

(別添 4)

2 号機原子炉建屋スミヤ試料等の分析

日本原子力研究開発機構 安全研究・防災支援部門
規制・国際情報分析室
福島第一原子力発電所事故分析チーム
飯田 芳久、島田 亜佐子、垣内 一雄

1. スミヤ試料の分析

原子力規制庁による 2 号機原子炉建屋内調査¹並びに東京電力による 3 号機 SGTS 室調査²及び 1/2 号機排気筒内部調査³において、2 号機原子炉建屋各階の壁、床、階段裏のスミヤ試料 (14 試料)、3 号機 SGTS フィルタトレイン内のフィルタ表面のスミヤ試料 (23 試料) 及び 1/2 号機 SGTS 配管内部のスミヤ試料 (1 試料) が採取されている。これらは、原子炉建屋内及び SGTS 配管系における放射性物質の移行経路、組成及び化学形の推定に有用な情報を有していると考えられることから、スミヤ試料の分析を実施した。

2. 試料分析の結果

原子炉建屋の壁や床に沈着した放射性物質の量は、各号機の格納容器から放出され、原子炉建屋に残存する量の大小関係を把握する際の参考情報になり得る。ここでは、表 1 及び図 1 に示す 2 号機原子炉建屋の局所領域から採取したスミヤ試料の分析結果を中心に述べる。1 号機及び 3 号機原子炉建屋のスミヤ試料が得られた後には、それらの分析を行い、3 つの号機について比較・検討を行う予定である。2 号機原子炉建屋のスミヤ試料に加えて、表 2、表 3、図 2 及び図 3 に示す 3 号機 SGTS フィルタトレインのフィルタ表面スミヤ試料及び 1/2 号機共用 SGTS 配管内部スミヤ試料の分析結果についても報告する。なお、これら試料の分析は図 4 に示すフローで実施した。

2 号機原子炉建屋スミヤ試料の写真及びイメージングプレート像を図 5 に例示する。各スミヤ試料に対して実施したイメージングプレートによる放射能分布が、目視で観察できる汚れの分布と概ね一致することを確認した。全てのスミヤ試料を対象としたガンマ線核種分析において、Cs-134、Cs-137、Sb-125、Co-60 が検出された。ガンマ線核種分析結果の一例を図 6 に、ガンマ線核種分析の結果に基づいた Cs-134、Sb-125 及び Co-60 のモル量と Cs-137 のモル量の相関を図 7 に示す。この

¹ 東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会 第 14 回 資料 3

² 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 16 回 資料 4-1

³ 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 12 回 資料 6-1

図には、以前実施した 1/2 号機共用スタック基部ドレンサンプルピット溜まり水の分析結果⁴（溜まり水試料をろ紙に滴下して分析）を加えている。2 号機のベントは失敗したと言われていることから、本試料及び上述の 1/2 号機共用 SGTS 配管内部スミヤ試料には、1 号機から放出された核種のみが存在していると推定される。

いずれの試料においても、Cs-134 と Cs-137 のモル比が ORIGEN2 コード⁵により計算した初期インベントリのモル比とほぼ一致することを確認した（図 7）。Sb-125 についても、ばらつきはあるものの、1 号機（1/2 号機共用 SGTS 配管内部及び 1/2 号機共用スタック基部ドレンサンプルピット溜まり水）、2 号機（原子炉建屋）及び 3 号機（SGTS フィルタトレイン）の全てにおいて、Cs-137 とのモル比が両核種の初期インベントリのモル比と同程度であった。この結果は、Sb-125 の初期インベントリに対する放出割合が事故シナリオに強く依存せず、Cs-137 のそれと同程度（モル量に換算すると 1/100 程度）であることを示唆している。

優先度の高い 2 号機原子炉建屋スミヤ 4 試料、3 号機 SGTS フィルタトレインのフィルタ表面スミヤ 2 試料及び 1/2 号機共用 SGTS 配管内部スミヤ試料、合計 7 試料について酸溶解を行い、ガンマ線分析、ベータ線分析、アルファ線分析及び質量分析を実施して Cs-134、Cs-137、Tc-99、Mo 同位体、Sr-90、U 同位体、Pu 同位体及び Am-241 を定量した。Tc-99、Mo 同位体及び Sr-90 のモル量と Cs-137 のモル量の相関を図 8 に示す。2 号機原子炉建屋スミヤ試料では、Tc-99 及び Mo 同位体のいずれも有意に検出された。一方、3 号機 SGTS フィルタトレインのフィルタ表面スミヤ試料及び 1/2 号機共用 SGTS 配管内部スミヤ試料では、Tc-99 及び Mo 同位体は分析装置の検出下限以下であった。さらに、1/2 号機共用スタック基部ドレンサンプルピット溜まり水試料において、Tc-99 は検出下限以下、Mo 同位体は検出されたものの Cs-137 とのモル比は 2 号機原子炉建屋スミヤ試料に比べて 3 桁程度低い値であった（図 8）。Tc-99 及び Mo 同位体は、酸化物の形態になると沸点が大幅に低下し、金属の形態と比べて燃料から放出され易くなる性質を有しているため、炉心損傷・溶融進展時の雰囲気条件を推定する上で指標的な核種になり得る。Tc-99 及び Mo 同位体のみを考えるならば、2 号機における炉心損傷・溶融の進展では、1 号機及び 3 号機に比べて、酸化性雰囲気（水蒸気リッチ）の影響が相対的に大きかった可能性が高い。一方、酸化性雰囲気よりも還元性雰囲気（水素リッチ）条件下において放出され易くなる Sr-90 も、Tc-99 及び Mo 同位体に比してモル量は小さいものの、2 号機原子炉建屋スミヤ試料の分析結果は、1 号機及び 3 号機由来の試料に比べ高い値を示しており（図 8）、上記で推定した雰囲気条件と整合しない。炉心損傷・溶融の進展過程で還元性雰囲気条件が形成された時間帯が生じた可能性もあるが、溶融炉心／コンクリート相互作用 (MCCI) による放出や Sr-90 が水に溶解した後に (Sr

