

令和 2 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 3 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。

目次

1.	はじめに	1
2.	1F プラント内核種移行に係る実施項目	3
2.1	1F 事故で放出された放射性核種の化学形態分析法の開発	3
2.1.1	水溶液中のヨウ素の化学形態分離法の検討.....	3
2.1.2	瓦礫等に付着した Cs 化合物の化学形態分析法の検討.....	6
2.1.3	β 線スペクトロメータの整備.....	10
2.1.4	まとめ	12
2.2	重大事故解析.....	13
2.2.1	目的.....	13
2.2.2	解析方法.....	13
2.2.3	解析結果.....	22
2.2.4	まとめ	29
2.3	データベース作成	31
2.3.1	情報ソースデータベース	31
2.3.2	サンプルデータベース.....	34
2.3.3	まとめ	38
2.4	OECD/NEA プロジェクトの運営及び関連情報の収集.....	41
3.	1F 事故分析検討会に係る実施項目	51
3.1	1F 試料分析	51
3.1.1	3号機タービン建屋内コンクリート瓦礫試料分析.....	51
3.1.2	1号機及び2号機共用スタック基部ドレンサンプ水試料分析	52
3.2	配管内流動解析	64
3.2.1	目的.....	64
3.2.2	解析方法.....	64
3.2.3	解析結果.....	65
3.2.4	まとめ	67
4.	おわりに	73

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、平成 29 年度「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、平成 30 年度「シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化」事業及び平成 31 年度「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」事業において検討された分析計画を踏まえて、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、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、以下を実施した。

(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

1F プラント内の核種移行挙動を把握するため、水試料の分析手法やコンクリート等の表面における核種や元素の付着形態を推測するための分析手法を整備するとともに、1F 試料を用いて同手法を検証するための分析を実施した。また、今後の試料入手に向けた準備や分析に必要な装置の整備を行った。

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及び①で取得した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、今後採取する価値のある試料の位置、分析対象元素等を選定した。

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、1F プラント内における核種の濃度や分布に関する公開情報

④ OECD/NEA プロジェクトの運営及び関連情報の収集

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、会合を開催した（令和 2 年 12 月、Web 会議）。本会合に出席し、本事業の遂行

に有用な情報の収集を行うとともに、ARC-F プロジェクトと関連が深い OECD/NEA プロジェクト「デブリの性状推定及びデブリ分析計画の検討 (PreADES)」の会合に出席し、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た。

2. 1F プラント内核種移行に係る実施項目

2.1 1F 事故で放出された放射性核種の化学形態分析法の開発

2.1.1 水溶液中のヨウ素の化学形態分離法の検討

2.1.1.1 緒言

I-131 は事故時の安全評価上最も重要な核種の 1 つである。しかし、半減期が 8.021 日と短いため、現在では測定不可能なレベルまで減衰している。一方、I-129 は半減期が 1.57×10^7 年と長いため、現在でも事故時と同程度存在する。この長い半減期のため、廃棄物の処理処分における安全評価上の重要核種とされており分析例も報告されているが、放射能濃度が低く分析が困難であることから、現在の 1F 汚染水試料についての分析例は限られている[2.1-1] [2.1-2] [2.1-3]。また福島県沖で採取された海水について、I-129 は I⁻ で存在し、天然由来の I-127 は主に IO₃⁻ で存在したことから、1F 汚染水起源の I については I⁻ の化学形態をとっていたと考えられているが[2.1-4]、オンサイトの試料に対する化学形態分析結果は報告されていない。

核分裂生成物の放出過程や建屋内濃度分布を議論するためには、ヨウ素の化学形態についての情報が必要である。また、事故時の挙動としては、I-131 と I-129 は同じであると考えられるため[2.1-5]、I-129 の挙動を分析することで I-131 の挙動を推定することができる。そこで、1F 試料に含まれる I-129 について、化学形態毎の分析法の確立を目的として試験を実施した。

2.1.1.2 分析法の検討

平成 31 年度までの検討においては、ヨウ素の主な化学形態として、I⁻、IO₃⁻ と有機形ヨウ素を想定したが、有機形ヨウ素は揮発性が高いため、現時点では 1F 汚染水試料中に残存していないと考えられた。そこで、KI、KIO₃、C₃H₇I を用いて試料溶液を調製し、時間による濃度変化を測定し、残存量を確認した。このとき、ヨウ素の化学形態によって ICP-MS による計数値が異なることや[2.1-6]有機物が混在した場合に感度が高くなることが報告されていたため[2.1-7]、上記 3 つの溶液を 1 M HNO₃ により希釈した試料と、希釈時に酸化剤として NaClO を添加して化学形を IO₃⁻ とした試料との間で計数を比較し、計数値及び感度の確認を行った。それらの結果から、有機形ヨウ素の揮発が確認されたため、汚染水の分析対象から有機形ヨウ素を除外した。

化学形態毎の分離は、昨年度（平成 31 年度）までと同様の陰イオン交換機能を持つ住友 3M 社製ディスク型固相抽出剤（Anion-SR）を用いるが[2.1-8]、これまで検討してきた逐次分離ではなく、並列型での分離について検討を行った。既往研究において、3 M NaOH 条件下では I⁻ のみが抽出され IO₃⁻ は抽出されていないという報告がある[2.1-2]。また、平成 31 年度までの検討において、pH1~5 の条件下で還元剤の 0.01 M K₂S₂O₅ を添加すると IO₃⁻ が I⁻ に還元され、Anion-SR に吸着・回収されることが確認されている。そこで、図 2.1-1 に示す以下の方針で並列型での化学形態分析法を検討した。

①アルカリ条件において Anion-SR に I⁻ のみを吸着させ、IO₃⁻ や他の元素(主に Cs)を溶出させることで、I⁻ とそれ以外を分離した後、I⁻ を回収して測定する。

②酸性条件において IO₃⁻ を還元して I⁻ とすることにより、試料中の IO₃⁻ 及び I⁻ をすべて I⁻ の化学形態にして Anion-SR に吸着させて他の元素(主に Cs)から分離した後、I⁻

(元の試料中の $\text{IO}_3^- + \text{I}^-$) を回収して測定する。①で求めた I^- 量を差し引くことで IO_3^- 量を算出する。

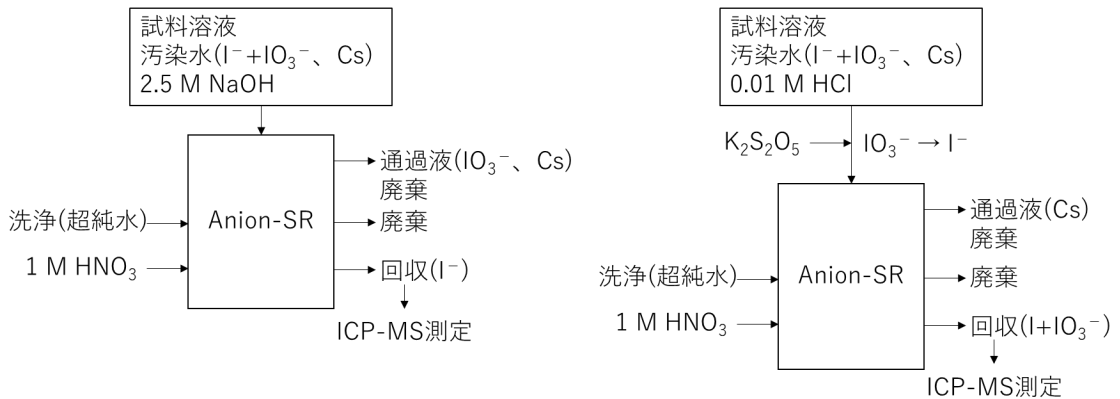


図 2.1-1 ヨウ素化学形態分離フロー

2.1.1.3 化学形態による ICP-MS 感度の相違と時間変化

図 2.2-1a) に KI、 KIO_3 、 $\text{C}_3\text{H}_7\text{I}$ 、また、これらに NaClO を添加した KI-NaClO、 KIO_3 -NaClO、 $\text{C}_3\text{H}_7\text{I}$ -NaClO の各 1~10 ppb 溶液の試料調製当日測定結果を、図 2.2-2 b) に 8 日後に測定した結果を示す。なお、ここでは KIO_3 溶液で検量線を作成して各試料の濃度を定量した。

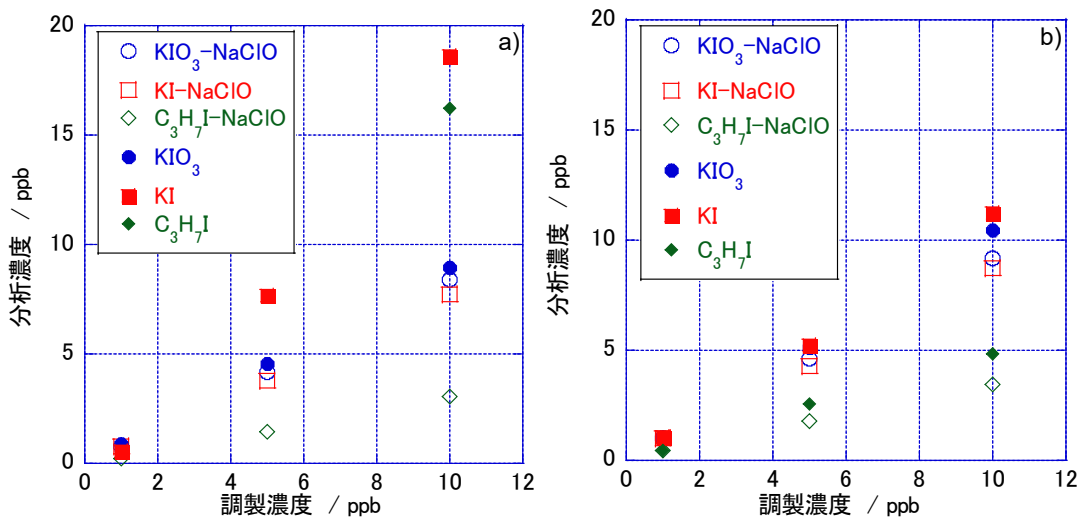


図 2.1-2 試料濃度測定の結果

a) 試料調製日に測定、b) 試料調製日の 8 日後に測定

試料調製日に測定した結果では、KI と $\text{C}_3\text{H}_7\text{I}$ は KIO_3 に比べて感度が高く、 KIO_3 で検量線を作成した場合には、10 ppb 溶液の測定値がそれぞれ 19 ppb と 16 ppb となり、過大評価してしまうことが分かった。一方、NaClO を添加すると、 I^- は IO_3^- に酸化されることで KI は KIO_3 とほぼ同じ測定濃度となった。また、 $\text{C}_3\text{H}_7\text{I}$ の測定濃度は NaClO の添加により大幅に低下し、10 ppb の溶液の測定濃度が 3 ppb となった。

8日後に同じ溶液を測定したところ、KIとC₃H₇Iの感度が調製当日と比べ低下し、10ppb溶液の測定値がそれぞれ11ppbと4.8ppbとなった。このことから、1M HNO₃溶液中での保管により揮発したと考えられる。一方、KIO₃溶液やNaClOを添加して化学形をIO₃⁻にしたKIとC₃H₇Iの溶液では、試料調製当日とほぼ同程度の測定値となり、IO₃⁻は1M HNO₃中でも1週間程度ではあまり揮発しないことが確認された。

次に、ヨウ素濃度として1000ppmのKIとC₃H₇I、KIO₃の水溶液を2か月保管した後に1M HNO₃で希釈して試料を調製し、測定当日に調製したKIO₃溶液で検量線を作成して濃度を定量した。その結果、KIとKIO₃はほとんど低下しなかったが、C₃H₇Iの残存率は9.8%であり、有機形ヨウ素は水溶液中保管であっても大部分が揮発して失われることが分かった。このことから、1F汚染水試料中の有機形ヨウ素は揮発により失われていると予測されるため、分析対象から除外した。

2.1.1.4 並列型化学形態分離法の検討

I⁻とIO₃⁻をそれぞれ定量するためには、アルカリ条件においてはI⁻のみがAnion-SRに吸着・回収され、IO₃⁻は回収されない必要がある。このことを確認するため、①10ppb I⁻/2.5M NaOH、②10ppb IO₃⁻/2.5M NaOH、③10ppb I⁻/10ppb IO₃⁻/2.5M NaOHの3種類の試料溶液を調製し、通液試験を行った。その結果、それぞれ回収率が、①76%、②0%、③75%となり、I⁻のみが回収され、IO₃⁻は回収されないことが確認された。

次に、I⁻とIO₃⁻の両方をAnion-SRに吸着・回収するために、IO₃⁻をI⁻に還元し、すべてI⁻としてAnion-SRに吸着・回収することとした。還元条件としては、平成30年度の検討をもとに0.01M HCl/0.01M K₂S₂O₅条件を選択した。この条件下でI⁻とIO₃⁻が吸着・回収されていることを確認するために、④10ppb I⁻/0.01M HCl/0.01M K₂S₂O₅、⑤10ppb IO₃⁻/0.01M HCl/0.01M K₂S₂O₅、⑥10ppb I⁻/10ppb IO₃⁻/0.01M HCl/0.01M K₂S₂O₅の3種類の試料溶液を調製し、通液試験を行ったところ、それぞれ回収率が④100%、⑤93%、⑥100%となり、IO₃⁻とI⁻の化学形態で存在したヨウ素のいずれも回収されることが確認された。ここで確立した手法を用いて、1F汚染水試料中のI⁻とIO₃⁻を分析した。

2.1.1.5 実試料分析

2.3章に示すデータベースから、過去にI-129が検出されている試料を調査し、その中で日本原子力研究開発機構(JAEA)原子力科学研究所内に保管されている試料を探したところ、SARRY S-5B 出口水(H24-383、I-129 : (9.6±0.2)×10⁻² Bq/ml)があることが分かった[2.1-9]。そこで、この中に含まれるI-129について、本事業で開発した手法を用いて分析を実施した。その結果、I⁻、IO₃⁻ともに検出下限値以下(<1.0×10⁻² Bq/ml)となった。H24-383については、原科研内で2013年に分析が実施された後、保管が長期間に及んだため、揮発や沈殿生成等により試料中のIが損失したと考えられる。なお、後述する3.1.2章において、本手法を適用した1Fサイト汚染水試料中のヨウ素分析を実施した。

2.1.1.6 まとめ

KI、KIO₃およびC₃H₇Iから調製した溶液の濃度測定結果から、化学形態によってICP-MSの感度が異なることが示された。このことから正確な定量を行うためにNaClOを添加して化学形態をIO₃⁻に揃える必要があることが分かった。また、IO₃⁻であれば、1 M HNO₃溶液中であっても1週間程度では濃度変化がないことも確認された。

水溶液を調製してから2か月後に測定した結果から、KIとKIO₃の濃度変化は小さかったが、C₃H₇Iは9.8%しか残っておらず、有機形ヨウ素の揮発が確認された。

2.5 M NaOH条件下でI⁻のみを、0.01 M HCl条件下でI⁻とIO₃⁻の両方をAnion-SRに吸着・回収する手法を構築した。IO₃⁻濃度は、I⁻濃度とIO₃⁻濃度の和からI⁻濃度を差し引くことで算出可能であり、この手法により、汚染水に含まれるI⁻とIO₃⁻をそれぞれ定量することができる。

2.1.2 瓦礫等に付着したCs化合物の化学形態分析法の検討

2.1.2.1 緒言

1F事故時に放出された放射性セシウムや放射性ヨウ素などの原子炉建屋内構造物への付着しやすさは化学形態によって異なると考えられる。また、原子炉建屋構造物に付着した際にその化学形態が変化することも考えられる。現在の原子炉建屋構造物から採取したコンクリート試料の分析から、事故時の化学形態を推定するためには、放出時の化学形態と付着後の化学形態についての知見を得る必要がある。

主なCs化合物の融点および沸点を表2.2-1にまとめた。このように、融点や沸点は化合物ごとに異なるため、Cs化合物が付着したコンクリートを特定の温度で加熱することで、付着したCs化合物ごとに揮発させ、分離することができる可能性がある。しかし、沸点に達していなくても蒸気圧により揮発することも考えられるため、温度条件や保持時間などを変化させて、回収や分離に適した条件を求める必要がある。平成31年度はCsIの試薬で加熱試験を行い、放出挙動について考察した。本年度は、CsOHとCsClについて同様の試験を行い、放出挙動を考察した。

また、土壌などの環境試料に対し、様々な溶液に逐次浸漬することで付着していた元素の化学形態を調べる手法が知られている。試薬としてのCsIは水に易溶であるが、コンクリート等に化学吸着等をした場合には不溶性の形態に変化する可能性もある。逐次浸漬法を用いて固体試料に付着したCsやIの化学形態を調べるために、CsIを加熱して揮発させたものをコンクリート試験片に蒸着させ、それを超純水に浸漬した時の溶出挙動についても考察した。

表 2.2-1 1F事故評価で検討対象とされているCs化合物の融点と沸点

	融点 (°C)	沸点 (°C)
CsCl	645	1300
CsI	621	1277
Cs ₂ O	490	—
CsOH	272.3	990
Cs ₂ MoO ₄	939.85	—

2.1.2.2 加熱試験法

放出試験には、平成 31 年度に作製した図 2.2-3 に示す試験装置を用いた。実験装置は上流（写真左側）から、空気ポンベ、レギュレーター、流量計、水バブラー、燃焼管、電気炉とその温度コントローラ、トラップ（2 段、各水 10 ml）で構成されている。

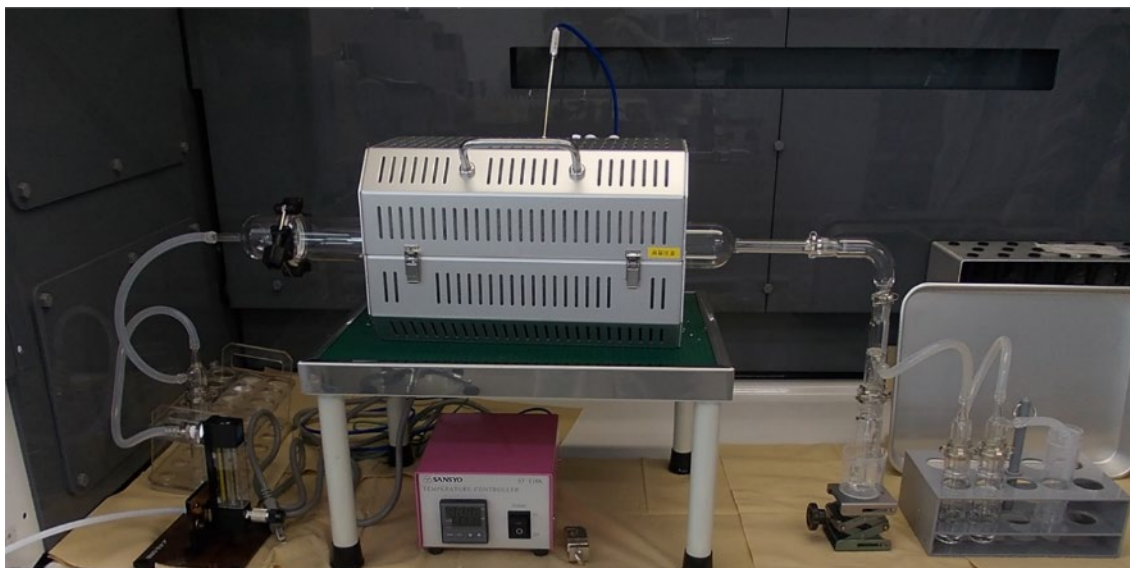


図 2.1-3 試験装置の写真

加熱試験におけるキャリアーガス(室温の水バブラーで加湿した空気)の流速 (500 ml/min) や設定温度での保持時間(1 時間)は平成 31 年度の試験と同じ設定とした。本試験では、約 0.1 g の CsOH または CsCl 試薬を試料として燃焼管内に設置し、200°C、300°C、600°C、700°C、1,000°C で加熱試験を行った。加熱前後の試料重量を測定し、その差から加熱による揮発量を算出した。

2.1.2.3 浸漬試験法

浸漬試験に用いる試験体として、成型 OPC ペースト硬化体 (W/C=0.75, 直径 3cm×厚さ 2cm の円柱) を用いた。加熱試験で用いた実験装置の電気炉下流側の燃焼管内に試験体を設置し、700°C で空焼きを行った試料をブランク試料とした。一方、約 0.1 g の CsI を電気炉内で 700°C に加熱・揮発させ、電気炉下流の試験体(空焼き後)に CsI を付着させたものを分析試料とした。

作製したブランク試料と分析試料を 100 ml の Digitube に入れ、50 ml の超純水に浸漬した。浸漬後、定期的に 100 μ l の浸漬水を採取して校正後の pH メータ(HORIBA 製、コンパクト pH メータ LAQUAtwin pH+33B)の測定部に滴下して pH を測定した。また、pH 測定と同時期に浸漬水を採取して 1%アンモニア水で希釈し、ICP-MS(パーキンエルマー製、ELAN-DRC)で Cs と I の濃度を測定した。

2.1.2.4 加熱試験結果

表 2.2-2 および表 2.2-3 に CsOH と CsCl を 1 時間加熱した前後の試料重量とその差から求めた揮発量をまとめた。

CsOH の 200℃ と 300℃ の加熱試験では、重量の微増が観測された。これは、CsOH は潮解性が極めて高いため、試験中に空気中の水分を取り込んだことによると考えられる。また、沸点である 990℃ よりも低い 600℃ や 700℃ でもそれぞれ 34.5% と 70.3% が揮発し、沸点以上である 1000℃ ではほぼ全量が揮発した。

表 2.1-2 CsOH の 1 時間加熱前後の重量と揮発量

	燃焼前重量/g	燃焼後重量/g	減少量/g	揮発量%
200℃	0.0998	0.1064	-0.0066	-6.6
300℃	0.1000	0.1112	-0.0112	-11.2
600℃	0.1007	0.0660	0.0347	34.5
700℃	0.0995	0.0296	0.0699	70.3
1000℃	0.1005	0.0027	0.0978	97.3

表 2.1-3 CsCl の 1 時間加熱前後の重量と揮発量

	CsCl 燃焼前重量	CsCl 燃焼後重量	減少量/g	揮発量%
200℃	0.0999	0.0998	0.0001	0.1
300℃	0.1006	0.0992	0.0014	1.4
600℃	0.1003	0.0877	0.0126	12.6
700℃	0.1015	0.0669	0.0346	34.1
1000℃	0.1010	-0.0004	0.1014	100.4

CsCl の融点と沸点はそれぞれ 645℃ と 1300℃ であるが、融点よりも低い 600℃ においてさえ 12.6% の揮発が認められ、1000℃ では 100% 揮発した。

2.1.2.5 浸漬試験結果

図 2.2-4 にブランク試料と試料の浸漬水の pH の時間変化を示す。浸漬後 pH は急激に増加し、浸漬後 7 日で約 12.5 となり、それ以降はほぼ一定となった。ブランク試料と分析試料では pH の変化に有意な差は認められなかった。

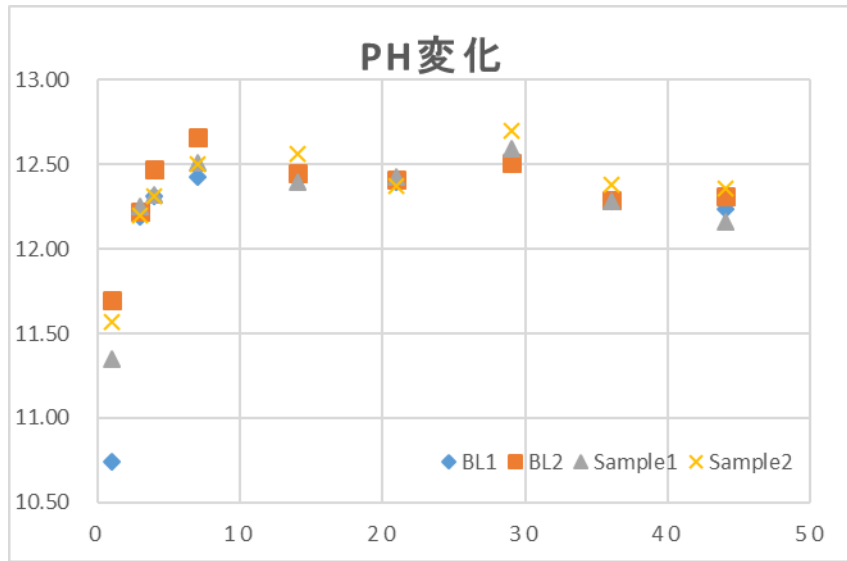


図 2.1-4 浸漬水の pH の時間変化

図 2.1-5 および図 2.1-6 に浸漬水の Cs 濃度と I 濃度の時間変化を示す。Cs 濃度は約 7 日で平衡に達していると考えられる。I 濃度は 7 日で最大となった後減少がみられた。Cs については、ブランク試料においても検出されたものがあったが、I はブランク試料からは検出されなかった。Cs と I とともに、30 日以降のデータについてはコンタミ等が考えられる。以上の結果から、浸漬時間としては 7 日が適当であると考えられる。本結果から、後述する 3.1.2 章において、コンクリート瓦礫試料の浸漬期間を 7 日間とした。

