

JAEAにおけるスミヤ試料分析のまとめ

- ・2号機原子炉建屋スミヤ試料
- ・1/2号機SGTS配管内部スミヤ試料
- ・3号機SGTS室フィルタースミヤ試料

2022年4月26日

日本原子力研究開発機構
安全研究センター

スミヤ試料分析のねらい

原子炉建屋等の床面や壁面に付着した核種の組成に関するデータを取得する。



- 同一号機における異なる位置での比較により、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を得る。
 - 建屋各階の比較
 - SGTSフィルタ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)
- 号機間の比較により、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。

分析対象の核種

○着目核種

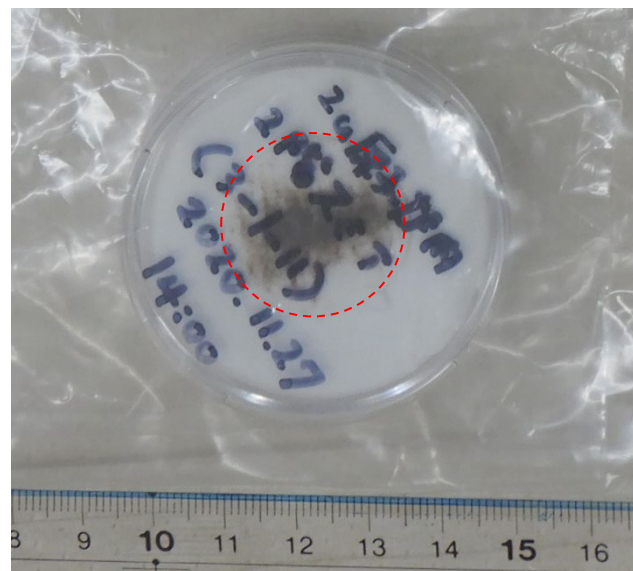
Cs-134/137、Tc-99、Mo同位体、Sr-90、 α 核種(U等)、I-129、他

- 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、 Cs_2MoO_4 がCsの主要な化学形になる可能性がある)。
- Tc-99及びMo同位体は、酸化物の形態になると燃料から放出され易くなる性質を有しているため、炉心損傷・溶融進展時の雰囲気条件を推定する上で指標的な核種になり得る。
- MCCI等により中・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)を分析することにより、健康影響評価上重要なI-131(短半減期)の放出挙動を概略評価できる可能性がある。

試料の概要(1)規制庁採取試料

2号機原子炉建屋の壁、床、階段裏から採取されたスミヤ試料(2020/11/27採取): 14試料

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



赤字で示した4試料を優先的に分析

- ・5階壁面／床面試料: トップヘッドフランジからの核種放出を考慮
- ・1階床面試料: 1階貫通部等(p15参照)からの核種放出を考慮
- ・4階床面試料: 上記試料との比較

試料の概要(2) 東京電力採取試料

・1/2号機SGTS配管内部から採取されたスミヤ試料: 1試料

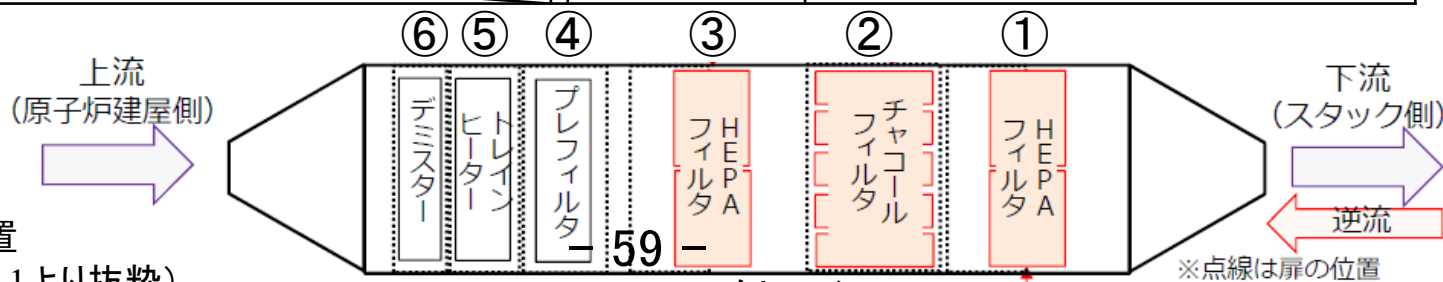
試料番号	採取場所
U12SGS	1/2号機SGTS配管内部

赤字で示した3試料を優先的に分析

- ・SGTS配管内部
- ・フィルタレインの最上流、最下流

・3号機SGTS室のフィルターから採取されたスミヤ試料: 23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



SGTSフィルター配置
(第16回会合資料4-1より抜粋)

