

福島第一原子力発電所2号機の格納容器からの

Xe135の検出について

平成23年11月4日

東京電力株式会社

11月1日、2号機に新たに設置した格納容器ガス管理システムを用いてサンプリング測定した結果、核分裂で生成されるXe135が検出された。Xe135は半減期が約9時間と短いので、これらは3月11日以前ではなく最近の核分裂によって生成されたものである。原子炉が未臨界でも、ごくわずかな量の核分裂は常時起こっており、測定が高感度になった結果、微量のXe135が検出されたものである。一部に、2号機の燃料が継続して核分裂反応が起こる「臨界」状態になったのではないかと懸念が生じたが、以下の理由から、2号機の燃料は臨界状態ではないと判断している。

① 検出されたXe135のレベルが低いこと

通常の原子炉内には中性子がなくても核分裂を起こす物質が生成されており、これらの物質は未臨界の状態であっても、また原子炉が十分に冷却された状態であっても、わずかではあるが一定レベルで核分裂しており（自発核分裂）、Xe135等の核種が生成している。

炉内の自発核分裂を起こす物質の量から、自発核分裂により生成されるXe135の量を計算したところ、実測されたXe135の濃度とおおむね一致する。（資料1）

また、今回実測されたXe135の値は、臨界状態で通常発生するXe135の値と比較して非常に小さい。（資料2）

従って、今回検出されたXe135は「自発核分裂」によって発生したと考えられる。

（なお、半減期が約5日のXe133も検出されているが、Xe135の方が半減期が短かく、直近の核分裂で生じたことが明らかなXe135で評価に用いた。）

② ホウ酸の注入後もXe135が検出されたこと

仮に臨界状態になっていた場合、念のために注入したホウ酸により、核分裂の連鎖反応は停止し、注入後にはXe135は検出されないと考えられる。しかし、注入後（11月2日）に実施したサンプリングでも、11月1日に実施した時と同レベルのXe135が検出されている。（資料3）

このことから、核分裂物質の周囲のホウ酸の有無に影響されることなく一定のレベルで発生する「自発核分裂」によって生成されたXe135が検出されたと考えられる。

③ 原子炉のパラメーターに有意な変動がないこと

原子炉や格納容器の状態を把握するために、様々な部位の温度や圧力を継続して測定している。臨界状態が発生していれば、それによって発生する熱エネルギーなどによって、温度上昇などの変化が観測されるはずであるが、11月1日前後で、これらのパラメーターに有意な変動は認められておらず、原子炉圧力容器底部温度は、炉内への注水量の増加に従って低下してきている。（資料4）

なお、上述した自発核分裂による生じる放射線の影響は無視できるレベルである。（資料5）

以上

自発核分裂で生じるXe 135の放射能濃度と実測濃度の比較

1. 自発核分裂量から推定される格納容器内のXe 135の放射能濃度

通常原子炉が未臨界（停止）状態であっても、炉内には中性子の連鎖反応ではなく自発的に核分裂する核種が存在している。代表的な核種は Cm242、Cm244 であり、現時点の2号機の燃料中ではこの2つの核種がそれぞれ

Cm242 が毎秒 8.3×10^8 回

Cm244 が毎秒 7.4×10^8 回

の核分裂をしている。（添付資料1－1）

なお、ここではCmの核分裂で発生した中性子がU 235などに吸収されて核分裂を引き起こす寄与分は考慮しないが、検出されたXe 135が未臨界状態での核分裂で生じたものであることを示す上では保守的な評価となる。

また、Xe 135はXe 134の（n, γ ）反応でも生成されるが、その寄与は小さいと予想されるので、ここでの評価には加えない。（添付資料1－2）

Cm242 からXe 135が生じる収率は2.66%で、生成速度は毎秒 2.2×10^7 個

Cm244 からXe 135が生じる収率は1.22%で、生成速度は毎秒 9.0×10^6 個

であり、合計 毎秒約 3.1×10^7 個となる。

（出典：Fission product yields, <http://www-nds.iaea.org/wimsd/fpyield.htm#T5>）

現状の格納容器の気相体積は約3000m³（添付資料2）であり、N₂の注入量は 14m³/hr であることから、全体の換気には約214時間掛かる。

自発核分裂の発生量は一定である一方、格納容器へのN₂の注入量も9月から10月の間は約14m³/hr 程度で大きな変動はないことから、格納容器内のXe 135の量は次の式で示す崩壊平衡状態になっていると考えられる。

$$\text{毎秒のXe 135生成量} = \lambda \cdot N + 14 \cdot N / (3000 \times 3600)$$

λ : Xe 135の崩壊定数 (2.12×10^{-5})

N : 格納容器内のXe 135の原子数

$$\begin{aligned} 3.1 \times 10^7 &= 2.12 \times 10^{-5} \times N + 1.3 \times 10^{-6} \times N \\ N &= 1.4 \times 10^{12} \text{ 個} \end{aligned}$$

格納容器内のXe 135の1cc当たりの放射能濃度は

$$\begin{aligned} & \lambda N / (3000 \times 1E6) \\ = & 2.12E-5 \times 1.4E12 / (3000 \times 1E6) \\ = & \underline{9.9E-3 \text{ Bq/cc}} \end{aligned}$$

2. 実測値から得られる格納容器内のXe 135放射能濃度

ガス管理システムに設置されたチャコールフィルターから測定されたXe 135の放射能濃度は $1.7E-5 \text{ Bq/cc}$ である。

チャコールフィルターの捕集効率をKr-85のチャコールフィルターでの測定値 ($5.3E-1 \text{ Bq/cc}$) とバイアル瓶での測定値 ($8.3E2 \text{ Bq/cc}$) の比から求めると1566倍となる。

よって、測定から求められる格納容器内のXe 135の放射能濃度は

$$\begin{aligned} & 1.7E-5 \times 8.3E2 / 5.3E-1 \\ = & \underline{2.7E-2 \text{ Bq/cc}} \end{aligned}$$

3. 結論

格納容器ガス管理システムで測定された結果から求めた格納容器内のXe 135の放射能濃度は、Cmの自発核分裂から生じると推定されるXe 135の放射能濃度とほぼ同オーダーである。

