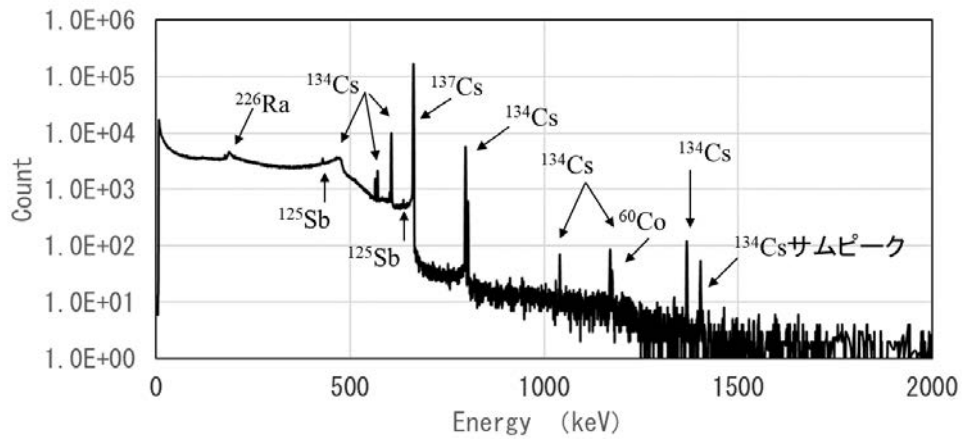


図 3.1.1.3(2)-1(h) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-3FS、3階階段裏面) の Ge 分析結果

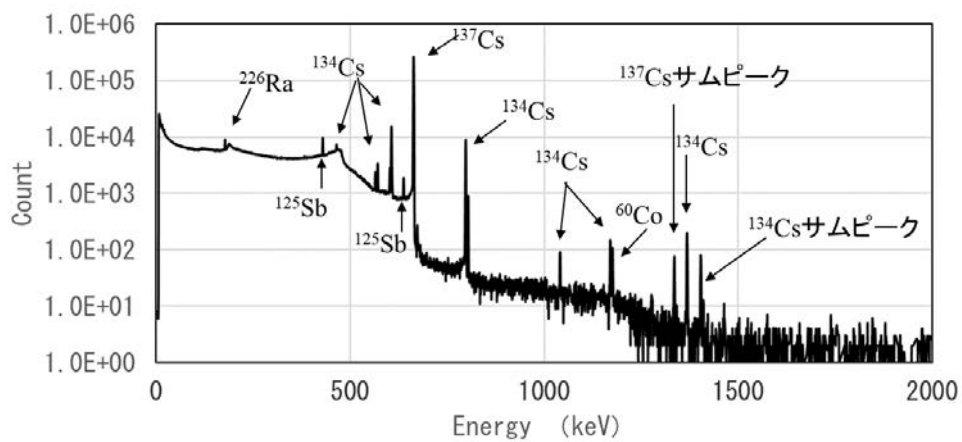


図 3.1.1.3(2)-1(i) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-2FW、2階壁面) の Ge 分析結果

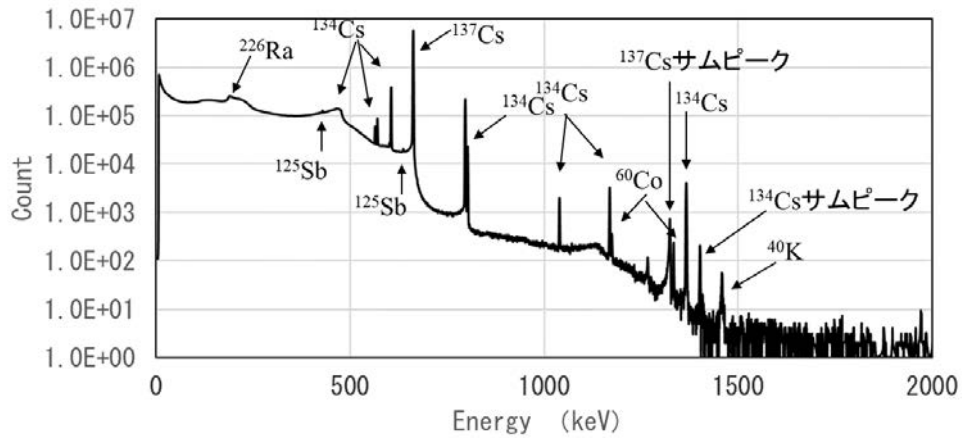


図 3.1.1.3(2)-1(j) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-2FF、2階床面) の Ge 分析結果

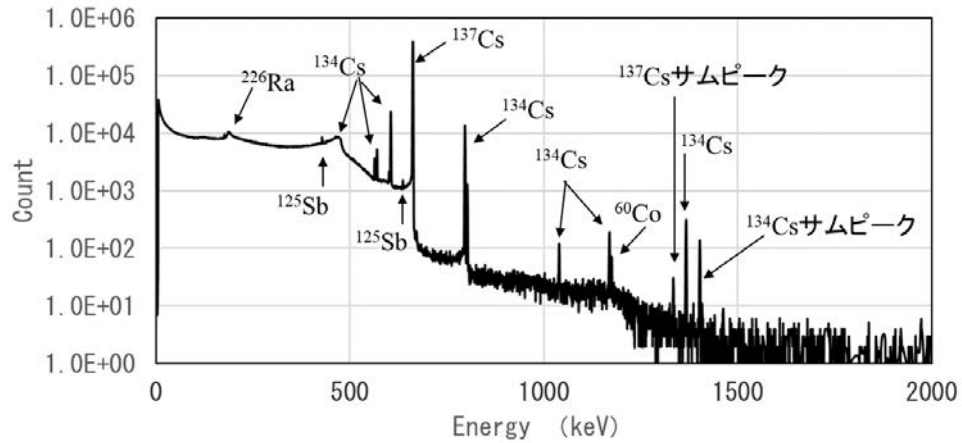


図 3.1.1.3(2)-1(k) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-2FS、2階壁階段裏面) の Ge 分析結果

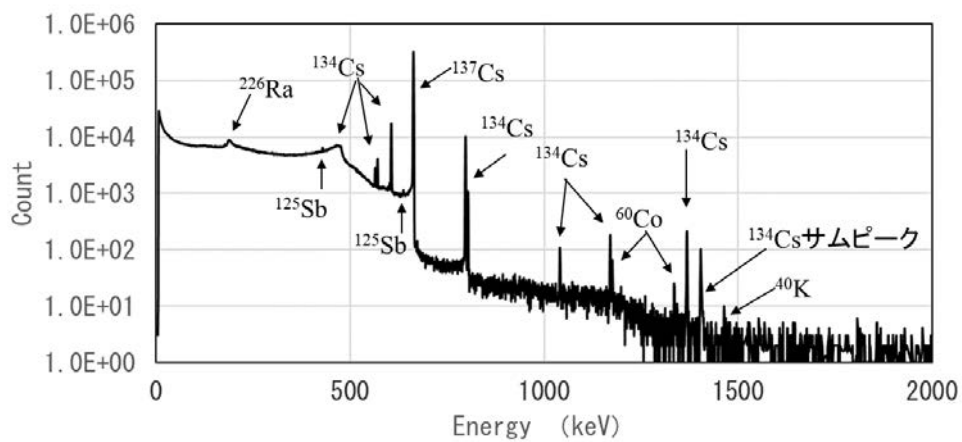


図 3.1.1.3(2)-1(l) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-1FW、1階壁面) の Ge 分析結果

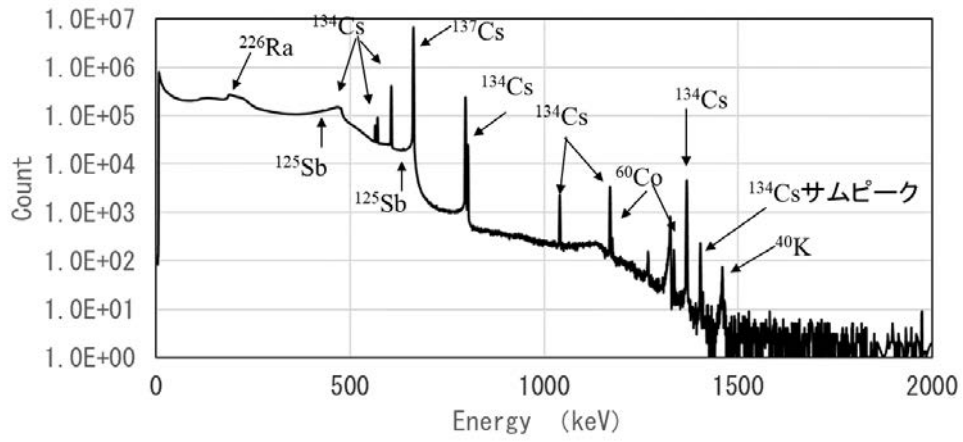


図 3.1.1.3(2)-1(m) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-1FF、1階床面) の Ge 分析結果

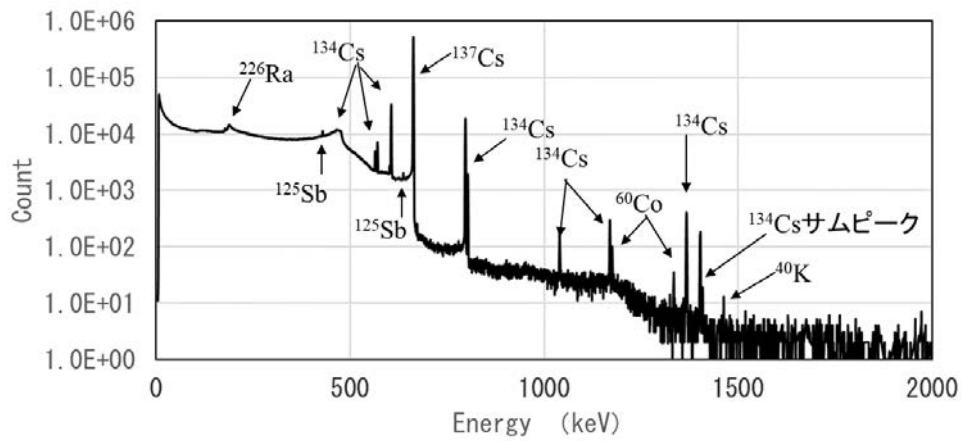


図 3.1.1.3(2)-1(n) 2号機建屋スミヤ試料 (U2RB-1FS、1階階段裏面) の Ge 分析結果

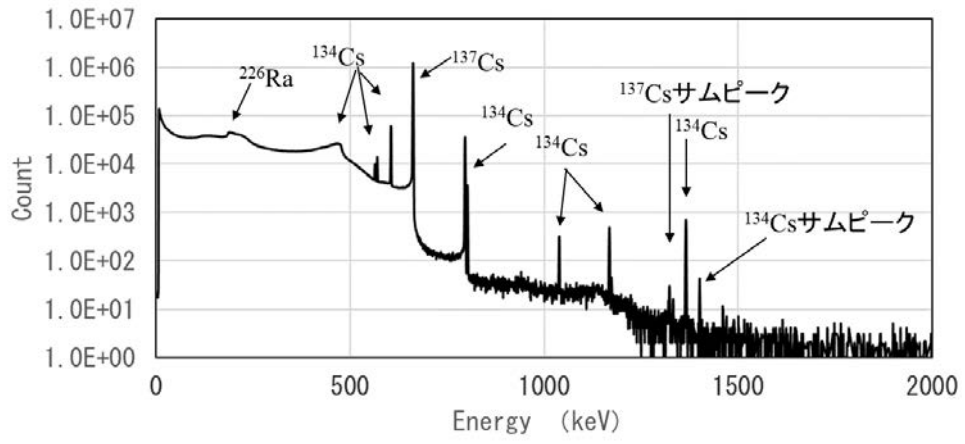


図 3.1.1.3(2)-2 1/2 号機 SGTS 配管内部スミヤ試料 (U12SGS) の Ge 分析結果



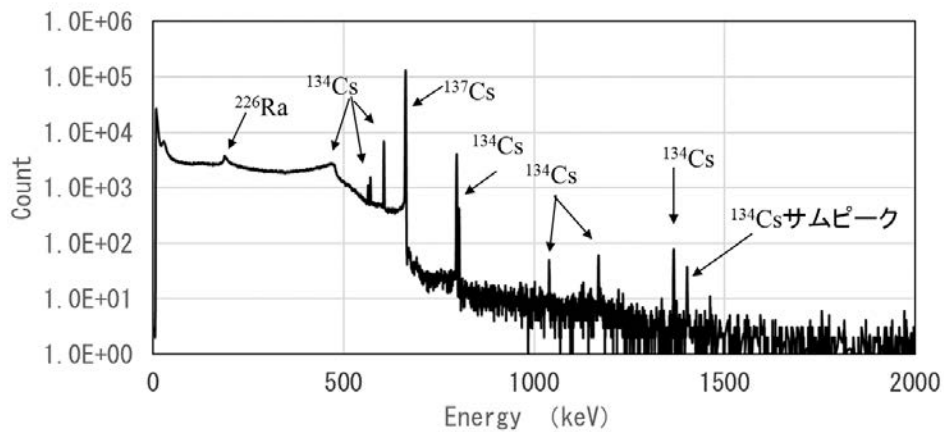


図 3.1.1.3(2)-3(a) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-A1-1/高性能フィルター上流 ①-1) の Ge 分析結果

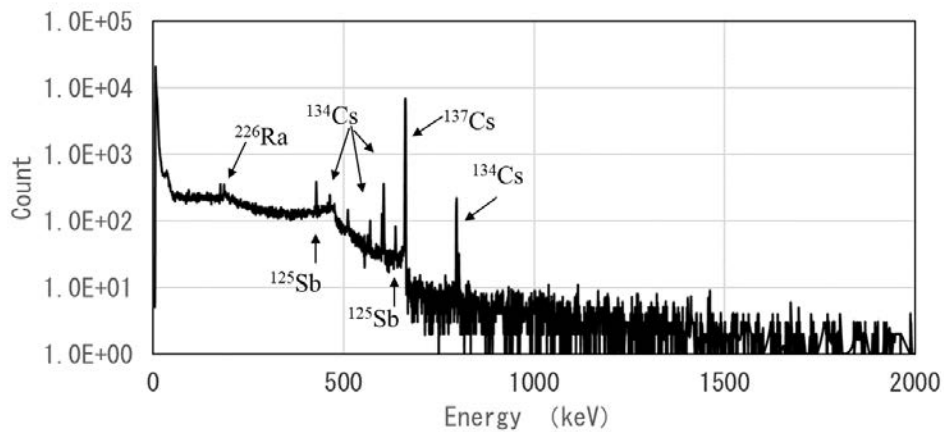


図 3.1.1.3(2)-3(b) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-A2-1/チャコールフィルター最上段上流 ②-1) の Ge 分析結果

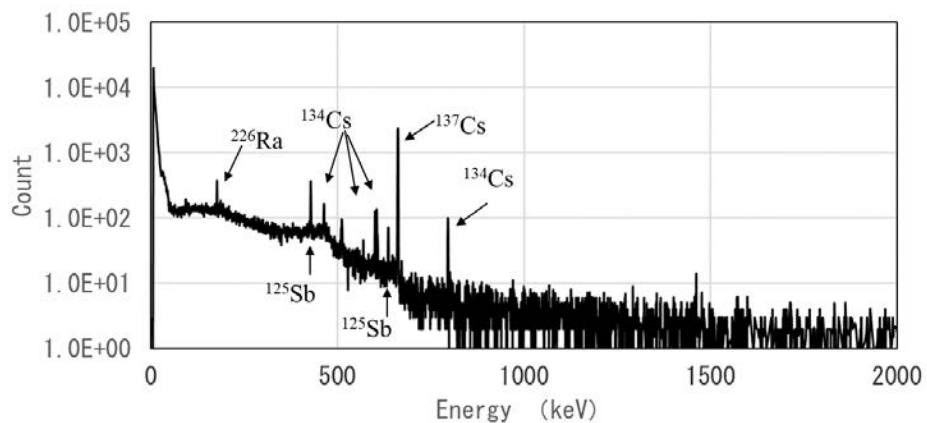


図 3.1.1.3(2)-3(c) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-A2-2/チャコールフィルター最上段下流 ②-2) の Ge 分析結果

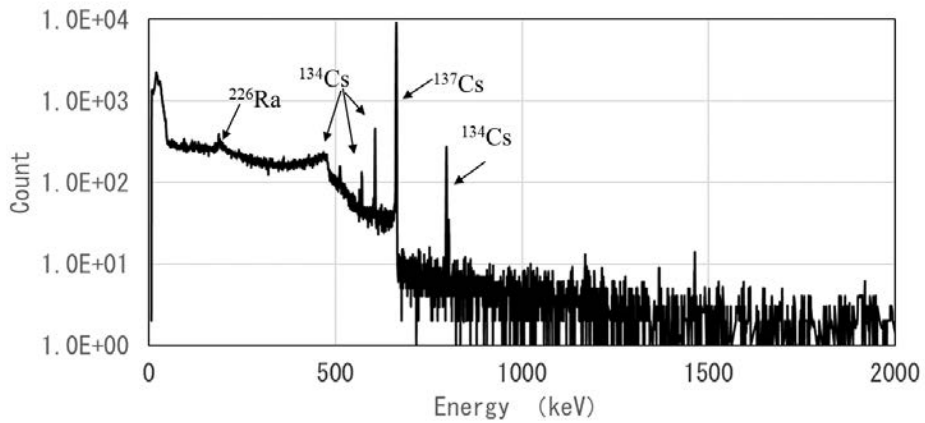


図 3.1.1.3(2)-3(d) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-A2-3/チャコールフィルター最下段上流 ②-3) の Ge 分析結果

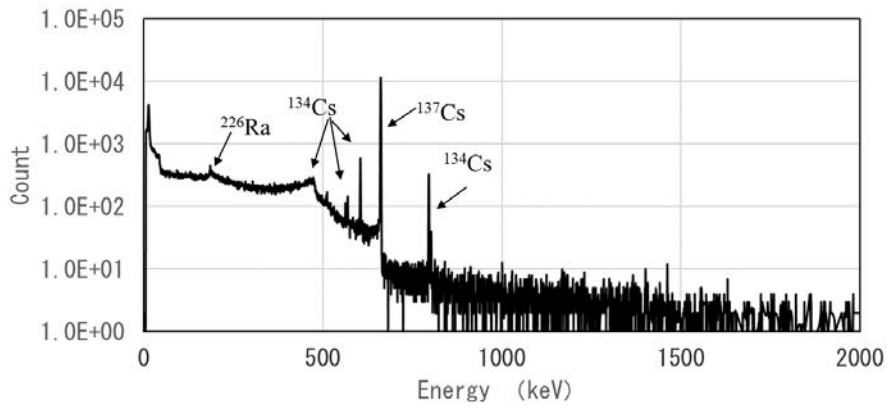


図 3.1.1.3(2)-3(e) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-A2-4/チャコールフィルター最下段下流 ②-4) の Ge 分析結果

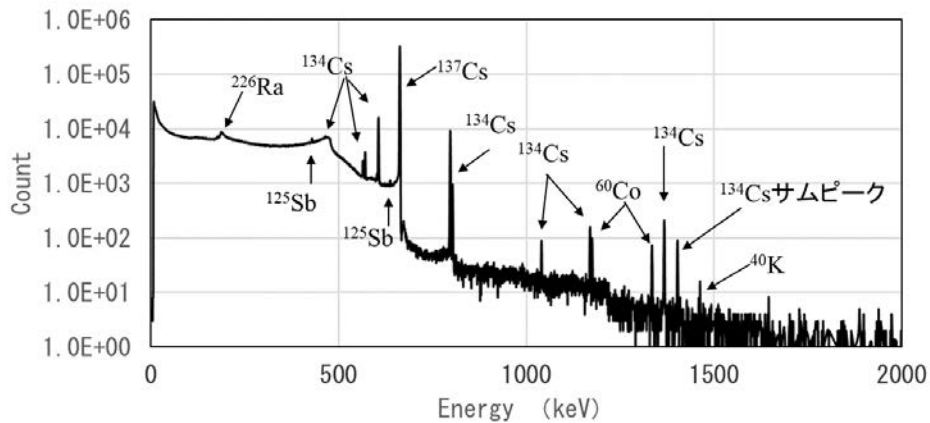


図 3.1.1.3(2)-3(f) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-A3-1/高性能フィルター上流 ③-1) の Ge 分析結果

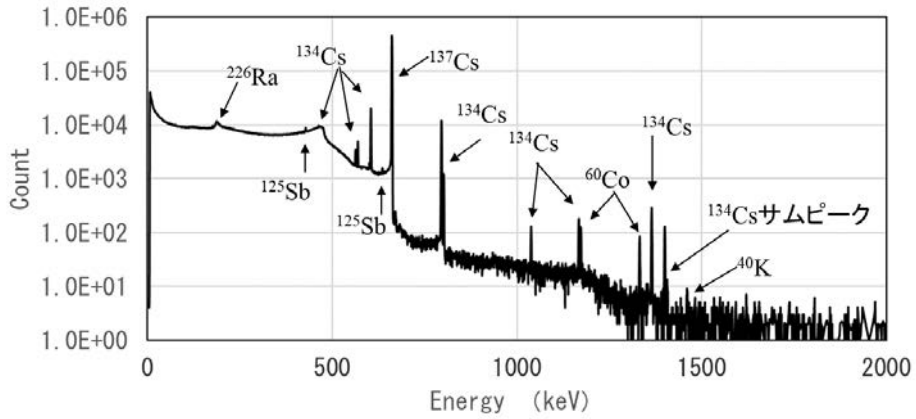


図 3.1.1.3(2)-3(g) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-A4-1/プレフィルター上流 ④-1) の Ge 分析結果

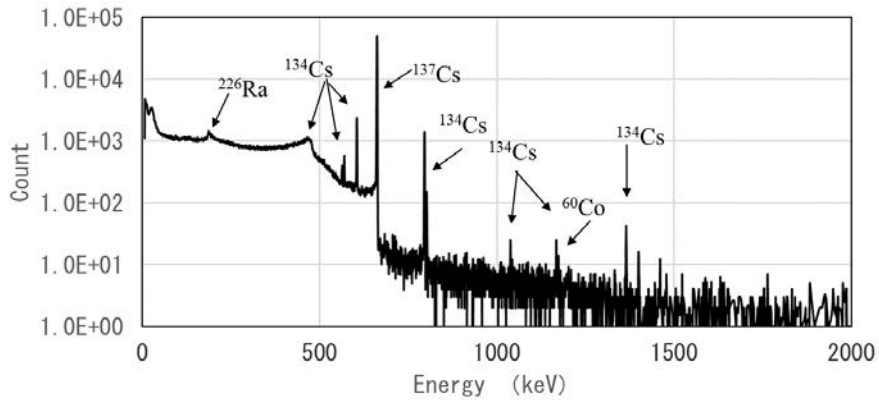


図 3.1.1.3(2)-3(h) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-A4-2/プレフィルター下流 ④-2) の Ge 分析結果

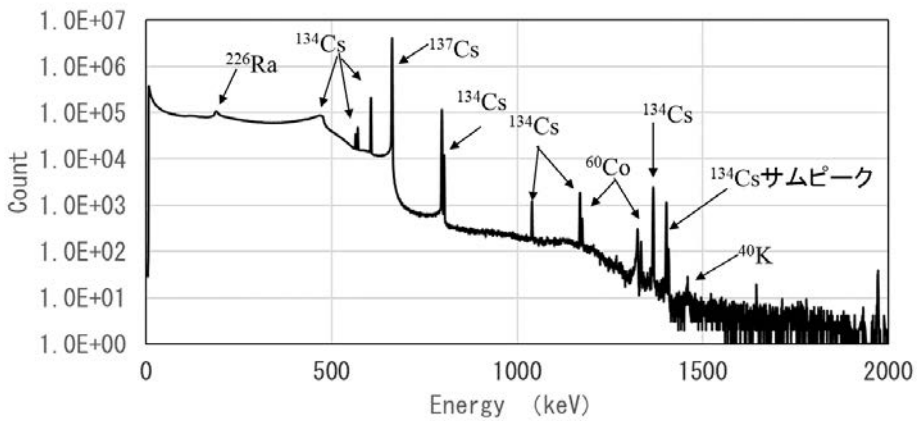


図 3.1.1.3(2)-3(i) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-A6-1/デミスター上流 ⑥-1) の Ge 分析結果

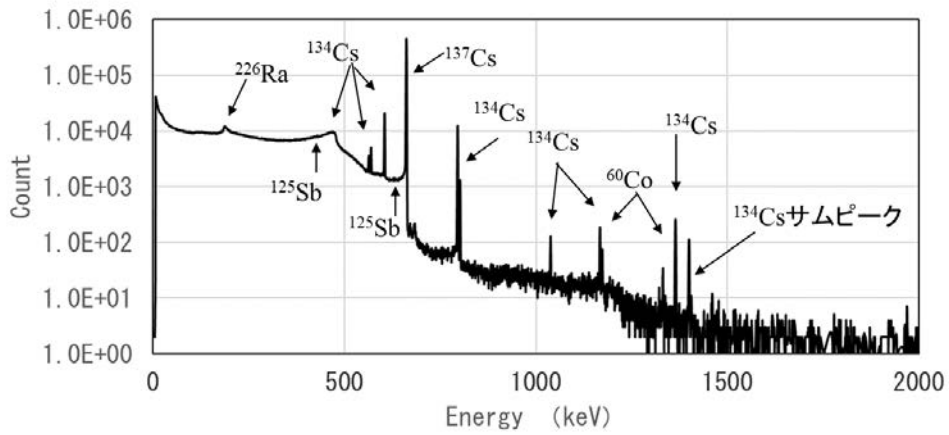


図 3.1.1.3(2)-3(j) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-A6-2/デミスター下流 ⑥-2) の Ge 分析結果

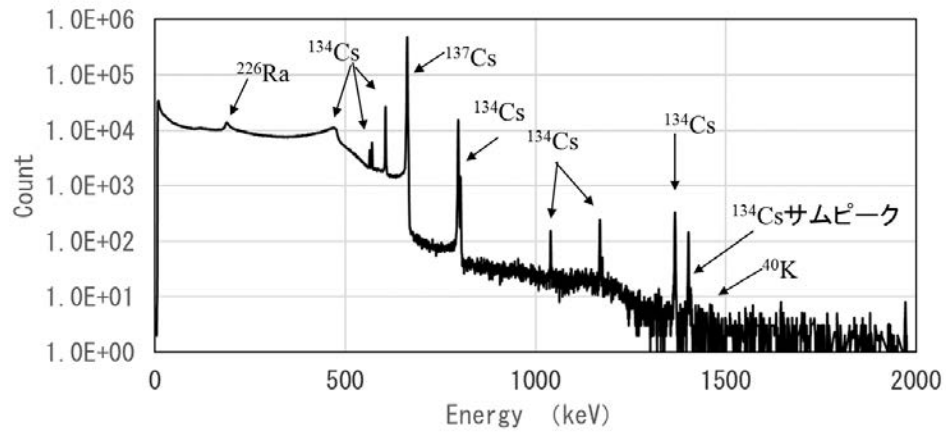


図 3.1.1.3(2)-3(k) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B1-1/高性能フィルター上流 ①-1) の Ge 分析結果

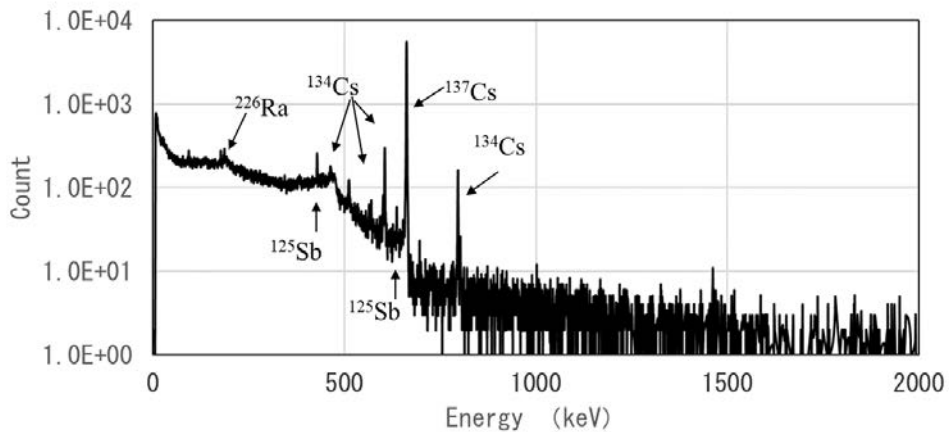


図 3.1.1.3(2)-3(l) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B2-1/チャコールフィルター最上段上流 ②-1) の Ge 分析結果

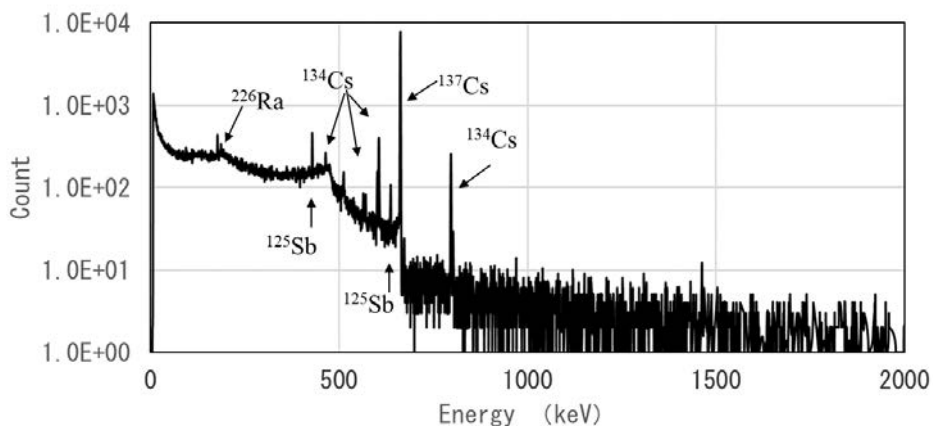


図 3.1.1.3(2)-3(m) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B2-2/チャコールフィルター最上段下流 ②-2) の Ge 分析結果

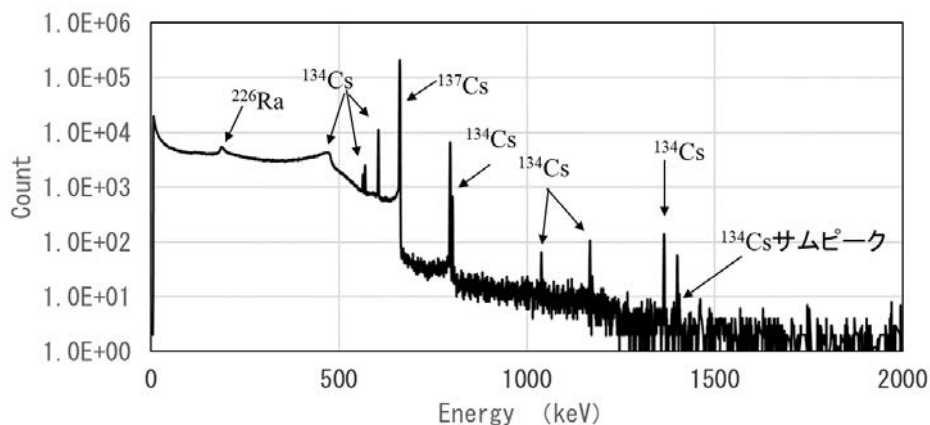


図 3.1.1.3(2)-3(n) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B2-3/チャコールフィルター最下段上流 ②-3) の Ge 分析結果

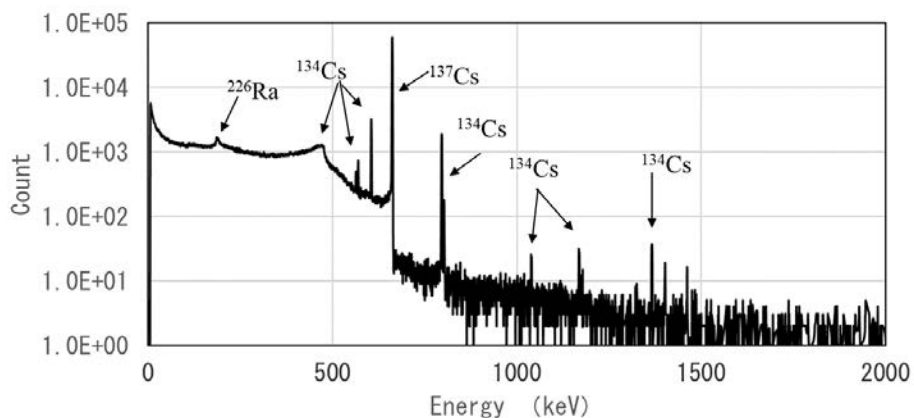


図 3.1.1.3(2)-3(o) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B2-4/チャコールフィルター最下段下流 ②-4) の Ge 分析結果

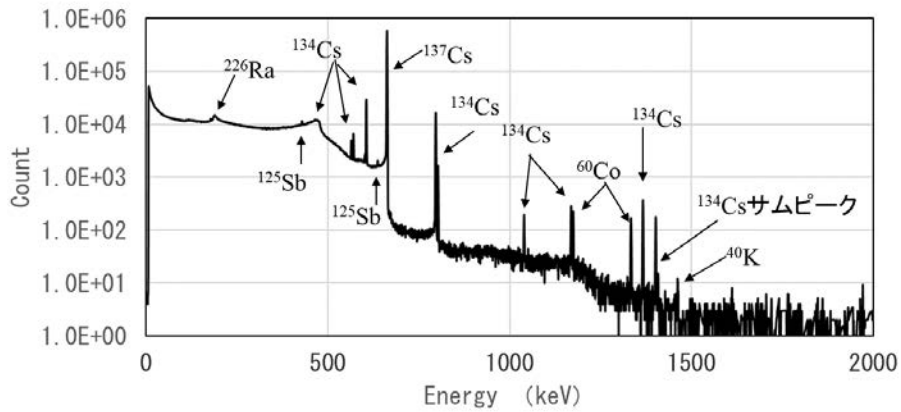


図 3.1.1.3(2)-3(p) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B3-1/高性能フィルター上流 ③-1) の Ge 分析結果

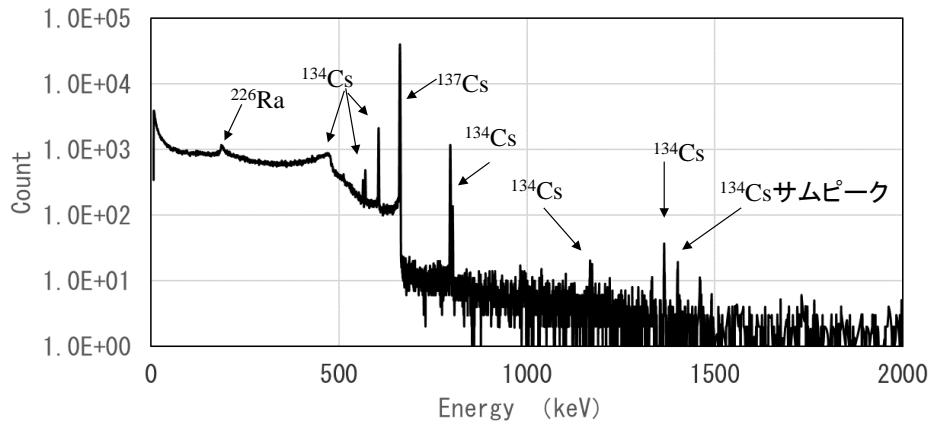


図 3.1.1.3(2)-3(q) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B4-1/プレフィルター上流 ④-1) の Ge 分析結果

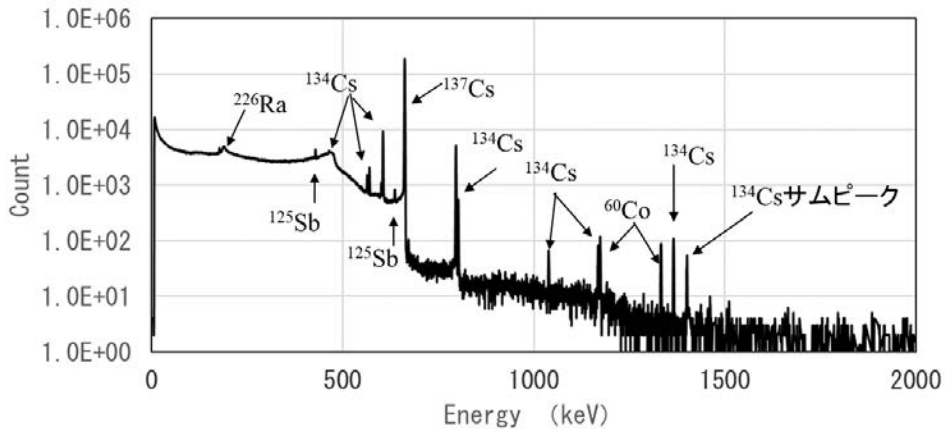


図 3.1.1.3(2)-3(r) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B4-2/プレフィルター下流 ④-2) の Ge 分析結果

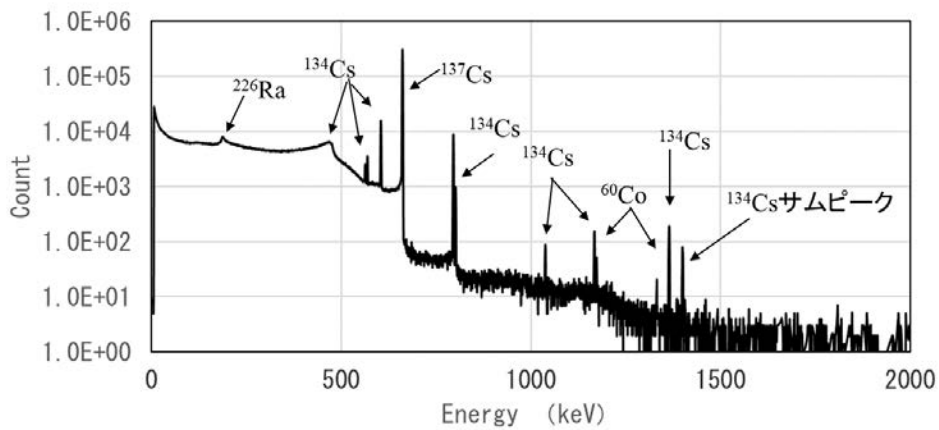


図 3.1.1.3(2)-3(s) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B5-1/トレインヒーター機器表面 ⑤) の Ge 分析結果

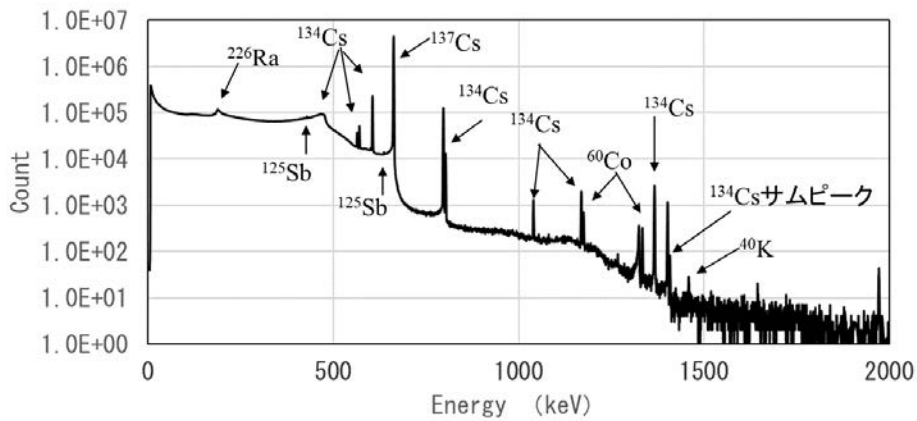


図 3.1.1.3(2)-3(t) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B6-1 デミスター上流 ⑥-1) の Ge 分析結果

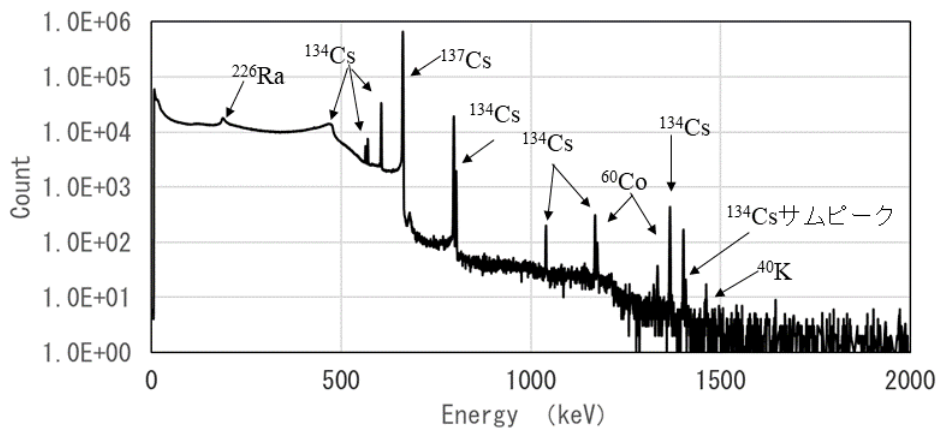


図 3.1.1.3(2)-3(u) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B6-2/デミスター下流 ⑥-2) の Ge 分析結果

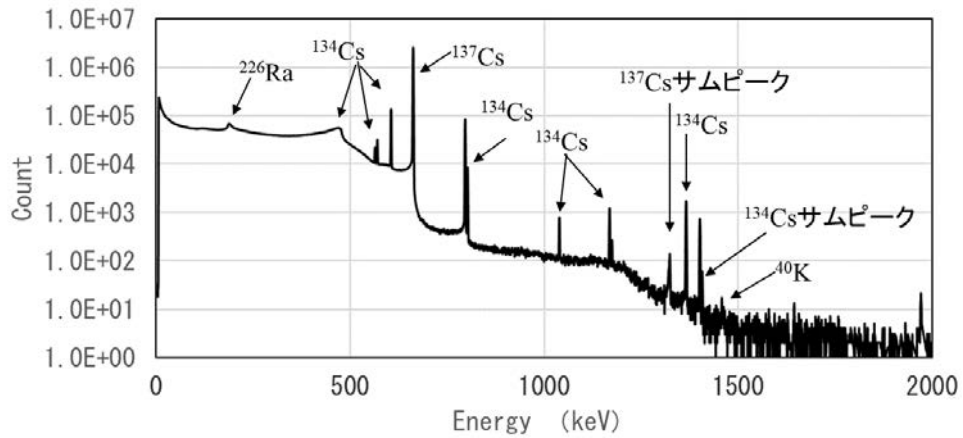


図 3.1.1.3(2)-3(v) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B7/チャコールフィルター表面 ②) の Ge 分析結果

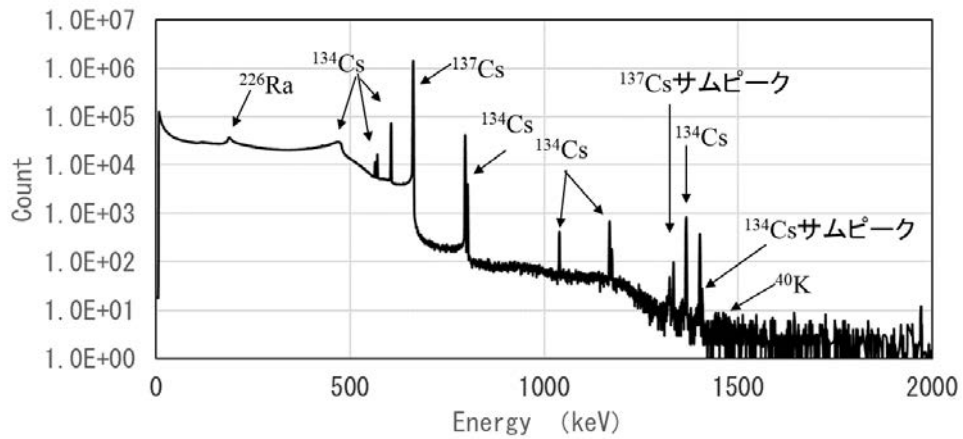


図 3.1.1.3(2)-3(w) 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料 (U3SGF-B8/プレフィルター表面 ④) の Ge 分析結果



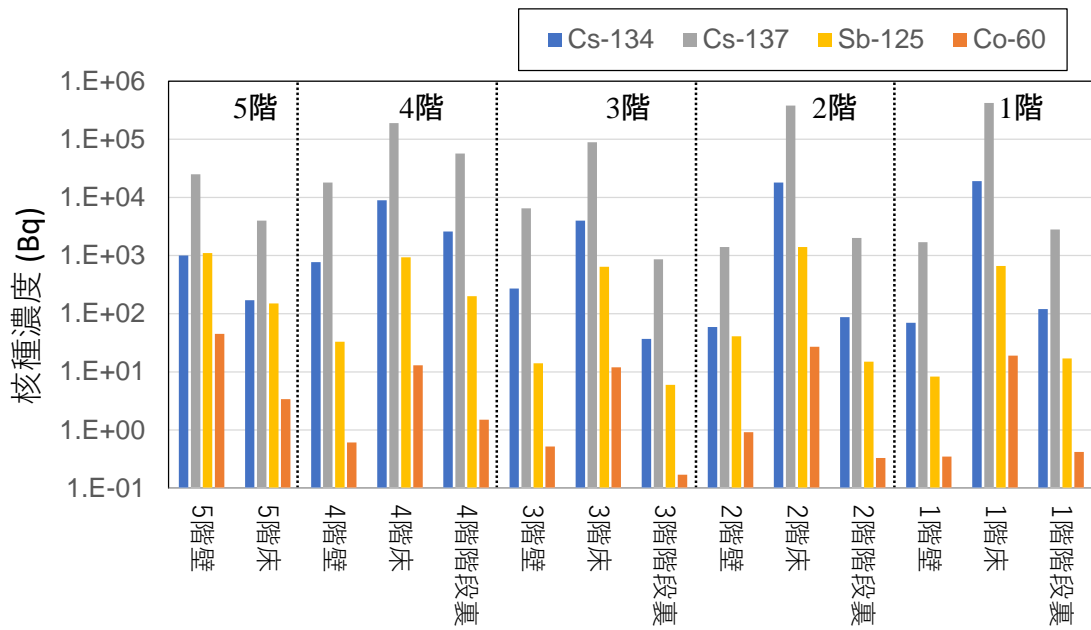


図 3.1.1.3(2)-4 2号機建屋から採取したスミヤ試料の核種濃度  
(減衰補正による事故時に換算)

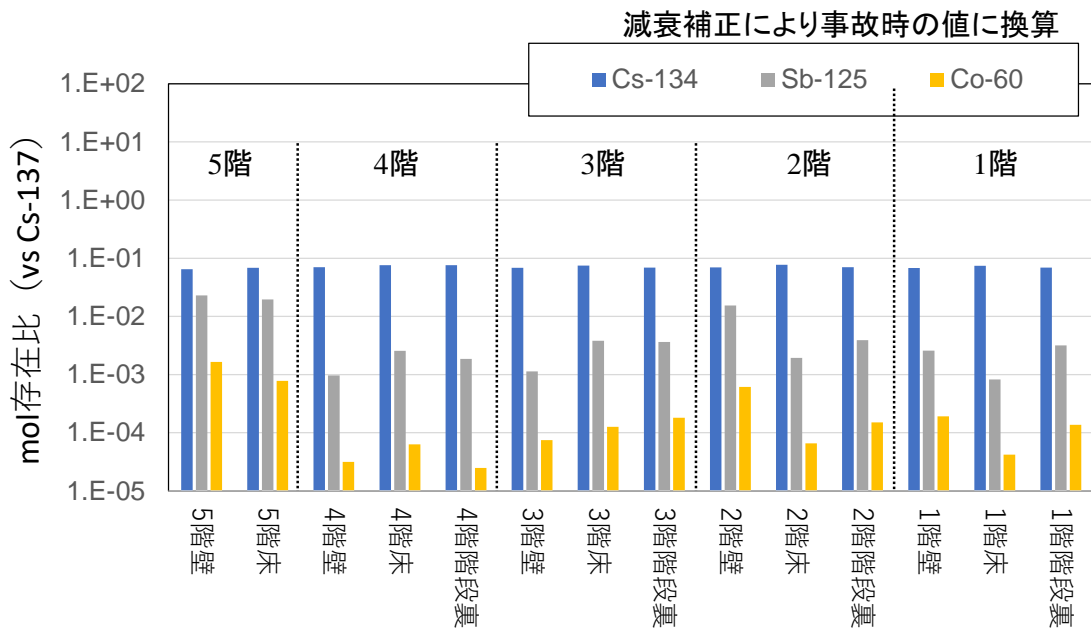


図 3.1.1.3(2)-5 2号機建屋から採取したスミヤ試料のモル存在比  
(減衰補正による事故時に換算)

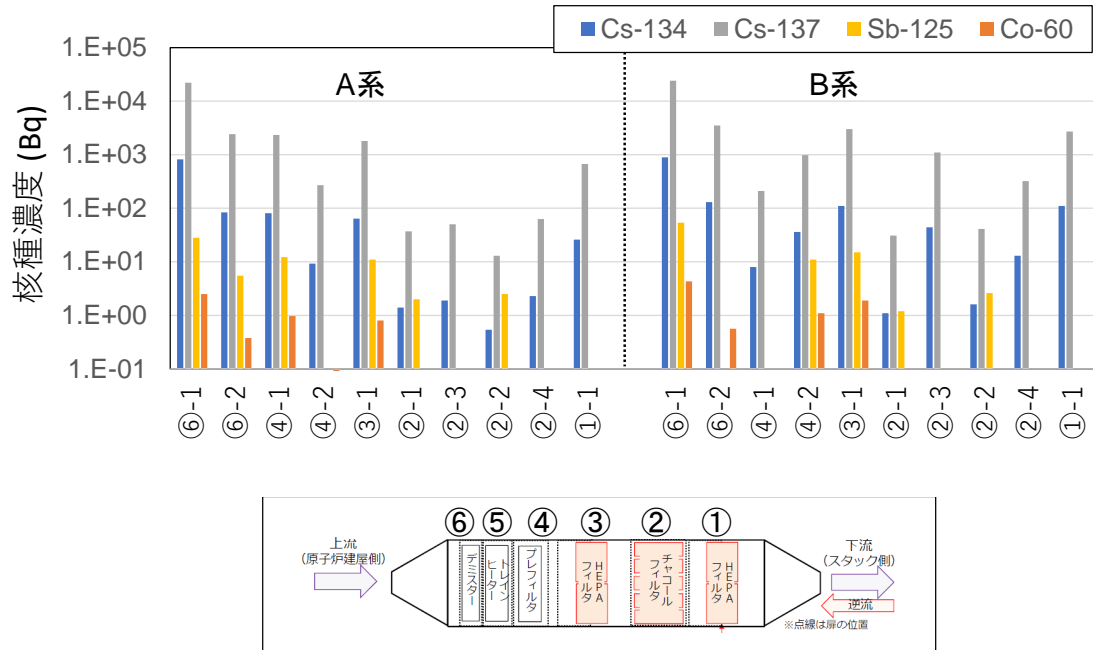


図 3.1.1.3(2)-6 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料の核種濃度 (減衰補正による事故時に換算)

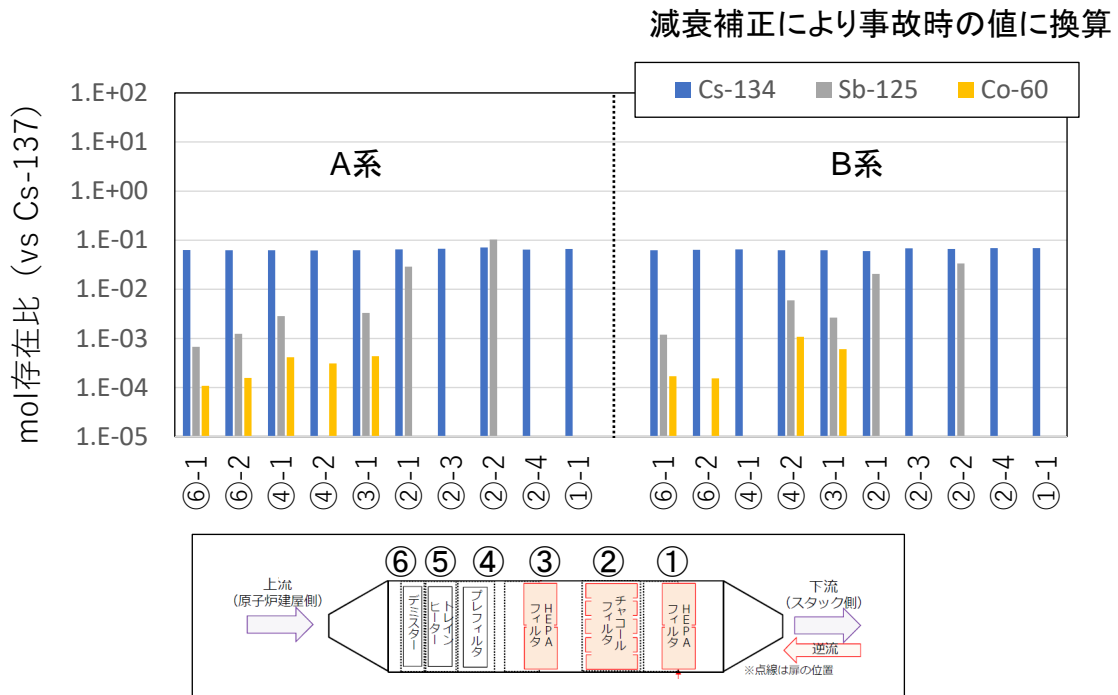


図 3.1.1.3(2)-7 3号機 SGTS 室のフィルターから採取したスミヤ試料のモル存在比 (減衰補正による事故時に換算)