フィルタレイン

報告内容

スミヤ試料の分析結果のまとめ

(1) スミヤ試料

- 2号機原子炉建屋スミヤ試料
- 1/2号機SGTS配管内部スミヤ試料
- 3号機SGTS室フィルタースミヤ試料

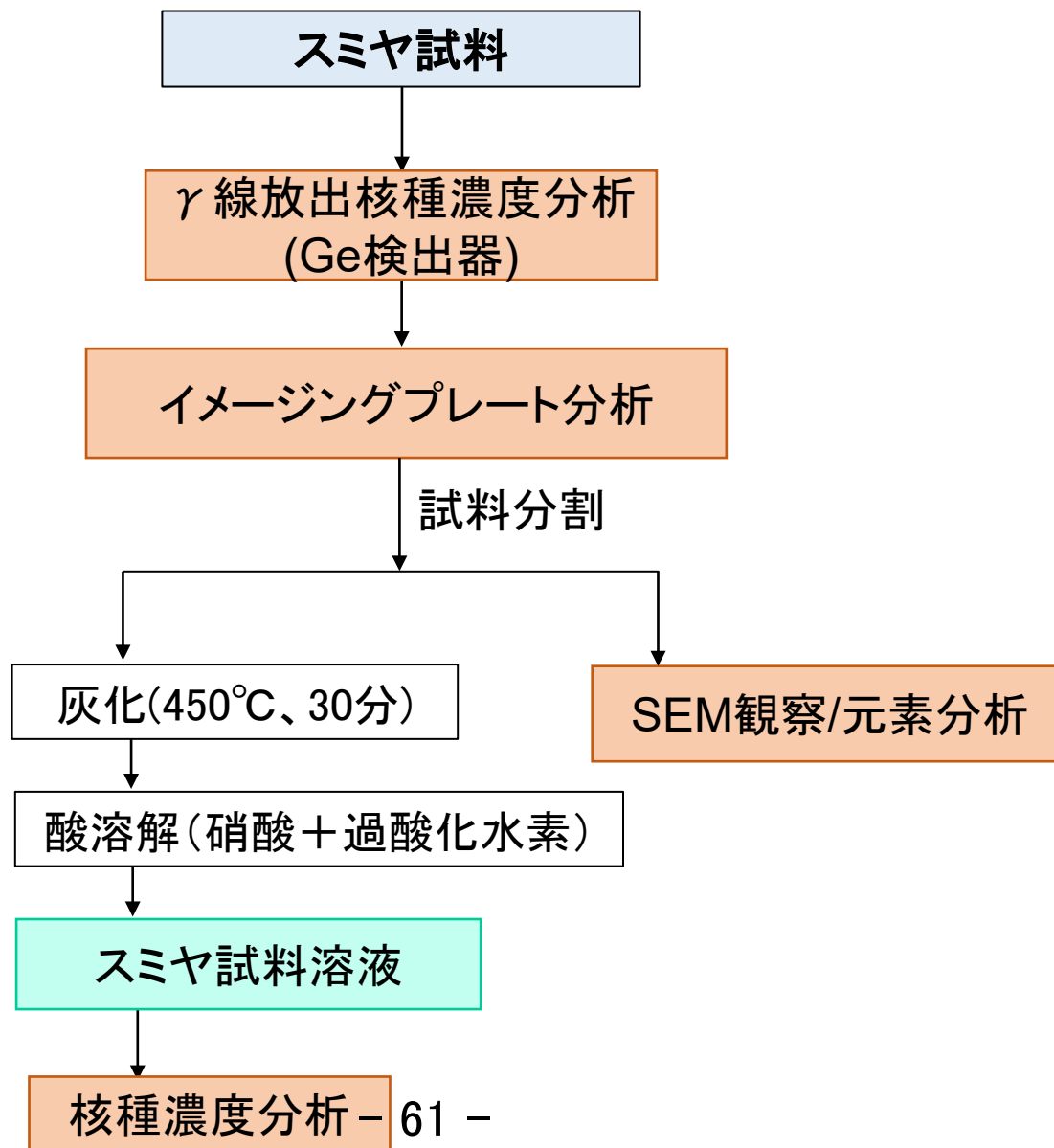
(2) 分析核種

- Cs-134、Cs-137
- Sb-125
- Sr-90
- Tc-99
- Mo同位体 (Mo-95、96、97、98、100)
- U同位体 (U-235、236、238)
- Pu同位体 (Pu-238、239、240)
- Am-241

第27回会合にて分析結果を報告
(今回、再整理した結果を報告)