このことから、今回検出されたXe 135はCmの自発核分裂から生じたものと考えられる。

以上

出力1 kWの臨界状態で発生するXe 135の量

BWRの起動時に、最初に臨界に達する際の実出力レベルは数kWであるが（図1）、ここでは出力1 kWの臨界状態で生成されるXe 135の量を試算する。

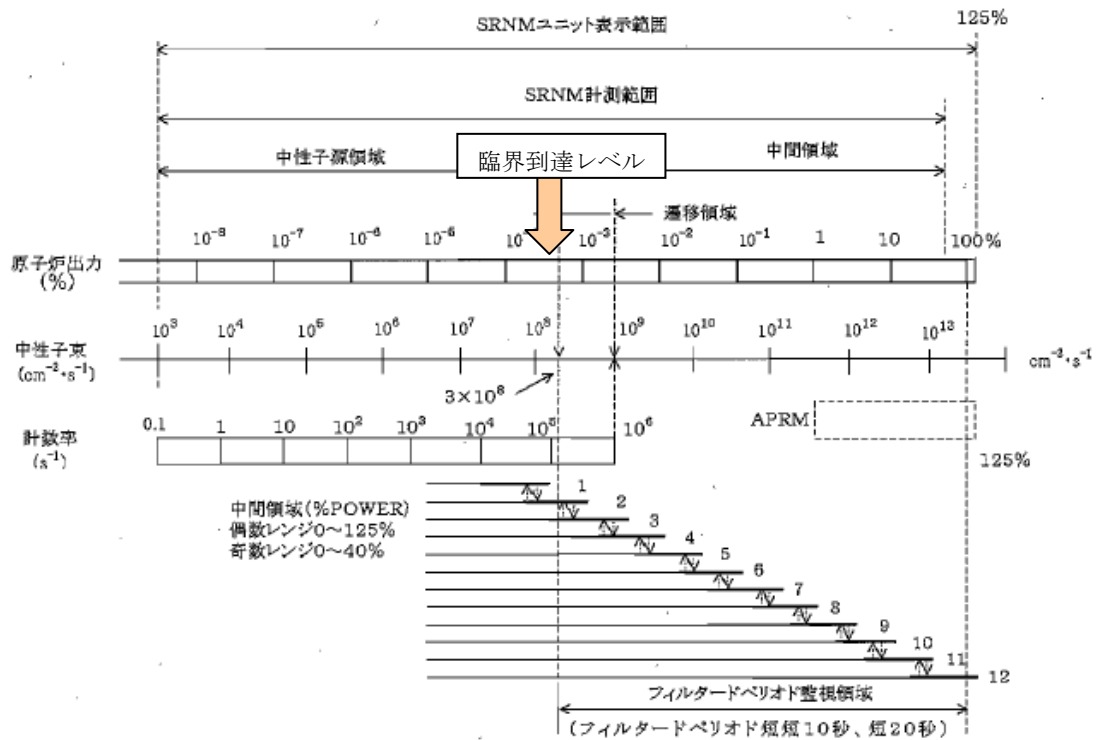


図1 起動領域モニタ計装範囲

1回の核分裂で約200MeVのエネルギーが発生することから、出力1 kWは毎秒3.1E13の核分裂に相当する。

Xe 135の核分裂収率(6.5%)から、Xe 135の生成速度は毎秒2E12個になる。

次に、毎秒2E12個でXe 135が発生している場合の格納容器のXe 135の放射能濃度を求める。

核分裂の発生量が一定の状態、格納容器へのN2の注入量は9月から10月の間は約14 m3/hr程度で大きな変動はないことから、格納容器内のXe 135の量は次の式で示す崩壊平衡状態になる。

$$\text{毎秒のXe 135生成量} = \lambda \cdot N + 14 \cdot N / (3000 \times 3600)$$

λ : Xe 135の崩壊定数 (2.12E-5)

N: 格納容器内のXe 135の原子数

$$\begin{aligned} 2.12 \times 10^{-5} N &= 2.12 \times 10^{-5} \times N + 1.3 \times 10^{-6} \times N \\ N &= 8.9 \times 10^{16} \text{ 個} \end{aligned}$$

格納容器内のXe135の1cc当たりの放射能濃度は

$$\begin{aligned} &\lambda N / (3000 \times 10^6) \\ &= 2.12 \times 10^{-5} \times 8.9 \times 10^{16} / (3000 \times 10^6) \\ &= \underline{630 \text{ Bq/cc}} \end{aligned}$$

チャコールフィルターの捕集効率をKr-85のチャコールフィルターでの測定値（ $5.3 \times 10^{-1} \text{ Bq/cc}$ ）とバイアル瓶での測定値（ $8.3 \times 10^2 \text{ Bq/cc}$ ）の比から求めて、チャコールフィルターでの値に換算すると

$$\begin{aligned} &630 \times 5.3 \times 10^{-1} / 8.3 \times 10^2 \\ &= \underline{0.4 \text{ Bq/cc}} \end{aligned}$$

万一、2号機の燃料が臨界状態となっている場合には現状のレベルより4桁程度大きなXe135濃度が観測されることとなるので、現状は臨界状態ではないと考えられる。

以上

2号機 PCV ガス管理システムでのガスサンプリング評価結果

(1) ダストサンプリング装置内ヨウ素ホルダ分析結果

試料採取日	11/1		11/2
測定日	11/1	11/2	11/2
核種(半減期)	採取ガス中濃度 (Bq/cm ³)		
Cs-134(約 2 年)	4.6×10 ⁻⁶	N.D. (<3.8×10 ⁻⁶)	7.9×10 ⁻⁶
Cs-137(約 30 年)	6.6×10 ⁻⁶	5.3×10 ⁻⁶	N.D. (<4.0×10 ⁻⁶)
Kr-85(約 11 年)	4.4×10 ⁻¹ ※	3.6×10 ⁻³ ※	5.3×10 ⁻¹ ※
Xe-131m(約 12 日)	6.9×10 ⁻⁴ ※	5.3×10 ⁻⁴ ※	6.1×10 ⁻⁴ ※
Xe-133(約 5 日)	1.4×10 ⁻⁵ ※ (>1.3×10 ⁻⁵)	6.5×10 ⁻⁶ ※ (>3.4×10 ⁻⁶)	N.D.※ (<1.5×10 ⁻⁵)
Xe-135(約 9 時間)	1.2×10 ⁻⁵ ※ (>4.1×10 ⁻⁶)	1.3×10 ⁻⁵ ※ (>5.4×10 ⁻⁶)	1.7×10 ⁻⁵ ※ (>4.3×10 ⁻⁶)
I-131 (約 8 日)	N.D.(<4.2×10 ⁻⁶)	N.D. (<1.8×10 ⁻⁶)	N.D. (<4.4×10 ⁻⁶)

