

福島第一原発構内における 土壌中の放射能測定データを用いた検討

北海道大学
エネルギー環境システム専攻
原子炉工学研究室

千葉豪

平成 25 年 8 月 5 日

1 はじめに

福島第一原発サイト内の土壌に含まれる放射能の測定が事故直後から行われ、その測定データが東京電力のホームページで公開されている。測定の結果得られる放射能それ自体の値は、格納容器、原子炉建屋からの放射能放出率、測定点付近への沈着率、測定における検出率などに強く依存し、不確定な要素が大きい。一方、同位体の放射能の比に着目した場合、同一の元素は化学的性質に違いはなく、放射能放出率、沈着率等を同一と見做せることから、上で述べた種々の不確定なパラメータの影響を受けることは無いものと考えられる。同位体の放射能比は、核燃料の種類や燃焼条件に強く依存するものもあり、その測定データを破損燃料の同定などに利用できる可能性がある（事実、燃焼度の推定にはセシウム 134 と 137 の放射能比が用いられている [1, 2]）。

著者はこれまでに、土壌で測定された放射能データを基に、事故時点での同位体の放射能比を推定し、数値計算結果との比較を行った [3]。本稿は、同位体の放射能比について、より現実に即した計算モデルや計算条件を適用した数値計算結果と測定データとの比較を新たに行うものである。

2 測定データからの事故当時の同位体放射能比の推定

本稿では以下の4つの同位体放射能比について着目する。なお分母を長半減期の同位体の放射能としている。

- セシウム 134/セシウム 137 (Cs-134/Cs-137、実効半減期は 2.22 年)
- セシウム 136/セシウム 137 (Cs-136/Cs-137、実効半減期は 13.18 日)
- ストロンチウム 89/ストロンチウム 90 (Sr-89/Sr-90、実効半減期は 50.53 日)
- テルル 132/テルル 129m (Te-132/Te-129m、実効半減期は 3.5 日)

測定データとしては、東京電力のホームページで公開されている「福島第一原子力発電所構内における土壤中の放射性物質の核種分析結果」のものを利用した(2011年4月6日から12月16日までのデータ)。このデータは日本原子力研究開発機構および日本分析センターによる土壌ガンマ線核種分析結果であり、資料にはI、Cs、TeといったFPの放射能について、3つの空間的定点における測定データが提示されている。このデータから、着目する同位体の放射能比を求め、時間依存に整理したものを Fig. 1 に示す。