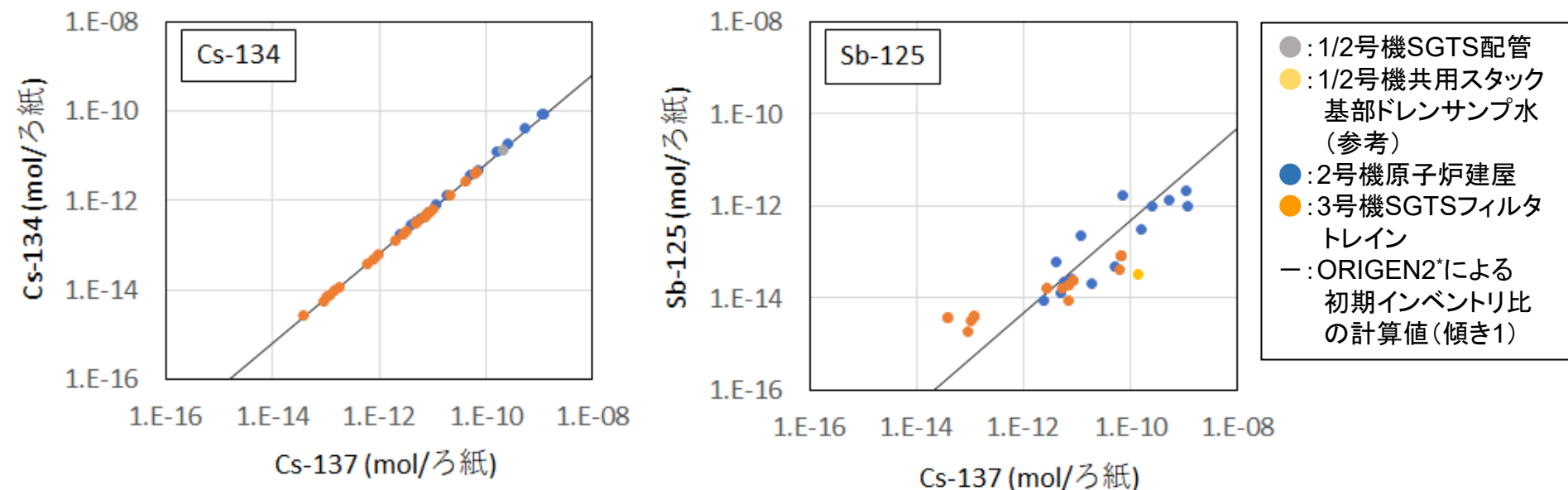
今回、分析結果を報告

分析の流れ



スミヤ試料の γ 線分析結果 (Cs-134、Sb-125とCs-137の比)

事故時に減衰補正した値

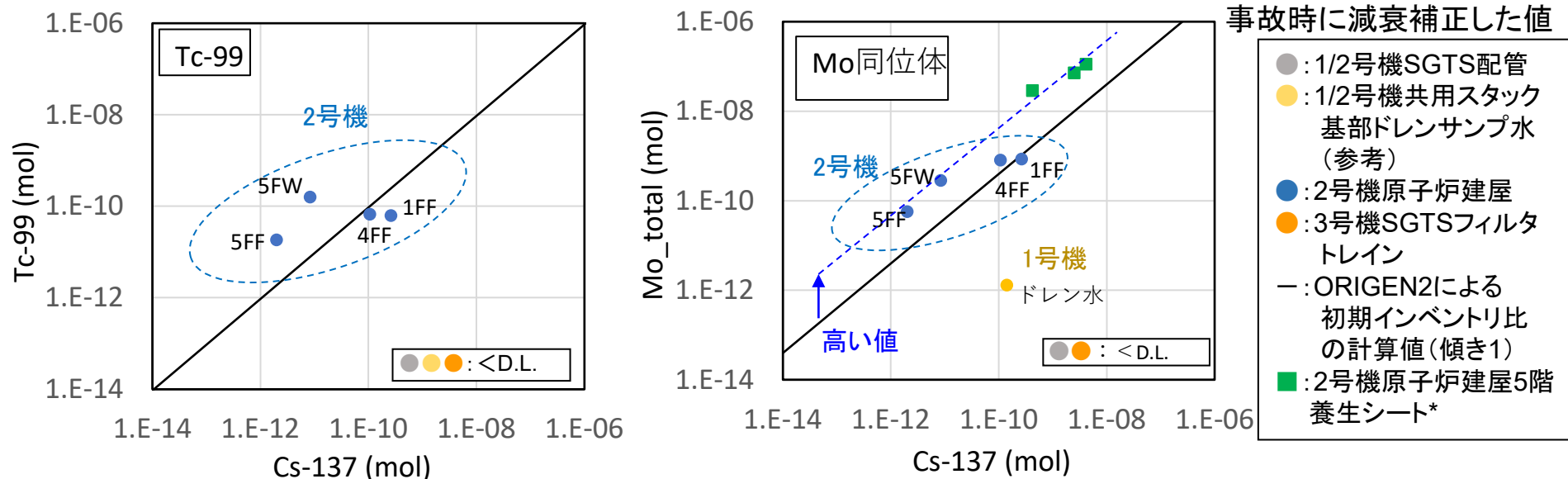


● 1号機(1/2号機SGTS配管及びドレンサンプル水)、2号機(原子炉建屋)及び3号機(SGTSフィルタトレイン)の全てにおいて、

- Cs-134: ORIGEN2コード*により計算した初期インベントリのモル比とほぼ一致。
- Sb-125: ばらつきはあるものの、全号機で初期インベントリのモル比と同程度。

