

土壌汚染マップと大気拡散計算から逆推定した福島事故初期の ^{129m}Te ソースターム及びヨウ素、Cs ソースタームへの提言

^{129m}Te source term prediction at the beginning of Fukushima accident calculated reversely from the soil contamination map and atmospheric dispersion calculation, and recommendations for iodine and Cs source terms

日高昭秀 ^{1),2)}、川島茂人 ³⁾、梶野瑞王 ⁴⁾、高橋千太郎 ⁵⁾、高橋知之 ³⁾

Akihide Hidaka^{1),2)}, Shigeto Kawashima³⁾, Mizuo Kajino⁴⁾, Sentaro Takahashi⁵⁾, Tomoyuki Takahashi³⁾

1) 原子力機構、2) カリファ大学、3) 京都大学、4) 気象研、5)元京都大学

1) JAEA, 2) Khalifa University, 3) Kyoto University, 4) Meteorological Research Institute, 5) Former Kyoto University

福島事故時のソースタームを精度良く評価することは、事故進展の分析や環境影響評価を行う上で重要である。従来のモニタリングポストや海水表面濃度データと大気拡散計算を用いたソースタームの逆算は、測定箇所の点情報を用いた流跡線解析に基づく予測であった。このため、陸から海に向かう陸風の場合の予測は困難であり、最新の評価 Terada et al.(2020)でも、3/12 早朝前の 1 号機からの放出を予測していなかった。

一方、本手法 Kawashima et al.(1999)では、広範囲な土壌沈着分布に着目し、単位放出を仮定したメソスケール気象モデル (WRF) 計算から得られる毎時の面的な沈着分布の結果を重みづけし、それらの合算と、事故後に測定した累積土壌沈着分布との差を最小にするように重み＝放出率を決定することにより、ソースタームを精度良く評価できる。特徴として、陸風の場合でも微粒子の大部分は海側に運ばれるが、一部はその後、海風になった時に陸に戻って沈着するため、ソースタームの予測が可能になる。

演者らは、第 1 報 Takahashi et al. (2019)において、文科省の ^{129m}Te 土壌汚染マップ Saito et al. (2015)と WRF を用いて 3/14～3/16 の ^{129m}Te の放出時間帯を逆推定し、その起源について格納容器の圧力変化や漏洩経路の水の有無等から検討した。第 2 報 Hidaka et al. (2021)では、過酷事故時に燃料から放出された ^{129m}Te の大部分は未酸化の Zr 被覆管内面に一旦取り込まれ、炉心再注水時に Zr 被覆管が完全酸化する直前に SnTe として放出される現象を考慮し、3/12～3/16 の再注水時の放出に焦点を当てて検討を行なった。しかし、Zr の完全酸化は、被覆管温度が最初に上昇する際にも被覆管の中上部で部分的に起こることから、本報では、1 号機及び 3 号機からの最初の ^{129m}Te 放出をも捉えるため、3/11～3/15 について同様の逆推定を行った。

今回の解析により、各号機の最初の放出として、1 号機 (3/11 19 時頃)、3 号機 (3/13 4 時～6 時)、2 号機 (3/14 19 時頃) を予測した。1 号機は、直流電源喪失により非常

用復水器（IC）弁の開操作できなくなった直後であり、3号機は、消防自動車からの注水（消防注水）を行うために高圧注水系（HPCI）を手動停止させたが消防注水ができなかった直後に符合する。2号機は、消防注水を開始するため、原子炉圧力容器の圧力を手動低下させ、炉心水位も低下した直後に相当する。いずれも、格納容器上部フランジからの漏洩前であるが、炉内核計装または主蒸気配管フランジからの漏洩等により環境放出は説明可能である。

以上のように、本解析で得られた ^{129m}Te のソースタームは、原子炉側の事象から十分に説明でき、予測精度はかなり高いと考えられる。今回の結果及びヨウ素や Cs の揮発性は Te より高いことを考慮すると、これまで評価されなかった 3/11 夕方遅く、3/12 早朝及び 3/13 早朝にもヨウ素と Cs の放出は増加したと考えられる。なお、本手法は、 ^{129m}Te の放出が事故初期の数日間に限られていたので適用できたのであり、1 か月を超えて放出が継続した Cs に適用する際には計算の収束性など様々な課題を解決する必要がある。