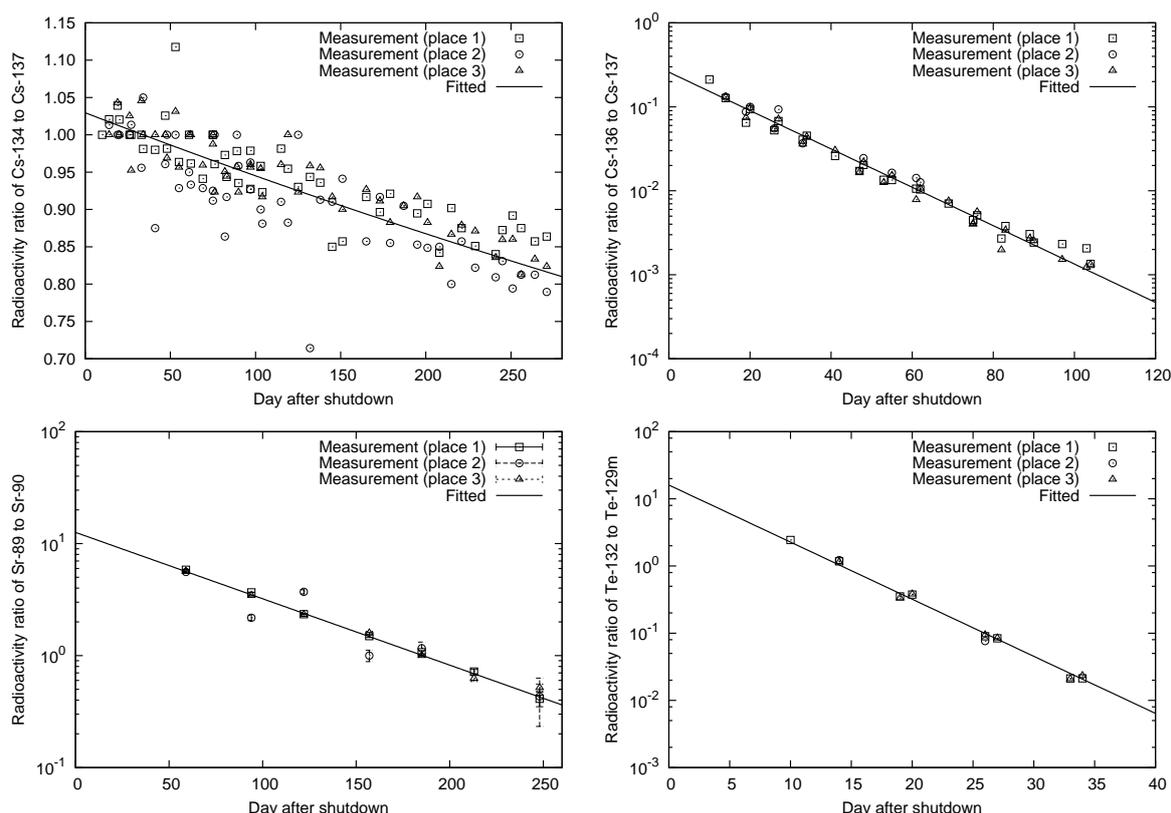


Fig. 1: Measurement data of radioactivity ratios with fitted curve

同位体の放射能比のデータを最小二乗法により指数関数にフィッティングし、外挿により事故時点での同位体の放射能比を求めた。結果を Table 1 に示す。以降では、この値と数値計算結果を比べる。

Table 1: Radioactivity ratios at the reactor shutdown estimated from the measurement data

	Radioactivity ratio
Cs-134/Cs-137	1.030 ± 0.004
Cs-136/Cs-137	0.259 ± 0.007
Sr-89/Sr-90	12.6 ± 0.6
Te-132/Te-129m	16.1 ± 0.6

3 数値計算結果と測定データとの比較

3.1 数値計算方法

本稿では、奥村らによって構築されたピンセルベースの計算方法 [4] により、1号機から3号機までそれぞれの炉心における放射能を数値計算で評価した。ピンセルモデルは、ORLIB-J33の作成の際に構築された、BWRの燃料集合体と等価となるモデル [6] を採用した。被覆管、冷却材領域の核種数密度も同モデルの値を採用したが、燃料ペレット領域の組成は西原らの評価値 [5] を用いた。BWRでは、燃料ピンの燃焼は軸方向のボイド率、線出力密度に強く依存することから、奥村らと同様に、軸方向にいくつかのノード分割を行い、各々のノードについて適切なボイド率、線出力密度を仮定して、燃焼計算を行った。仮定した軸方向のボイド率、相対線出力密度を Fig. 2 に示す。このデータは、奥村らが典型的なBWRを想定して評価した値 [4] を基にして作成したものである。なお、本評価では軸方向を9分割とした。

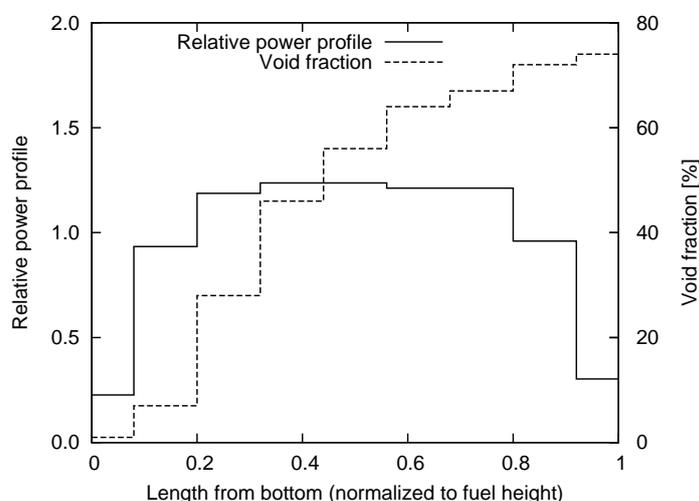


Fig. 2: Axial distributions of void fraction and power profile

燃焼計算では照射、冷却条件が重要である。本検討では、それらのデータについては西原らによって評価されたもの [5] を用いた。各号機のバッチ毎の燃焼度についてまとめたものを Table 2 に示す。

