福島第一原子力発電所 1・2 号機共用スタックドレンサンプ水の核種分析

Analysis of Water Collected at a Drain Sump of Common Stack for Units 1 and 2 of Fukushima Daiichi NPS

*島田　亜佐子[1]，谷口　良徳[1]，大平　早希[1]，飯田　芳久[1]
[1]原子力機構

福島第一原子力発電所 1 号機のベントにより放出された Cs の化学形の推定を目的に、1・2 号機共用スタックドレンサンプ水の核種分析を実施した。全 Cs、全 I、全 Mo の比から、Cs の代表的な化学形の一つである Cs_2MoO_4 の生成が抑制されたことが推定された。

キーワード：福島第一原子力発電所事故，核種分析，化学形態

1. 緒言

酸化性条件で、水蒸気が十分にある環境で炉心溶融が進展した場合、準揮発性の Mo の放出が増大し [1]、Cs が Cs_2MoO_4 の化学形をとることが示唆されている[2]。そこで、事故時の情報を残していると考えられる 1・2 号機共用スタックドレンサンプ水(ドレン水)に含まれる Mo 同位体、^{129}I、^{134,137}Cs の濃度を分析し、組成比から化学形を推測した。

2. 実験

Mo の分析ドレン水中の Mo を TEVA レジン(0.5 ml、アイクロム社製)により分離・精製した後、同位体比と濃度を SF-ICP-MS(サーモフィッシャー製)により測定した。

^{129}I の分析ドレン水の I の化学形を還元剤により I^-とし後、ANION-SR（3M 社製）に通液して I を分離・精製した。回収液中の ^{129}I 濃度は ICP-MS(Agilent7700)により定量した。

^{134,137}Cs の分析ドレン水 30 μl をろ紙にしみこませ、Ge 半導体検出器による γ 線測定から ^{134,137}Cs 濃度を定量した。

3. 結果

ドレン水中の Mo 同位体比は天然の Mo 同位体比とも、ORIGEN 計算[3]による 1 号機炉心で生成した Mo 同位体比とも異なっていた。^{92}Mo は炉内ではほとんど生成しないため、^{92}Mo は天然由来と想定し、Mo の天然同位体比とドレン水中 ^{92}Mo 濃度から、ドレン水中の天然起源 Mo 濃度を算出した。ドレン水中 Mo 濃度から天然起源 Mo 濃度を引き、1 号機起源の Mo を求めたところ、その同位体比は ORIGEN 計算値と誤差の範囲で一致し、濃度は 1.3×10^{-12} mol/ml であった。

減衰補正により事故時に換算したドレン水中の ^{129}I と ^{137}Cs の濃度はそれぞれ 1.6×10^{-10} mol/ml と 1.4×10^{-10} mol/ml であった。ORIGEN 計算値[3]から初期インベントリにおける全 I/^{129}I 及び全 Cs/^{137}Cs を求め、その値と測定値からドレン水中全 Cs と全 I を見積もった。全 Cs に対する全 I 及び全 Mo の比は 0.62 及び 3.9×10^{-3} であった。全 Cs に対して全 Mo の量が極めて低いことから、1 号機の炉心溶融が進展した期間においては Cs_2MoO_4 の生成が抑制される条件が支配的であったことが示唆された。

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受託事業「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」で得られたものである。

参考文献

[1] Y. Pontillon, G. Ducros, P.P. Malgouyres, Nucl. Eng. Des. 240 (2010) 1843-1852.
[2] A.C. Gregoire, J. Kalilainen, F. Cousin, et al. Ann. Nucl. Energy 78 (2015) 117-129.
[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

*Asako Shimada[1], Yoshinori Taniguchi[1], Saki Ohira[1] and Yoshihisa Iida[1]
[1]Japan Atomic Energy Agency