日本原子力学会 「水化学部会」第46回定例研究会(Web会議) 2023年10月26日(木)13:40-14:20

核分裂生成物の基礎特性と 福島第一原子力発電所事故時のふるまい

(Basic properties of fission products and their behaviors after the accidents of Fukushima Daiichi NPP)

内田 俊介



既要

福島第一原子力発電所(1F)事故により、汚染水として、主として、タービン建屋に蓄積された 放射性核分裂生成物(FP)は、ALPSなどによる処理を経て、処理水として保管されていた。 今夏以降、トリチウムを希釈した処理水はモニタリングのうえ海洋への放流が始まってる。 一方で、まだ大量のセシウムを中心とするFPが原子炉格納容器(PCV)内に残されており、 その量と分布の把握が、今後の廃炉作業を進めるうえでの喫緊の課題となっている。

本部会では、放射性腐食生成物(CP)の局所蓄積によるプラント線量率の上昇抑制など、 CPの議論がなされてきたが、FPの関する議論はあまり見られなかった。 本部会発足以前の水化学関連研究専門委員会では、 線量率上昇の要因の一つとしてのFP(主としてセシウム,Cs)の挙動,あるいは 事故時のヨウ素化学などが議論されてきた経緯がある。

学会事故調*では、汚染水中のトリチウムを含むCs挙動の評価が本部会の分担となり、 過去の知見に基づいて、定量評価に寄与してきた。

本講演では、水化学とFPの関わりを紹介し、FPの基礎特性を解説すると共に、 1F事故時におけるFPの振る舞いについての現在の理解状況を紹介する。

日本原子力学会 東京電力福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会

Ref. [1]

FPの基礎特性と1F事故後のふるまい

内田俊介

目 次



- 1. 放射性核分裂生成物と放射性腐食生成物 その生い立ちと原子炉での振る舞いの差異
- 2. 核分裂生成物の基礎特性 原子炉水化学ハンドブック改訂版にFP関連の1章を設けた
- 3.1F事故時の核分裂生成物の挙動 汚染水の評価とその浄化、トリチウムの挙動
- 4. 1F廃炉における核分裂生成物 現在の状況把握と今後の課題
- 5. トリチウムについて

処理水として海洋放出されるトリチウムについて

6. まとめ

水化学部会と1F廃炉に係る核分裂生成物挙動」研究専門委員会の関係

1-1 放射性核分裂生成物と放射性腐食生成物



CPとFPの比較

放射性核分裂生成物	放射性腐食生成物
(Radioactive Fission Products)	(Radioactive Corrosion Products)
・ウランなどの核分裂により生成	・構造材の腐食によって生成し、
	原子炉内で放射化し、
	冷却系の機器配管内面に蓄積
・燃料体内に蓄積	・燃料体外、冷却水中で生成、蓄積
(燃料損傷がなければ燃料体内に留まり、	
冷却水中には出ない)	
 燃料損傷に伴い冷却水中に放出 	 燃料体外、冷却水中で発生
☆環境への放出	☆放射性廃棄物への影響
☆プラント運転時の放射線源	☆同左影響小(¹⁶ Nが主)
☆配管内面他に蓄積し、線量率上昇の要因	☆同左
 燃料体と共に搬出され、 	 通常炉の廃炉での影響大
燃料再処理時に放出される	☆燃料表面蓄積物は
	再処理時除去要
 代表核種 	
¹³⁷ Cs(半減期;30年)	⁶⁰ Co(半減期;5.2年)
¹³¹ I (半減期; 8.0日)	⁵⁸ Co(半減期;70.86日)
¹²⁹ I(半減期 ;1.57x10 ⁷ 年)	
⁹⁰ Sr(半減期;28.79年)	Ref. [2]

1-2 放射性核分裂生成物と放射性腐食生成物



燃料損傷履歴



図3.2-1 主要課題への対応とその成果 特に燃料健全性の実績

Ref. [3]

1-3 放射性核分裂生成物と放射性腐食生成物



通常運転時のFP挙動(BWR)と事故時のヨウ素挙動



FPの基礎特性と1F事故後のふるまい

不活発となった

内田俊介

Ref. [4]

2-1 核分裂生成物の基礎特性



FPの生成(原子炉水化学ハンドブック改訂版より)