⇒ Sb-125の初期インベントリに対する放出割合はCs-137と同程度(モル量に換算すると1/100程度)で、炉心損傷・溶融進展時の雰囲気条件に強く依存しないことを示唆(Sbの沸点: 1587°C、Sb₂O₃の沸点: 1425°C)。

スミヤ試料溶液の分析結果 (Tc-99、Mo同位体とCs-137の比)



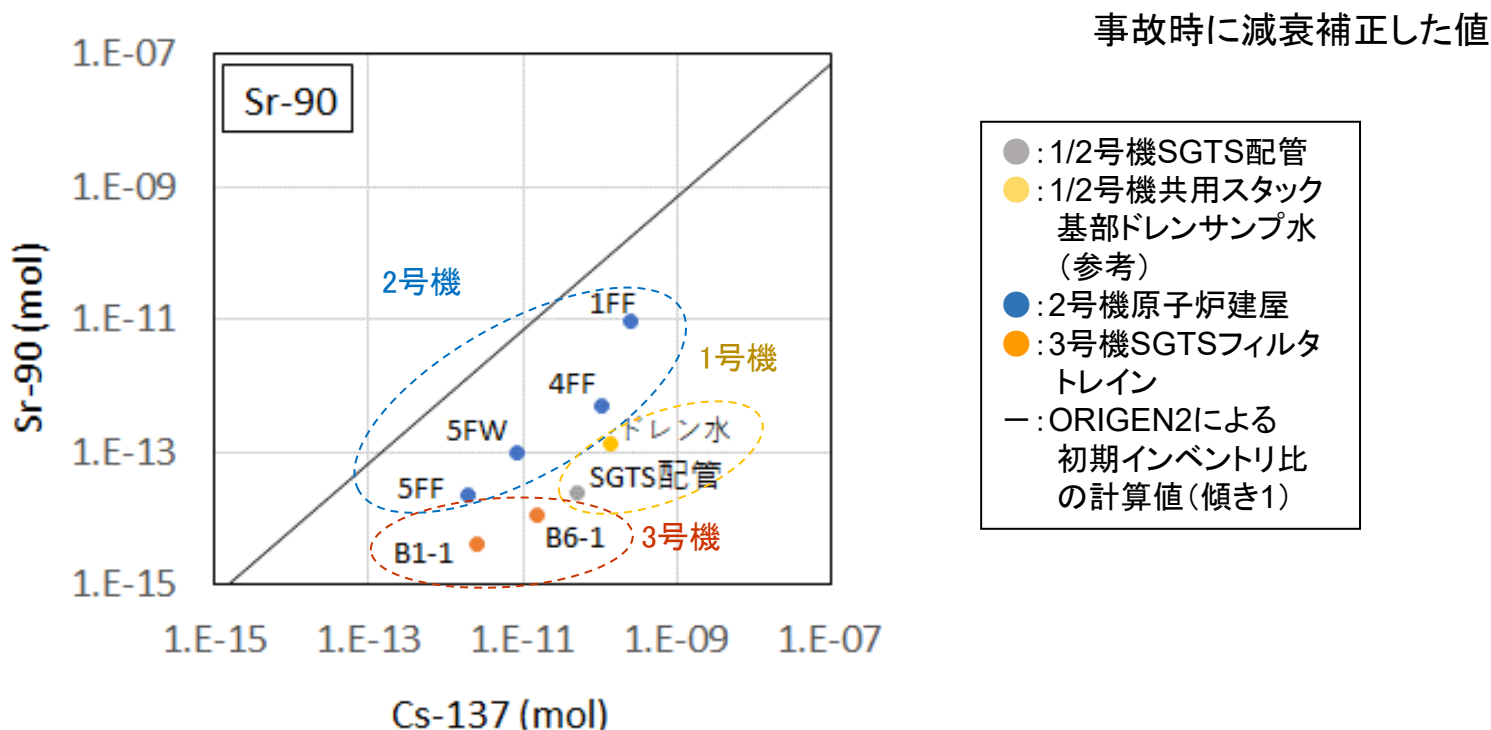
➤ 2号機におけるTc-99及びMo同位体の放出割合が、1号機及び3号機に比べて著しく高い。また、Mo量はCs量を大幅に上回っている。