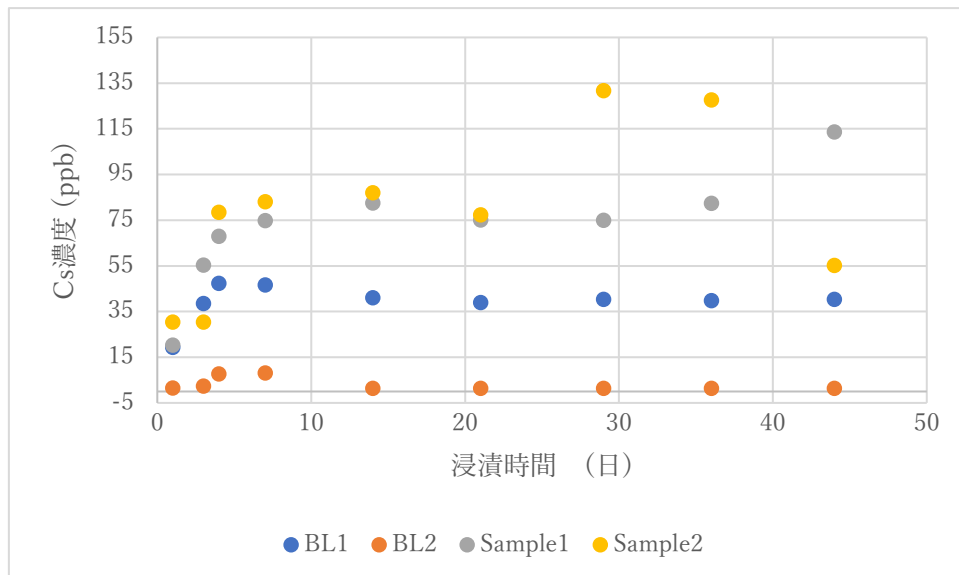


図 2.1-5 Cs 濃度の時間変化

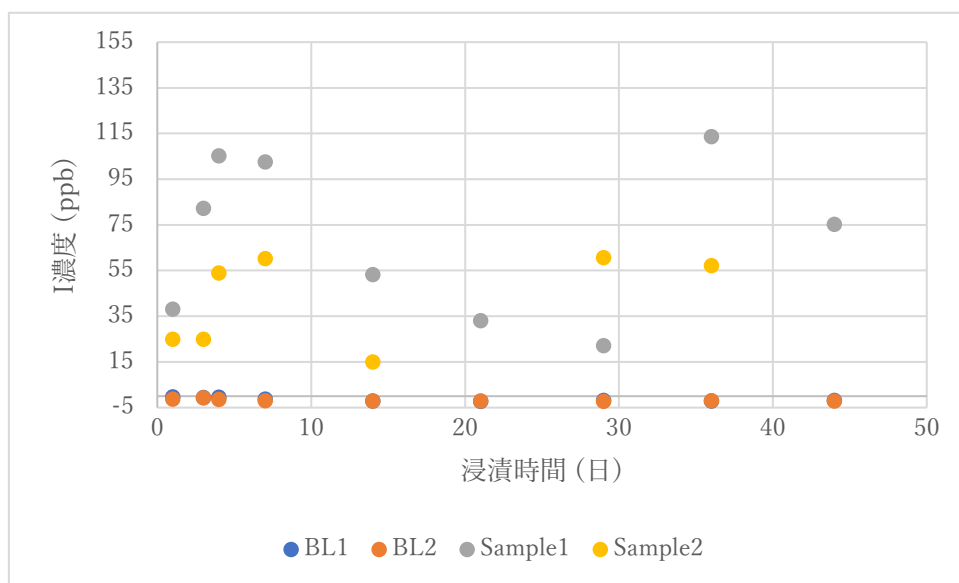


図 2.1-6 I 濃度の時間変化

注：CsI をコンクリートに付着させる試験で用いたガラス器具の影響で硝酸層が汚染し、その時期に洗浄したガラス器具がコンタミしていたことを確認した。

2.1.3 β線スペクトロメータの整備

2.1.3.1 緒言

シビアアクシデント時には、揮発性の高い I や Cs などが気体で放出される他、揮発性の低い核種がエアロゾルに付着するなどして放出することも想定される。その場合、核分裂収率の高い ^{90}Sr や ^{99}Tc などが対象となる。 ^{90}Sr や ^{99}Tc は β 線のみを放出する核種であり、他の β 線放出核種から分離・精製した後、β 線測定を行う必要がある。そこで、β 線測定を実施するために β 線スペクトロメータを整備した。

2.1.3.2 装置概要

装置の外観を図 2.1-7 に示す。ステンレス皿にのせた面状の試料は、サンプルチェンジャーにより検出器の直下まで導入される。検出器は鉛の遮蔽体の中に設置されたガスフロー型の GM 計数管とプラスチックシンチレータからなる。試料から放出された β 線は、GM 管ではほとんどエネルギーを失うことなく透過し、プラスチックシンチレータに全エネルギーを付与する。プラスチックシンチレータでは、β 線のエネルギーに応じた光量のパルスを生じ、光電子増倍管で増幅された電気パルスが β 線アナライザに入る。また、GM 管に付与されるエネルギーは小さいが、β 線の通過により GM 管出力は発生し、β 線アナライザに入る。γ 線の場合は、いずれも出力しないか、一方のみが出力するため、同時計測を行うことで γ 線の影響を除去できる。

一般的に、β 線は連続スペクトルであるため、測定対象核種を他の核種から分離・精製する必要があるが、本装置にはスペクトル分析機能が搭載されており、あらかじめ標準試料のスペクトルを取得しておけば、2 核種または 3 核種が混在する試料に対しても個々の核種を定量可能である。例えば、液体シンチレーションカウンタを用いた ^{90}Sr の分析では、 ^{90}Y の影響を考慮するために放射平衡に達するまで 2 週間以上待つ必要があるが、本

β 線スペクトロメータでは、 ^{90}Sr と ^{90}Y を識別して定量することが可能であるため、放射平衡を待たずに定量が可能である。



図 2.1-7 β 線スペクトロメータの概観

2.1.3.2 バックグラウンドと計数効率の測定

装置の性能検査として、バックグラウンド測定した結果を表 2.1-4 に示す。本 β 線スペクトロメータのバックグラウンド(35-3500 keV)に対する計数率は $0.018 \text{ (s}^{-1}\text{)}$ であった。試料形態や測定条件が異なるため、単純に比較はできないが、液体シンチレーションカウンタで ^{99}Tc 分析における操作ブランク試料を 18000 s 測定した時のカウント数は 144250 count、計数率は $8.0 \text{ (s}^{-1}\text{)}$ であり、本 β 線スペクトロメータが低バックグラウンドであることがうかがえる。

表 2.1-4 バックグラウンド測定結果

GATE	エネルギー範囲 (keV)	計数 (count)	測定時間 (s)	計数率 (s^{-1})
GATED (同時係数)	35~1750	927	52200	0.018
	35~3500	2516	52200	0.048

放射エネルギーが既知の ^{137}Cs 、 ^{204}Tl 、 $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$ 、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ の標準線源を用いて計数効率を求めた結果を表 2.1-5 に示す。最大エネルギーがそれぞれ 624、764、1162、2280 keV の上記線源に対してほぼ一定の計数効率(23%)を示しており、計数効率のエネルギー依存性がほとんどないことが分かった。

表 2.1-5 計数効率測定結果

核種	グロス計数 (counts)	測定時間 (s)	グロス計数率 (s ⁻¹)	バックグラウンド 計数率(s ⁻¹)	ネット計数率 (s ⁻¹)	計数効率 (%)
¹³⁷ Cs	79327	600	132	0.048	132	23
²⁰⁴ Tl	4335	5400	0.803	0.048	0.755	23
²¹⁰ Pb/ ²¹⁰ Bi	161920	600	270	0.048	270	23
⁹⁰ Sr/ ⁹⁰ Y	90268	600	150	0.048	150	23

2.1.4 まとめ

1F 原子炉建屋内の壁や床に付着した Cs や I 等について、沸点や融点の違いを利用して化学形態毎に分離できる可能性がある。本年度においては、化学形態が明らかである試薬 (CsOH と CsCl) を用いて揮発挙動を調査した。その結果、いずれも沸点よりも低い温度での揮発が観測された。CsOH については融点である 272.3℃と比べると 300℃以上高い 600℃で 34.5%、700℃で 70.3%の揮発が観測されたのに対し、CsCl では融点である 645℃よりも低い 600℃でも 12.6%の揮発が観測され、融点よりも 55℃高い 700℃では 34.1%揮発した。また、いずれも 1000℃ではほぼ 100%揮発した。水酸化物は融点が高いが、融点よりも十分高くないと揮発しにくいのに対し、塩化物は融点が高いが、融点より低い温度においてさえ揮発するため、揮発温度の差を利用して分離する条件がかなり厳しいものになると考えられる。

コンクリートに付着した Cs や I を浸漬する場合、7 日程度の浸漬期間が適当であることが分かった。

参考文献

- [2.1-1] Shimada.A, et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 303(2), 1137-1140, (2015).
- [2.1-2] Shimada A. et al, Nuclear Back-end and Transmutation Technology for Waste Disposal, 311-317, (2015).
- [2.1-3] Tanaka K. et al., J. Nucl. Sci. Technol., 51(7-8), 1032-1043, (2014).
- [2.1-4] Hou X., et al., Environ Sci Technol., 47, 3091-3098, (2013).
- [2.1-5] Ohno T., et al., Anal. Sci. 29, 271-274, (2013).
- [2.1-6] 文部科学省, 環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法 放射能測定シリーズ 32, (2004).
- [2.1-7] G. Grindlay, J. Mora, M. D Loos-Vollebregt, F. Vanhaecke, Spectrochimica Acta Part B, 86, (2013) 42-49.
- [2.1-8] 原子力規制庁受託事業, 平成 31 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, (2020).
- [2.1-9] 滞留水及び処理水の放射能分析、2013 年 11 月 28 日, 第 10 回廃炉対策推進会議/事務局会議
http://warp.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/8842487/www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/131128/131128_01ss.pdf

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り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、原子炉圧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][2.2-2]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3号機を対象とした事故解析を行い、漏洩箇所やその発生タイミングの違いによる格納容器（CV）内及び原子炉建屋内へのFP沈着量の違いを検討した。

2.2.2 解析方法

1F事故解析としてOECD/NEA福島第一原子力発電所事故に関するベンチマーク研究1F事故解析としてOECD/NEA福島第一原子力発電所事故に関するベンチマーク研究（BSAF）計画において、JAEAでは1号機から3号機を対象にTHALES2/KICHEを用いたFP移行挙動解析を行った。当該研究計画から得られた知見の一つとして、ヨウ素の化学反応挙動の考慮が重要であることが指摘されている。THALES2/KICHEでは、すでにウェットウェル内のヨウ素の化学反応を考慮しているが、ウェットウェルに流入するFPの化学形も重要であることから、中性子吸収材として用いられているホウ素を含め、セシウム、ヨウ素、モリブデン、炭素、酸素、水素の原子炉容器（RPV）内での化学反応を熱化学平衡に基づき解析する機能を組み込んだ。また、熔融炉心-コンクリート総合作用（MCCI）において考慮する酸化反応式の追加を行った。以上の改良は詳細なFP化学種及びFP沈着量解析に寄与することから、本年度は改良を行ったTHALES2を用いた。

3号機の解析では、事故当日の運転記録に基づき、また、RPVやCVの圧力等観測されたデータを再現するような仮定を文献や近年の3号機CV内調査等に基づき設定した。これらに必要な情報を2.3章に示すデータベースから参照するとともに、情報ニーズをデータ収集の対象に加えるべくフィードバックした。以下では3号機の事故進展について示す。なお本年度の解析範囲としては3号機の建屋爆発後数時間を含むスクラムから70時間とした。建屋爆発以降にも外部からの注水が行われることでFPの移行挙動に影響を与えるが、事故進展に関する不確かさはこれ以前より十分に小さいと考えられることから、本期間に注力することとした。

（1）3号機の事故進展

3号機におけるRPV圧力及び格納容器圧力を図2.2-1及び2.2-2に示す。

3号機では地震発生後スクラムにより停止し、原子炉隔離時冷却系（RCIC）による冷却が行われた。その後津波により全交流電源喪失に至ったが、バッテリー電源が利用可能であったためRCICによる冷却を継続することができた。スクラムから約20時間後RCICが停止し、その後高圧炉心注水系（HPCI）が自動起動した。また、同時期に外部からS/Cへのスプレイを開始している。HPCIは運転記録上スクラムから約36時間後に手動停止しているが、この間に運転員によるHPCIの手動制御が行われ、また、RPV圧力がHPCIの稼働に必要な圧力より低下している時期があることから、この間の注水量及びHPCI停

止時期については不確かさがある。しかしながらこの期間の水位の実測データがあることから、解析上では水位、圧力等の実測データや考え得るプラント状態を再現するような注水プロファイルを仮定している。HPCI 停止後、圧力抑制室 (S/C) スプレイラインから炉心への注水ラインに切り替えるが、RPV 圧力が高いため注水できず再び S/C スプレイラインへの切り替えを行っている。スクラム後約 41 時間から S/C スプレイからドライウェル (D/W) スプレイに切り替え、約 1 時間の運転を行っている。スクラム後約 42 時間後自動減圧システム (ADS) が作動し RPV 圧力の減圧が行われた。これに伴い D/W 圧力が上昇するが、ベント操作を行うことで D/W 圧力は低下している。D/W 圧力の低下を確認したのち RPV への注水を開始している。解析ではポンプ特性を考慮できるよう圧力・吐出量の関係を仮定し、これに係数を乗じることで圧力履歴等の再現を試みている。炉心への注水により生じた蒸気や水素が D/W 圧力を上昇させたことから再度ベントを試み D/W 圧力の低下となった。この間に ADS に用いた SRV 開を維持できなくなるが、その後の東京電力の調査により 1 弁を残して閉じたと考えられている。また、この残りの弁も 3 月 13 日の 12 時頃 (約 45 時間) には閉じたと考えられているが、その閉止時間は不明である。このように RPV から D/W へのエネルギーの移動が制限されるにもかかわらずこの間に D/W の圧力が上昇していることから、この期間に 1 次圧力バウンダリからの漏洩が生じたと考える論文[2.2-3]を見ることができる。本解析でも同様に 1 次圧力バウンダリからの漏洩、特に気相漏洩を検討した。2 回目のベント後も注水が続き D/W 圧力も上昇している。約 50 時間付近から約 53 時間付近まで D/W 圧力の上昇が緩やかになっている。この期間の圧力履歴は直線状であり単純な漏洩が生じた挙動と考えることは難しい。この挙動に対し MELCOR を開発している SNL では、この期間にヘッドフランジのボルトが伸びることで圧力に応じた漏洩パスが形成されたと仮定した解析により D/W 圧力挙動を再現している[2.2-4]。本解析でもこの仮定を参考に、D/W 圧力 vs 漏洩面積の関係を構築し解析に採用した。53 時間付近で D/W 圧力実測データが下がる傾向がみられた。当初このタイミングでベントが行われたとされていたが、東京電力の調査により、初めの 2 回のベント時の圧力減少とそれ以降の圧力減少では挙動が異なることが指摘されて、3 回目の圧力減少以降の挙動はベントによるものではないとの考察がなされた。この考察は同意できるものであり、本解析においてもベントによる減圧は 2 回目までとし、それ以降は D/W 破損の仮定や代替注水量で再現できるかを試みた。なおこの圧力減少を再現するために D/W トップヘッドフランジのガスケットが高温にさらされ損傷したと仮定した解析を行った。スクラムから 68 時間後、原子炉建屋にて爆発が生じた後、D/W 内の圧力が低下している。これを爆発により建屋から環境への漏洩パスが形成されたとした。以上までの範囲で解析を実施した。

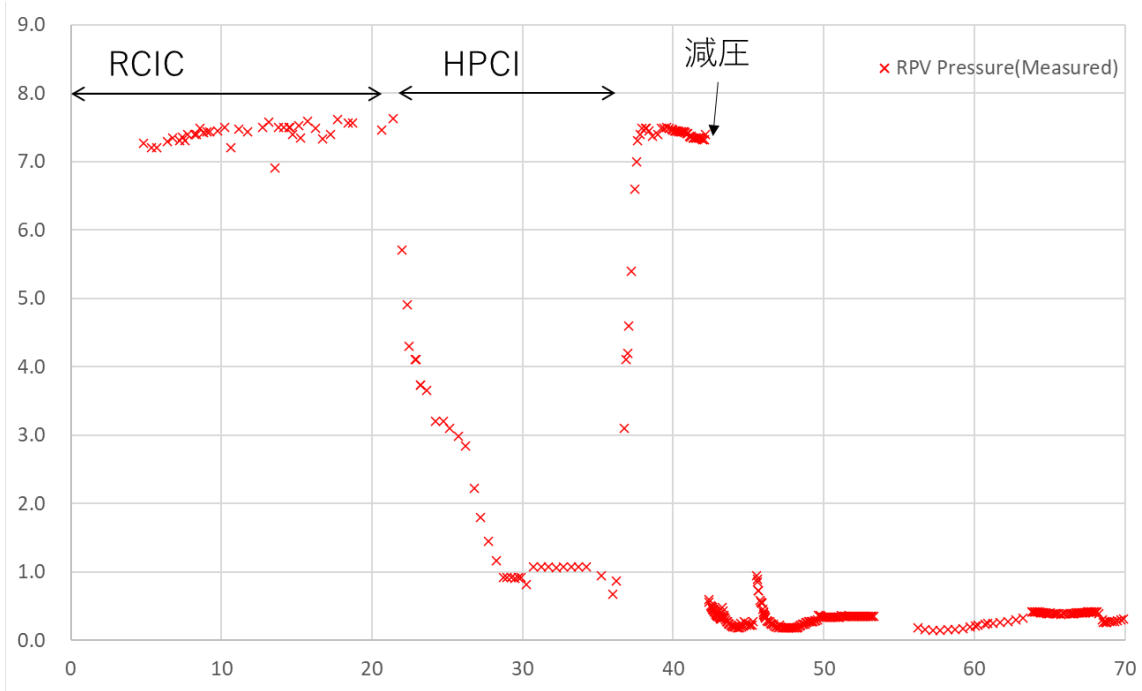


図 2.2-1 圧力容器圧力履歴 (実測データ)

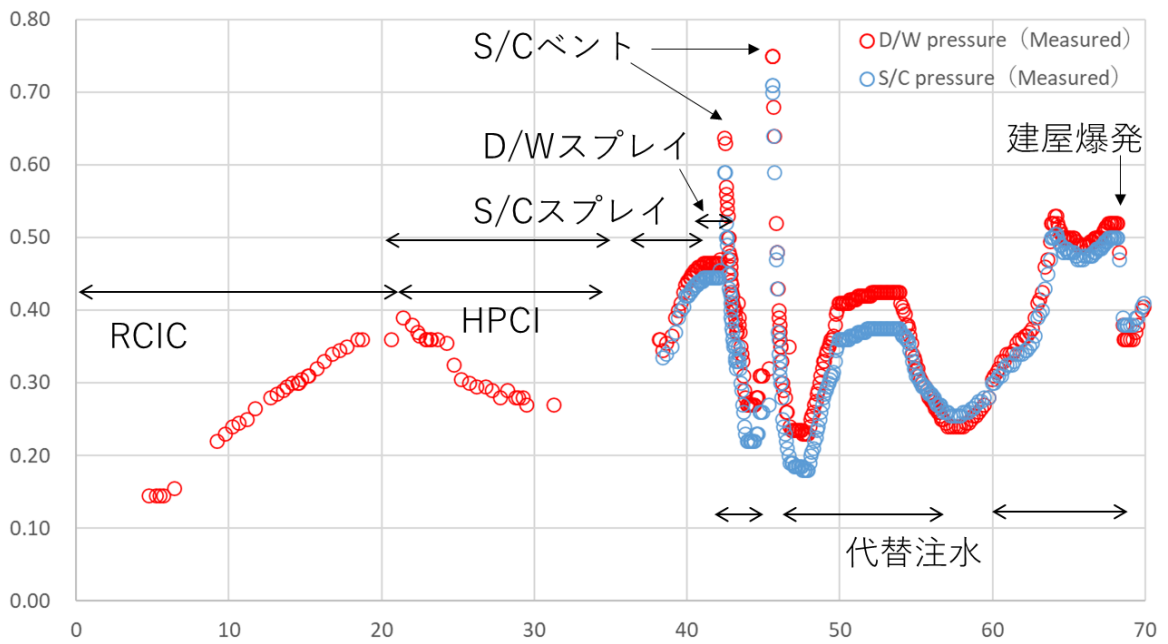


図 2.2-2 ドライウェル及びウェットウェル圧力履歴 (実測データ)

(2) 解析体系

1号機の解析ではドライウェル内を縦方向に4分割、また、生体遮蔽と原子炉容器との間の空間、ペDESTアルも含め6区分の解析を行ってきたが、THALES2の解析の詳細度及び今回追加した機能に伴う計算コストの増加のバランスを考慮し、3号機の解析ではドライウェルをペDESTアルとそれ以外の分割とした。また、3号機で生じた水素の一部が4号機にも流入したことを鑑み排気塔から4号機に気体が行れるようなパスおよび4号機を模擬するようなボリュームを追加した。本解析で用いたボリューム分割図を図2.2-3、また、原子炉建屋各階の床面積及び壁面積を表2.2-1に示す。

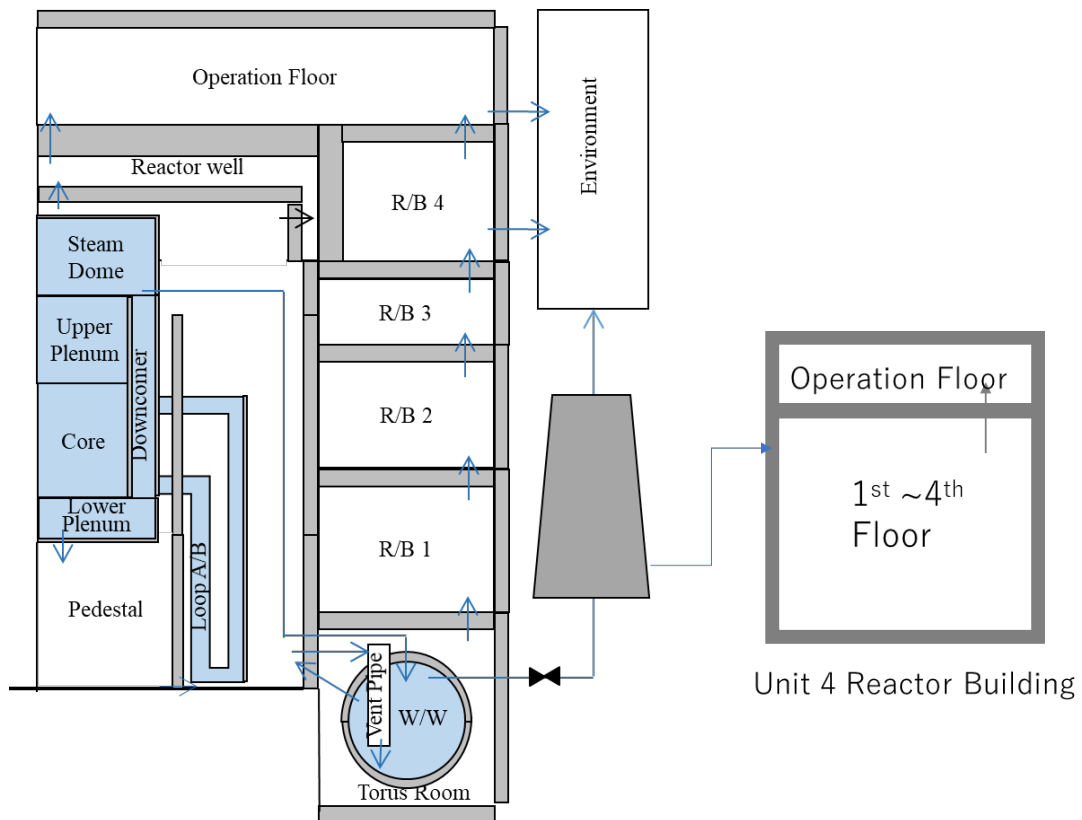


図 2.2-3 ボリューム分割図

表 2.2-1 解析における各ボリュームの床及び壁面積

原子炉建屋	床面積(m ²)	壁面積(m ²)
原子炉ウェル	854	306
オペレーションフロア	1,616	2,586
4 階	924	1,551
3 階	1,093	1,094
2 階	883	1,835
1 階	1,313	943
トールス室	1,110	2,163