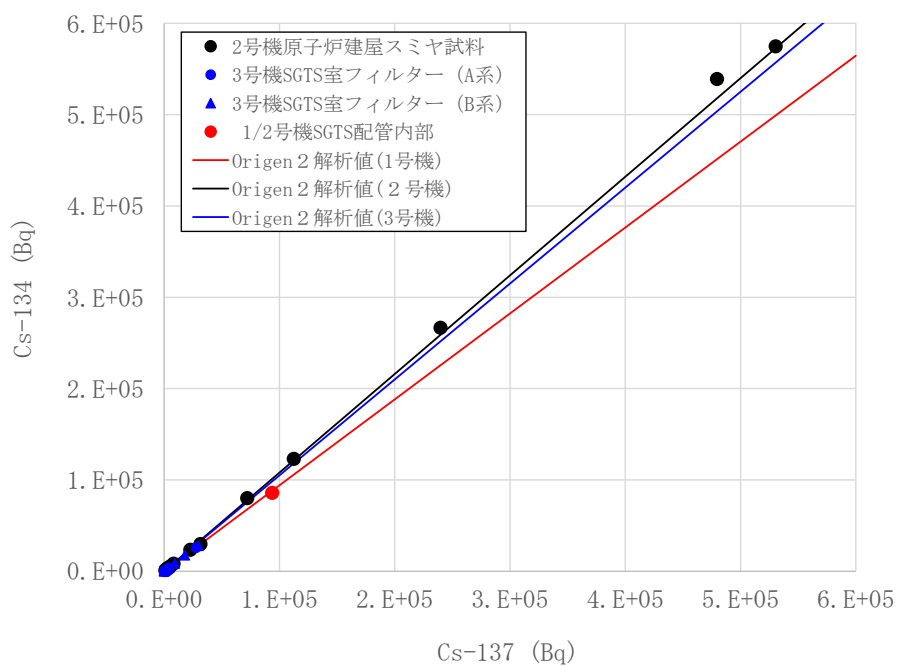


図 3.1.1.3(2)-8 図 Cs-134 と Cs-137 の放射能濃度の関係  
(減衰補正による事故時に換算)

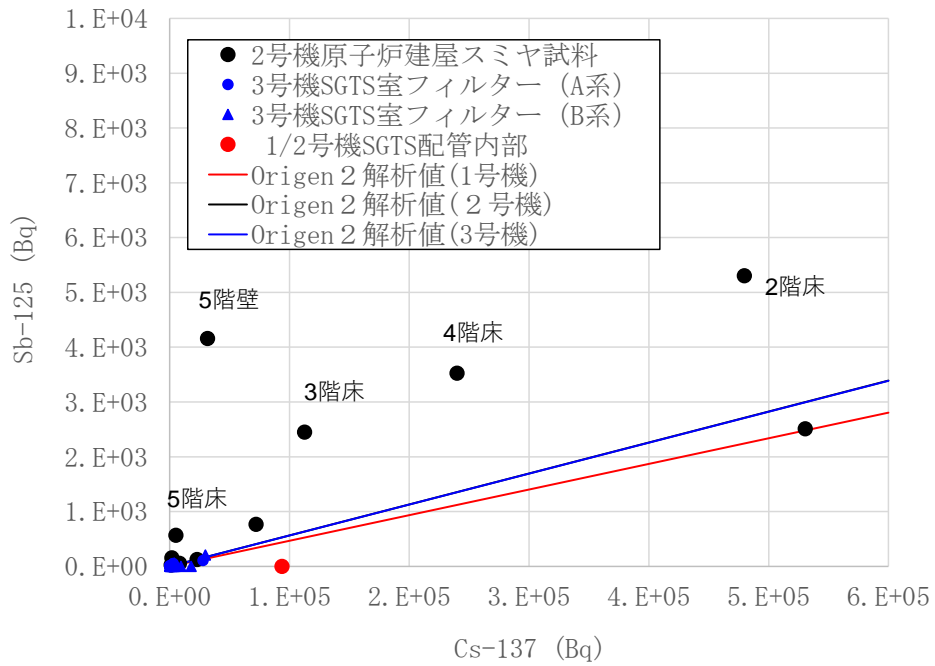


図 3.1.1.3(2)-9 図 Sb-125 と Cs-137 の放射能濃度の関係  
(減衰補正による事故時に換算)

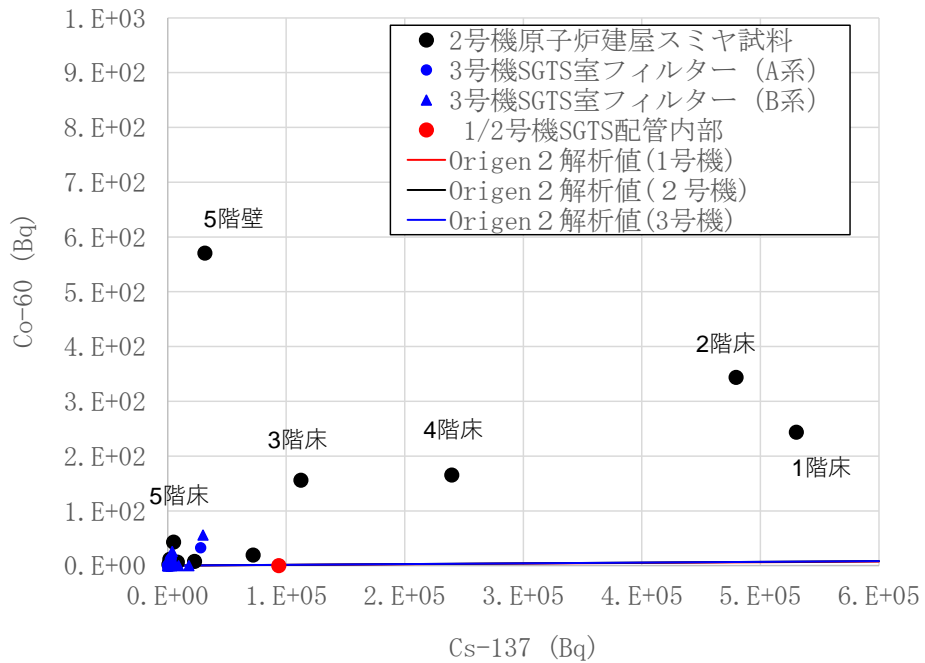


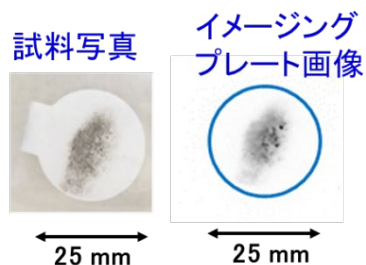
図 3.1.1.3(2)-10 図 Co-60 と Cs-137 の放射能濃度の関係  
(減衰補正による事故時に換算)

### (3) イメージングプレート分析

スミヤ試料内の放射能分布を、イメージングプレート（IP）分析法により測定した。IP にポリ袋に梱包されたスミヤ試料を密着させ、 $\gamma$ 線分析により測定した各試料の放射エネルギーに基づき、2.1.4.3 で判断した結果から露光時間（1~120分）を決定して露光させた。IP 読み取り装置で IP 潜像を読み取った結果（IP 画像）を図 3.1.1.3(3)-1~4 に示す。図 3.1.1.3(3)-1~4 により、いずれの試料においても放射能分布は目視で確認できる汚れの分布と概ね一致しており、各試料中の放射能分布を確認した。

**5階壁面 U2RB-5FW**

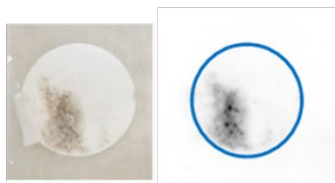
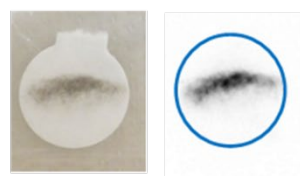
**5階床面 U2RB-5FF**



**4階壁面 U2RB-4FW**

**4階床面 U2RB-4FF**

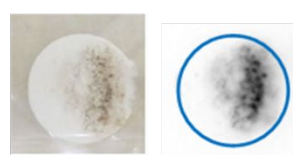
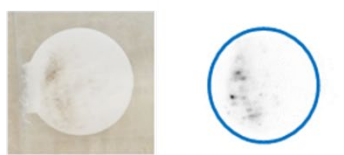
**4階階段裏 U2RB-4FS**



**3階壁面 U2RB-3FW**

**3階床面 U2RB-3FF**

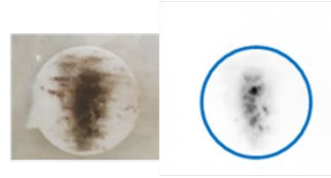
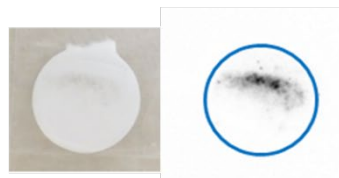
**3階階段裏 U2RB-3FS**



**2階壁面 U2RB-2FW**

**2階床面 U2RB-2FF**

**2階階段裏 U2RB-2FS**



**1階壁面 U2RB-1FW**

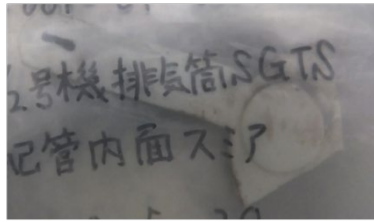
**1階床面 U2RB-1FF**

**1階階段裏 U2RB-1FS**



図 3.1.1.3(3)-1 2号機原子炉建屋内のスミヤ試料の写真およびIP画像

U12SG  
1/2号機SGTS配管



試料写真 17 mm程度



イメージングプレート画像

図 3.1.1.3(3)-2 1/2 号機 SGTS 配管のスミヤ試料の写真および IP 画像

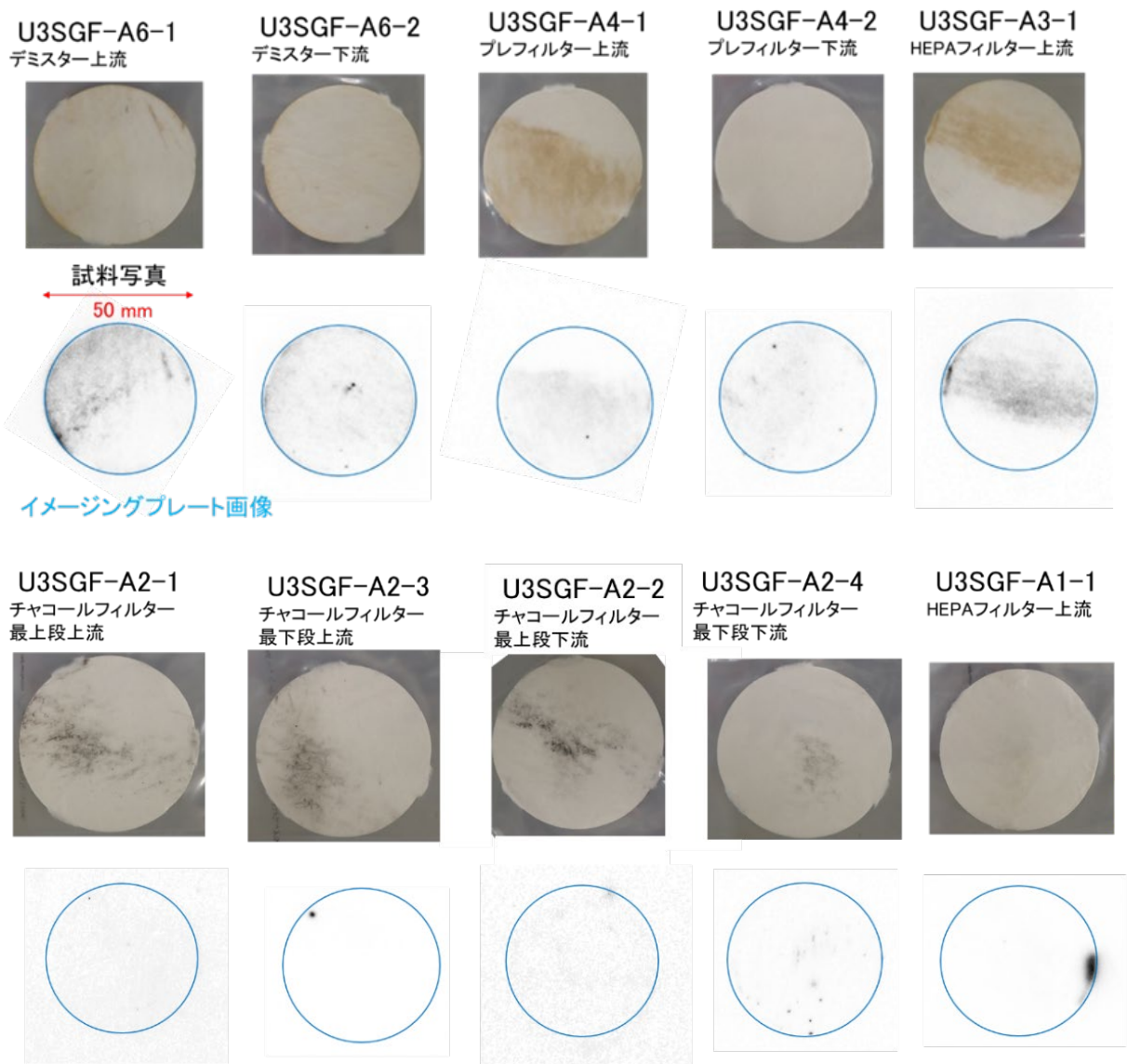


図 3.1.1.3(3)-3 3号機 SGTS A系のスミヤ試料の写真およびIP画像



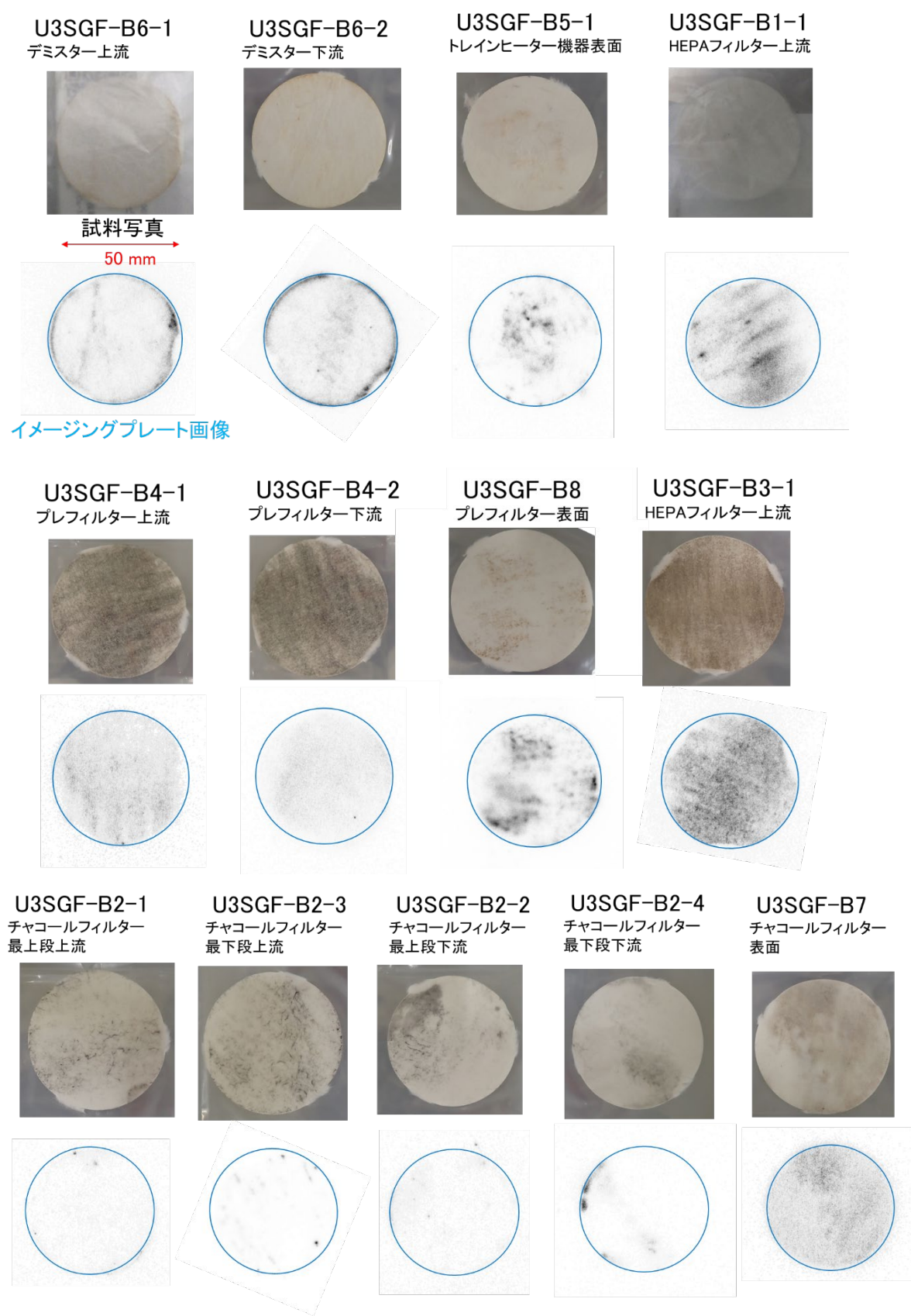


図 3.1.1.3(3)-4 3号機 SGTS B系のスミヤ試料の写真およびIP画像

#### (4) 試料分割

2号機原子炉建屋から採取したスミヤ試料のうち、まずは2章で検討した分析手順を最終確認するためのモックアップ試験をU2RB-4FSで実施した。次いで、以下の4試料について優先的に分析を実施した。

- ・ U2RB-5FW (5階壁面試料) / U2RB-5FF (5階床面試料) : トップヘッドフランジからの核種放出を考慮
- ・ U2RB-1FF (1階床面試料) : 1階格納容器貫通部等からの核種放出を考慮
- ・ U2RB-4FF (4階床面試料) : 上記試料との比較

これらに加えて、1/2号機SGTS配管内部(U12SGS)及び3号機SGTS室のフィルター最上流/最下流から採取したスミヤ試料(U3SGF-B6-1/U3SGF-B1-1)も分析対象とした。スミヤ試料は、放射能分布に基づき図3.1.1.3(3)-5～3.1.1.3(3)-6のように8分割または4分割した。

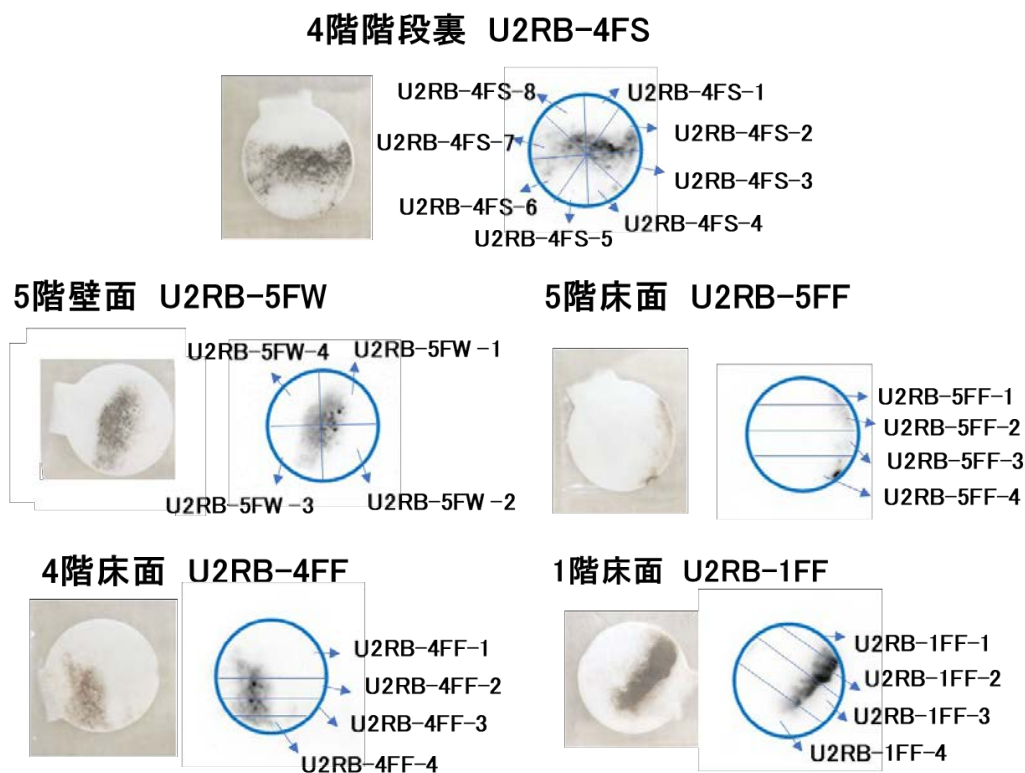
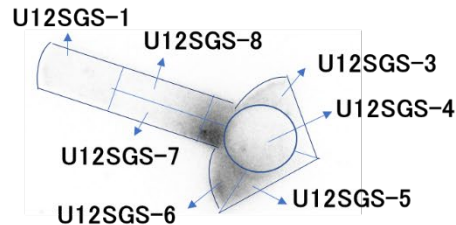
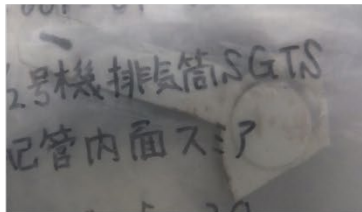
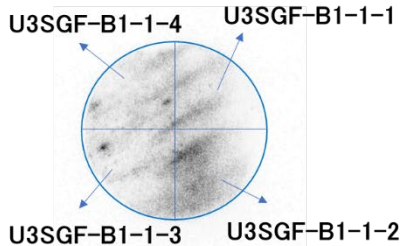


図 3.1.1.3(4)-1 2号機原子炉建屋内のスミヤ試料の分割位置と分割後試料名

U12SGS  
1/2号機SGTS配管



U3SGF-B1-1  
HEPAフィルター上流



U3SGF-B6-1  
デミスター上流

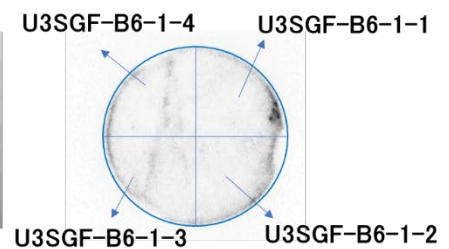


図 3.1.1.3(4)-2 1/2号機 SGTS 配管のスミヤ試料および3号機 SGTS B系のスミヤ試料の分割位置と分割後試料名

(5) 分割前後の試料中の  $^{134}\text{Cs}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  量測定

8 試料 U2RB-4FS、U2RB-5FW、U2RB-5FF、U2RB-4FF、U2RB-1FF、U12SGS、U3SGF-B1-1、U3SGF-B6-1 の分割前後の試料について、Ge 半導体検出器を用いて、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  の放射エネルギーを分析した。各試料 600 秒で 3 回測定し、その平均値を表 3.1.1.3(5)-1~5 に示した。分割後試料の合計放射エネルギーと分割前試料の放射エネルギーを比較した結果、概ね分割前の放射エネルギーと一致した。表 3.1.1.3(5)-3 のような分割前後での放射エネルギーの増減の要因として、分割前、汚染拡大防止のため封入していた袋への残留や、分割時に使用したカッターナイフへの付着、試料の大きさの違いによる Ge の検出効率の違いと考える。特に U2RB-4FF、U2RB-1FF について分割前後で、他試料と比べ大きく放射エネルギーが減少している。U2RB-4FF、U2RB-1FF の分割前試料が封入されていた袋について、Ge 半導体検出器を用いて放射エネルギーを測定した結果、それぞれ分割前の  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  放射エネルギーの 18、19% が袋に残留しており、袋への放射性物質の残留が放射エネルギーの減少要因の一つであることを確認した。よって、分割後の各試料を袋から取り出して酸分解に供する際には、袋へ残留した  $^{137}\text{Cs}$  の放射エネルギーを測定することとした。

表 3.1.1.3(5)-1 U2RB-4FS の分割後試料の  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  量

試料名	$^{134}\text{Cs}(\text{Bq})$	$^{137}\text{Cs}(\text{Bq})$
U2RB-4FS-1	1.62E+02	4.05E+03
U2RB-4FS-2	2.98E+02	7.40E+03
U2RB-4FS-3	7.10E+02	1.78E+04
U2RB-4FS-4	2.58E+02	6.38E+03
U2RB-4FS-5	4.60E+01	1.11E+03
U2RB-4FS-6	1.42E+02	3.73E+03
U2RB-4FS-7	3.53E+02	8.99E+03
U2RB-4FS-8	2.39E+02	6.34E+03
分割後試料合計	2.21E+03	5.58E+04
分割前試料	2.23E+03	5.06E+04

表 3.1.1.3(5)-2 U2RB-5FW、U2RB-5FF の分割後試料の  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  量

試料名	$^{134}\text{Cs}(\text{Bq})$	$^{137}\text{Cs}(\text{Bq})$	試料名	$^{134}\text{Cs}(\text{Bq})$	$^{137}\text{Cs}(\text{Bq})$
U2RB-5FW-1	2.69E+02	7.38E+03	U2RB-5FF-1	1.68E+01	4.05E+03
U2RB-5FW-2	3.13E+02	8.44E+03	U2RB-5FF-2	3.44E+01	7.40E+03
U2RB-5FW-3	2.29E+02	6.34E+03	U2RB-5FF-3	2.57E+01	1.78E+04
U2RB-5FW-4	1.48E+02	4.01E+03	U2RB-5FF-4	6.21E+01	6.38E+03
分割後試料合計	9.59E+02	2.62E+04	分割後試料合計	1.39E+02	3.72E+03
分割前試料	9.76E+02	2.60E+04	分割前試料	1.52E+02	4.00E+03

表 3.1.1.3(5)-3 U2RB-4FF、U2RB-1FF の分割後試料の  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  量

試料名	$^{134}\text{Cs}(\text{Bq})$	$^{137}\text{Cs}(\text{Bq})$	試料名	$^{134}\text{Cs}(\text{Bq})$	$^{137}\text{Cs}(\text{Bq})$
U2RB-4FF-1	1.05E+03	2.75E+04	U2RB-1FF-1	9.52E+02	2.49E+04
U2RB-4FF-2	1.81E+03	4.74E+04	U2RB-1FF-2	5.94E+03	1.45E+05
U2RB-4FF-3	1.02E+03	2.67E+04	U2RB-1FF-3	4.07E+03	9.95E+04
U2RB-4FF-4	4.21E+02	1.10E+04	U2RB-1FF-4	9.68E+02	2.52E+04
分割後試料合計	4.30E+03	1.13E+05	分割後試料合計	1.19E+04	2.94E+05
分割前試料	6.22E+03	1.47E+05	分割前試料	1.66E+04	3.90E+05

表 3.1.1.3(5)-4 U12SGS の分割後試料の  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  量

試料名	$^{134}\text{Cs}(\text{Bq})$	$^{137}\text{Cs}(\text{Bq})$
U12SGS-1	1.34E+02	4.27E+03
U12SGS-3	2.27E+02	7.18E+03
U12SGS-4	3.96E+02	1.25E+04
U12SGS-5	2.20E+02	7.06E+03
U12SGS-6	6.32E+02	2.03E+04
U12SGS-7	4.54E+02	1.46E+04
U12SGS-8	2.29E+02	7.32E+03
分割後試料合計	2.29E+03	7.32E+04
分割前試料	2.71 E+03	7.40 E+04

表 3.1.1.3(5)-5 U3SGF-B1-1、U3SGF-B6-1 の分割後試料の  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  量

試料名	$^{134}\text{Cs}(\text{Bq})$	$^{137}\text{Cs}(\text{Bq})$	試料名	$^{134}\text{Cs}(\text{Bq})$	$^{137}\text{Cs}(\text{Bq})$
U3SGF-B1-1-1	2.53E+01	6.87E+02	U3SGF-B6-1-1	2.55E+02	7.27E+03
U3SGF-B1-1-2	4.15E+01	1.13E+03	U3SGF-B6-1-2	2.33E+02	6.45E+03
U3SGF-B1-1-3	4.11E+01	1.08E+03	U3SGF-B6-1-3	2.30E+02	6.26E+03
U3SGF-B1-1-4	2.43E+01	6.11E+02	U3SGF-B6-1-4	2.43E+01	6.20E+02
分割後試料合計	1.32E+02	3.51E+03	分割後試料合計	7.43E+02	2.06E+04
分割前試料	1.07 E+02	2.71 E+03	分割前試料	8.85 E+02	2.35 E+04

## (6) 溶液分析

### ろ紙の酸分解

2.1.1.3 項で整備した手法を用いて、スミヤろ紙試料の酸分解を行った。ポリ袋から分割後ろ紙試料を取出して石英ビーカーに入れた後、回収率測定のために既知量の Co、Sr、Sb、Cs、Re、Eu を添加した。ここで、Tc には安定同位体がないため、化学的に類似の挙動をとる Re を Tc の担体として用いた。時計皿でふたをした後、石英ビーカーを電気炉に入れ、450℃で 30 分加熱して分割後ろ紙試料を灰化した。放冷後、石英ビーカーを電気炉から取出し、灰に HNO<sub>3</sub> と H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> を加え、ホットプレート上で加熱して溶解した。一度乾固した後、乾固物を 1 M HNO<sub>3</sub> で溶解し、溶解液を孔径 0.1 μm の PTFE フィルターで吸引ろ過した。ろ液に 1 M HNO<sub>3</sub> を加えて溶液量を 10 ml とした。この溶解液を <sup>90</sup>Sr、<sup>99</sup>Tc、Mo 同位体、アクチノイドの分析に用いた。また、試料と同じスミヤろ紙(2号機原子力建屋：アドバンテック製スミヤ法濾紙、杓子型、No.63。1/2号機 SGTS 配管内部ふき取りスミヤ：トッパン・コスモ製、三ツ足型、50Φ、筋通し、E8306。3号機 SGTS フィルタ：吉岡放射線用品工業所、三ツ矢型スジ入り、50Φ、P-78)を用いて試料と同じ灰化・酸分解処理を行い、操作ブランク試料として以降の化学分離操作に供した。

分割後ろ紙に付着していた放射性物質は、分割後ろ紙を入れていたポリ袋にも一部付着して残るため、分割後ろ紙を取り出した後のポリ袋の γ 線も測定した。その他、分解に用いた石英ビーカーや溶解液をろ過した PTFE フィルターにも不溶性残渣等が付着していると考えられるため、これらの γ 線についても測定を行った。また、溶解液中に溶けた放射性核種は、溶解液 30 μl をろ紙に染み込ませて作成した試料の γ 線測定より定量した。以上の γ 線測定結果から、硝酸に易溶の放射性核種の収支を見積もった。

### AMP による Cs の除去

高濃度の放射性 Cs によりバックグラウンドが上昇し、低濃度の γ 線放出核種の γ 線が隠れている可能性もあるため、Cs を選択的に吸着する AMP を用いて Cs を除去した後、γ 線測定を行った。また、β 線は連続スペクトルであるため、β 線により定量を行う場合は、測定対象核種を他の β 線放出核種から分離する必要がある。<sup>134</sup>Cs や <sup>137</sup>Cs は β 線放出核種であり、<sup>90</sup>Sr や <sup>99</sup>Tc を β 線測定により定量する場合には妨害核種となる。そこで、AMP により放射性 Cs を除去した後、さらに抽出クロマトグラフィーにより Sr や Tc を分離・精製して定量を行うことにした。

3 ml のろ紙溶解液に約 0.02 g の AMP を加え、マグネチックスターラーで 1 時間攪拌した。攪拌後、孔径 0.45 μm のシリンジフィルターでろ過して AMP を除去した。ろ液を 30 μl 採取してろ紙に染み込ませ、ポリ袋に 2 重に封入して Ge 半導体検出器(GC1020S-CJT-F-1/S-2002C, Mirion Technologies Canberra)で γ 線を測定した。また、このろ液を <sup>90</sup>Sr と <sup>99</sup>Tc の化学分離に供した。

### <sup>90</sup>Sr の分析

AMP により Cs を除去した後の溶液を 0.5 ml に HNO<sub>3</sub> と超純水を加えて 2 ml の 8 M HNO<sub>3</sub> 溶液とし、これを Sr 分離用試料とした。

超純水で膨潤させた Sr レジン(0.5 ml、アイクロム社製)をカラムに詰め、5 ml の 8 M HNO<sub>3</sub> を通液してコンディショニングを行った後、Sr 分離用試料を通液した。Sr 分離用試料が入っていた容器を 0.5 ml の 8 M HNO<sub>3</sub> で洗い、洗液を Sr レジンに通液する作業を合計 4 回行った。2.5 ml の 8 M HNO<sub>3</sub> を 4 回通液して Sr 以外の元素を溶出させた後、3 ml の 0.01 M HNO<sub>3</sub> を通液して Sr レジンに吸着した Sr を回収した。既知量の回収液を希釈して ICP-QQQ(Agilent 社製、Agilent8900)により Sr 濃度を定量し、化学分離の回収率を求めた。2 週間以上放置して <sup>90</sup>Sr と <sup>90</sup>Y が放射平衡に達した後、残りの回収液にシンチレーションカクテル(パーキンエルマー社製、ウルティマゴールド LLT)を加え、液体シンチレーションカウンタ(パーキンエルマー社製、PerkinElmer Tri-Carb 3110 TR)により β 線スペクトルを測定した。20 Bq の <sup>90</sup>Sr の標準液と 0.5、1、1.5、2、2.5 M の HNO<sub>3</sub>、シンチレーションカクテル(パーキンエルマー社製、ウルティマゴールド LLT)を混合した試料の測定結果からクエンチング曲線を作成し、β 線測定の効率を補正した。

### <sup>99</sup>Tc の分析

超純水で膨潤させた TEVA レジン(0.5 ml、アイクロム社製)をカラムに詰め、5 ml の 1 M HNO<sub>3</sub> を通液してコンディショニングを行った。AMP 処理後のろ液を既知量通液し、さらに容器の共洗溶液も通液した。2.5 ml の 1 M HNO<sub>3</sub> を 4 回通液してカラムを洗浄した後、1.5 ml の 8 M HNO<sub>3</sub> を通液して TEVA レジンに吸着している Tc 及び Re を回収した。既知量の回収液を希釈して ICP-QQQ(Agilent 社製、Agilent8900)で Re を定量し、回収率を求めた。残りの回収液にシンチレーションカクテル (パーキンエルマー社製、ウルティマゴールド LLT)を添加して液体シンチレーションカウンタ(パーキンエルマー社製、PerkinElmer Tri-Carb 3110 TR)で β 線スペクトルを測定した。21Bq の <sup>99</sup>Tc 標準液と 0.5、1、1.5、2、2.5 M の HNO<sub>3</sub>、シンチレーションカクテル(パーキンエルマー社製、ウルティマゴールド LLT)を混合した試料の測定結果からクエンチング曲線を作成し、β 線測定の効率を補正した。

### Mo 同位体の分析

既知量のろ紙溶解液をポリプロピレン製容器(GL サイエンス社製、DigiTUBEs)に測り取り、0.1 ml の 10ppb Mo 標準液(和光純薬製、1 mg/ml を超純水で希釈したもの)を添加した試料をスパイク試料、しなかった試料をノンスパイク試料とした。これらの試料をホットプレート上で乾固直前まで蒸発させた後、0.5 ml の 4 M HCl を加えてさらに乾固して塩酸系とした。乾固物を 2 ml の 4 M HCl で溶解して Mo 分離用試料を調製した。

超純水で膨潤させた TEVA レジン(0.5 ml、アイクロム社製)をカラムに詰め、5 ml の 1 M HNO<sub>3</sub>、3.4 ml の超純水、2 ml の 4 M HCl を順次通液してコンディショニングを行った。Mo 分離試料を通液し、容器を 0.5 ml の 4 M HCl で 3 回洗浄してその洗液も通液した。3.4 ml の 4 M HCl でカラムを洗浄した後、0.5 ml の超純水を通液して HCl を洗い流し、TEVA レジンに吸着している Mo を 5 ml の 1 M HNO<sub>3</sub> で回収した。この回収液に含まれる、質量数 92、94、95、96、97、98、100 の Mo を ICP-QQQ(Agilent 社製、Agilent8900)で測定した。この時、Zr や Ru の混入を確認するため、質量数 91 と 101 も測定した。

1000ppm の Mo 標準液を 1 M HNO<sub>3</sub> で希釈して 0.1、0.5、1、5ppb の Mo 標準液を調製した。Mo 全体としての濃度と天然同位体比から各質量数の濃度を算出し、各 Mo 同位体に対して検量線を作成した。この検量線を用いて、ろ紙試料から分離した各 Mo 同位体の計数率を濃度に換算した。質量数 92 と 94 の Mo に対してスパイク試料の Mo 濃度からノンスパイク試料の Mo 濃度を差し引き、添加した Mo 濃度に対する百分率として抽出クロマトグラフィーによる Mo の回収率を求めた。

JENDL-4.0 に掲載されている <sup>235</sup>U の核分裂収率(累積)を表 3.1.1.3(6)-1 にまとめた。質量数 92 の同位体の核分裂収率は質量数 95、97、98、100 の同位体の核分裂収率と比べ約 12 桁小さく、原子炉内で生成する量は無視でき、天然由来とみなせると考えられる。そこで、ろ紙試料から分離した Mo 同位体のうち、質量数 92 のものは天然由来のみであると見做し、質量数 92 の同位体の濃度と天然同位体比を用いて、ろ紙試料中の天然由来の各 Mo 同位体濃度を算出した。そして、ろ紙試料中の各 Mo 同位体濃度から天然由来の各 Mo 濃度を差し引き、原子炉由来の各 Mo 同位体濃度を求めた。ここで、スパイクした Mo も天然の Mo 同位体比をとるため、同様の計算で原子炉由来 Mo 同位体濃度が算出される。スパイク試料とノンスパイク試料から得られた原子炉由来の Mo 同位体濃度の平均値と誤差を求めた。また、求められた各同位体濃度の合計に対する各同位体濃度の百分率として同位体存在比を求めた。



表 3.1.1.3(6)-1 U-235 の核分裂に対する各質量数の Mo 同位体の核分裂収率

Mo の質量数	中性子のエネルギー	核分裂収率 (—)	不確かさ (—)
92	High	7.480250e-14	4.780270e-14
94	Thermal	2.466110e-09	1.578310e-09
	Fast	9.201000e-10	1.891540e-12
	High	9.986900e-07	6.386480e-07
95	Thermal	6.496540e-02	4.595850e-04
	Fast	6.418780e-02	3.476210e-04
	High	5.182640e-02	1.451050e-03
96	Thermal	5.431890e-06	3.476400e-06
	Fast	1.197690e-06	7.665240e-07
	High	3.536950e-05	2.119630e-06
97	Thermal	6.044680e-02	6.367340e-04
	Fast	6.063670e-02	6.781530e-04
	High	5.593210e-02	3.392540e-03
98	Thermal	5.700630e-02	9.802690e-04
	Fast	5.810950e-02	1.165690e-03
	High	5.361960e-02	6.024730e-03
100	Thermal	6.578550e-02	2.895860e-03
	Fast	6.633320e-02	3.408660e-03
	High	3.916370e-02	4.356340e-03

#### U 同位体の分析

ろ紙溶解液 0.5 ml に 3 ml の 3 M HNO<sub>3</sub> をくわえて U 分離用試料とした。また、回収率測定のため、ろ紙溶解液 0.5 ml に 3 ml の 3 M HNO<sub>3</sub> と 0.01 ml の 10 µg/ml の U も含む混合標準液 (SPEX 社製、XSTC-13) を加えたスパイク試料も作成し、同様のスキームで分析を行った。

超純水で膨潤させた UTEVA レジン(0.5 ml、アイクロム社製)をカラムに詰め、3.25 ml の 3 M HNO<sub>3</sub> を通液してコンディショニングを行った。試料導入後、試料の入っていた容器を 0.5 ml の 3 M HNO<sub>3</sub> で 3 回洗浄し、洗液も通液した。3.25 ml の 3 M HNO<sub>3</sub> を通液してカラムを洗浄した後、3.25 ml の 4 M HCl を通液した。その後、3.25 ml の 0.1 M HNO<sub>3</sub> を通液して U を回収した。回収液はホットプレート上で乾固した後、適宜 1 M HNO<sub>3</sub> で溶解し、ICP-QQQ(Agilent 社製、Agilent8900)で質量数 235、236、238 の U 同位体を測定した。同位体比の測定のために 10%濃縮ウラン(National Bureau of Standard

製、Standard Reference Material U-100、Uranium Isotopic Standard)を用いて各質量数の U 同位体の検量線を作成した。濃度については混合標準液 (SPEX 社製、XSTC-13) の U 濃度( $^{238}\text{U}$  濃度とみなす)を測定した結果で補正した。また、スパイク試料については回収液を 200 倍希釈して ICP-QQQ 測定を行い、添加量に対する回収量の百分率として回収率を求めた。

### Pu と Am の分析

ろ紙溶解液 1 ml に 0.2 ml の 1 M  $\text{NaNO}_2$  溶液と 0.8 ml の 2 M  $\text{HNO}_3$  を加えてノンスパイク試料を調製した。また、ろ紙溶解液 1 ml に 0.2 ml の 1 M  $\text{NaNO}_2$  溶液と 0.78 ml の 2 M  $\text{HNO}_3$ 、0.02 ml の 100 Bq/ml  $^{242}\text{Pu}$  または 125 Bq/ml  $^{243}\text{Am}$  を添加して、Pu スパイク試料または Am スパイク試料を調製した。ここで、 $\text{NaNO}_2$  は Pu を 4 価に調整するために用いた。

超純水で膨潤させた TRU レジン(0.5 ml、アイクロム社製)をカラムに詰め、3.4 ml の 1 M  $\text{HNO}_3$  を通液してコンディショニングを行った。試料導入後、試料溶液が入っていた容器を 0.5 ml の 1 M  $\text{HNO}_3$  で 3 回共洗いし、洗液も通液した。カラムを 3.4 ml の 1 M  $\text{HNO}_3$  で洗浄した後、3.4 ml の 4 M  $\text{HCl}$  で Am を回収した。次に 3.4 ml の 0.02 M  $\text{TiCl}_3$ -4 M  $\text{HCl}$  で Pu (IV) を Pu(III)に還元し、溶出させて回収した。

Am と Pu の回収液に対して、0.3 ml の Sm 標準液(富士フィルム和光純薬製、1 mg/ml)と 1 ml の  $\text{HF}$ (富士フィルム和光純薬製、50%水溶液)を添加し、30 分以上放置して  $\text{SmF}_3$  のマイクロ沈殿を生成させた。 $\alpha$  線スペクトル測定用 Resolve®フィルター(アイクロム社製、孔径 0.1  $\mu\text{m}$ )をマニホールドにセットし、エタノールを 5 ml 通液して PTFE フィルターを親水化した後、超純水を通液してろ過器に残っているエタノールを溶出させた。Am 又は Pu を  $\text{SF}_3$  と共沈させた溶液を吸引ろ過して、フィルター上にマイクロ沈殿を捕集した。超純水 2 ml で洗浄して酸成分を除去した後、少量のエタノールを通液してマイクロ沈殿を乾燥させた。乾燥後のフィルターをステンレス試料皿に両面テープで貼り付け、 $\alpha$  線スペクトル測定用試料とした。 $\alpha$  線スペクトルは  $\alpha$  線検出器( $\alpha$ -Ray detector BU-020-450-AS0,  $\alpha$ Ray Module SOLOIST, SEICO EG&G ORTEC)で測定した。この時、濃度既知の  $^{241}\text{Am}$  標準液(Eckert & Ziegler 社製、Am-241 gamma standard solution 7241)を用いてろ紙試料と同様の手法で調製した線源で効率を校正した。

### 分析結果

各試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の放射エネルギーの測定結果を表 3.1.1.3(6)-2 にまとめた。また、分割後ろ紙の放射能から袋に落ちた分を差し引いたものを 100%とした場合の溶解液、ビーカー附着、不溶性残渣の放射能の百分率についても表にまとめた。

表 3.1.1.3(6)-2 各試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の放射能量 (Bq)

試料	分割後ろ紙	袋に落ちた分	ビーカー	不溶解性残渣	溶解液 (約 10 ml)
U2RB-5FW	8.2E+03	4.9E+02	2.2E+03	1.6E+03	2.8E+03
U2RB-5FF	9.5E+02	5.2E+01	9.7E+01	7.2E+01	6.7E+02
U2RB-4FF	5.0E+04	1.8E+03	4.8E+02	2.9E+02	3.6E+04
U2RB-4FS-5	1.1E+03	8.7E+01	3.3E+00	1.6E+00	7.5E+02
U2RB-4FS-7	9.0E+03	3.8E+01	6.0E+00	1.6E+01	7.2E+03
U2RB-1FF	1.4E+05	2.4E+04	5.8E+02	5.1E+03	8.8E+04
U3SGF-B1-1	1.1E+03	4.8E+00	1.5E+00	8.3E+01	8.9E+02
U3SGF-B6-1	7.5E+03	8.3E+01	7.0E+00	3.9E+02	5.4E+03
U12SGS	2.0E+04	1.4E+01	4.2E+01	1.4E+02	1.8E+04

表 3.1.1.3(6)-3 各部分での  $^{137}\text{Cs}$  の放射能の百分率(%)

試料	溶解	ビーカー付着	不溶解性残渣	合計
U2RB-5FW	36.4	28.7	20.9	86.1
U2RB-5FF	73.2	10.6	7.9	91.7
U2RB-4FF	74.5	1.0	0.6	76.1
U2RB-4FS-5	73.1	0.3	0.2	73.6
U2RB-4FS-7	80.7	0.1	0.2	81.0
U2RB-1FF	73.5	0.5	4.2	78.2
U3SGF-B1-1	78.2	0.1	7.4	85.8
U3SGF-B6-1	71.2	0.1	5.3	76.6
U12SGS	89.3	0.2	0.7	90.2

各百分率の和が 100%とならない理由は、分割後ろ紙やビーカー、分割後ろ紙を取り出したポリ袋などの形状が元のろ紙(円形)と大きく異なっていることが挙げられる。特にビーカーでは、側面に付着した部分については距離が離れるために低く出ると考えられ、過小評価していると考えられる。また、分割後ろ紙試料を元のろ紙の円の範囲内で場所を置き換えて  $\gamma$  線測定したところ、 $\pm 6\%$ ほどの差が確認された。U2RB-5FW 以外の試料については  $^{137}\text{Cs}$  が 70%以上溶解しているため、硝酸で溶解される元素はおおむね溶解できたと考えられる。他方、U2RB-5FW についてはビーカー付着や不溶解性残渣の比率が高く、 $\text{HNO}_3$  では溶解しにくい形態のものが付着していたと考えられる。この放射性の不溶性残渣について、1F 事故で放出された不溶性 Cs 粒子 (CsMP) の可能性が考えられる [3.1.1-4]。CsMP は 0.1 M の塩酸溶液により 24 %程溶解すると報告されている [3.1.1-5]。

本研究では、文献よりも高濃度の酸である濃硝酸（約 15 M）を使用しており、現在よりも低濃度の酸で溶解した場合は、さらに不溶性残渣中の放射性 Cs 濃度が増加する可能性があると考えられる。

尚、操作ブランク試料について放射エネルギーの測定の結果、 $^{137}\text{Cs}$  は検出されなく、同じ酸分解の操作をしても不溶性残渣は生じなかったことから、放射性の不溶性残渣は、操作過程で混入したものではないことが確認された。

表 3.1.1.3(6)-4 にろ紙溶解液中の  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{99}\text{Tc}$  の放射能濃度(Bq/ml)と Mo 同位体と U 同位体のモル濃度(mol/ml)の測定値(測定時)をまとめた。Pu と Am の放射能濃度測定結果については表 3.1.1.3(6)-5 にまとめた。ここで、 $^{239}\text{Pu}$  と  $^{240}\text{Pu}$  の  $\alpha$  線のエネルギーは 5.157 MeV と 5.168 MeV であり、スペクトルを弁別できなかったため、 $^{239+240}\text{Pu}$  として求めた。

U 同位体のモル濃度の質量数 238 のモル濃度に対する比を表 3.1.1.3(6)-6 にまとめた。ここで、ORIGEN2 計算コード[3.1.1-3]で計算されている 1 号機、2 号機、3 号機の震災後 10 年のモル濃度比も併記した。2 号機のスミヤ試料の  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  モル濃度比と  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  モル濃度比は  $1.5 \times 10^{-2} \sim 1.8 \times 10^{-2}$  および  $2.8 \times 10^{-3} \sim 3.9 \times 10^{-3}$  であり、それぞれ ORIGEN2 計算による値  $1.9 \times 10^{-2}$  および  $3.4 \times 10^{-3}$  と同程度であったことから、原子炉由来であると考えられる。U12SGS と U3SGF-B6-1 に対する  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  モル濃度比と  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  モル濃度比も計算値に比較的近い結果となったことから原子炉由来であると考えられる。他方、U3SGF-B1-1 の結果は ORIGEN2 コードの値とは大きく異なっており、 $^{238}\text{U}$  濃度が高いことから、主に天然由来のものと考えられる。ただし、U3SGF-B1-1 中の U 濃度が非常に低いため、 $^{235}\text{U}$  は正しく測れていない可能性がある。

各放射エネルギーを事故時(2011/3/11)に減衰補正し、 $^{137}\text{Cs}$  のモル濃度に対する比を算出して図 3.1.1.3(6)-1 にまとめた。ここで、 $^{239+240}\text{Pu}$  のモル濃度は  $^{240}\text{Pu}$  の半減期を用いて求めた。 $^{137}\text{Cs}$  の放射エネルギー自体は 1 階の方が高いが、 $^{137}\text{Cs}$  に対する  $^{99}\text{Tc}$ 、Mo 同位体、 $^{238}\text{U}$  のモル濃度比は、5 階で採取されたスミヤ試料では 10 倍程度高く、4 階ではやや高いか同程度、1 階ではやや低い結果となった。

$^{137}\text{Cs}$  に対する  $^{90}\text{Sr}$  のモル比は、2 号機の試料では 2 桁ほど、1 号機と 3 号機の試料では 3 桁ほど低い結果となった。

表 3.1.1.3(6)-4 ろ紙溶解液中の  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{99}\text{Tc}$  の放射能濃度(Bq/ml)と Mo 同位体と U 同位体のモル濃度(mol/ml)の測定値

	Bq/ml	Bq/ml	Bq/ml	Bq/ml	mol/ml	mol/ml	mol/ml	mol/ml	mol/ml	mol/ml	mol/ml	mol/ml
	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{99}\text{Tc}$	$^{95}\text{Mo}$	$^{96}\text{Mo}$	$^{97}\text{Mo}$	$^{98}\text{Mo}$	$^{100}\text{Mo}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
U2RB-5FW	8.8E+00	2.9E+02	3.4E+00	9.9E-01	6.3E-12	3.2E-13	7.1E-12	7.0E-12	7.6E-12	3.3E-13	7.2E-14	1.8E-11
U2RB-5FF	2.3E+00	6.9E+01	8.1E-01	1.1E-01	1.3E-12	7.0E-14	1.4E-12	1.4E-12	1.5E-12	1.3E-14	3.1E-15	8.5E-13
U2RB-4FF	1.6E+02	3.7E+03	1.8E+01	4.1E-01	1.8E-11	9.8E-13	2.0E-11	2.0E-11	2.2E-11	2.3E-14	4.9E-15	1.4E-12
U2RB-1FF	4.1E+02	9.0E+03	3.4E+02	3.9E-01	1.9E-11	1.1E-12	2.1E-11	2.1E-11	2.3E-11	6.0E-14	1.1E-14	4.0E-12
U3SGF-B1-1	2.5E+00	8.9E+01	1.5E-01	ND	ND	ND	ND	ND	ND	3.1E-16	ND	3.1E-13
U3SGF-B6-1	1.9E+01	5.4E+02	4.2E-01	ND	ND	ND	ND	ND	ND	1.3E-14	2.2E-15	8.9E-13
U12SGS	5.3E+01	1.8E+03	8.7E-01	ND	ND	ND	ND	ND	ND	2.8E-15	1.5E-15	3.9E-13

表 3.1.1.3(6)-5 ろ紙溶解液中の  $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{243}\text{Am}$  の放射能濃度(Bq/ml)の測定値

	回収率		放射能							
	$^{242}\text{Pu}$	$^{243}\text{Am}$	$^{238}\text{Pu}$	誤差	$^{239+240}\text{Pu}$	誤差	$^{241}\text{Am}$	誤差	$^{243}\text{Am}$	誤差
U2RB-5FW	92	98	0.0674	0.0020	0.0296	0.0013	0.0155	0.0011	0.0071	0.0007
U2RB-5FF	99	97	0.0043	0.0003	0.0018	0.0002	0.0034	0.0002	ND	
U2RB-4FF	100	96	0.0130	0.0005	0.0071	0.0004	0.0127	0.0005	ND	
U2RB-1FF	97	93	0.0223	0.0011	0.0106	0.0008	0.0193	0.0011	ND	
U3SGF-B1-1	98	94	ND		ND		ND		ND	
U3SGF-B6-1	97	92	ND		ND		ND		ND	
U12SGS	102	100	ND		0.0012	0.0023	ND		ND	

表 3.1.1.3(6)-6  $^{235}\text{U}$  及び  $^{236}\text{U}$  の  $^{238}\text{U}$  に対するモル比