※チャコールフィルタへの希ガスの捕捉率をヨウ素と同じ 90%と仮定した値。

(2) PCV ガス管理システムフィルタ出入口ガス分析結果

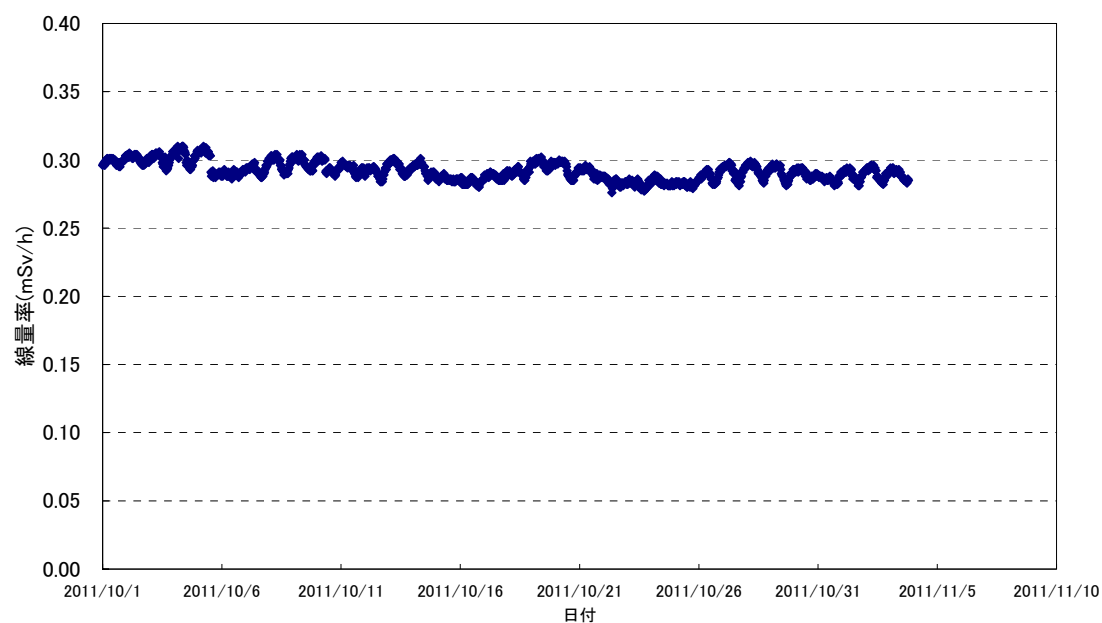
試料採取場所	フィルタ入口	フィルタ入口	フィルタ出口
試料採取日 (測定日)	10/28	11/2	11/2
核種(半減期)	採取ガス中濃度 (Bq/cm ³)		
Cs-134(約 2 年)	1.1	8.4×10 ⁻¹	1.5*
Cs-137(約 30 年)	1.7	9.6×10 ⁻¹	1.7*
Kr-85(約 11 年)	N.D.	N.D.	8.3E2
Xe-131m(約 12 日)	N.D.	N.D.	N.D.
Xe-133(約 5 日)	N.D.	N.D.	N.D.
Xe-135(約 9 時間)	N.D.(<1.6×10 ⁻¹)	N.D.	N.D.
I-131 (約 8 日)	N.D.(<2.1×10 ⁻¹)	N.D.	N.D.

*フィルタ出口の方が入口側よりも高い数値を示していることから、参考値扱い。

注：フィルタ入口で採取したガス中にはヨウ素が含まれている可能性はあるが、ヨウ素が減衰していること、一方その他の核種は減衰していないことから、バックグラウンドが高く検出限界以下となっていると考えられる。また、出口ではヨウ素はチャコールフィルタにより吸着されていることから、検出限界以下となると考えられる。

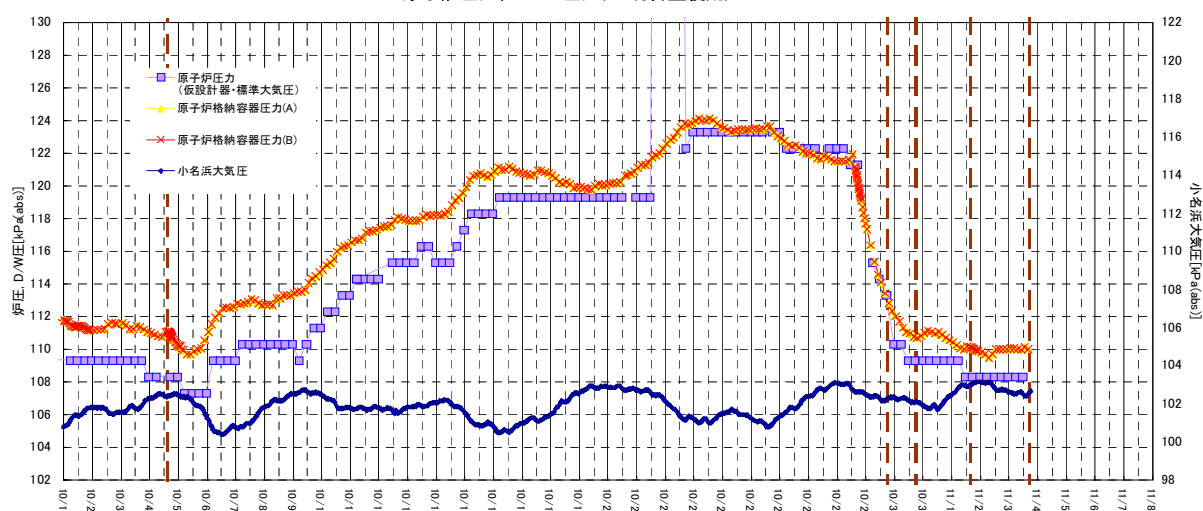
2号機のプラントパラメーター推移

可搬型MP(事務本館南側)線量率の推移



2u

原子炉圧力、D/W圧力(GS切替監視用)