Table 2: Batch-wise fuel burnup (unit:GWd/tHM)

Batch	Unit 1	Unit 2	Unit 3
1	5.2 (64*)	3.3 (116)	4.5**/4.7*** (32/116)
2	15.2 (64)	15.8 (116)	15.5 (112)
3	24.2 (80)	26.0 (120)	28.5 (140)
4	33.3 (68)	35.2 (120)	36.2 (112)
5	37.5 (64)	40.6 (76)	40.5 (36)
6	40.2 (60)	-	-
(core average)	25.8	23.1	21.8

* The number of fuel assemblies. ** MOX fuel. *** UO₂ fuel.

今回採用した燃焼バッチ毎、軸方向ノード毎に燃焼計算を行って全炉心の放射能を評価する方法についてまとめたものを Fig. 3 に示す。

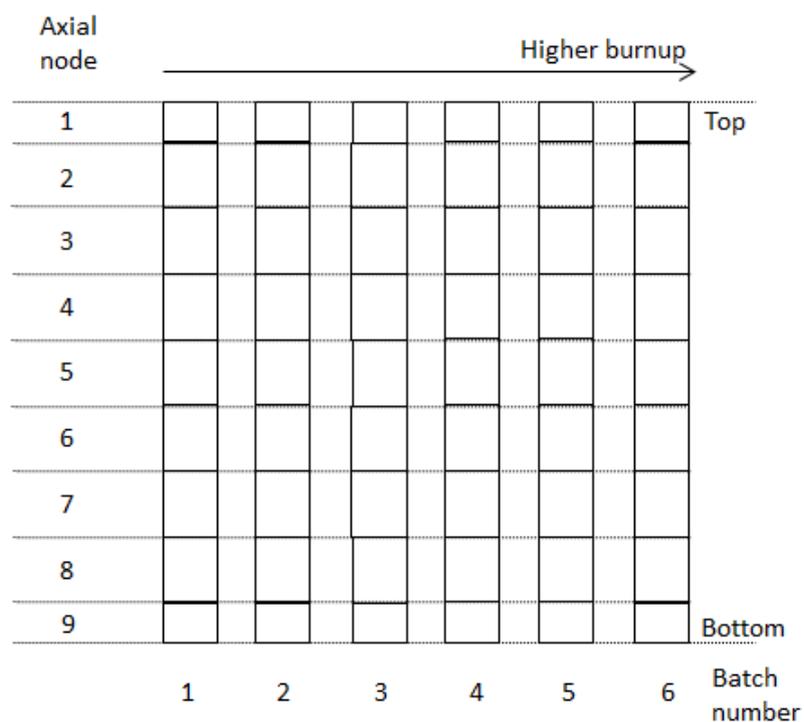


Fig. 3: Procedure of pin-cell-based fuel depletion calculations

燃焼計算には当研究室で開発している汎用炉物理計算コードシステム CBZ を用いた。ピンセル体系で 107 群の実効断面積を計算し、それを用いて衝突確率法により燃料ピンの 107 群の中性子束エネルギースペクトルを求め、燃焼計算により核種数密度（および放射能）の時間変動を評価した。燃焼チェーンは SRAC2006 コードの開発者向けのものに 4 つの FP 核種を追加したものとし、崩壊データ、収率データとしては JENDL FP Decay Data File 2011、Fission Yields Data File 2011 を用いた [7]。また、中性子核反応断面積としては JENDL-4.0 のものを用いた [8]。

3.2 全炉心での数値計算結果

事故直後の同位体の放射能比について、測定値から求めたものと計算値（各号機の全炉心積分値）を比較したものを Table 3 に示す。全ての号機、同位体放射能比について、測定値と計算値は 50% 以内で一致していることが分かる。特に Cs-134/Cs-137、Cs-136/Cs-137 については 25% 以内で一致している。