⁴ 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 21 回 資料 4-1

⁵ JAEA-Data-Code-2012-018

は金属、酸化物ともに水に溶け易い)、液滴として水相から放出されるメカニズム等も考えられ、現時点ではこれらの結果を合理的に説明することは困難である。なお、2号機原子炉建屋スミヤ試料分析において、Mo 同位体のモル量が Cs-137 のモル量を大幅に上回っていることから、Cs は Mo と結合してモリブデン酸セシウム (Cs_2MoO_4) を形成している可能性が高く、余剰の Mo 同位体は、酸化モリブデン等の化学形で存在していると推定される。

2号機の分析結果におけるもう一つの特徴は、Cs-137 に対する Tc-99 及び Mo 同位体のモル比が、原子炉建屋 5 階 (5FF 及び 5FW) において 4 階 (4FF) 及び 1 階 (1FF) よりも高いことである (図 8) において、直線からの上下方向のずれで示される。2号機原子炉建屋 5 階における Mo 同位体と Cs-137 のモル比は、東京電力 HD が実施した同 5 階養生シートの分析結果⁶と同程度であった。この傾向は、アルファ線放出核種 (U 同位体、Pu 同位体及び Am-241) でも見られている (図 9)。2号機原子炉建屋のスミヤ試料については、いずれのアルファ線放出核種も初期インベントリに対する放出割合は非常に小さいものの、Tc-99 及び Mo 同位体と同様に、Cs-137 とのモル比が下層階に比べて 5 階において高いこと、U 同位体と Cs-137 の相関については東京電力 HD の分析結果⁶と概ね整合することが示された。また、U の存在形態として、5 階壁面スミヤ試料の SEM 分析において、粒径 $1\mu\text{m}$ 程度の U 含有微小粒子が観察されている (図 10)。このような 5 階と下層階の差異は、微小粒子の生成メカニズム、各階への放出が生じた時間帯や経路が影響していると推定できるが、今後、2 階及び 3 階から採取したスミヤ試料の分析を行い、さらに検討を進める予定である。

3号機 SGTS フィルタトレインのフィルタ表面スミヤ試料に関するガンマ線分析結果を、上流側 (原子炉建屋側) 面及び下流側 (スタック側) 面に分けて図 11 に示す。表面の平滑度がフィルタによって異なるため、スミヤによる拭き取り効率にばらつきがあると予想されるが、上流側面における Cs-134 及び Cs-137 の結果を見ると、最上流側フィルタ⑥と最下流側フィルタ①の値が高い傾向が示された。この傾向は、順流方向 (原子炉建屋側からスタック側) に加えて、格納容器ベント作動時に放射性物質を含むベント気体がフィルタトレインに逆流したことを示唆していると考えられる。

3. 試料分析の目的及び手法

号機間における核種組成に影響を及ぼす温度や雰囲気といった条件の違い (すなわち事故進展過程の違い) 等を推定することを目的とし、スミヤ試料の分析を実施した。特に、事故進展過程における原子炉容器内の雰囲気依存し得る Cs の化学

⁶ 東京電力 HD 「1～3号機原子炉格納容器内部調査関連サンプル等の分析結果」特定原子力施設監視・評価検討会 (第 62 回) 資料 3-2

形、MCCI 等による中・難揮発性の放射性物質の放出に着目し、Cs-134、Cs-137、Sr-90、Mo 同位体、Tc-99 及びアルファ線放出核種を主な分析対象核種とした。分析フローを図 4 に示す。

(1) スミヤ試料の分析手法

各スミヤ試料についてイメージングプレートによる汚染分布の確認及び Ge 半導体検出器を用いたガンマ線核種分析を実施した。また、核種組成について情報を得るため、SEM/EDS 装置を用いた観察及び元素分析を実施した。

(2) 酸分解後スミヤ試料の分析手法

Sr-90、Tc-99、Mo 同位体 (Mo-92, 94, 95, 96, 97, 98, 100)、U 同位体 (U-235, 236, 238)、Pu 同位体 (Pu-238, 239, 240) 及び Am-241 については、スミヤ試料の一部を酸分解して溶解した後、溶液分析を実施して定量した。核種移行経路の推定を検討する上で優先度の高い試料として、以下の 7 試料を選定した。

- ① U2RB-5FW : トップヘッドフランジからの核種放出を考慮
- ② U2RB-5FF : トップヘッドフランジからの核種放出を考慮
- ③ U2RB-1FF : 1 階格納容器貫通部等からの核種放出を考慮
- ④ U2RB-4FF : 上記試料との比較
- ⑤ U3SGF-B6-1 : SGTS フィルタトレインの最上流
- ⑥ U3SGF-B1-1 : SGTS フィルタトレインの最下流
- ⑦ U12SGS : SGTS 配管内部