2-2 核分裂生成物の基礎特性



主要核分裂生成物の特性および特性による分類

表4.1.3 主要核分裂生成物の特性

核種	代表エ	ネルギー	・壊変当たりの	実効線量率	半減期
	(M	eV)	エネルギー	係数 (µSvm²	
	γ線	β線	(MeV/壊変)	/h/MBq)	
¹³¹ I	0.36		0.36	0.0548	8.02d
¹³² I	0.72		1.87	0.0301	2.28h (3.26d*1)
¹³³ I	0.53		0.53	0.0843	20.8h
¹³⁴ Cs	0.80		1.55	0.211	2.07y
¹³⁶ Cs	0.82		1.92		13.2d
¹³⁷ Cs	0.66		0.56	0.0779	30.2y
¹³³ Xe	0.081		0.027	0.0442	5.24h
⁸⁸ Kr	2.39		1.69		2.84h
³ H(³ T)	-	0.7825			12.3y
¹²⁹ I	-	.150			1.57x10 ⁷ y
⁹⁰ Sr	-	0.546			29.12y

表4.2.2 NUREG1465 における核分裂生成物の分類

No.	分類	<u>_主な核分裂生成物</u>
1	希ガス	Xe, Kr
2	ハロゲン	I, Br
3	アルカリ金属	Cs, Rb
4	テルル群	Te, Sb, Se
5	バリウム,ストロンチウム	Ba, Sr
6	貴金属	Ru, Rh, Pd, Mo, Tc, Co
7	希土類	La, Zr, Nd, Eu, Nb, Pm,
		Pr, Sm, Y, Cm, Am
8	セリウム群	Ce, Pu, Np

^{*1 132}Iの親核種で¹³²Iと放射平衡にある¹³²Teの半減期

表4.2.1 短期・中期・長期的な観点で重要となる主な核分裂生成物

短期 中期 長期 半減期 半減期 半減期 FP FP FP ⁸⁸Kr ¹⁴⁴Ce 105Rh 285 d 2.84 h 35.4 h ¹⁰⁵Ru ⁹⁹Mo ¹⁰⁶Ru 65.9 h 373 d 4.44 h 135Xe 9.14 h 3.20 d 134**Cs** ¹³²Te 2.06 v ⁹¹Sr ¹²⁵Sb 9.63 h ¹²⁷Sb 3.85 d 2.76 y ⁹⁷Zr 16.9 h 131 8.02 d ¹⁵⁴Eu 8.59 y ¹³¹Xe 133T 20.8 h 11.8 d ⁸⁵Kr **10.7** y ¹⁴³Ce 33.4 h ¹⁴⁰Ba 12.8 d ³H 12.3 y ⁹⁰Sr ¹⁴¹Ce 32.5 d 28.8 v ⁹⁵Zr 64 d 137**Cs** 30.1 y ^{110m}Ag 249 v 129**T** 1.57x10⁷ v

表4.2.3 揮発性に応じた核分裂生成物のカテゴリ分け

分類	主な核分裂生成物
FPガス及び揮発性FP:	FPガス(Kr, Xe)、
	揮発性FP(I, Cs, Br, Rb,
	Te, Sb, Ag)
中揮発性FP:	Mo, Rh, Ba, Pd, Tc
低揮発性FP:	Sr, Y, Nb, Ru, La, Ce, Eu
非揮発性FP:	Zr, Nd, Pr
アクチノイド:	低揮発性と同等の放出率を示す
	U&ONp
	非揮発性と同等の放出率を示す
	Pu等

Ref. [2]

FPの基礎特性と1F事故後のふるまい

3-11F事故時の核分裂生成物の挙動



TMI-2、チェルノブイリ、福島第一原子力発電所事故の比較

プラント	スリーマイル島2号機(TM-2)	チェルノブイリ4号機	福島第一原子力発電所
所在地	ペンシルバニア州	キエフ州	福島県
(国名)	(米国)	(ソビエト連邦、現ウクライナ)	(日本)
原子炉炉型	PWR	RBMW	BWR
		(黒鉛減速沸騰軽水圧力管炉)	
原子炉電気出力	95.7MWe	1,000MWe	1号機:460MWe
			2号機、3号機:780MWe
事故の要因	加圧器逃がし弁/安全弁	原子炉停止時発電系統の	地震とそれに続く津波による
	からの冷却水の漏えい	実験時の炉制御不能	全交流電源喪失
国際原子力事象	. レベル5	レベル7	レベル7
評価尺度(INES)事業所外リスクを伴う事故	深刻な事故	深刻な事故
放出放射能	放射性希ガス:92 TBq	推定 ¹³¹ I放出量 : 1.8 EBq	推定 ¹³¹ I換算総放出量 : 160 PBc
	放射性ヨウ素 ¹³¹ I : 0.6 TBq		

FPの基礎特性と1F事故後のふるまい

Ref. [2]