Table 3: Calculation-to-measurement ratio for radioactivity ratio of whole core

Unit	Cs-134/Cs-137	Cs-136/Cs-137	Sr-89/Sr-90	Te-132/Te-129m
1	1.00	0.96	0.71	1.32
2	1.15	1.15	0.91	1.44
3	1.11	1.22	1.02	1.35

また、計算値の核データへの依存性を評価する目的で、中性子断面積、崩壊、収率データをそれぞれ ENDF/B-VII.1、JEFF-3.1.1 に変更した計算を行った。結果を Table 4 に示す。放射能比 Te-132/Te-129m について顕著な核データ依存性が観察され、ENDF/B-VII.1 は明らかな過大評価であることが分かる。後に示す詳細計算結果からも示されるように JENDL-4.0 も過大評価傾向であり、JEFF-3.1.1 がもっとも測定値と整合がとれるということが言える。なお、この差異は主に Te-129m の核分裂収率の評価値の差異に起因している。

Table 4: Calculation-to-measurement ratio for radioactivity ratio of whole core with several modern nuclear data

Unit	Nuclear data	Cs-134/Cs-137	Cs-136/Cs-137	Sr-89/Sr-90	Te-132/Te-129m
1	JENDL-4.0*	1.00	0.96	0.71	1.32
	ENDF/B-VII.1	0.95	0.95	0.71	2.32
	JEFF-3.1.1	0.97	0.95	0.72	0.92
2	JENDL-4.0	1.15	1.15	0.91	1.44
	ENDF/B-VII.1	1.09	1.13	0.91	2.51
	JEFF-3.1.1	1.11	1.14	0.91	0.98
3	JENDL-4.0	1.11	1.22	1.02	1.35
	ENDF/B-VII.1	1.06	1.20	1.02	2.36
	JEFF-3.1.1	1.08	1.20	1.03	0.92

* Decay and yield data for fission products are taken from JENDL/FPD-2011 and JENDL/FPY-2011.

さらに、ORLIB-J33 の作成時に構築した集合体等価ピンセルモデルでは水の数密度が極端に大きく評価されているという指摘があることから、集合体平均の水密度が保存されるようなピンセルモデルも作成し、同様の計算を行った。結果を Table 5 に示す。集合体平均の水密度を保存するピンセルモデルを用いた場合、Cs-134/Cs-137、Cs-136/Cs-137 の計算値は実測値を過大評価する傾向となった。

Table 5: Calculation-to-measurement ratio for radioactivity ratio of whole core with different model for number densities in coolant region

Unit	Cs-134/Cs-137	Cs-136/Cs-137	Sr-89/Sr-90	Te-132/Te-129m
1	1.22 (1.00*)	1.51 (0.96)	0.72 (0.71)	1.23 (1.32)
2	1.42 (1.15)	1.82 (1.15)	0.91 (0.91)	1.33 (1.44)
3	1.38 (1.11)	1.91 (1.22)	1.02 (1.02)	1.25 (1.35)

* Values obtained with the original model.

3.3 バッチ毎、軸ノード毎の数値計算結果

燃焼計算は各号機について、バッチ毎、軸ノード毎に行ったため、バッチ、軸ノード依存の同位体放射能比を得ることが出来る。この節では、バッチ毎、軸ノード毎に得られた同位体放射能比の計算値を測定値と比較した結果を示す。

Te-132/Te-129m については全てのバッチ、軸ノードで計算値は実測値よりも大きい値となっていることから、計算値がこの放射能比を過大評価していることが言えるであろう。

Table 6: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of cesium-134 to cesium-137 in unit 1