これらのスミヤ試料を 450℃で 30 分間加熱して灰化した後、硝酸及び過酸化水素水により溶解し、溶液中の核種分析を行った。Sr-90 については、Cs を除去した試料溶液から Sr レジンを用いて分離・精製し、Sr-90 と Y-90 の放射平衡が成立した後、液体シンチレーションカウンタにより濃度を測定した。Tc-99 については、Cs を除去した試料溶液から TEVA レジンを用いて分離・精製後、液体シンチレーションカウンタで濃度を測定した。Mo 同位体については、試料溶液から TEVA レジンを用いて分離・精製後、誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) で濃度を測定した。なお、スミヤ試料には原子炉由来の Mo に加え、天然由来の Mo が含まれていることが想定されたため、U-235 の核分裂ではほとんど生成しない Mo-92 を天然起源であると考え、その測定濃度及び天然同位体比から算出した各 Mo 同位体濃度を測定値から差し引くことにより、原子炉由来の Mo 同位体濃度を求めた。U 同位体については、試料溶液から UTEVA レジンを用いて分離・精製後、ICP-MS で濃度を測定した。Pu 同位体及び Am-241 については、試料溶液から TRU レジンを用いて分離・精製後、アルファ線検出器で濃度を測定した。加えて、酸分解及び溶解プロセスにおける収

率を確認するため、Cs-137 濃度を Ge 半導体検出器を用いたガンマ線分析により測定した。

表 1 2号機原子炉建屋各階の壁、床、階段裏のスミヤ試料

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

表 2 3号機 SGTS フィルタトレイン内のフィルタ表面のスミヤ試料

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-B4-1	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

表 3 1/2号機 SGTS 配管内部のスミヤ試料 (1試料)