(3) 圧力挙動

(1) で示した条件に基づき、THALES2/KICHE を用いてスクラムから建屋爆発後までの 70 時間の解析を行った。スクラム後の初期の不確かさ要因である HPCI 注水量について、測定された RPV 圧力及び炉心水位をある程度再現できる注水プロファイルを検討した。図 2.2.4 に RPV 水位を示す。この解析ケースでは、およそ HPCI により 240 トンの注水が行われた場合が RPV 圧力及び炉心水位の実測値の傾向を再現しつつ、かつドライウェル圧力挙動の再現性が高かった。

次にドライウェルとウェットウェルの圧力挙動と空らの実測値との比較を図 2.2-5 に示す。THALES2 の結果では、30 時間付近まで圧力の再現ができていない。この期間は RCIC による炉心冷却が行われている。RCIC の駆動に用いられた蒸気はウェットウェルプールの上部に放出され凝縮する。このため、ウェットウェルプール上部の温度は上昇するが下部については比較的低温のままであり、これがドライウェル圧力を上昇させたと推察されている。一方 THALES2 では、ヨウ素化学解析モデルの実行には 1 つのボリュームに水相、気相を存在させる制約があるため、ウェットウェルプールを分割して上部だけの温度上昇を再現するようなボリューム分割はできない。このため、RCIC 停止後の HPCI の稼働及び S/C スpray によるウェットウェルプールのミキシングが生じたであろう 30 時間付近のドライウェル圧力になるよう調整を行っている。

HPCI 停止後のドライウェル圧力データはしばらくはないがこの間に炉心水位は下がっており炉心損傷が進んでいたと考える。40 時間前に S/C Spray 及び D/W Spray が実施されているにもかかわらずドライウェルの圧力が上昇している。これは非凝縮性ガスが RPV から格納容器へ流出していると考えられる。本解析ではこの期間に TIP 金属の熔融温度に達していることから TIP 管を通じて炉心からドライウェルへの漏洩が始まっている。42 時間付近で ADS の作動により RPV の減圧が行われ、これがドライウェルの圧力を上昇させている。その後ベント操作によりドライウェル圧力が減少する。本解析においてもおおよそ

のピークの再現及び減圧速度の再現ができています。しかしながらベントにより到達したドライウェル及びウェットウェル圧力には至っておらずさらなる検討が残っている。

RPV 圧力が 43 時間付近と 45 時間付近でわずかであるが上昇している。RPV 減圧に用いた ADS は東京電力の調査等では 45 時間付近で閉止したものと考えられている。また、ADS には複数の SRV が用いられているが一部以外は開状態を維持できず閉止したと考えられている時刻より早く閉じたとも推察されている。本解析でもこの仮定を考慮することで、45 時間付近の CV 圧力上昇を再現している。しかしながら実測データほどの圧力に至っていない。この期間に外部からの代替注水も開始されておりこの注水量に関してもさらなる感度解析が必要と考える。45 時間の CV 圧力ピーク後再度ベントにより CV 圧力が減少する。ADS に用いた SRV が閉じているにもかかわらず RPV の圧力が上昇していないことから、RPV からの漏洩が生じていると考えられる。これを解析上再現しベント弁閉止後の圧力上昇の再現、及び RPV 圧力上昇の抑制をしている。ベント以降も外部からの代替注水が継続しているため、RPV の損傷個所からドライウェルへの蒸気の漏洩が継続しドライウェル圧力を上昇させている。50 時間付近から圧力上昇が緩やかになり 54 時間付近で減圧に転じている。この間の圧力履歴が直線的であることから圧力に依存するような漏洩が生じていると考えられ、この期間にヘッドフランジボルトの延伸により隙間が生じたと仮定した。また、54 時間付近の減圧ではヘッドフランジガスケットが流出する高温ガスにさらされ損傷したと仮定し、漏洩パスが生じた。漏洩面積を感度解析することで圧力減少速度の再現を試みている。外部からの代替注水が 58 時間付近で停止し、これによりドライウェル圧力の上昇が生じている。60 時間付近で注水が再開されるが実測データではその後も圧力上昇しているにもかかわらず、解析では注水により炉心の冷却が進み圧力は減少傾向にある。注水があるにもかかわらずドライウェルの圧力が上昇している原因の一つとして、この期間に溶融した炉心が RPV 外部に流出していることが考えられる。しかしながら本解析ではこの期間の炉心水位はほぼ満水まで回復しており、下部ヘッドの破損には至っていない。ドライウェル圧力履歴を再現しつつ溶融炉心の排出が生じるような代替注水量の感度解析をさらに行う必要がある。このため本年度の解析結果に基づく FP 挙動解析結果には定量的な議論を行える段階にはないが、本解析ケースでは、主にヘッドフランジからの漏洩による FP の建屋内挙動の傾向として論じる。

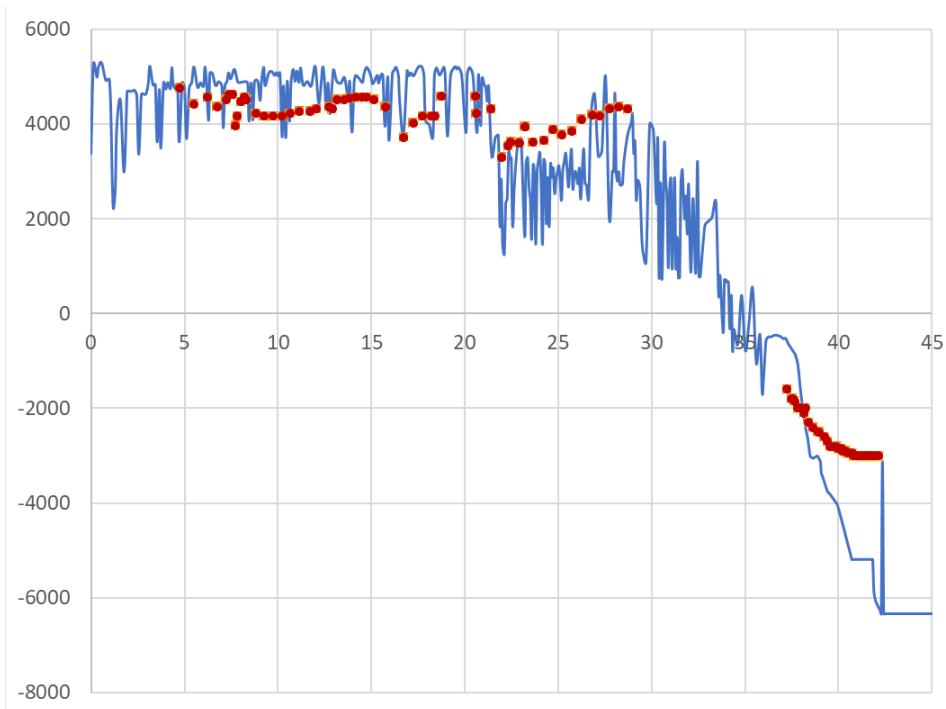


図 2.2-4 原子炉容器内水位の実測値と解析値の比較 (TAF 基準)

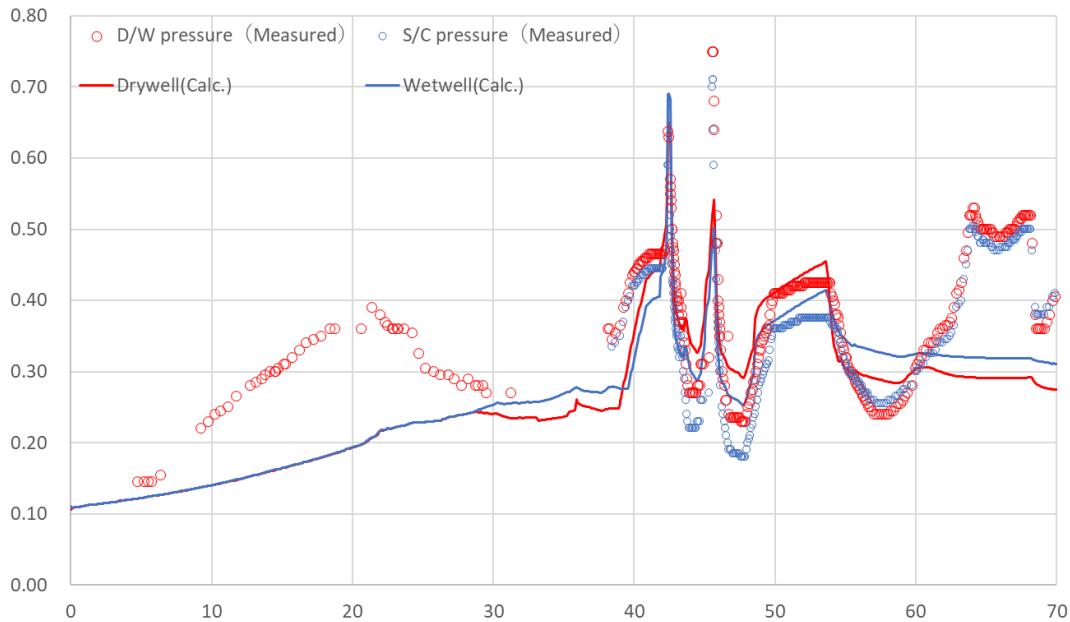


図 2.2-5 格納容器内圧力の実測値と解析値の比較

(4) 代替事故シナリオの検討

(1) に示した事故進展には BSAF 等で合意がなされている進展もあるが D/W 圧力履歴を再現するための仮定も含まれている。特に格納容器から建屋への漏洩箇所やタイミングの仮定が異なれば建屋内の FP 移行挙動にも影響を与える。ここでは (1) に示した事故進展をケース 1 として、D/W の破損時期や位置を異にする事故進展を検討し、それら違いから建屋内 FP 移行挙動の違いを調査することにした。

○ケース 2

ケース 1 では溶融炉心の排出に至っていないことから 45 時間付近から始まる代替注水量を減らすことで溶融炉心の排出に至るような条件での解析を行うこととした。また、建屋への漏洩として、ADS による減圧に用いた SRV のうち 1 弁が開の状態を維持していたと考えられている。この 1 弁が開状態を維持していたため D/W の主蒸気管貫通部から漏洩が生じた可能性についての検討が行われている[2.2-5]。ケース 2 ではこの仮定を考慮した解析を行うこととした。具体的には 48 時間で D/W から建屋 1 階への漏洩パスが形成されるとした。

○ケース 3

53 時間付近の D/W 圧力減少について、RPV 内の水が無くなることで蒸気発生が抑えられ、このために D/W 圧力の減少に至るとする報告[2.2-3]がある。この仮定であれば 53 時間付近の D/W のトップヘッドフランジのガスケット損傷を仮定しないため建屋への漏洩経路、漏洩のタイミングが変わることが予想される。よって代替の事故進展解析として本仮定に基づく解析を行うこととした。53 時間付近で RPV 内水位が無くなるためには 45 時間付近から開始する外部からの代替注水が炉内に届いていないような状況であったとしてこの期間の注水量を 0 とした。また、53 時間付近で RPV 水位が無くなるよう、42 時間付近から行われる代替注水量についても感度解析を行い、おおよそ D/W の圧力履歴を再現するような組み合わせを探索した。ケース 3 もケース 2 と同様に 48 時間付近で D/W の主蒸気管貫通部からの漏洩を仮定した。

(5) 代替事故シナリオの圧力挙動解析結果

○ケース 2

ケース 2 として仮定した代替事故シナリオに基づく D/W の圧力挙動を図 2.2-6 に示す。代替注水量を減少させることで 48 時間付近からの D/W 圧力の上昇が緩やかになり到達する圧力ピークも小さくなり、D/W トップヘッドフランジボルトの延伸による漏洩の影響は非常に小さくなっている。53 時間付近の D/W トップヘッドフランジガスケットの損傷の仮定により D/W 圧力が下がるが、その後の観測された圧力上昇を再現するには至っていない。本ケースでは下部ヘッド破損による溶融炉心の排出事象は起きたがその時間は 67 時間であった。これは想定される下部ヘッド破損時刻よりも遅いことが D/W 圧力の上昇を再現していない原因の一つと考えられる。

○ケース 3

ケース 2 として仮定した代替事故シナリオに基づく D/W の圧力挙動を図 2.2-7 に示す。45 時間付近からの代替注水量を 0 とし、53 時間付近で圧力低下に移行するように本ケースの解析では RPV への注水量を調整している。本ケースでは 57 時間付近で下部ヘッド破損に至り溶融炉心が RPV 外に排出されることで D/W 圧力が上昇している。上昇した圧

力は D/W トップヘッドフランジボルトの延伸や D/W 貫通部からの漏洩により減少するが、60 時間以降で再び上昇している。これは外部からの代替注水が再開されることにより排出された溶融炉心に水が接することで蒸気が発生したことによる。D/W 圧力は上昇し、D/W トップヘッドフランジボルトの延伸による漏洩が再度生じている。このため本ケースでは、複数回にわたり D/W から原子炉ウェルへの漏洩パスが形成されるシナリオとなった。

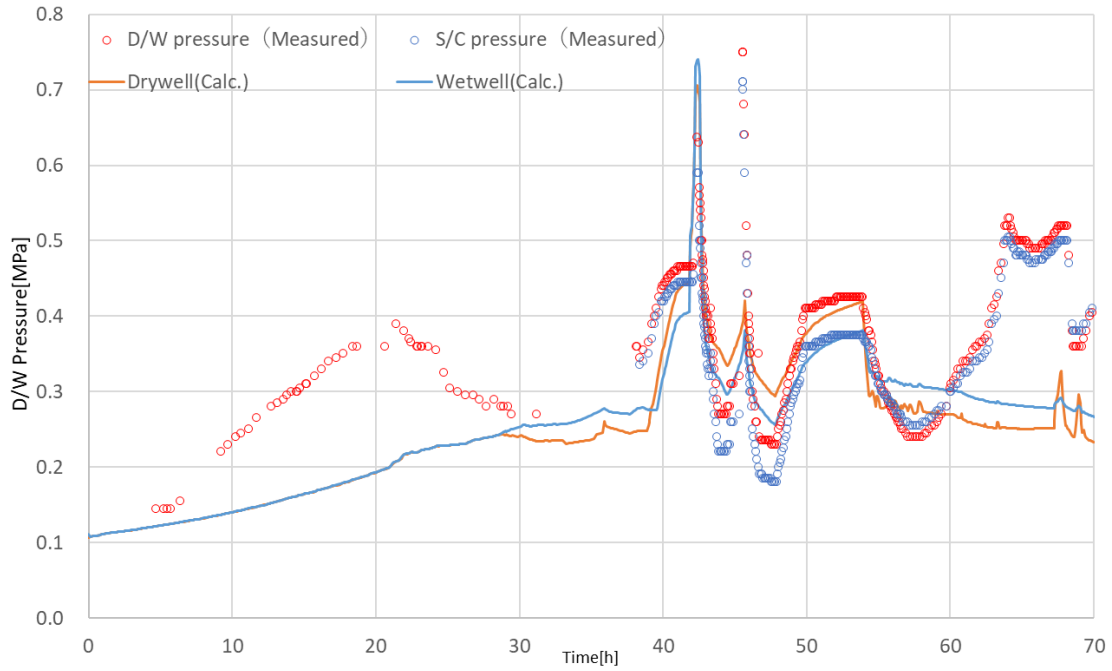


図 2.2-6 ケース 2 圧力挙動解析結果

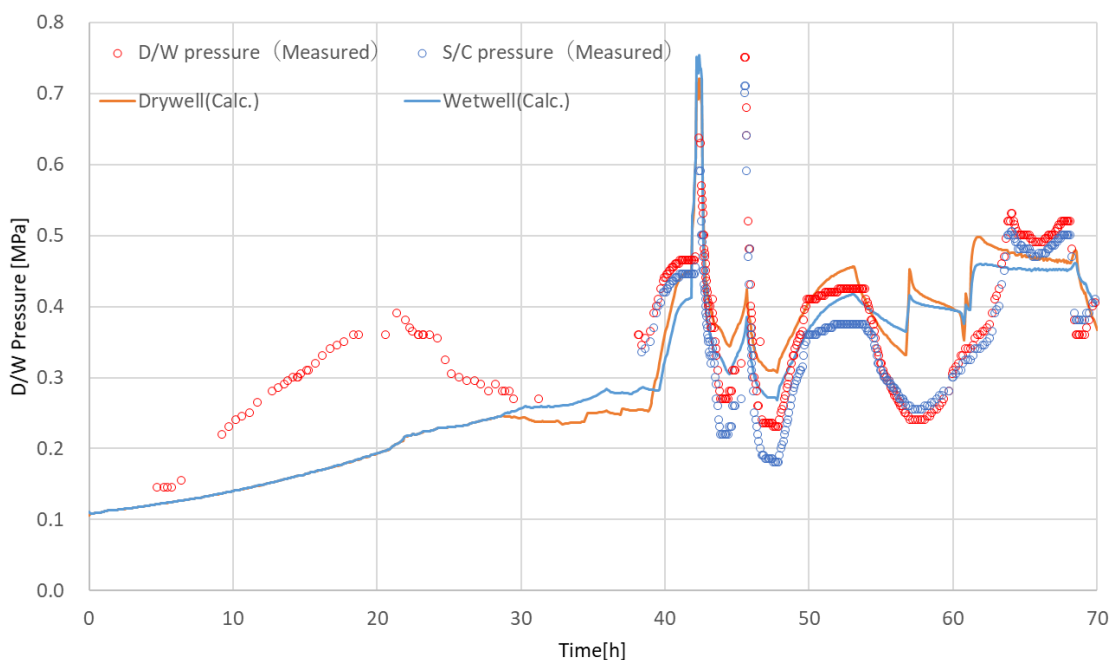


図 2.2-7 ケース 3 圧力挙動解析結果

2.2.3 解析結果

ケース 1 から 3 の 3 ケースについて圧力挙動については前節にて示した。ここでは、3 つのケースの事故進展の違いによる建屋内移行挙動の違いについて比較を行う。

ケース 1 では、RPV 及び CV 挙動から建屋内への FP の移動が生じるのはドライウェル圧力がほぼ一定となる 50 時間以降となる。この期間ではドライウェルのヘッドフランジボルトが内圧のため延伸することにより隙間が生じたと仮定している。このため格納容器内 FP はドライウェル上部から原子炉ウェルに漏洩し、その後シールドプラグの隙間を通じてオペレーションフロア、建屋 4 階、3 階へと移動する。本解析に基づく各フロアにおけるヨウ素、セシウムの壁及び床への沈着量の履歴を示す。なお解析における沈着量は初期インベントリに対する割合で示しており、本結果に例えば西原ら[2.2-6]が解析した 1 F 3 のスクラム時の核種インベントリを乗じることで質量もしくは放射能を得ることができる。

図 2.2-8 及び 2.2-9 にセシウム及びヨウ素の原子炉建屋内分布を示す。セシウム及びヨウ素とも建屋 2 階に沈着している量が多くなった。一方、格納容器からの放出先であるリアクターウェルの沈着は最も少ない。これは非常に高温の状態での放出及びリアクターウェルの体積が非常に小さいため多くの FP は沈着することなくオペレーションフロアを通じて下層階へ移動していったものと考えられる。トラス室はウェットウェルがあるため他の階層と比較して初期の温度は高いが建屋への漏洩が生じると建屋爆発前には 1 階と同程度の温度になっており、FP の沈着量もおおよそ同程度の量となっている。このため下層への移行と下層からの上昇流のバランスによりこのケースでは 2 階、特に壁に付着する可能性が示された。

ケース 2 の建屋内セシウム及びヨウ素の沈着量を図 2.2-10 及び 2.2-11 に示す。ケース 2 では 42 時間でのベント時に D/W 圧力が上昇しトップヘッドフランジから建屋への漏洩

が生じた。48時間のD/W貫通部からの漏洩が生じるとトーラス室及び2階の沈着量が増加するが貫通部のある1階では漏洩により床に沈着していたセシウム及びヨウ素が再浮遊するため一旦沈着量が減少する。最終的にはトーラス室、1~3階まではおおよそ同程度の沈着量となった。63時間付近でも沈着量が増加している。これは62時間あたりでRPV内炉心領域に残っていた燃料が下部ヘッドに移動した際に生じた圧力上昇のためと考えられる。このケースではオペレーションフロアの床が最大の沈着場所となった。

ケース3の建屋内セシウム及びヨウ素の沈着量を図2.2-12及び2.2-13に示す。ケース2と同様42時間のベントによるトップヘッドフランジからの漏洩、48時間のD/W貫通部からの漏洩によるFP沈着の様子がうかがえる。ケース2と異なるのは建屋爆発時の移行挙動である。ケース2ではトップヘッドフランジガスケットの損傷をD/W貫通部の漏洩面積より大きく仮定していること、ケース3の代替注水量が多いことから、ケース3では建屋爆発前のD/W圧力は高く維持されている。代替注水が建屋爆発とともに停止するためD/W圧力が低下しW/Wの圧力が高くなるとW/W内の水がD/Wに逆流しRPVから排出された熔融炉心に接することで新たな蒸気及び水素を発生させD/W圧力を上昇させ、トップヘッドフランジからの漏洩量が増加している。D/W貫通部からはケース3の方が漏洩量が多く1階及びトーラス室の沈着量が多いが、爆発により建屋から環境への漏洩が生じるとその量は低下する。その結果、ケース2の同程度の沈着量となった。ケース3でもケース2と同様オペレーションフロアの床が最大の沈着場所となった。

しかしながら3号機は爆発によりオペレーションフロア及び4階の壁はほとんど破損していることからケース1~3の比較として3階を対象とし、沈着量及びその化学組成について比較することとする。

3階のケース1~3のセシウム及びヨウ素沈着量の比較図を図2.2-14及び2.2-15に示す。また、図2.2-16~2.2-19に3階におけるセシウム化学種の床及び壁沈着量並びにヨウ素化学種の床及び壁の沈着量を示す。

本解析ではヨウ素の化学種はCsI、HI、I₂、有機ヨウ素、セシウム化学種は、CsI、CsOH、Cs₂MoO₄、CsBO₂を考慮している。セシウムの床への沈着ではCs₂MoO₄の形での沈着が多いと予想される。一方壁への付着についてはD/Wトップヘッドフランジからの漏洩のみを仮定したケース1ではCs₂MoO₄、それ以外ではCsOHが多くなることが予想される。また、ケース1ではほとんど観測されないと予想されるCsBO₂がD/W貫通部からの漏洩を仮定したケースでは床、壁双方ともCsOHと同程度存在すると予想される結果となった。