	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$
U2RB-5FW	1.8E-02	3.9E-03
U2RB-5FF	1.5E-02	3.7E-03
U2RB-4FF	1.7E-02	3.6E-03
U2RB-1FF	1.5E-02	2.8E-03
U3SGF-B1-1	9.8E-04	-
U3SGF-B6-1	1.5E-02	2.5E-03
U12SGS	7.3E-03	4.0E-03
1号機	1.7E-02	3.7E-03
2号機	1.9E-02	3.4E-03
3号機	1.9E-02	3.2E-03

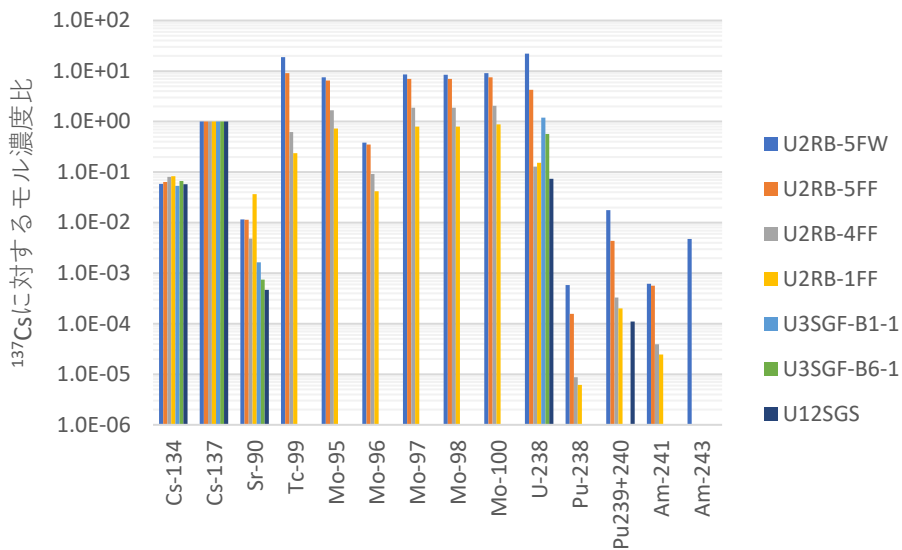


図 3.1.1.3(6)-1 各スミヤ試料中の各核種のもル濃度の  $^{137}\text{Cs}$  もル濃度に対する比

(7) 酸分解後ろ過残渣のイメージングプレート分析

放射性の不溶性残渣の組成を SEM/EDS で分析するにあたり、ろ紙上の位置を把握する必要がある。しかしながら、放射性の不溶性残渣の位置は目視で確認できないため、IP 分析により把握することとした。ろ紙試料をポリ袋内に封入し、IP に密着させて 24 時間露光した。得られた IP 画像を図 3.1.1.3(7)-1~3 に示す。各試料についてスポット状の放射性の不溶性残渣が存在していること、またその位置を確認した。なお、U2RB-4FS-7 試料および U2RB-4FS-5 試料の残渣については、SEM による分析の際、ろ紙の方向の参考に

なる情報がないため、図 3.1.1.3(7)-4 のように 8 分割し試料形状を変化させ、一部の試料を SEM 観察に供した。

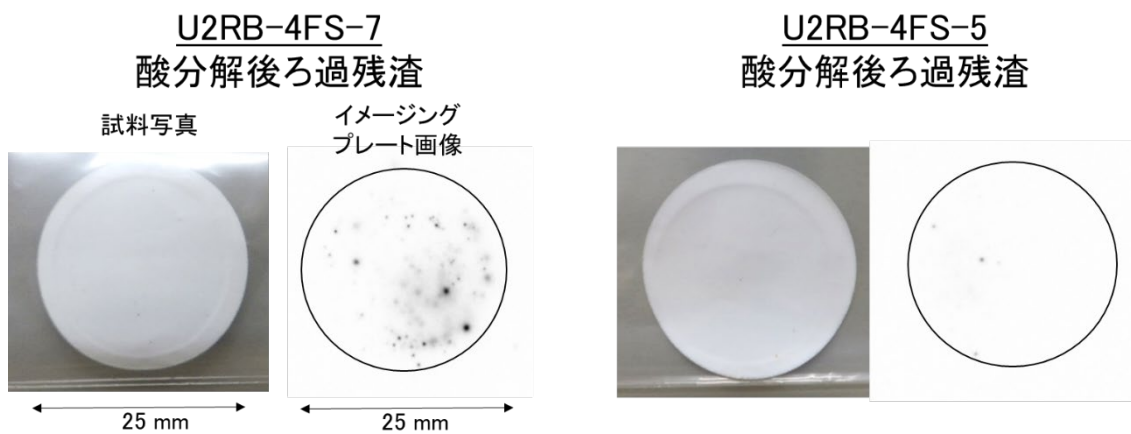


図 3.1.1.3(7)-1 U2RB-4FS-7, 5 の酸分解後ろ過残渣の IP 結果

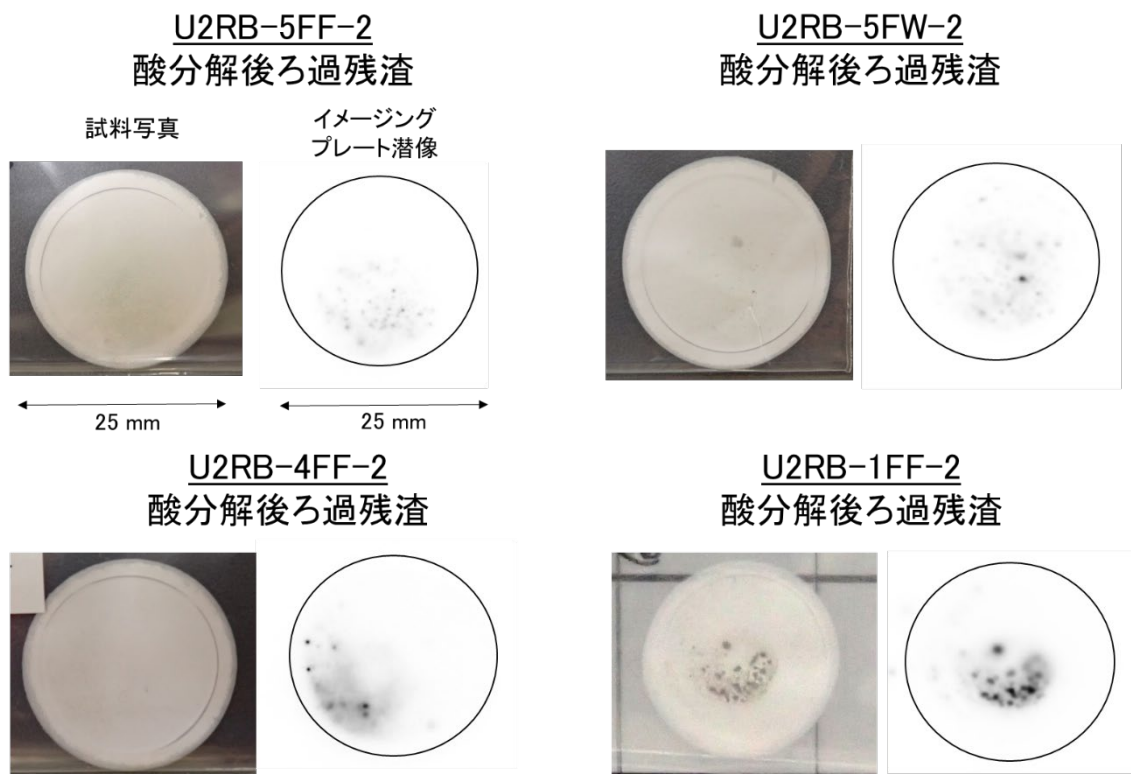
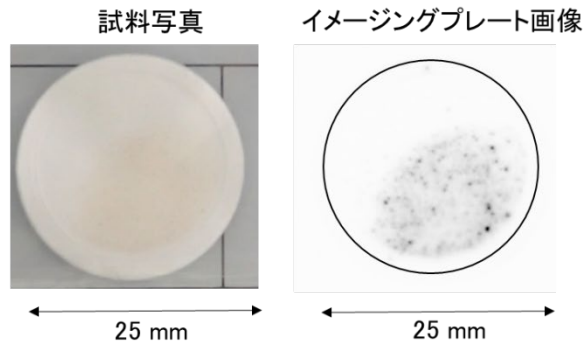


図 3.1.1.3(7)-2 U2RB-5FF-2, U2RB-5FW-2, U2RB-4FF-2, U2RB-1FF-2 の酸分解後ろ過残渣の IP 結果



**U12SGS-6**  
**酸分解後ろ過残渣**



**U3SGF-B1-1-2**  
**酸分解後ろ過残渣**



**U3SGF-B6-1-2**  
**酸分解後ろ過残渣**

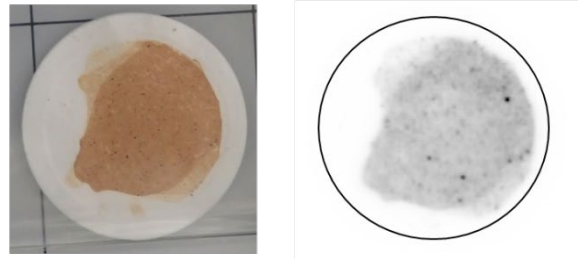


図 3.1.1.3(7)-3 U12SGS-6, U3SGF-B1-1-2, U3SGF-B6-1-2 の酸分解後ろ過残渣の IP 結果

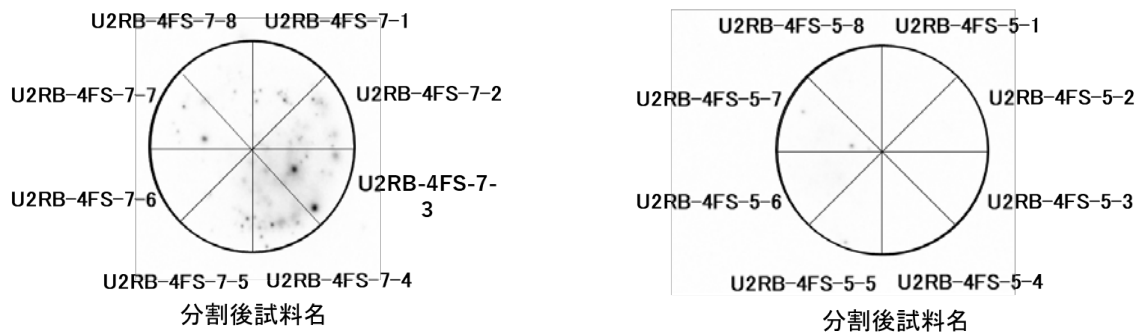


図 3.1.1.3(7)-4 U2RB-4FS-7, 5 の酸分解後ろ過残渣の分割位置および分割後試料名

## (8) SEM/EDS 分析

スミヤ試料に付着している粒子の元素や微粒子の核種の存在可能性を把握するために SEM/EDS 装置を用いた観察及び元素分析を実施した。SEM 観察は、図 3.1.1.3(8)-1 のようにスミヤ紙をカーボンテープでステージに固定し実施した。観察は、加速電圧 15kV、反射電子像観察で、EDS を用いて元素分析を実施した。当初、スミヤ紙上の付着粒子が SEM チャンバー内の真空により飛散することが懸念されたが、観察前後のスミヤ紙の外観を図 3.1.1.3(8)-1 に示すように、観察前後において外観上の変化は認められなかった。

対象試料は、酸溶解試験に供した試料を対象とし、分析結果を表 3.1.1.3(8)-1、面分析結果を図 3.1.1.3(8)-2~図 3.1.1.3(5)-13 に示す。スミヤ試料には塵状粒子も外観で多く観察されており、塵状粒子により放射性核種が表面に存在していない可能性もあり、対象試料は、スミヤのろ紙だけでなく、酸溶解後の残渣試料も含めた。EDS 分析では、多様な検出元素が観察され、それら元素を構造材、燃料材、塗料、海水由来と推定されるものに分類した。分類に際しては、IRID 報告書[3.1.1-6] を参考にした。

結果の概要を以下に示す。

- ・ 2号機建屋のスミヤ試料において、構造材と推定される Fe, Cr, Ni, Ca, Si, Al, Mg, Ti, S がろ紙と残渣において観察された。また、塗料と推定される Zn が観察され、特にろ紙で顕著に観察された。さらに、海水由来と推定される Na, Mg, K が観察された。
- ・ 2号機建屋のスミヤ試料において、燃料材由来と推定される U, Zr, Sn, Sb, Ba, Ag が観察された。
  - ✓ Sb は 4 階階段裏面の残渣 (図 3.1.1.3(8)-5(b))、4 階床面 (図 3.1.1.3(8)-6(d)) で観察された。いずれも数ミクロンサイズの Si を主体とした微粒子に Sb の含有が認められた。
  - ✓ U, Zr は 5 階壁面 (図 3.1.1.3(8)-2(d)、図 3.1.1.3(8)-2(e)、図 3.1.1.3(8)-2(f))、残渣 (図 3.1.1.3(8)-3(d)) で観察された。いずれの試料において U、Zr の両方の元素が観察され、粒子のサイズは数ミクロンであった。両者の原子数比を表 3.1.1.3(8)-2 に示す。いずれの試料において原子数比は概ね 1:1 となった。
- ・ 1/2 号機 SGTS 配管内部、3 号機 SGTS フィルターでは U、Zr の元素は観察されなかった。
- ・ ガンマ線核種分析では、スミヤ紙の主要な構成元素として Cs-137、Cs-134 が検出されているが、今回の EDS 分析において分析対象とした粒子では Cs は検出されなかった。

表 3.1.1.3(8)-1 対象試料及び EDS により検出された元素

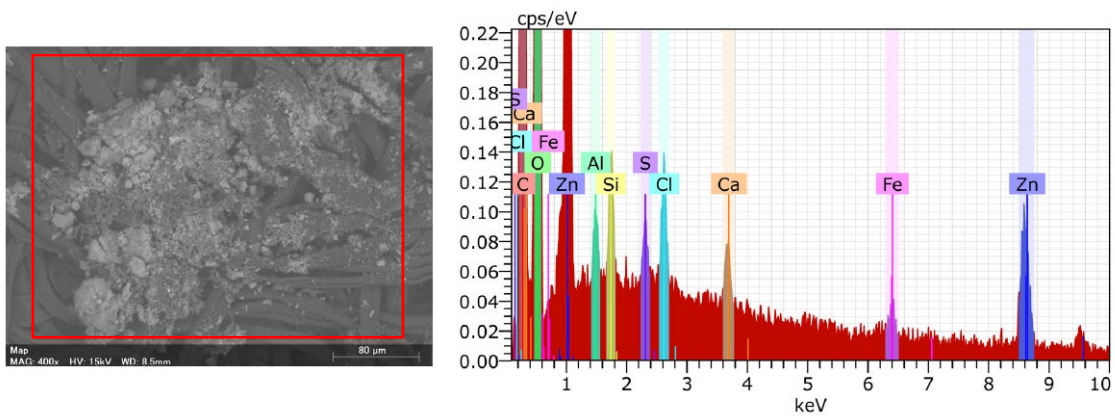
試料名	対象	検出元素	図番
U2RB-5FW (2号機建屋5階壁)	ろ紙	(構造)Fe, Ca, Si, Al, Ni, Mg, Ti, S (燃料)U, Zr, Sn, Ba (塗料)Zn (海水)Mg, Na, Cl	図 3.1.1.3(8)-2 (a)~(f)
	残渣	(構造)Fe, Cr, Si, Al, Mg, Ti (燃料)U, Zr, Sn (海水)Mg	図 3.1.1.3(8)-3 (a)~(d)
U2RB-4FS (2号機建屋4階階段裏面)	ろ紙	(構造)Fe, Ti, Cr, Ca, Si, Al, Mg, S (燃料)Ba (海水)Mg, Cl	図 3.1.1.3(8)-4 (a)~(b)
	残渣	(構造)Fe, Ti, Si, Al, Mg, K, S (燃料)Sb (海水)Mg, Na, K	図 3.1.1.3(8)-5 (a)~(b)
U2RB-4FF (2号機建屋4階床)	ろ紙	(構造)Fe, Cr, Ca, Si, Al, S, Mg, K, Ti (燃料)Sb, Ag (塗料)Zn (海水)Mg, Na, K	図 3.1.1.3(8)-6 (a)~(d)
U2RB-1FF (2号機建屋1階床)	ろ紙	(構造)Fe, Ca, S, Si, Al (燃料)Ba (海水)Cl, Mg, Na	図 3.1.1.3(8)-7 (a)~(b)
U12SGS (1/2号機SGTS配管内部)	ろ紙	(構造)Fe, Ca, Si, Al	図 3.1.1.3(8)-8 (a)
	残渣	(構造)Fe, Si, Mg (海水)Mg	図 3.1.1.3(8)-9 (a)
U3SGF-B1-1 (高性能フィルター上流 ①-1)	ろ紙	(構造)Si, Al, Mg (海水)Mg	図 3.1.1.3(8)-10 (a)
	残渣	(構造)Si, Mg (海水)Mg	図 3.1.1.3(8)-11 (a)
U3SGF-B6-1 (デミスター上流 ⑥-1)	ろ紙	(構造)Fe, Ca, S, Si, Al (燃料)Ba	図 3.1.1.3(8)-12 (a)~(b)
	残渣	(構造)Fe, Si, Mg, Ti, Al (海水)Mg	図 3.1.1.3(8)-13 (a)

表 3.1.1.3(8)-2 U と Zr の原子数比

試料	採取場所	対応図	U (at%)	Zr (at%)
U2RB-5FW	5階壁のろ紙	図 3.1.1.3(8)-2(d)	47	53
U2RB-5FW	5階壁のろ紙	図 3.1.1.3(8)-2(e)	56	44
U2RB-5FW	5階壁のろ紙	図 3.1.1.3(8)-2(f)	56	44
U2RB-5FW	5階壁の残渣	図 3.1.1.3(8)-3(d)	55	45



図 3.1.1.3(8)-1 SEM 観察用ステージの装着様子（上段）  
及び SEM-EDS 測定前後のスミヤ試料の外観（下段）



Zn, Fe, Ca, Cl, S, Si Al を検出

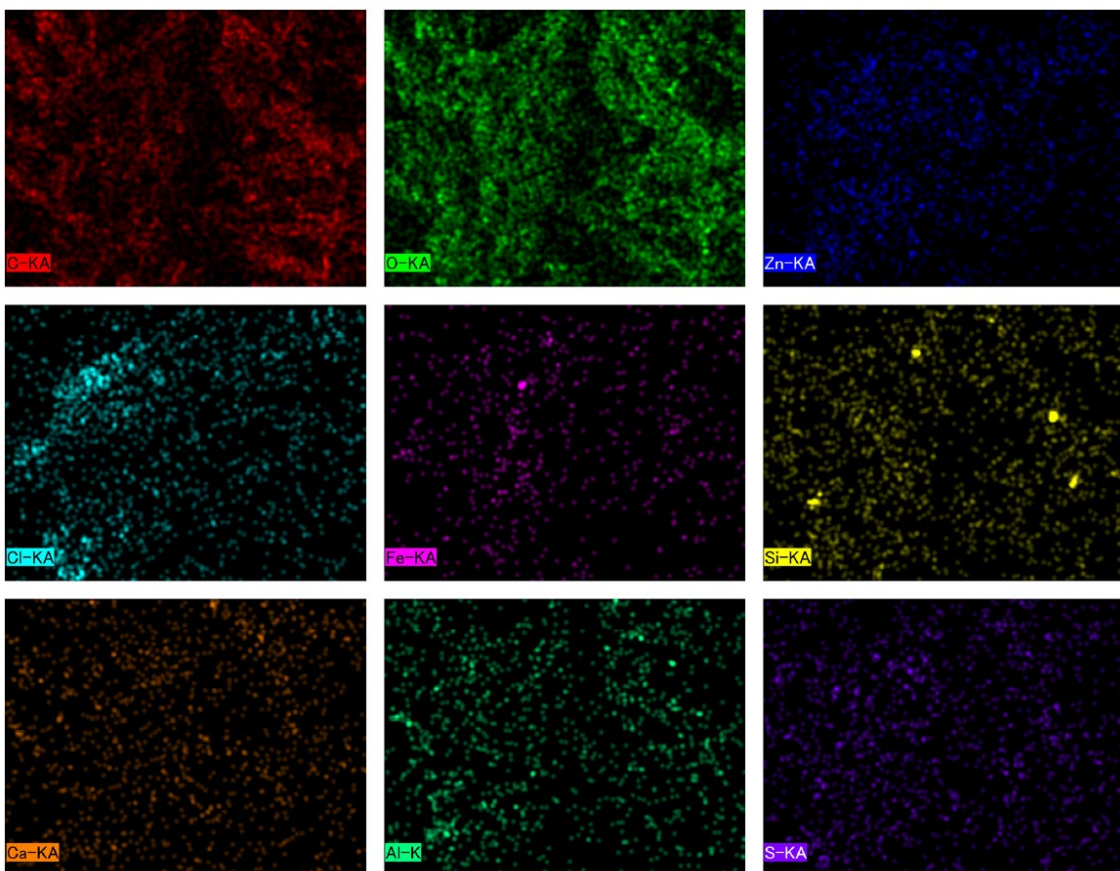
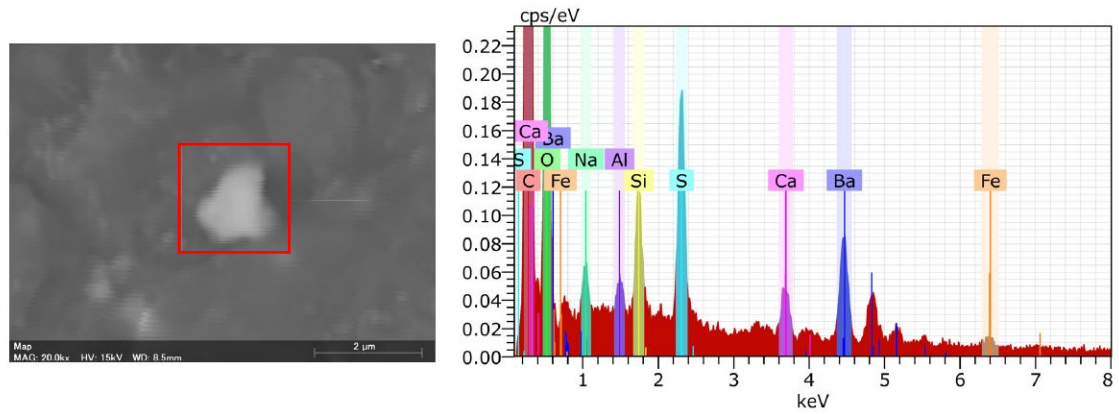


図 3.1.1.3(8)-2(a) U2RB-5FW (2号機建屋5階壁) ろ紙の面分析及び元素マッピング



Fe, Ba, Ca, S, Si Al を検出

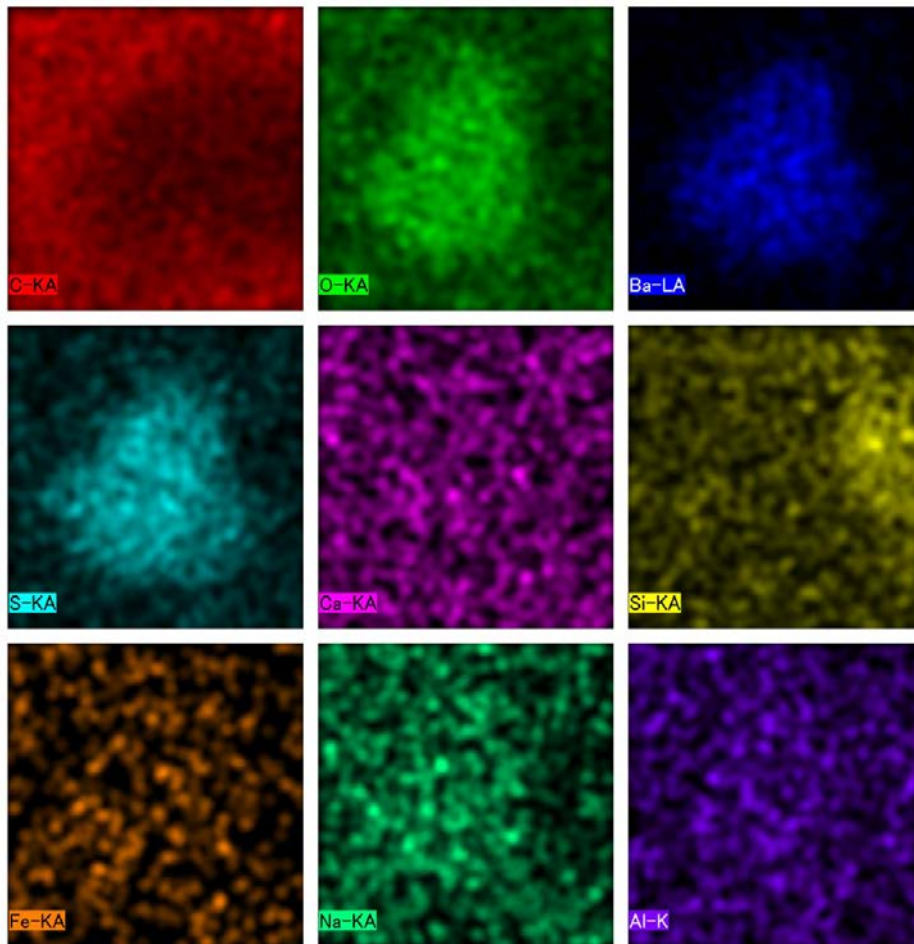
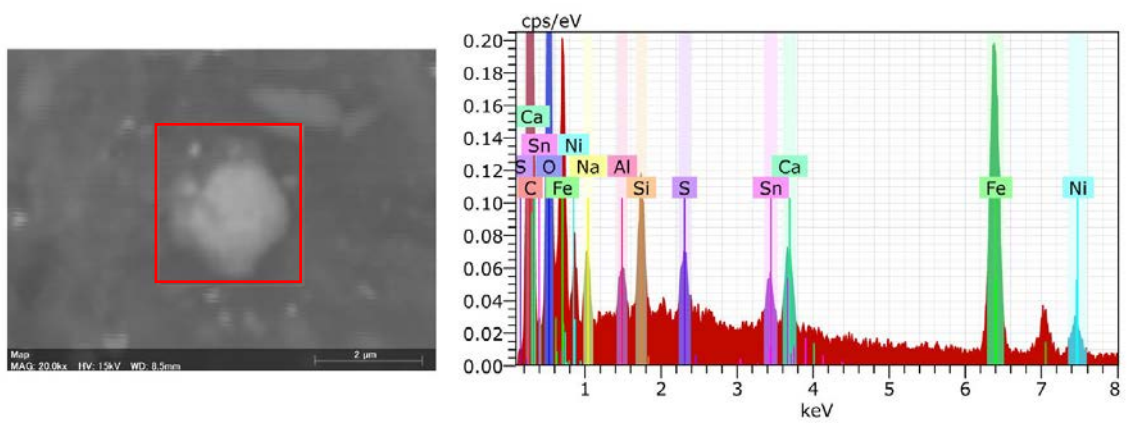


図 3.1.1.3(8)-2(b) U2RB-5FW (2号機建屋5階壁) ろ紙の面分析及び元素マッピング



Ni, Fe, Ca, Sn, S, Si Al, Na を検出

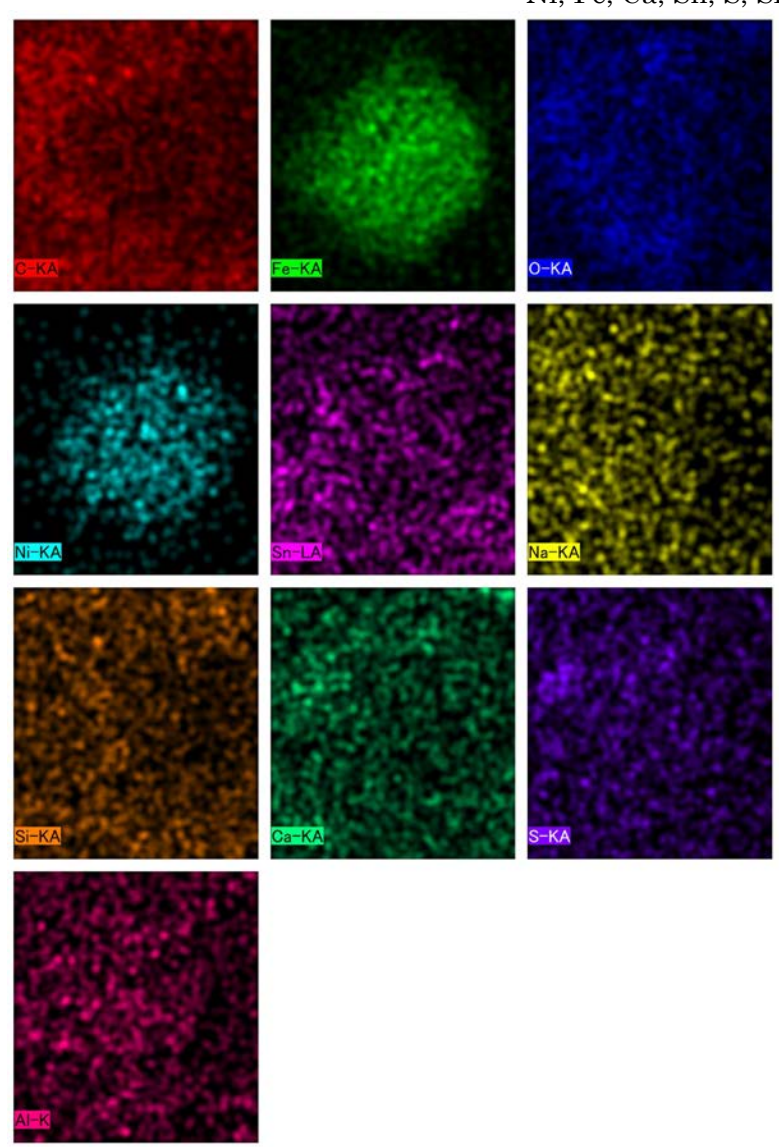
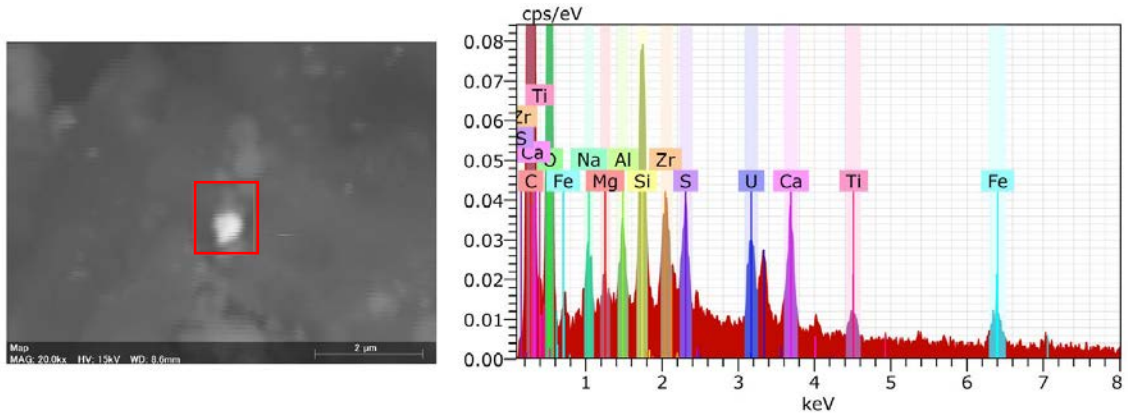


図 3.1.1.3(8)-2(c) U2RB-5FW (2号機建屋5階壁) ろ紙の面分析及び元素マッピング



Fe, Ti, Ca, U, S, Zr, Si Al, Mg Na を検出

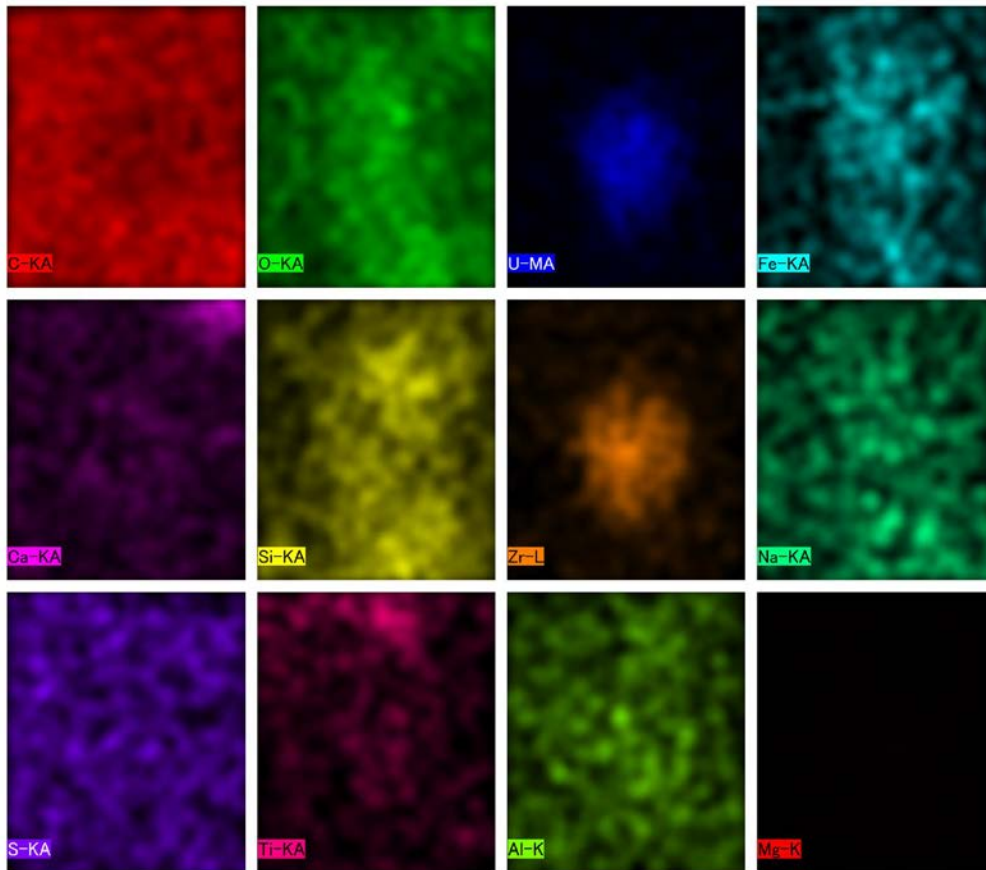
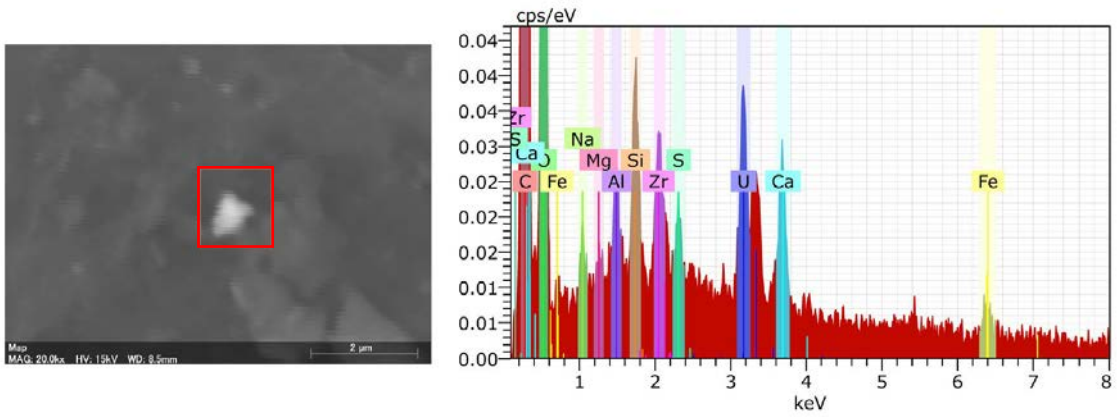


図 3.1.1.3(8)-2(d) U2RB-5FW (2号機建屋5階壁)ろ紙の面分析及び元素マッピング





Fe, Ca, U, S, Zr, Si Al, Mg, Na を検出

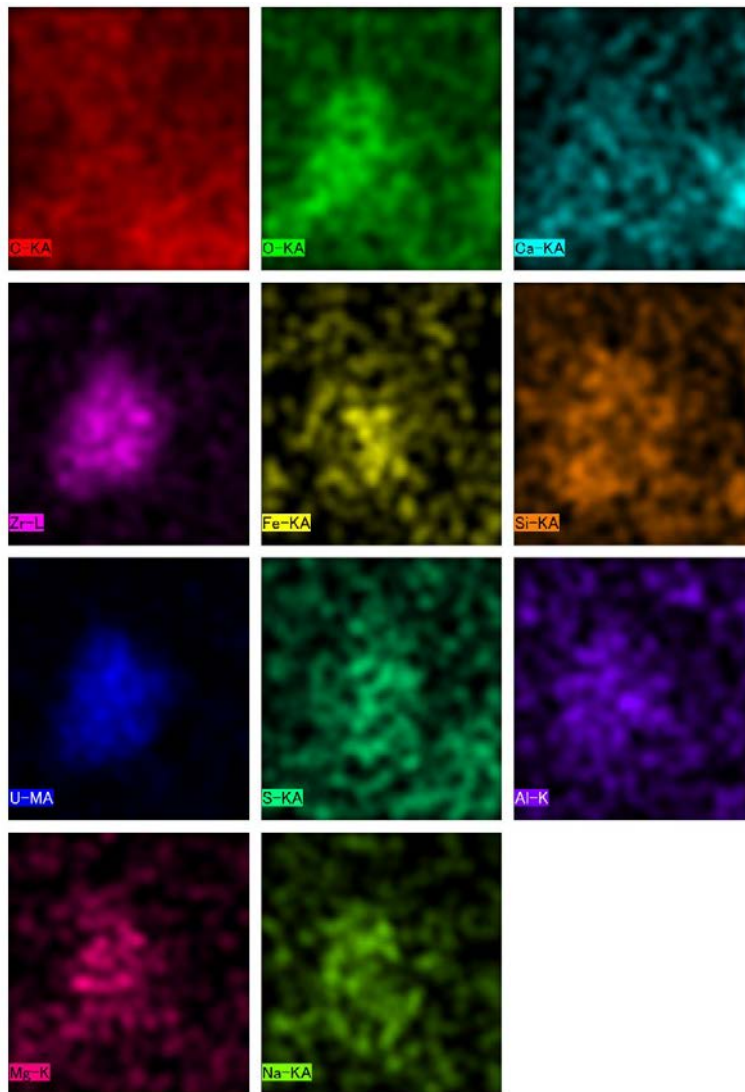
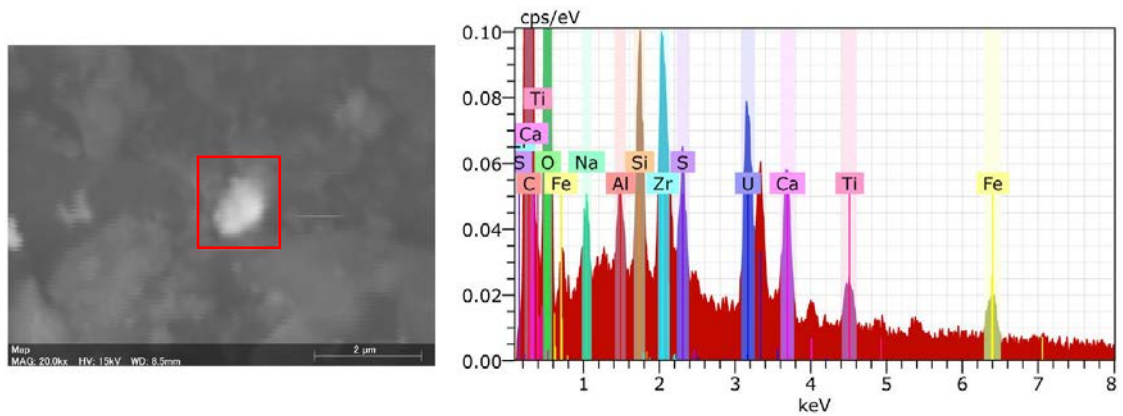


図 3.1.1.3(8)-2(e) U2RB-5FW (2号機建屋5階壁) ろ紙の面分析及び元素マッピング



Fe, Ti, Ca, U, S, Zr, Si Al, Na を検出

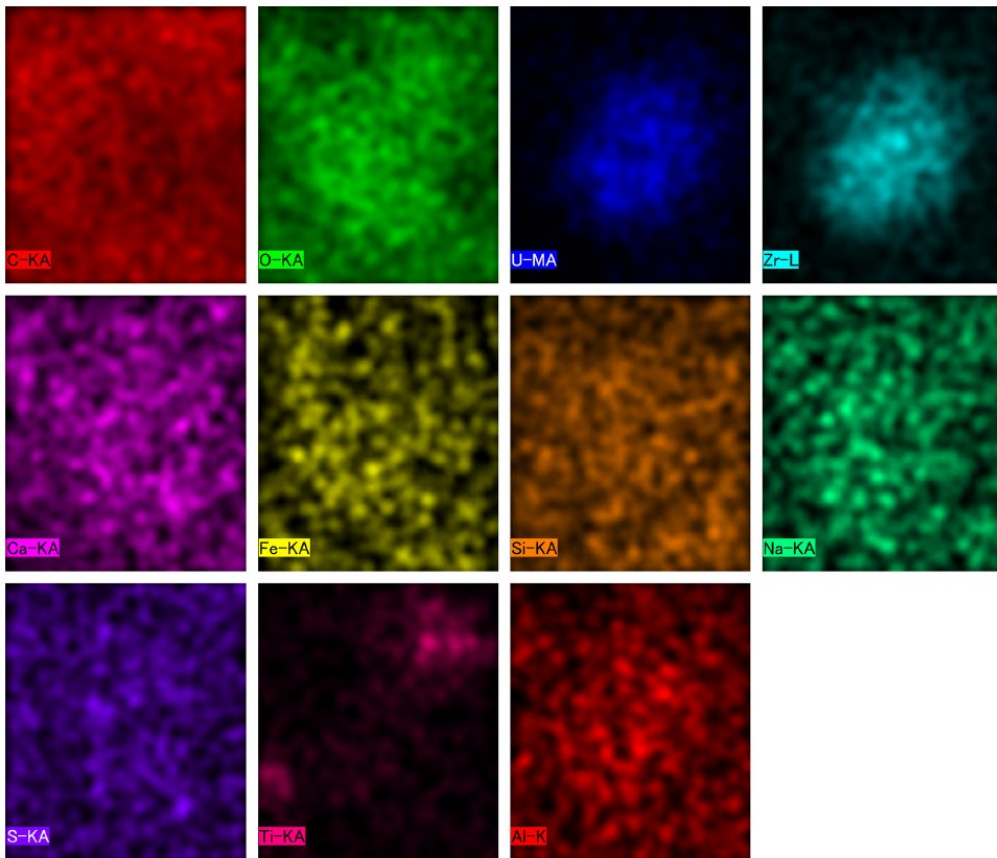


図 3.1.1.3(8)-2(f) U2RB-5FW (2号機建屋5階壁) ろ紙の面分析及び元素マッピング

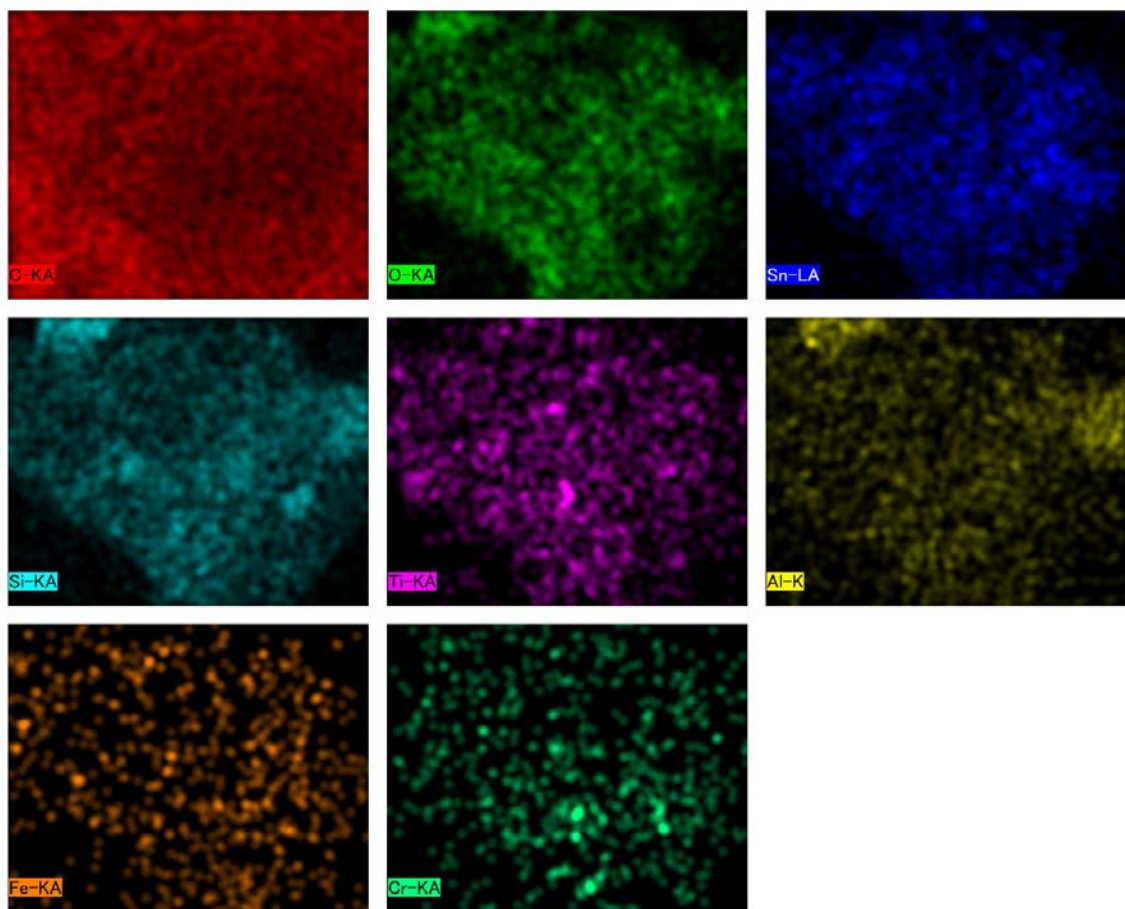
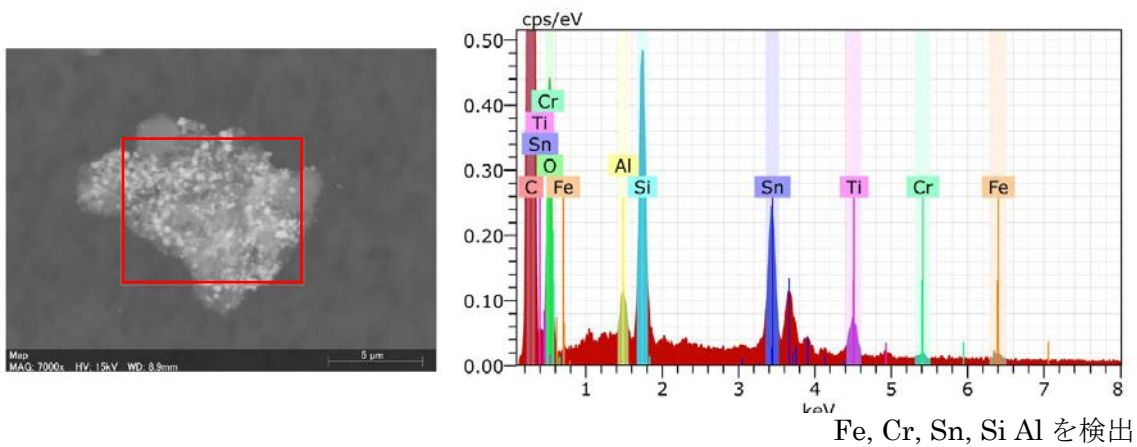
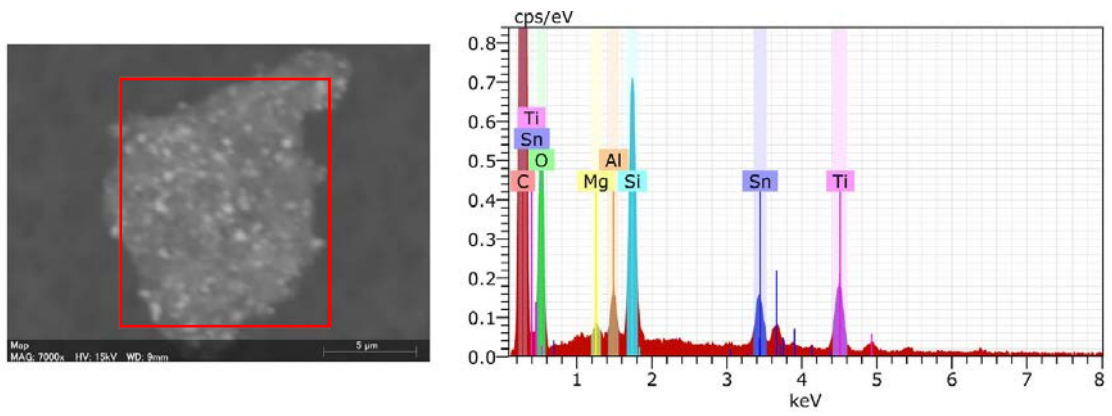


図 3.1.1.3(8)-3(a) U2RB-5FW (2号機建屋5階壁) 溶解後残渣の面分析及び元素マッピング



Ti, Sn, Si Al, Mg を検出

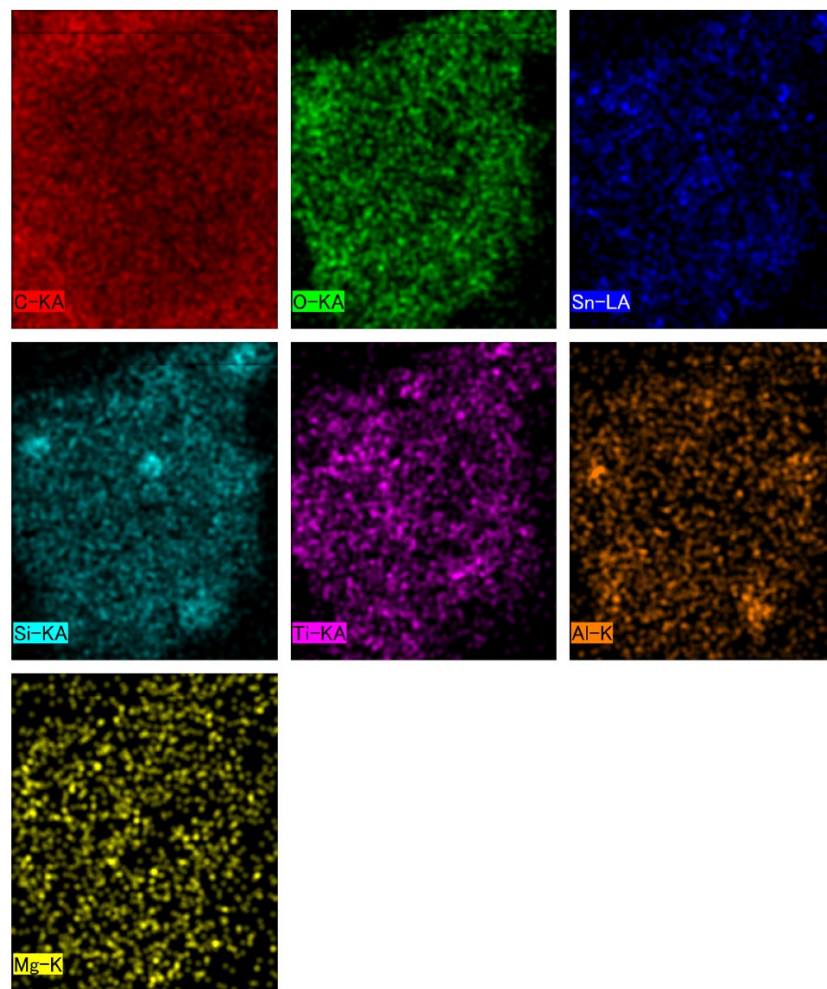
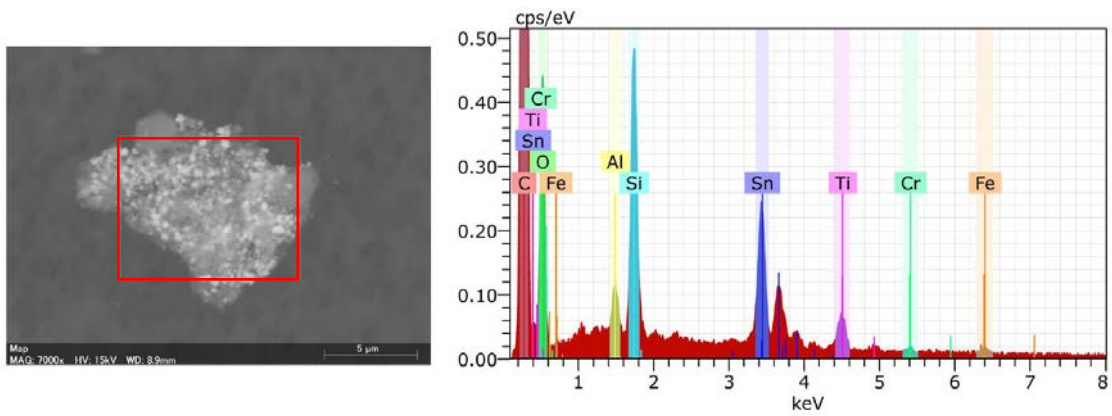