試料番号	採取場所
U12SGS	1/2号機SGTS配管内部

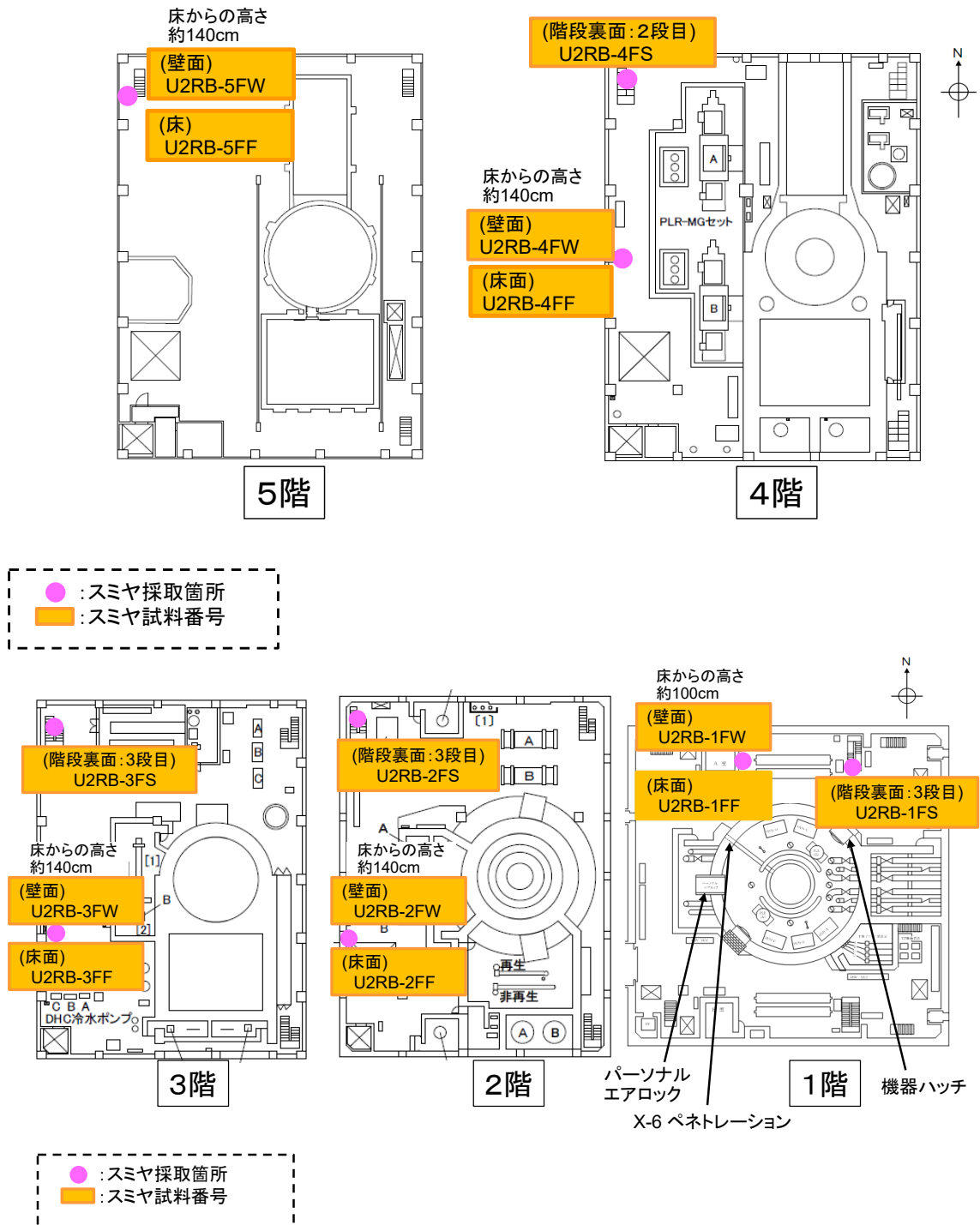


図1 2号機原子炉建屋内のスミヤ採取場所

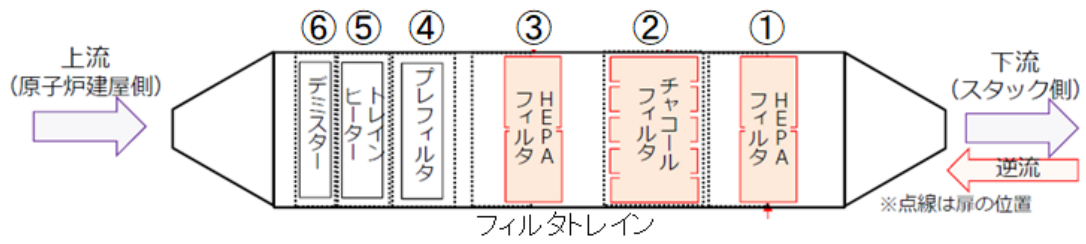


図2 3号機 SGTS フィルタトレイン内のスミヤ採取場所

6. SGTS配管内部調査について

TEPCO

(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（スミヤろ紙による）サンプリングを実施。

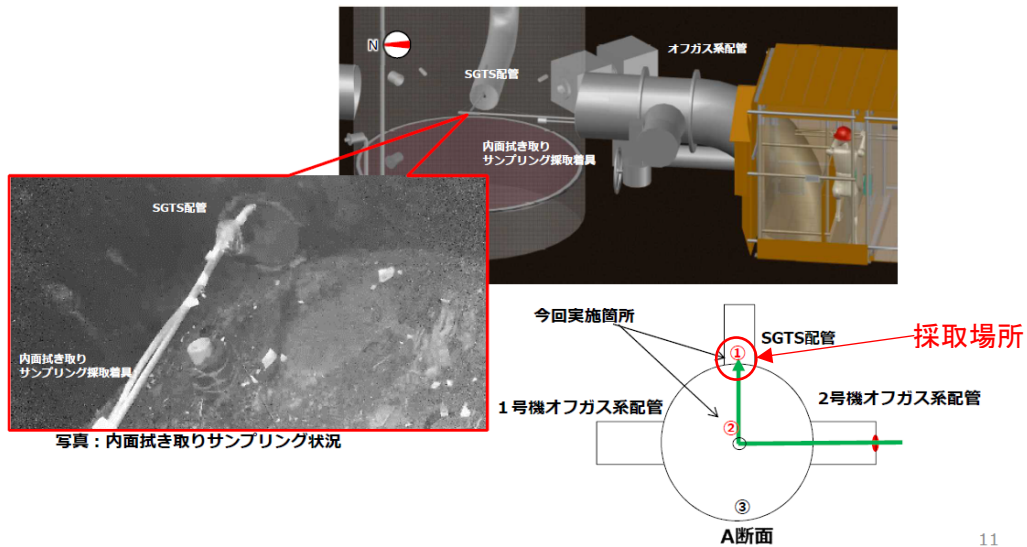


図3 1/2号機 SGTS 配管内部のスミヤ採取場所³