ヨウ素については、有機ヨウ素及びHIについては付着せず、いずれのケースでもCsIが最も多くみられる化学種と予想される。

以上の解析結果から試料の採取及び着目すべき核種並びに比較対象をまとめる。

○2階壁とその他の階のセシウム及びヨウ素元素量

分析量の大小関係から主たる漏洩経路の違いの推定に利用できる可能性がある。

○CsBO₂とCsOHの存在量の比

RPV内の熔融炉心の冷却状態の推定に利用できる可能性がある。

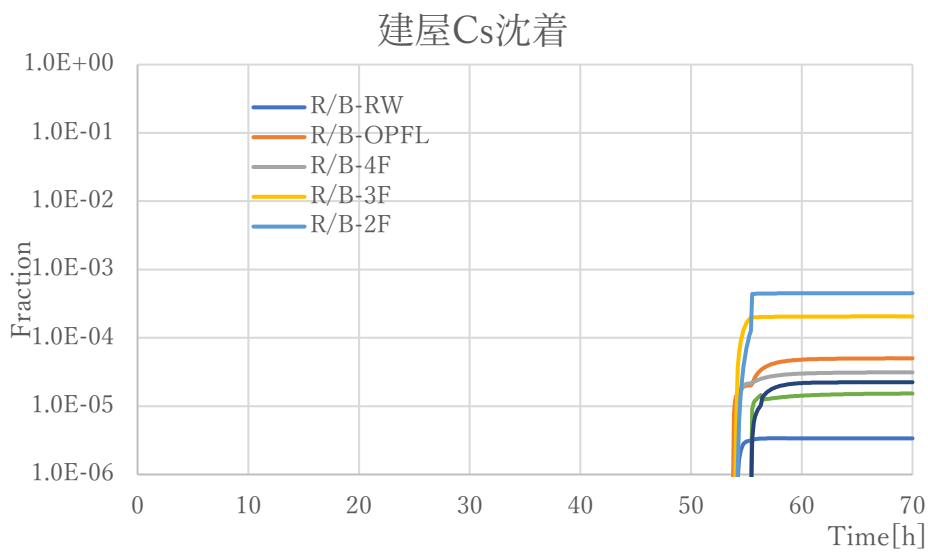


図 2.2-8 ケース 1 原子炉建屋内セシウム沈着量 (解析結果)

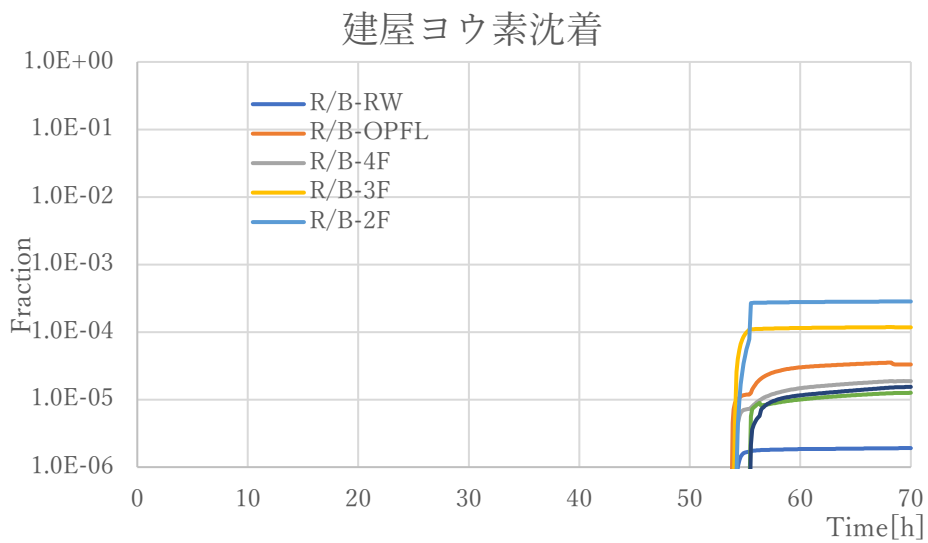


図 2.2-9 ケース 1 原子炉建屋内ヨウ素沈着量 (解析結果)

建屋Cs沈着

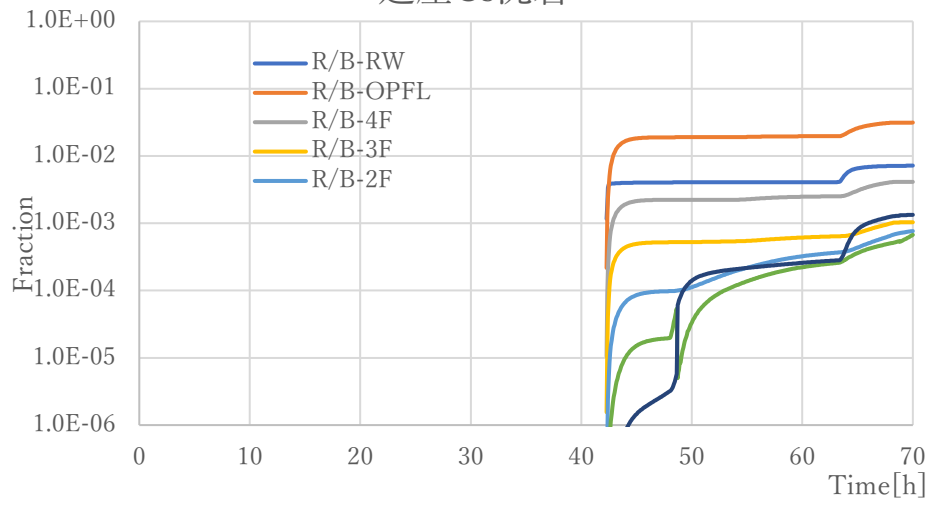


図 2.2-10 ケース 2 原子炉建屋内セシウム沈着量 (解析結果)

建屋ヨウ素沈着

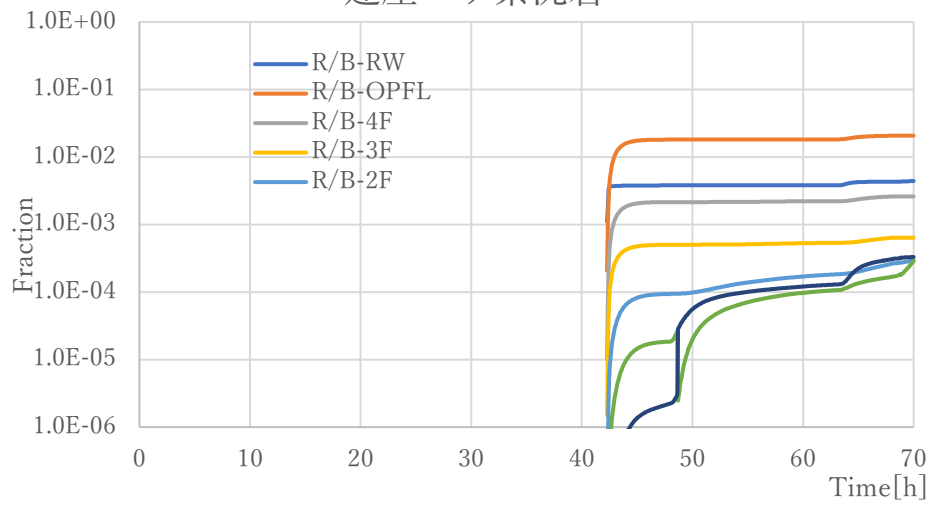


図 2.2-11 ケース 2 原子炉建屋内ヨウ素沈着量 (解析結果)

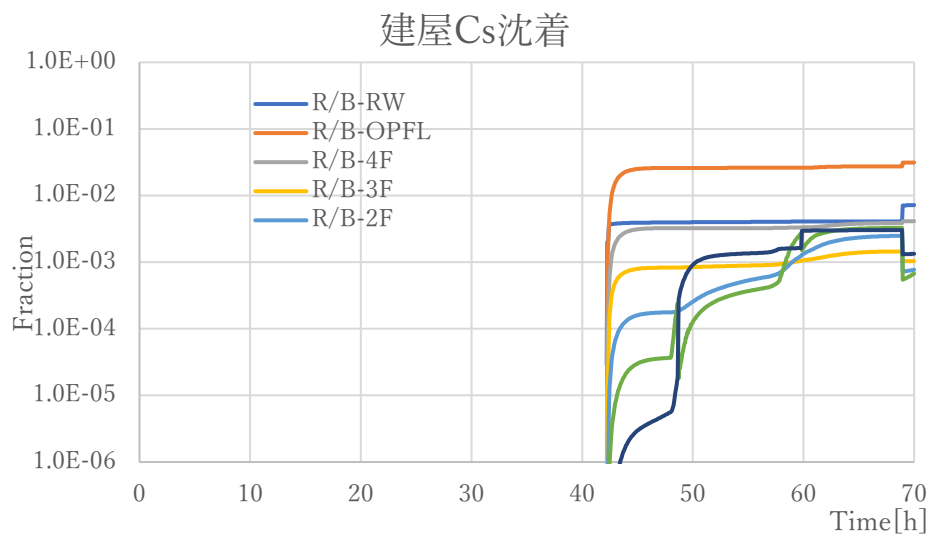


図 2.2-12 ケース 3 原子炉建屋内セシウム沈着量 (解析結果)

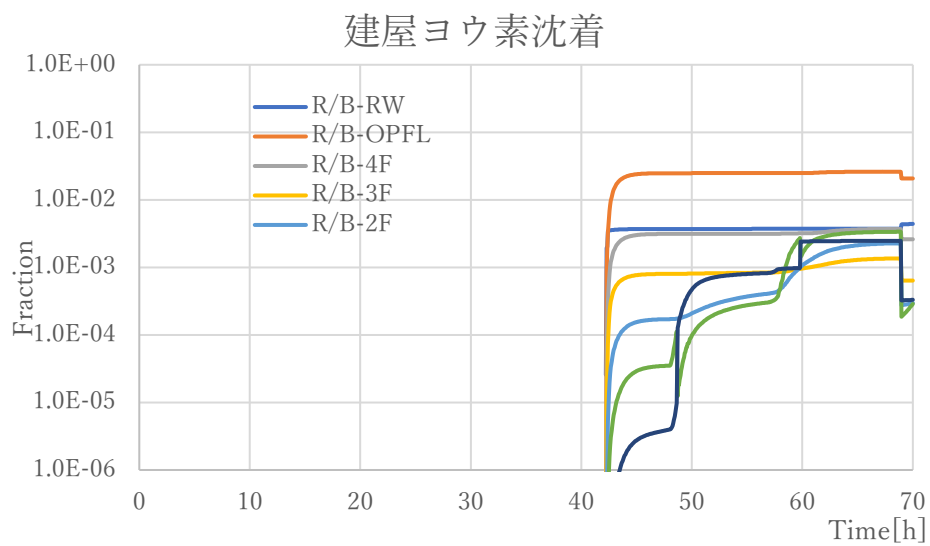


図 2.2-13 ケース 3 原子炉建屋内ヨウ素沈着量 (解析結果)

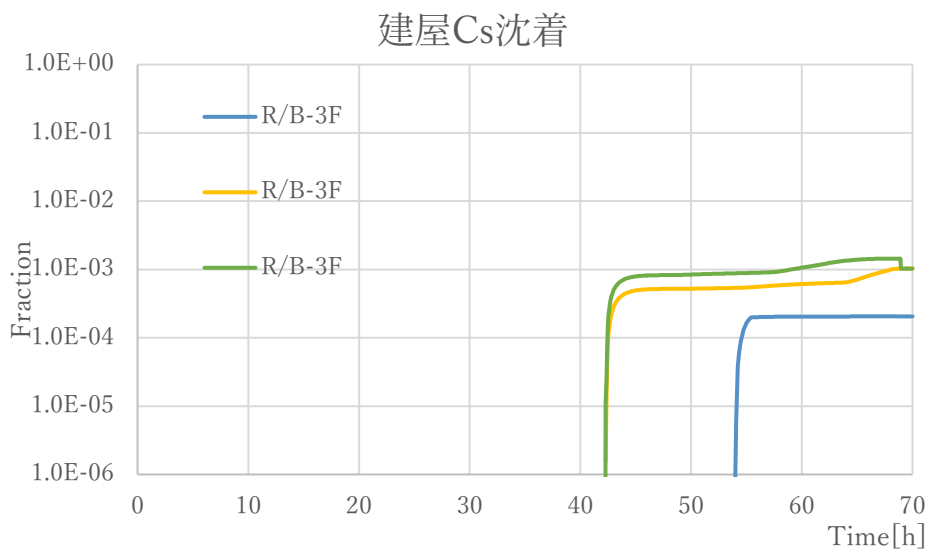


図 2.2-14 原子炉建屋 3 階内セシウム沈着量比較図 (解析結果)

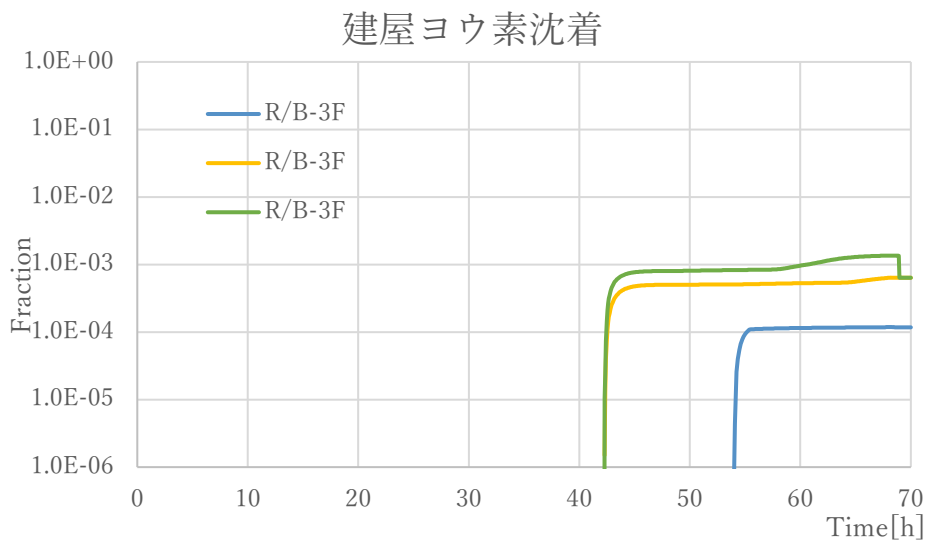


図 2.2-15 原子炉建屋 3 階内ヨウ素沈着量 (解析結果)

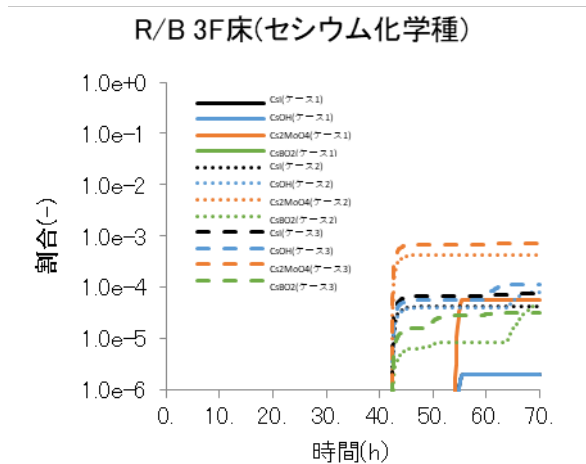


図 2.2-16 建屋 3 階床へのセシウム化学種ごとの沈着量

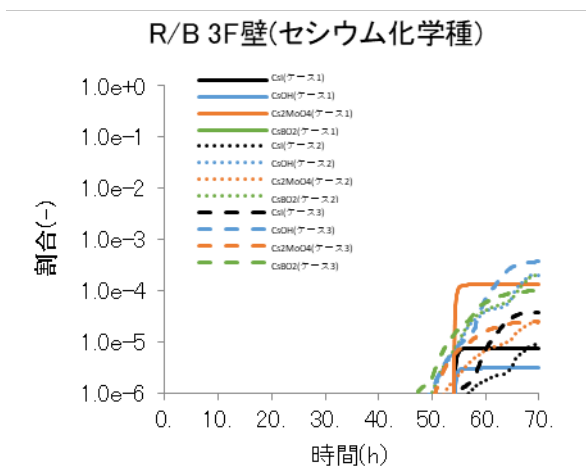


図 2.2-17 建屋 3 階壁へのセシウム化学種ごとの沈着量

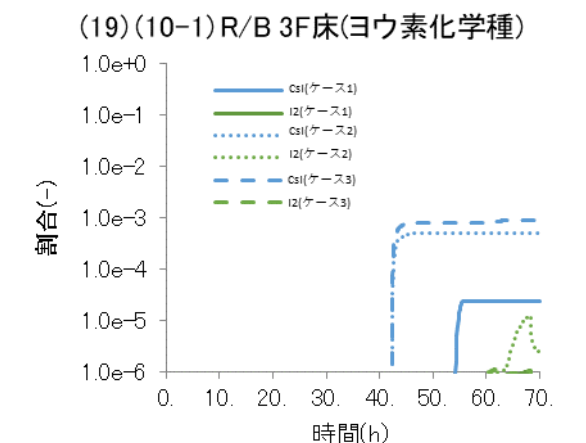


図 2.2-18 建屋 3 階床へのヨウ素化学種ごとの沈着量

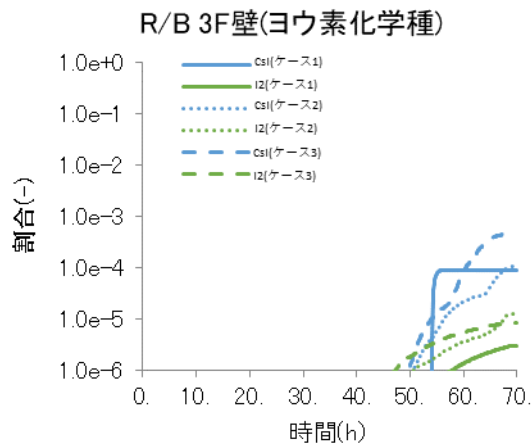


図 2.2-19 建屋 3 階壁へのヨウ素化学種ごとの沈着量

2.2.4 まとめ

JAEA で開発しているシビアアクシデント総合解析コード THALES2/KICHE を用いて 3 号機の事故進展の解析を行った。解析には従来のヨウ素化学反応解析に加え、原子炉容器内のホウ素を含めた FP の化学挙動解析を考慮した THALES2 を利用した。事故進展に関しては、BSAF 計画から得られた知見や東京電力及び規制庁での検討会等の知見を取り込めるものについては反映した解析に加え、漏洩箇所やその発生タイミングが異なる 2 つの事故進展を解析した。いずれの解析ケースでも観測された D/W 圧力履歴をある程度再現できたが事故進展の再現には様々な仮定に基づく感度解析を行い、確からしい事故シナリオの検討は必要である。

3 つの解析結果から、原子炉建屋 3 階への沈着に着目しそれぞれの沈着傾向の比較を行った。ケース 1 では D/W 貫通部の漏洩を考慮していないため他の 2 ケースと沈着挙動やセシウム化学種と異なる傾向が予想される一方、ヨウ素化学種の大小関係には大きな違いは見られなかった。3 つの事故シナリオ解析から CsBO_2 と CsOH の測定量から炉心損傷後の注水や D/W 損傷のタイミングの違いが検討できる可能性が示された。以上の解析結果から試料の採取及び着目すべき核種並びに比較対象として、2 階壁とその他の階のセシウム及びヨウ素元素量、また、 CsBO_2 と CsOH の存在量の比が挙げられ、これらの情報は事故進展の検討に参考となり得る。

参考文献

- [2.2-1] 石川, 森山, "BWR4/Mark-I プラントのヨウ素化学挙動を考慮した格納容器内ソースターム評価に係わる検討", JAEA-Research 2010-051, 日本原子力研究開発機構, February 2011.
- [2.2-2] 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.

- [2.2-3] M. Pellegrini, M. Naitoh, “Three weeks analysis of the Fukushima Daiichi Unit 3 NPP by the SAMPSON code: Contribution to the BSAF-2 project”, Nuclear Engineering and design, Vol. 366, Sep. 2020
- [2.2-4] N. Andrews, et al., “SANDIA NATIONAL LABORATORIES’ CONTRIBUTION TO THE OECD/NEA BSAF PHASE II PROJECT”, NURETH18”, Portland, OR, U.S, Aug. 18-22, 2019.
- [2.2-5] 星陽崇, “3号機の原子炉圧力及び格納容器圧力の挙動について(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14回会合, 資料 2-3, Oct., 2020
- [2.2-6] 西原他, “福島第一原子力発電所の燃料組成評価”, JAEA-Data/Code 2012-018, 日本原子力研究開発機構, Sep. 2012

2.3 データベース作成

東京電力、JAEA、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、土壌等の分析結果に加えて、OECD/NEAの1F関連プロジェクト（BASA-F-2等）から収集した情報を整理し、核種の濃度や分布に関する公開情報を元にデータベースを作成した。

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、表 2.3-2 に示す8つのキーワードを定めて情報を検索できるようにした。本年度は、A～Fのキーワードに加え、収集した情報（過年度に収集した情報も含む）に対し、以下の2つのキーワードを追加した。一つは、炉内状況把握の観点から原子炉内の熱流動や温度分布、圧力変動に着目し、Gとして「プラント状態」、汚染マップやガンマカメラなどの2次元または3次元の汚染状況の広がりに着目し、Hとして「汚染分布」の2つのキーワードを追加し、Gとして72件、Hとして81件のデータを追加した。

さらに本年度は、事故当時の状況を詳しく把握する観点から、原子力規制委員会内で行われている「東京電力福島第一原子力発電所における事故分析に係る検討会」を公開の情報源として追加し、情報を収集及び整理した。また、これらの収集した情報は「情報ソースデータベース」として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て収録するとともに、エクセルファイルの一覧表を作成した。情報を収録したフォルダ及び一覧表のエクセルファイルはDVD-ROMに収納した。さらに、情報ソースデータについては、英語版資料の存在の有無を調査し、存在した資料を情報源ごとにフォルダに分類してDVD-ROMに収納した。

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 2 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	https://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuu-shikisya/tokutei_kanshi/index.html	151	50	0
原子力規制庁面談記録	https://www2.nsr.go.jp/disclosure/meeting/index.html	314	109	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	https://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuu-shikisya/jiko_bunseki01/index.html	51	51	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)	http://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/watermanagement/index-j.html	481	51	51
廃炉・汚染水対策福島評議会	https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning.html#fukushima_hyogikai	27	3	1
廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議	https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning.html#team_jimukyoku	646	258	28
水処理設備の放射能濃度測定結果	http://www.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/index-j.html (水処理設備の分析結果)	56	14	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	http://www.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/index-j.html (その他のサンプリング)	103	10	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 2 年度 追加数	C: B のうち 英語版資料数
IRID 情報	http://irid.or.jp/	60	4	2
JAEA 情報	https://www.jaea.go.jp/	11	0	0
BSAF 情報 (f-dada)	https://fdada.info/home/graph/	17	0	0
東京電力資料	http://www.tepco.co.jp/index-j.html	78	39	14
その他	原子力学会等	7	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会合）へ提供するために、情報ソースデータベースに収納した資料のタイトルを英語に翻訳するとともに、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抽出し、英語版のデータベース（サンプルデータベース）としてエクセルファイルに1～4号機ごとに分けて整理した。新たに、1号機と2号機の間にある排気筒についても対象に加えた。

サンプルデータベースに収録した件数を表2.3-4に示す。1号機については221件（うち新規追加として1階2件、4階8件、5階1件）、2号機は201件（うち新規追加としてトーラス室、1階、5階、各1件、）、3号機は73件（うち新規追加としてトーラス室1件、1階1件、3階13件）、4号機は16件（新規追加なし）の分析データを収録した。サンプルデータベースのエクセルファイルはDVD-ROMに収納した。サンプルデータベースに収録したデータ項目の一覧を表2.3-5に示す。また、抽出した分析データまたは資料に対し、1F事故に関する他のデータベース類である Fukushima Daiichi Radwaste Analytical Data Library（FRAnDLi）及び Information Portal for the Fukushima Daiichi Accident Analysis and Decommissioning Activities（f-dada）、Fukushima Nuclear Accident Archive（FNAA）への収録の有無も調査した。核種濃度については、安全評価上重要と思われる核種を暫定的に対象とし、ガンマ線、ベータ線及びアルファ線の放出核種ごとに分類して収録した。