⇒2号機ではCsの主要な化学形が Cs_2MoO_4 であった可能性が高い。Tc及びMoは酸化物の形態になると燃料から放出され易いことから、酸化性雰囲気(水蒸気リッチ)下で炉心損傷・溶融が進展した可能性。

➤ Tc-99及びMo同位体のCs-137に対するモル比は、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。

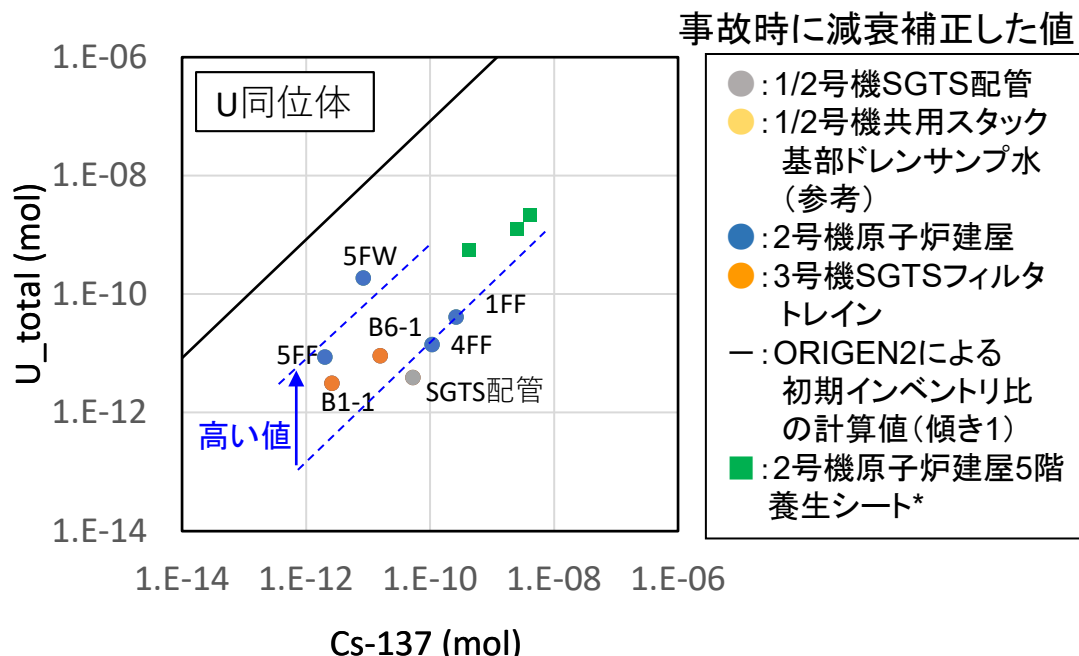
➤ Mo同位体/Cs-137比は初期インベントリ比よりも高く、東京電力HDが取得した同5階養生シートの分析結果*と同様の傾向。

スミヤ試料溶液の分析結果 (Sr-90とCs-137の比)

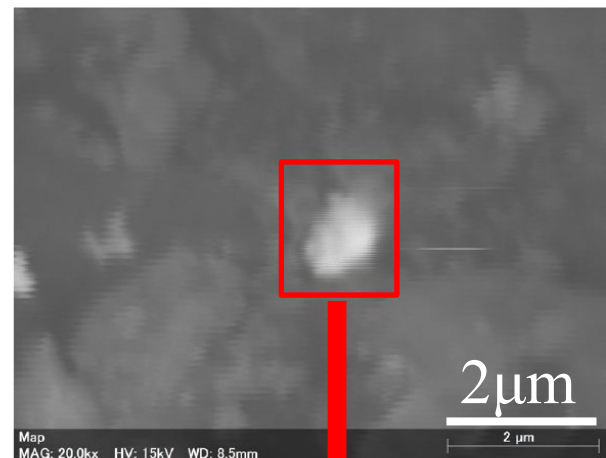


- 全ての試料でSr-90/Cs-137比は、初期インベントリ比より低い値。
- 2号機におけるSr-90の放出割合が、1号機及び3号機よりも1桁程度高い。
⇒現時点では要因の説明は困難。
(Srは還元性雰囲気下において、酸化物に比べ放出され易い金属状態になる可能性がある)。