3-41F事故時の核分裂生成物の挙動

FP移行量の推算へのアプローチ

- ・比較的測定値の多いセシウム(Cs)を主に、
 - シビアアクシデント(AS)解析コードの結果に基づく Forward Evaluation Procedures
 ② 線量率などPCV外部からの線量率測定値に基づく Backward Evaluation Procedures
 を用いて、PCV内の蓄積量を推算する。
 - ❸ スミヤ分析値など直積測定データを加えて、プラント全体のマスバランスを評価する
- ・ SA解析コードでは事故後の短期間の評価に限定されるため、短/中/長期FP挙動解析を 展開する
 - ① 短期解析(熱流動解析との連成解析):SA解析コードの適用(FP解析では不確実さ大)
 - ② 中期解析:短期と長期の補完
 - ③長期解析:一部は汚染水評価で開発済み。詳細な解析は今後の課題
 - ④ 解析結果の妥当性検証: (a) 線量率測定値を用いた逆解析法

(b) プラント内でサンプリング測定値を用いた直接評価

・ 廃炉作業のリスク評価への適用

上記FP分布(アクチノイドも付加)の評価結果に基づき、作業に伴う環境への放射性核種の放出、作業者の被ばくの各リスクをミニマムにできる作業法を固める必要がある

Ref. [7]



3-61F事故時の核分裂生成物の挙動





3-71F事故時の核分裂生成物の挙動

汚染水から取り除かれた137Csと3T(日本原子力学会事故調報告)



3-81F事故時の核分裂生成物の挙動



短/中/長期FP挙動評価手法

タイミング	特徴
短期FP挙動解析手法	熱流動解析との連成解析 SA解析コード [SAMPSON、MELCOR、MAAP、ASTEC、THALES2など]
中期FP挙動解析手法	短期FP挙動解析の結果に基づく、局所的なFP移行解析 短/長期FP挙動解析コードのつなぎ [特にSA解析コードで取り扱われていない液滴洗浄効果など]
長期FP挙動解析手法	ほぼ常温常圧での長期的、準安定な質量移行解析 [特に、意図された操作(液体輸送、排気、除染等)起因のFP移行解析] ・汚染水解析(1点近似) ・汚染水解析(多点近似) ・建屋内主要部線量率評価 ・プラント内FP分布解析 ・廃棄物発生量解析

エネ総研でPCV内での長期FP 挙動モデル開発中

Ref. [7]

FPの基礎特性と1F事故後のふるまい

3-91F事故時の核分裂生成物の挙動







3-101F事故時の核分裂生成物の挙動



FPの基礎特性と1F事故後のふるまい



3-11 1F事故時の核分裂生成物の挙動

SAMPSONコードでのR/B内の領域分け

各領域内をガス、壁面、床面等に分割し、それぞれに一様に分散するものとして解析する。



3-12 1F事故時の核分裂生成物の挙動

No.17

1号機のFP分布図(SAMPSOMコードによる計算結果の一例)



内田俊介



3-151F事故時の核分裂生成物の挙動



1-3号機各炉のPCV内でのFPバランス図(SAMPSONコードによる解析結果)



3-161F事故時の核分裂生成物の挙動



BEP: S/C CAMS 検出器位置での線量率(1号機)

- ・ 炉停止後9,000h の CAMS 線量率からその時点での Cs量を推定
- ・Cs, I, TEについて初期炉心の核種比(半減期は補正)を用いて、各核種の変化を逆算
- ・S/C壁面からプール水中への移行(wash-out)モデル採用



3-171F事故時の核分裂生成物の挙動





FPの基礎特性と1F事故後のふるまい

FP移行量の推算

- 福島第一原子力発電所(1F)の廃炉作業の安全、確実な遂行のためには、
 FPその他の放射性核種が、プラント内の何処に、どれだけの量が、どのような形態で
 残存するかを把握することが必須である。
 - ① 廃炉作業は、燃料デブリ(デブリ)の存在箇所を同定し、これらを安全かつ確実に 取り出して、最終的に安全に保管することで終結。
 - ②約40年にわたるデブリ取り出し作業では、環境への放射性物質の飛散を最小限に 抑え、同時に従事する作業者の放射線被ばくを最小に抑制することが必須。
 - ③ 廃炉作業を遂行の障害となるのが、セシウム(Cs)をはじめとする放射性核種である。
 - ④ 事故後、時間とともに変わる放射性核種の分布を可能な限り正確に把握し、 その対応に万全を尽くし、放射性核種の飛散、被ばく抑制に資する。
- 格納容器(PCV)外部に関しては、汚染水を含め、定量的な評価が行われているが、
 圧力容器(RPV)を含めたPCV内の残存量は十分な測定が実施されていないため、
 さまざまな推算値に基づく評価が主である。
- これまで比較的測定値の多いCsを主に、プラント内でのマスバランスを評価し、
 PCV内の残存量を把握することで、今後の廃炉作業の計画立案に資することが
 Ref. [4]