表 2.3-4 サンプルデータベースに収録した件数

号機	A: 収録総数 (過年度含む)	B: 令和2年度 追加数
1	221	11
2	201	3
3	73	15
4	16	0

表 2.3 5 抽出したデータ項目一覧

データ項目	内容
Building	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
Floor map	サンプリングした場所の概略図
Sampling location	サンプリングした場所
Sampling date	サンプリングした日
Name of sample	文献中のサンプル名
Material	サンプルの情報（材質、量等）
Dose rates ($\mu\text{Sv/h}$)	サンプリングした物の線量率
FRAnDLi	FRAnDLi（福島第一原子力発電所事故廃棄物に関する分析データ集: https://frandli-db.jaea.go.jp/FRAnDLi/ ）への分析データ登録の有無
f-dada	f-dada（ https://fdada.info ）への文献登録の有無
Place of source database	情報ソースデータベースに収録した資料
Reference number	情報ソースデータベースに収録した資料の番号
Reference	文献の URL
FNAA_URL	日本語の資料が原子力機構の福島原子力事故関連情報アーカイブ（FNAA）に登録されている場合、その URL
FRAnDLi number	FRAnDLi での登録文献番号
feasibility of analysis of sample	サンプルの再解析可能性
current residence of sample	保管されているサンプルの現在地
analysis results of main detected nuclides(γ -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(β -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(α -nuclide)	アルファ線放出核種(U-233, U-234, U-235, U-236, U-238, Np-237, Pu-238, Pu-(239+240), Pu-242, Am-241, Am-243, Cm-244)

本年度収集した分析データの概要について、以下に示す。

1号機については、1階 X-2 ペネトレーション付近（図 2.3-1）で取得されたスミア試料の TEM 画像等の公開情報を追加した[2.3-1] [2.3-2] [2.3-3]。主相は (U, Fe, Cr) O₂ 立方晶であるが、単斜晶の ZrO₂ が存在していることから、冷却速度が遅かったことが示唆され、事故進展解析に有用な炉内条件に関する情報が得られている。

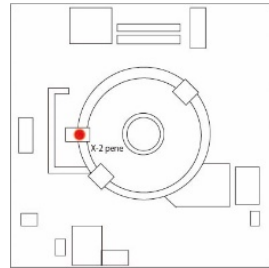


図 2.3-1 1号機 1階 X-2 ペネトレーション付近

1号機 2階原子炉補機冷却水（Reactor Building Closed Cooling Water : RCW）系熱交換器付近（図 2.3-2）の 3D スキャン調査情報を追加した。作業員の被ばく線量低減のため RCW 系統(RCW 熱交換器)の線量低減を計画しており、令和 2 年 12 月現在、RCW 系統の内包水サンプリング用の穿孔位置を検討している段階であり、3階床面から 2階 RCW 熱交換機周囲にむけて調査用の穿孔を実施し、3D スキャナによる 3D データ取得等のアクセス調査を行っている。穿孔は 2021 年 2 月、内包水のサンプリングは 10 月に計画している [2.3-4]。

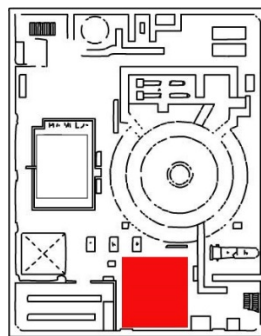


図 2.3-2 1号機 2階 RCW 系熱交換器付近（赤い部分）

1号機原子炉格納容器（PCV）上蓋の状況確認のために 4階床面から高さ 5 m の位置にある原子炉キャビティ差圧調整ラインを切断した際に取得したスミア試料の分析結果[2.3-5]が公開された。アルファ放出核種及びベータ+ガンマ放出核種が検出されている。本年度は配管の出口部周辺線量測定結果等が公開されたことから、それらの情報を追加し、補足した[2.3-6]。

1号機 5階オペレーティングフロアにあるウェルプラグで採取されたスミア試料に付着した固相部分の TEM 画像観察結果が公開された[2.3-3]。1階 X-2 ペネトレーション付近で採取されたスミア試料の TEM 画像と同様に、単斜晶の ZrO₂ の形成が観察されており、冷却速度が遅いことが示された。原子炉圧力容器（RPV）のトップヘッドフランジから放

出された核分裂生成物（FP）がウェルプラグにトラップされた可能性があることから、炉内状況を知る手掛かりと期待されている。

2号機については、1階 X-6 ペネトレーション付近（図 2.3-3）にあるフロントシール内シールリングで取得されたスミア試料[2.3-7]の TEM 画像及び 3D スキャン画像が公開された[2.3-8]。TEM 画像は粒子の視点で見えており、3D スキャン画像は配管全体の外観の観察結果が得られている。TEM 画像からは U-Zr-Fe-Cr-O 系溶融体が観察されている。冷却速度と析出物の大きさは依存することから、スミア試料に付着した固相の形状観察や、表面の構成元素分析を実施することで、他試料同様に事故進展の解明及び燃料デブリ取り出しの検討に活用が期待される。また、3D スキャン画像からは、堆積物の全体像として建屋側で密な状態、配管の中ほどでは砂状という堆積物の性状が確認された。

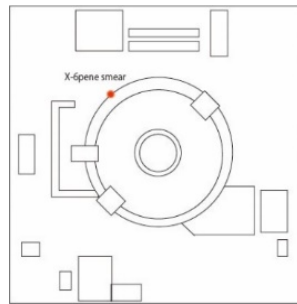


図 2.3-3 2号機 1階 X-6 ペネトレーション付近

2号機 5階シールドプラグ近傍の養生シートについては、SEM 画像が追加で公開された[2.3-3]。画像からは、溶融凝固過程により形成された粒子が観察されている。このことから冷却速度の推定に役立つ可能性がある。

3号機については、1階 X-6 ペネトレーション付近からの PCV 内部調査の際、水中ロボット（ROV 装置）表面への付着物の SEM/TEM 画像が公表された[2.3-3]。 α 核種の多くは粒子として存在し、粒子は立方晶の(U, Fe, Cr)O₂ 固溶体が主相であり、電子線回折図形から微細な結晶子（多結晶粒子中で単結晶とみなせる最小単位）が確認されている。結晶構成から、温度の推移等の事故進展に関する情報が得られる可能性がある。

また、3号機原子炉建屋 5階外壁から水素爆発により飛散したと推定されるコンクリート片をタービン建屋 3階で取得し、JAEA 原子力科学研究所で瓦礫を分析した結果が公開され、サンプルデータベースに追加した[2.3-9][2.3-10][2.3-11][2.3-12]。速報によると 1F 建屋内において規制庁による LaBr₃ 検出器測定では、Cs-134 及び Cs-137 のピークが検出されている。その後、JAEA 原科研において瓦礫と、その浸漬液を JAEA で Ge 半導体検出器を用いて測定した結果、Cs-134 と Cs-137、Co-60 が検出された。SEM/EPMA 分析ではコンクリートに起因する成分のみ検出されており、Cs 除去後の定性分析では Sb-125 や Co-60 の存在可能性が示唆され、定量分析では Sb が検出された。本分析の詳細については、本報告書第 3.1 章に示す。

本年度から公開の情報源として追加した「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」において、1号機と 2号機の排気筒が事故原因分析の対象となっている。このことから、排気筒内に含まれるドレン水や非常用ガス処理系配管（Stand by Gas Treatment System Pipes、SGTS 配管）で採取されたスミア試料等の分析結果をサンプルデータベースに追加した。

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、配管内部で採取されたスミアろ紙やドレン水に含まれる核種や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。加えて、1 号機と 2 号機の間にある排気筒地下のドレンサンプルピットには、雨水が流入しているにもかかわらず、放射能濃度が高いまま継続している原因の調査が行われている[2.3-13][2.3-14][2.3-15]。調査に際し、オフガス系配管側から穿孔し、挿入した操作ポールを用いて、1/2 号機 SGTS 配管の合流部のスミア採取および底部 30 cm 付近の線量測定がなされた[2.3-16]。一方で、雨天時の排気筒内部へのカメラ挿入調査の結果、SGTS 配管からの雨水流入はないことが確認され、放射能濃度が高い原因とは言いえない可能性が確認されている[2.3-17][2.3-18]。今後のさらなる原因調査により、事故進展過程の解明に資する結果が得られる可能性がある。

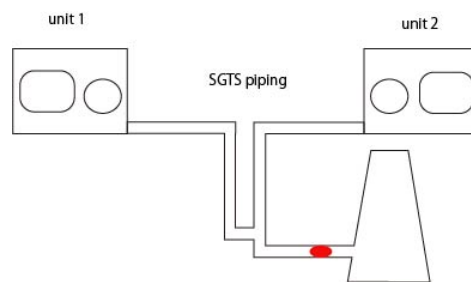


図 2.3-4 排気筒のスミア採取位置（赤丸）

以上により収集・整理した分析データを ARC-F 会合や重大事故解析（2.2 章）へ提供した。

2.3.3 まとめ

本年度は、これまで対象としていた 1～4 号機に加えて 1/2 号機共用排気筒まで対象を広げ、原子力規制庁、経済産業省、東京電力、JAEA、IRID 等によって公開された情報を収集して整理するとともに、情報ソースデータベースとして取りまとめた。情報ソースデータベースの分類にあたり、今年度はプラント状態や汚染分布について新規のキーワードを追加した。

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、1F 事故分析に係る OECD/NEA プロジェクトである ARC-F 会合へ情報提供した。

参考文献

- [2.3-1] 東京電力:1号機 X-2 ペネトレーションからの原子炉格納容器内部調査アクセスルート構築作業の実施状況について,2019年5月30日
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2019/05/3-3-3.pdf>
- [2.3-2] 東京電力:1号機原子炉格納容器内部調査アクセスルート構築に関する試料の構外分析について,2020年10月26日
https://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/reference/pdf/2020/2h/rf_20201026_2.pdf
- [2.3-3] 東京電力:1～3号機格納容器内部調査関連サンプル等の分析結果,2020年11月26日
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/11/3-3-4.pdf>
- [2.3-4] 1号機 RCW 線量低減に向けた現場調査結果,2020年12月24日
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/12/3-3-4.pdf>
- [2.3-5] 東京電力:1号機 PCV 内部調査にかかるアクセスルート構築作業について,2019年10月31日
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2019/10/3-3-2.pdf>
- [2.3-6] 東京電力:1号機原子炉格納容器上蓋の状況確認について,2019年11月28日
<https://www.nsr.go.jp/data/000300424.pdf>
- [2.3-7] 東京電力:2号機原子炉格納容器内部調査装置に関する試料の構外分析について,2020年1月20日
https://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/reference/pdf/2020/1h/rf_20200120_2.pdf
- [2.3-8] 東京電力:2号機 PCV 内部調査及び試験的取り出しの準備状況 X-6 ペネ内堆積物調査の結果,2020年11月26日,
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/11/3-3-3.pdf>
- [2.3-9] 日本原子力研究開発機構 安全研究センター:JAEA における試料分析の計画について,2020年3月27日
<https://www.nsr.go.jp/data/000306624.pdf>
- [2.3-10] 日本原子力研究開発機構 安全研究センター:1, 2号機排気筒ドレンサンプ水のスペクトル分析結果(速報)について,2020年3月27日
<https://www.nsr.go.jp/data/000306610.pdf>
- [2.3-11] 日本原子力研究開発機構安全研究センター,JAEA における試料分析につて,2020年10月16日
<https://www.nsr.go.jp/data/000331516.pdf>

- [2.3-12] 日本原子力研究開発機構安全研究センター,JAEA における試料分析について,
2020 年 11 月 12 日
<https://www.nsr.go.jp/data/000334166.pdf>
- [2.3-13] 1/2 号機 SGTS 配管撤去に向けた現場調査の実施について,2020 年 3 月 16 日
<https://www.nsr.go.jp/data/000305423.pdf>
- [2.3-14] 1/2 号機 SGTS 配管撤去に向けた現場調査の実施について,2020 年 3 月 27 日
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/03/3-1-4.pdf>
- [2.3-15] 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 2020 年 4 月 30 日
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/04/3-1-2.pdf>
- [2.3-16] 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 2020 年 6 月 15 日
<https://www.nsr.go.jp/data/000314045.pdf>
- [2.3-17] 1/2 号機 SGTS 配管撤去に向けた今後の調査方針について 2020 年 7 月 20 日
<https://www.nsr.go.jp/data/000319212.pdf>
- [2.3-18] 1/2 号機 SGTS 配管撤去に向けた調査結果について 2020 年 10 月 29 日
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/10/3-1-4.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 4 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 4 回会合

- ・ 開催日時：令和 2 年 12 月 14 日(月)～16 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、他プロジェクト (PreADES、TCOFF) との連携、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報告を行った。報告した内容を次ページ以降に示す。

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、ARC-F プロジェクトと関連が深い OECD/NEA の国際プロジェクト「デブリの性状推定及びデブリ分析計画の検討 (PreADES)」会合に出席し、燃料デブリの採取・貯蔵・分析についての議論に参加するとともに、各種サンプル分析状況等の情報を収集した。



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.
 - Recently, the Office for Accident Measures of the Fukushima-Daiichi NPS (so-called “1F-office”) of NRA has provided much information on their investigation of unsolved questions.
 - 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

* effective information to estimate plant status at the accident.
e.g. “Reactor Cooling Water Temporary Suspension Test & PCV top head investigation at Unit 1” presented in the last Information Session.



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
 - Number of new information releases is limited this year.
 - Recently added information:
 - Nuclide analysis results of contaminated water from the units 1&2 exhaust stack drain sump pit (NRA, JAEA, TEPCO)
 - Remote smear sampling at the inner surface of the unit 1 vent line at the base of unit 1&2 exhaust stack (TEPCO)
 - Nuclide analysis results of concrete rubbles of the unit 3 R/B, especially focusing on rubbles from the inner wall of the operating floor (NRA, JAEA, TEPCO)

2



Database building

- Transition of the database platform to Adobe FileMaker is being conducted.
- Forms of database provision to members are, for a while, stand alone files of Excel and FileMaker.
- Web access to the database will be established, but location (whose server?), policy and cost for long-term maintenance, etc. must be discussed with NEA, TEPCO and other stakeholders.
- Building links to other databases takes time.

3



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

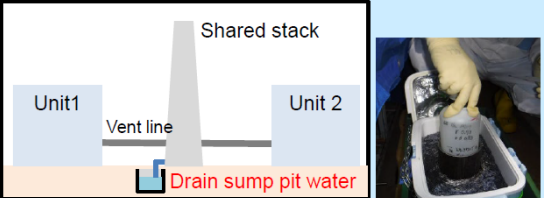
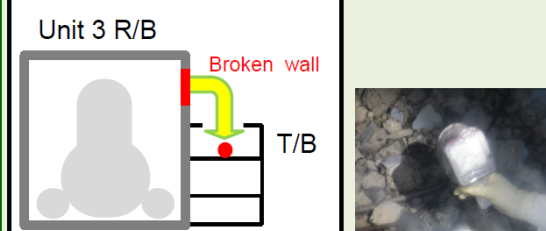
- Radionuclide analyses of on-site samples taken from the Fukushima Daiichi NPS (1F) are useful and effective to discuss the distribution, release path and chemical speciation of FPs. Obtained data and information assist the improvement and validation of modeling in severe accident analysis codes.
- 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 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.

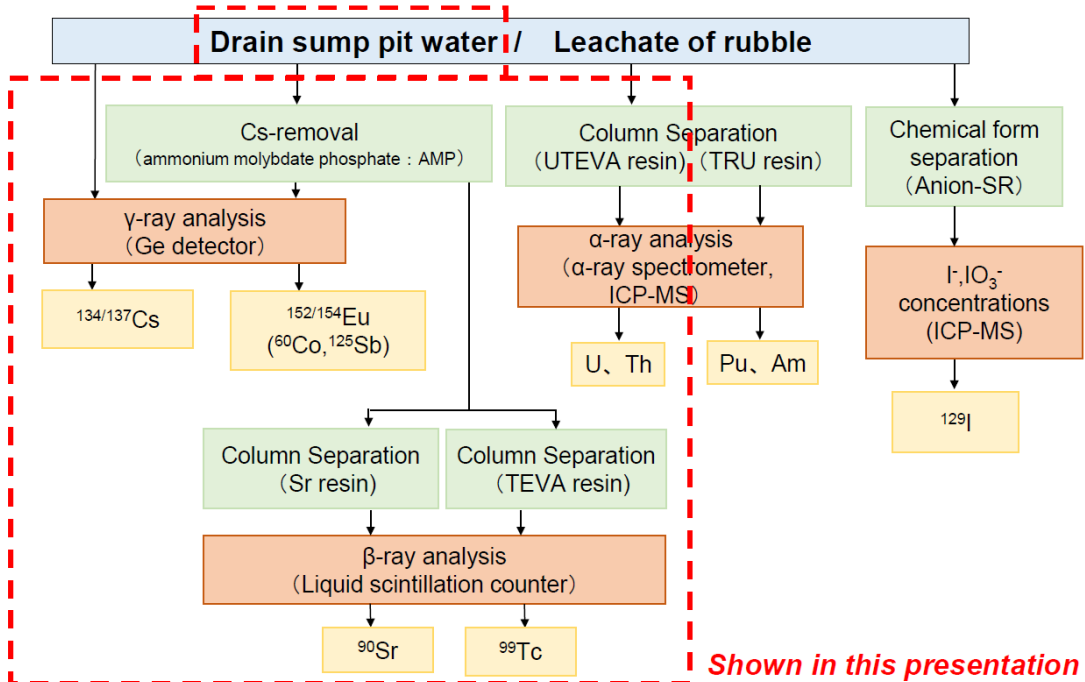
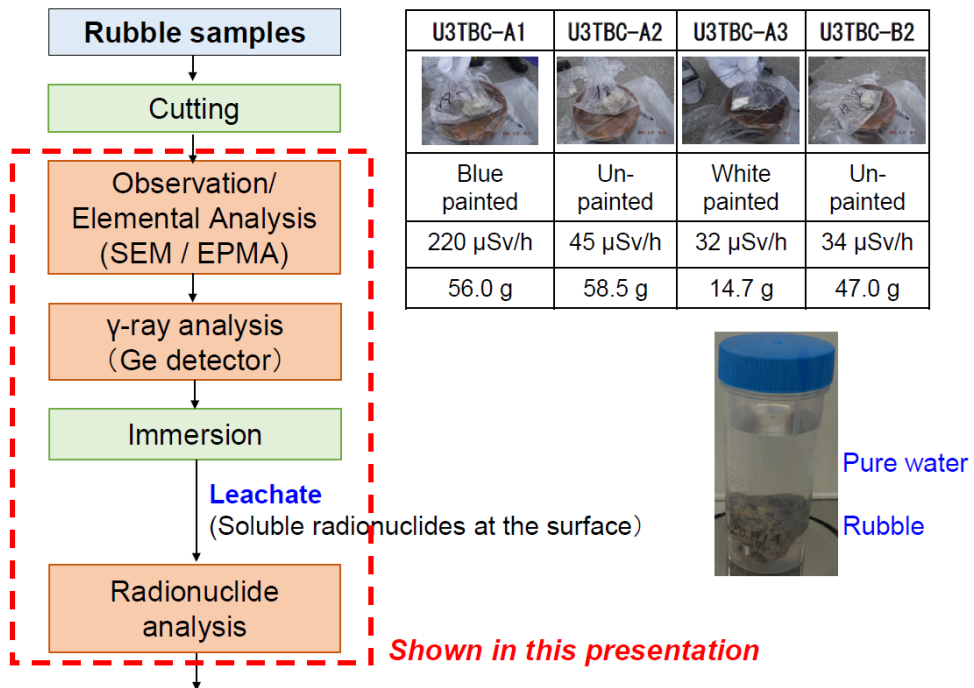
From a viewpoint of FP transport and distribution, radionuclide analyses are being carried out for various types of samples (contaminated water, concrete rubble, etc.) taken from various locations of 1F.

- **Relatively highly volatile FPs (Cs-134, Cs-137, I-129, Mo-99(=>Tc-99))**
 - ✓ Cesium and iodine (mainly ¹³¹I) are important FPs for the consequence analysis of severe accidents.
 - ✓ The release of ¹³¹I (half life: 8.0 days) which is important for health effects assessment is possibly estimated from the analysis for relatively stable ¹²⁹I (half life: 15.7M years).
 - ✓ The chemical form of Mo depends on the atmosphere inside the reactor vessel; molybdenum is prone to be released and possibly form Cs₂MoO₄ as the major chemical form of Cs under the oxidized atmospheric conditions with sufficient water vapor inside the reactor vessel.

- **Lower volatile FPs (Sr-90, Eu-152/154) and actinides (Th, U, Pu, Am)**
 - ✓ These radionuclides were possibly released as aerosols generated in reactor vessel and also by MCCI.

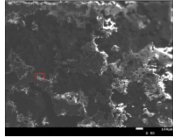
Drain sump pit water and concrete rubble samples were collected.

<p>Drain sump pit water at the base of stack shared by Unit 1 and 2</p>  <ul style="list-style-type: none"> ✓ It is presumed to be dew condensation water and rainwater in the stack accumulated in the drain; sampled in Sep 2016. ✓ Sample ID: U12SDW 	<p>Concrete rubbles at Unit 3 turbine building</p>  <ul style="list-style-type: none"> ✓ These are presumed to be the wall of Unit 3 reactor building broken by the hydrogen explosion and fallen into the turbine building; sampled in Feb 2020. ✓ Sample IDs (4 samples): U3TBC-A1, U3TBC-A2, U3TBC-A3, U3TBC-B2
---	---



➤ Rubble samples

1. SEM/EPMA analysis for rubbles



➤ Only Ca and Si (basic elements of concrete) were detected; radionuclides were not detected.

2. Qualitative γ -ray analysis for rubbles
3. Qualitative γ -ray analysis for the leachate of rubbles

➤ Drain water sample

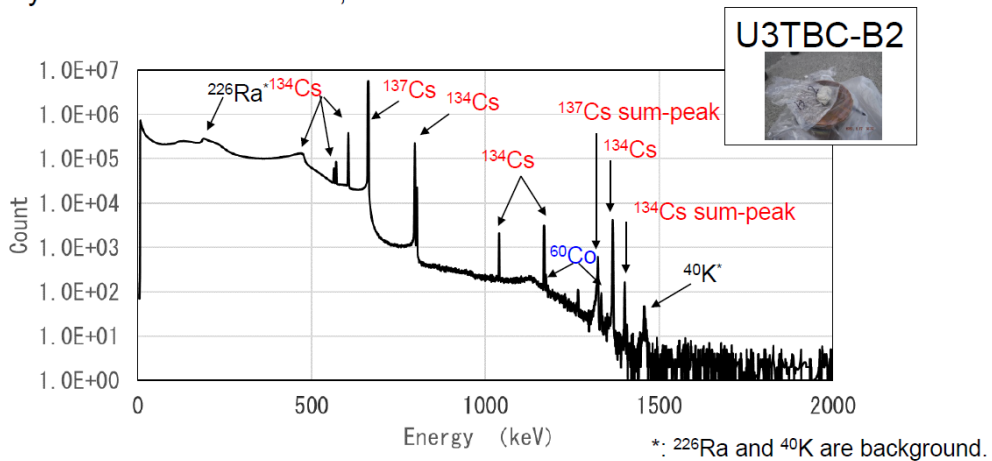
4. Quantitative γ -ray analysis for the drain water
5. Quantitative γ -ray analysis for the Cs-removed drain water
6. Concentrations of ^{90}Sr and ^{99}Tc in drain water (by LSC)
7. Concentrations of Th and U (by ICP-MS)
 - Below the detection limit (4.7 ppb)



These results will be shown in the next slides.

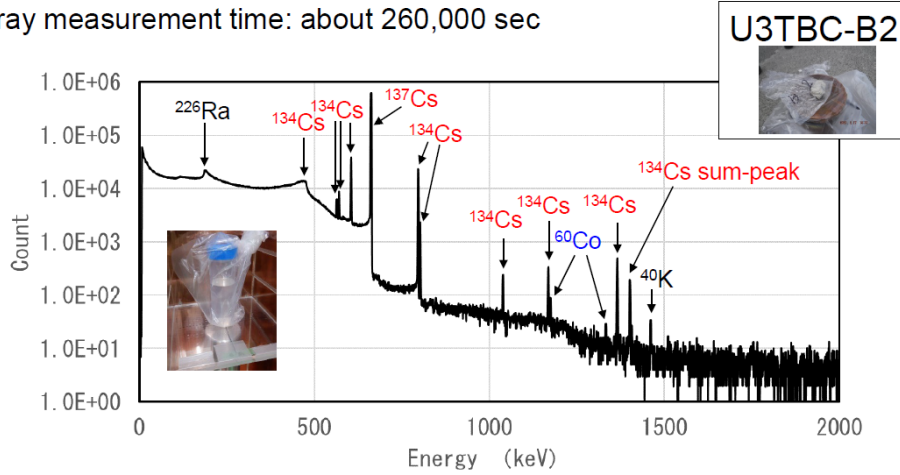
JAEA 2. Qualitative γ -ray analysis for rubbles

- Rubble samples were analyzed without crushing.
- γ -ray measurement time: 72,000 sec



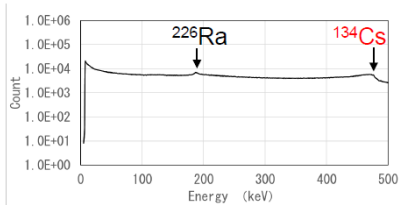
- Peaks of ^{134}Cs , ^{137}Cs and ^{60}Co were detected.
- Similar peaks were obtained for the other rubble samples.