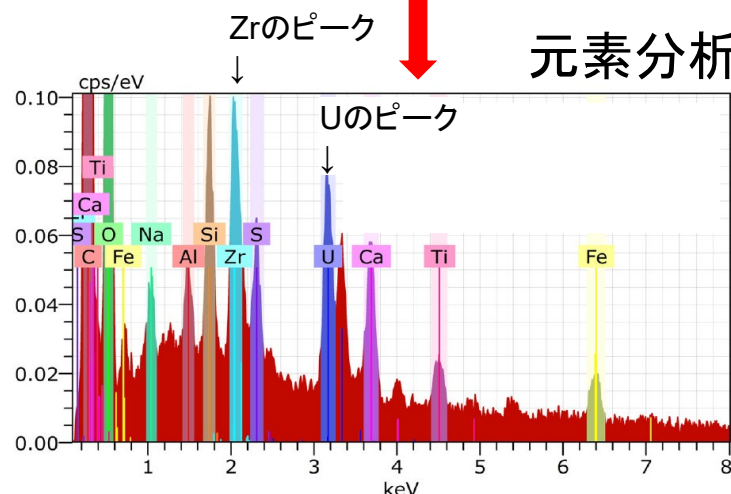
スミヤ試料溶液の分析結果及びSEM分析結果 (U同位体とCs-137の比)



SEM画像 (5階壁面試料)



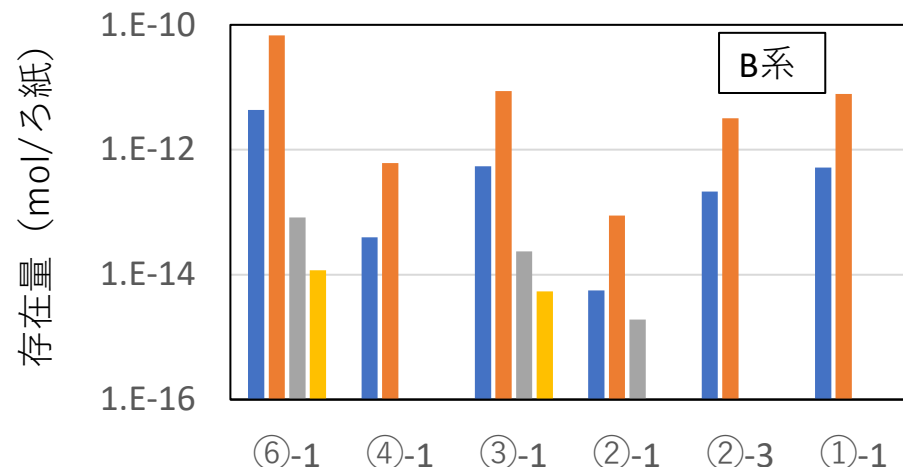
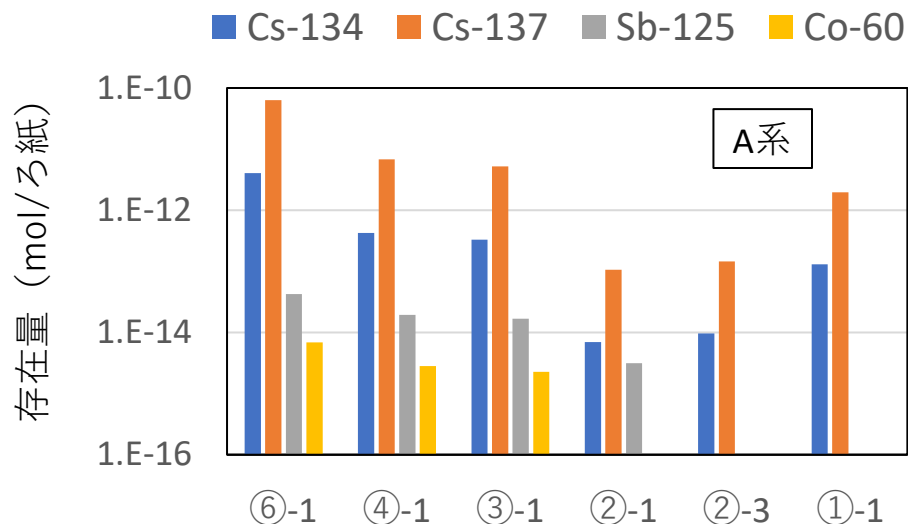
元素分析



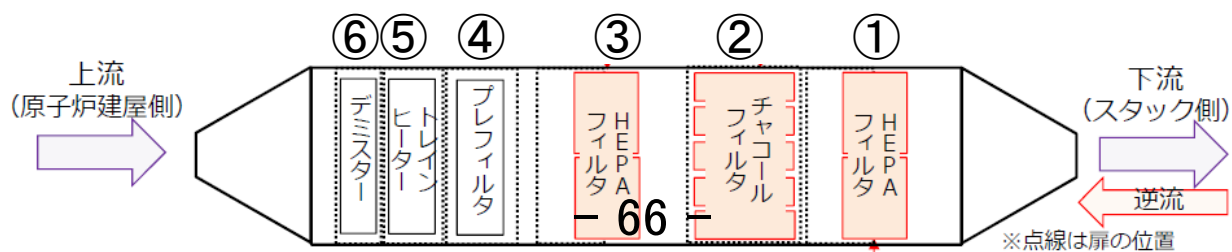
- 2号機原子炉建屋5階におけるU同位体/Cs-137比は、4階及び1階よりも高く(Pu、Amも同様の傾向; 参考資料)、東京電力HDが取得した同5階養生シートの分析結果*と概ね整合。
- 5階壁面スミヤ試料のSEM分析において、粒径1 μ m程度のU及びZr等を含む微粒子を観察。東京電力HDによる5階養生シートの分析においても、U・Zr含有粒子が観察されている*。