キーワード：福島第一原発事故、 ^{129m}Te ソースターム、文科省土壤汚染マップ、メソスケール気象モデル

Keywords: Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, ^{129m}Te source terms, MEXT soil contamination map, Weather research and forecasting model

$^{129\text{m}}\text{Te}$ source term prediction at the beginning of Fukushima accident calculated reversely from the soil contamination map and atmospheric dispersion calculation, and recommendations for iodine and Cs source terms

Akihide Hidaka^{1),2)}, Shigeto Kawashima³⁾, Mizuo Kajino⁴⁾, Sentaro Takahashi⁵⁾, Tomoyuki Takahashi³⁾

1) Japan Atomic Energy Agency, 2) Khalifa University, 3) Kyoto University, 4) Meteorological Research Institute, 5) Former Kyoto University

Accurate evaluation of the source terms at the time of Fukushima accident is important for analyses of the accident progression and/or the environmental consequent evaluation. The backward calculation of the source terms using the conventional monitoring post and seawater surface concentration data as well as atmospheric dispersion calculation was a prediction based on the trajectory analysis using the point information of the measurement point. For this reason, it was difficult to predict in the case of situation when the wind blew from land to the sea (land wind), and even the latest evaluation, Terada et al. (2020) could not predict the release from Unit 1 before early morning of March 12.

Meanwhile, in this method, Kawashima et al. (1999), we focused on a wide range of soil deposition distributions, weighted the results of the surface hourly deposition distributions obtained from the mesoscale meteorological model (WRF) calculations assuming the unit release, and added them together. The source term can be evaluated with high accuracy by determining the weight (= release rate) so as to minimize the deviation between the added results described above and the cumulative soil deposition distribution measured after the accident. As a feature, even in the case of land wind, most of the microparticles are transported to the sea side, but some of them return to the land side by the sea wind later, which makes it possible to predict the source term.

In the first presentation, we reversely estimated the release time zone of $^{129\text{m}}\text{Te}$ from March 14 to March 16 using the MEXT $^{129\text{m}}\text{Te}$ soil contamination map, Saito et al. (2015) and WRF. In addition, Takahashi et al. (2019) predicted its origin from changes in the pressure of the containment vessel, and the presence or absence of water in the leakage path. In the second presentation, Hidaka et al. (2021) took notice that most of the $^{129\text{m}}\text{Te}$ released from the fuel during a severe accident is once taken into the inner surface of the unoxidized Zr cladding tube and released as SnTe just before the Zr cladding is completely oxidized during the core refilling, and focused on the release during reinjection from March 12 to March 16. However,

since complete oxidation of the Zr cladding also partially occurs at the middle or higher location of the cladding when the cladding temperature rises for the first time. Therefore, in the present analysis, a similar inverse estimation was performed for the time between March 11 and March 15 in order to predict the first $^{129\text{m}}\text{Te}$ release from Unit 1.

The present analysis showed that the first release from each Unit occurred as follows: Unit 1 at around 19:00 on March 11, Unit 3 from 4:00 to 6:00 on March 13, and Unit 2 at around 19:00 on March 14, respectively. These correspond to the moments when in Unit 1, immediately after the emergency condenser (IC) valve could not be opened due to the loss of DC power, and in Unit 3, HPCI was manually stopped for fire engine water injection but the fire engine water could not be injected. In Unit 2, the time point corresponds to just after the manually decrease in the pressure and water level in the reactor pressure vessel in order to start the fire engine water injection. In each case, although the predicted points described above are before the leakage from the upper flange of the containment vessel, the release to the environment can be explained by the leakage from core instrumentation or the main steam pipe flange.

As described above, the $^{129\text{m}}\text{Te}$ source term obtained in this analysis can be almost explained from the records of events on the reactor side, and the prediction accuracy is considered to be quite high. Considering this result and the higher volatility of iodine and Cs than Te, it is considered that the releases of iodine and Cs increased in the late evening of March 11, and early mornings of March 12 and March 13, which had not been evaluated so far. This method was applicable when the release of $^{129\text{m}}\text{Te}$ occurred in the first few days of the accident, and when applied to Cs whose release continued for more than one month, it is necessary to solve various problems such as the convergence of calculations.

Keywords: Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, $^{129\text{m}}\text{Te}$ source terms, MEXT soil contamination map, Weather research and forecasting model