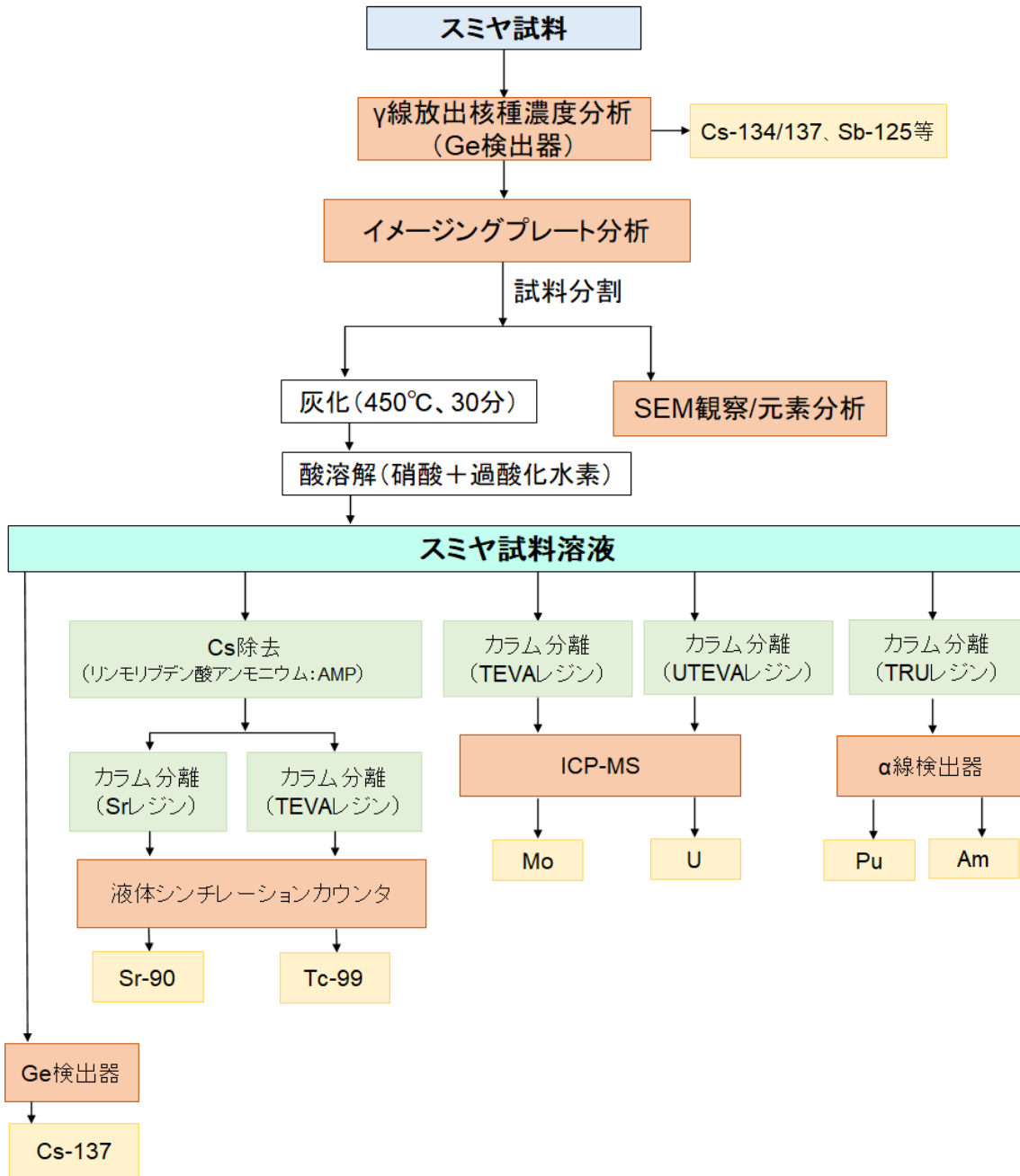


図4 スミヤ試料分析フロー

スミヤ試料写真



25 mm

イメージングプレート像

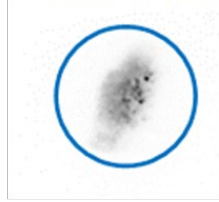


図5 2号機原子炉建屋内で採取したスミヤ試料の写真（左）とイメージングプレート分析結果（右）の例（5階壁面試料）

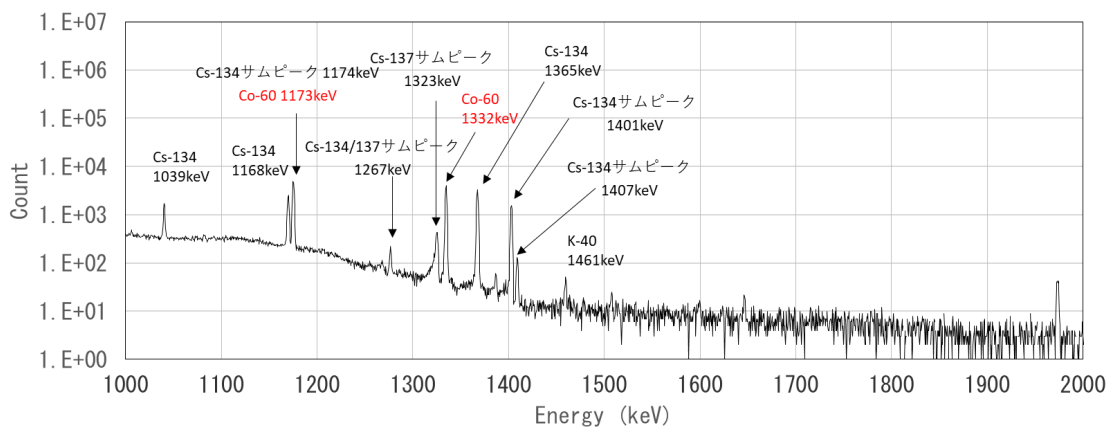
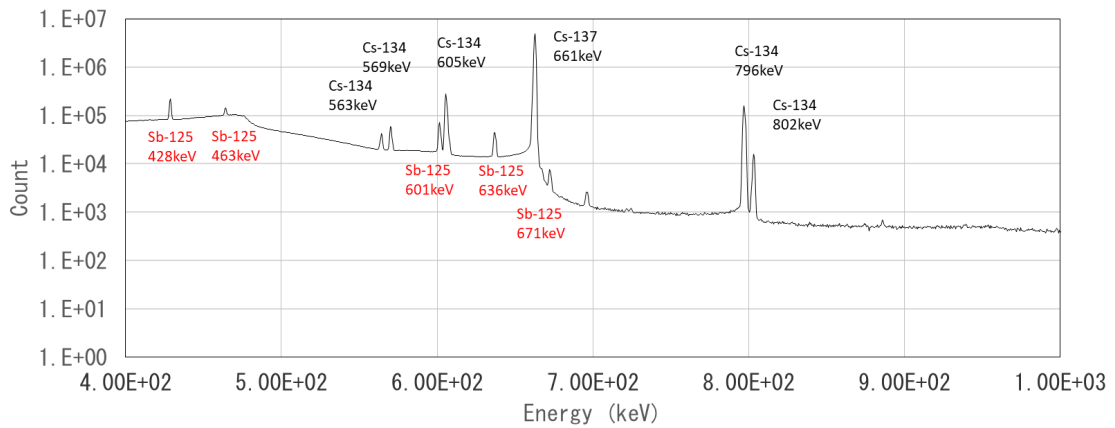


図6 スミヤ試料のGe分析結果の例
(5階壁面試料；上段400~1,000keV、下段1,000~2,000keV)