FPの基礎特性と1F事故後のふるまい



前進解析と逆方向解析の比較(S/C内及びD/W内のCs量評価)



環境放出推定値からのBackward評価(WSPEEDI)

WSPEEDIで推定された環境への放出量を積算し、プラントから環境への移行量を評価

Ref. [4],[6]

3-201F事故時の核分裂生成物の挙動

1Fプラントでの¹³⁷Csのマスバランス (FEP. BEPおよび直接測定の組合せ)

Figure 19¹³⁷Cs distribution in Unit 1 (Comparison of short- and long-term evaluation results for Unit1) **Ref.** [4], [7]

4-1トリチウムについて

1. 宇宙線による生成

太陽からの中性子と 大気中の窒素、酸素 との反応 ¹⁴N(n, t)¹²C ¹⁶O(n, t)¹⁴N

1Ci=3.7x10¹⁰Bq、 1Bq=1壊変/s

2. 原子力発電所での生成

トリチウムの主な生成プロセス

[1EBq/y]

中性子は太陽の核融合反応で生成

 ¹H + ¹H => ²H + e⁺ + v + Energy
 ²H + ¹H => ³He + Energy
 ³He + ³He => ⁴He + P + P + Energy

 一連の核融合反応の中で

 ²H + ²H => ³He + n ほかの反応で中性子生成

 中性子の半減期:10.6 m

 太陽-地球:15000万km(光速で8分強)

 太陽からの中性子は地上に届き、トリチウム生成

[0.02EBq/y]

福島第一原子力発電所の総トリチウム量 [0.0034EBq] 総量で約10g(これが130万トンの処理水中に混合)

3. 核融合炉(100万We級)での使用 3kg/y [1EBq/y] 核融合炉ではD-T反応の燃料となるため T(d, n)⁴Heで生成される中性子(n)の運動エネルギーで発電 4. 核実験による放出 (過去型) [~240EBq] E:エクサ(6) (10³)⁶ =10¹⁸ k;3, M;6, G;9, B;12, P;15, E;18, Z;21, Y;24 万;10⁴, 億;10⁸, 兆;10¹², 京;10¹⁶,垓;10²⁰ Ref. [2]

4-2トリチウムについて

これまでの自然界のトリチウム

事故後の環境水中のトリチウム濃度は1980年代より小さい

FPの基礎特性と1F事故後のふるまい

4-3トリチウムについて

トリチウム汚染水の処理についての原子力学会事故調会での提案

トリチウム以外の核種は、ALPSほかで除去可能であるがトリチウム除去は困難

対応策	概要	課題	現実性	判断
1. サイト内貯蔵 方	女出せずに保管	地下水汚染のポテンシャル大	0	Δ
2. トリチウム除去と濃縮	トリチウム濃縮装置の適用	工学的には困難		
	(各種同位体交換法の適用)	[現実的な除染係数:10]		
2.1 除去水の放出	放出基準濃度以下して放出能		Δ	Δ
	放出するのであれば希釈も同じ	* /		
2.2 高濃縮減容保管	大半のトリチウムを濃縮・減容		Δ	Δ
	残りを希釈放出			
3. 希釈放出*2	トリチウム以外の核種は除去			
	トリチウムは希釈放出	総量規制に抵触*1	0	Δ

*1 保安規定との整合性福島第1の保安規定: 放出基準濃度; 20 Bq/g[法的には60 Bq/g] 総量規制; 0.022 PBq/y

|再処理施設の保安規定:放出基準濃度;20 Bq/g[法的には60 Bq/g]

総量規制; 18 PBq/y

- *2 復水器冷却用海水ポンプを用いて希釈排出可能
 - 1,100MWeBWRの復水器海水ポンプ(2.8x10⁵ t/h)を用いた希釈放出例

除去系1系統の処理量(250t/d)を希釈すると、

トリチウム濃度: 2000Bq/g => <0.01 Bq/g(自然界BGレベル)

総量規制への対応 0.5TBq/d x 40d/y => 20TBq/y 処理に20年強要 総量規制値オーバ 0.5TBq/d x 300d/y x 2系統 => 0.3TBq/y 2年弱 Ref. [1]

4-4トリチウムについて

各国のトリチウム排出基準(濃度規制)と排出実績(総量規制)