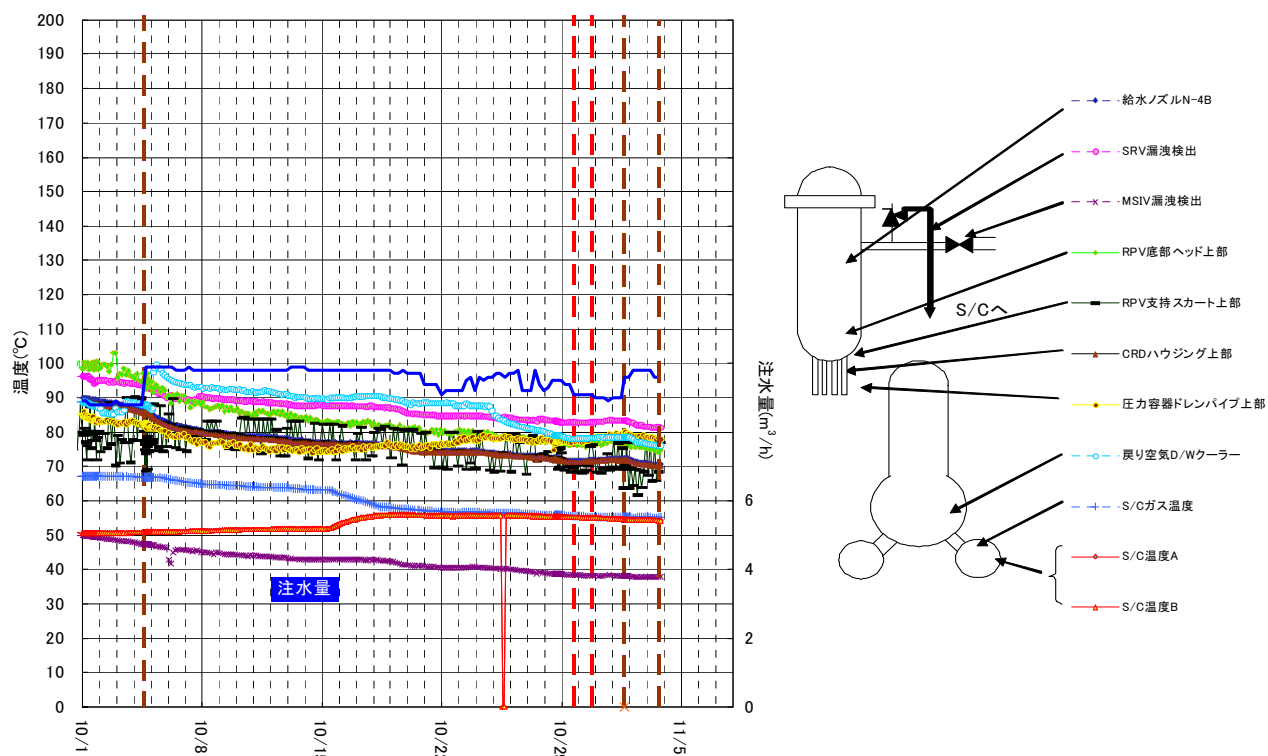


2u

温度(至近)

1F-2 RPV周辺代表点温度

11/3 19:00 現在



◆RPV上蓋フランジ(135°)の著しい低下の理由は、計装系不具合(9/20確認)

2号機 原子炉格納容器ガス管理システムから放出された 希ガスによる被ばく評価結果について

2号機原子炉格納容器ガス管理システムの出口の測定結果から、希ガスの放出による被ばく評価を行った。評価は事故時安全評価に使用した相対濃度を用いて、この濃度で1年間放出が続くと仮定して算出したものである。

なお、計算に用いる PCV ガス管理システム出口の放射能濃度については、チャコールフィルタにて採取した測定結果とガスにて測定した結果から捕集倍率を求め、それぞれの核種に乗ずることにより、放射能濃度評価値とした。

その結果、年間被ばく線量は敷地境界の最大で約0.0001ミリシーベルト／年であり、法令の線量限度1ミリシーベルト／年に比べても十分低いと評価される。

なお、年間の1～3号機格納容器からのセシウムによる年間被ばく線量評価値(10/17 道筋会見時 約0.2ミリシーベルト／年)に比べても十分低いと評価される。

(計算結果)

検出核種	測定データ CHフィルタ (11/2)	捕集倍率	放射能濃度 評価値	換気流量	γ線実効エ ネルギー	相対線量 (0.5MeV換 算)D/Q	敷地外にお ける実効線 量(最大値)
	濃度(Bq/cm3)			m3/h	MeV	Gy/Bq (=Sv/Bq)	μSv/年
Kr-85	5.3E-01	1.6E+03	8.3E+02	14	0.0022	2.4E-19	1.1E-01
Xe-131m	6.1E-04	1.6E+03	9.5E-01	14	0.02	2.4E-19	1.1E-03
Xe-133	—	1.6E+03	—	14	0.045	2.4E-19	—
Xe-135	1.7E-05	1.6E+03	2.7E-02	14	0.25	2.4E-19	4.0E-04
合計							0.11 μSv/年
(計算式)							0.00011 mSv/年

実効線量(μSv/年) = 放射能濃度評価値 × 10⁶ × 換気流量 × γ線実効エネルギー / 0.5(MeV)
× 相対線量 × 10⁶ × 8760(時間/年)