図 3.1.1.3(8)-3(b) U2RB-5FW (2号機建屋5階壁) 溶解後残渣の面分析及び元素マッピング



Fe, Cr, Ti, Sn, Si Al を検出

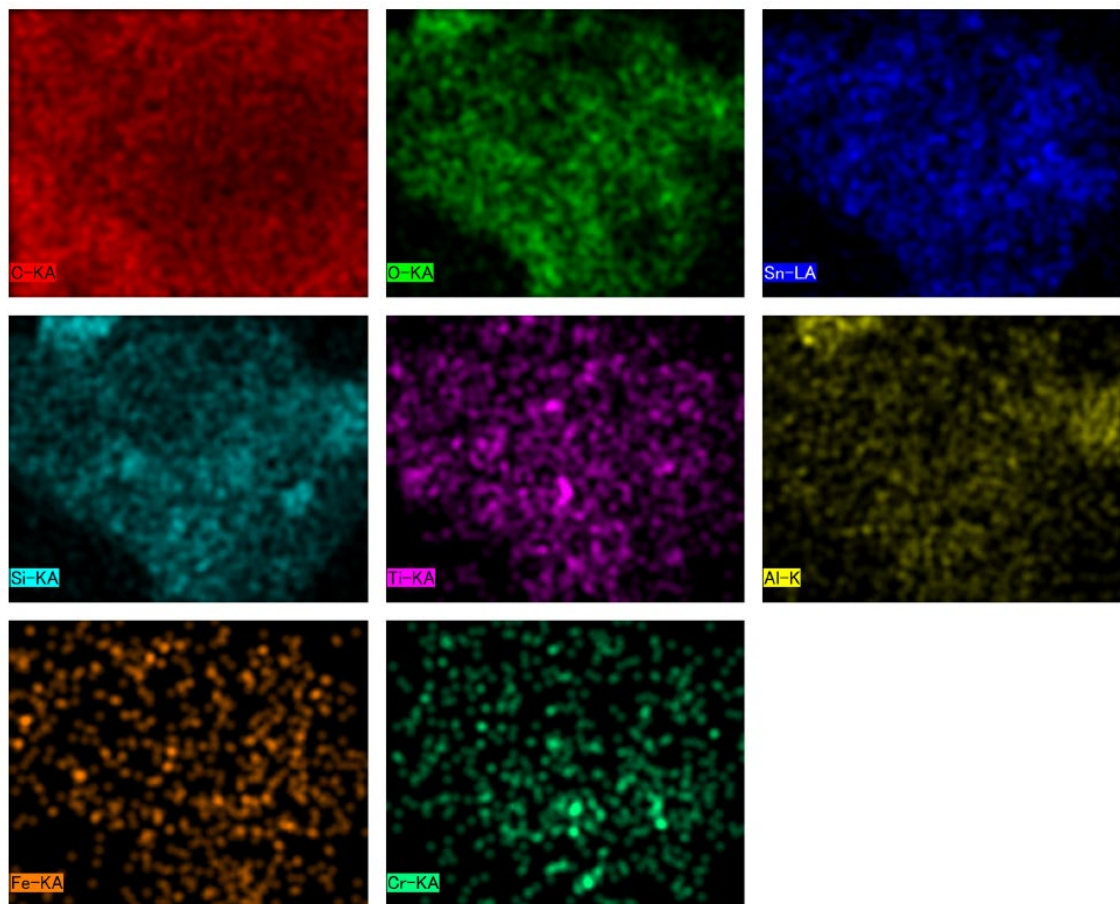
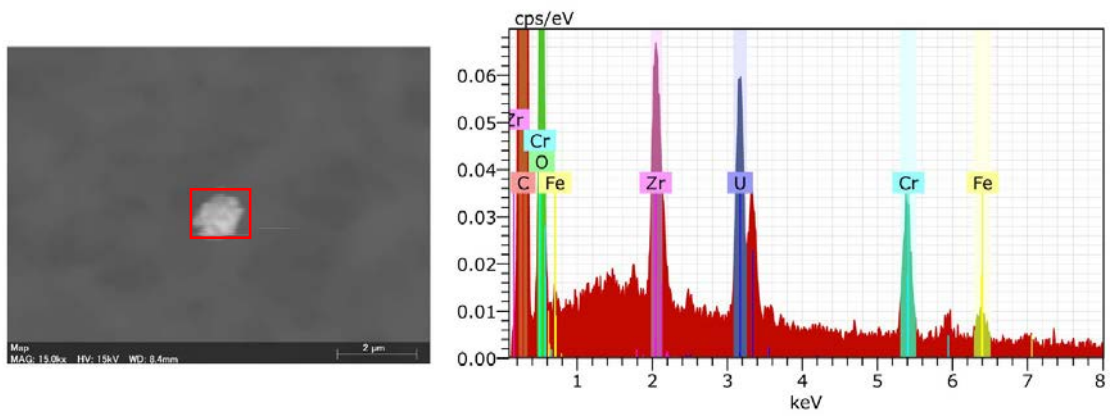


図 3.1.1.3(8)-3(c) U2RB-5FW (2号機建屋5階壁) 溶解後残渣の面分析及び元素マッピング



Fe, Cr, U, Zr を検出

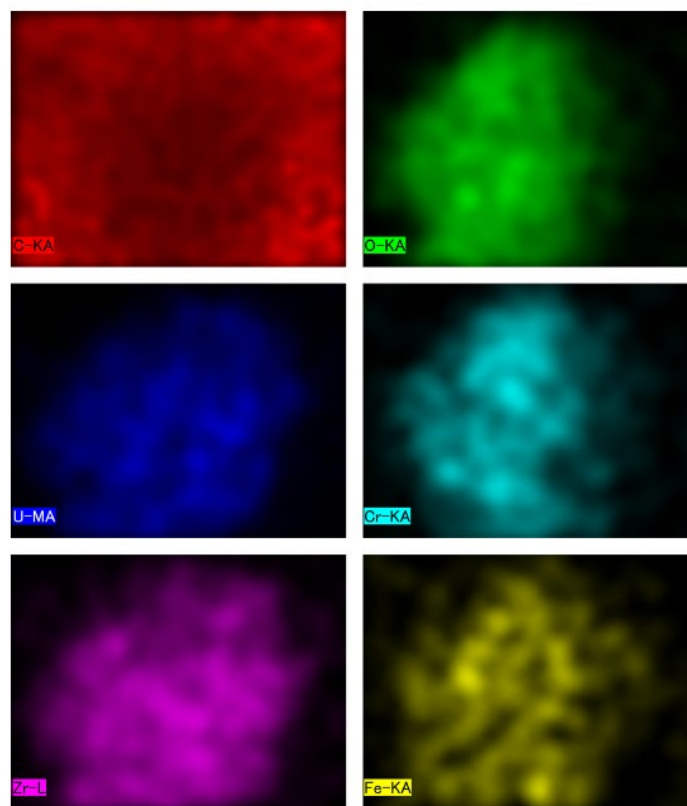
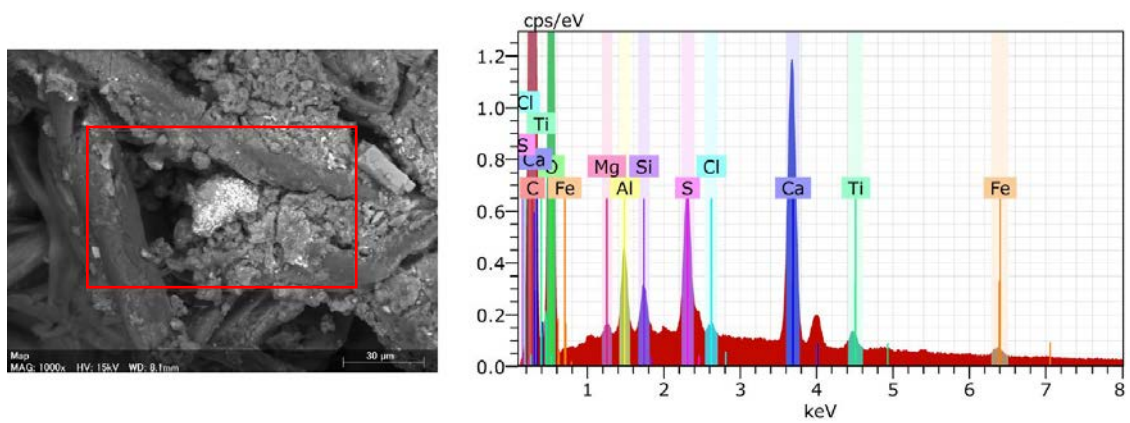


図 3.1.1.3(8)-3(d) U2RB-5FW (2号機建屋5階壁) 溶解後残渣の面分析及び元素マッピング



Fe, Ti, Ca, Cl, S, Si, Al, Mg を検出

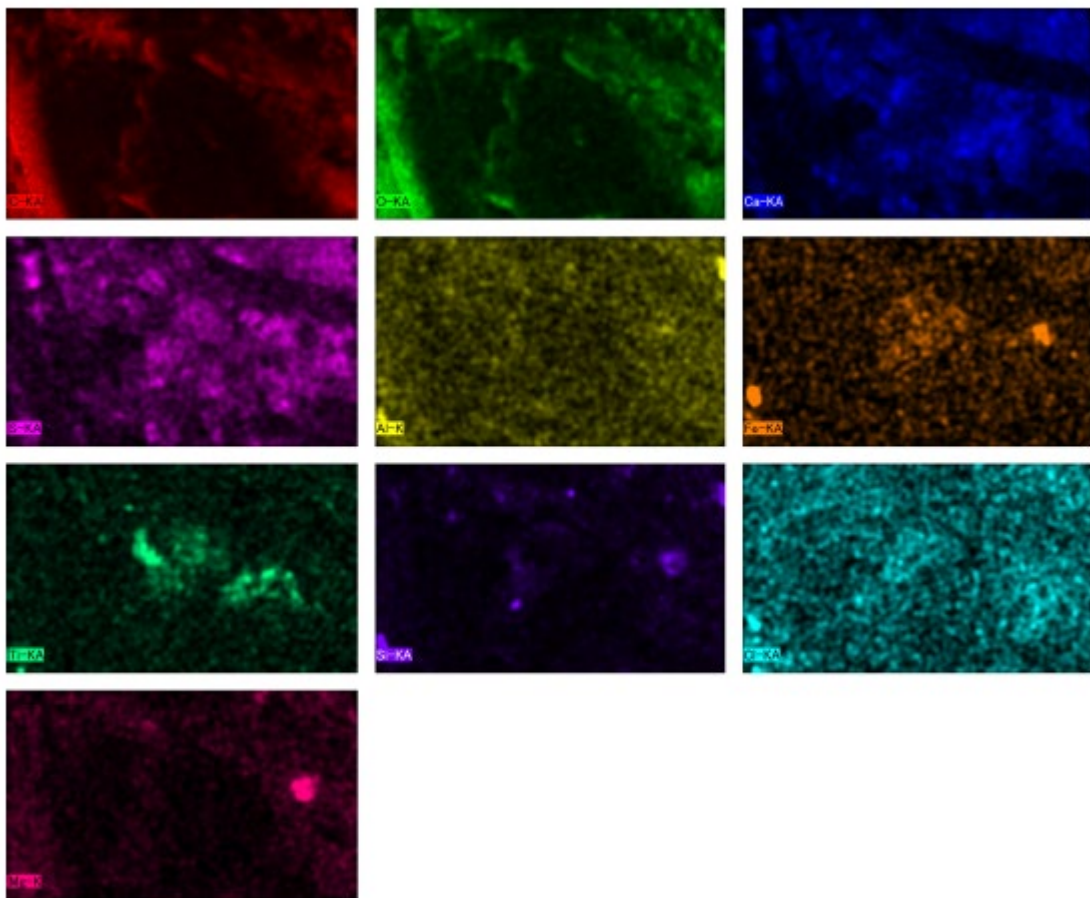
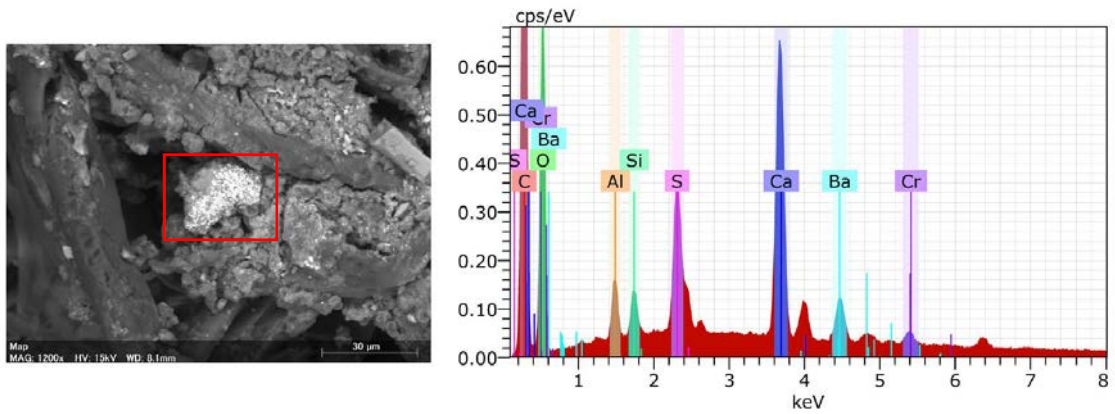


図 3.1.1.3(8)-4(a) U2RB-4FS (2号機建屋4階階段裏面) ろ紙の面分析



Cr, Ba, Ca, S, Si, Al を検出

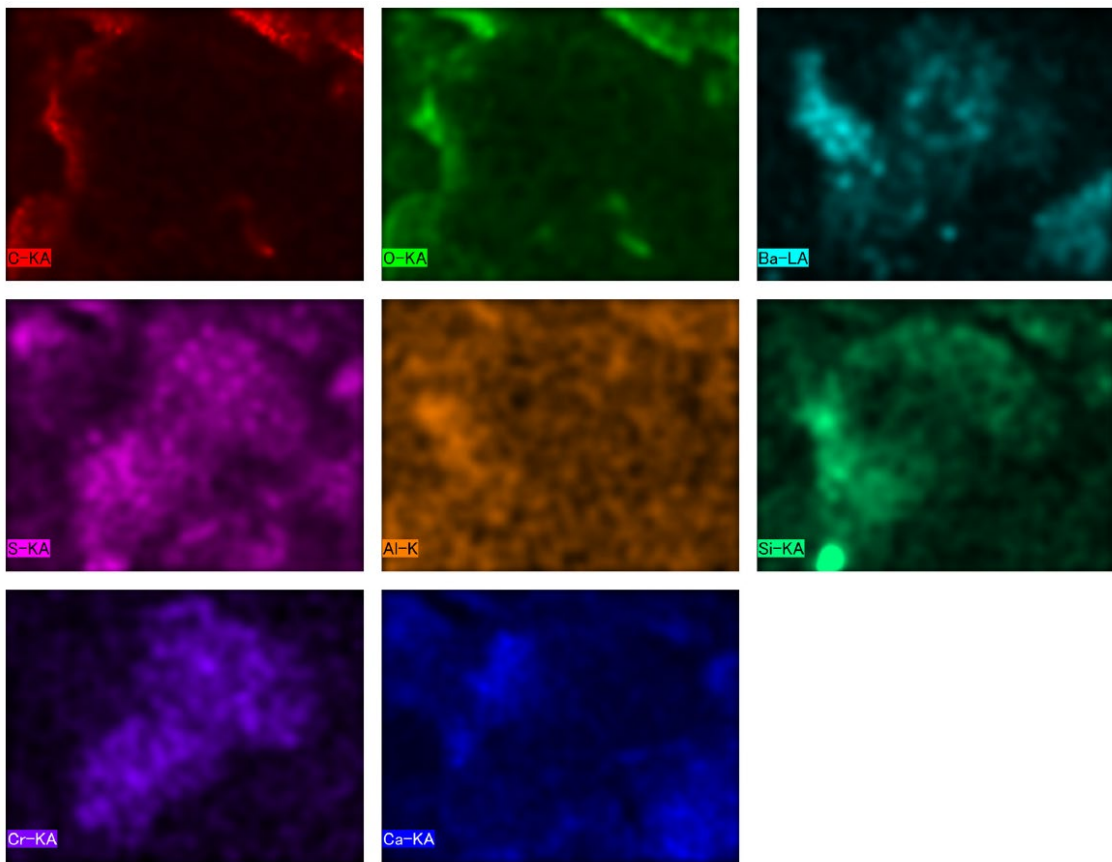
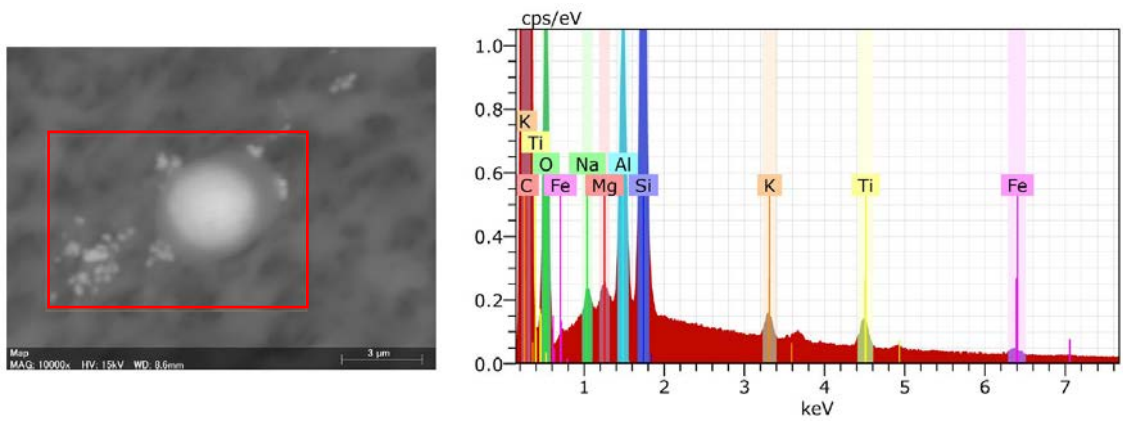


図 3.1.1.3(8)-4(b) U2RB-4FS (2号機建屋4階階段裏面) ろ紙の面分析





Fe, Ti, K, Si, Al, Mg, Na を検出

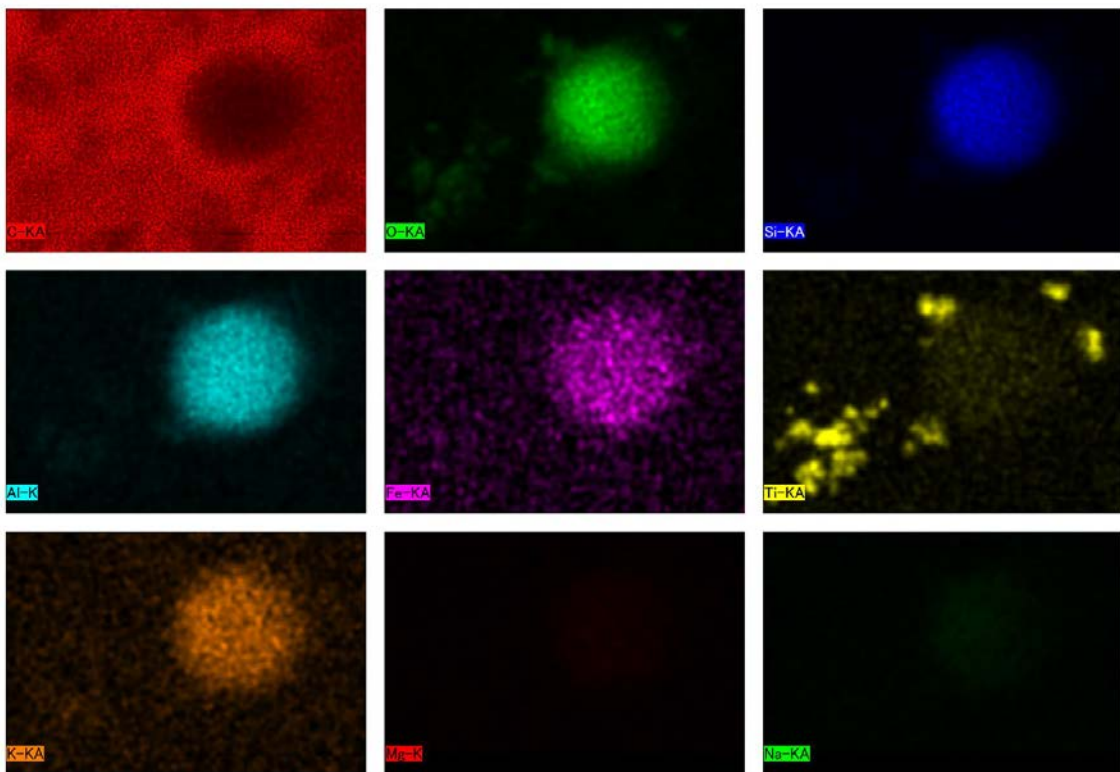


図 3.1.1.3(8)-5(a) U2RB-4FS (2号機建屋4階階段裏面) 溶解後残渣の面分析

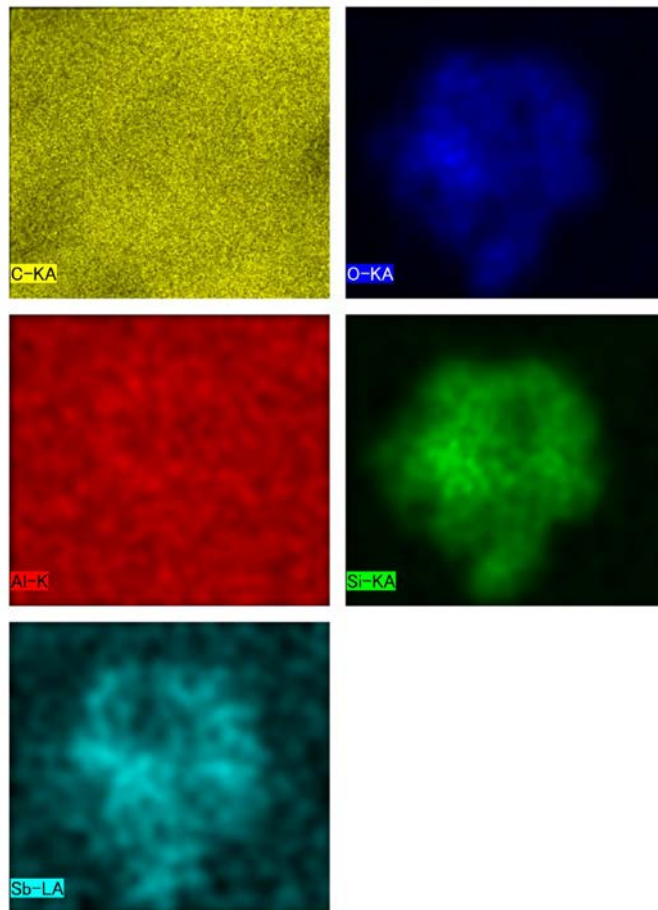
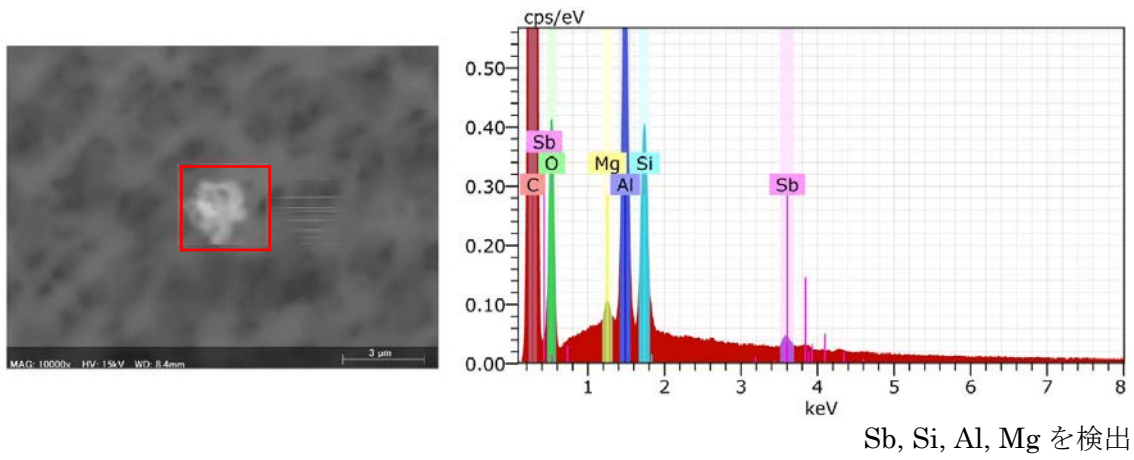
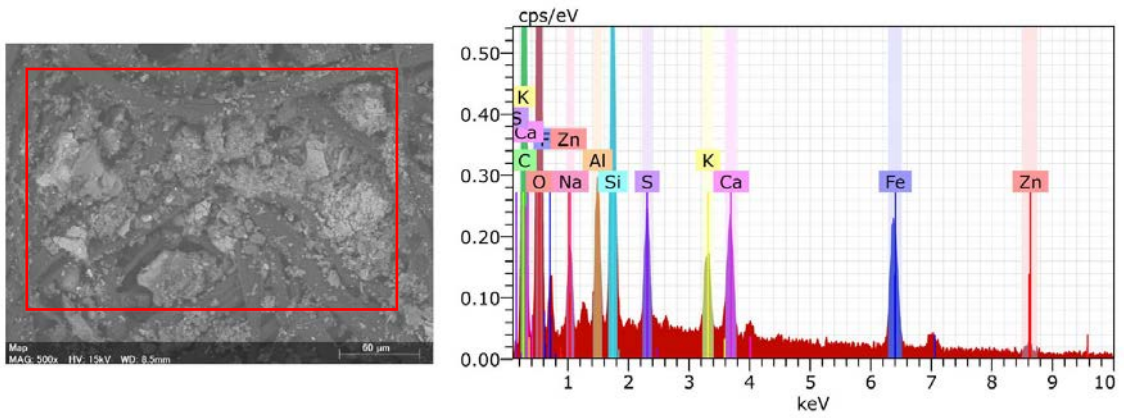


図 3.1.1.3(8)-5(b) U2RB-4FS (2号機建屋4階階段裏面) 溶解後残渣の面分析



Zn, Fe, Ca, K, S, Si, Al, Na を検出

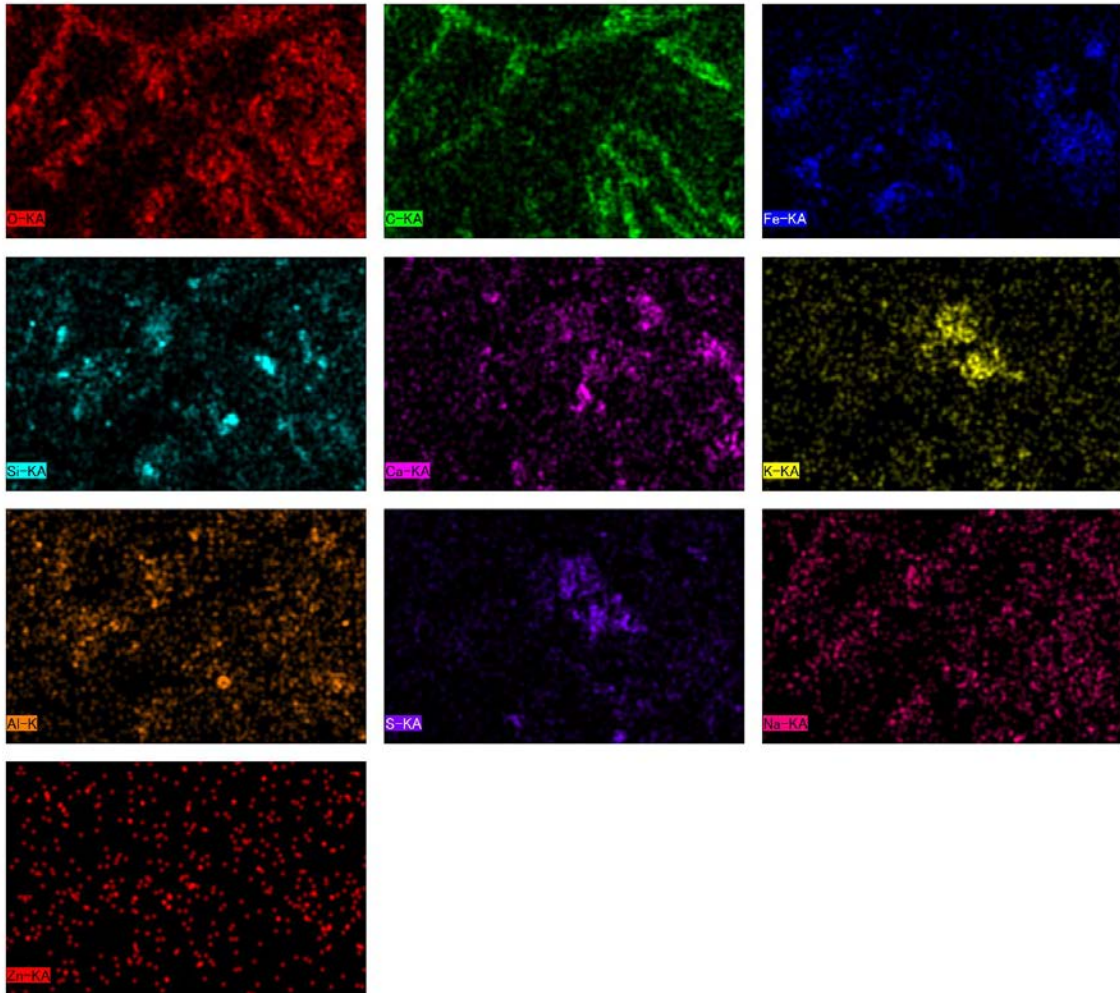
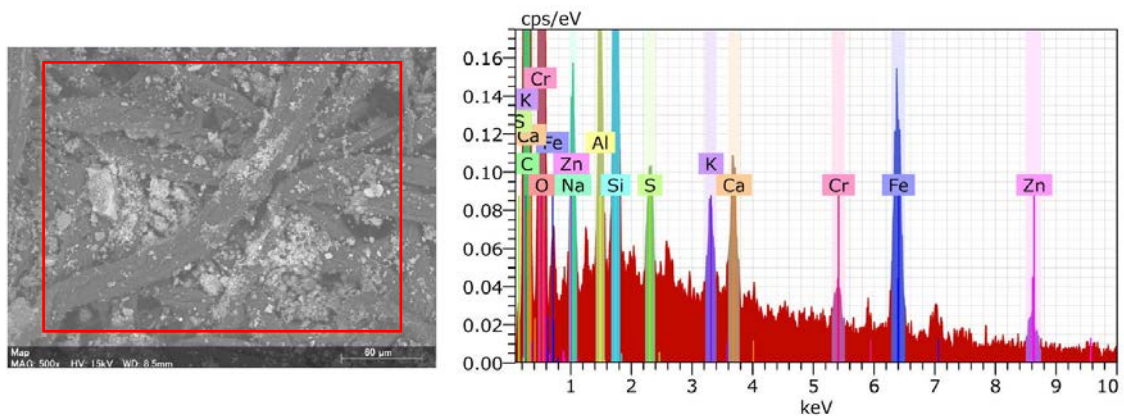


図 3.1.1.3(8)-6(a) U2RB-4FF (2号機建屋4階床) スミヤ紙の面分析



Zn, Fe, Cr, Ca, K, S, Si, Al, Mg, Na を検出

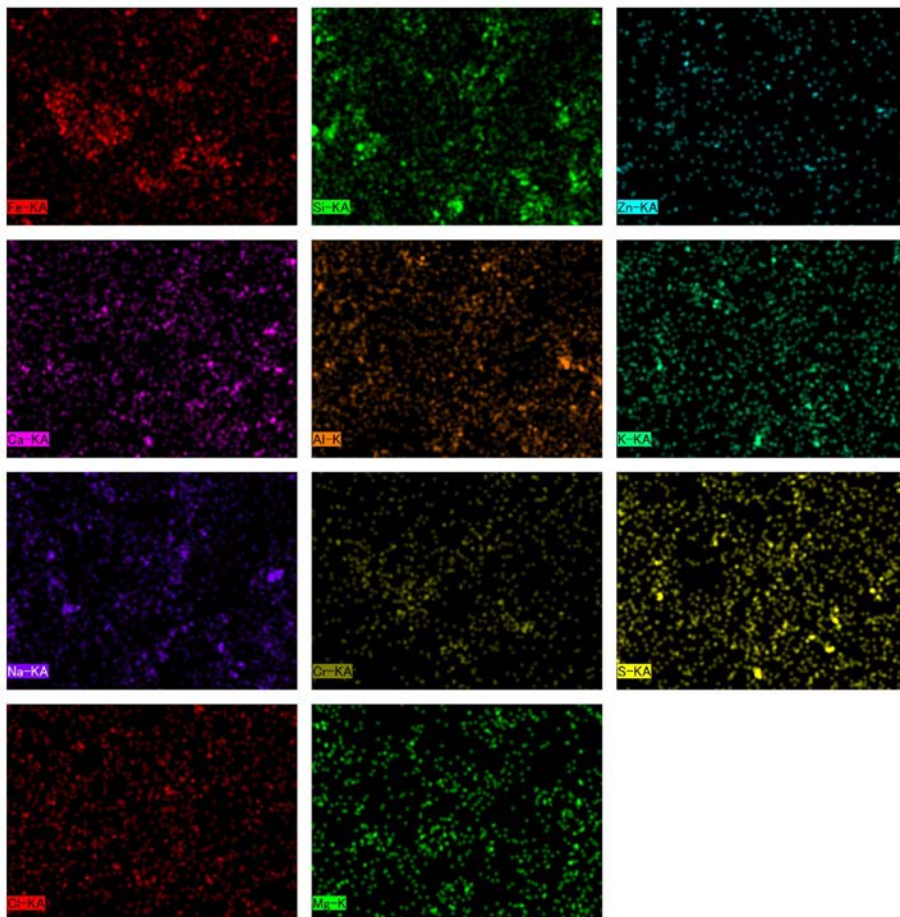
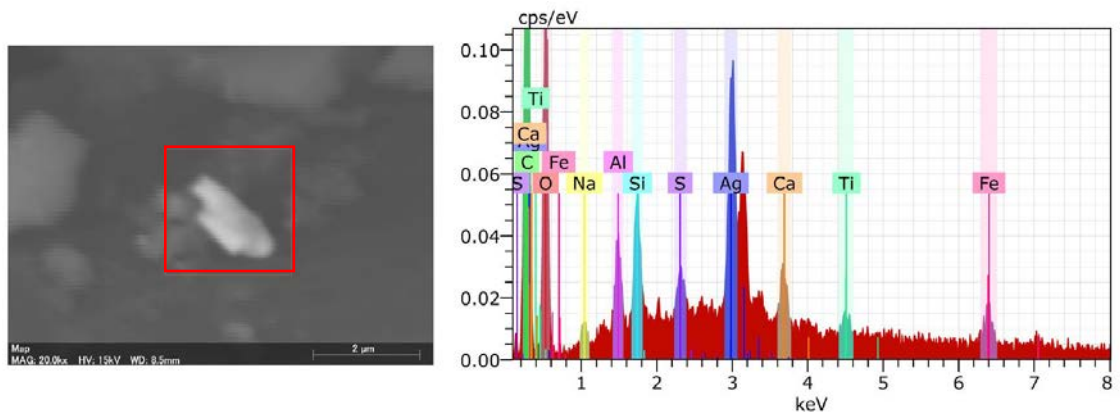


図 3.1.1.3(8)-6(b) U2RB-4FF (2号機建屋4階床) スミヤ紙の面分析



Fe, Ti, Ca, Ag, S, Si, Al, Na を検出

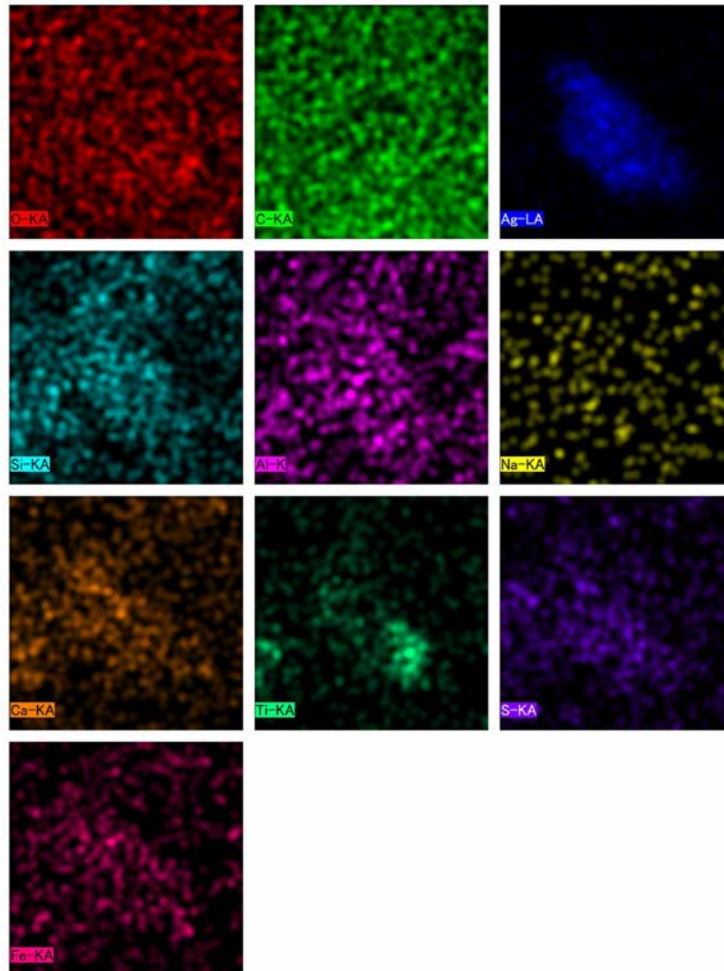
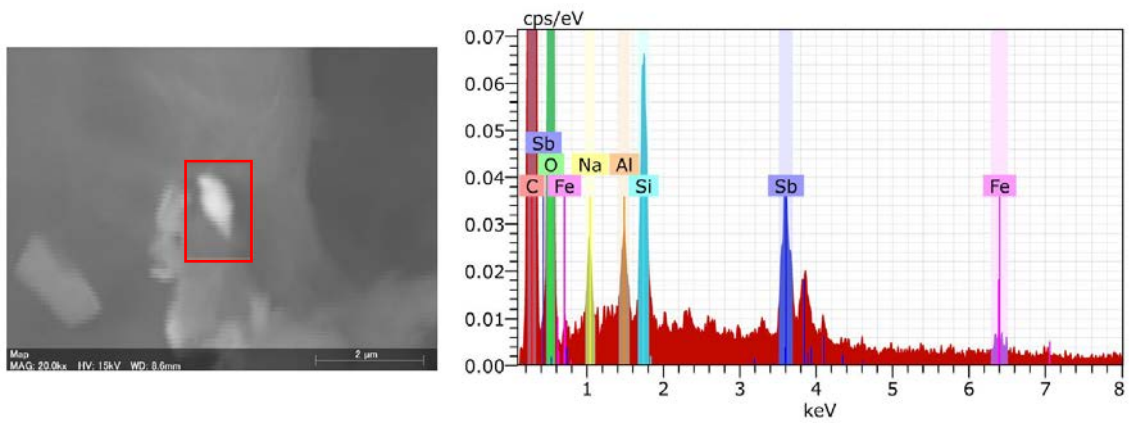


図 3.1.1.3(8)-6(c) U2RB-4FF (2号機建屋4階床) スミヤ紙の面分析



Fe, Sb, Si, Al, Na を検出

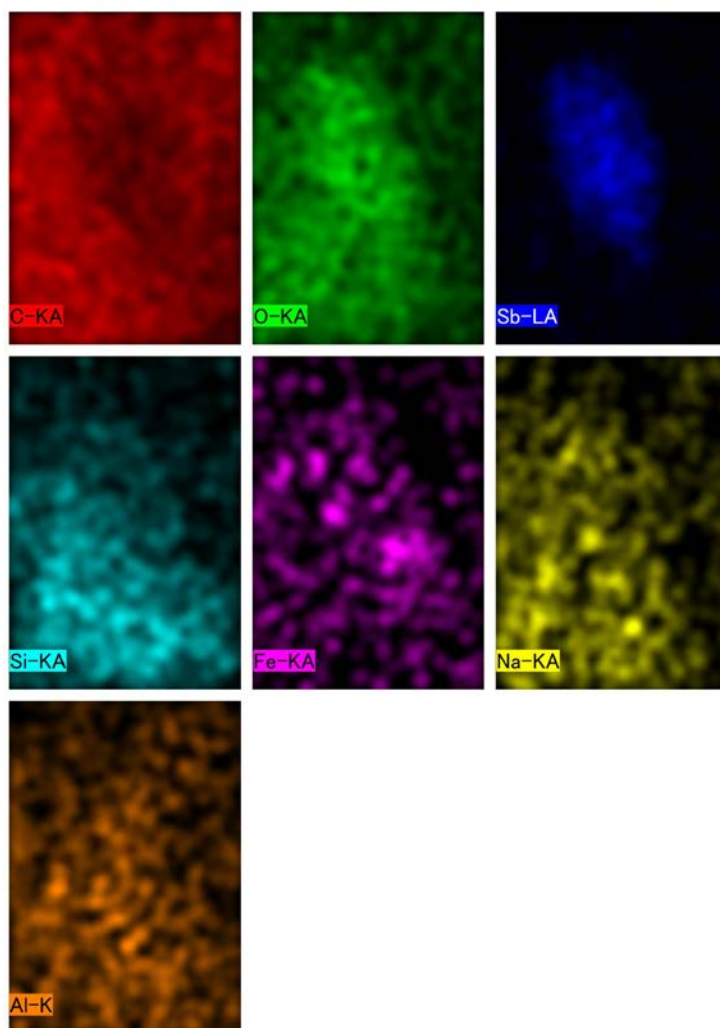
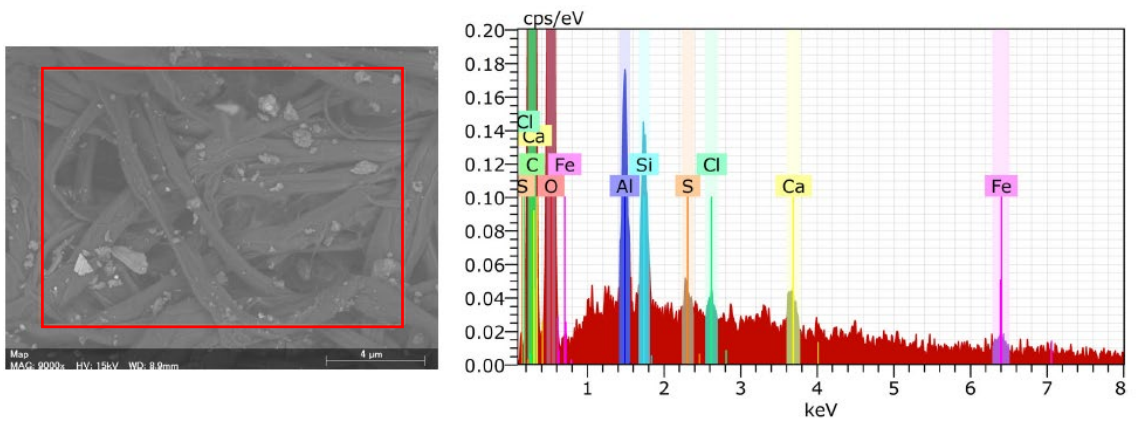


図 3.1.1.3(8)-6(d) U2RB-4FF (2号機建屋4階床) スミヤ紙の面分析



Fe, Ca, Cl, S, Si, Al を検出

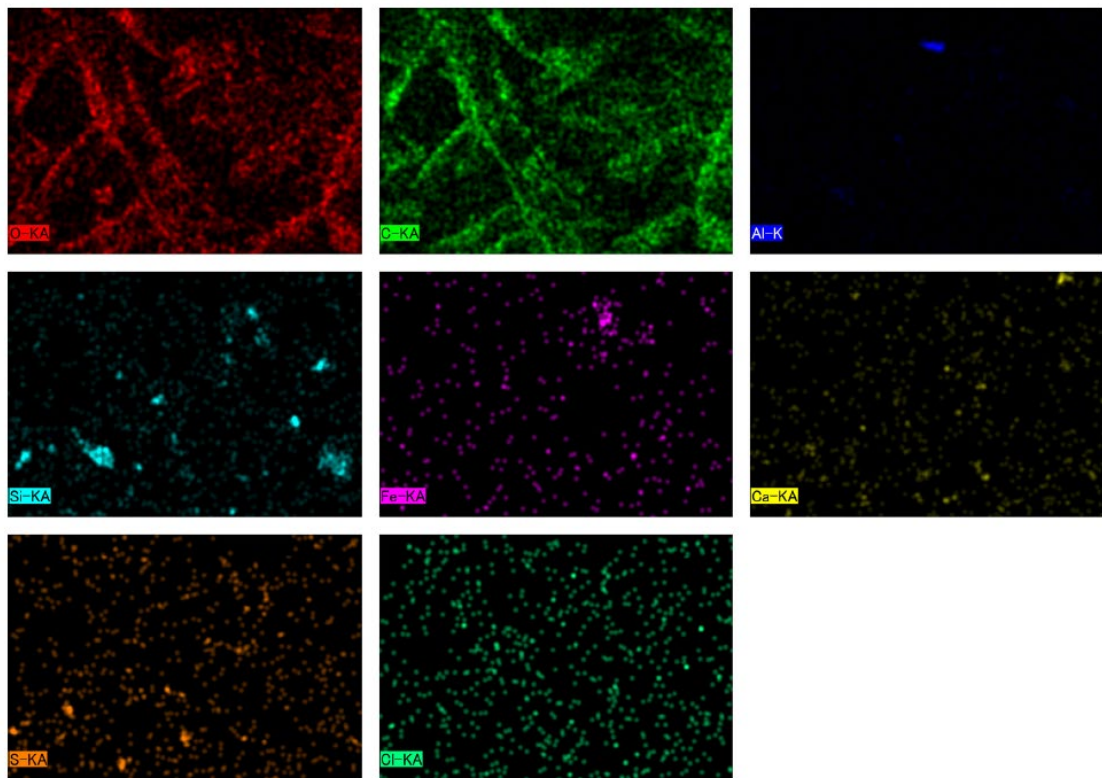
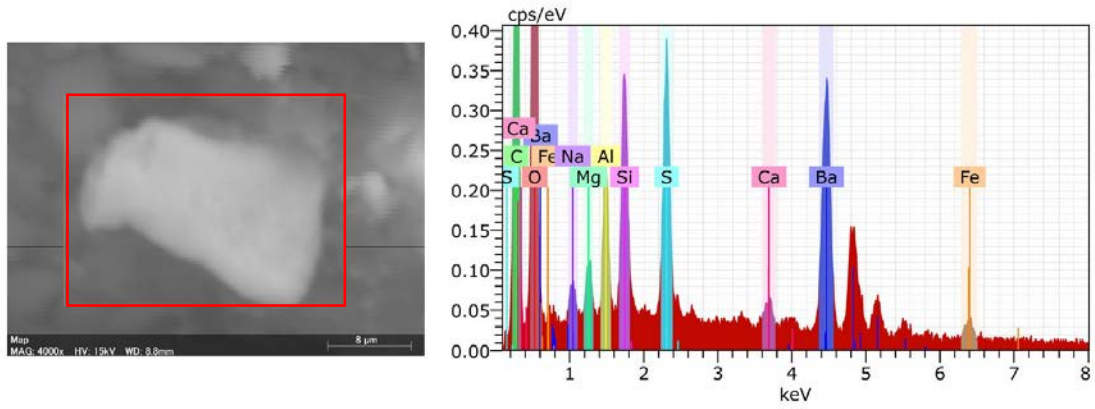


図 3.1.1.3(8)-7(a) U2RB-1FF (2号機建屋1階床) スミヤ紙の面分析



Fe, Ba, Ca, S, Si, Al, Mg, Na を検出

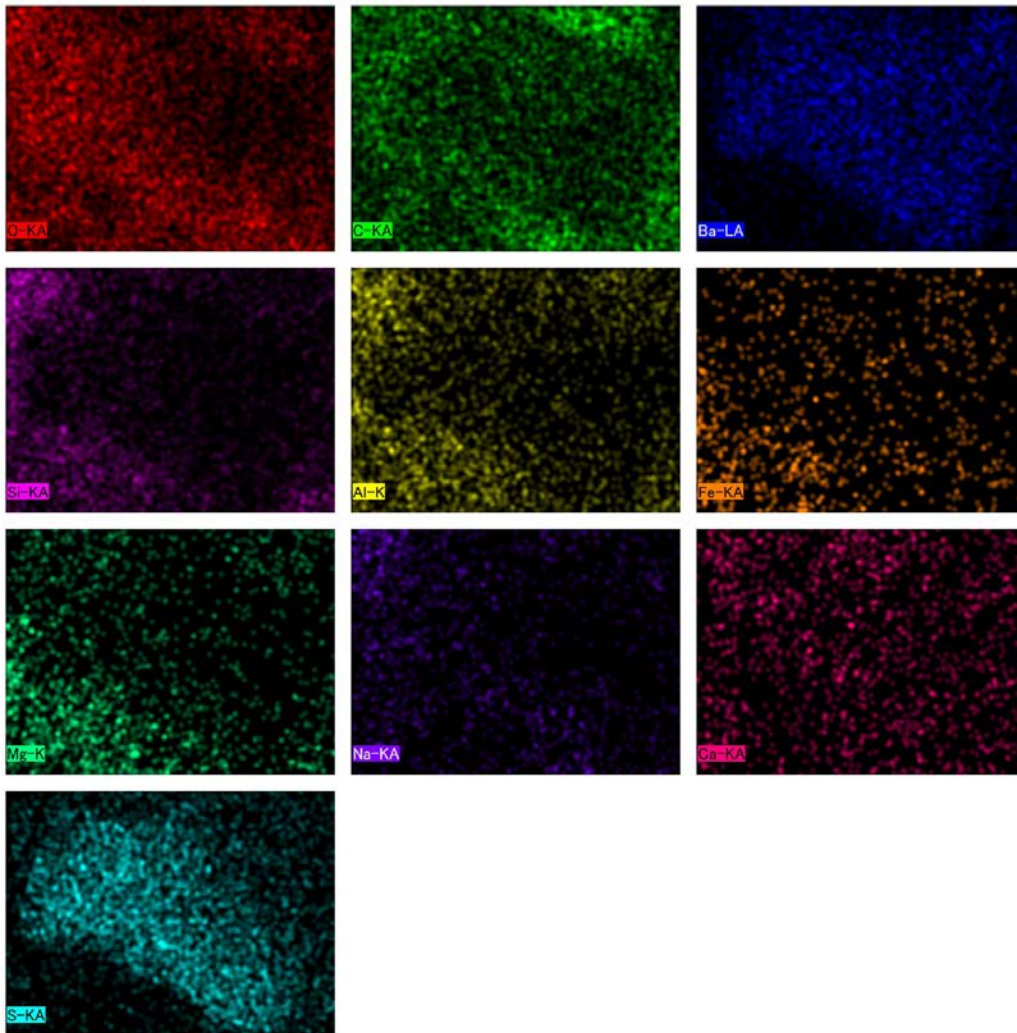
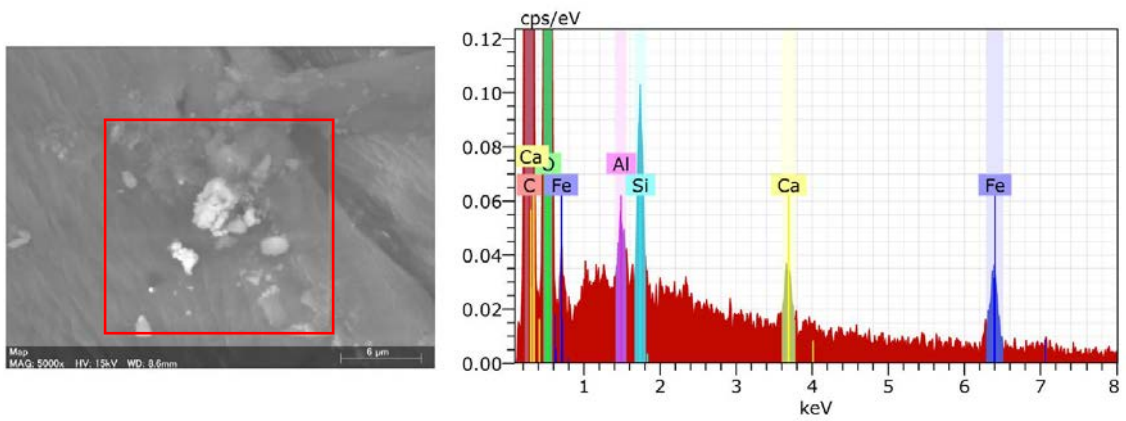