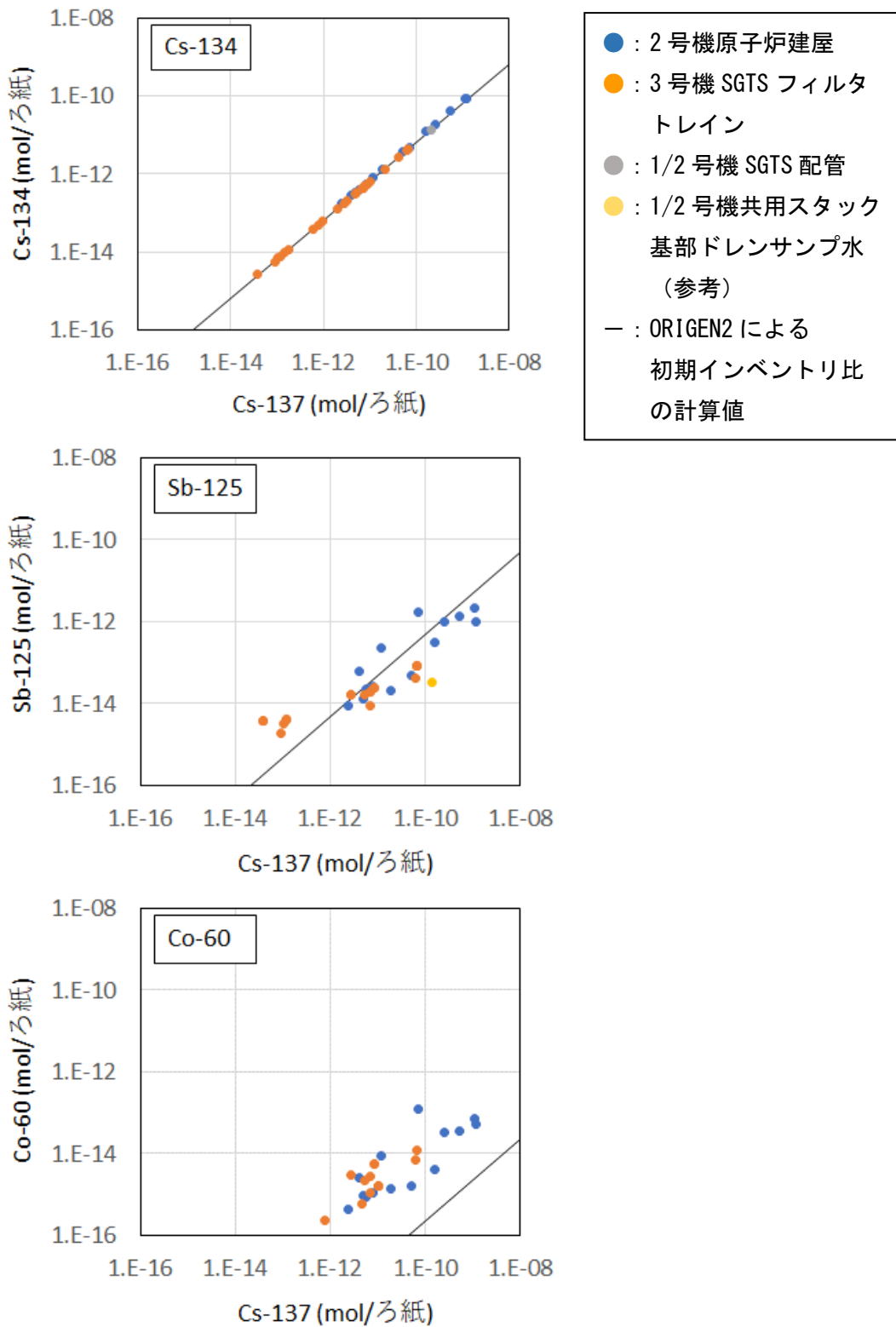


図7 スミヤ試料の Ge 分析結果 (半減期を考慮して推定した事故当時の値)