以上

表 1 自発核分裂による発生中性子数の ORIGEN 計算結果

(単位：中性子数/sec/初期ウラン重量 1t)

核種	U-238	Pu-238	Pu-240	Pu-242	Cm-242	Cm-244	Cm-246
冷却120日後	1.20E+04	1.21E+05	1.35E+06	2.25E+05	4.99E+07	2.42E+07	2.97E+04
冷却365日後	1.20E+04	1.25E+05	1.35E+06	2.25E+05	1.76E+07	2.36E+07	2.97E+04

解析条件：ORIGEN

ウラン燃料 STEP3B 型 初期 U-235 濃縮度 3.80wt%

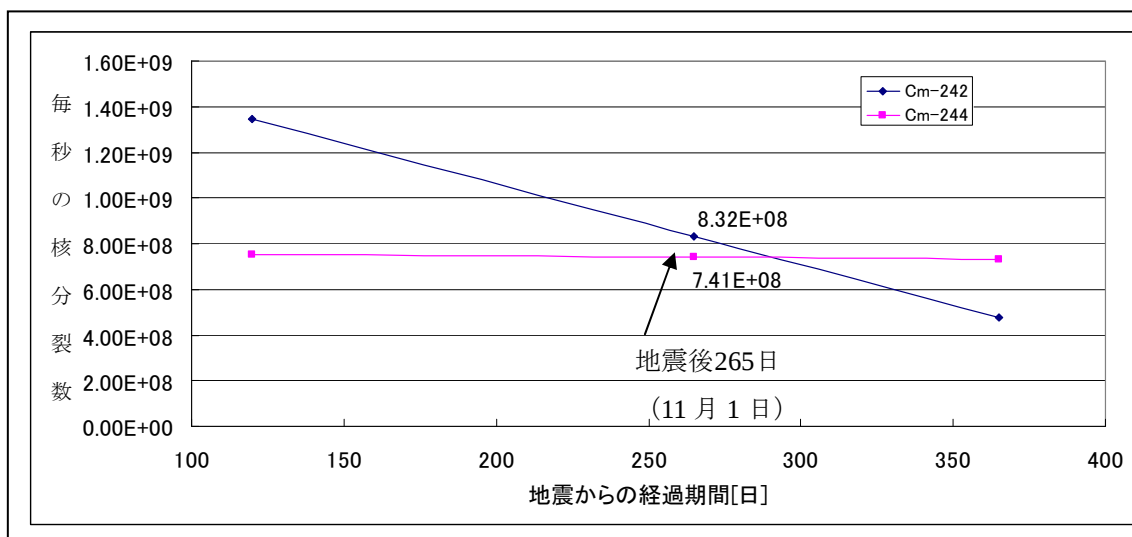
比出力 25.52 MW/t

定格熱出力 2381MWth

地震停止時の炉心平均燃焼度 23.2 GWd/t (推定) まで燃焼計算を行い、以降は崩壊計算を実施した。

表 2 1F-2 に残存している Cm-242 と Cm-244 の自発核分裂数

	Cm-242	Cm-244
冷却 120 日後 (核分裂数/sec)	1.348E+09	7.526E+08
冷却 365 日後 (核分裂数/sec)	4.765E+08	7.336E+08



Xe134 の(n, γ)反応による Xe135 の生成について

1. はじめに

Xe135 の生成は、自発核分裂によって生成されるものの他に、Xe134 の (n, γ) 反応によっても生成されることが知られている。ここでは、Xe134 の(n, γ)反応による Xe135 の生成が有意に Xe 135 の濃度を上げることに寄与するかどうかを検討した。

2. 評価と検討

Xe134 の収率は 7.8%と比較的大きく、さらに Xe134 は安定核種であるため減衰がないので炉内に残存する量は希ガスの中ではかなり大きいと考えられる。

半減期が 10 年と長い Kr-85 は、現時点でも $4.4 \times 10^{-1} \text{Bq/cm}^3$ (原子数で 10^8 個/cm³) 程度が格納容器内から検出されているが、これと比較して Xe134 が安定核種であること、収率が大きいことを考慮すれば Kr-85 よりも 1 桁程度は濃度が大きいと思われる。

一方、(n, γ)反応のための中性子の吸収に対しては、Xe-134 の吸収断面積 (capture) を図 1 に示すが、吸収断面積が大きいことで知られている Xe131 (図 2 参照) と比較すると数桁程度吸収断面積が小さく、特別に中性子吸収が顕著な核種ではない。

また、希ガスであることから、Xe134 は燃料から離脱して格納容器内に遊離しており、燃料から離れた気相部の中性子束密度は低いことから(n, γ)反応は活発には生じないと考えられる。

3. 結論

Xe134 は他の希ガス類に比べて原子数は多いと考えられるものの、中性子吸収断面積が小さいこと、中性子束密度が低いことから、(n, γ)反応による Xe135 の生成は少ないと考えられる。