- The leachate obtained by immersing U3TBC-B2 (47.0 g) in pure water (91.4 g) for 7 days.
- γ -ray measurement time: about 260,000 sec



- Peaks of ^{134}Cs , ^{137}Cs and ^{60}Co were detected (same as rubble samples).

- γ -ray measurement time: about 260,000 sec

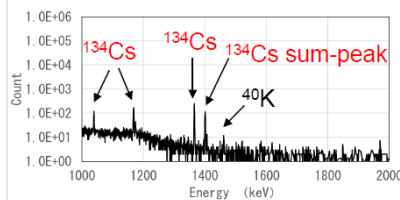
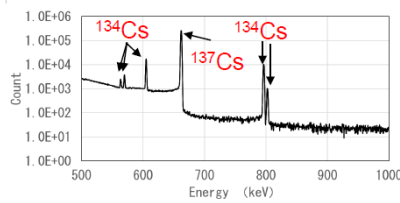


Peaks of ^{134}Cs and ^{137}Cs were detected

✓ ^{134}Cs concentration: $2.4 \times 10^3 \text{ Bq cm}^{-3}$
 ($5.1 \times 10^4 \text{ Bq cm}^{-3}$; $8.0 \times 10^{-12} \text{ mol cm}^{-3}$)*1

✓ ^{137}Cs concentration: $4.8 \times 10^4 \text{ Bq cm}^{-3}$
 ($5.9 \times 10^4 \text{ Bq cm}^{-3}$; $1.4 \times 10^{-10} \text{ mol cm}^{-3}$)*1

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



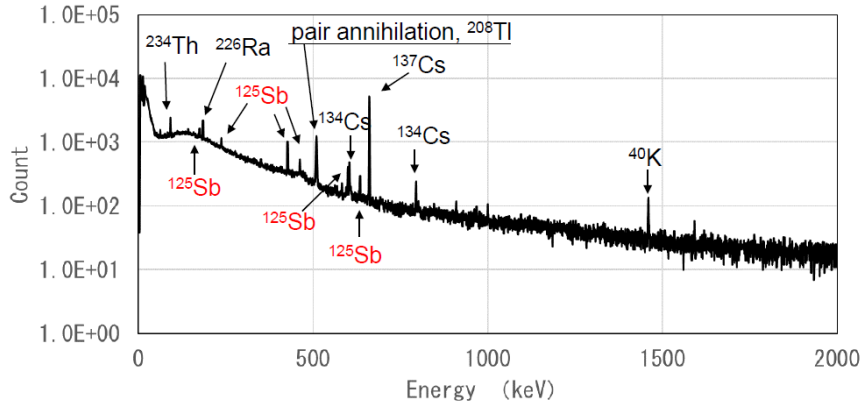
Initial inventory for unit 1 estimated by ORIGEN2*2

✓ ^{134}Cs : (30 mol core^{-1})*2

✓ ^{137}Cs : ($460 \text{ mol core}^{-1}$)*2

*2 : JAEA-Data-Code-2012-018

➤ γ -ray measurement time: about 1,200,000 sec



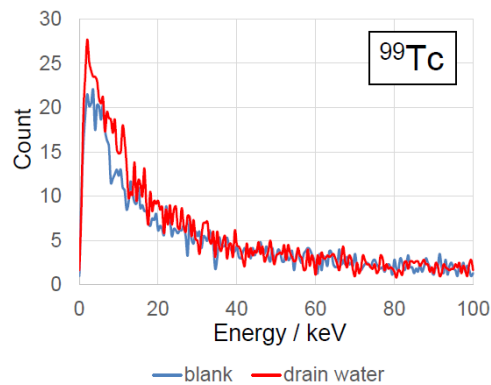
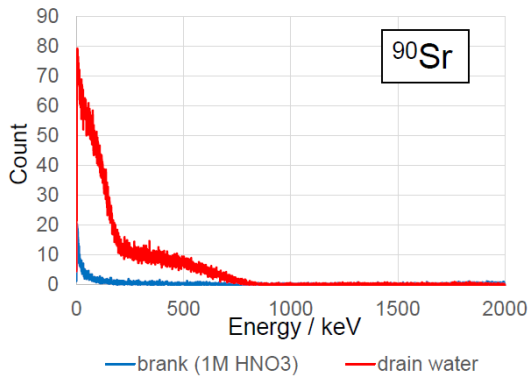
Peaks of ^{125}Sb were detected.

✓ ^{125}Sb concentration : 14 Bq cm^{-3} ($1.5 \times 10^2 \text{ Bq cm}^{-3}$; $3.3 \times 10^{-14} \text{ mol cm}^{-3}$)^{*1}

✓ Mole ratio in drain water^{*1}: $^{125}\text{Sb} / ^{137}\text{Cs} = 2.4 \times 10^{-4}$
 (mole ratio in initial inventory for unit 1: $^{125}\text{Sb} / ^{137}\text{Cs} = 4.9 \times 10^{-3}$)^{*2}

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

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



✓ Recovery rate of Sr : $92 \pm 8 \%$

✓ ^{90}Sr concentration : 47 Bq cm^{-3}

(51 Bq cm^{-3})^{*1}

(59 Bq cm^{-3} ; $1.3 \times 10^{-13} \text{ mol cm}^{-3}$)^{*2}

✓ The concentration of ^{99}Tc could not be determined (little difference between drain water and blank).

*1: Decay-corrected to the time of the collection (Sep 2016)

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

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

✓ Mole ratio in drain water^{*2}: $^{90}\text{Sr} / ^{137}\text{Cs} = 9.5 \times 10^{-4}$

(Mole ratio in initial inventory for unit 1: $^{90}\text{Sr} / ^{137}\text{Cs} = 7.1 \times 10^{-1}$)^{*3}

➤ **Rubble samples**

1. SEM/EPMA : Only Ca and Si were detected; radionuclides were not detected.
2. γ -ray analysis (qualitative): Peaks of ^{134}Cs , ^{137}Cs and ^{60}Co were detected.
3. γ -ray analysis for leachate (qualitative): Same as above.

➤ **Drain water sample**

4. γ -ray analysis : ^{134}Cs ($2.4 \times 10^3 \text{ Bq cm}^{-3}$), ^{137}Cs ($4.8 \times 10^4 \text{ Bq cm}^{-3}$)
 5. γ -ray analysis for the Cs removed drain water: ^{125}Sb (14 Bq cm^{-3})
 6. Concentrations of ^{90}Sr and ^{99}Tc : ^{90}Sr (47 Bq cm^{-3}), ^{99}Tc ($< \text{D.L.}$)
 7. Concentrations of Th and U : Th, U $< 4.7 \text{ ppb}$
- ✓ Mole ratios in drain water*¹ $^{137}\text{Cs} : ^{134}\text{Cs} : ^{125}\text{Sb} : ^{90}\text{Sr} = 1.0 : 5.9 \times 10^{-2} : 2.4 \times 10^{-4} : 9.5 \times 10^{-4}$
(Initial inventory for unit 1*² $^{137}\text{Cs} : ^{134}\text{Cs} : ^{125}\text{Sb} : ^{90}\text{Sr} = 1.0 : 6.5 \times 10^{-2} : 4.9 \times 10^{-3} : 7.1 \times 10^{-1}$)

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

*2: Estimated by ORIGEN2

➤ **Future work**

- Rubble samples: Analysis for Cs removed leachate.
- Drain water sample: Concentration measurements for ^{129}I , Pu and Am.

3. 1F 事故分析検討会に係る実施項目

3.1 1F 試料分析

本分析では、コンクリート瓦礫試料及びドレンサンプル水試料の分析を通じて3号機の原子炉建屋内に放出された放射性物質及び1号機の格納容器ベント時に共用スタックに流入した放射性物質の組成や化学形の推定に有用な情報を取得することを目的として、水素爆発を経験した3号機原子炉建屋の壁外側及び壁内部もしくは壁内側と推定されるコンクリート瓦礫試料および1/2号機共用排気筒のドレンサンプル水試料の汚染程度を測定した。特に、以下に着目して、Cs-134、Cs-137、Sr-90、Tc(Mo)-99、I-129及び α 核種(Th、U、Pu、Am)を主な分析対象核種とした。

- ・ Csの化学形は原子炉容器内の雰囲気依存し得る(原子炉容器内に水蒸気が十分にある酸化雰囲気条件下で事故が進展した場合、Moが燃料から放出されやすくなり、Cs₂MoO₄がCsの主要な化学形になる可能性がある)。
- ・ MCCIにより中・難揮発性の放射性物質(Srや α 核種)がエアロゾルとして放出される可能性がある。
- ・ I-129(長半減期)の瓦礫等への沈着密度(単位面積当たりの沈着量)が判ると、健康影響評価上重要なI-131(短半減期)の放出量を概略評価できる可能性がある。

3.1.1 3号機タービン建屋内コンクリート瓦礫試料分析

水素爆発により3号機タービン建屋内に飛散したと考えられる3号機原子炉建屋の壁外側及び壁内部もしくは壁内側と推定される4種類のコンクリート瓦礫試料を、3号機タービン建屋内で採取し、原子力機構に輸送して分析を実施した。コンクリート瓦礫試料

(U3TBC-A1～A3及びB2)の外観、線量、重量を図3.1-1に示す。一部の瓦礫では塗装が確認でき、3号機原子炉建屋の壁外側及び壁内部もしくは壁内側と推定された。全体の分析フローを図3.1-2、図3.1-3に示す。4種類のコンクリート瓦礫試料についてGe半導体検出器を用いたガンマ線核種分析、並びに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(EPMA)を実施した。また、一部の試料について試料表面の可溶性核種の存在を確認するために瓦礫試料の浸漬試験を行い、浸漬液のガンマ線核種分析を実施した。

SEM観察およびガンマ線核種分析に供するためにリューターを用いて瓦礫試料を切断した。図3.1-4、図3.1-5は切断前後の瓦礫の外観を示す。切断時に塗装の一部が剥離しており、塗装は劣化していると考えられた。図3.1-6から図3.1-10はガンマ線核種分析の結果を示す。瓦礫形状のままガンマ線核種分析に供した。また、U3TBC-A1については、塗装領域と塗装以外の領域で試料を切断採取しており、両者の試料について分析を実施した。図3.1-6から図3.1-10より、いずれの試料においても、主要な核種は、Cs-134、Cs-137で、一部の試料でCo-60が観察された。なお、K-40、Ra-226は天然由来と考えられた。図3.1-11は、瓦礫試料(U3TBC-B2)を1週間浸漬後の浸漬液のガンマ線核種分析結果を示す。定性的な傾向は瓦礫の分析結果と同様でCs-134、Cs-137、Co-60が観察された。図3.1-12はU3TBC-A2のSEM観察および元素分析の結果を示す。図3.1-13はU3TBC-A1、A3の塗装領域のSEM観察および元素分析を示す。いずれの結果においてもコンクリートや塗装の成分と推測される元素のみが観察され、原子炉由来の元素は確認されなかった。

3.1.2 1号機及び2号機共用スタック基部ドレンサンプル水試料分析

図 3.1-1 に示す 1/2 号機共用排気筒のドレンサンプル水（2016 年 9 月に採取したものから 30ml を分取）および Cs を除去した試料に対して Ge 半導体検出器を用いたガンマ線核種分析を実施した。ドレンサンプル水(未処理)の定量分析結果を図 3.1-14、Cs 除去液の定性分析結果を図 3.1-15、Cs 除去液の定量分析結果を図 3.1-16 に示す。ドレンサンプル水(未処理)の分析では、Cs-134、Cs-137 が観察されたのに対して、Cs 除去液の分析では Sb-125、Co-60 が確認された。

塩分計(HORIBA 製 AQUA twin <Salt-22>)を用いた測定より、ドレンサンプル水の塩濃度は 0.01%であった。

Sr-90 については、Sr レジンをを用いて Cs を除去したドレンサンプル水から Sr を分離・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測定した。測定結果を図 3.1-17 に示す。2 つの分取液に対して測定を実施し、ブランク測定と比較していずれにおいてもカウントが増加する傾向を示した。

Tc-99 については、TEVA レジンをを用いて Cs を除去したドレンサンプル水から Tc を分離・精製後、液体シンチレーションカウンタで測定した。その結果を図 3.1-18 に示す。Mo 同位体についてはドレン水及びブランク試料を調製し、TEVA レジンをを用いて Mo を分離・精製し、二重収束型質量分析計で同位体比を測定した。I-129 については 2 章で開発した並列型分離法により I^- と IO_3^- をそれぞれ定量した。U と Th については、ドレン水試料およびその中にスパイクを入れた試料並びにブランク試料を調製し、UTEVA レジンをを用いて Th と U を分離・精製・希釈し、誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)で測定した。Am と Pu については、ドレン水試料及びその中にスパイクを入れた試料を調製し、TRU レジンをを用いて Am と Pu を分離・精製した後、各フラクションに Sm とフッ化水素酸(HF)を添加して SmF_3 と共沈させ、PTFE メンブレンフィルタ上に捕集し、 α 線スペクトロメータにより測定した。

1/2 号機共用排気筒のドレンサンプル水試料の汚染の程度を測定した結果は以下のとおりであった。

Cs-134 : 2.4×10^3 Bq/cm³ (5.1×10^4 Bq/cm³ ※)

Cs-137 : 4.8×10^4 Bq/cm³ (5.9×10^4 Bq/cm³ ※)

Sb-125 : 14 Bq/ml (1.5×10^2 Bq/cm³ ※)

Sr-90 : 47 Bq/ml (59 Bq/cm³ ※)

I-129 : 1.4×10^{-1} Bq/ml (1.4×10^{-1} Bq/cm³ ※)

(I^- : 1.2×10^{-1} Bq/cm³、 IO_3^- : 1.6×10^{-2} Bq/cm³)

Co-60、Tc-99、 α 核種 (Th、U、Pu、Am) : 検出下限値以下

(※ 半減期を考慮して推定した事故当時の値)

また、測定された Mo の同位体比は天然の同位体比とは異なっていた。炉内ではほとんど生成しない質量数 92 の Mo 濃度をもとに天然由来の Mo の濃度を推定し、測定された Mo 濃度から差し引いたものを原子炉内から放出されたものとして算出したところ、質量数 95、96、97、98、100 の Mo 同位体比は ORIGEN 計算[1]により 1 号炉内で生成した

それらの Mo の同位体比と測定誤差の範囲内で一致し、原子炉由来と考えられる Mo の濃度は合計で 0.13 ng/cm³ となった。

I の化学形態としては約 90% が I⁻、約 10% が IO₃⁻ となった。事故から時間が経っているため、この存在割合がそのまま事故時の存在割合であるとは言えないが、ドレン水は空气中（酸化性雰囲気）で保管されていたことから、I⁻ が IO₃⁻ に変化すると考えられるにもかかわらず、I⁻ が主な化学形態で観測されたことから、ドレン水中の化学形態としては事故時も I⁻ が主であったと考えられる。





本測定から得られた Cs-134/Cs-137 比は、ORIGEN[3.1-1]で解析した初期インベントリの比とほぼ同等であった。また、Sb-125/Cs-137 比、Sr-90/Cs-137 比及び Mo/Cs-137 比は初期インベントリの比と比較して 2~3 桁程度低い値であった。一方、I-129/Cs-137 比は初期インベントリの比と比較して 1 桁ほど高い値であった。

参考文献

- [3.1-1] 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号機タービン建屋内コンクリート瓦礫試料

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

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

○1号機及び2号機共用スタック基部ドレンサンプル水試料

スタック内の凝縮水や雨水が溜まったと推定されるもの(2016年9月採取)

約30 mlを分取して輸送(試料ID: U12SDW)

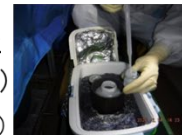


図 3.1-1 3号機タービン建屋内コンクリート瓦礫試料および1-2号機共用スタック基部ドレンサンプル水試料

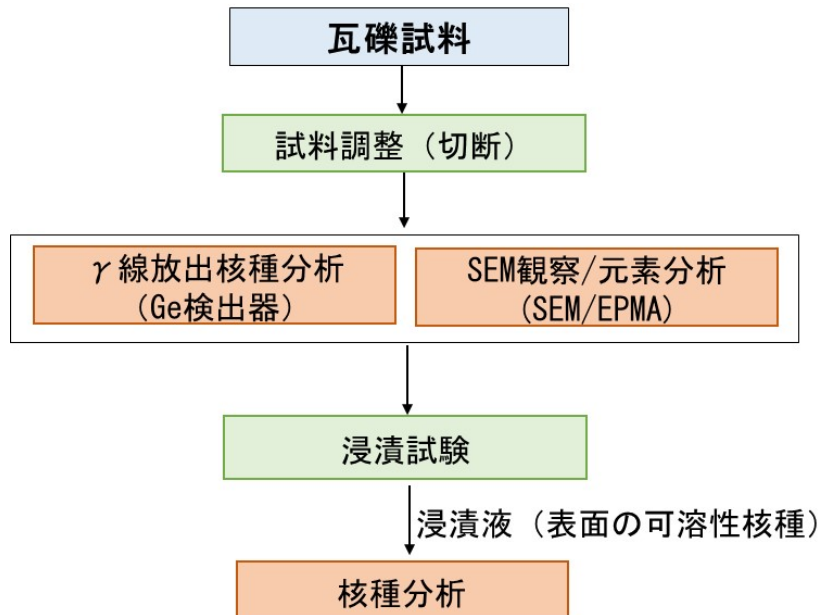


図 3.1-2 分析フロー (瓦礫試料)

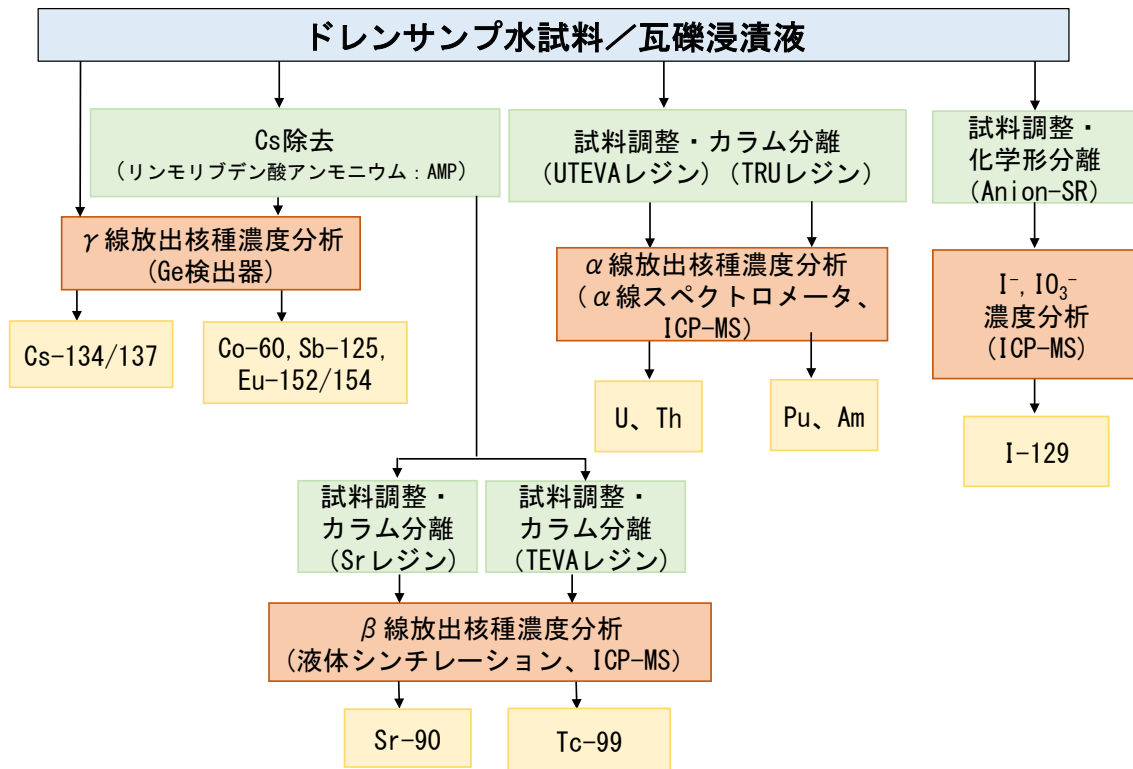
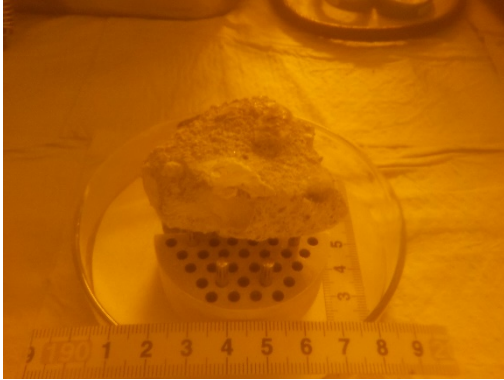
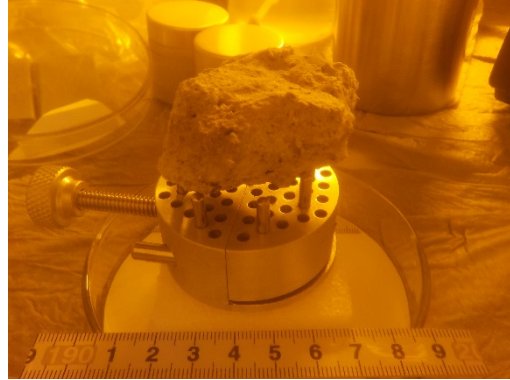