Axial node	Batch						
	1	2	3	4	5	6	All
1 (top)	0.08	0.20	0.28	0.33	0.33	0.30	0.30
2	0.25	0.65	0.90	1.03	1.02	0.95	0.92
3	0.31	0.80	1.10	1.27	1.26	1.17	1.13
4	0.30	0.79	1.09	1.26	1.25	1.16	1.12
5	0.30	0.78	1.08	1.25	1.25	1.17	1.12
6	0.29	0.75	1.04	1.22	1.23	1.15	1.09
7	0.25	0.67	0.95	1.13	1.14	1.08	1.01
8	0.19	0.49	0.70	0.83	0.85	0.90	0.75
9 (bottom)	0.04	0.12	0.16	0.19	0.18	0.17	0.17
All	0.26	0.69	0.96	1.12	1.12	1.05	1.00

Table 7: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of cesium-136 to cesium-137 in unit 1

Axial node	Batch						
	1	2	3	4	5	6	All
1 (top)	0.84	0.65	0.56	0.48	0.43	0.37	0.49
2	1.49	1.22	1.08	0.99	0.90	0.82	0.99
3	1.62	1.32	1.18	1.08	1.00	0.91	1.09
4	1.59	1.30	1.16	1.06	0.98	0.90	1.07
5	1.55	1.25	1.12	1.03	0.95	0.87	1.04
6	1.48	1.19	1.06	0.99	0.92	0.84	0.99
7	1.36	1.08	0.97	0.91	0.85	0.78	0.91
8	1.14	0.90	0.80	0.74	0.69	0.63	0.74
9 (bottom)	0.58	0.41	0.34	0.29	0.26	0.22	0.30
All	1.44	1.16	1.03	0.95	0.88	0.81	0.96

Table 8: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of strontium-89 to strontium-90 in unit 1

Axial node	Batch						
	1	2	3	4	5	6	All
1 (top)	4.77	1.47	0.80	0.49	0.37	0.29	0.75
2	4.71	1.38	0.73	0.43	0.33	0.25	0.72
3	4.69	1.36	0.70	0.41	0.31	0.24	0.71
4	4.69	1.36	0.70	0.41	0.31	0.24	0.71
5	4.69	1.36	0.70	0.41	0.30	0.23	0.71
6	4.70	1.36	0.70	0.41	0.30	0.23	0.71
7	4.71	1.38	0.71	0.41	0.30	0.23	0.71
8	4.73	1.41	0.74	0.44	0.33	0.25	0.72
9 (bottom)	4.78	1.49	0.82	0.51	0.39	0.30	0.76
All	4.70	1.38	0.72	0.42	0.31	0.24	0.71

Table 9: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of tellurium-132 to tellurium-129m in unit 1

Axial node	Batch						
	1	2	3	4	5	6	All
1 (top)	1.76	1.57	1.46	1.38	1.34	1.32	1.49
2	1.69	1.39	1.26	1.17	1.13	1.11	1.30
3	1.69	1.37	1.24	1.15	1.11	1.08	1.29
4	1.70	1.37	1.24	1.16	1.12	1.09	1.29
5	1.70	1.39	1.26	1.17	1.12	1.09	1.30
6	1.72	1.40	1.27	1.18	1.14	1.10	1.31
7	1.74	1.43	1.30	1.21	1.16	1.12	1.34
8	1.77	1.48	1.35	1.25	1.20	1.16	1.38
9 (bottom)	1.81	1.68	1.59	1.52	1.49	1.47	1.61
All	1.72	1.41	1.28	1.19	1.15	1.11	1.32

Table 10: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of cesium-134 to cesium-137 in unit 2

Axial node	Batch						
	1	2	3	4	5	All	
1 (top)	0.05	0.22	0.33	0.39	0.41	0.35	
2	0.15	0.69	1.01	1.21	1.27	1.06	
3	0.19	0.85	1.24	1.48	1.55	1.30	
4	0.18	0.84	1.22	1.46	1.54	1.29	
5	0.18	0.83	1.21	1.46	1.54	1.28	
6	0.17	0.79	1.17	1.42	1.51	1.25	
7	0.15	0.71	1.07	1.31	1.41	1.15	
8	0.11	0.52	0.79	0.98	1.05	0.85	
9 (bottom)	0.03	0.12	0.18	0.22	0.23	0.19	
All	0.16	0.73	1.08	1.30	1.38	1.15	