図 3.1.1.3(8)-7(b) U2RB-1FF (2号機建屋1階床) スミヤ紙の面分析





Fe, Ca, Si, Al を検出

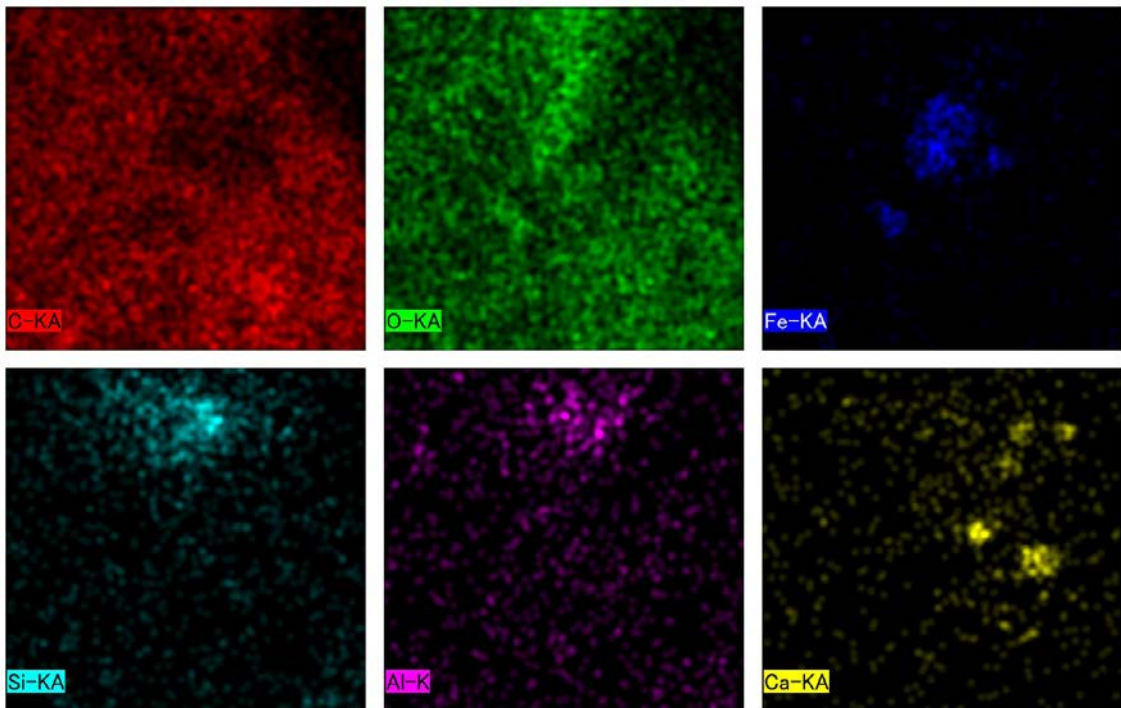
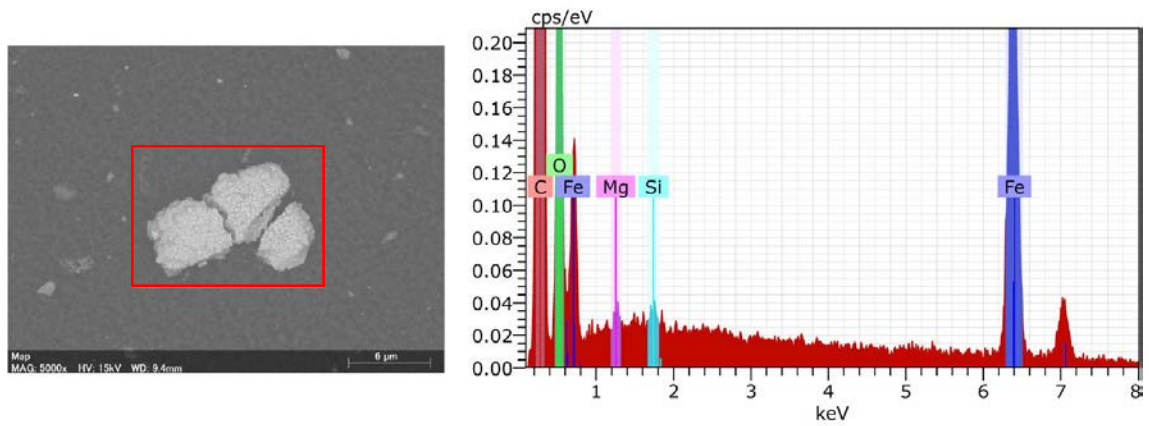


図 3.1.1.3(8)-8(a) U12SGS (1/2 号機 SGTS 配管内部) スミヤ紙の面分析



Fe, Si, Mg を検出

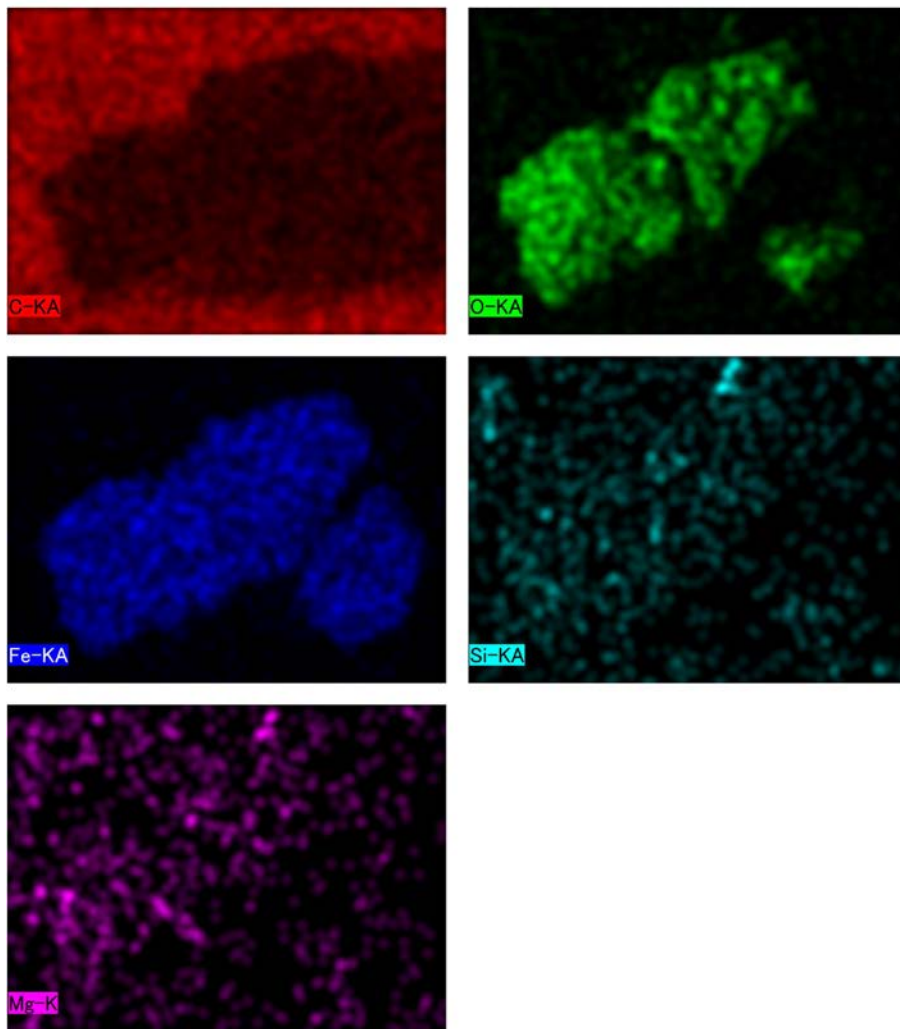
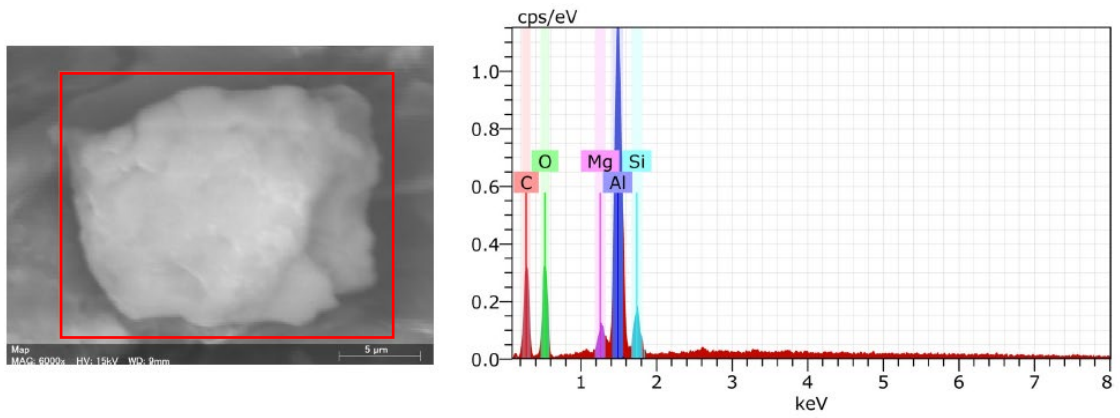


図 3.1.1.3(8)-9(a) U12SGS (1/2 号機 SGTS 配管内部) 溶解後残渣の面分析



Si, Al, Mg を検出

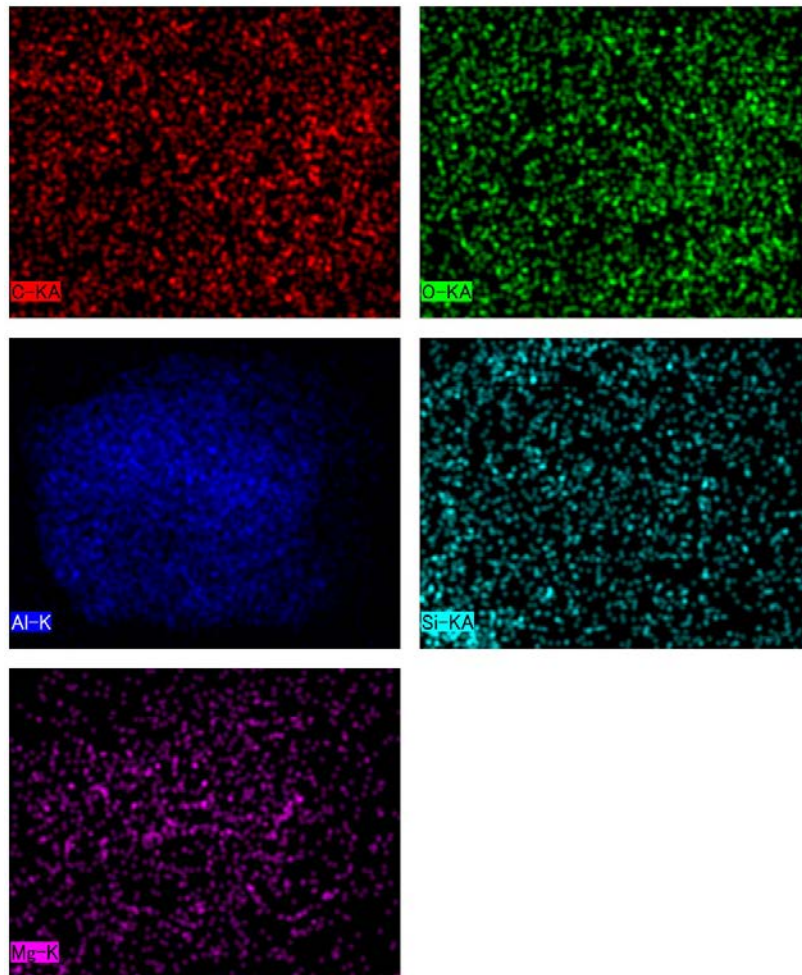
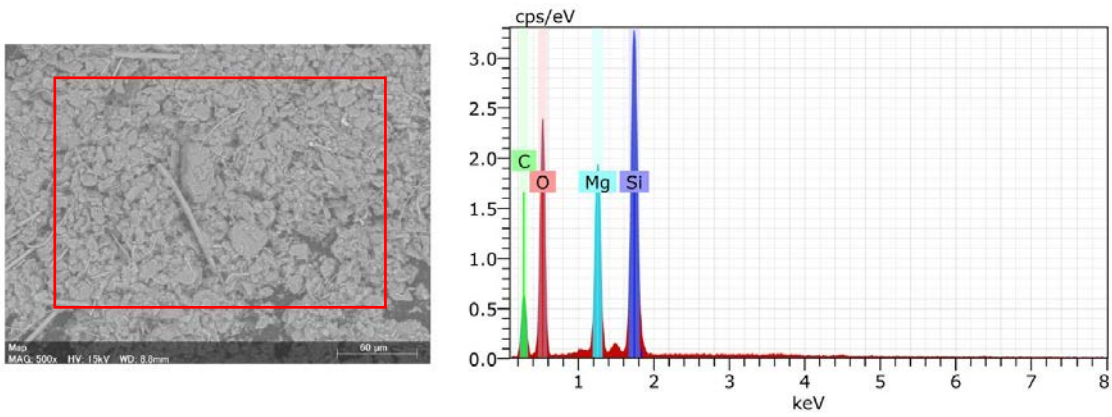


図 3.1.1.3(8)-10(a) U3SGF-B1-1 (高性能フィルター上流 ①-1) スミヤ紙の面分析



Si, Mg を検出

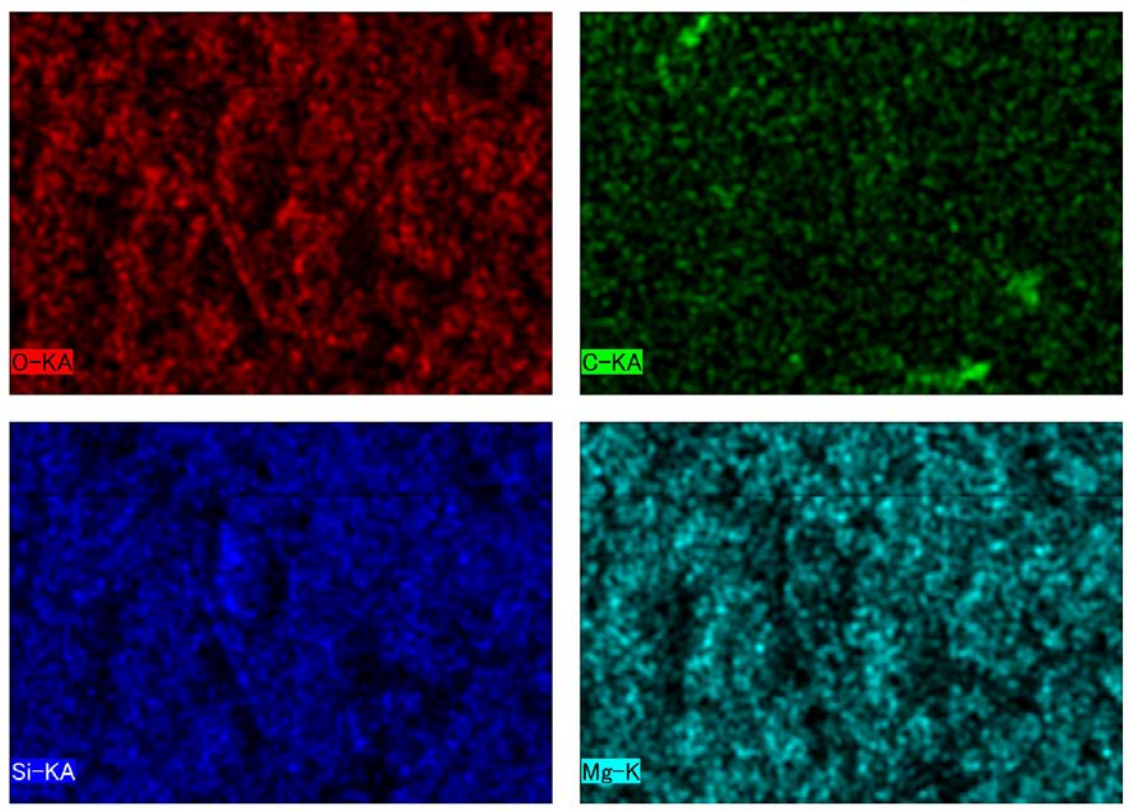
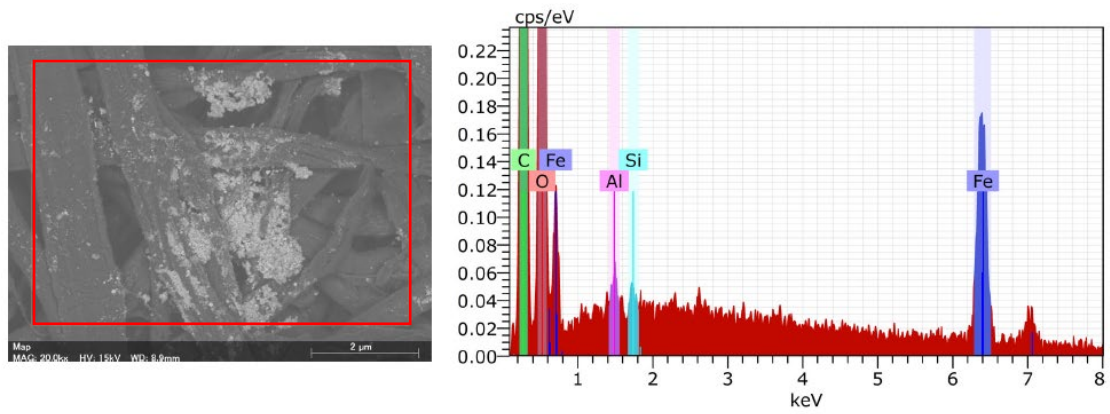


図 3.1.1.3(8)-11(a) U3SGF-B1-1 (高性能フィルター上流 ①-1) 溶解後残渣の面分析



Fe, Si, Al を検出

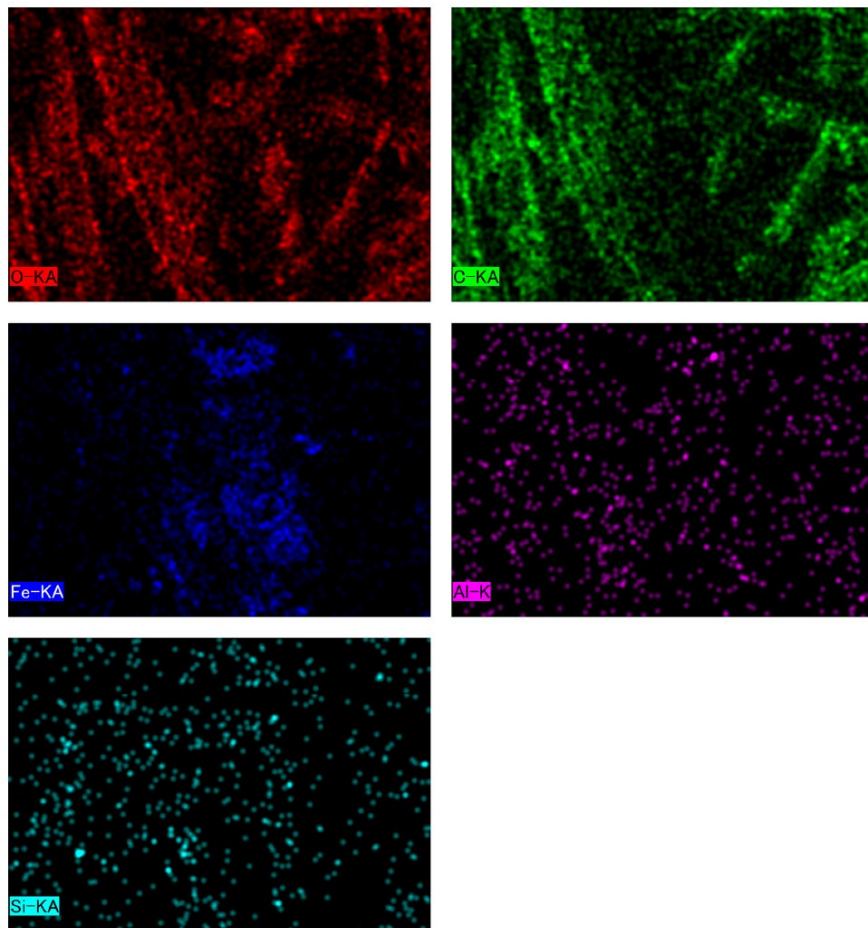
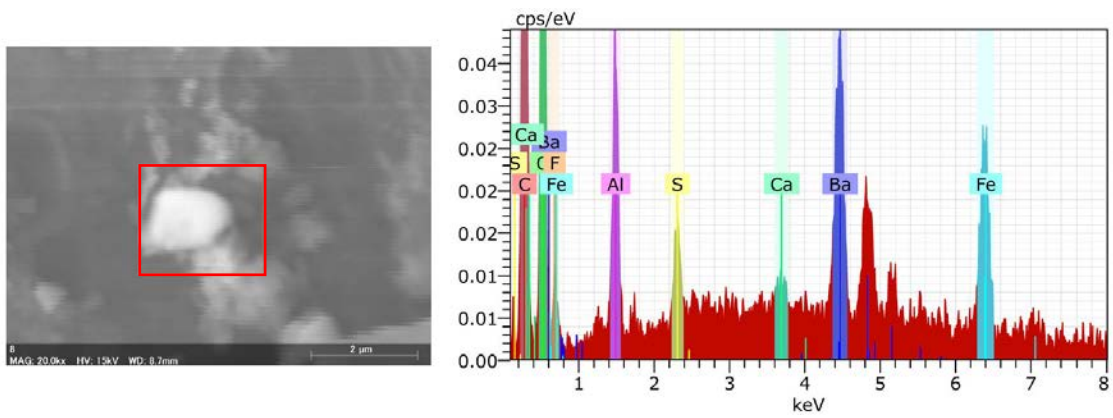


図 3.1.1.3(8)-12(a) U3SGF-B6-1 (デミスター上流 ⑥-1) スミヤ紙の面分析



Fe, Ba, Ca, Si, S, Al を検出

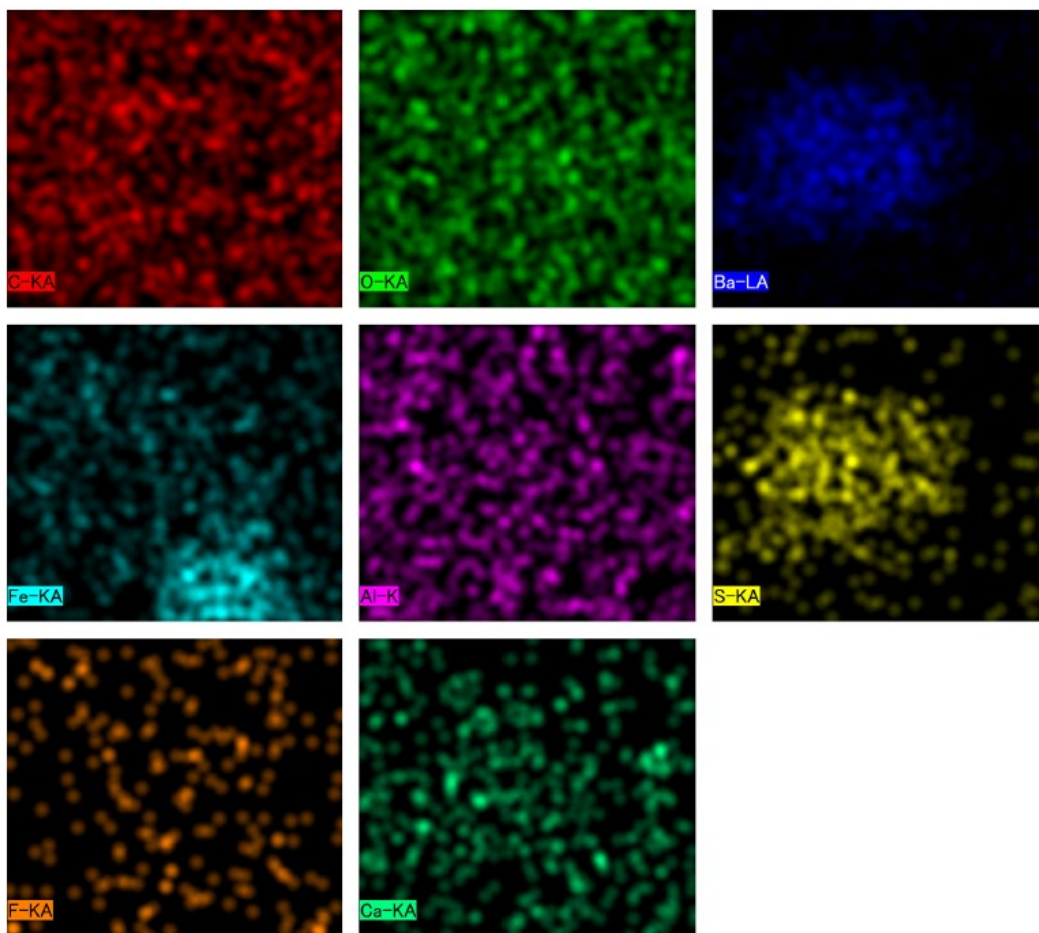
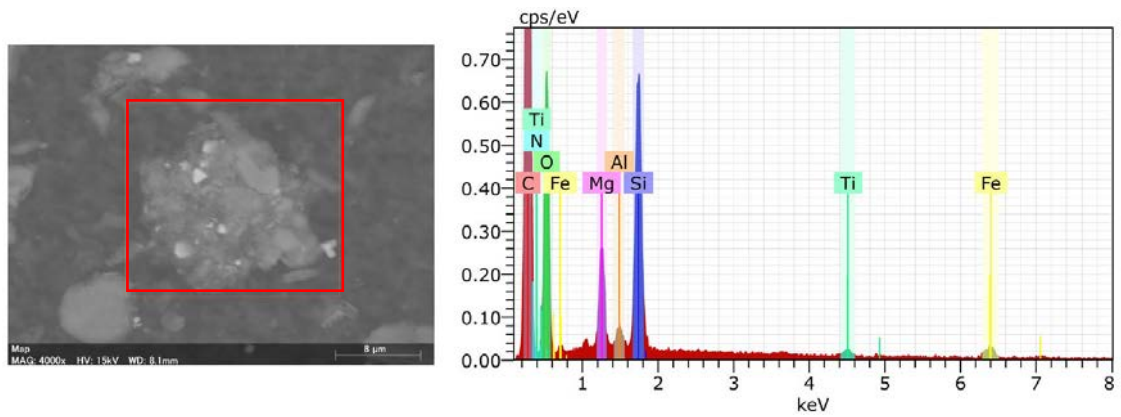


図 3.1.1.3(8)-12(b) U3SGF-B6-1 (デミスター上流 ⑥-1) スミヤ紙の面分析



Fe, Ti, Si, Al, Mgを検出

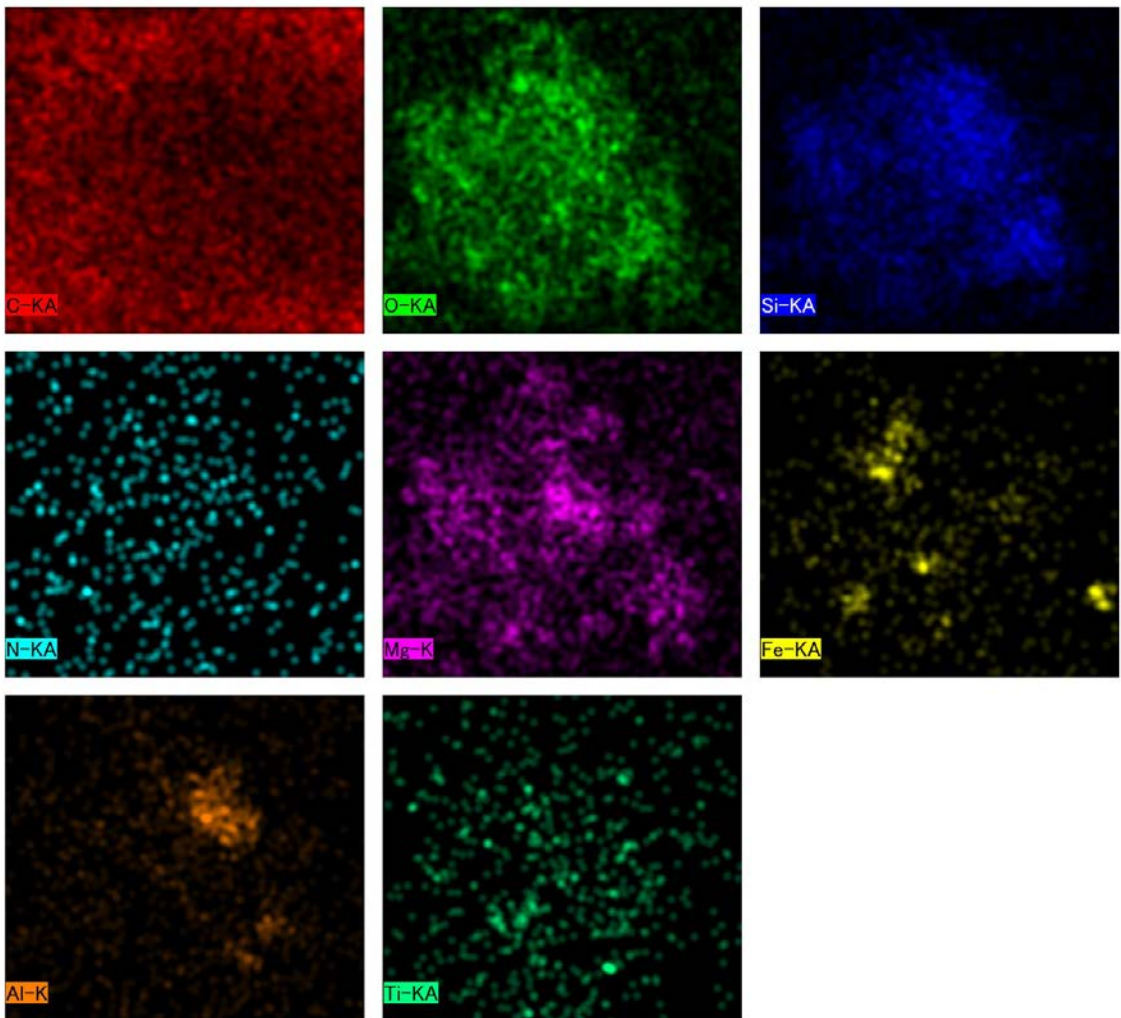


図 3.1.1.3(8)-13(a) U3SGF-B6-1 (デミスター上流 ⑥-1) 溶解後残渣の面分析

参考文献

- [3.1.1-1]原子力規制庁東京電力福島第一原子力発電所の事故分析に関する現地調査 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3-1 令和2年10月16日 <https://www.youtube.com/watch?v=xgN2kCOrn9k>
- [3.1.1-2]1/2号機SGTS配管撤去に向けた現場調査の実施状況について 第12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6-1 令和2年6月25日  
[https://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuushikisya/jiko\\_bunseki01/140000014.html](https://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuushikisya/jiko_bunseki01/140000014.html)
- [3.1.1-3]西原 健司 岩元 大樹 須山 賢也「福島第一原子力発電所の燃料組成評価」  
JAEA-Data/Code 2012-018
- [3.1.1-4] Y. Satou et al., *Geochemical Journal*, **52**, 137 -143 (2018)
- [3.1.1-5] T. Okumura et al., *Chem. Lett.*, **49**, 1294-1297 (2020)
- [3.1.1-6] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構、平成30年度補正予算廃炉・汚染水対策事業費補助金（燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発）2020年度実施分成果 2021年9月



### 3.1.2 有機材料の熱分解生成気体の分析

#### 3.1.2.1 目的

1F 事故分析検討会にて実施された 3 号機原子炉建屋の水素爆発時の映像分析結果から、爆発時原子炉建屋内には水素だけではなく、有機化合物を含む可燃性ガスが発生していた可能性が示唆されている。この確認のために、可燃性有機ガス発生源、発生する有機ガスの成分や量について知見を得る必要がある。そこで、BWR 格納容器（ドライウエル）のケーブル材、保温材等に使用されている代表的な有機材料に対して熱分解生成気体の分析を行い、有機材料の加熱による重量変化や示差熱（吸熱量あるいは発熱量）を計測するとともに、熱分解により生成されるガスの成分を推定する。

#### 3.1.2.2 分析対象の有機材料

東京電力 HD より提供された以下の 4 試料を対象とした。図 3.1.2.2-1 に写真を示す。

- (1) 難燃性エチレンプロピレンゴム：原子炉容器下部制御・計装用 PN ケーブル\*1 の絶縁材
- (2) 特殊クロロプレンゴム：原子炉容器下部制御・計装用 PN ケーブルのシース（保護被覆）
- (3) 難燃性特殊耐熱ビニル：高圧動力用 CV ケーブル\*2 のシース
- (4) ウレタン：原子炉補機冷却水系配管等の保温材

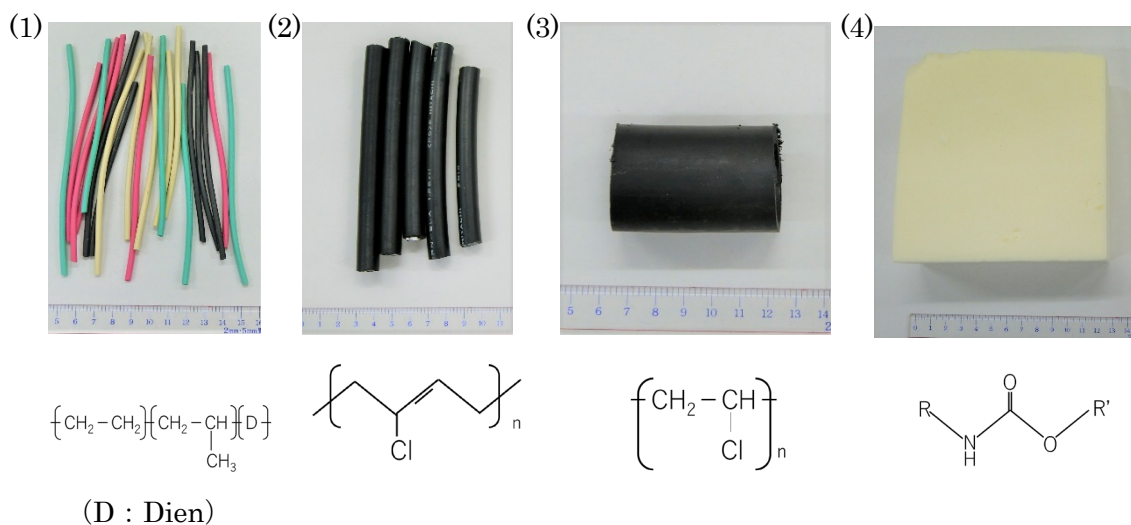


図 3.1.2.2-1 有機材料の写真（左から、(1)難燃性エチレンプロピレンゴム、(2)特殊クロロプレンゴム、(3)難燃性特殊耐熱ビニル、(4)ウレタン）

\*1 PN ケーブル：エチレンプロピレン絶縁クロロプレンシースケーブル  
(ethylene-Propylene insulated Neoprene(chloroprene)-sheathed cable)

\*2 CV ケーブル：架橋ポリエチレン絶縁ビニルシースケーブル  
(Cross-linked polyethylene insulated Vinyl-sheathed cable)

### 3.1.2.3 分析方法

示差熱天秤－質量分析同時測定 (TG-DTA-MS) 装置を使用した熱分解試験及び熱分解生成気体の分析、並びに熱分解ガスクロマトグラフ質量分析装置 (熱分解 GC-MS) を用いた熱分解生成気体の分離分析を実施した。なお、いずれも定性分析である。

#### (1) TG-MS 及び TG-DTA による熱分解生成気体の分析

TG-MS 法は、温度プログラムに従って加熱した試料の質量および基準物質に対する温度差 (TG) を測定し、更に発生したガスを分離することなく質量分析 (MS) 法にて分析する手法である。ガス分析としては時間 (あるいは温度) に対するリアルタイム性を重視した分析手法であり、ガスの分離機構を持たないために複数のガスが同温度で発生した場合の定性は困難である。この場合、定性結果によって本分析結果の解釈が異なる可能性があるものの、主な発生ガスについて推定を試みた。

TG-DTA 分析では、試料の吸発熱挙動の評価を目的とし、TG-MS 試験よりも試料を多く供した。インジウム等の融解 DTA シグナルを基準とし、試料減量時の反応熱を推定した。なお、反応熱の推定にあたって、DTA は熱量の定量性がないことに注意が必要である。TG-MS 及び TG-DTA の分析条件をそれぞれ表 3.1.2.3-1 及び 3.1.2.3-2 に、装置の写真及び測定の概略図をそれぞれ図 3.1.2.3-1 に示す。

表 3.1.2.3-1 TG-MS 分析条件

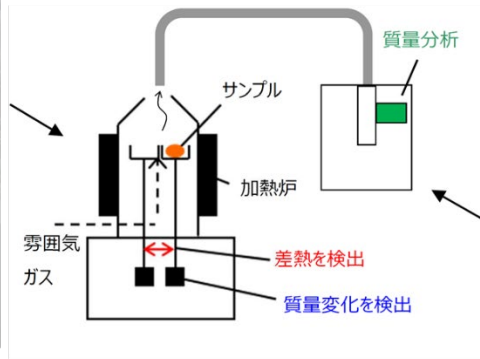
パン (試料容器)	白金 (開放式)
試料量	約 2.5 mg
測定範囲	室温 ~ 1200°C
昇温速度	10°C/ min または 20°C/ min
雰囲気	窒素ガス (流量 200 mL / min)
イオン化法	電子イオン化 (EI)
m/z の走査範囲	2 ~ 200

表 3.1.2.3-2 TG-DTA 分析条件

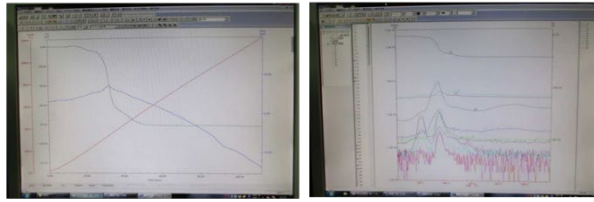
パン (試料容器)	白金 (開放式)
試料量	約 20 mg (ウレタンのみ 3mg)
測定範囲	室温 ~ 1200°C
昇温速度	10°C/ min
雰囲気	窒素ガス (流量 200 mL / min)



TG-DTA装置



MS分析装置



測定モニター (左: TG-DTA、右: TG-MS)

図3.1.2.3-1 TG-DTA及びTG-MS装置の写真と測定の概略図

## (2)熱分解 GC-MS による熱分解生成気体の分離分析

上記の通り、TG-MS 法はガスの分離機構を持たないために複数のガスが同温度で発生した場合の定性は困難である。そのため、ガスクロマトグラフ (GC) によるガス成分の分離が可能な GC-MS 法を用いて、主な発生ガスについて推定を試みた。GC-MS の分析条件を表 3.1.2.3-3 に、装置の写真及び測定の仕組みをそれぞれ図 3.1.2.3-2 及び 3.1.2.3-3 に示す。試料の加熱温度は、(1)の TG 分析の結果において重量変化の大きかった 3 点を抽出して決定した。また、各温度条件において同一の試験材料片を用いた。

データ解析では、各温度において面積値が上位 10 成分のピークを対象として、この時間取得されたマススペクトルデータのライブラリ解析を行った。ライブラリ解析では、測定されたマススペクトルデータと解析ソフトに付属するライブラリのマススペクトルデータをコンピュータが照合し、その類似度を数値化する。本分析においては、最も類似度の高い化合物を推定化合物として定性した。なお、類似度が低い場合は推定の不確実性が大きいことから、類似度が 800 未満のものについては参考データとした。

表 3.1.2.3-3 熱分解 GC-MS 分析条件

加熱雰囲気	N <sub>2</sub> 雰囲気
試料量	2.1 mg
試料加熱温度	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 321°C → 395°C → 500°C (難燃性エチレンプロピレンゴム)</li> <li>・ 307°C → 404°C → 527°C (特殊クロロプレンゴム)</li> <li>・ 376°C → 560°C → 800°C (難燃性特殊耐熱ビニル)</li> <li>・ 246°C → 421°C → 580°C (ウレタン)</li> </ul>
各温度での保持時間	1分間
インターフェイス温度	240°C
クライオトラップ	使用する
カラム	DB-5MS UI (30 m× 0.25 mm, 0.25 μm)
キャリアーガス、流量	He, 1.0 mL/min (初期カラム流量)
スプリット比	200 : 1
注入口温度	240°C
検出器	MS, スキャンモード, $m/z=29\sim 1000$
インターフェイス温度	320°C
オーブンの温度	40°C(5 min)→10°C/minで昇温→320°C(30 min)



図3.1.2.3-2 熱分解GC-MS分析装置の写真

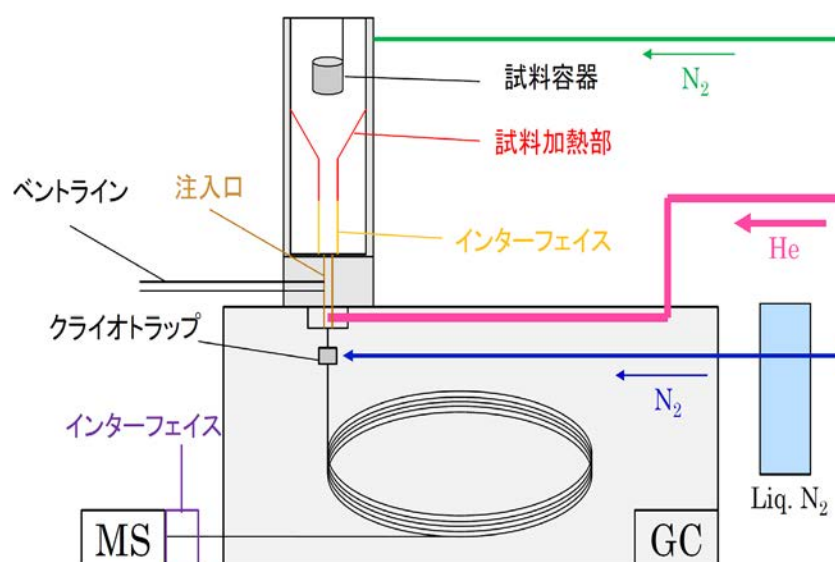


図3.1.2.3-3 熱分解GC-MS分析装置の概略図

### 3.1.2.4 分析結果

#### (1) 難燃性エチレンプロピレンゴム (PN ケーブルの絶縁材)

##### (a) TG-DTA-MS による分析結果

分析前後の試料写真を図 3.1.2.4-1 に示す。分析後の試料は炭化している様子が見られた。TG 分析結果を図 3.1.2.4-2 に示す。昇温速度の違いによらず、三段階で減量が認められた (表 3.1.2.4-1)。MS 分析結果を Appendix (図 App.1-1~App.1-24) に、発生ガス推定結果を表 3.1.2.4-2 にまとめた。発生ガス分析の主成分は昇温速度によらず同じであったため、推定発生ガスは 10°C/min 昇温の結果を代表として記載した。マススペクトルデータ解析の例として、結果の一部をそれぞれ図 3.1.2.4-3 及び 3.1.2.4-4 に示した。図一段階目の減量では、二酸化炭素の発生が示唆された。二段階目の減量では、 $m/z=56$  以下の成分が検出されており、ブテンの発生が示唆された。それに加えて、水および二酸化炭素の発生が示唆された。三段階目の減量では、水素、水、一酸化窒素、二酸化炭素、C7 程度の炭化水素化合物の発生が示唆された。 $m/z=78$ 、 $m/z=91$  が検出されており、ベンゼン、トルエンの発生も示唆された。四段階目の減量では、二酸化炭素の発生が示唆された。800°C 付近では明瞭な減量は認められなかったが、水素、水および二酸化炭素の発生が示唆された。なお、3.1.2.3(1) 項に記載したとおり、TG-DTA-MS はガスの分離機構を持たないために複数のガスが同温度で発生した場合の定性は困難であることから、上記の有機化合物の推定は参考として取り扱い、(b)で示す熱分解 GC-MS での推定結果を主とすることとした。なお、他の試料についても同様の取り扱いとした。

TG-DTA 分析における DTA シグナル (図 3.1.2.4-5) から、いずれの減量も発熱と吸熱が同時に起こっていると考える。そのため、DTA シグナルからの反応熱の推定は困難であった (表 3.1.2.4-3)。

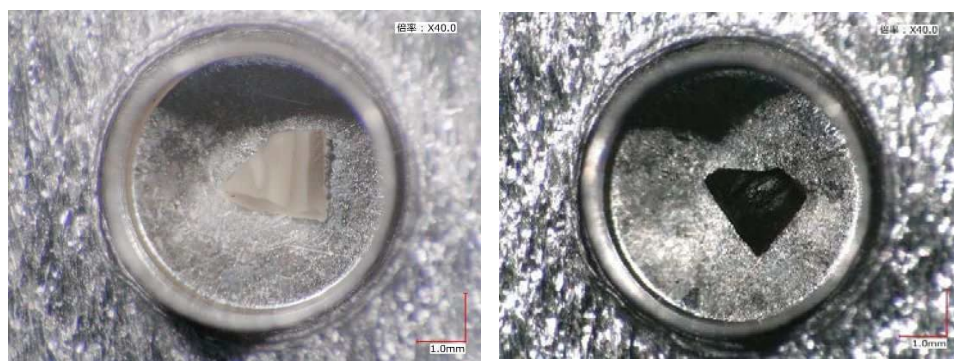


図3.1.2.4-1 分析前後の難燃性エチレンプロピレンゴム試料 (左：分析前、右：分析後)

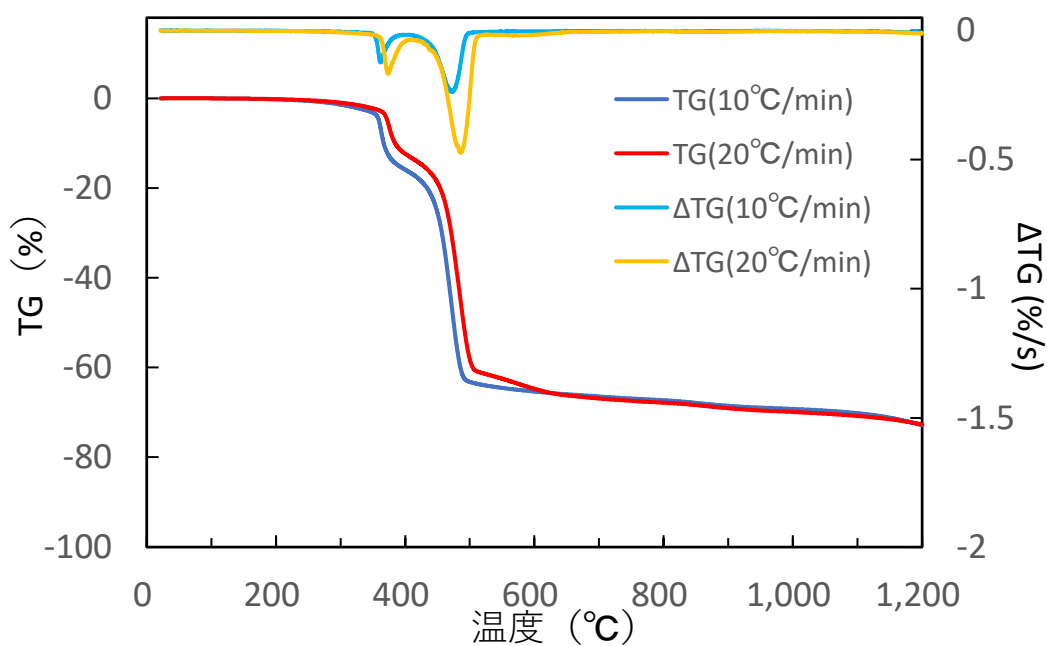


図 3.1.2.4-2 難燃性エチレンプロピレンゴムの TG 分析結果  
(昇温速度 10°C/min、20°C/min)

表 3.1.2.4-1 難燃性エチレンプロピレンゴムの TG 分析結果

昇温条件 (°C/min)	TG (mass%)			
	一段階目	二段階目	三段階目	四段階目
10	-2.9 (at 321°C)	-17 (at 395°C)	-65 (at 500°C)	-72 (at 1200°C)
20	-3.2 (at 339°C)	-17 (at 407°C)	-65 (at 520°C)	-72 (at 1200°C)

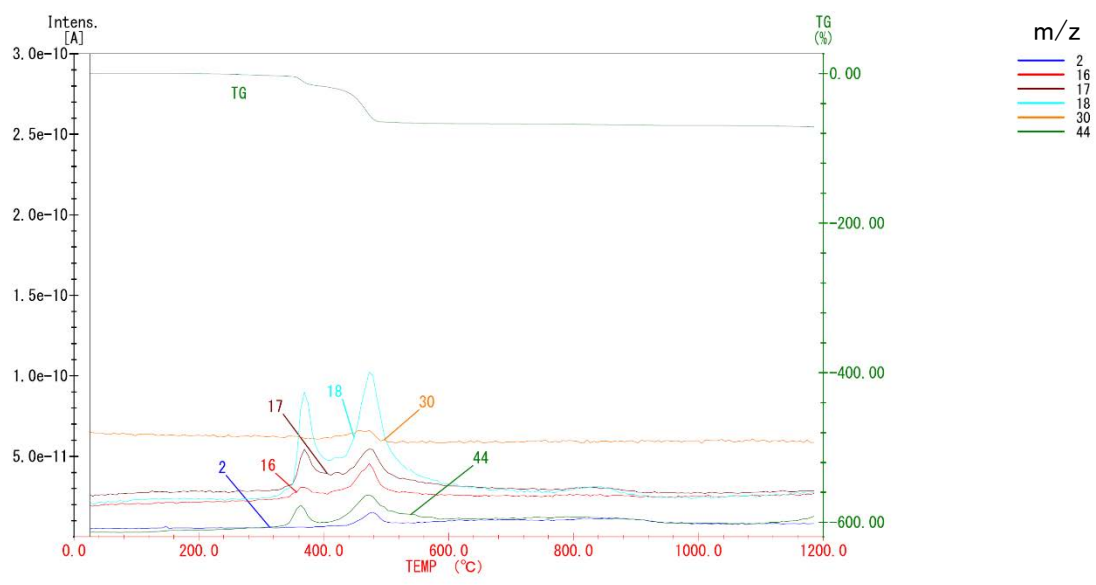


図 3.1.2.4-3 難燃性エチレンプロピレンゴムの MS データの例

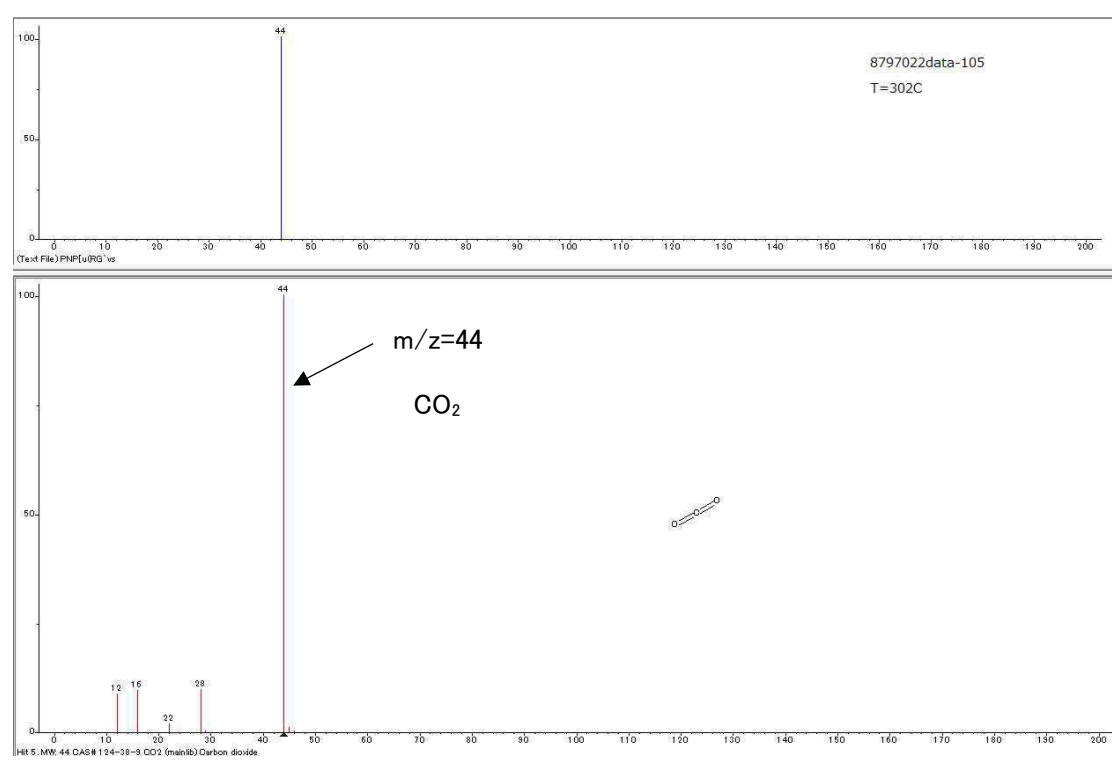


図 3.1.2.4-4 MS データのライブラリ解析の例（上：測定データ、下：ライブラリデータ）。 $m/z=44$  のピークから、 $\text{CO}_2$  が含まれると推定。



表 3.1.2.4-2 難燃性エチレンプロピレンゴムの熱分解ガスの推定結果

区分	一段階目	二段階目	三段階目	四段階目
推定発生 ガス	二酸化炭素	水 二酸化炭素 1-ブテン	水素 水 一酸化窒素 二酸化炭素 C7 炭化水素 ベンゼン トルエン	二酸化炭素
☒	App.1-1 App.1-8 App.1-13 App.1-20	App.1-2 App.1-8,9 App.1-14 App.1-20,21	App.1-3~5 App.1-8~12 App.1-15~17 App.1-20~24	App.1-7 App.1-8 App.1-19 App.1-20