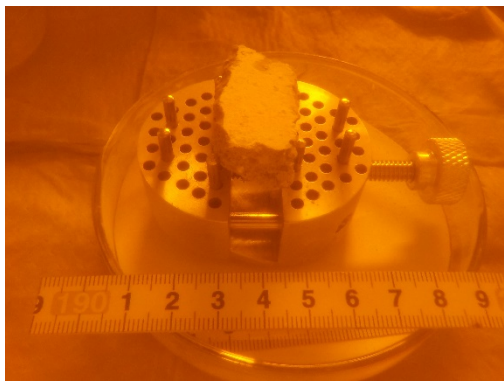
図 3.1-3 分析フロー（ドレンサンプル水試料／瓦礫浸漬液）



U3TBC-A1

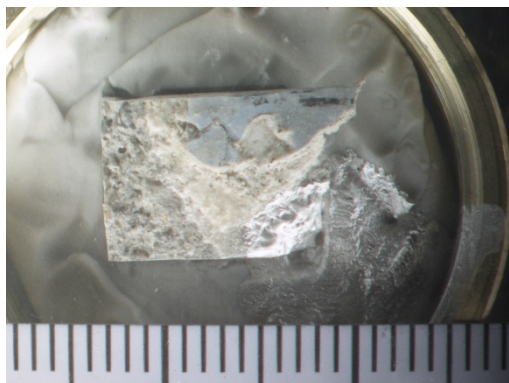


U3TBC-A2



U3TBC-A3

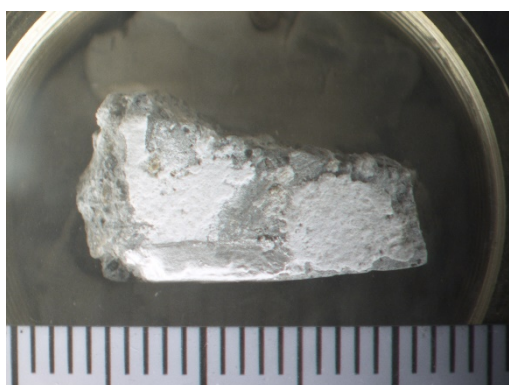
図 3.1-4 瓦礫 (U3TBC-A1、-A2、-A3) の外観観察



U3TBC-A1



U3TBC-A2



U3TBC-A3

図 3.1-5 切断後の瓦礫（塗装領域）の外観観察

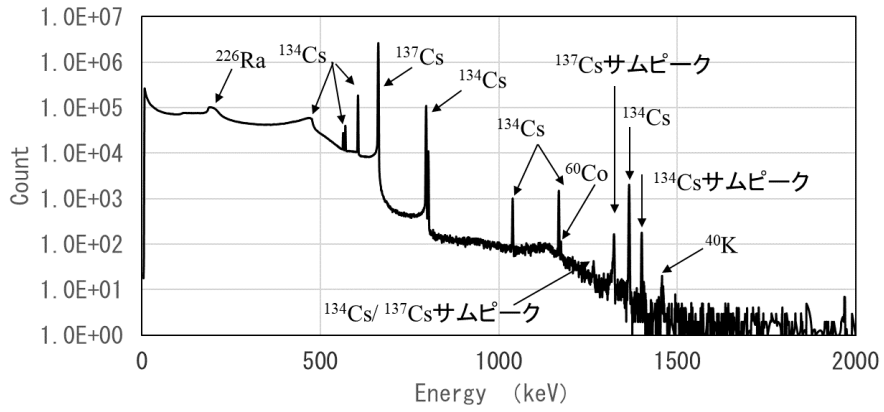


図 3.1-6 コンクリート瓦礫試料 (U3TBC-A1、青塗装領域) の Ge 分析結果

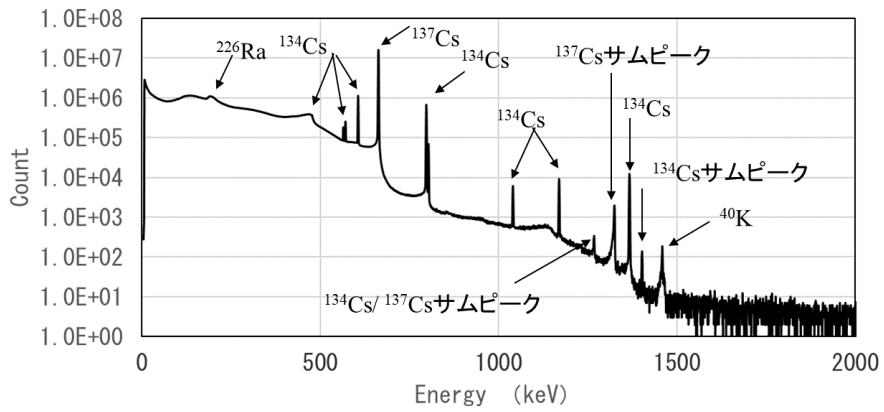


図 3.1-7 コンクリート瓦礫試料 (U3TBC-A1、青塗装以外の領域) の Ge 分析結果

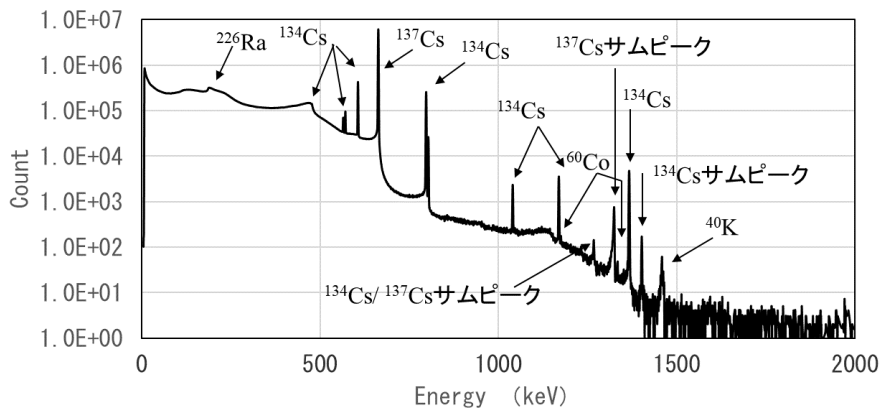


図 3.1-8 コンクリート瓦礫試料 (U3TBC-A2) の Ge 分析結果

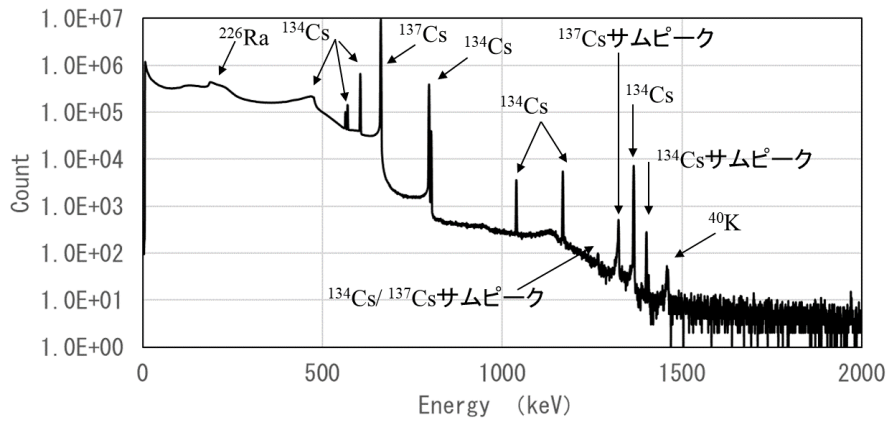


図 3.1-9 コンクリート瓦礫試料 (U3TBC-A3) の Ge 分析結果

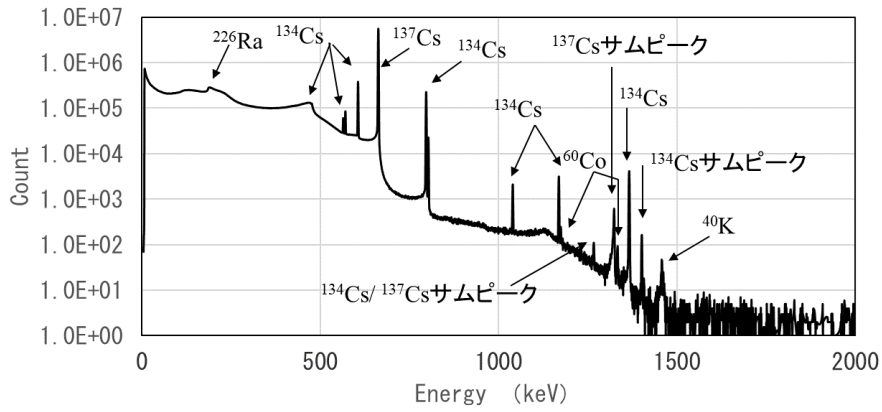


図 3.1-10 コンクリート瓦礫試料 (U3TBC-B2) の Ge 分析結果

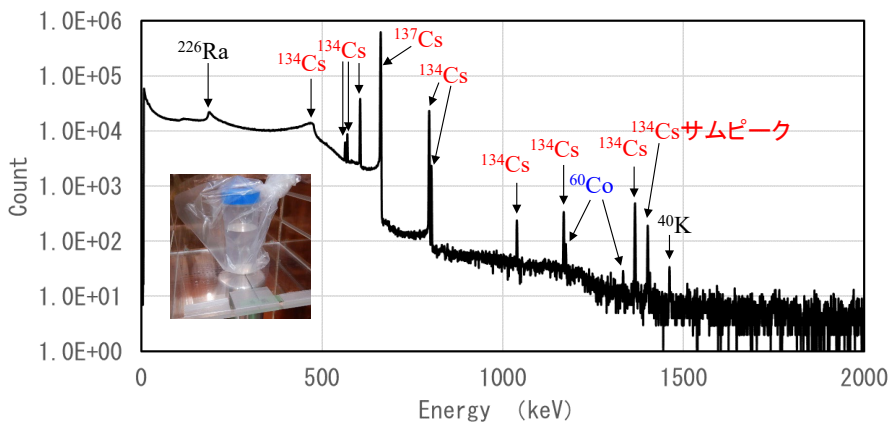


図 3.1-11 瓦礫試料 (U3TBC-B2) の浸漬液の Ge 分析

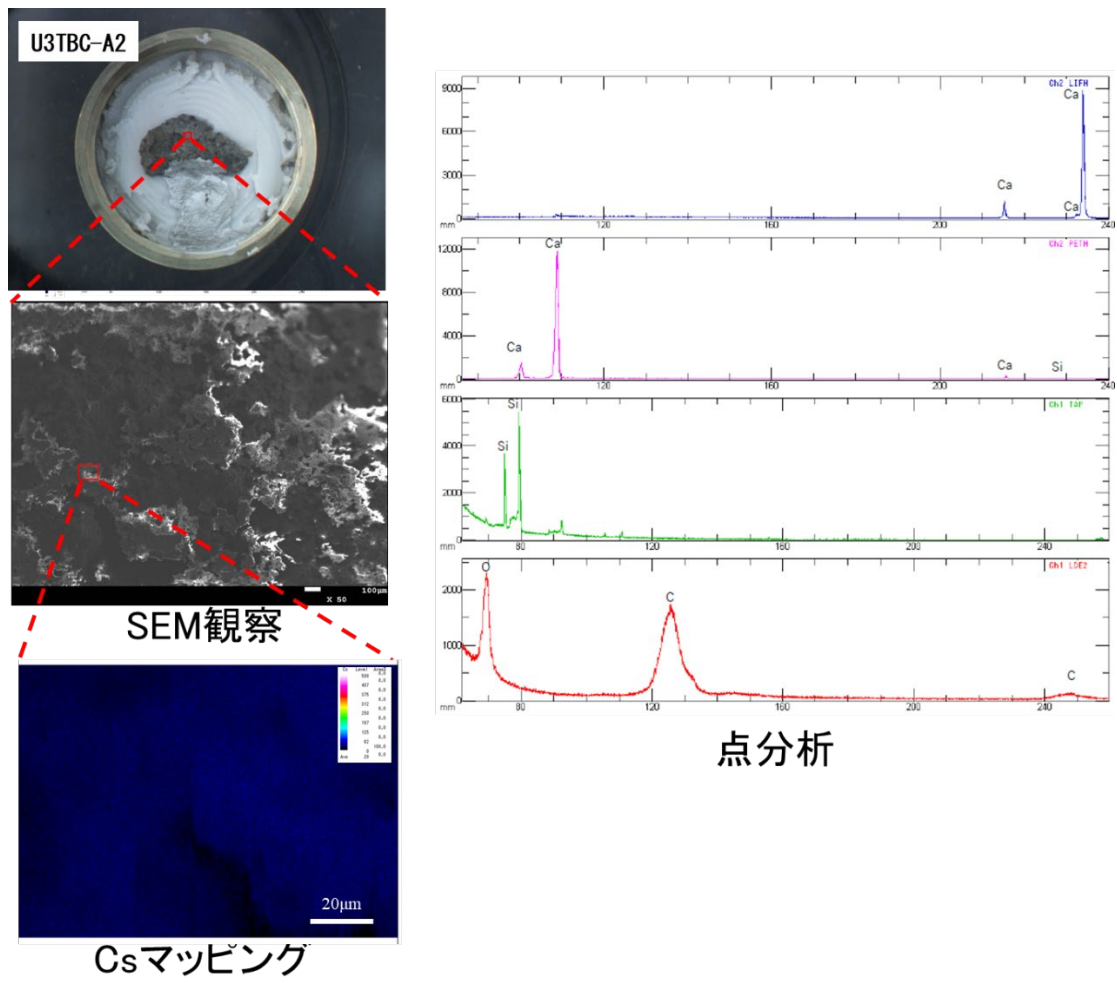


図 3.1-12 瓦礫試料 (U3TBC-A2) の SEM/EPMA 分析結果

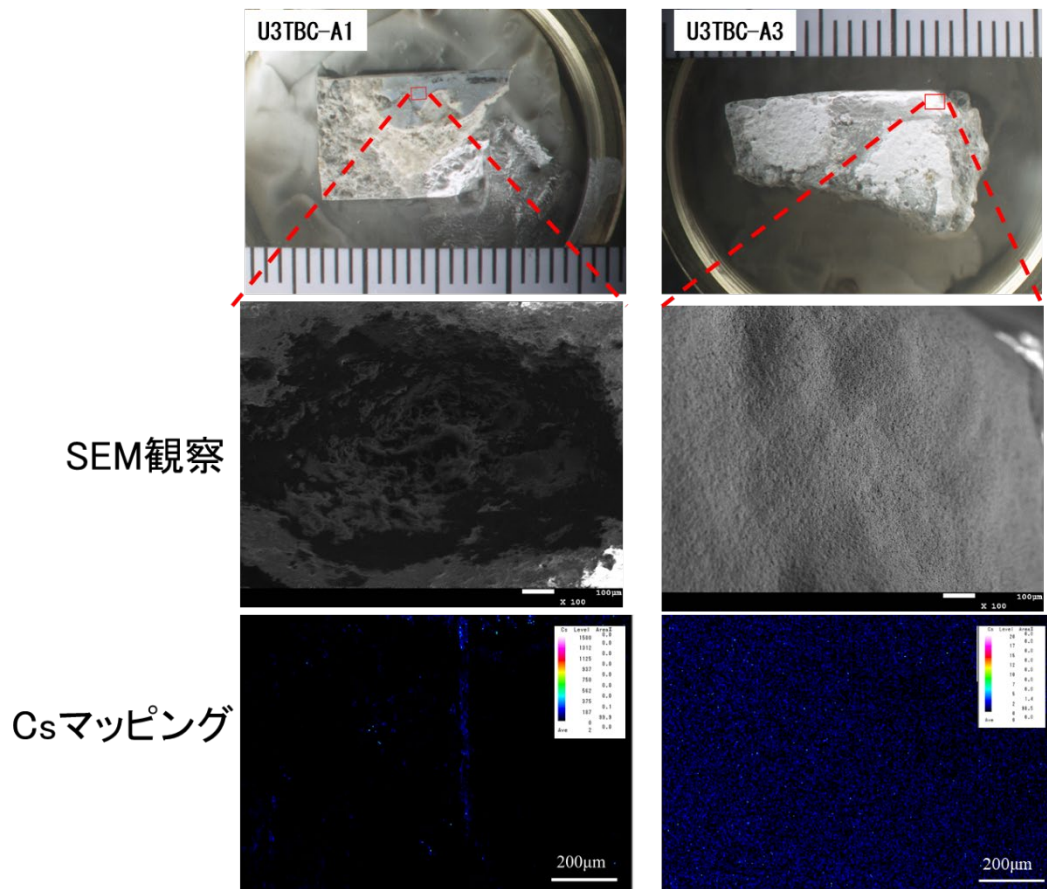


図 3.1-13 瓦礫試料 (U3TBC-A1、A3) の SEM/EPMA 分析結果

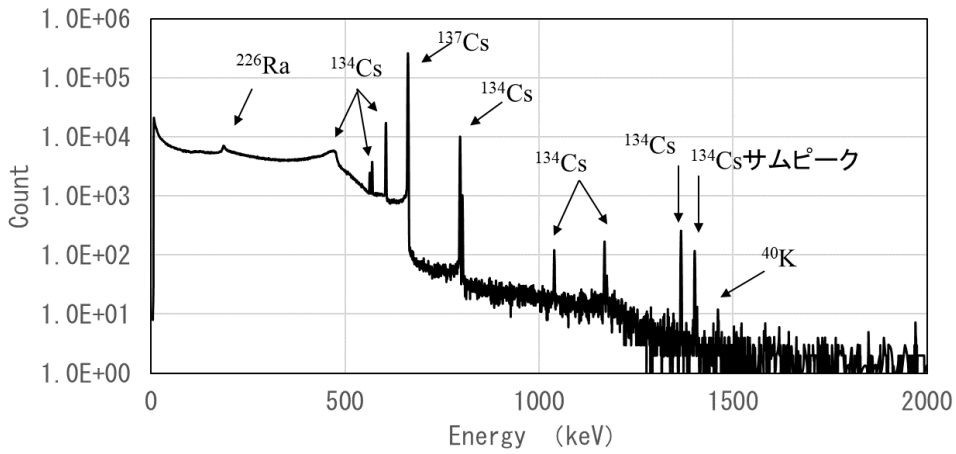


図 3.1-14 ドレンサンプル水(未処理) の定量分析結果

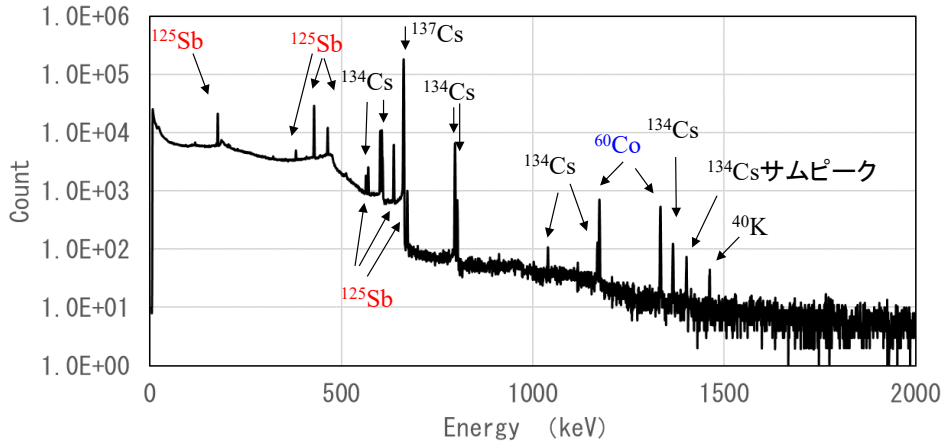


図 3.1-15 Cs 除去液の定性分析結果

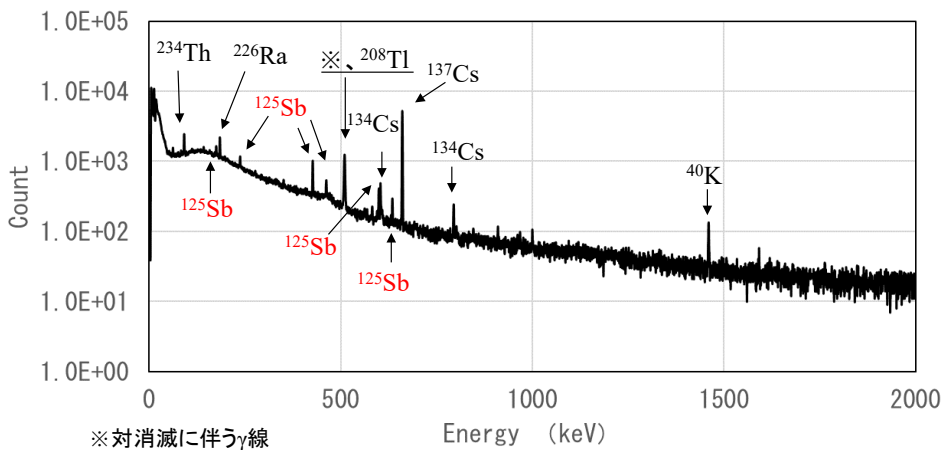


図 3.1-16 Cs 除去液の定量分析結果

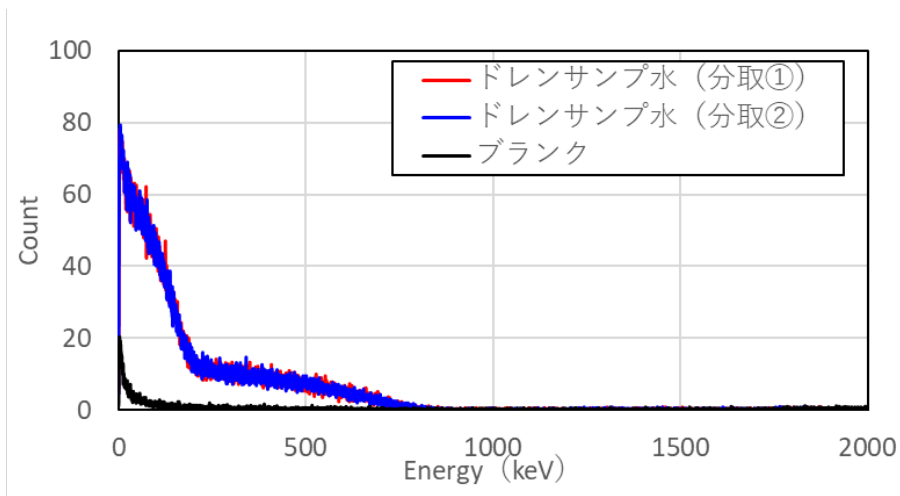


図 3.1-17 ドレンサンプル水から分離した Sr-90 の液体シンチレーションスペクトル

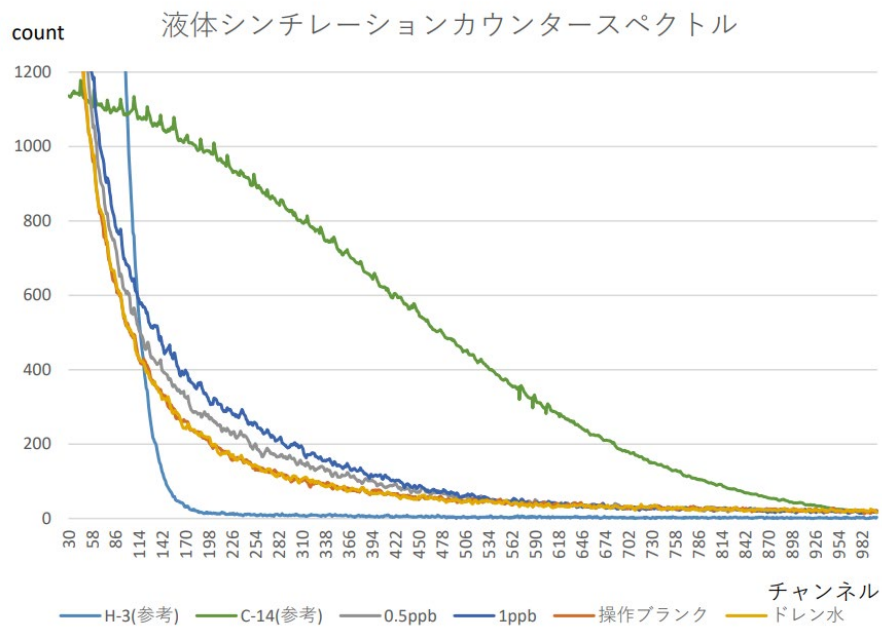


図 3.1-18 ドレンサンプル水から分離した Tc-99 の液体シンチレーションスペクトル

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、流量調節弁での臨界流、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る。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 を用いた。

3.2.2 解析方法

図 3.2-1、図 3.2-2 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 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、サブ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 コード解析に必要なベント作動時の放射性物質の放出量や S/C の圧力、温度等の時間変化については、別途 JAEA で実施した、シビアアクシデント総合解析コード THALES2 による評価結果を用いた。よって、ベント流の入口条件となる S/C から流出する水蒸気、窒素ガス及び水素ガスの圧力や温度、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、THALES2 コードを使用することの妥当性については、図 3.2-3 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ほぼ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 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、下流にある流量調整弁（図 3.2-2 中の LV3）の流路面積を調整した。その結果、図 3.2-4 に示す様に、THALES2 コードによる S/C 圧力と、RELAP5 コードによる流動調整弁上流の圧力は一致した。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3.2-5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3.2-6及び図3.2-7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3.2-1参照)。評価するベントガスの成分には、窒素、水素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と、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0.9TBq及び0.4TBqである(表3.2-1参照)。この評価結果は、SGTSフィルタ等についての調査結果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て、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。感度ケース1では、1号機側及び2号機側グラビティダンパの漏洩面積をそれぞれ流路面積の1.8%及び3.4%と仮定した。また、感度ケース2では、1号機側及び2号機側グラビティダンパの漏洩面積をそれぞれ流路面積の3.4%及び3.5%と仮定した。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。

感度ケース1において、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8%及び5%となった。よって、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12TBq及び8TBqに相当する(表3.2-1参照)。さらに、感度ケース2において、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14%及び5%となった。よって、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21TBq及び8TBqに相当する(表3.2-1参