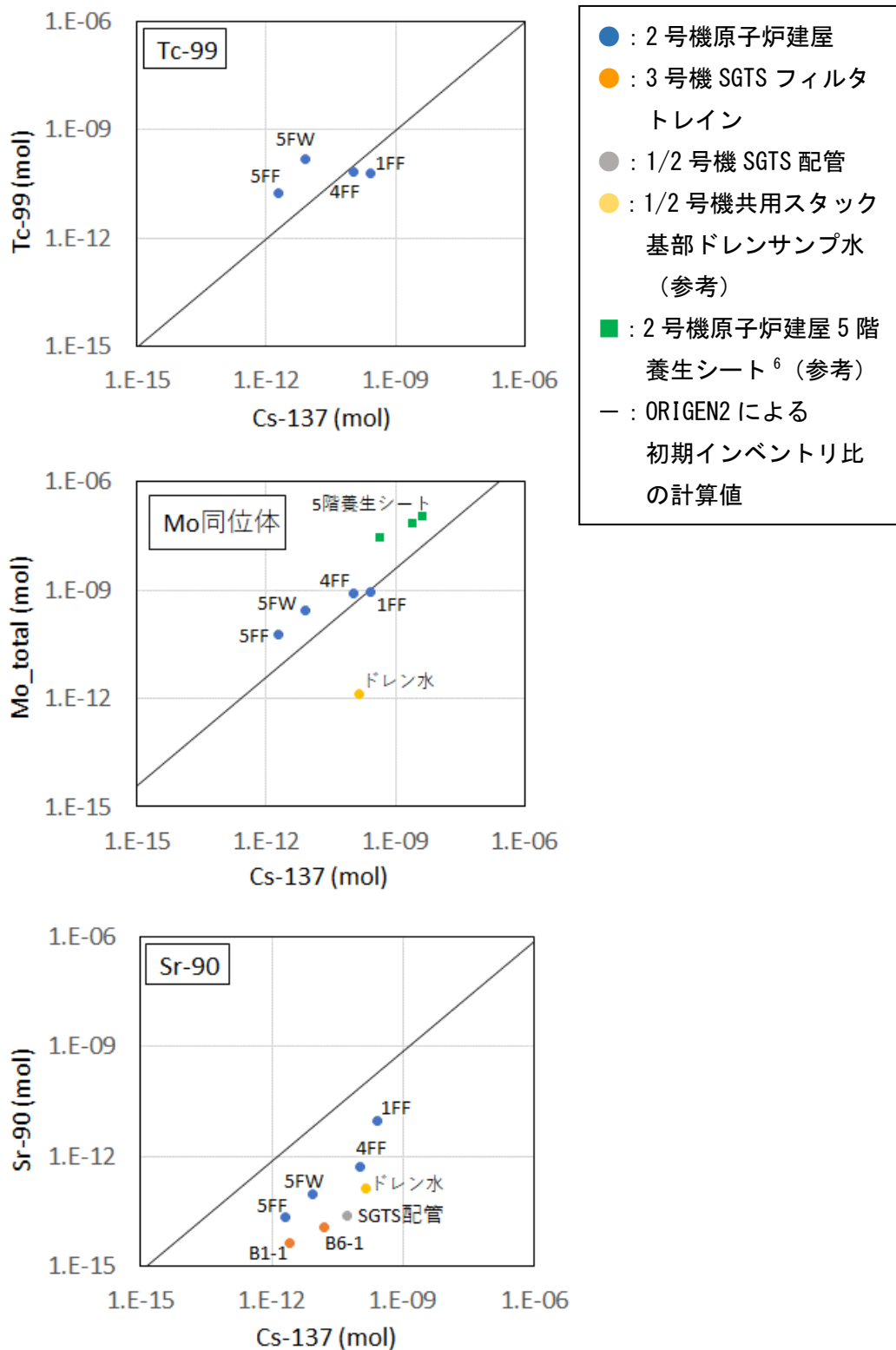


図8 酸溶解後スミヤ試料の核種分析結果 (1/2)
 (半減期を考慮して推定した事故当時の値)

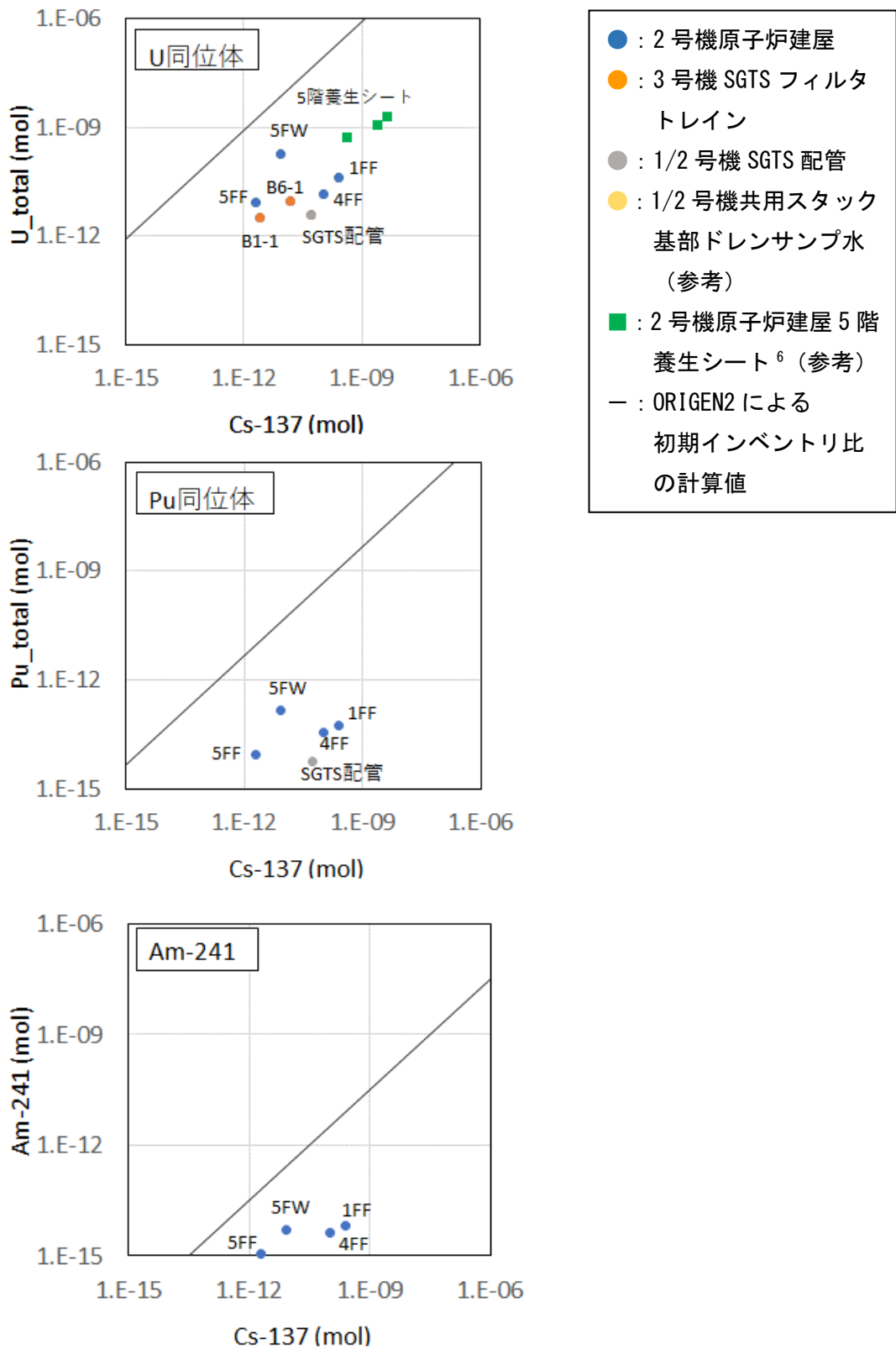


図9 酸溶解後スミヤ試料の核種分析結果 (2/2)
(半減期を考慮して推定した事故当時の値)