SGTSフィルタトレイン試料の分析結果

事故時に減衰補正した値



- 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。
- ⇒ 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核種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。

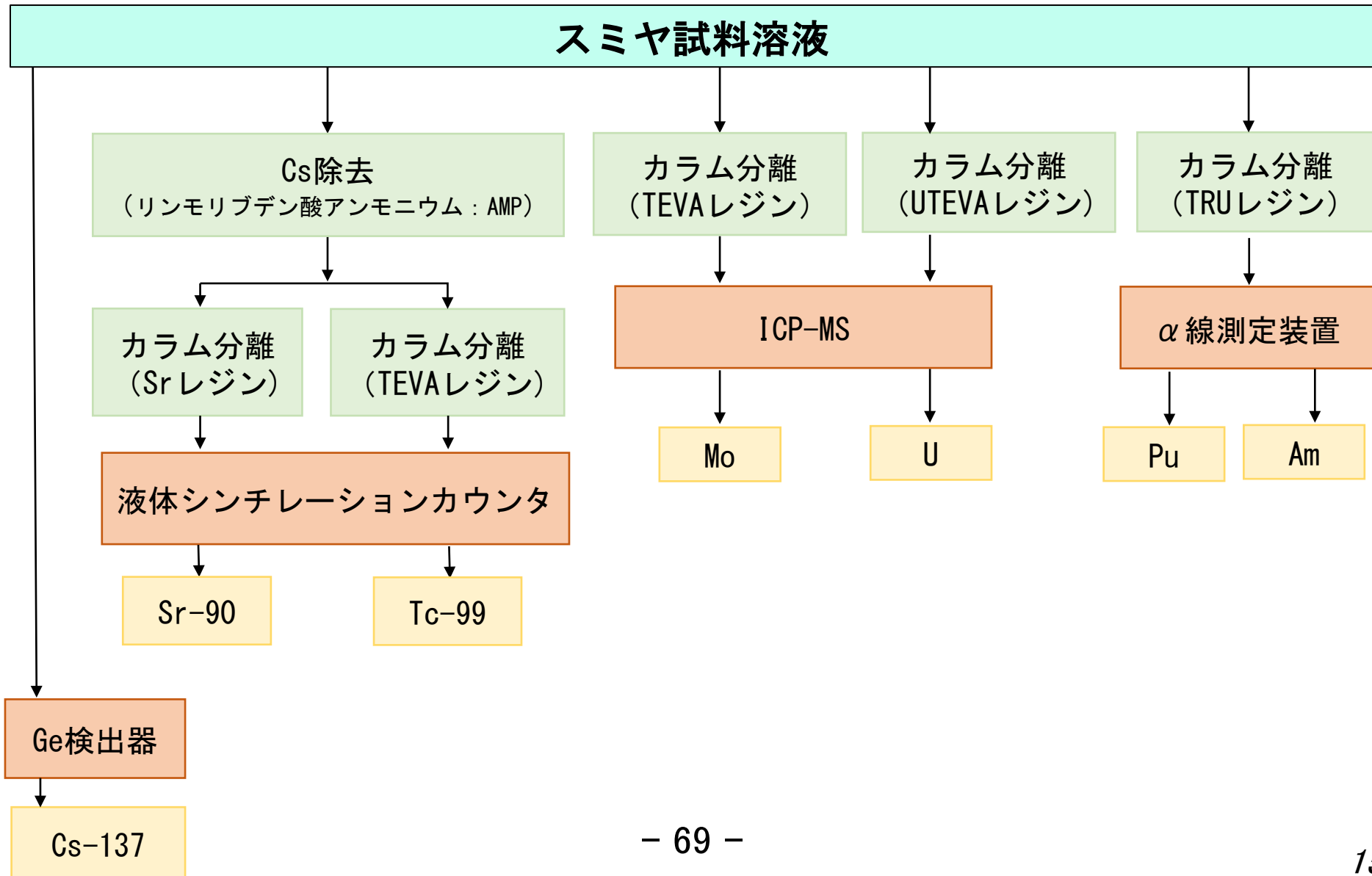


まとめ

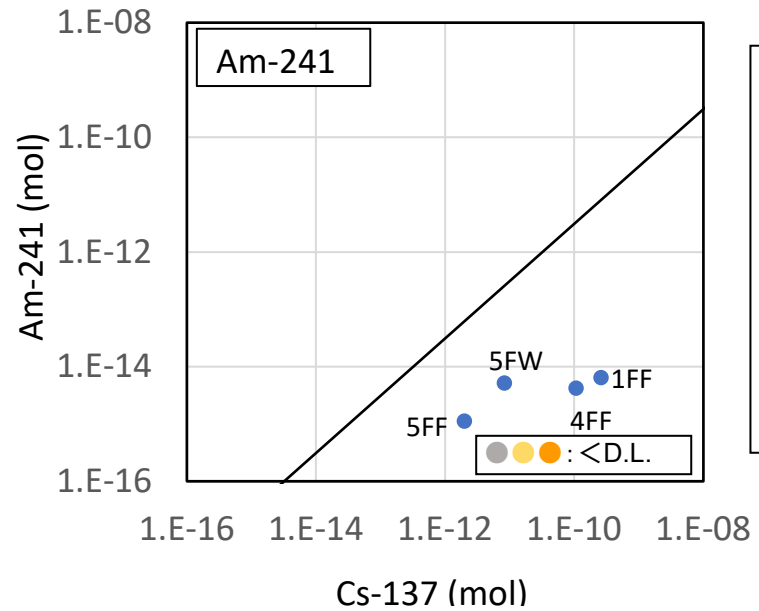
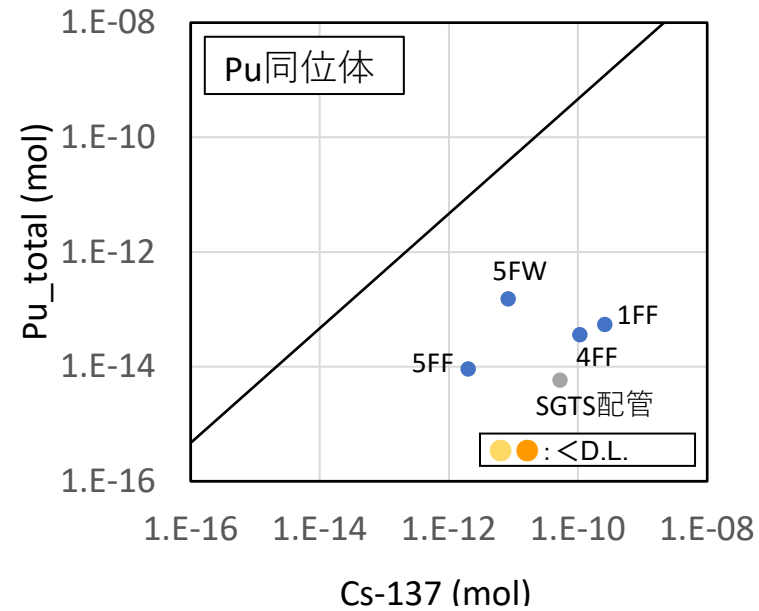
- 2号機原子炉建屋、1/2号機SGTS配管内部および3号機SGTS室フィルターから採取したスミヤ試料について核種分析を実施し、以下を示唆する知見を得た。
 - 燃料からのSb放出は炉心損傷進展時の雰囲気条件に強く依存しない。
 - 2号機におけるCsの主要な化学形が Cs_2MoO_4 である可能性が高い。
 - 2号機の炉心損傷進展時において酸化性雰囲気条件が支配的であった(1号機及び3号機試料に比べてTc及びMoの放出割合が高い)。
 - 2号機原子炉建屋の5階と下層階(4階及び1階)において、核種(Tc、Mo、U、Pu及びAm)の割合が有意に異なる。
 - 3号機の格納容器ベント作動時にベント気体がSGTSフィルタトレインに逆流した可能性が高い。
- 更なる検討を進めるために、以下の分析が必要であると考える。
 - 各号機の原子炉建屋内における沈着特性の評価を目的に、1号機及び3号機原子炉建屋のスミヤ試料を分析する。
 - 2号機原子炉建屋2階及び3階のスミヤ試料を分析し、5階と下層階の差異をより明確にするとともに、その要因を探る。

以下、参考資料

分析フロー



スミヤろ紙溶液の分析結果 (Pu同位体、Am-241)



- : 1/2号機SGTS配管
- : 1/2号機共用スタック
基部ドレンサンプル水
(参考)
- : 2号機原子炉建屋
- : 3号機SGTSフィルタ
トレイン
- : ORIGEN2による
初期インベントリ比
の計算値(傾き1)