照)。これらの感度ケース 1 と 2 の結果は、基本ケースの結果と比べて、汚染分布に関する調査結果に対して、より整合している。

基本ケース及び感度ケース 1 と 2 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、過大な漏洩が生じない場合は、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。さらに、合流部 1の方が合流部 2と比べて圧力が高いため、同じ漏洩面積の場合、1号機 SGTS 配管の方が 2号機 SGTS 配管と比べて汚染が大き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 1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 3.2-8 及び図 3.2-9 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 3.2-8 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 30m/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 2m/s 程度、1m/s 程度である。図 3.2-9 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 25K 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、上流側より数 K 高くなっている。

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 30m/s から約 20m/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、感度ケース 1 及び感度ケース 2 の結果から、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。

解析結果から、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 フィルタで観測された数 TBq から数十 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、観測された汚染の原因である可能性を示している。ベントガスの動圧（単位体積当たりの運動エネルギー）が摩擦損失と等しいと仮定する場合、推定されるグラビティダンパの漏洩面積は、配管流路面積の数%程度であり、また、同じ漏洩面積の場合、ベント流路の上流側に接続された 1 号機側 SGTS フィルタが 2 号機側 SGTS フィルタより約 3 倍高い水準で汚染されることが示された。

表 3.2-1 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
基本ケース	0.6% (0.9TBq)	0.3% (0.4TBq)
感度ケース 1	8% (12TBq)	5% (8TBq)
感度ケース 2	14% (21TBq)	5% (8TBq)

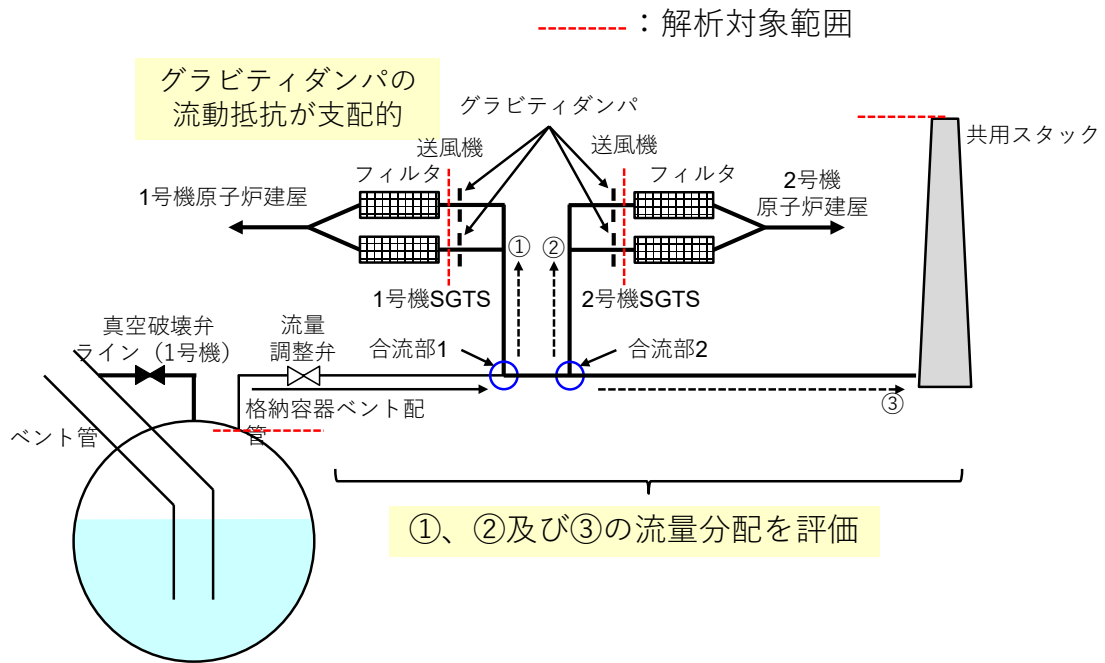


図 3.2-1 解析体系の概要

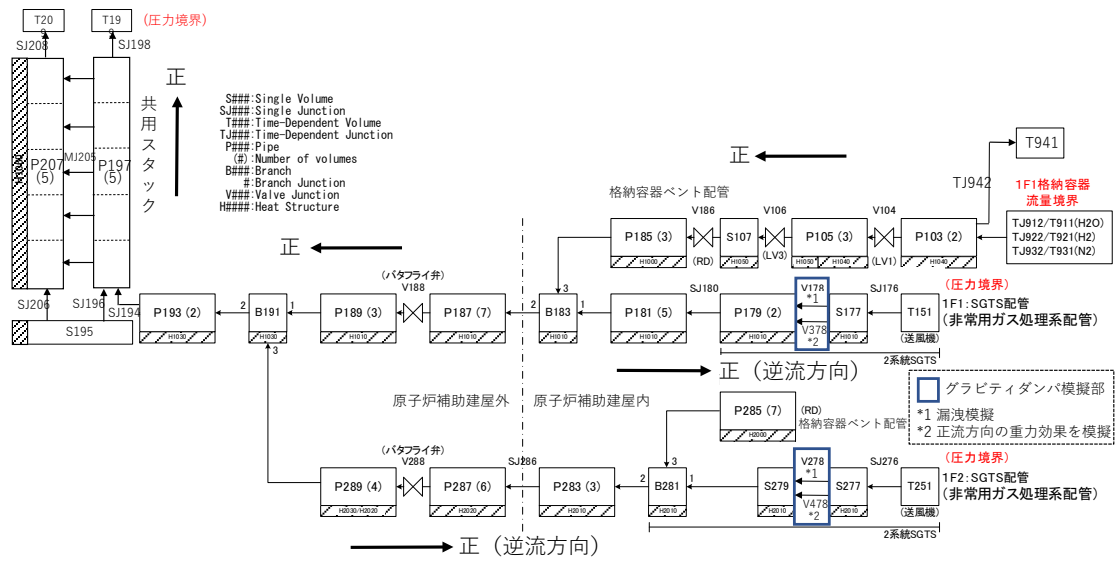


図 3.2-2 RELAP5 コードの解析モデル

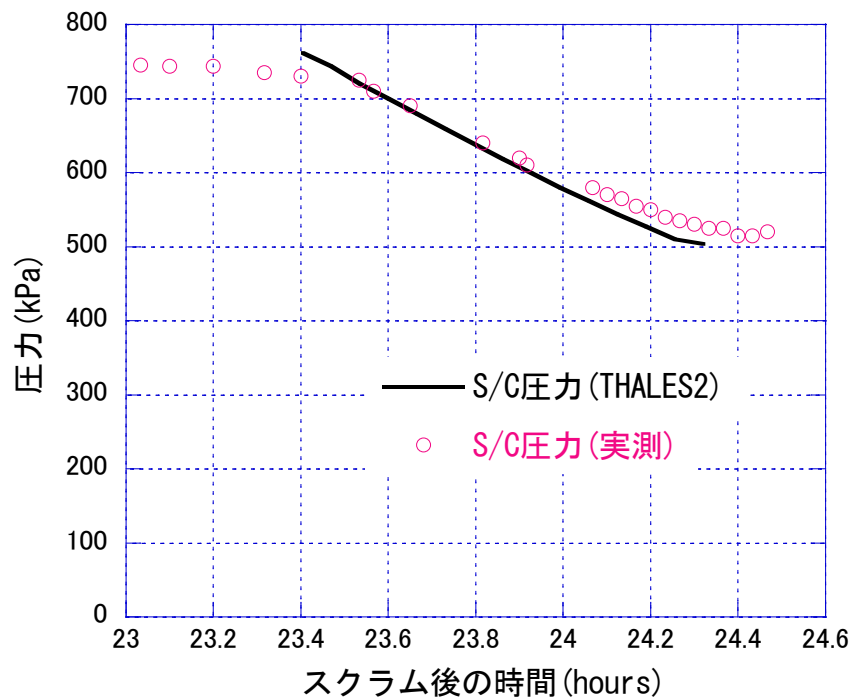


図 3.2-3 S/C 圧力の実測値と THALES2 コードによる計算結果の比較

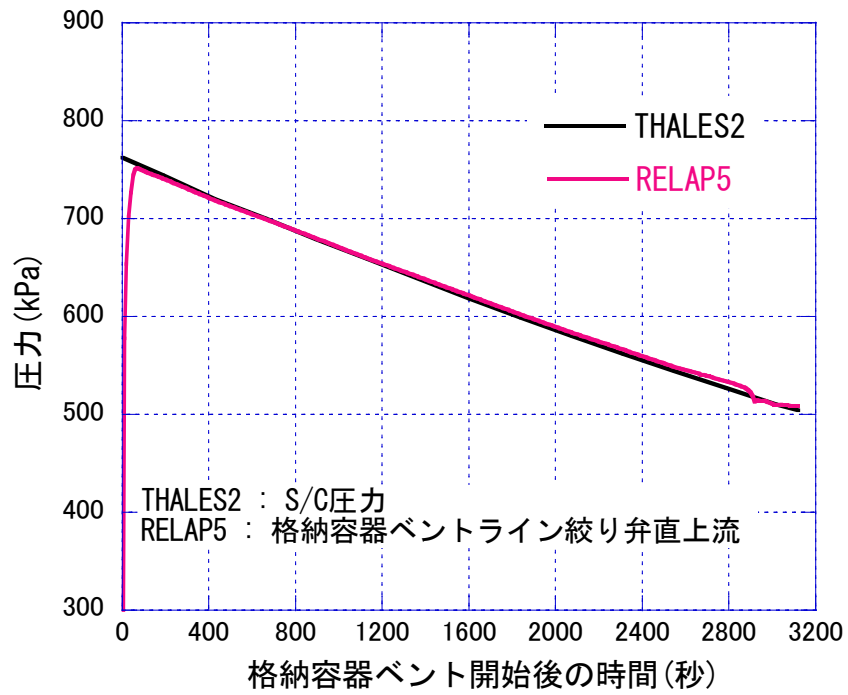


図 3.2-4 THALES2 コードと RELAP5 コードによる圧力の比較

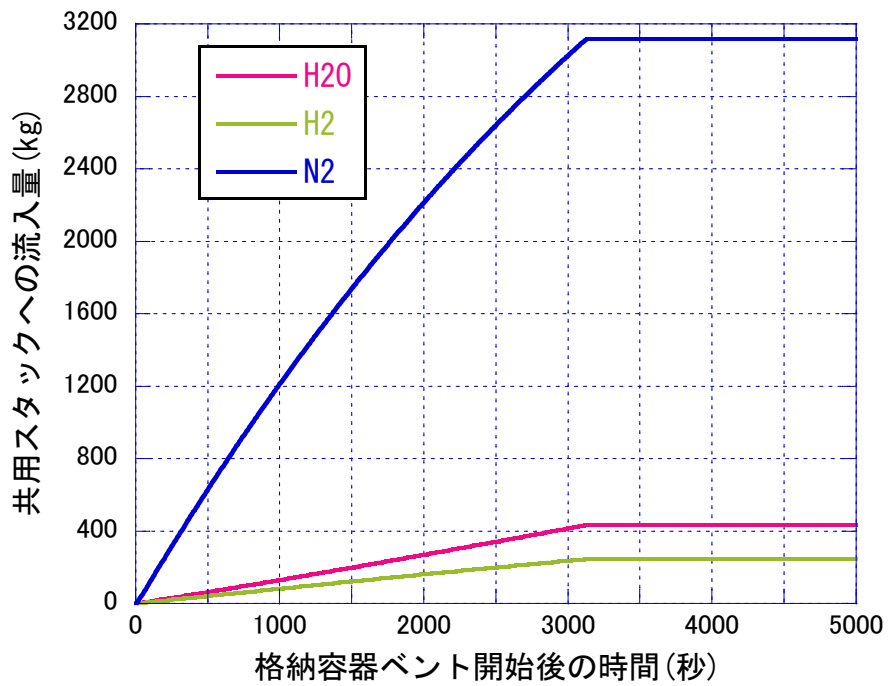


図 3.2-5 共用スタックへの流れの流量積算値 (基本ケース)

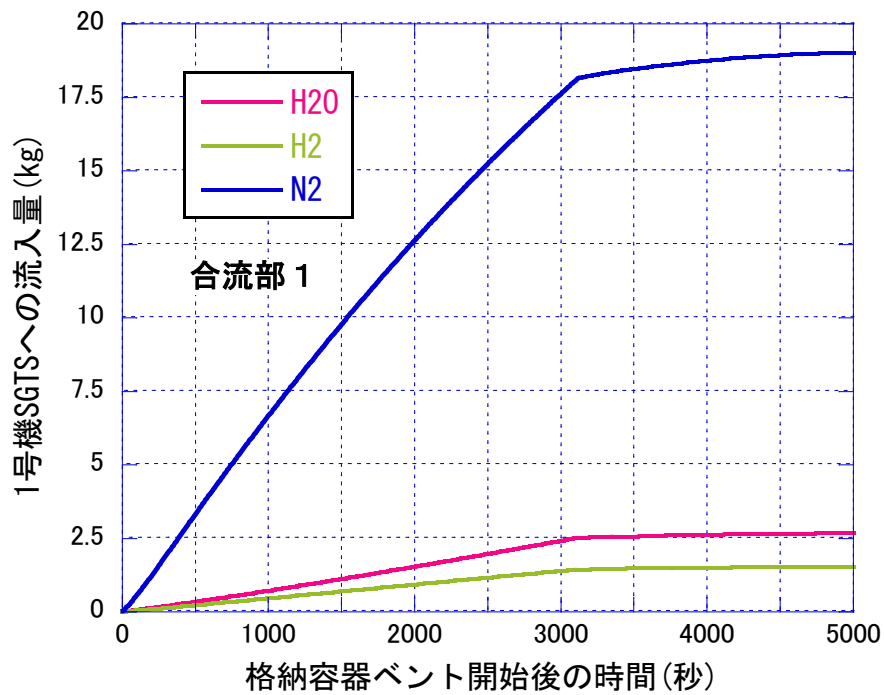


図 3.2-6 合流部 1 から 1 号機送風機に向かう流れの流量積算値 (基本ケース)

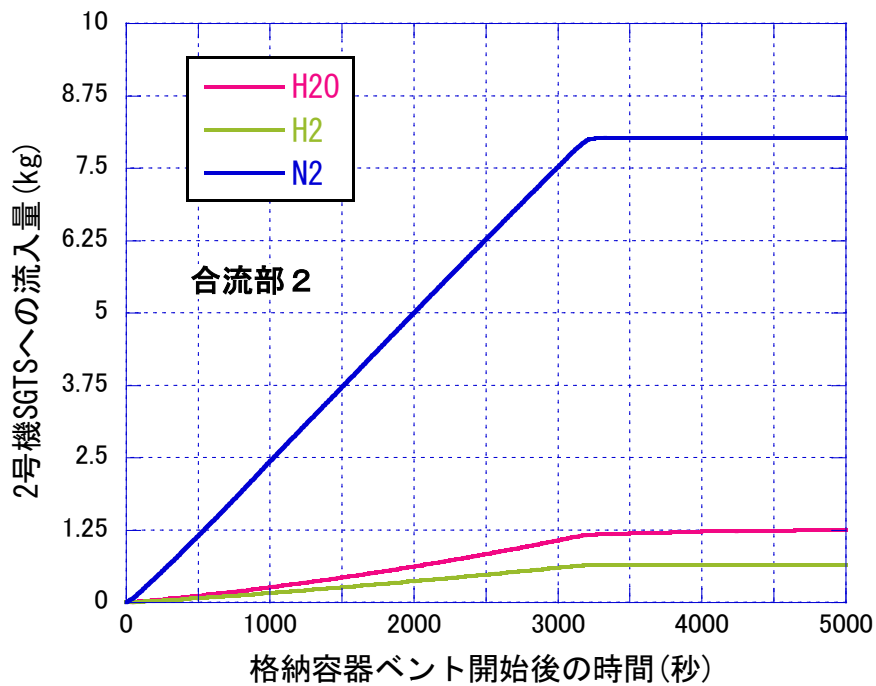


図 3.2-7 合流部 2 から 2 号機送風機に向かう流れの流量積算値 (基本ケース)

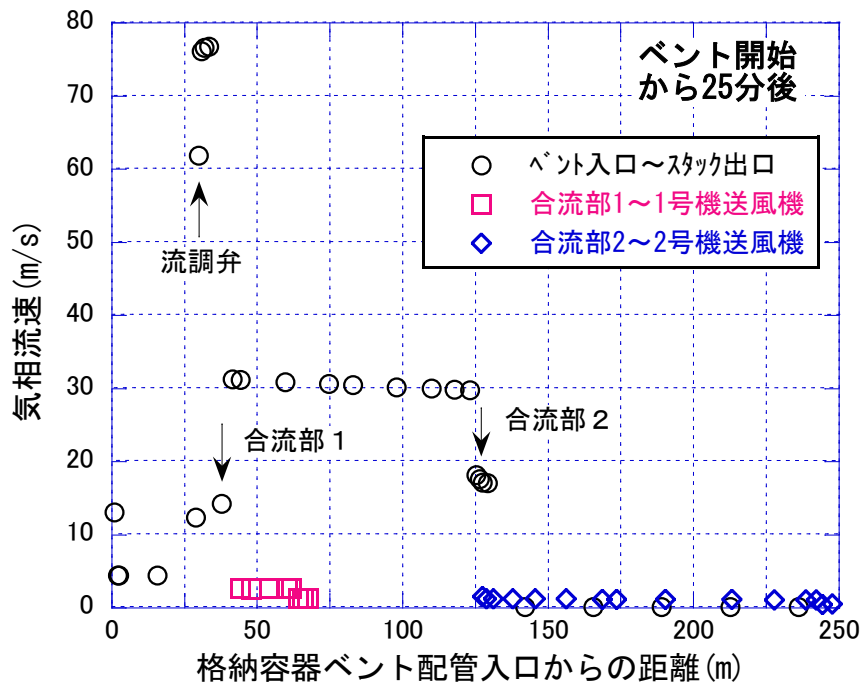


図 3.2-8 ベント開始から 25 分後の気相流速分布 (感度ケース 1)

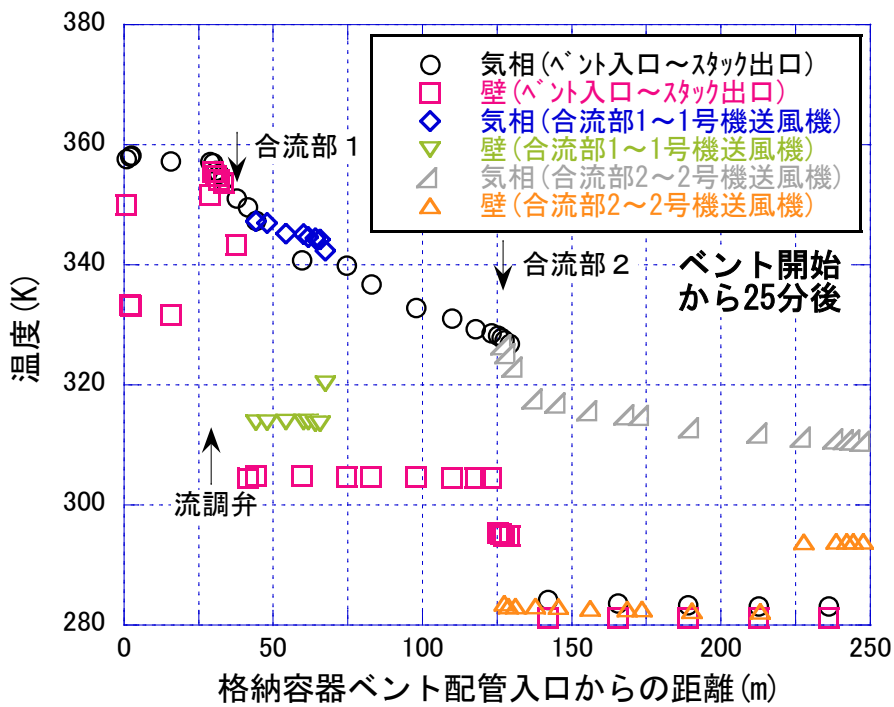


図 3.2-9 ベント開始から 25 分後の温度分布 (感度ケース 1)

4. 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

① 1F プラント内核種移行に係る試料分析

水試料中のヨウ素の化学形態分析に関して、有機形ヨウ素は揮発しやすいことを確認し、分析対象から除外した。それ以外の化学形態として I^- と IO_3^- を分析するために並列法を構築した。原科研内で保管されていた 1F 試料中のヨウ素を開発した手法を用いて化学形態毎に分析したが、検出下限値以下であった。

固体試料中の Cs の化学形態を揮発温度の差を利用して分離する手法を検討した。既知量の CsOH と CsCl について、加熱試験を行ったところ、CsOH は融点である 272.3°C よりかなり高い温度でしか揮発しないが、CsCl は融点である 645°C よりも低い 600°C でも 12.6% の揮発が観測され、それぞれを個別に揮発させる条件の選定は難しいことが分かった。

CsI を付着させたコンクリート試験片の浸漬試験をおこない、浸漬時間として 1 週間程度が妥当であることを明らかにした。

② 重大事故解析

JAEA で開発しているシビアアクシデント総合解析コード THALES2/KICHE を用いて 3 号機の事故進展を対象に、従来のヨウ素化学反応解析に加え、原子炉容器内のホウ素を含めた FP の化学挙動解析を考慮したより詳細な解析を実施した。解析には BSAF 計画での知見や規制庁での 1F 事故分析検討会で検討された事故進展の可能性についての取込みも試みた。現段階の解析ではベント付近までの再現性を向上できたが、それ以降の圧力挙動の再現にはさらなる検討が必要である。3 つの解析シナリオを設定し、これに基づくヨウ素及びセシウムの建屋内移行挙動解析を行った。本解析から CsBO₂ と CsOH の測定量から炉心損傷後の注水量や D/W 損傷のタイミングの違いが検討できる可能性が示された。このことから、2 階壁とその他の階の壁のセシウム及びヨウ素元素量、また、各階における CsBO₂ と CsOH の存在量の比は、事故進展の検討に参考となり得る。

③ データベース作成

本年度は、これまで対象としていた 1~4 号機に加えて 1/2 号機共用排気筒まで対象を広げ、原子力規制庁、経済産業省、東京電力、JAEA、IRID 等によって公開された情報を収集して整理するとともに、情報ソースデータベースとして取りまとめた。情報ソースデ

データベースの分類にあたり、今年度はプラント状態や汚染分布について新規のキーワードを追加した。

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、1F 事故分析に係る OECD/NEA プロジェクトである ARC-F 会合へ情報提供した。

④ OECD/NEA プロジェクトの運営及び関連情報の収集

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。また、ARC-F プロジェクトと関連が深い OECD/NEA の国際プロジェクト「デブリの性状推定及びデブリ分析計画の検討（PreADES）」会合に出席し、燃料デブリの採取・貯蔵・分析についての議論に参加するとともに、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

3 号機タービン建屋から採取した瓦礫試料について Ge 半導体検出器を用いたガンマ線核種分析、SEM/EPMA 分析に加え、浸漬試験後の浸漬液のガンマ線核種分析を実施した。主要な核種は Cs-134 及び Cs-137 で、一部の試料で Co-60 が観察された。浸漬液のガンマ線核種分析結果も瓦礫の分析結果と同様で Cs-134、Cs-137、Co-60 が観察された。SEM/EPMA 分析では、コンクリートや塗装の成分と推測される元素のみが観察され、原子炉由来の元素は確認されなかった。

1/2 号機共用排気筒のドレンサンプ水試料の汚染の程度を測定した結果は以下のとおりであった。

Cs-134 : 2.4×10^3 Bq/cm³ (5.1×10^4 Bq/cm³ ※)

Cs-137 : 4.8×10^4 Bq/cm³ (5.9×10^4 Bq/cm³ ※)

Sb-125 : 14 Bq/ml (1.5×10^2 Bq/cm³ ※)

Sr-90 : 47 Bq/ml (59 Bq/cm³ ※)

I-129 : 1.4×10^{-1} Bq/ml (1.4×10^{-1} Bq/cm³ ※)

(I⁻ : 1.2×10^{-1} Bq/cm³、IO₃⁻ : 1.6×10^{-2} Bq/cm³)

Co-60、Tc-99、α核種 (Th、U、Pu、Am) : 検出下限値以下

(※ 半減期を考慮して推定した事故当時の値)

また、安定同位体である Mo についても原子炉起源と考えられる Mo が検出された。

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、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、過大な漏洩が生じない場合は、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。さらに、同じ漏洩面積の場合、1号機SGTS配管の方が2号機SGTS配管と比べて汚染が大きいことがわかった。