国∙機関	飲料水基準(Bq/L)	排出基準(Bq/L)
日本		60,000
オーストラリア	76,103	
フィンランド	30,000	
WHO	10,000	
カナダ(オンタリオ)	7,000	
米国	740	
EU	100	
フランス		40.000

Ref. [11],[12]

排出実績 (総量規制)	プラント ブランズウィック1号機、BWR	(国) (米国)	排出実績 <3.7 TBq	排出年度 2019
	トリカスタン、PWR	(フランス)	35 TBq	2018
	紅沿河、PWR	(中国)	87 TBq	2019
	泰山3号機	(中国)	143 TBq	2020
	寧徳	(中国)	102 TBq	2021
	陽江	(中国)	11 TBq	2021
	古里、PWR	(韓国)	91 TBq	2019
TBq: 10¹²Bq	ダーリントン、CANDU	(カナダ)	220 TBq	2018
PBq: 10¹⁵Bq	ラ・アーグ、再処理施設	(フランス)	11 PBq	2018
Ebq:10 ¹⁸ Bq	ALPS処理水	(日本)	<22 TBq	予定

本報告で示したFP挙動、FEP/BEPの解析手法及びその結果の多くは 「シビアアクシデント時の核分裂生成物挙動」研究専門委員会報告書に記載。 また、原子力学会の春の年会/秋の大会でも発表。

現状まだ十分な定量化がなされてはいないが、

廃炉作業も、燃料デブリ取出しにも手が付け始められようとしている現在、 技術の現状と今後の展開を明確にしておくことが必須と考える。

マスバランスに基づくFP分布の適用先として、

リスク評価分科会の廃炉リスク評価への動きも見えてきているので、 FPのマスバランとFP分布評価のシステムへの対応を議論いただければ幸甚です。

特に、格納容器内のFPのデータ取得はまだ先になるかと考えるため、 当面FEP/BEPでの評価が主となるものと考える。

¹³⁷Cs以外の核種への外挿には

JAEAの駒様が廃棄物を主対象に開発されている

輸送比の概念を適用を検討することも重要と考える。

参考文献

- [[1]日本原子力学会東電福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会、"福島第一原子力発電所事故 その全貌と明日に向けた 提言 -学会事故調最終報告書-"、丸善出版(株)(平成26年3月11日)
- [2] 日本原子力学会水化学部会、「改訂 原子炉水化学ハンドブック」、コロナ社(2022年9月)
- [3] 内田、連載講座 軽水炉プラントの水化学 第1回 軽水炉プラントにおける水の役割と水化学制御、日本原子力学会誌、51(2)、PP.106-111, 2009.
- [4] 「シビアアクシデント時の核分裂生成物挙動」研究専門委員会、"シビアアクシデント時の核分裂生成物挙動"、 日本原子力学会(2021年)
- [5] 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 、日本原子力 研究開発機構(2012年7月).<u>http://jolissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Data-Code-2012-018.pdf</u>
- [6] Nagai, H., Terada, H., Chino, M., Katata, G., Mikami, S. and Saito, K.,2015. Source Term Estimation for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident by Combined Analysis of Environmental Monitoring and Plant Data through Atmospheric Dispersion, Proc. 16th Int.Topical Meeting Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-16), Hyatt Regency Chicago, Chicago, IL, USA, August 30-September 4 (in CD).
- [7] S. Uchida, H. Karasawa, C. Kino, M.Pellegrini, M. Naitoh, M. Ohsaka M, An Approach toward evaluation of long-term fission product distributions in the Fukushima Daiichi NPP after severe accidents, Nucl. Sci. Eng., 380 (2021) 111256.
- [8] S. Uchida, M. Naitoh, H. Suzuki, H. Okada, S. Konishi, Evaluation of Accumulated Fission Products in the Contaminate Water at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Nucl. Technol., 188 (3), 252-265 (2014).
- [9] 日本原子力学会編"原子力の今と明日"、丸善出版(株)(平成31年3月25日)
- [10] S. Uchida, M. Pellegrini, M. Naitoh, Conversion factors bridging fission product distributions in the primary containment vessel of Fukushima Daiichi npp and dose rates measured by the containment atmosphere monitoring system, Nucl. Eng. Design., 380 (2021) 111303.
- [11] 柿内秀樹、トリチウムの環境動態及び測定技術、日本原子力学誌、60(9), pp31-35 (2018).
- [12] 環境省ホームページ:環境省_トリチウムの年間処分量 ~海外との比較;

https://www.env.go.jp/chemi/rhm/r4kisoshiryo/r4kiso-06-03-09.html