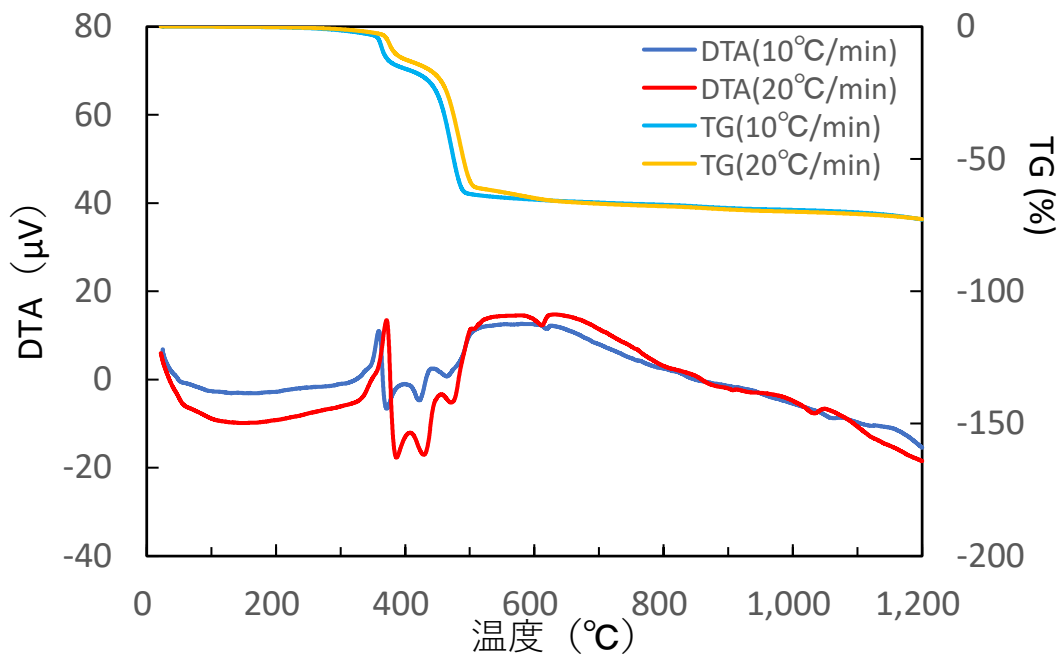


図 3.1.2.4-5 難燃性エチレンプロピレンゴムの TG-DTA 分析結果  
(昇温速度 10°C/min、20°C/min)

表 3.1.2.4-3 DTA から見積もった難燃性エチレンプロピレンゴムの反応熱

昇温条件 (°C/min)	反応熱 (Jg <sup>-1</sup> )			
	一段階目	二段階目	三段階目	四段階目
10	解析不可	解析不可	解析不可	不検出
20	解析不可	解析不可	解析不可	不検出

(b) 熱分解 GC-MS による熱分解生成気体の分離分析結果

各温度のガスクロマトグラムを図 3.1.2.4-6～3.1.2-8 に示す。各温度において面積値の上位 10 ピークに対する測定マススペクトルデータ及びライブラリ解析結果を Appendix (図 App.2-1a～App.2-3j) に、推定した化合物を表 3.1.2.4-4～3.1.2-6 にまとめた。

室温～321℃では、[1], [2], [3], [5], [6], [7], [8], [9], [10]のピークに該当する化合物はライブラリとの照合性が高く（類似度>800）、高い確度で推定できた。これらは以下に示す様な材料に由来するものや、材料の分解により生成した有機ガスであると考えられる。

- ・ジイソプロペニルベンゼン：耐熱性の向上に使用される（ピーク[2]）
- ・ジアセチルベンゼン：架橋剤の分解物（ピーク[5]）
- ・インドール：酸化防止剤として使用される（ピーク[7]）
- ・メタジオール：重合用触媒や樹脂改質剤の原料（ピーク[8]）
- ・クレゾール：ゴムポリマーの生産に使用される（ピーク[10]）

321～395℃では、[1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9], [10] のピークに該当する化合物、395～500℃では、[4], [5], [6], [10]のピークに該当する化合物がライブラリとの照合性が高く（類似度>800）、高い確度で推定できた。これらのガス成分も、ゴムの加工性向上のため使用されるジエンやヘプテン等の材料由来のもの、イソブテン（ピーク[1]）等の材料分解物であると考えられる。

なお、TG-DTA-MS 分析で推定された二酸化炭素は、熱分解 GC-MS 分析でも検出はされているものの、ガスクロマトグラムにおいてピーク面積値上位 10 成分の中には含まれなかった。この理由として、熱分解 GC-MS 分析に用いたカラムが有機ガスに適正を持つものであったため、二酸化炭素がほぼ遅延されずにカラムから一気に放出して MS 分析装置の検知上限を上回り、ガスクロマトグラムにおいて二酸化炭素に該当するピークが過小評価されたことによるものと考えられる。また、他の材料においても同様の事象が起っていたと考えられる。

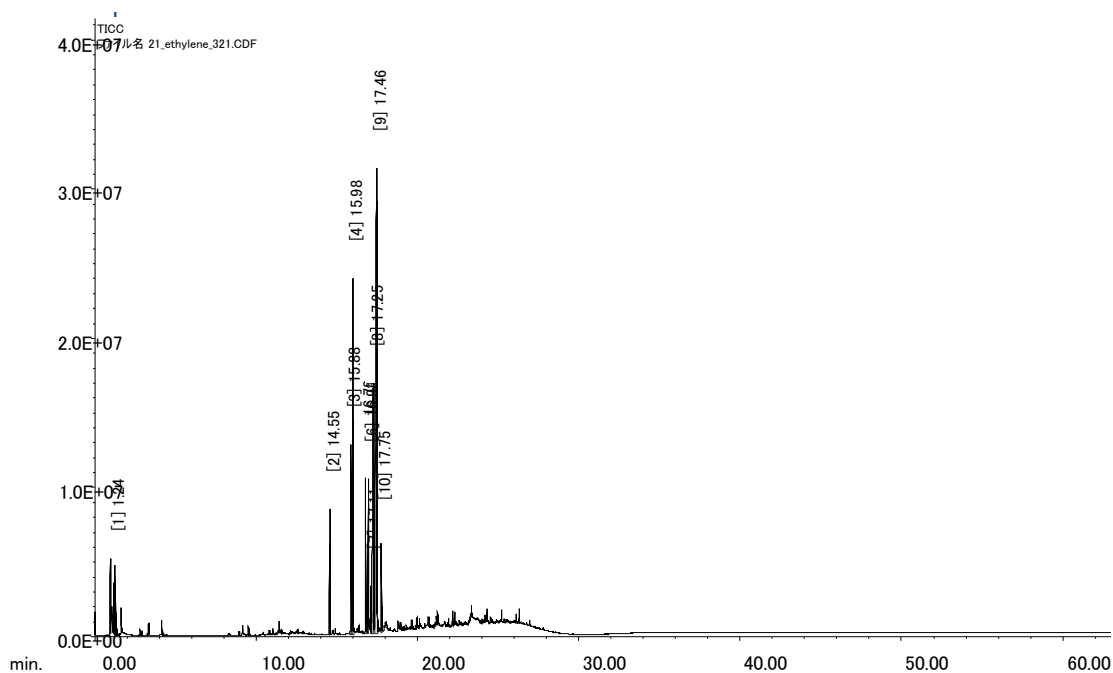


図 3.1.2.4-6 難燃性エチレンプロピレンゴムのガスクロマトグラム (321°C)

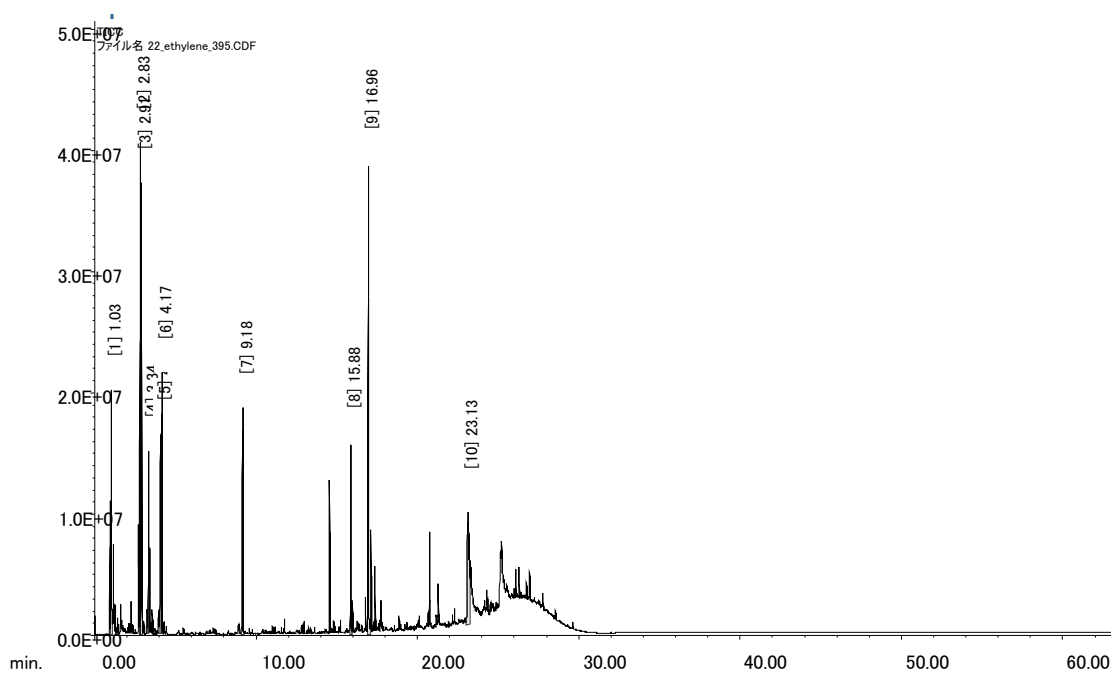


図 3.1.2.4-7 難燃性エチレンプロピレンゴムのガスクロマトグラム (395°C)

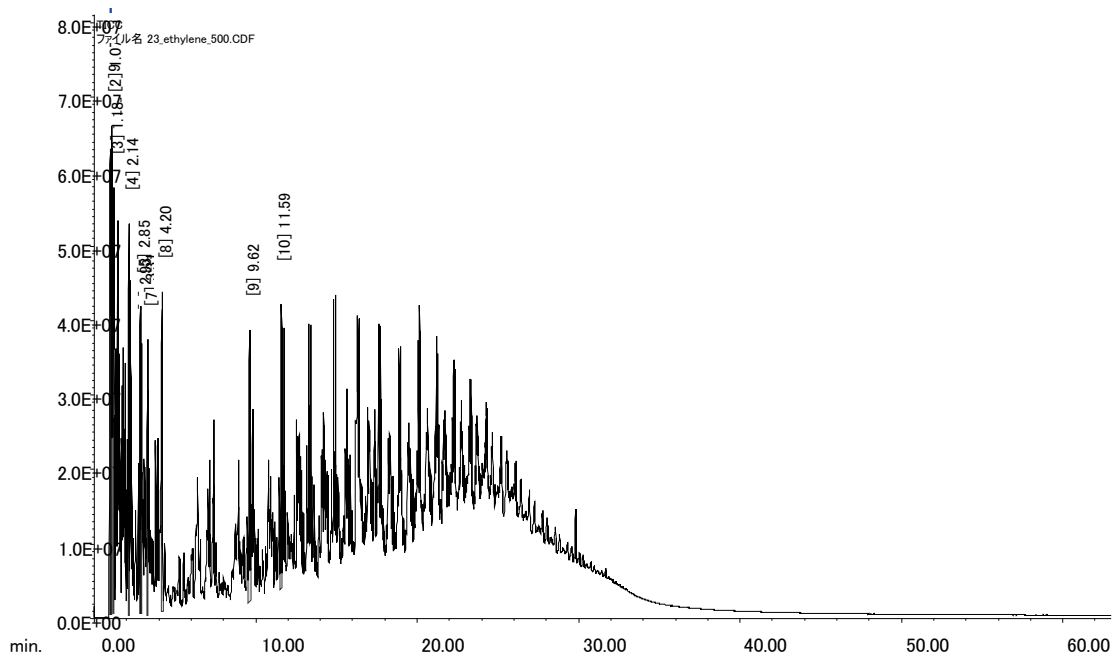


図3.1.2.4-8 難燃性エチレンプロピレンゴムのガスクロマトグラム (500°C)

表 3.1.2.4-4 PN ケーブル 絶縁体 (難燃性エチレンプロピレンゴム) の定性結果  
(321°C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	1.24	tert-ブチルアルコール	898	☒ App.2-1a
2	14.55	1,3-ジイソプロペニルベンゼン	915	☒ App.2-1b
3	15.88	5-アセチルインダン	913	☒ App.2-1c
4	15.98	4'-tert-ブチルアセトフェノン	785	☒ App.2-1d
5	16.78	1,4-ジアセチルベンゼン	929	☒ App.2-1e
6	16.93	2,4,4-Trimethyl-3,4-dihydroquinoline	855	☒ App.2-1f
7	17.11	2-tert-ブチル-1H-インドール	859	☒ App.2-1g
8	17.25	メタジオール	897	☒ App.2-1h
9	17.46	4'-(1-ヒドロキシ-1-メチルエチル) アセトフェノン	841	☒ App.2-1i
10	17.75	2,6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール	925	☒ App.2-1j

表 3.1.2.4-5 PNケーブル 絶縁体（難燃性エチレンプロピレンゴム）の定性結果  
(395°C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	1.03	イソブテン	869	☒ App.2-2a
2	2.83	(3E,5E)-1,3,5-ヘプタトリエン	895	☒ App.2-2b
3	2.91	(3E,5E)-1,3,5-ヘプタトリエン	903	☒ App.2-2c
4	3.34	3-(2-プロペニリデン)シクロブテン	946	☒ App.2-2d
5	4.09	1,3-シクロヘプタジエン	889	☒ App.2-2e
6	4.17	1,3,5-シクロヘプタトリエン	845	☒ App.2-2f
7	9.18	アニリン	946	☒ App.2-2g
8	15.88	5-アセチルインダン	907	☒ App.2-2h
9	16.96	2,4,4-Trimethyl-3,4-dihydroquinoline	837	☒ App.2-2i
10	23.13	パルミチン酸	887	☒ App.2-2j

表 3.1.2.4-6 PN ケーブル 絶縁体（難燃性エチレンプロピレンゴム）の定性結果  
(500°C加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	0.99	6,6-ジメチルオキサソ-2-オン	706	☒ App.2-3a
2	1.07	イソプロピルシクロプロパン	757	☒ App.2-3b
3	1.18	ペンタン	750	☒ App.2-3c
4	2.14	1-ヘプテン	906	☒ App.2-3d
5	2.85	1-メチル-1,4-シクロヘキサジエン	887	☒ App.2-3e
6	2.93	1-Methylcyclohexa-2,4-diene	881	☒ App.2-3f
7	3.31	トルエン	782	☒ App.2-3g
8	4.2	2-ベンジルオクタン	683	☒ App.2-3h
9	9.62	1-デセン	755	☒ App.2-3i
10	11.59	1-ウンデセン	891	☒ App.2-3j

## (2) 特殊クロロプレングム (PN ケーブルのシース)

分析前後の試料写真を図 3.1.2.4-9 に示す。分析後の試料は炭化している様子が見られた。TG 分析結果を図 3.1.2.4-10 に示す。昇温速度の違いによらず、五段階で減量が認められた (表 3.1.2.4-6)。MS 分析結果を Appendix (図 App.1-25~App.1-49) に、発生ガス推定結果を表 3.1.2.4-7 にまとめた。発生ガス分析の主成分は昇温速度によらず同じであったため、推定発生ガスは 10°C/min 昇温の結果を代表として記載した。一段階目の減量では、水、二酸化炭素の発生が示唆された。二段階目の減量では、水、二酸化炭素、ベンゼン、トルエン、含塩素化合物の発生が示唆された。三段階目の減量では、二段階目の減量時に発生が示唆されたガスに加え、水素、C7 程度の炭化水素化合物の発生が示唆された。四段階目以降の減量では二酸化炭素等の無機ガスの発生が示唆されている。高温領域での二酸化炭素の生成は、材料に添加剤として含まれている炭酸カルシウム等の無機物質の熱分解によるものであると推定される。

TG-DTA 分析における DTA シグナル (図 3.1.2.4-11) から推定した反応熱を表 3.1.2.4-8 に示した。一、二段階目の減量では発熱が認められた。三段階目の減量では発熱と吸熱が連続的に起こっていると考えられる。四段階目の減量では緩やかに発熱している様子が認められた。

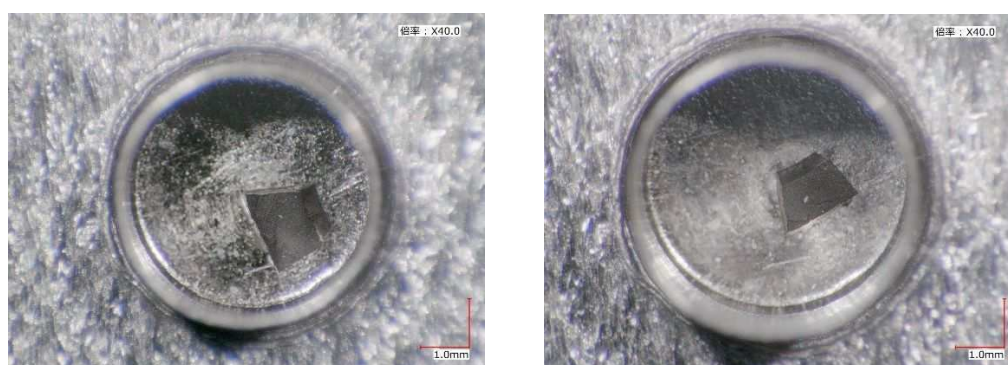


図3.1.2.4-9 分析前後の特殊クロロプレングム試料 (左：分析前、右：分析後)

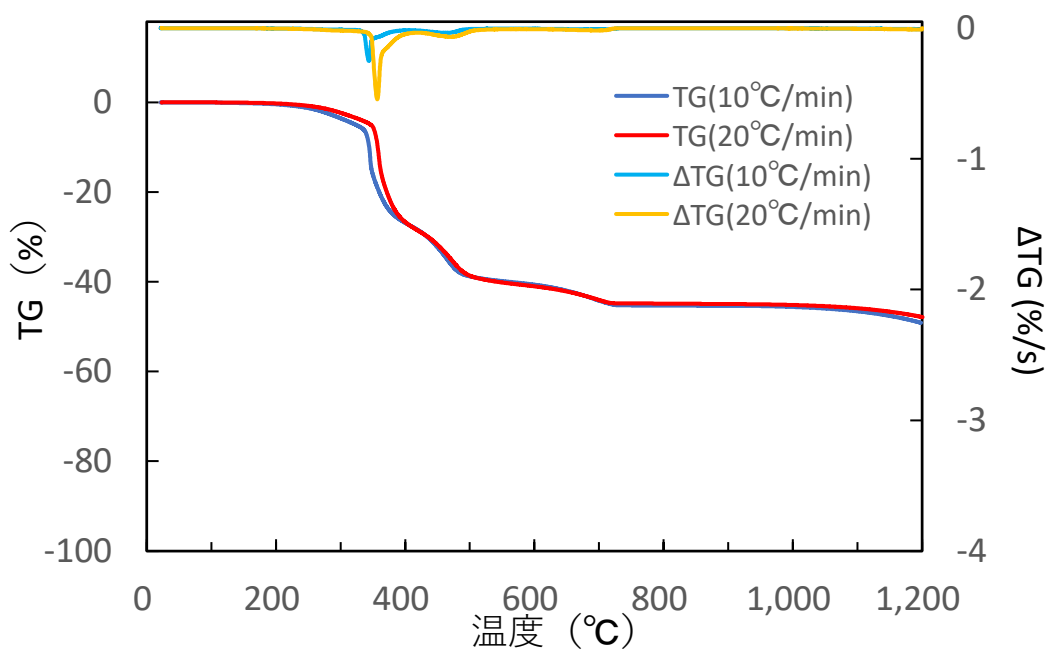


図 3.1.2.4-10 特殊クロロプレングムの TG 分析結果 (昇温速度 10°C/min、20°C/min)

表 3.1.2.4-7 特殊クロロプレングムの TG 分析結果

昇温条件 (°C/min)	TG (mass%)				
	一段階目	二段階目	三段階目	四段階目	五段階目
10	-6.7 (at 307°C)	-27 (at 404°C)	-41 (at 527°C)	-44 (at 700°C)	-53 (at 1200°C)
20	-6.5 (at 328°C)	-29 (at 424°C)	-40 (at 539°C)	-44 (at 710°C)	-51 (at 1200°C)



表 3.1.2.4-8 特殊クロロプレンゴムの熱分解ガスの推定結果

区分	一段階目	二段階目	三段階目	四段階目	五段階目
推定発生 ガス	水 二酸化炭素	水 二酸化炭素 2-クロロ-2-メ チルプロパン 塩素 ベンゼン トルエン	水素 水 二酸化炭素 2-クロロ-2-メ チルプロパン 塩素 C7 炭化水素 ベンゼン トルエン	水素 水 二酸化炭 素	二酸化炭素
☒	App.1-25 App.1-34,35 App.1-38 App.1-46,47	App.1-26~28 App.1-34~37 App.1-39~41 App.1-46~49	App.1-29~31 App.1-34~37 App.1-42,43 App.1-46~49	App.1-32 App.1-34 App.1-44 App.1-46	App.1-33 App.1-34 App.1-45 App.1-46

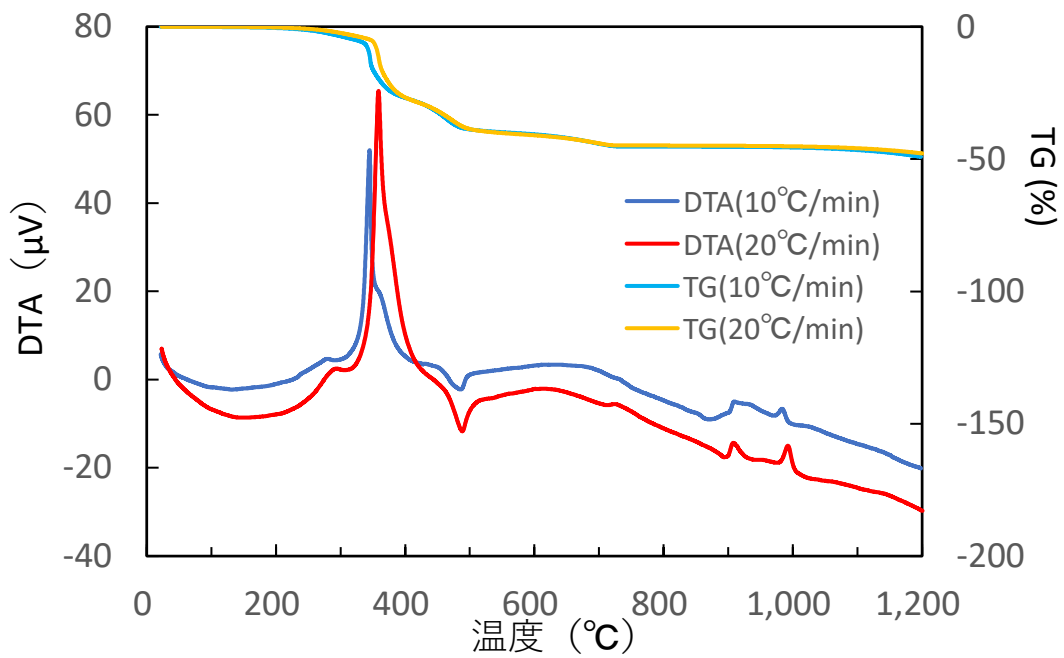


図 3.1.2.4-11 特殊クロロプレングムの TG-DTA 分析結果  
(昇温速度 10°C/min、20°C/min)

表 3.1.2.4-9 DTA から見積もった特殊クロロプレングムの反応熱

昇温条件 (°C/min)	反応熱 (Jg <sup>-1</sup> )			
	一、二段階目	三段階目	四段階目	五段階目
10	-420	+20	-270	不検出
20	-400	+17	-120	不検出

\* : 発熱をマイナス、吸熱をプラスで表記

(b) 熱分解 GC-MS による熱分解生成気体の分離分析結果

各温度のガスクロマトグラムを図 3.1.2.4-12~3.1.2.4-14 に示す。各温度において面積値の上位 10 ピークに対する測定マススペクトルデータ及びライブラリ解析結果を Appendix (図 App.2-4a~App.2-9j) に、推定した化合物を表 3.1.2.4-9~3.1.2.4-12 にまとめた。

室温~307°Cでは[3], [4], [5], [6], [7], [8], [9]のピークに該当する化合物、307~404°Cでは [2], [3], [4], [5]のピークに該当する化合物、404~527°Cでは[4], [5], [6], [9], [10]のピークに該当する化合物を高い確度で推定できた。以下に示す様な材料に由来するものや、その他塩素を含む有機ガスが多く見られることから、材料の分解により生成した有機ガスであると考えられる。

- ・ジブチルアミン：ゴムの老化防止剤に使用される。(307°Cピーク[3])
- ・シクロヘキセン化合物：ゴムの合成に使用される。(307°Cピーク[4])
- ・クロロプレン：クロロプレンゴムのモノマー成分である(404°Cピーク[2])。この温度以上でゴムのポリマー構造の分解が発生していることが示唆される。
- ・スチレン：共重合のモノマー成分である(404°Cピーク[3])。一般に、ゴム材料は複数種のモノマー成分を共重合させることで、その機能にバリエーションを持たせられる。
- ・シクロヘキセン化合物：ゴムの合成に使用される。(404°Cピーク[4][5])
- ・ベンゼン、トルエン、(キシレン)：分解により生成する芳香族化合物(527°Cピーク[5][6][7])
- ・シクロヘキセン化合物：ゴムの合成に使用される。(527°Cピーク[10])

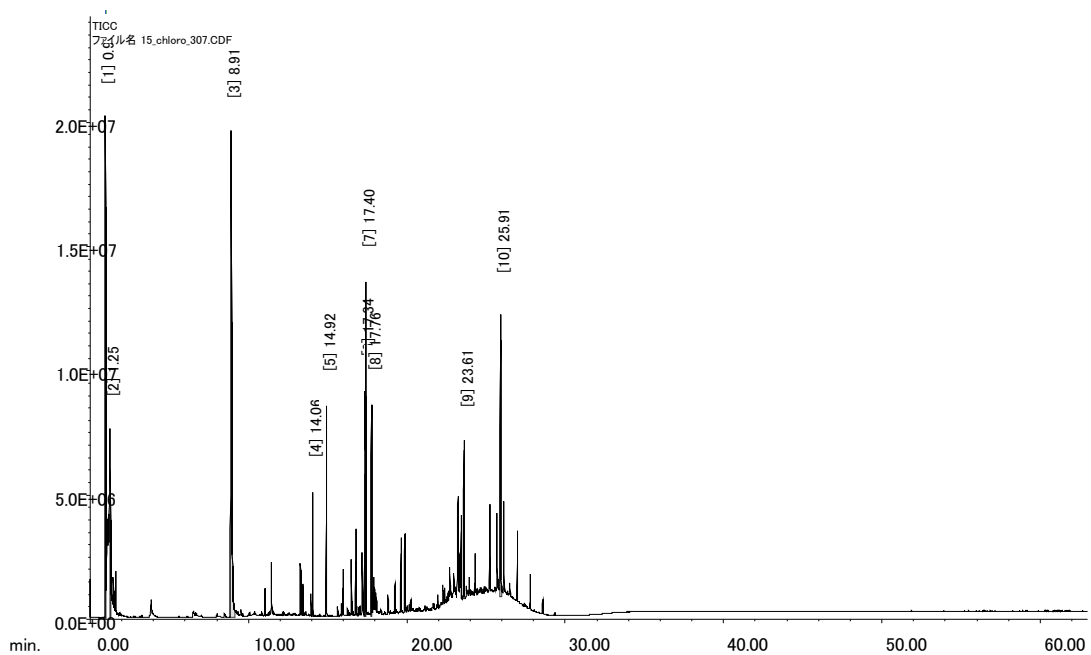


図3.1.2.4-12 特殊クロロプレンゴムのガスクロマトグラム (307°C)

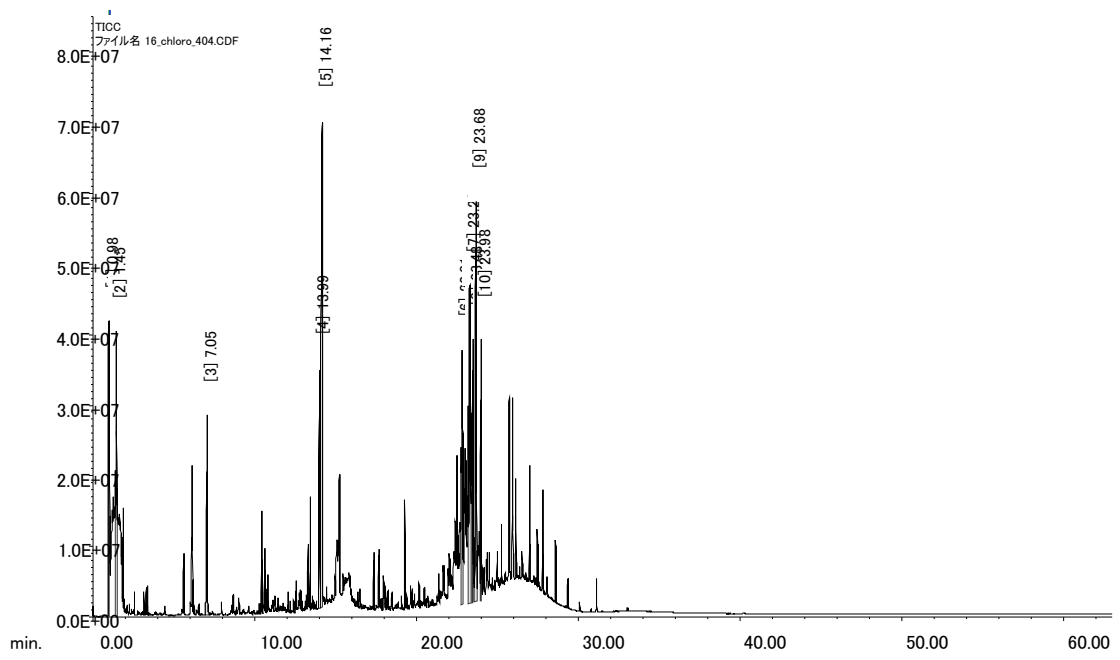


図3.1.2.4-13 特殊クロロプレンゴムのガスクロマトグラム (404°C)

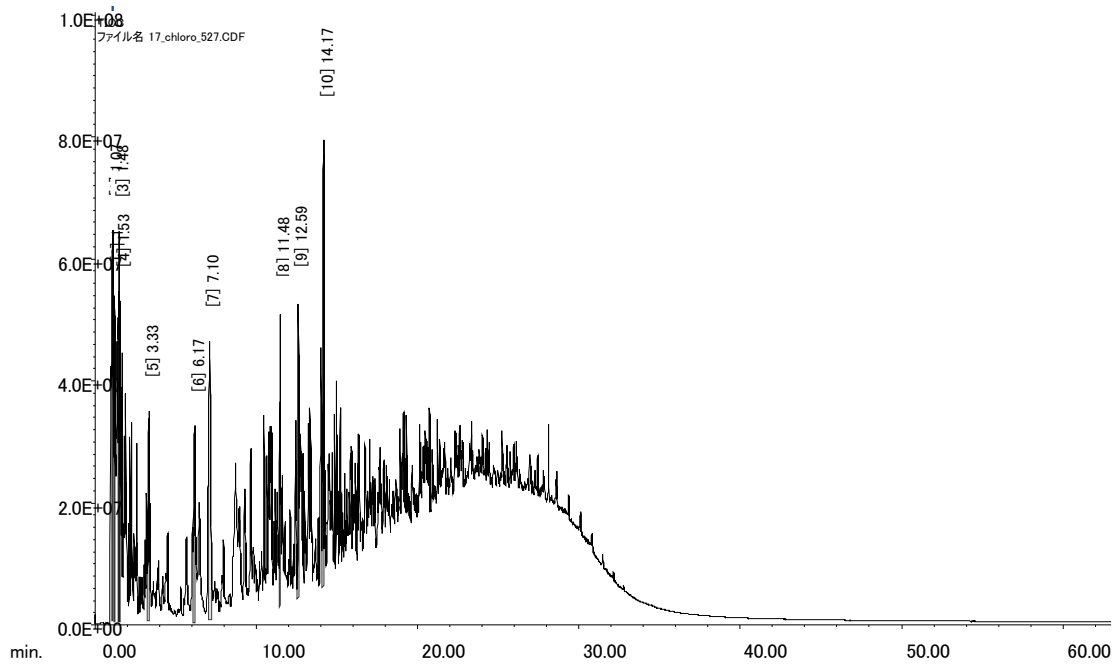


図3.1.2.4-14 特殊クロロプレンゴムのガスクロマトグラム (527°C)

表 3.1.2.4-10 PN ケーブル シース (特殊クロロプレンゴム) の定性結果  
(307 °C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	0.96	オキサミド	712	☒ App.2-4a
2	1.25	二硫化炭素	696	☒ App.2-4b
3	8.91	ジブチルアミン	899	☒ App.2-4c
4	14.06	1-クロロ-4-(1-クロロエテニル) シクロヘキセン	931	☒ App.2-4d
5	14.92	N,N-ジブチルホルムアミド	931	☒ App.2-4e
6	17.34	1-クロロウンデカン	888	☒ App.2-4f
7	17.4	4-(1-ヒドロキシ-1-メチルエチル) アセトフェノン	836	☒ App.2-4g
8	17.76	2,6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール	941	☒ App.2-4h
9	23.61	4b,8-Dimethyl-2- isopropylphenanthrene, 4b,5,6,7,8,8a,9,10-octahydro-	829	☒ App.2-4i
10	25.91	benzenamine, 2,6-dimethyl-N,N- diphenyl-	772	☒ App.2-4j

表 3.1.2.4-11 PN ケーブル シース (特殊クロロプレンゴム) の定性結果  
(404°C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	0.98	塩化水素	501	☒ App.2-5a
2	1.45	クロロプレン	847	☒ App.2-5b
3	7.05	スチレン	944	☒ App.2-5c
4	13.99	2-クロロ-4-(1-クロロエテニル) シクロヘキセン	933	☒ App.2-5d
5	14.16	1-クロロ-4-(1-クロロエテニル) シクロヘキセン	930	☒ App.2-5e
6	22.81	5-メトキシ-14-メチリデンテトラ シクロ[8.6.0.02,7.011,13]ヘキサデカ- 2,4,6-トリエン	675	☒ App.2-5f
7	23.28	デヒドロ-4-エピアビエタール	637	☒ App.2-5g
8	23.48	1-(p-Cumenyl)adamantane	663	☒ App.2-5h
9	23.68	4b,8-Dimethyl-2- isopropylphenanthrene, 4b,5,6,7,8,8a,9,10-octahydro-	724	☒ App.2-5i
10	23.98	カレペンシン	686	☒ App.2-5j

表 3.1.2.4-12 PN ケーブルシース (特殊クロロプレンゴム) の定性結果  
(527 °C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	1.07	2,4-ジメチル-1-ペンテン	715	☒ App.2-6a
2	1.19	1,1-ジメチルシクロプロパン	716	☒ App.2-6b
3	1.48	クロロプレン	793	☒ App.2-6c
4	1.53	2-クロロ-2-ブテン	838	☒ App.2-6d
5	3.33	トルエン	900	☒ App.2-6e
6	6.17	エチルベンゼン	881	☒ App.2-6f
7	7.1	p-キシレン	792	☒ App.2-6g
8	11.48	2-クロロ-m-キシレン	753	☒ App.2-6h
9	12.59	2-メチルインダン	807	☒ App.2-6i
10	14.17	1-クロロ-4-(1-クロロエテニル)シクロ ヘキセン	880	☒ App.2-6j

### (3) 難燃性特殊耐熱ビニル (CV ケーブルのシース)

分析前後の試料写真を図 3.1.2.4-15 に示す。分析後の試料は炭化している様子が見られた。TG 分析結果を図 3.1.2.4-16 に示す。昇温速度の違いによらず、三段階で減量が認められた (表 3.1.2.4-9)。MS 分析結果を Appendix (図 App.1-50~App.1-68) に、発生ガス推定結果を表 3.1.2.4-13 にまとめた。発生ガス分析の主成分は昇温速度によらず同じであったため、推定発生ガスは 10°C/min 昇温の結果を代表として記載した。一段階目の減量では、 $m/z=112$  以下の成分が検出されており、オクテンの発生が示唆された。それに加えて、水および二酸化炭素の発生が示唆された。二段階目の減量では、水、二酸化炭素、ベンゼンおよびトルエンの発生が示唆された。三段階目以降の減量では、主に無機ガスの発生が示唆された。

TG-DTA 分析における DTA シグナル (図 3.1.2.4-17) から、いずれの減量も発熱と吸熱が同時に起こっていると考えられる。そのため、DTA シグナルからの反応熱の推定は困難であった。

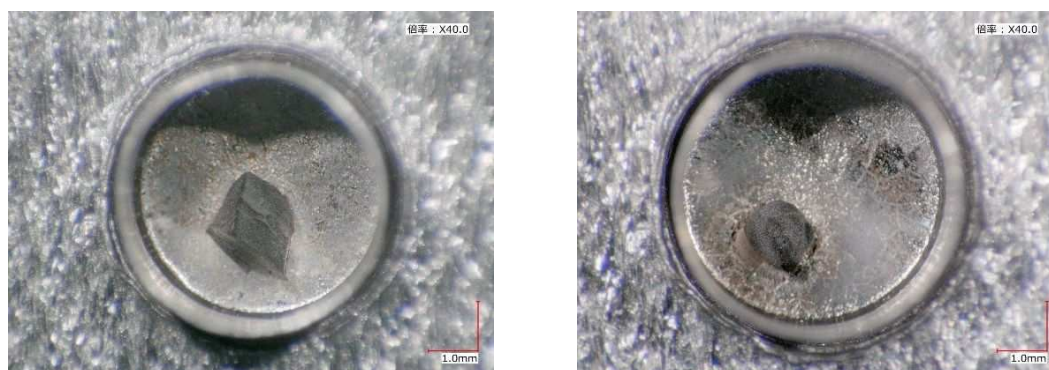


図3.1.2.4-15 分析前後の難燃性特殊耐熱ビニル試料 (左: 分析前、右: 分析後)

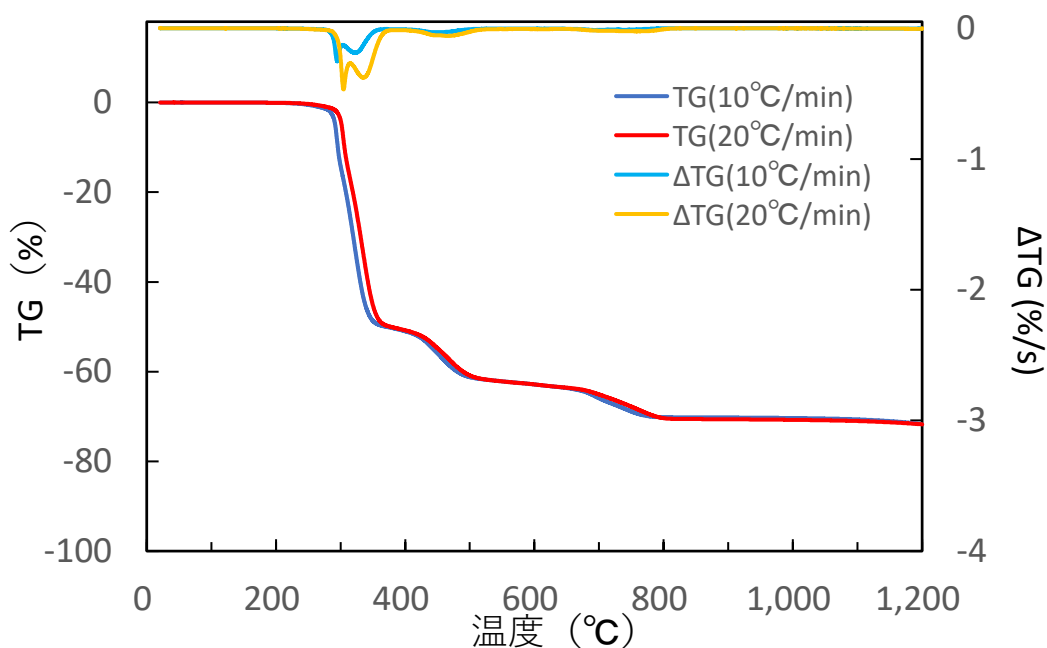


図 3.1.2.4-16 難燃性特殊耐熱ビニルの TG 分析結果  
(昇温速度 10°C/min、20°C/min)

表 3.1.2.4-13 難燃性特殊耐熱ビニルの TG 分析結果

昇温条件 (°C/min)	TG (mass%)			
	一段階目	二段階目	三段階目	四段階目
10	-51 (at 376°C)	-62 (at 560°C)	-71 (at 800°C)	-75 (at 1200°C)
20	-51 (at 391°C)	-63 (at 580°C)	-71 (at 813°C)	-73 (at 1200°C)

表 3.1.2.4-14 難燃性特殊耐熱ビニルの熱分解ガスの推定結果

区分	一段階目	二段階目	三段階目	四段階目
推定発生 ガス	水 二酸化炭素 2-オクテン	水 二酸化炭素 ベンゼン トルエン	水素 水 二酸化炭素	二酸化炭素
図	App.1-50 App.1-55~59 App.1-60 App.1-65~68	App.1-51,52 App.1-55~59 App.1-61,62 App.1-65~68	App.1-53 App.1-55,56 App.1-63 App.1-65,66	App.1-54 App.1-55 App.1-64 App.1-65



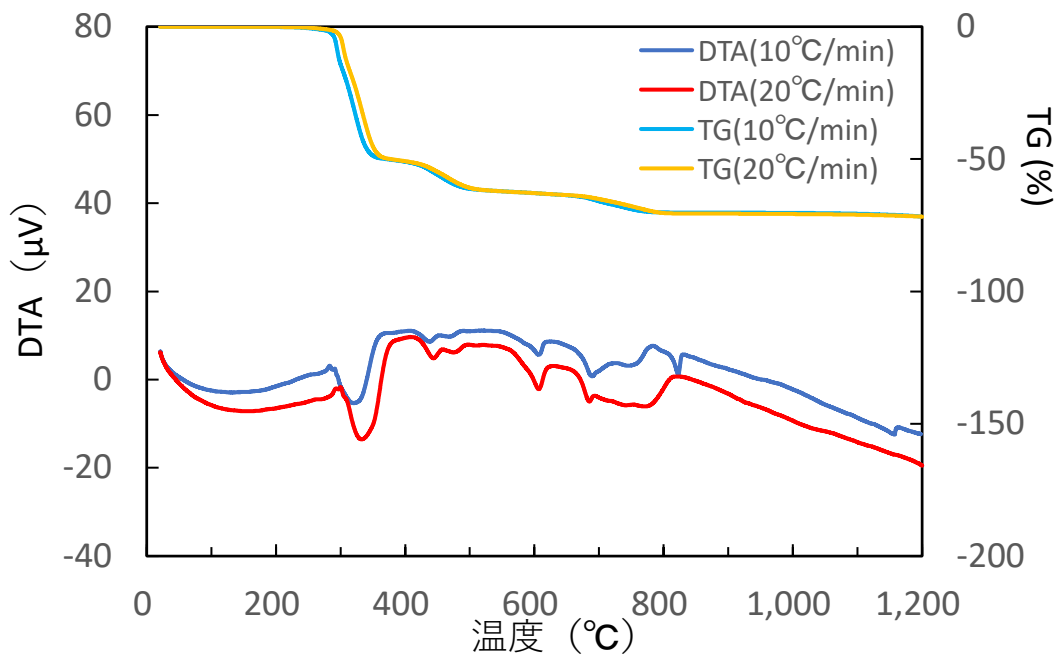


図 3.1.2.4-17 難燃性特殊耐熱ビニルの TG-DTA 分析結果  
(昇温速度 10°C/min、20°C/min)

表 3.1.2.4-15 DTA から見積もった難燃性特殊耐熱ビニルの反応熱

昇温条件 (°C/min)	反応熱 (Jg <sup>-1</sup> )			
	一段階目	二段階目	三段階目	四段階目
10	解析不可	解析不可	解析不可	不検出
20	解析不可	解析不可	解析不可	不検出

(b) 熱分解 GC-MS による熱分解生成気体の分離分析結果

各温度のガスクロマトグラムを図 3.1.2.4-18~3.1.2-20 に示す。各温度において面積値の上位 10 ピークに対する測定マススペクトルデータ及びライブラリ解析結果を Appendix (図 App.2-7a~App.2-9j) に、推定した化合物を表 3.1.2.4-16~3.1.2.4-18 にまとめた。

室温~376°Cでは[1], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9] のピークに該当する化合物、376~560°Cでは[3], [4], [5], [8], [9]のピークに該当する化合物、560~800°Cでは[2], [3], [4], [5], [6], [7], [8], [9], [10] のピークに該当する化合物を高い確度で推定できた。以下に示す様な材料に由来するものや、材料の分解により生成した有機ガスであると考えられる。

- ・オクテン：共重合用モノマーとして使用される (376°Cピーク[3][4]、560°Cピーク[5])
- ・クロロメチルヘプタン：合成におけるアルキル化剤 (376°Cピーク[5][6][7])
- ・エチルヘキサノール：可塑剤として使用される (376°Cピーク[8][9]、560°Cピーク[9])
- ・フルオレン：色素やプラスチックの原料 (800°Cピーク[8])
- ・ベンゾフェノン：混和性・反応性を向上 (800°Cピーク[9])
- ・フェナントレン：樹脂の原料 (800°Cピーク[10])
- ・ベンゼン、トルエン、ナフタレン：分解により生成する芳香族化合物 (800°Cピーク[2][4][5][6])

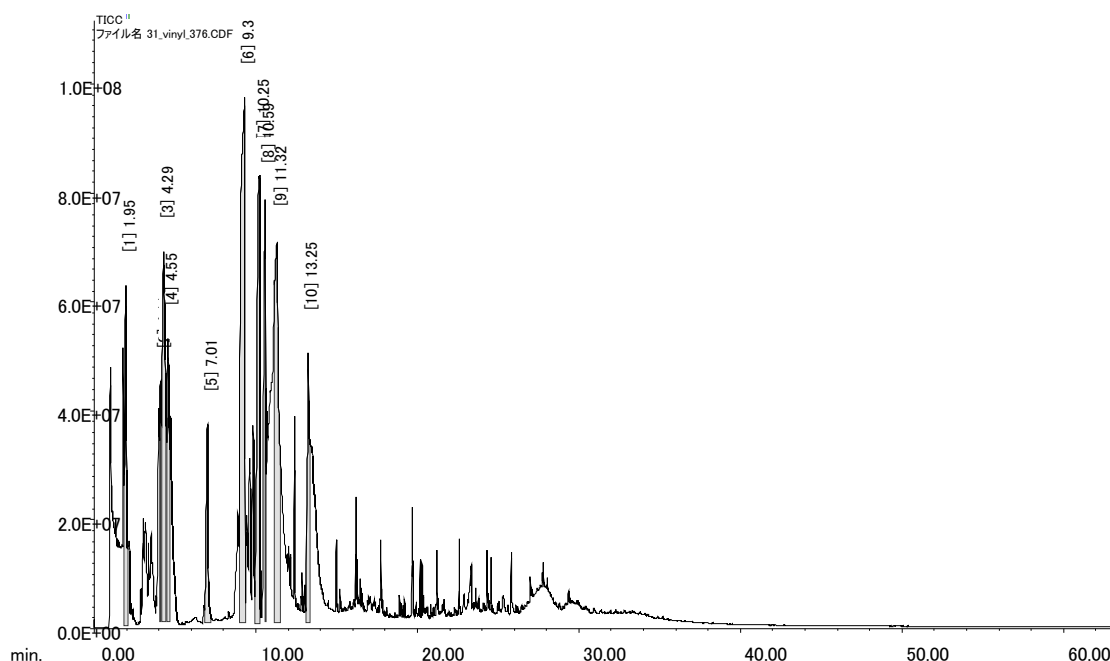


図3.1.2.4-18 難燃性特殊耐熱ビニルのガスクロマトグラム (376°C)

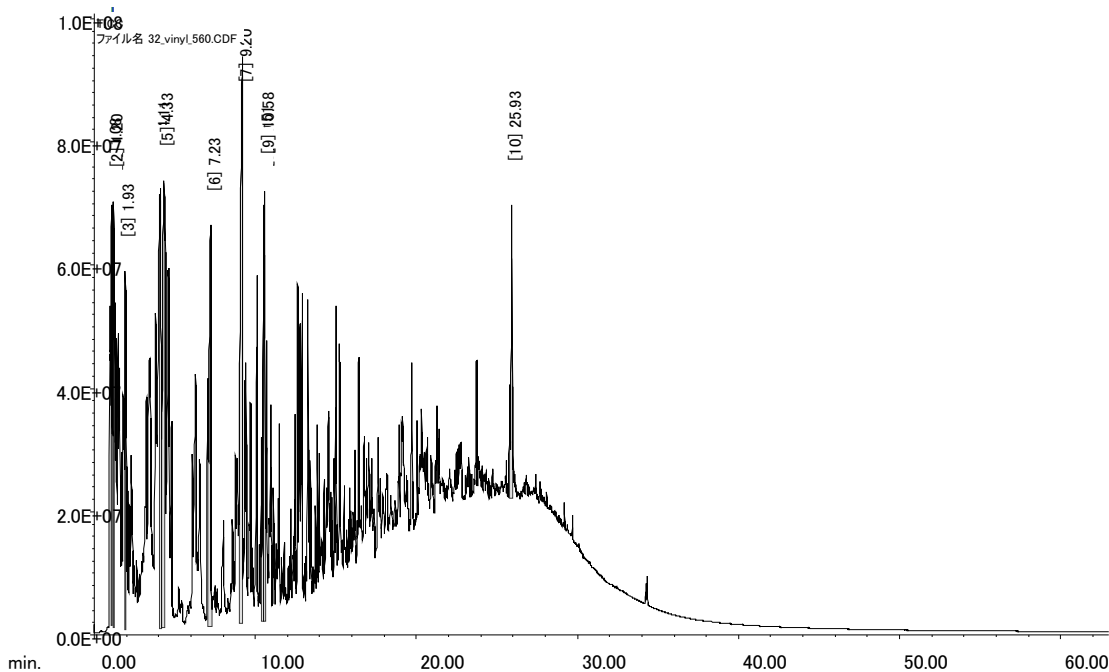


図3.1.2.4-19 難燃性特殊耐熱ビニルのガスクロマトグラム (560°C)

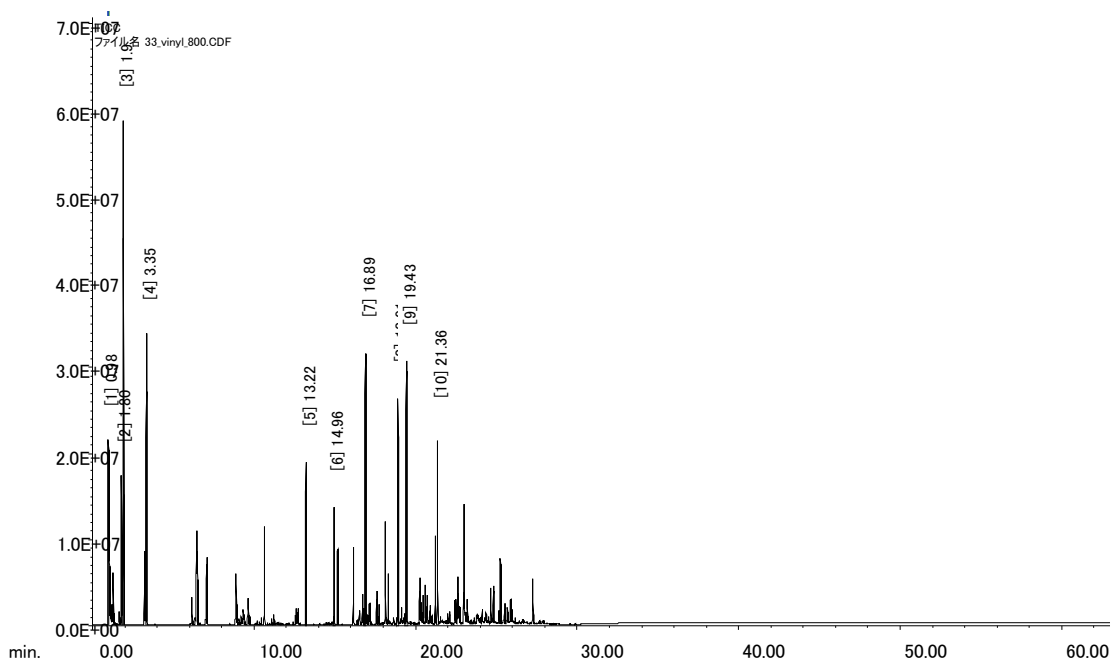


図3.1.2.4-20 難燃性特殊耐熱ビニルのガスクロマトグラム (800°C)