以上

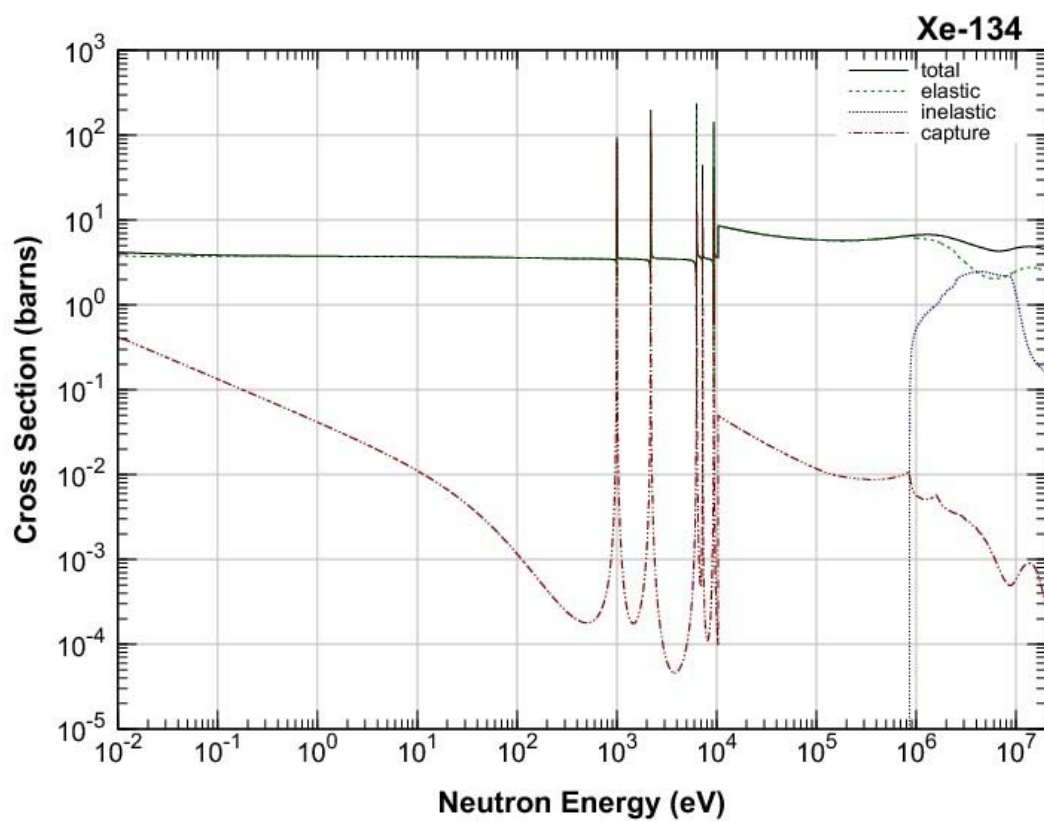


図 1 Xe134 の反応断面積 (JENDL4.0)