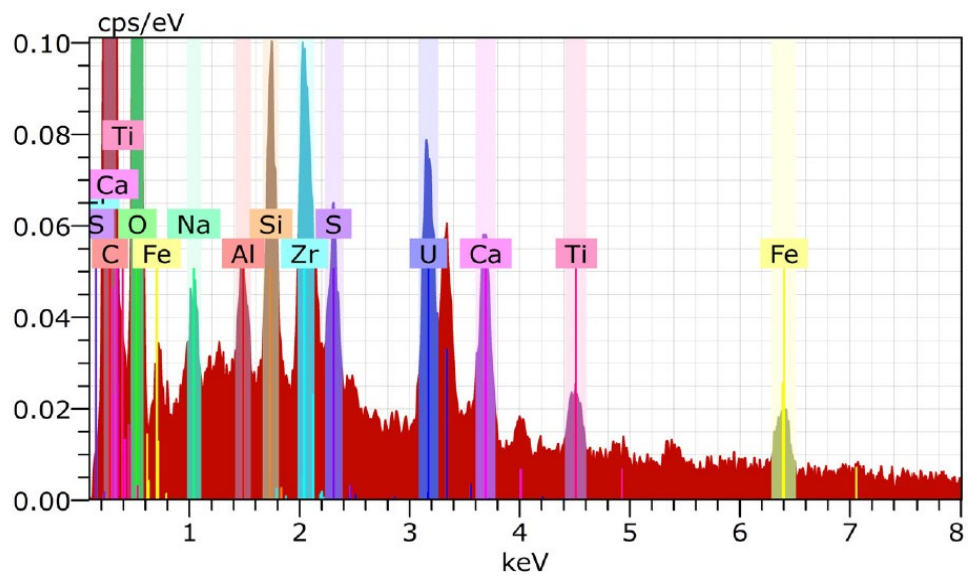
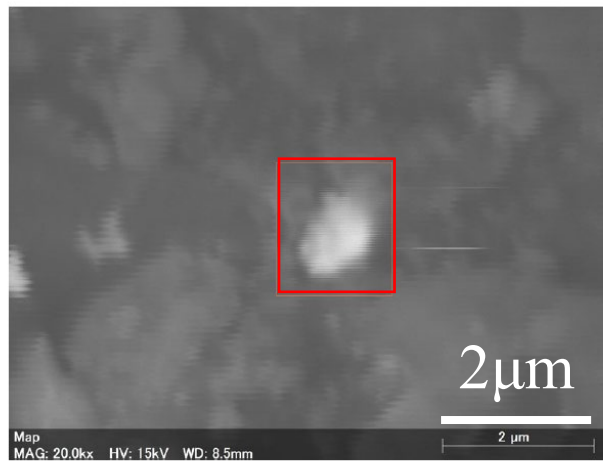


図 10 5 階床面試料の SEM 像と元素分析結果

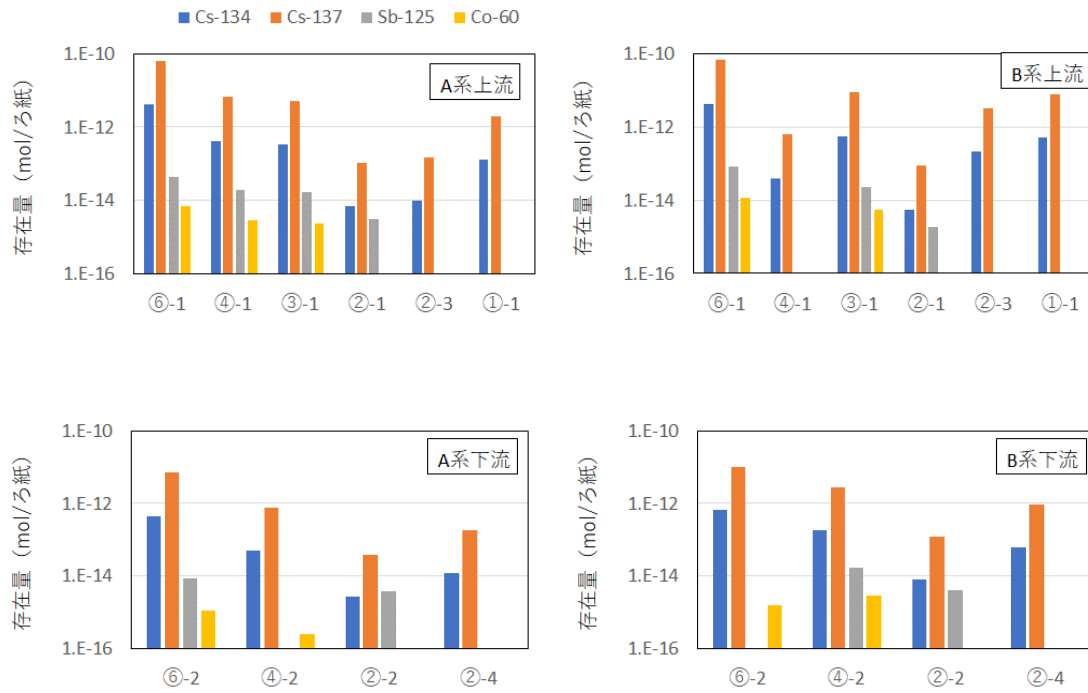


図 11 3号機 SGTS フィルタトレイン内スミヤ試料の Ge 分析結果
(半減期を考慮して推定した事故当時の値)