表 3.1.2.4-16 CV ケーブル シース (難燃性特殊耐熱ビニル) の定性結果  
(376 °C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	1.95	1,5-ヘキサジイン	851	☒ App.2-7a
2	4.11	(E)-3-オクテン	779	☒ App.2-7b
3	4.29	(E)-4-オクテン	904	☒ App.2-7c
4	4.55	(E)-3-オクテン	876	☒ App.2-7d
5	7.01	Heptane, 3-chloro-3-methyl-	821	☒ App.2-7e
6	9.31	Heptane, 3-chloro-3-methyl-	805	☒ App.2-7f
7	10.25	3-クロロメチルヘプタン	850	☒ App.2-7g
8	10.59	2-エチル-1-ヘキサノール	878	☒ App.2-7h
9	11.32	2-エチル-1-ヘキサノール	821	☒ App.2-7i
10	13.25	Acetic acid 3,5-dichloro-2,6-dimethyl-4-pyridyl ester	498	☒ App.2-7j

表 3.1.2.4-17 CV ケーブルシース (難燃性特殊耐熱ビニル) の定性結果  
(560 °C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	1.08	2-メチル-3-ブテン-1-オール	709	☒ App.2-8a
2	1.2	Cyclopropane, 1,2-dimethyl-, trans-	739	☒ App.2-8b
3	1.93	1,5-ヘキサジエン-3-イン	842	☒ App.2-8c
4	4.11	(1 $\alpha$ ,2 $\alpha$ ,3 $\alpha$ )-1,2,3-トリメチル シクロペンタン	857	☒ App.2-8d
5	4.33	(Z)-3-オクテン	837	☒ App.2-8e
6	7.23	ベンゼンプロパン酸ブロミド	799	☒ App.2-8f
7	9.2	Heptane, 3-chloro-3-methyl-	791	☒ App.2-8g
8	10.51	インダン	800	☒ App.2-8h
9	10.58	2-エチル-1-ヘキサノール	872	☒ App.2-8i
10	25.93	4-(ノニルオキシカルボニル)-1,2- ベンゼンジカルボン酸無水物	660	☒ App.2-8j

表 3.1.2.4-18 CV ケーブル シース (難燃性特殊耐熱ビニル) の定性結果  
(800 °C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	0.98	ジメチルアミン	765	☒ App.2-9a
2	1.8	ベンゼン	945	☒ App.2-9b
3	1.92	1,5-ヘキサジイン	873	☒ App.2-9c
4	3.35	トルエン	924	☒ App.2-9d
5	13.22	ナフタレン	947	☒ App.2-9e
6	14.96	2-メチルナフタレン	945	☒ App.2-9f
7	16.89	ジフェニルメタン	949	☒ App.2-9g
8	18.91	フルオレン	918	☒ App.2-9h
9	19.43	ベンゾフェノン	916	☒ App.2-9i
10	21.36	フェナントレン	943	☒ App.2-9j

#### (4) ウレタン (保温材)

##### (a) TG-DTA-MS 分析の結果

分析前後の試料写真を図 3.1.2.4-21 に示す。分析後の試料は炭化している様子が見られた。TG 分析結果を図 3.1.2.4-22 に示す。昇温速度の違いによらず、三段階で減量が認められた (表 3.1.2.4-18)。MS 分析結果を Appendix (図 App.1-69~App.1-92) に、発生ガス推定結果を表 3.1.2.4-19 にまとめた。発生ガス分析の主成分は昇温速度によらず同じであったため、推定発生ガスは 10°C/min 昇温の結果を代表として記載した。一段階目の減量では、 $m/z=95$  以下の成分が検出されており、C8 程度の炭化水素の発生が示唆された。それに加えて、水、二酸化炭素および塩化アリの発生が示唆された。二段階目の減量では、水、一酸化窒素、二酸化炭素、水素およびイソ酪酸の発生が示唆された。二段階目の減量は、 $m/z=32$  の強度が低下していることから、残存酸素を消費し酸化していると示唆される。三段階目の減量では、 $m/z=78$ ,  $m/z=91$  が検出された。それぞれベンゼン、トルエンに特徴的なイオンである。600°C 以上では明瞭な減量は認められなかったが、700°C 付近で水素、900°C 付近で二酸化炭素の発生が示唆された。なお、測定によっては 120°C 付近で増量する傾向を示した。同温度で  $m/z=32$  の強度は低下していないことから、酸化による増量ではないと考えるが、本試験結果から明確な原因は分からなかった。

TG-DTA 分析における DTA シグナル (図 3.1.2.4-23) から推定した反応熱を表 3.1.2.4-20 に示した。いずれの減量でも発熱が認められ、試料の酸化が示唆された。

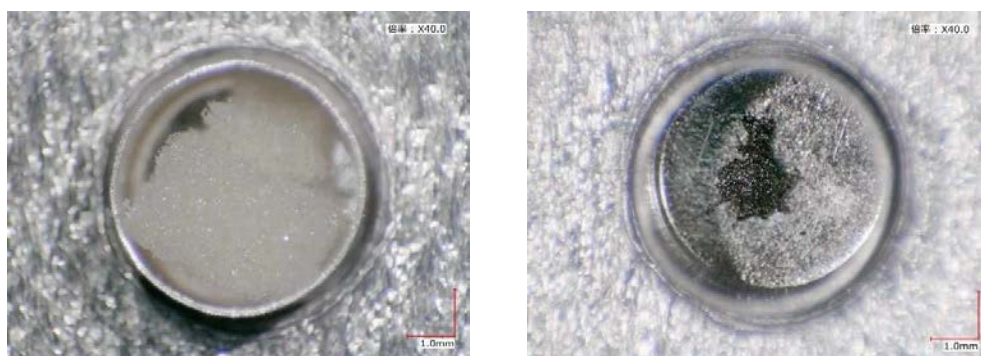


図3.1.2.4-21 分析前後のウレタン試料 (左 : 分析前、右 : 分析後)

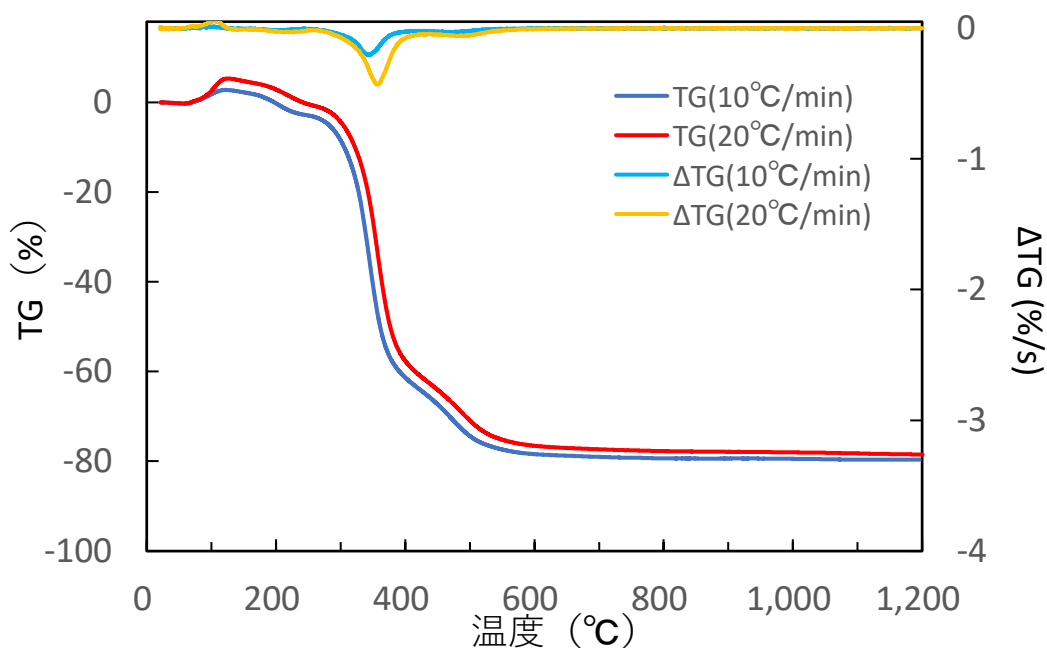


図 3.1.2.4-22 ウレタンの TG 分析結果 (昇温速度 10°C/min、20°C/min)

表 3.1.2.4-19 ウレタンの TG 分析結果

昇温条件 (°C/min)	TG (mass%)		
	一段階目	二段階目	三段階目
10	-5.3 (at 246°C)	-68 (at 421°C)	-82 (at 580°C)
20	-3.5 (at 251°C)	-67 (at 434°C)	-81 (at 600°C)

表 3.1.2.4-20 ウレタンの熱分解ガスの推定結果

区分	一段階目	二段階目	三段階目
推定 発生 ガス	C8 炭化水素水 二酸化炭素 塩化アリル	水 一酸化窒素 二酸化炭素水素 イソ酪酸	ベンゼン トルエン
図	App.1-69,70 App.1-77~80 App.1-81,82 App.1-89~92	App.1-71~73 App.1-77~80 App.1-83~85 App.1-89~92	App.1-74 App.1-78~80 App.1-86 App.1-89~92

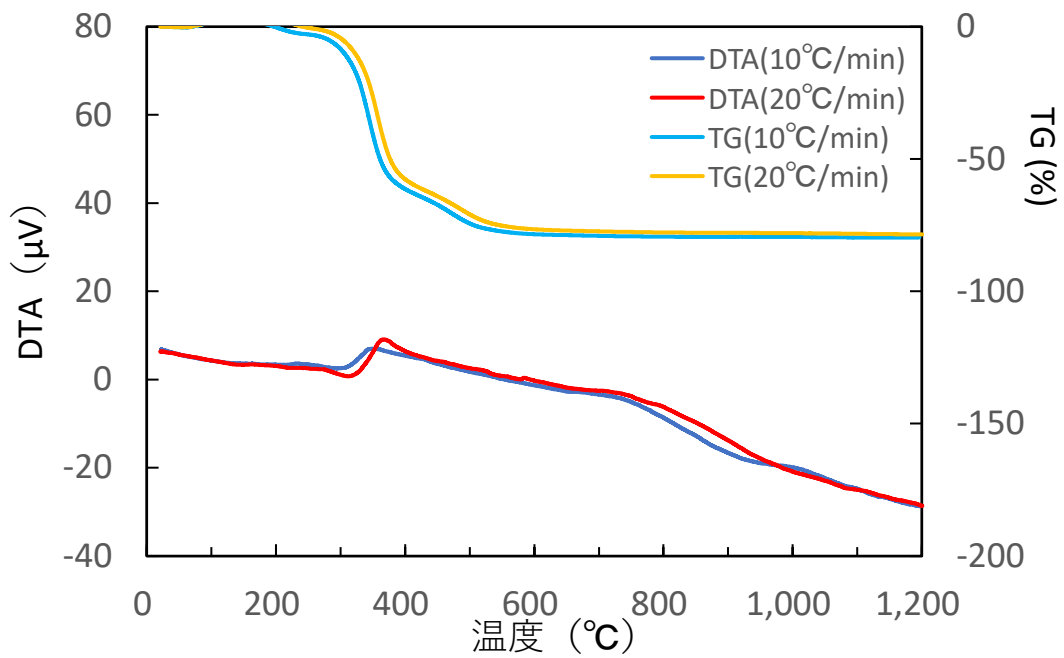


図 3.1.2.4-23 ウレタンの TG-DTA 分析結果  
(昇温速度 10°C/min、20°C/min)

表 3.1.2.4-21 DTA から見積もったウレタンの反応熱

昇温条件 (°C/min)	反応熱 (Jg <sup>-1</sup> )	
	一段階目	二、三段階目
10	-40	-910
20	-50	-750

\* : 発熱をマイナス、吸熱をプラスで表記



(b) 熱分解 GC-MS による熱分解生成気体の分離分析結果

各温度のガスクロマトグラムを図 3.1.2.4-24～3.1.2.4-26 に示す。各温度において面積値の上位 10 ピークに対する測定マススペクトルデータ及びライブラリ解析結果を Appendix (図 App.2-10a～App.2-12j) に、推定した化合物を表 3.1.2.4-22～3.1.2.4-24 にまとめた。

室温～246℃では、ライブラリとの照合性が高く(類似度>800)高い確度で同定できた [3], [4], [7], [8], [9]のピークに該当する化合物として、以下の成分が推定された。

- ・ジクロロプロパン：ウレタンフォームの発泡助剤などに使用される。(ピーク [3])
- ・ジメチルシクロヘキシルアミン：硬質ウレタン触媒、加硫促進剤に使用される。(ピーク [4])

・りん酸エステル：ポリウレタン発泡材に難燃剤として使用される。(ピーク [7], [8], [9])  
246～421℃ではライブラリとの照合性の高いピークは無く、分解生成ガスを明確に同定できなかった。421～580℃では、高い確度で同定できた [2], [5], [7], [8], [9], [10] のピークに該当する化合物として、以下の成分が推定された。

- ・トルエン (Toluene)：有機溶剤として使用される。(ピーク [2])
- ・アニリン(Aniline(Benzenamine とも言う))系化合物：ウレタンエラストマーの硬化剤として使用される。(ピーク [5], [8], [9], [10])
- ・キノリン(Quinoline)系化合物：硬質フォーム用の触媒として使用される。(ピーク [7])

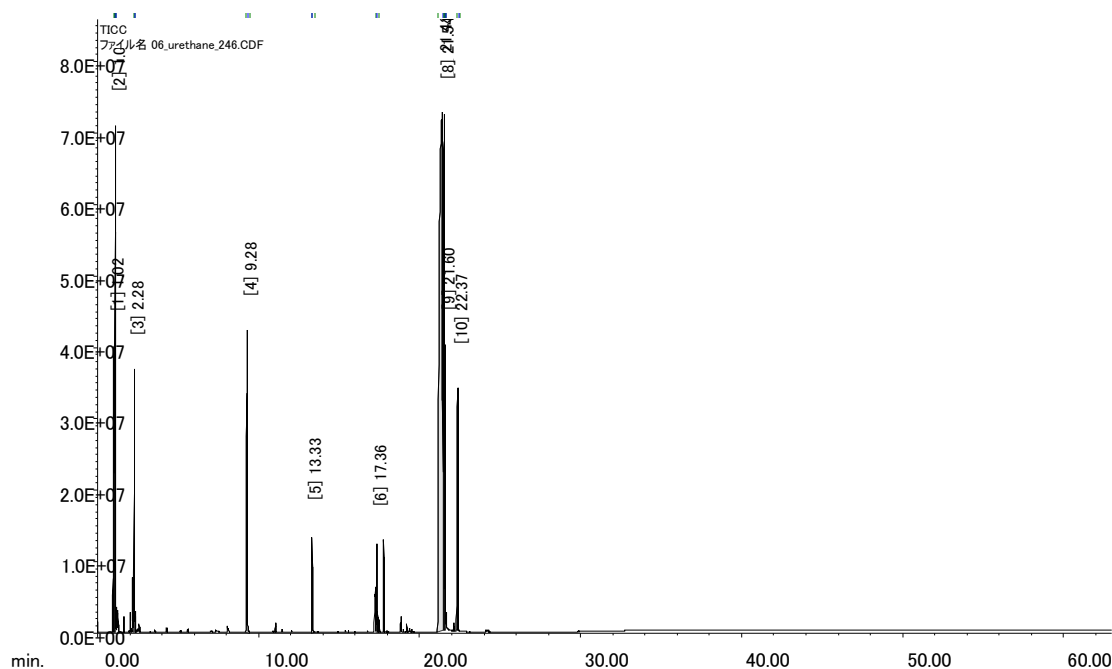


図3.1.2.4-24 ウレタンのガスクロマトグラム (246℃)

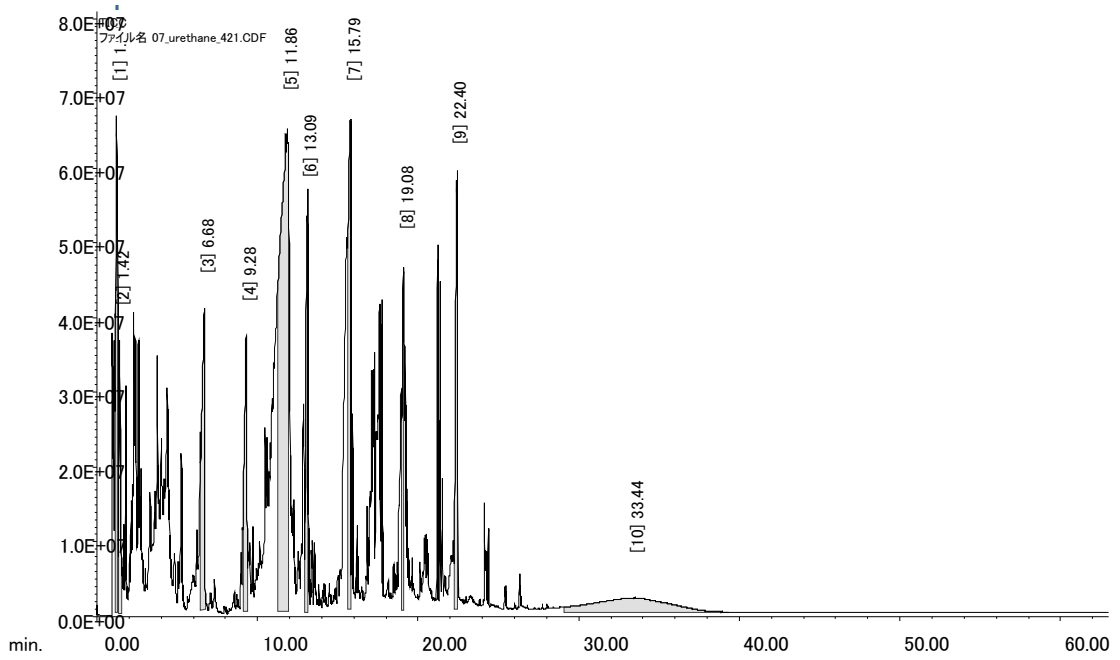


図3.1.2.4-25 ウレタンのガスクロマトグラム (421°C)

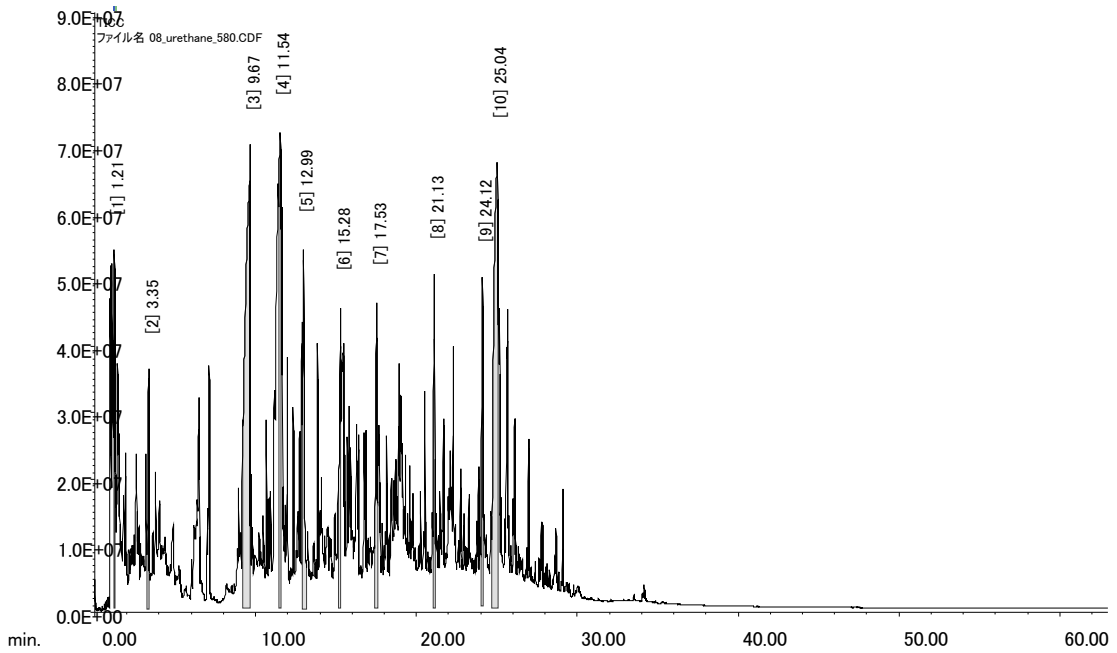


図3.1.2.4-26 ウレタンのガスクロマトグラム (580°C)

表 3.1.2.4-22 ウレタンの定性結果 (246°C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	1.02	1-クロロ-3-フルオロベンゼン	608	☒ App.2-10a
2	1.09	1-クロロ-3-フルオロベンゼン	565	☒ App.2-10b
3	2.28	1,2-ジクロロプロパン	930	☒ App.2-10c
4	9.28	N,N-ジメチルシクロヘキシルアミン	878	☒ App.2-10d
5	13.33	3,3,3-Trifluoro-2-hydroxy-propionic acid, 2-isopropyl-5-methyl-cyclohexyl ester	742	☒ App.2-10e
6	17.36	Germacrene A, 9-(methylthio)-	567	☒ App.2-10f
7	21.43	りん酸トリス[1-(クロロメチル)エチル]	890	☒ App.2-10g
8	21.54	りん酸ビス[1-(クロロメチル)エチル] (3-クロロプロピル)	901	☒ App.2-10h
9	21.6	りん酸ビス(3-クロロプロピル) [1-(クロロメチル)エチル]	916	☒ App.2-10i
10	22.37	2-((2-Chloroethoxy)carbonyl) benzoic acid	678	☒ App.2-10j

表3.1.2.4-23 ウレタンの定性結果 (421°C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	1.23	アリルプロピルエーテル	697	☒ App.2-11a
2	1.42	5-ヘキセン-1-オール	711	☒ App.2-11b
3	6.68	2,3-ジメチル-3-ブテン-2-オール	713	☒ App.2-11c
4	9.28	2-(2-クロロエトキシ)エタノール	767	☒ App.2-11d
5	11.86	3-メトキシ-1,2-プロパンジオール	611	☒ App.2-11e
6	13.09	Pentan-2-ol, 4-allyloxy-2-methyl-	702	☒ App.2-11f
7	15.79	1,1'-(1,2-プロパンジイルビスオキシ) ビス(2-プロパノール)	755	☒ App.2-11g
8	19.08	トリイソプロピレングリコール メチルエーテル	738	☒ App.2-11h
9	22.4	2-((2-(2-Methoxyethoxy) ethoxy) carbonyl) benzoic acid	628	☒ App.2-11i
10	33.44	4,4'-ジイソシアン酸メチレン ジフェニル	735	☒ App.2-11j

表3.1.2.4-24 ウレタンの定性結果 (580°C 加熱時)

ピーク No.	保持時間 (min)	ライブラリ解析		
		推定化合物	類似度	マススペクトル
1	1.21	シクロブチルシラン	689	☒ App.2-12a
2	3.35	トルエン	919	☒ App.2-12b
3	9.67	ジアニリノジメチルシラン	779	☒ App.2-12c
4	11.54	2-メチル-3-オキサヘキサン- 1,5-ジオール	742	☒ App.2-12d
5	12.99	3,4-ジメチルアニリン	899	☒ App.2-12e
6	15.28	4-sec-ブチルアニリン	727	☒ App.2-12f
7	17.53	2,7-ジメチルキノリン	803	☒ App.2-12g
8	21.13	4-ベンジルアニリン	878	☒ App.2-12h
9	24.12	4,4'-メチレンジアニリン	882	☒ App.2-12i
10	25.04	4,4'-メチレンジアニリン	879	☒ App.2-12j

### 3.1.3 まとめ

1F-1号機から3号機の炉心損傷進展時における雰囲気条件等の違いを推定することを目的として、建屋内の移行経路を推定するための情報やSGTSフィルター上流側と下流側の比較等の知見を蓄積するために、2号機原子炉建屋、1/2号機SGTS配管内部、3号機SGTS室フィルターから採取したスミヤ試料の分析試験を実施した。溶解分析前のガンマ線核種分析において、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{60}\text{Co}$ の核種が確認され、イメージングプレート分析により放射能分布を把握し、一部の試料について酸分解による溶解試験を実施した。溶解液のガンマ線核種分析、 $\beta$ 線スペクトロメータやICP-MS分析により、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{99}\text{Tc}$ 及びMo同位体、U同位体に関する定量データを取得した。また、一部のスミヤ試料及び溶解残渣についてSEM-EDS分析を実施し、構造材、燃料、塗料、海水由来と推定される元素データを取得した。

有機材料の熱分解生成気体の分析では、TG-DTA-MS法及び熱分解GC-MS法により、格納容器内で使用されている4種類の材料(難燃性エチレンプロピレンゴム、特殊クロロプロレンゴム、難燃性特殊耐熱ビニル、ウレタン)について窒素雰囲気下での熱分解試験を実施し、生成ガスの分析を行った。TG-DTA-MS分析では、TG分析により顕著な重量減少のある温度領域を把握するとともに、MS分析により生成ガスの分析を行い、水や二酸化炭素といった無機化合物の他、ベンゼン、トルエンといった比較的単純な組成・構造の有機化合物を推定した。熱分解GC-MS分析では、TG分析によって把握した各温度領域で生成するガスについて、成分を分離して化合物の分析を行った結果、いずれの試料でも材料に起因す

るとみられる有機化合物が推定された。今後、雰囲気中の酸素ポテンシャルの違いによる生成ガスの違いや、生成ガスの定量性について検討が必要である。

## 3.2 配管内流動解析

### 3.2.1 目的

1号機及び2号機の格納容器ベント及びSGTS（非常用ガス処理）ラインの汚染要因の検討に資するため、格納容器ベント実施時におけるベント気体の流動状況を評価した。この検討において、ベント弁下流の流量調整弁での臨界流、配管との摩擦圧損、配管構造材の熱容量や自然放熱による冷却、水蒸気の凝縮等の影響を考慮しながら、二相流挙動を把握する必要があった。よって、ベント気体の流動解析には、世界中で広く使用されている一次元二流体熱水力解析コード RELAP5/MOD3.3[3.2-1]を用いた。

### 3.2.2 解析方法

図 3.2.2-1、図 3.2.2-2 に、それぞれ解析体系の概要と RELAP5/MOD3.3 コードのノーディングを含む解析モデルを示す。図 3.2.2-2 中の表記例として、S、T、P、B、V、H で始まる箇所は、それぞれ Single Volume、Time-dependent Volume、Pipe、Branch、Valve、Heat Structure の模擬を意味している。なお、P (Pipe) の括弧内は、Volume 数を示す。解析では、これらの図に示される様に、サプレッションチェンバ (S/C) に接続されたベント配管、1号機及び2号機の SGTS 配管並びに共用スタックを模擬した。SGTS 配管については、ベント配管の合流部からフィルタに隣接する送風機までを模擬した。その際、配管の敷設状況や内径、肉厚等については、可能な限り実機条件を考慮した。共用スタック頂部と送風機の圧力境界条件については、地表高さにおける大気圧を仮定するとともに、重力による静圧の違いを考慮して、それぞれ 99.8kPa と 101.1kPa に設定した。

RELAP5 コード解析では、ベント作動時の放射性物質の放出量や S/C の圧力、温度等の時間変化が必要となる。そのため、シビアアクシデント総合解析コード THALES2[3.2-2] による解析を別途 JAEA で実施し、その評価結果を用いる。よって、RELAP5 コード解析において、ベント流の入口条件となる S/C から流出する窒素ガス、水素ガス及び水蒸気の圧力や温度、流量等は、THALES2 コードによる評価結果にしたがっている。なお、使用する THALES2 コードの妥当性については、図 3.2.2-3 に示す様に、S/C 圧力の実測値と THALES2 コードによる計算結果がおおむね一致していることにより確認している。

ベント弁（図 3.2.2-2 中の LV1）作動時の流量については、THALES2 コードと RELAP5/MOD3.3 コードに装備されている臨界流モデルが異なることを考慮した。そのため、RELAP5 コード解析では、ベント弁下流の流量調整弁（図 3.2.2-2 中の LV3）の流路面積を調整した。その結果、図 3.2.2-4 に示す様に、THALES2 コードによる S/C 圧力と、RELAP5 コードによる流量調整弁上流の圧力はおおむね一致した。配管外側の温度については、THALES2 コードによる評価結果を参照しながら、原子炉補助建屋外に 281K、1号機原子炉補助建屋内に 313K、2号機原子炉補助建屋内に 293K を与えた。配管外壁面熱伝達係数については、自然対流に対する一般的な値として、 $5\text{W/m}^2\text{K}$  を与えた。配管系統については、実機条件を考慮して形状等を模擬した。曲がりにおける摩擦圧損係数等については、形状に依存した一般的な値を与えた。

ベントガスが共用スタックに向かって流れる配管系統とフィルタとの間には、グラビティダンパと称される弁が存在し、フィルタ側への流れを制限している。このグラビティダンパは、二つの流路で模擬した。一つの流路は、漏洩流路である。この漏洩流路面積は、解析の基本ケースにおいて、逆流時の差圧と流量に係る設計条件により定めた。もう一つの流路は、流路を閉鎖する弁の重力効果を模擬し、正流方向に差圧が重力よりも大きい場合にのみ全開させた。共用スタックについては、ベント排気系との接続部よりも鉛直上方の流路を平行な二つの流路で模擬した。この二つの流路は、水平方向に5か所で接続した。

### 3.2.3 解析結果

#### (1) 流量配分

解析の基本ケースでは、逆流時の差圧と流量に係る設計条件により定めた1号機側及び2号機側グラビティダンパの漏洩面積を用いた。図3.2.3-1に、基本ケースにおける共用スタックへの流れの流量積算値の時間変化を示す。また、図3.2.3-2及び図3.2.3-3に、基本ケースにおけるそれぞれ合流部1から1号機送風機に向かう流れ、合流部2から2号機送風機に向かう流れの流量積算値の時間変化を示す。ここで、ベント配管と1号機SGTS配管との合流部、2号機SGTS配管との合流部をそれぞれ合流部1と合流部2と称している(図3.2.2-1参照)。評価するベントガスの成分には、窒素ガス、水素ガス及び水蒸気が含まれる。これらの図より、ベントから放出された気相質量に対する共用スタックに流入した気相質量は99%となった。また、ベントから放出された気相質量に対する1号機送風機及び2号機送風機に向かう配管に流入した気相質量は、それぞれ0.6%及び0.3%となった。ここで、S/Cから放射性物質(Cs-137)が気体に均質に混合して流出したと仮定する。加えて、共用スタック並びに1号機送風機及び2号機送風機に向かうSGTS配管へのCs-137合計流入量は、後述する感度ケースと同様、130TBqと仮定する。これらの仮定の下で、共用スタックへのCs-137流入量は、129TBqと推定される(表3.2.3-1参照)。また、1号機送風機及び2号機送風機に向かうSGTS配管へのCs-137流入量は、それぞれ0.8TBq及び0.4TBqと推定される(表3.2.3-1参照)。これらの評価結果は、SGTS配管やフィルタの汚染分布に関する調査結果[3.2-3]で示された汚染量よりかなり小さく、グラビティダンパの漏洩量が設計条件より大きかった可能性を示している。

上記基本ケースの結果を踏まえながら、SGTS配管やフィルタの汚染分布に関する調査結果[3.2-3]を再現するため、グラビティダンパの漏洩面積をパラメータとした感度解析を行った。このとき、目標とする共用スタックへのCs-137流入量は100TBq、1号機送風機及び2号機送風機に向かうSGTS配管へのCs-137流入量はそれぞれ10TBq及び20TBqである。なお、感度解析では、漏洩流路で動圧(単位体積当たりの気相エネルギー)と等しい摩擦圧損が生じると仮定した。感度解析の結果、SGTS配管やフィルタの汚染分布に関する調査結果を再現するための1号機側及び2号機側グラビティダンパの漏洩面積は、それぞれ流路面積の1.8%及び29.8%と推定される。

図 3.2.3-4 に、感度ケースにおける共用スタックへの流れの流量積算値の時間変化を示す。また、図 3.2.3-5 及び図 3.2.3-6 に、感度ケースにおけるそれぞれ合流部 1 から 1 号機送風機に向かう流れ、合流部 2 から 2 号機送風機に向かう流れの流量積算値の時間変化を示す。感度ケースにおいて、ベントから放出された気相質量に対する共用スタックに流入した気相質量は 76.9%となった(表 3.2.3-1 参照)。また、ベントから放出された気相質量に対する 1 号機送風機及び 2 号機送風機に向かう配管に流入した気相質量は、それぞれ 7.7%及び 15.4%となった(表 3.2.3-1 参照)。

基本ケース及び感度ケースの結果は、グラビティダンパにおいて設計条件以上に過大な漏洩が生じたことが、SGTS 配管やフィルタの汚染状況に大きな影響を与えたことを示している。また、グラビティダンパにおいて過大な漏洩が生じない場合は、SGTS 配管やフィルタの汚染分布に関する調査結果と整合しないことを示している。

## (2) 流動状況

代表的な配管内の流動状況として、感度ケースにおけるベント開始から 25 分後の気相流速と温度(気相と壁内面)を取り上げる。図 3.2.3-7 及び図 3.3.3-8 に、それぞれ気相流速分布、温度分布を示す。これらの図は、ベント入口から共用スタック出口まで、合流部 1 から 1 号機送風機まで、合流部 2 から 2 号機送風機までの三つの流路に沿った気相流速及び温度の変化を示している。ここで、気相流速や温度の評価点は、配管等を模擬した各ノードの長さの中心位置とし、格納容器ベント配管入口からの距離で評価点を表している。

図 3.2.3-7 に示す様に、ベント弁下流の合流部 1 から合流部 2 までの配管における流速は、45m/s 程度である。一方、合流部 1 から 1 号機送風機までの流路及び合流部 2 から 2 号機送風機までの流路における流速は、それぞれ 3m/s 程度、5m/s 程度である。図 3.2.3-8 に示す様に、S/C から放出されたベントガスは、流量調整弁で近似的に等エンタルピ膨張して、S/C 温度と同程度の温度で流量調整弁の下流側に流入する。以後、流路方向に管壁からの冷却により、ガス温度は低下する。流量調整弁直下の圧力の時間変化がかなり緩やかであったことから、ベント弁が開放されている期間における気相速度は、ほぼ定常的な速度と見なせる。一方、壁温度は、流体から加熱されることにより、時間の経過とともに上昇し続け、流体温度に近づく。この時刻において、流量調整弁より下流の配管壁温度は、ベント弁から共用スタックに向かう流路の外気に接する部分で、外壁温度より 33K 程度高い温度となり、一定である。また、1 号機送風機付近の壁温度が、上流側とほぼ同じ温度となっている。

S/C から放出された流体は、流量調整弁に至る前に管壁から冷却される。ベント弁が開放されている期間において、液滴が流量調整弁の下流領域に流入する。しかし、流量調整弁の下流領域では、過熱した気相からの伝熱により、液滴は蒸発する。解析で得られた流動状況は、1 号機及び 2 号機の SGTS 共有配管部分で急激に変わることはなかった。また、流速が約 45m/s から約 22m/s に低下するものの、1 号機 SGTS 配管内と同様、極め



て小さい液相体積率の噴霧流が共用スタックに流入している。このことは、共用スタックから 3m 程度の SGTS 共有配管部分が局所的に高いレベルで汚染されるとしている調査結果と整合していない。よって、SGTS 共有配管部分の汚染は、ベント作動後に生じたとする推定を裏付けるものである。一方、2号機送風機に向かう流れにおいて、合流部 2 から 10m 程度の範囲は過熱状態が継続されている。以後、流路方向に管壁からの冷却により、ガス温度は低下し、飽和温度とほぼ等しくなる。このため、管壁からの冷却により凝縮が生じている。

#### 3.2.4 まとめ

RELAP5/MOD3.3 コードによる基本ケース及び感度ケースの結果から、SGTS 配管やフィルタで観測された汚染状況の原因として、以下のことが推定可能と考えられる。

ベント作動時に、グラビティダンパの漏洩量が設計条件と同様な場合、SGTS 配管やフィルタで観測された数十 TBq の汚染は生じないことを示した。このことは、グラビティダンパの設計条件以上の漏洩が、SGTS 配管やフィルタで観測された汚染の原因である可能性を示している。また、漏洩流路で動圧（単位体積当たりの気相エネルギー）と等しい摩擦圧損が生じると仮定する場合、SGTS 配管やフィルタの汚染分布に関する調査結果を再現するための 1号機側及び2号機側グラビティダンパの漏洩面積は、それぞれ流路面積の数%及び数+%と推定される。

表 3.2.3-1 ベント作動時の流量配分と推定される Cs-137 流入量

解析ケース	1号機 SGTS	2号機 SGTS	共用スタック
基本ケース	0.6% (0.8TBq)	0.3% (0.4TBq)	99% (129TBq)
感度ケース	7.7% (10TBq)	15.4% (20TBq)	76.9% (100TBq)

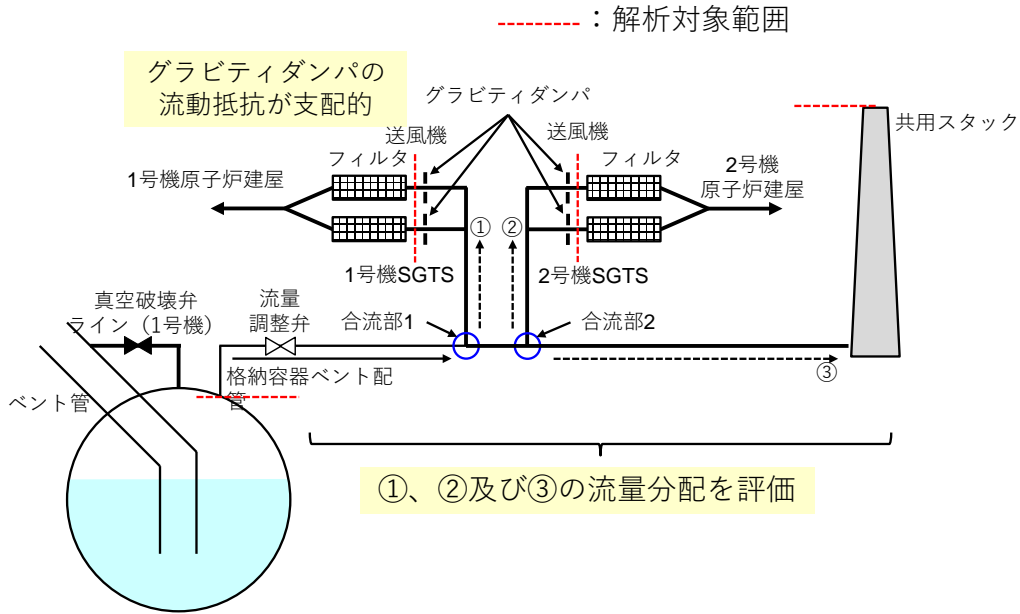


図 3.2.2-1 解析体系の概要

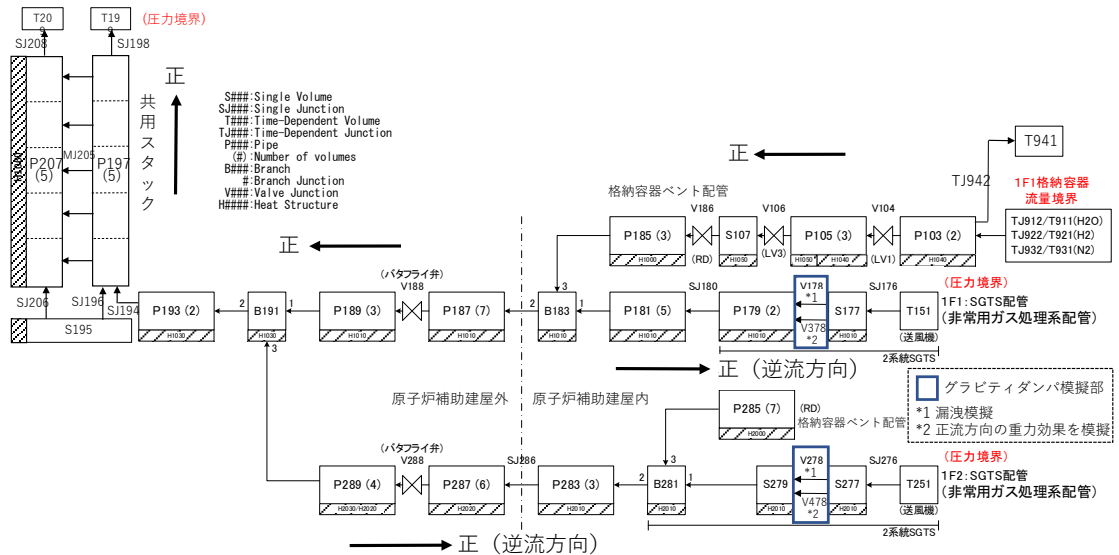


図 3.2.2-2 RELAP5 コードの解析モデル

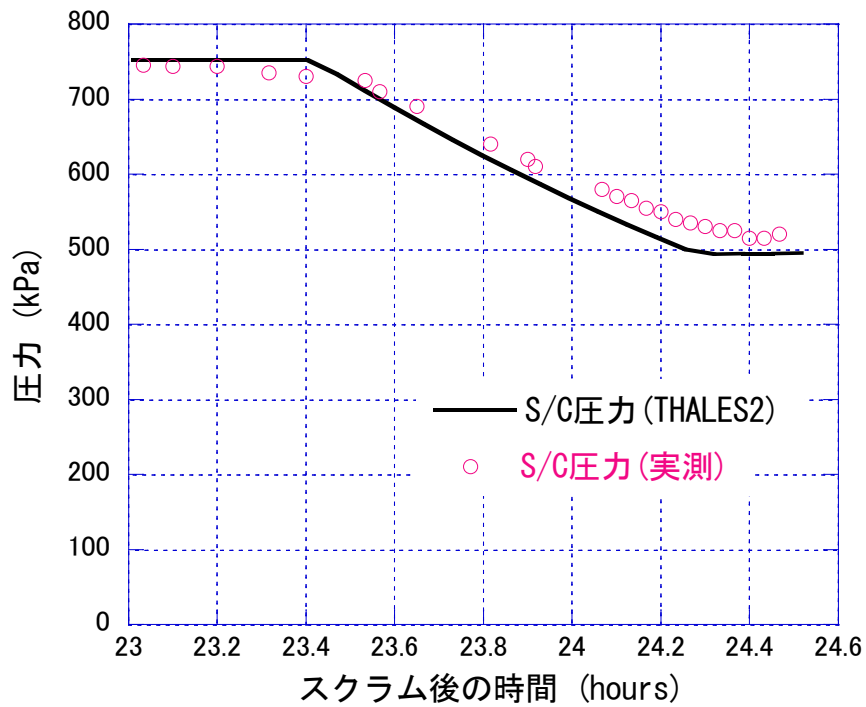


図 3.2.2-3 S/C 圧力の実測値と THALES2 コードによる計算結果の比較

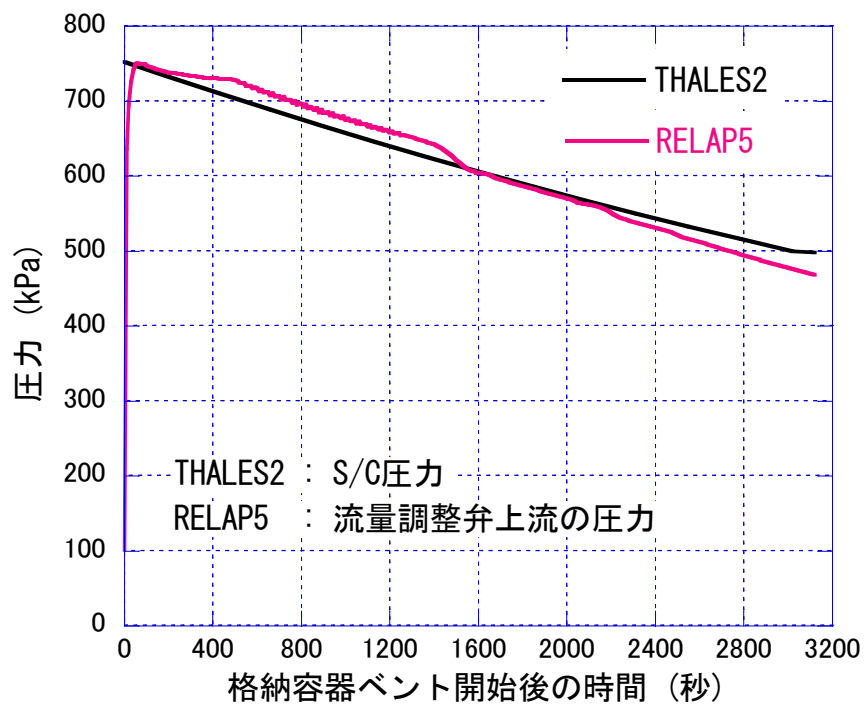


図 3.2.2-4 THALES2 コードと RELAP5 コードによる圧力の比較

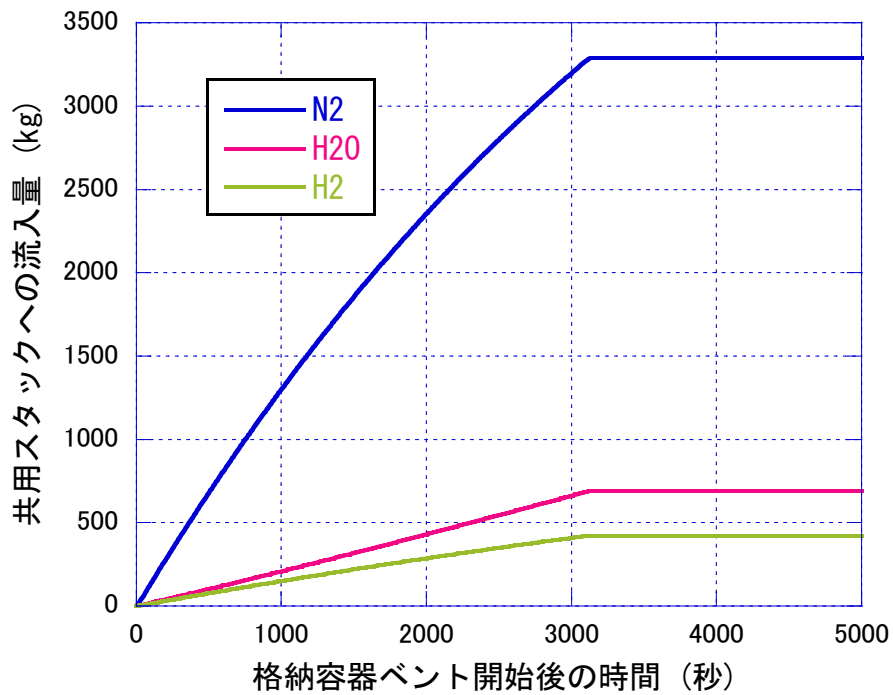


図 3.2.3-1 共用スタックへの流れの流量積算値 (基本ケース)

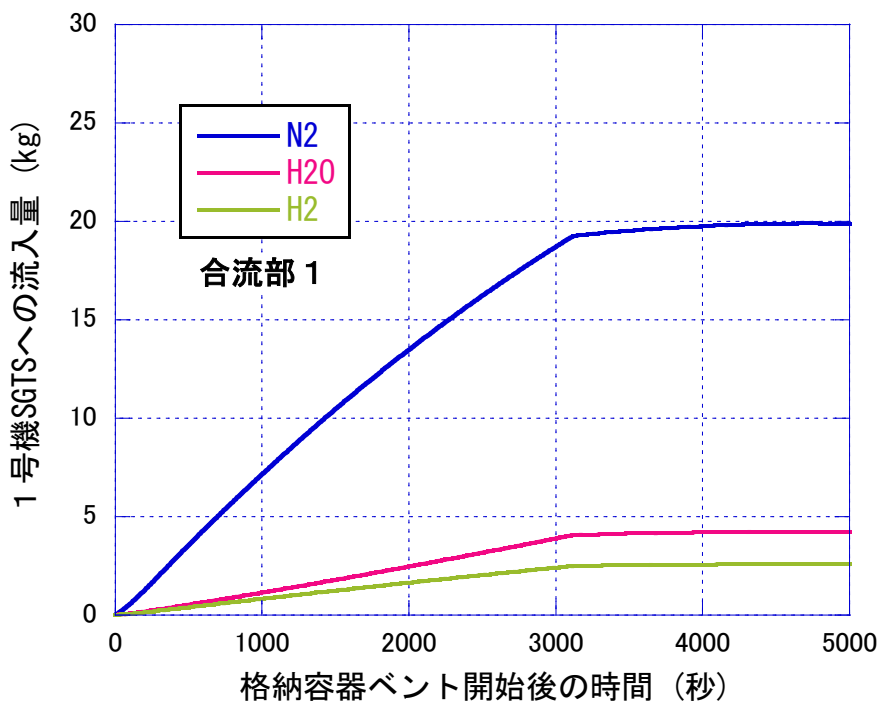


図 3.2.3-2 合流部 1 から 1号機送風機に向かう流れの流量積算値 (基本ケース)

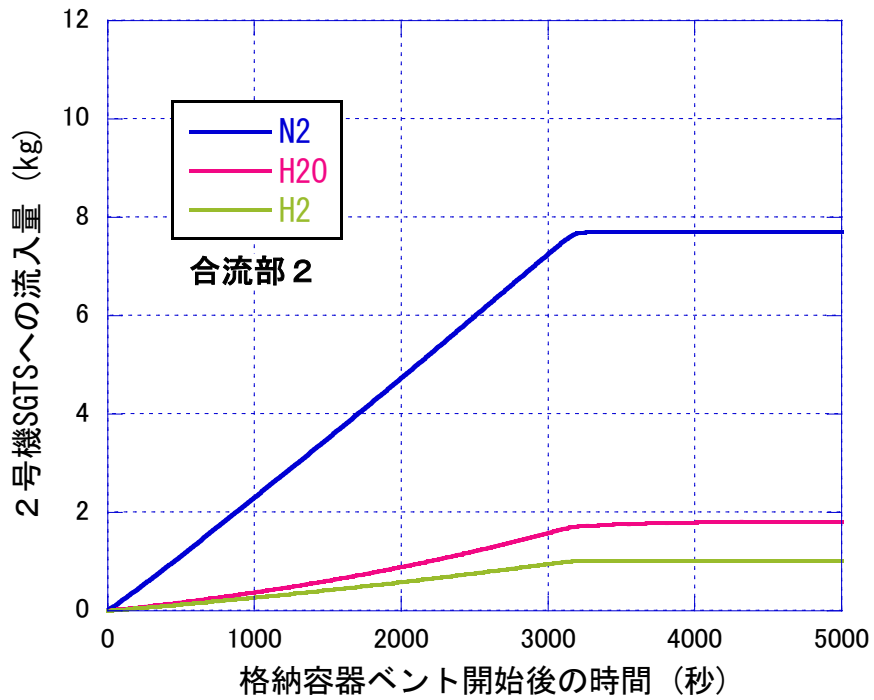


図 3.2.3-3 合流部 2 から 2 号機送風機に向かう流れの流量積算値 (基本ケース)

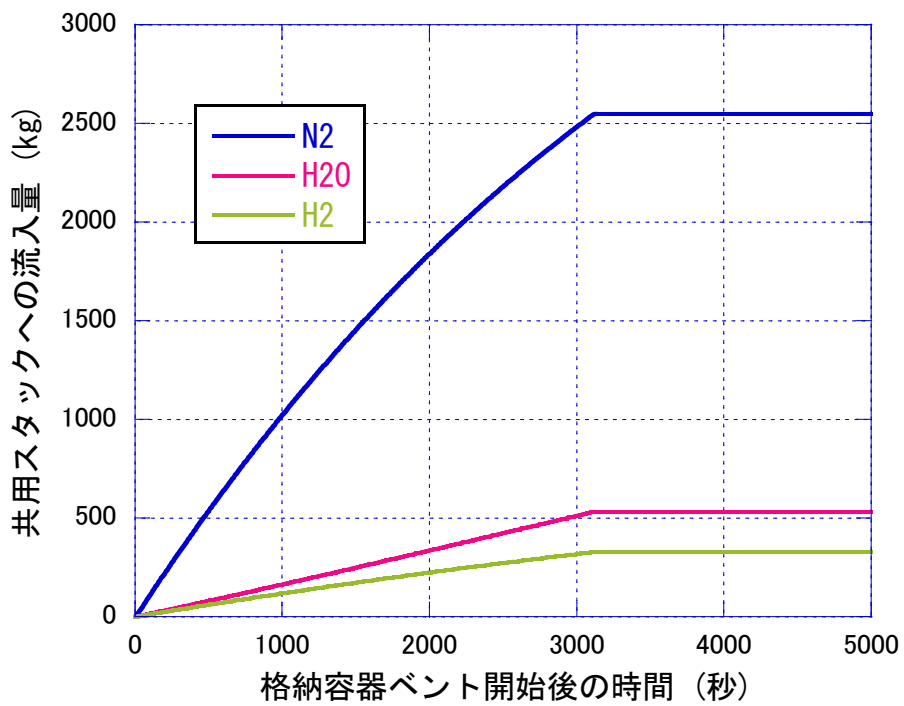


図 3.2.3-4 共用スタックへの流れの流量積算値 (感度ケース)