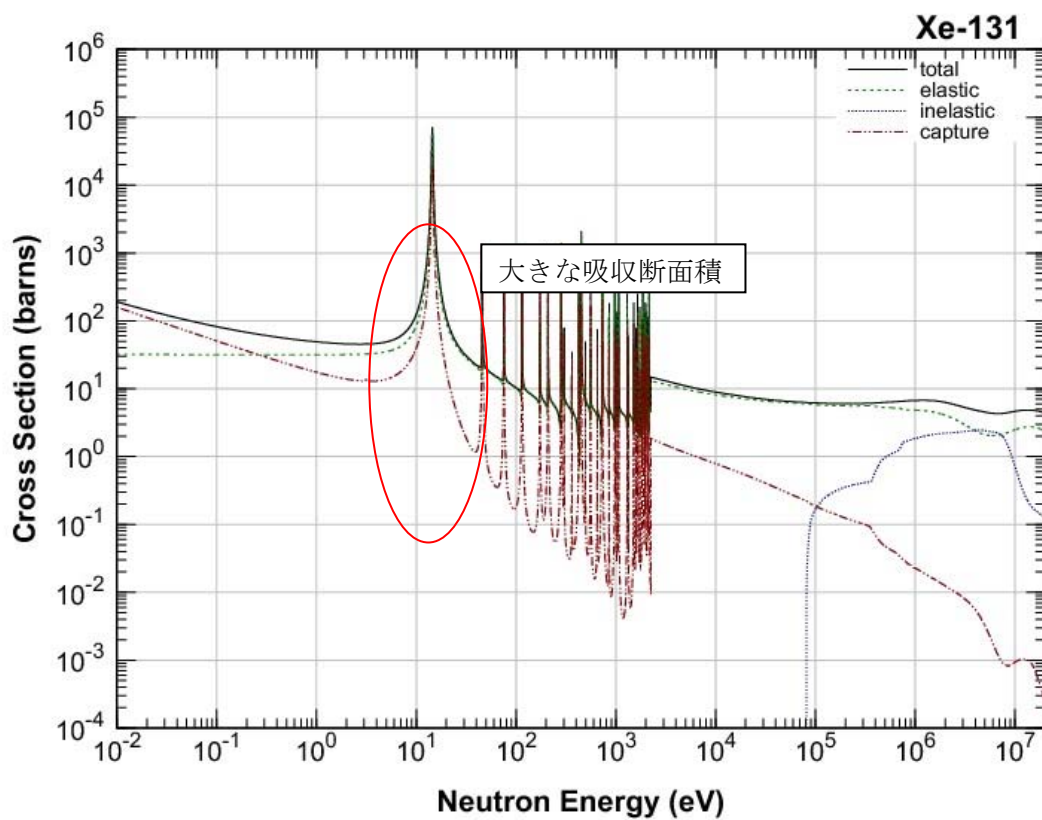


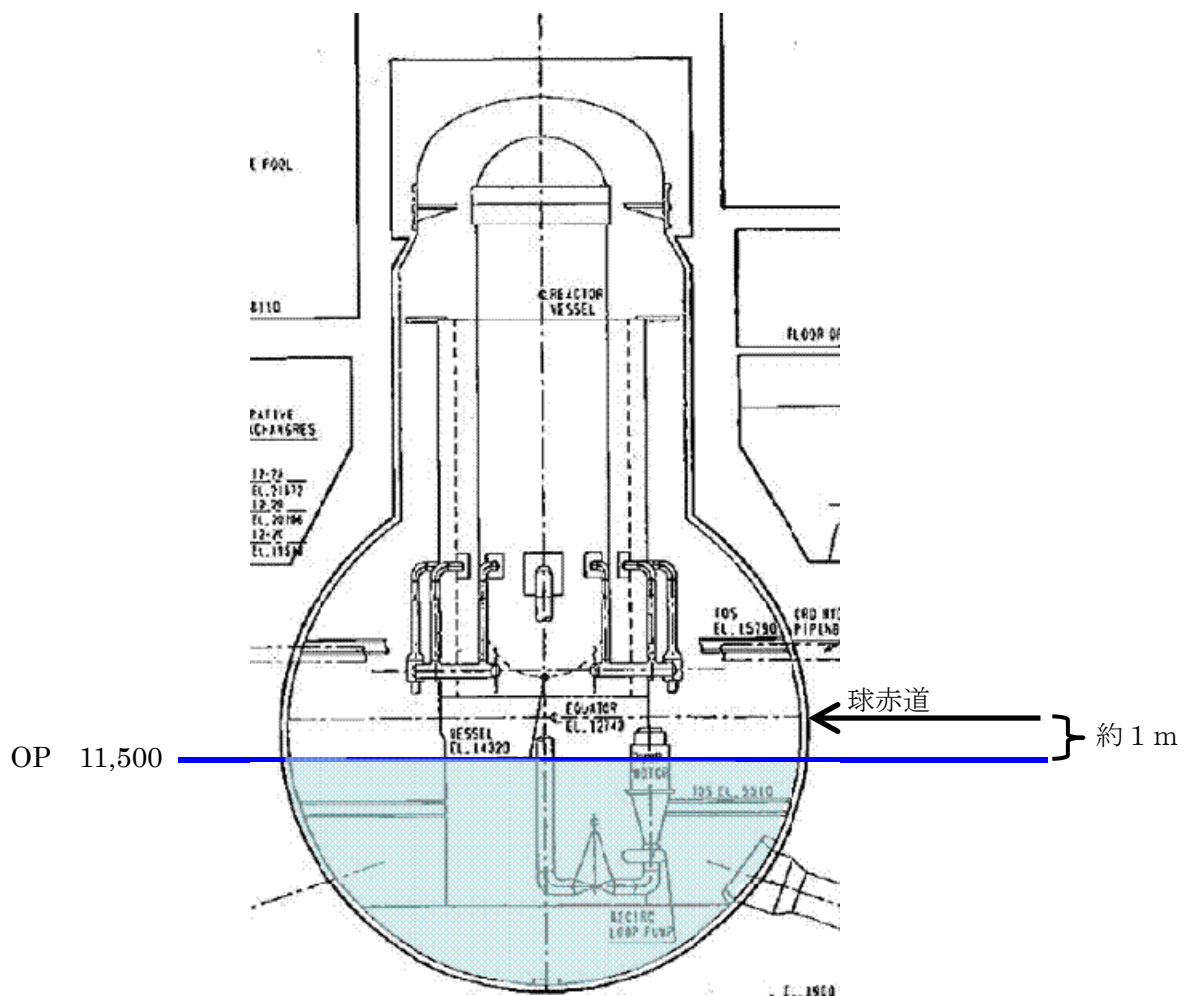
図 2 Xe131 の反応断面積 (JENDL4.0)

格納容器気相部の体積の評価

福島第一・2号機の原子炉格納容器（ドライウェル）内には一定水位があるものと想定されている。ドライウェル内の水位は直接的に測定されていないが，残留熱除去系の圧力とドライウェル圧力の差圧から推測される，原子炉格納容器内の水頭圧によると，op. 11,000～12,000 付近に水位があると推定される。ドライウェル内の水位が球部赤道より約 1 m 下（op. 11,500 付近）と仮定した場合の P C V 内空間容積は約 3,000m³である。

<ドライウェル寸法>

球部直径	2 0 m
円筒部直径	1 0 . 9 m
全高	3 4 . 1 m



2号機格納容器ガス管理システム及び試料採取の概要

1. 排気ガス採取・分析方法について

2号機は10月28日より原子炉格納容器ガス管理システムの運転を開始している。当設備は図1に示すように、排気ファン、放熱器、電気ヒータ、フィルタユニット、モニタリング装置等で構成され、可燃性ガス濃度制御系（FCS）配管から原子炉格納容器内のガスを抽気し、フィルタユニットにより放射性物質を除去した後に、一部のガスを大気へ放出している。

当設備を利用した排気ガスのサンプリング・核種分析として、フィルタユニット入口側または出口側の分岐配管にガス採取装置を接続しガスバイアル瓶にガスを吸引採取し分析する方法と、フィルタユニット出口側に設置されたモニタリング装置内の集塵フィルタにガスを通気し集塵採取したダストを分析する方法が可能である。

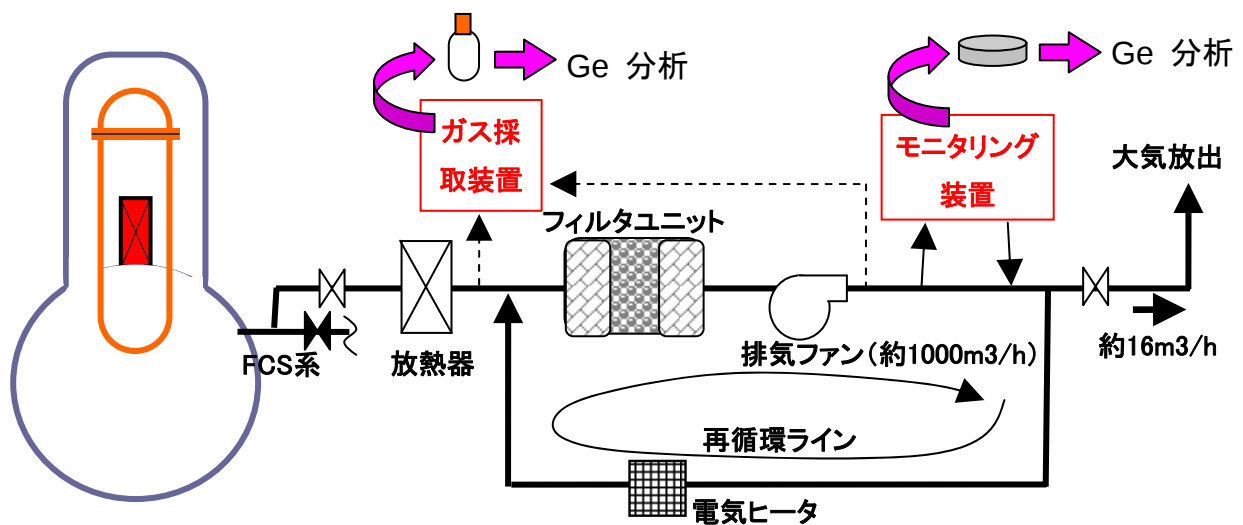


図1 2号機原子炉格納容器ガス管理システム概要図

ガス採取装置は吸引ポンプで格納容器ガス管理設備の分岐配管から排気ガスを循環させたのち、予め真空吸引したガスバイアル瓶にガスを採取する。

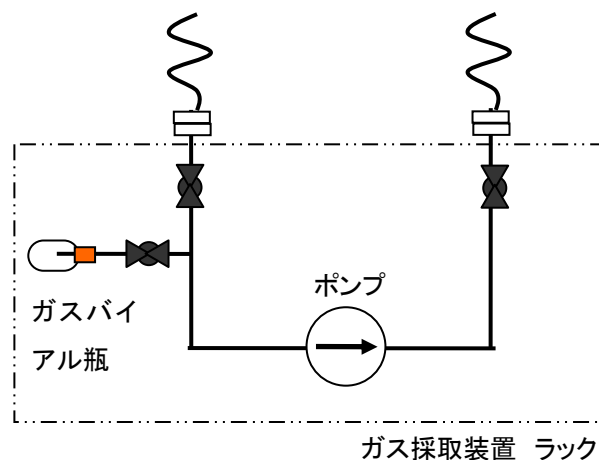


図2 ガス採取装置概要図

モニタリング装置ではフィルタユニット出口側から排気ガスを吸引し、ダスト放射線モニタと水素濃度計によりそれぞれダスト濃度、水素濃度を測定している。また、モニタリング装置内にはダストホルダ、ヨウ素ホルダが設置されており、ダストホルダでは金網の上に装着された粒子フィルタにより吸引ガス中の粒子状ダストを、ヨウ素ホルダではチャコールカートリッジによりヨウ素ガスを捕集、採取する。

採取したガス、ダストホルダ（集塵フィルタ）試料はそれぞれ福島第一5／6号機ホットラボ内 Ge 半導体検出器を用いてガンマ線分析を行った。なお、検出限界値は測定対象核種のガンマ線ピークによる計数値がバックグラウンドによる計数値から判別できるかで決まり、試料の条件や測定時間でその都度異なるが、今回の測定実績での検出限界は、ガスバイアル瓶試料の Cs-134 で $10^{-1}\text{Bq}/\text{cm}^3$ 程度、集塵フィルタ試料の Cs-134 で $10^{-6}\text{Bq}/\text{cm}^3$ 程度である。集塵フィルタの場合、放射性物質を集塵させたフィルタの放射能を測定するため、通気させたガスの積算流量中の放射能濃度として求めることができ、検出限界値はガスバイアル瓶より小さくなる。

以上

自発核分裂について

自発核分裂とは、外部から中性子などの衝撃や外部からのエネルギーを与えなくても、原子核が自然に核分裂を起こす現象をいう。天然に存在する核種ではウランの自発核分裂が観測されるが U-238 の自発核分裂の半減期は 8×10^{15} 年、 α 崩壊の半減期は 4×10^9 年であり、自発核分裂の割合は非常に小さい。原子炉内では原子番号が 93 以上の超ウラン元素で自発核分裂の発生確率がより高く、ORIGEN による計算結果によると添付資料 1-1 で示したように、以下の核種の寄与が大きい。

表 1 自発核分裂による発生中性子数の ORIGEN 計算結果
(単位：中性子数/sec/初期ウラン重量 1t)

核種	U-238	Pu-238	Pu-240	Pu-242	Cm-242	Cm-244	Cm-246
冷却120日後	1.20E+04	1.21E+05	1.35E+06	2.25E+05	4.99E+07	2.42E+07	2.97E+04
冷却365日後	1.20E+04	1.25E+05	1.35E+06	2.25E+05	1.76E+07	2.36E+07	2.97E+04

解析条件：ORIGEN

ウラン燃料 STEP3B 型 初期 U-235 濃縮度 3.80wt% 比出力 25.52 MW/t

定格熱出力 2381MWth

地震停止時の炉心平均燃焼度 23.2 GWd/t (推定) まで燃焼計算を行い、以降は崩壊計算を実施した。

以上

1 1 月 2 日のホウ酸水注入に関わる時系列

平成 23 年 11 月 1 日

- 環境影響評価のため、排気ガスのダスト核種分析（ダスト放射線モニタ内に設置されているダストホルダ、ヨウ素ホルダを Ge 半導体検出器で測定）を実施
- ヨウ素ホルダの分析結果中に、Xe133,135 の存在を示すデータが確認されたことから、ホウ酸水注入に関する検討を実施。

13:51 ヨウ素ホルダを用いた試料採取開始。
 14:20 試料採取終了。
 14:54 試料の放射能測定開始。
 15:37 試料の放射能測定終了。
 20:00 頃 ホウ酸水注入の可否について検討開始。
 22:30 頃 保安院殿へホウ酸水注入について報告。

平成 23 年 11 月 2 日

- ホウ酸水の注入実施。
- 1 1 月 1 日採取したヨウ素ホルダの再測定、及び新たなヨウ素ホルダを使った再サンプリングの実施・測定
- ガス管理システムのフィルタ入口、出口でのガス採取及び測定
 - 0:19 ホウ酸水注入実施を、統合対策本部で発話。注入の準備開始。
 - 2:48 ホウ酸水注入開始。
 - 3:47 ホウ酸水注入終了。
 - 10:14 試料（11 月 1 日採取分）の再測定開始。
 - 10:47 試料（11 月 1 日採取分）の再測定終了。
 - 11:59 ヨウ素ホルダ試料採取の開始。
 - 12:29 ヨウ素ホルダ試料採取の終了。
 - 13:07 ヨウ素ホルダ試料の測定開始。
 - 13:40 ヨウ素ホルダ試料の測定終了。
 - 15:25 フィルタ入口試料採取。
 - 15:48 フィルタ出口試料採取。
 - 16:12 フィルタ入口試料の測定開始。
 - 16:15 フィルタ出口試料の測定開始。
 - 16:45 フィルタ入口試料の測定終了。
 - 16:48 フィルタ出口試料の測定終了。