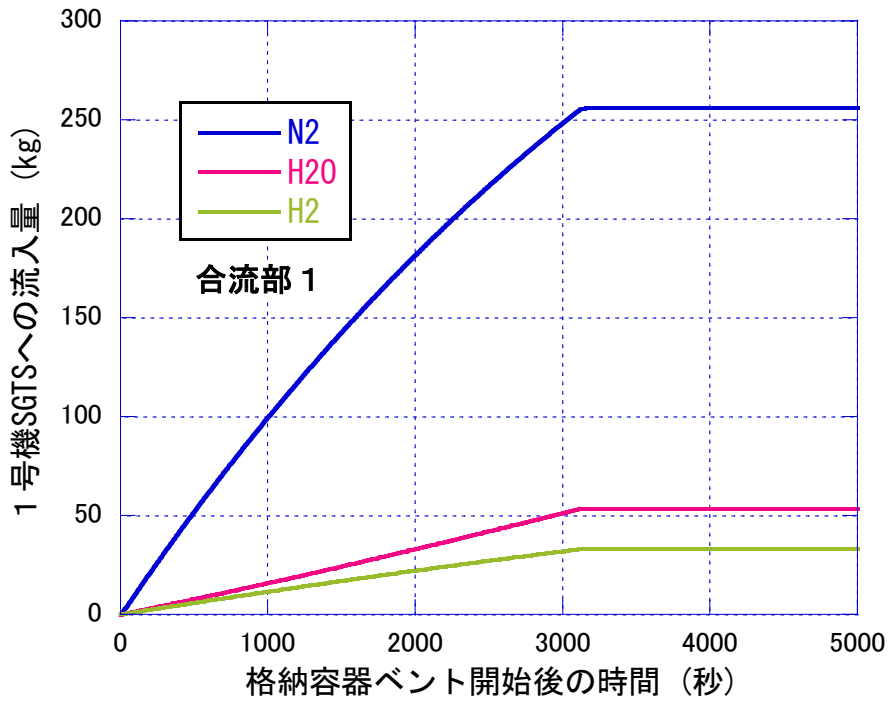


図 3.2.3-5 合流部 1 から 1号機送風機に向かう流れの流量積算値 (感度ケース)

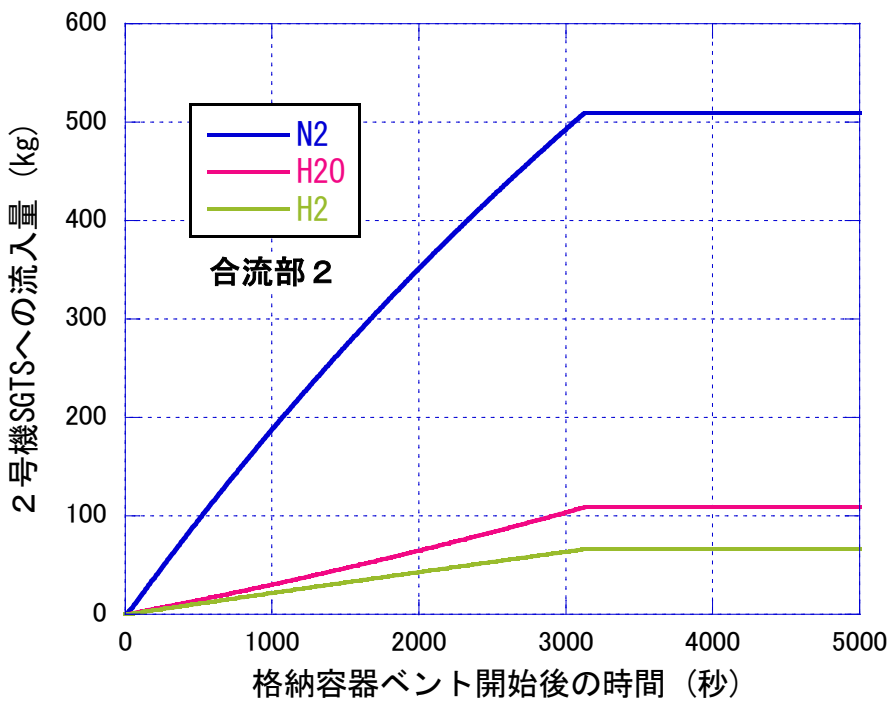


図 3.2.3-6 合流部 2 から 2号機送風機に向かう流れの流量積算値 (感度ケース)

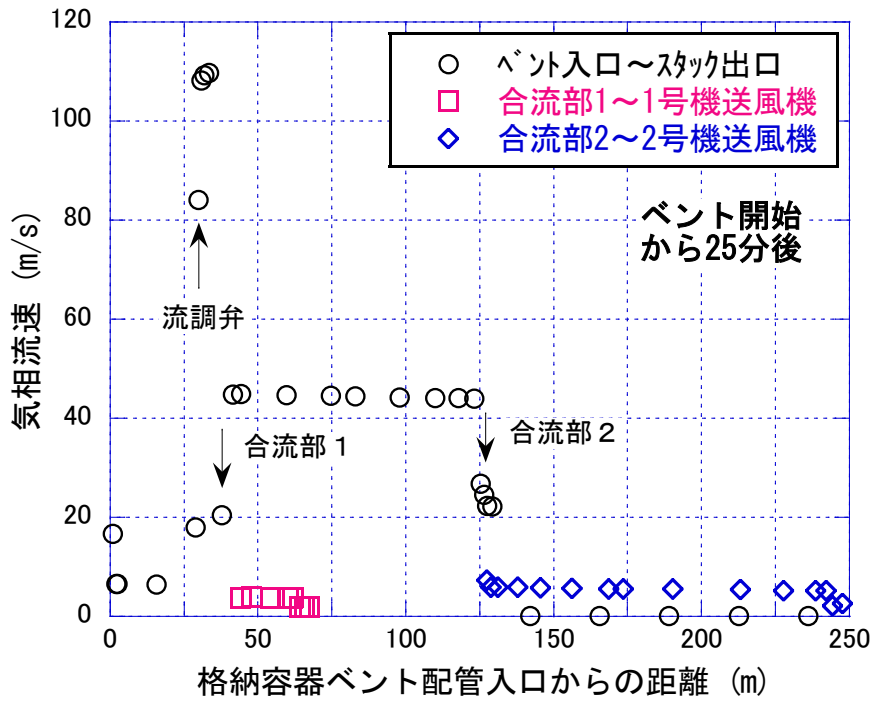


図 3.2.3-7 ベント開始から 25 分後の気相流速分布 (感度ケース)

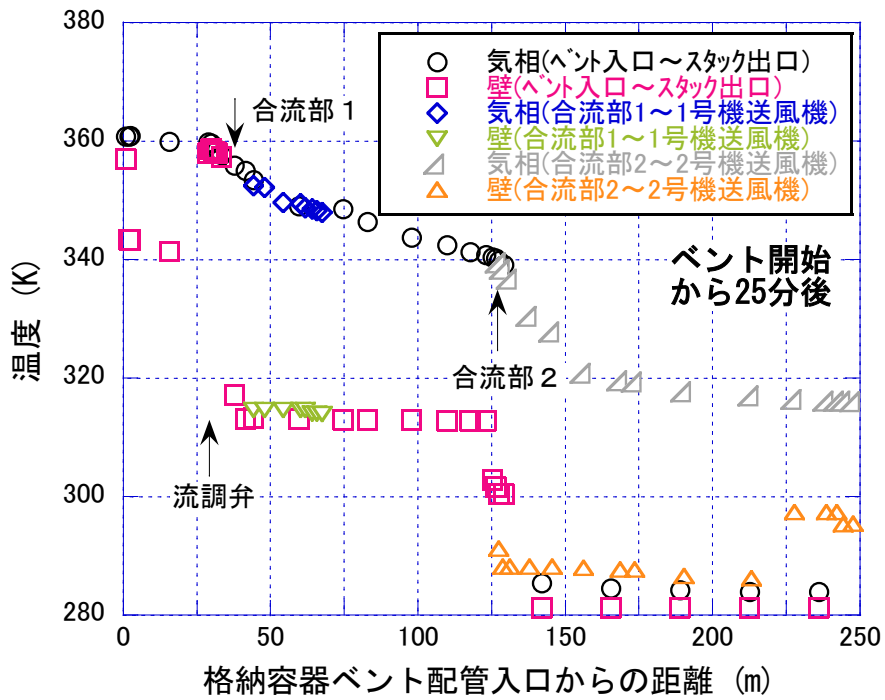


図 3.2.3-8 ベント開始から 25 分後の温度分布 (感度ケース)

参考文献

- [3.2-1] USNRC Nuclear Safety Analysis Division, “RELAP5/MOD3.3 code manual”, Tech. Rep. NUREG/CR-5535/Rev 1, Information Systems Laboratories, Inc., 2001.
- [3.2-2] 石川 淳, 森山清史, “BWR/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, 2011.
- [3.2-3] 原子力規制委員会, “1, 2号機 SGTS 配管内汚染の分析”, 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27回会合資料2-3, 2021.



## 4. 原子炉建屋内等の汚染データの分析

### 4.1 目的

原子炉建屋内、非常用ガス処理系 (SGTS) 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や解析的な検討に基づき放射性核種等の移行挙動を推定する。本年度は 3.2 項の配管内熱流動解析結果より得られた熱流動条件を境界条件として、放射性物質移行挙動解析コード ART (Analysis of Radionuclide Transport) を用いてセシウム化学種、テルル、モリブデンの格納容器ベント系配管内における移行挙動に着目した予備解析を行う。

### 4.2 ART 概要

ART コードは、シビアアクシデント時等における施設内の気体状及び/またはエアロゾル状の核分裂生成物 (FP : Fission Products と総称する) 移行挙動解析コードであり、THALES2 コードには、FP 移行挙動解析モジュールとして組み込まれている。種々の施設を模擬できるように汎用性のある区画モデルを採用している。各区画は気相部及び液相部から成り、各相中では FP の均一分布を仮定している。ART では、FP の特性 (エアロゾルの濃度や粒径分布等) 及びその移行挙動を支配する施設内の熱水力学的条件 (圧力、温度、水蒸気・空気等の流量) を解析の境界条件として与える必要がある。本章での解析では、3.2 項に示す RELAP5 での解析結果を参照し解析条件とした。ART は、これらの情報を基に次の主要な物理現象を解析する。

- ・ FP の輸送
- ・ 気体状 FP の沈着
- ・ エアロゾルの沈着・成長
- ・ 工学的安全施設 (フィルター等) による除去

### 4.3 ART 解析でのエアロゾルの移行及び沈着に係る主要なメカニズム

本章で示す ART による解析では、エアロゾル状態の FP 移行挙動のみを対象としている。エアロゾルの移行、沈着のメカニズムの概要を次に示す。ART では、配管曲がり部等における慣性沈着は取り扱えない。

#### (1) 凝集

エアロゾルの凝集は、エアロゾル同士が集まり、より大きなエアロゾルへと成長する挙動である。凝集のメカニズムとしては、ブラウン運動による凝集、重力沈降の速度差による凝集、乱流場による凝集がある。

#### (2) 重力沈降

エアロゾルが重力により床面等に沈降するメカニズムである。沈降速度は、気体の中を落下する物体の落下速度として求められる。

#### (3) 拡散

ブラウン運動するエアロゾルは、壁に衝突し沈着するため壁近傍のエアロゾル濃度が低下する。そのため、壁近傍で濃度勾配が生じ、エアロゾルは濃度の低い壁方向に向かって連

続的に移動し壁面に沈着する。気相部に流れが殆どない場合は、エアロゾルは、高濃度領域から低濃度領域に向かってブラウン拡散により移動する。沈着速度は、拡散物質の流束が濃度勾配に比例するという Fick の法則に基づき、拡散境界層厚さとエアロゾル粒子の拡散係数を用いて計算する。気相部に層流の流れがある場合は、H.Schlichting の実験式を用いて計算される。実験式には Reynolds 数、Schmidt 数が含まれる。

#### (4) 拡散泳動

混合気体中にある粒子には、気体成分の濃度勾配により拡散泳動が生じる。拡散泳動による壁への沈着速度は、濃度勾配による非凝縮性気体分子の反跳と壁面で水蒸気の凝縮が生じる際に凝縮面に向かって生じる空気力学的気流による粒子への作用を考慮したモデルを用いて計算する。

#### (5) 熱泳動


壁面と雰囲気に温度勾配がある場合、エアロゾルは熱泳動によって移行し壁面に沈着する。エアロゾルの移行速度は、Knudsen 数が 0.2 以上では、雰囲気とエアロゾルの温度は等しいと見なして壁近傍での気体の温度勾配に比例するとした式を、0.2 以下では、エアロゾル表面近傍の温度勾配を考慮した式を用いる計算する。

#### (6) 対流拡散

層流状態では、構造物表面での速度勾配及び濃度勾配に伴う構造物表面への流れによって、小さなエアロゾルは構造物表面へ沈着する。乱流状態では、渦拡散及びブラウン拡散が低粘層付近で競合し、小さなエアロゾルはブラウン拡散で、大きなエアロゾルは慣性による渦拡散からの離脱によって構造物表面へ沈着する。

### 4.4 解析体系及び解析条件

#### (1) 解析体系

図 4.4-1 に RELAP5 の解析体系を基にした ART での解析体系を示す。ここでは、配管の流路及び配管の取回し（水平及び垂直）を基に、20 区画に集約した。図中  で区画を示す。また、図 4.4-2 に区画割の鳥観図を示す。ART では垂直配管内の蒸気流速による重力沈降への効果を補正するが、沈着速度が最も大きいものでも 10cm/s に対し蒸気流速が最下流の区画 10 でも約 30m/s と速いことから、重力沈降を過大評価することになると判断し、蒸気流による重力沈降の補正は行わない。

#### (2) 格納容器ベント系に流入する FP 特性

格納容器ベントが作動している時間（3068 秒）を解析対象とし、格納容器ベント系に流入する FP の特性については、THALES2 の解析結果に基づいて入力条件を設定した。解析対象化学種は、格納容器ベント系への流入量が多い CsI、CsOH、Te 及び Mo とした。これらの化学種のエアロゾル内における質量比率は、解析時間帯を通じてほぼ一定で、次の通りである。また、図 4.4-3 エアロゾル放出量 [kg/s] の経時変化を示す。図 4.4-4 には流入エアロゾル粒径分布を示す。

CsI : CsOH : Te : Mo = 0.094 : 0.723 : 0.105 : 0.078

THALES2 解析においては、S/C から格納容器ベント系配管へ流出する Cs-137 の総量はおよそ 30TBq であった。事故時のソースタームを評価するために、THALES2 のようなシビアアクシデント総合解析コードにより事象進展に沿って環境に放出されるソースタームを評価するアプローチのほかに、環境中に観測された FP 量から気象条件に基づき事故時に放出された量を評価するアプローチもある。近年の推定[4-1]によれば、1号機の格納容器ベント中に排気筒から放出された Cs-137 は 72TBq であったと評価されている。また、図 4.4-5 に示すように 1, 2号機の SGTS 配管を含む格納容器ベント系配管には線量率の計測結果からおおよそ 50TBq の Cs-137 があると見積もられている。以上から 1号機の格納容器ベント時には、100~150TBq 程度の Cs-137 が S/C から格納容器ベント系配管に流出されたと推定される。THALES2 の結果は過小評価である。配管内に流入する FP が増えることで、エアロゾルの凝集や沈着への影響が懸念されることから、THALES2 結果を 5 倍としたケース(感度解析ケース)についても解析を行い、その影響を確認することにした。

#### 4.5 解析結果

THALES2 から得た格納容器ベント系に流入する FP 特性そのものを用いるケースを基本解析ケースとし、解析終了時点の各配管区画内における気相、床、壁のエアロゾル沈着量及び配管の単位長さ当りのエアロゾル量を、それぞれ図 4.4-6 及び図 4.4-7 に示す。また、感度解析ケースに関する同様のプロットを図 4.4-8 及び図 4.4-9 に示す。感度解析ケースは基本解析ケースの 5 倍となっており、エアロゾル濃度の上昇による影響がないことが確認できた。図 4.4-10 及び図 4.4-11 には基本解析ケースにおける各区画内沈着メカニズムの内訳及び沈着メカニズムごとの沈着速度を示す。区画 17、18 及び 19 はそれぞれ終端の区画である。沈着メカニズムを見ると 1号機格納容器ベント配管から 1号機 SGTS 配管（区画 2, 3 及び区画 5~10）では対流拡散による沈着が支配的であった。また、1号機 SGTS 配管と 2号機 SGTS 配管の合流点より 2号機建屋側（区画 12~16）に関しては、熱泳動が支配的であった。

本解析から得られた、対象配管系における FP 総量に対する沈着エアロゾル量の割合を図 4.4-12 に整理した。FP 総量のうち、配管部には 63.9%が停留し、排気筒からの大気への放出は 34.5%となった。配管部では 36.2%が、サプレッションチェンバーから排気筒に至る 1号機ベントラインに沈着する結果となった。また、1号機建屋内 SGTS 配管への逆流は 20.5%、2号機ベント配管及び SGTS への逆流は 7.2%であった。これらの結果には、図 4.4-5 と整合しない点がある。区画の考え方やモデルの妥当性に係わる検討を含めて、解析を継続する予定である。

#### 参考文献

- [4-1] H.Terada, et al, “Refinement of source term and atmospheric dispersion simulations of radionuclides during the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident”, Journal of Environmental Radioactivity, 213, 106104, 2020

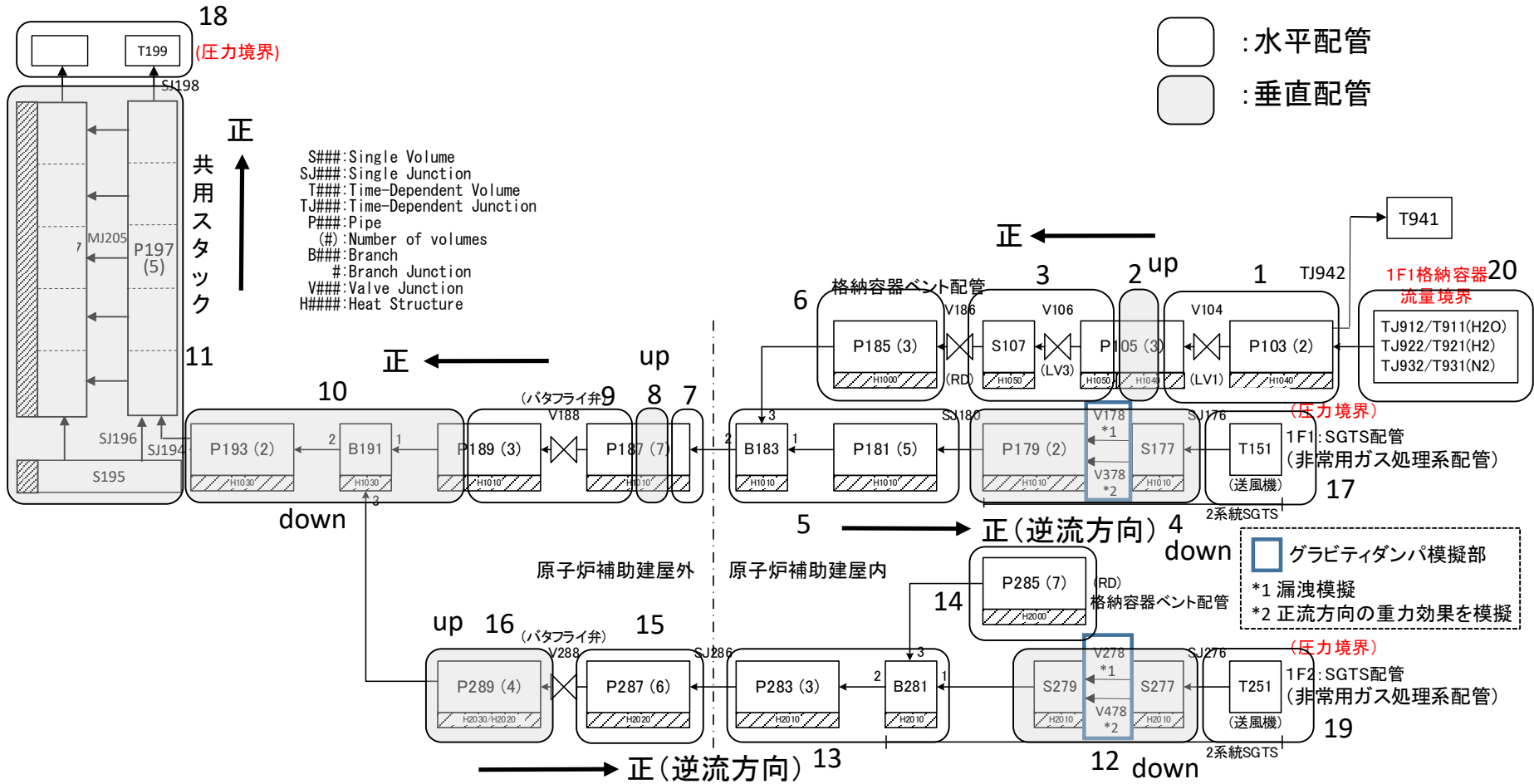


図 4.4-1 解析対象の区画分け

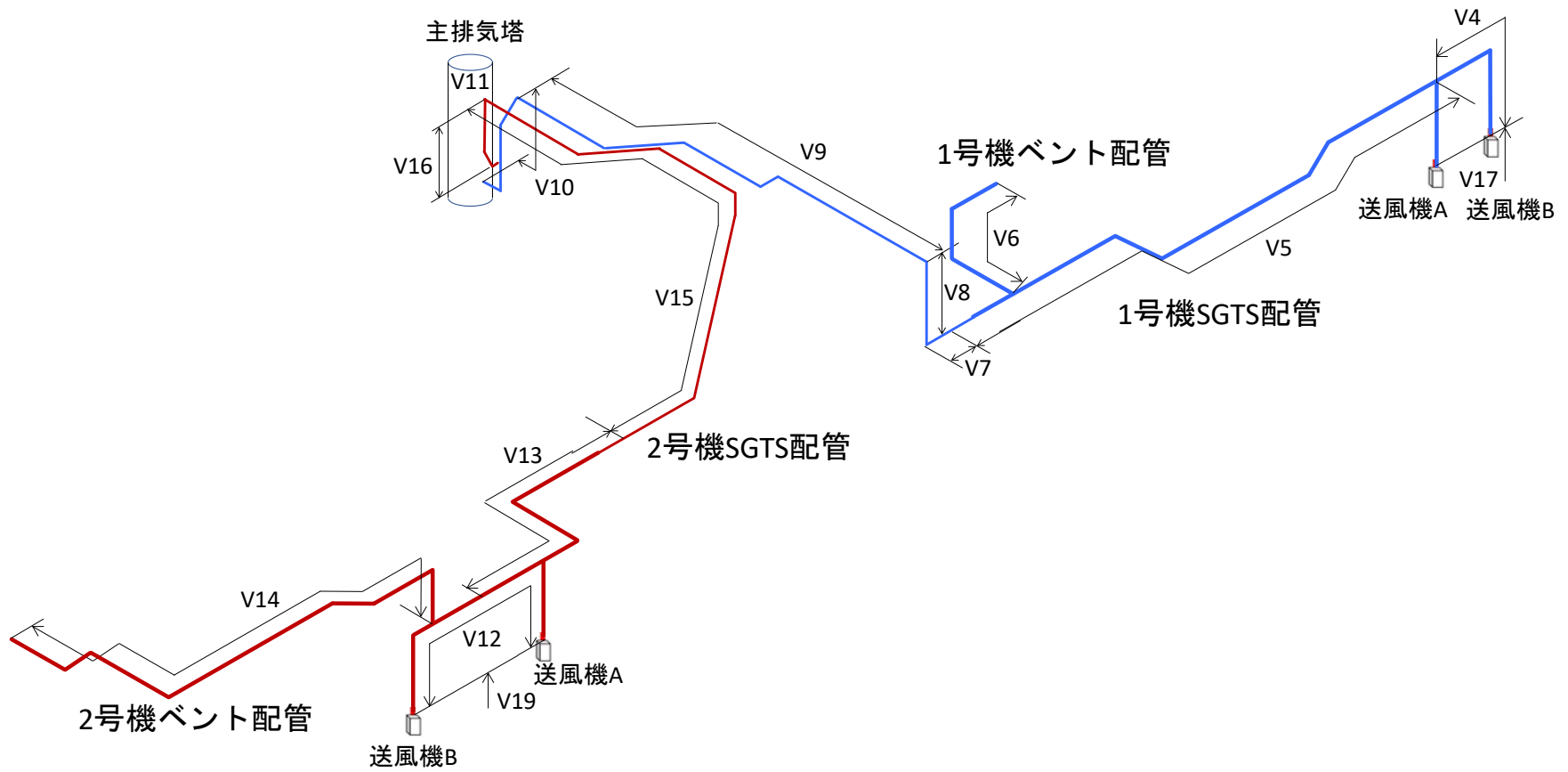


図 4.4-2 1号機及び2号機のベント配管及びSGTS配管分割の鳥観図

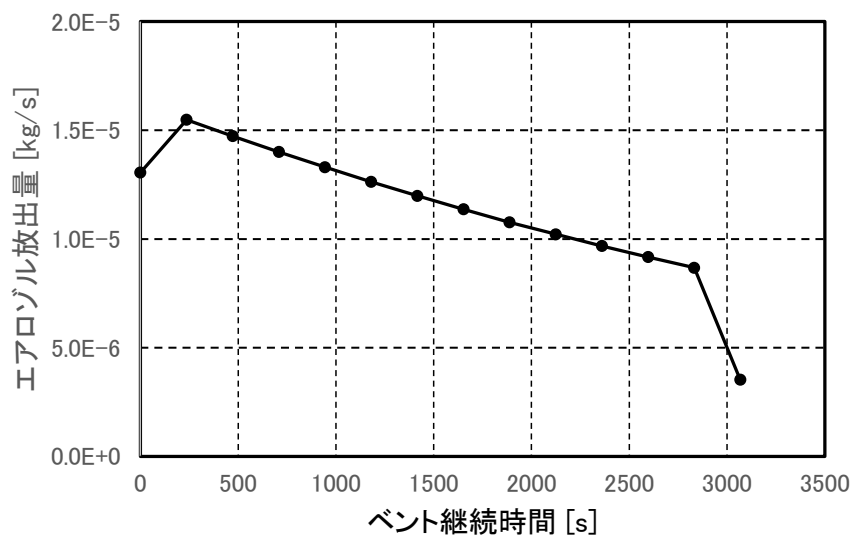


図 4.4-3 エアロゾル放出量

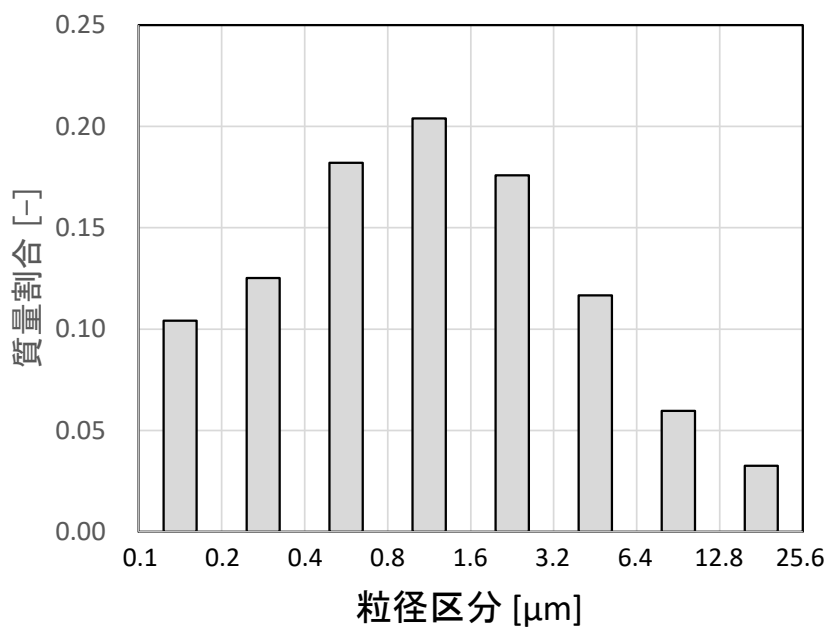


図 4.4-4 流入エアロゾル粒径分布

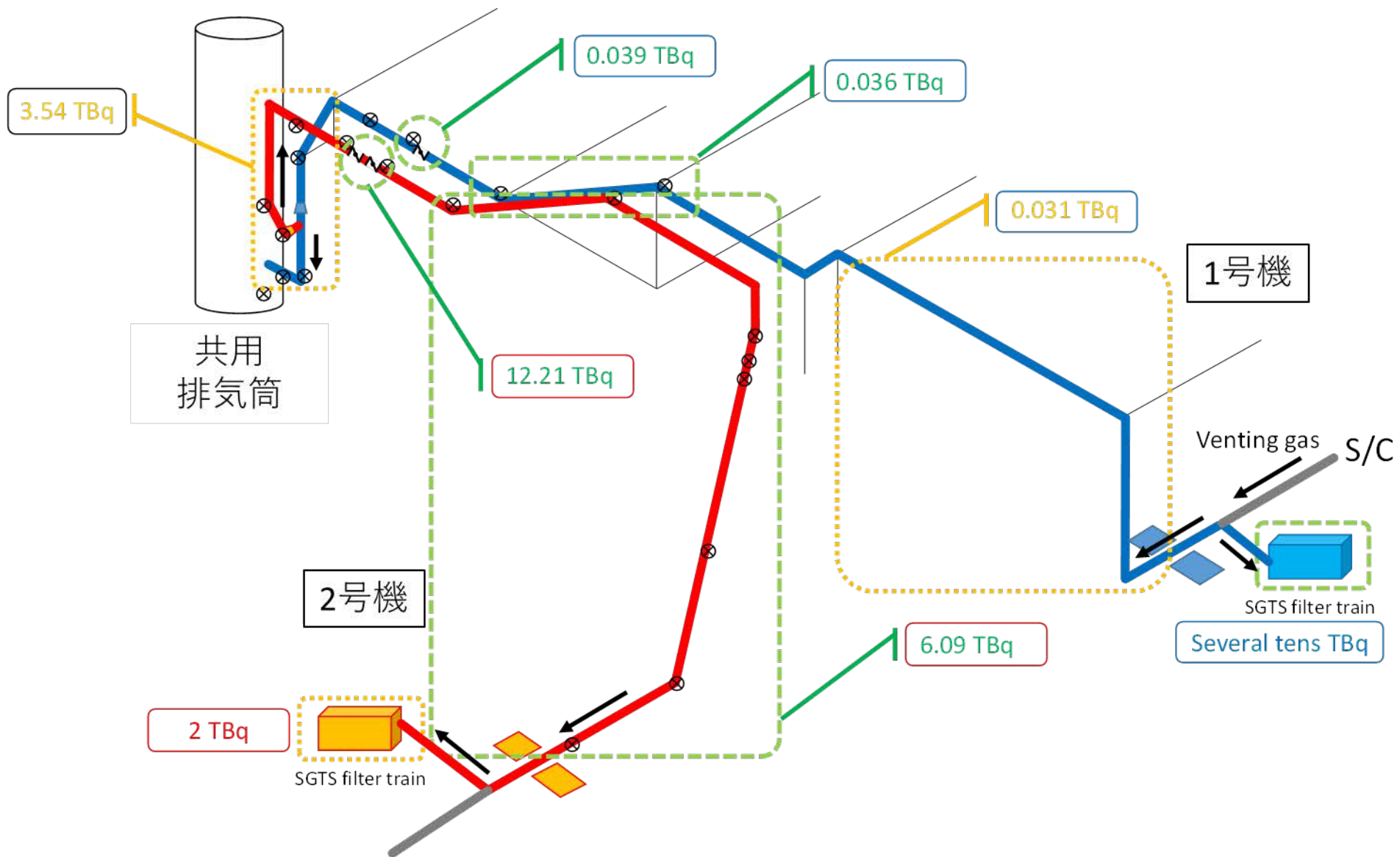


図 4.4-5 1号機及び2号機のベント配管及びSGTS配管汚染推定量

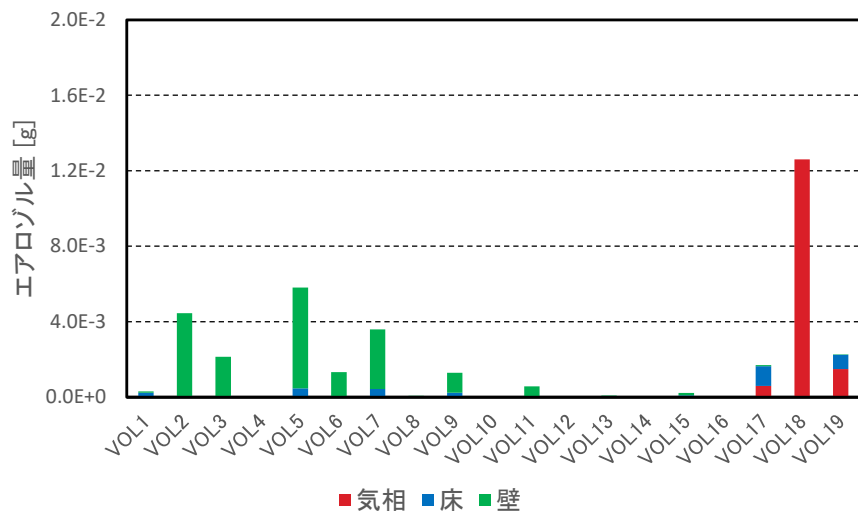


図 4.4-6 各区画内の部位別エアロゾル量（基本解析ケース）

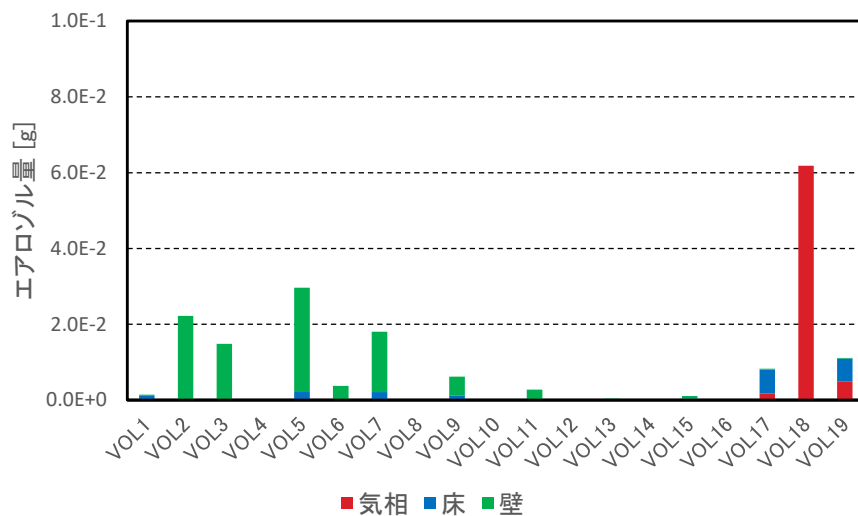


図 4.4-8 各区画内の部位別エアロゾル量（感度解析ケース）

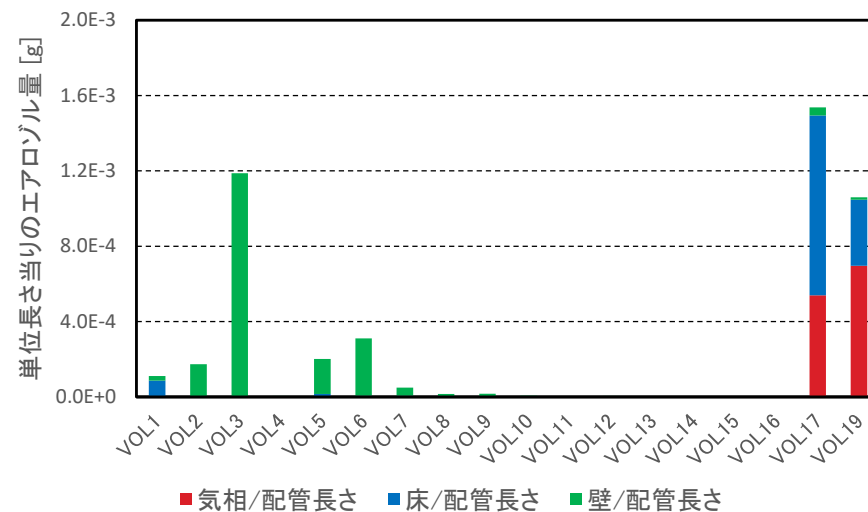


図 4.4-7 各区画内の部位別単位長さ当りエアロゾル量（基本解析ケース）

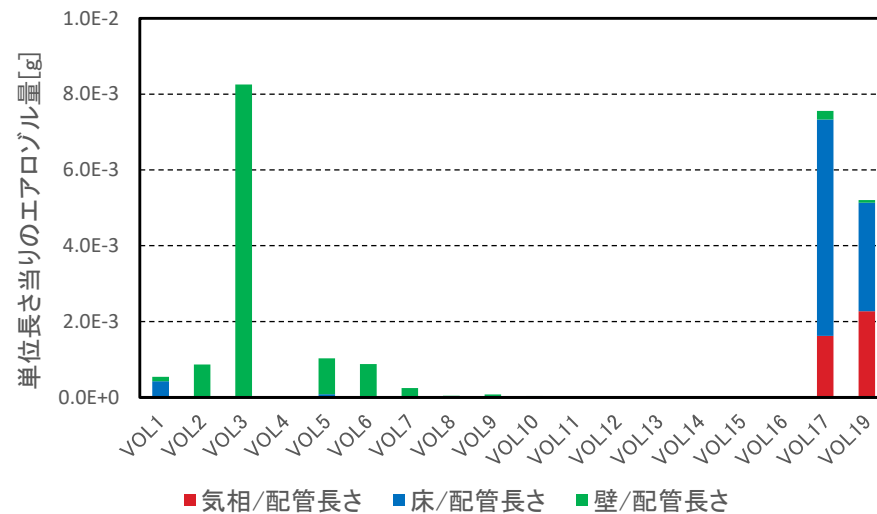


図 4.4-9 各区画内の部位別単位長さ当りエアロゾル量（感度解析ケース）



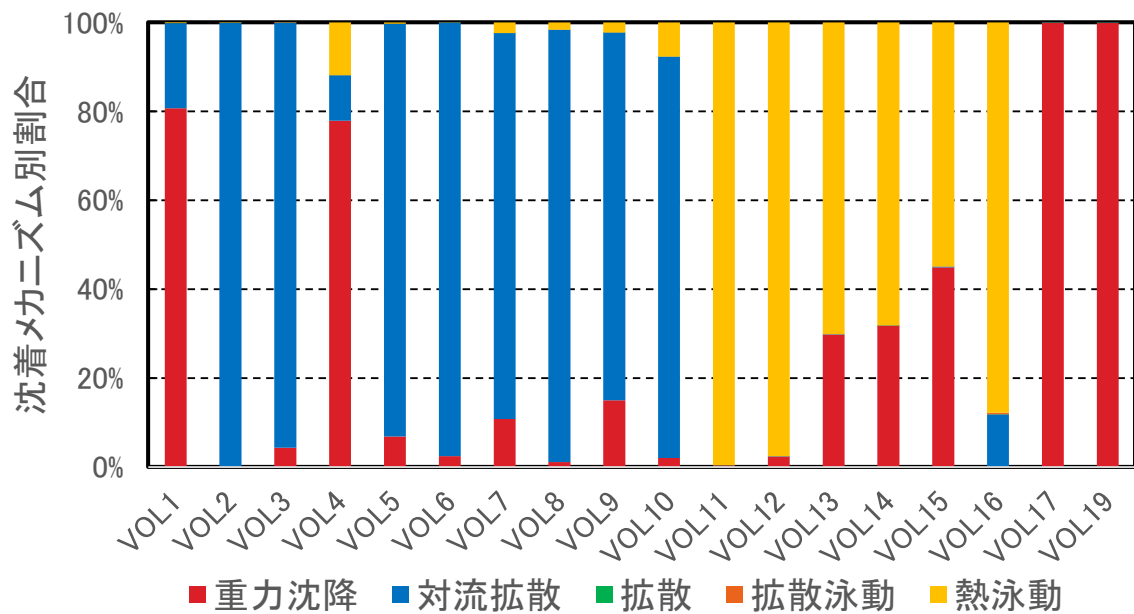


図 4.4-10 各区画での沈着メカニズム別割合

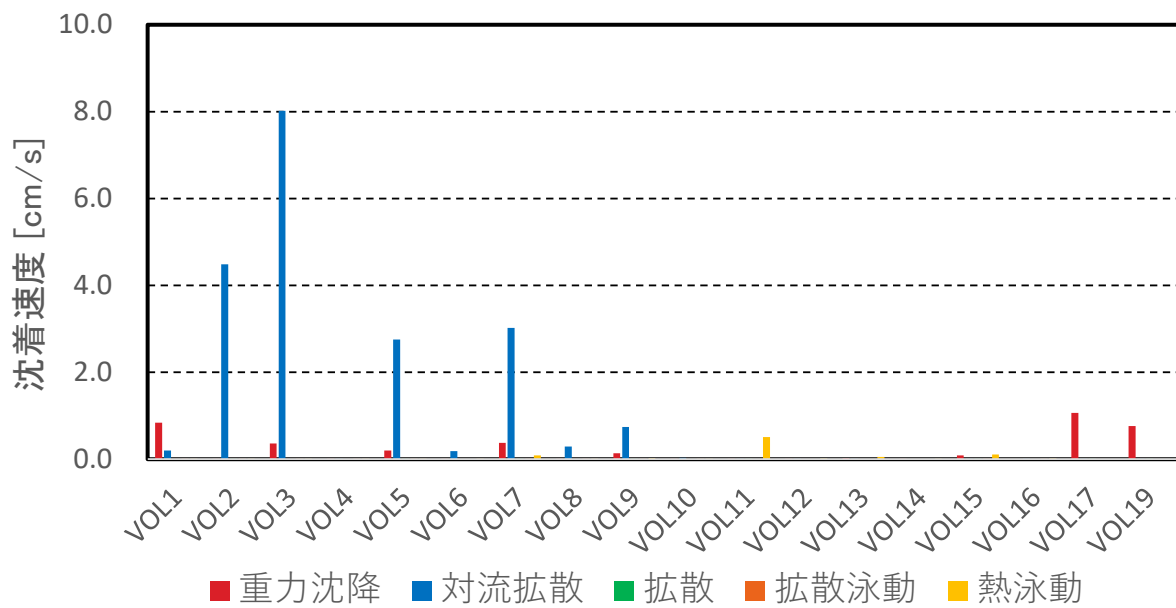


図 4.4-11 各区画での沈着メカニズム別の沈着速度

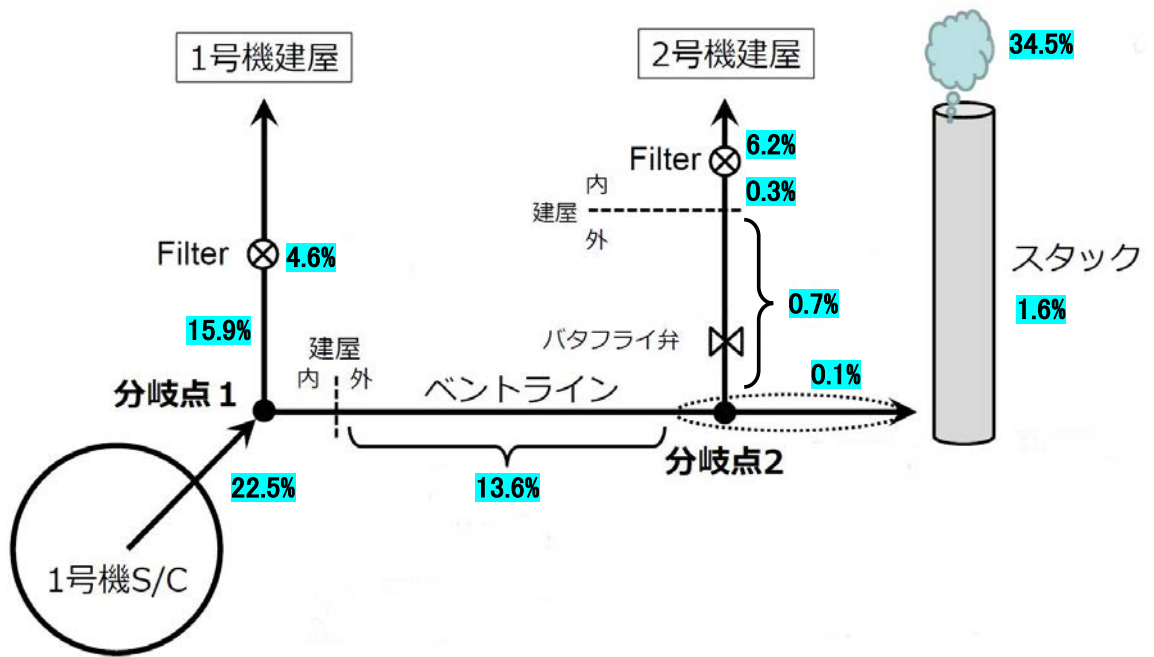


図 4.4-12 ベント総量に対するベント配管及び SGTS 配管の部位別沈着エアロゾル割合

## 5. 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試料の分析手法の整備並びに重大事故解析を実施した。さらに、整理した情報及び取得した知見をデータベースにとりまとめた。加えて、1F 事故分析検討会で求められた 1F 試料の分析、配管内流動解析を実施した。

主な成果は以下のとおりである。

### (1) 1F プラント内核種移行に係る実施項目

#### ①1F 事故で放出された放射性核種分析法の開発

1F プラント内で採取された試料中の核種分析のため、以下の手法及び技術的知見を整備した。

スマヤろ紙試料に含まれる I の分析法として、ガス追気法とアルカリ溶融法を検討したが、現時点では回収率が不十分であり、実用化に向けて担体量を増やす等の検討が必要であることが分かった。

Sr や Tc 等の分析においては灰化・酸溶解法と、ドレン水の分析で用いたクロマトグラフィーにより問題なく分析できることを確認し、実試料分析に適用した (3.1.1.3(4)参照)。

B 線スペクトロメータによる  $^{90}\text{Sr}$  測定手法の検討においては、適切に ROI をかけることで 10 倍量の  $^{137}\text{Cs}$  共存下でも定量可能であることを示した。ろ紙試料への適用のためには、より高い濃度比や他の共存元素の影響などについて更なる検討が必要である。

$^{99}\text{Tc}$  の定量に ICP-QQQ を使用する場合、Mo の分子イオンによる影響は小さいが、Ru の同重体の影響は無視できないことが確認された。そこで、リアクションガスとして  $\text{O}_2$  ガスを使用して、生成する酸化物 ( $\text{TcO}_2^+$ 、 $\text{RuO}^+$ ) の違いを用いた分離をすることにより、測定時にも分離が可能となった。実試料中の Tc と Ru の濃度条件によって、液体シンチレーションカウンタとの使い分けできる可能性がある。

イメージングプレートを用いたスマヤろ紙内の放射能分布確認のため、1F 試料を対象とした分析条件の最適化を行った。放射エネルギーが既知のろ紙試料を用いた分析を実施するとともに、分析結果から最適な積算放射エネルギーを算出し、これに基づきスマヤ試料の放射エネルギーに応じた適切な露光時間を決定し、実試料分析に適用した (3.1.1.3(3)参照)。

#### ②重大事故解析

更新された THALES2/KICHE を用いて、1 号機から 3 号機の事故進展の再解析を実施した。1 号機については、関連パラメータや事故進展を見直すことで合理的な結果を得るに至った。これに伴い SGTS 配管内熱流動解析 (3.2 項) のための境界条件として用いる解析結果も改訂した。また、本年度実施した配管内 FP 移行挙動解析に必要な情報についても本解析結果を用いた。3 号機については、原子炉建屋内 FP 挙動に係わる格納容器圧力履歴など再現できていないため、漏洩に関する位置や発生タイミング、また、代替注水量などのパラメータサーベイが必要である。2 号機については、THALES2/KICHE 改良版の利用に加えて格納容器調査等より得られた様々な知見を反映し、さらに、D/W と S/C の漏洩を想定した

上で原子炉冷却系から D/W への漏洩箇所に関する感度解析を行い、セシウムの化学種に着目して原子炉建屋の FP 沈着を調査した。以下のその結果の概要を示す。

- D/W ヘッドフランジ以外の D/W 漏洩がない場合（基本ケース）、トーラス室床（水相を含む）に  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  や  $\text{CsBO}_2$  と同程度の  $\text{CsOH}$  が沈着した。
- S/C 漏洩が 100 時間程度の事故進展内に生じない場合(ケース 2)、基本ケースと大きく異なる点は原子炉建屋上層階床面で  $\text{CsBO}_2$  が  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  より多く沈着したことである。
- 原子炉冷却系における燃料からの FP 放出時の気相温度が高い、つまり TIP 破損が生じた場合、 $\text{CsOH}$  の生成が促されることから、基本ケースにおける  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  と  $\text{CsOH}$  との沈着比が 10:1 程度より  $\text{CsOH}$  が占める割合が増える。ただしトーラス室に関しては、原子炉冷却系が TIP 破損時ほど高温にならない場合は、RPV 内に一旦沈着した  $\text{CsOH}$  が RPV 損傷時に再浮遊により D/W に移行した。このため基本ケースの方が  $\text{CsOH}$  はトーラス室及び 1 階に多く移行した。

### ③データベース作成

1F 事故分析に係る OECD/NEA プロジェクト（ARC-F プロジェクト）に提供する事を目的とし、現時点で把握可能な核種の移行挙動について、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試料分析手法の整備（①）並びに重大事故解析（②）で取得した情報に加え、東京電力、原子力機構、IRID 等によって公開された、1F プラント内の汚染水、建屋内線量、がれき、土壌等の分析結果、さらに OECD/NEA の 1F 関連プロジェクト（PreADES 等）で報告された情報を収集し、核種の濃度や分布に関するデータベースを作成した。

収集した情報は、「情報ソースデータベース」としてとりまとめ、エクセルファイルの一覧表を作成した。一覧表の作成にあたり、Clarix 社のデータベースソフト

「FileMaker」を使用し、効率的なデータの登録及び整理を行った。また、情報ソースデータベースから、サンプルの採取位置が明確で、分析データが含まれる情報を抽出し、英語版の「サンプルデータベース」を作成した。これらのデータベースについて、ARC-F プロジェクト会合へ情報提供した。

### ④ OECD/NEA プロジェクトの運営

ARC-F プロジェクトを運営し、会合を開催した（令和 2 年 12 月、Web 会議）。また、同プロジェクトのタスク 1 「1F 事故シナリオ及び関連するプラント内 FP 移行やソースタームの更なる検討」について、主導機関による活動・報告に係る調整を行うとともに、配管内流動解析の結果等についてプロジェクト会合で報告した。タスク 2 「格納容器及び原子炉建屋内調査等から得られた情報やデータの収集・管理」に関しては、上記①及び③の進捗をプロジェクト会合で報告した。

### ⑤関連情報の収集

ARC-F プロジェクト会合に出席し、関連情報の収集を行った。また、日本原子力学会秋の大会に参加し、各種サンプル分析状況等の情報を収集した。

## (2)1F 事故分析検討会に係る実施項目

### ① 1F 試料分析

#### ・スミヤ試料分析

1F-1 号機から 3 号機の炉心損傷進展時における雰囲気条件等の違いを推定することを目的として、建屋内の移行経路を推定するための情報や SGTS フィルター上流側と下流側の比較等の知見を蓄積するために、2 号機原子炉建屋、1/2 号機 SGTS 配管内部、3 号機 SGTS 室フィルターから採取したスミヤ試料の分析試験を実施した。溶解分析前のガンマ線核種分析において、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{60}\text{Co}$  の核種が確認され、イメージングプレート分析により放射能分布を把握し、一部の試料について酸分解による溶解試験を実施した。溶解液のガンマ線核種分析、 $\beta$ 線スペクトロメータや ICP-MS 分析により、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{99}\text{Tc}$  及び Mo 同位体、U 同位体に関する定量データを取得した。また、一部のスミヤ試料及び溶解残渣について SEM-EDS 分析を実施し、構造材、燃料、塗料、海水由来と推定される元素データを取得した。

#### ・有機材料の熱分解生成気体の分析

有機材料の熱分解生成気体の分析では、TG-DTA-MS 法及び熱分解 GC-MS 法により、格納容器内で使用されている 4 種類の材料（難燃性エチレンプロピレンゴム、特殊クロロプロピレンゴム、難燃性特殊耐熱ビニル、ウレタン）について熱分解生成ガスの分析を行った結果、水や二酸化炭素といった無機化合物や材料に起因するとみられる有機化合物が推定された。

### ②配管内流動解析

1 号機及び 2 号機の格納容器ベント及び SGTS ラインの汚染要因の検討に資するため、格納容器ベント実施時におけるベント気体の流動状況を RELAP5/MOD3.3 コードにより評価した。解析の基本ケースでは、逆流時の差圧と流量に係る設計条件により定めた 1 号機側及び 2 号機側グラビティダンパの漏洩面積を用いた。一方、感度解析では、SGTS 配管やフィルターの汚染分布に関する調査結果を再現するため、グラビティダンパの漏洩面積をパラメータとした。これらの解析を通じて、グラビティダンパにおいて設計条件以上に過大な漏洩が生じたことが、SGTS 配管やフィルターの汚染状況に大きな影響を与えていることがわかった。また、グラビティダンパにおいて過大な漏洩が生じない場合は、SGTS 配管やフィルターの汚染分布に関する調査結果と整合しないことがわかった。

### (3)原子炉建屋内等の汚染データの分析

1 号機格納容器ベント系配管及び 2 号機 SGTS 配管等内部の FP 移行挙動を推定するため、2.2 項及び 3.2 項の結果を境界条件として、ART コードによるセシウム化学種等の移行挙動解析を行った。解析により格納容器ベント系配管内 FP 沈着量を評価し、解析区画ごとの支配的な沈着メカニズムを調査した。解析結果と実測データを比較すると整合しない点がある。今後区画の考え方やモデルの妥当性に係る検討を含めて、解析を継続する予定である。