Table 11: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of cesium-136 to cesium-137 in unit 2

Axial node	Batch					
	1	2	3	4	5	All
1 (top)	0.96	0.69	0.62	0.58	0.55	0.61
2	1.61	1.28	1.18	1.15	1.14	1.19
3	1.74	1.38	1.28	1.26	1.26	1.30
4	1.72	1.35	1.26	1.24	1.24	1.28
5	1.67	1.31	1.21	1.20	1.21	1.24
6	1.60	1.24	1.16	1.16	1.17	1.19
7	1.48	1.13	1.06	1.06	1.08	1.09
8	1.26	0.94	0.87	0.86	0.88	0.89
9 (bottom)	0.72	0.43	0.38	0.35	0.33	0.38
All	1.56	1.22	1.13	1.12	1.12	1.15

Table 12: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of strontium-89 to strontium-90 in unit 2

Axial node	Batch					
	1	2	3	4	5	All
1 (top)	6.89	1.47	0.81	0.54	0.43	0.95
2	6.85	1.38	0.73	0.47	0.37	0.91
3	6.84	1.36	0.71	0.45	0.35	0.90
4	6.84	1.36	0.71	0.45	0.35	0.90
5	6.84	1.36	0.71	0.45	0.35	0.90
6	6.84	1.36	0.71	0.44	0.34	0.90
7	6.85	1.37	0.72	0.45	0.34	0.90
8	6.86	1.41	0.75	0.48	0.37	0.91
9 (bottom)	6.90	1.49	0.83	0.56	0.45	0.95
All	6.85	1.37	0.72	0.46	0.36	0.91

Table 13: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of tellurium-132 to tellurium-129m in unit 2

Axial node	Batch					
	1	2	3	4	5	All
1 (top)	1.94	1.63	1.51	1.43	1.40	1.59
2	1.92	1.44	1.31	1.23	1.19	1.41
3	1.93	1.42	1.29	1.22	1.18	1.40
4	1.93	1.43	1.30	1.22	1.19	1.40
5	1.94	1.44	1.31	1.23	1.20	1.41
6	1.95	1.46	1.33	1.25	1.21	1.43
7	1.97	1.49	1.36	1.28	1.23	1.46
8	1.98	1.54	1.40	1.32	1.27	1.50
9 (bottom)	1.97	1.75	1.65	1.58	1.55	1.71
All	1.95	1.47	1.33	1.25	1.22	1.44

Table 14: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of cesium-134 to cesium-137 in unit 3

Axial node	Batch						
	1(MOX)	1(UO ₂)	2	3	4	5	All
1 (top)	0.08	0.07	0.22	0.35	0.39	0.41	0.33
2	0.24	0.22	0.68	1.07	1.21	1.26	1.03
3	0.29	0.28	0.83	1.31	1.49	1.54	1.26
4	0.28	0.27	0.82	1.30	1.47	1.53	1.25
5	0.28	0.27	0.81	1.29	1.47	1.53	1.25
6	0.26	0.26	0.78	1.25	1.43	1.50	1.21
7	0.23	0.23	0.70	1.14	1.33	1.40	1.12
8	0.17	0.17	0.52	0.84	0.99	1.05	0.82
9 (bottom)	0.04	0.04	0.12	0.19	0.22	0.23	0.19
All	0.24	0.24	0.72	1.15	1.31	1.37	1.11

Table 15: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of cesium-136 to cesium-137 in unit 3

Axial node	Batch						
	1(MOX)	1(UO ₂)	2	3	4	5	All
1 (top)	3.15	0.86	0.68	0.62	0.60	0.59	0.66
2	3.75	1.51	1.27	1.19	1.20	1.24	1.26
3	3.83	1.64	1.37	1.29	1.32	1.38	1.37
4	3.80	1.61	1.34	1.27	1.30	1.35	1.35
5	3.73	1.56	1.29	1.23	1.26	1.32	1.31
6	3.65	1.50	1.23	1.17	1.21	1.27	1.25
7	3.52	1.38	1.12	1.07	1.12	1.18	1.15
8	3.35	1.16	0.93	0.88	0.91	0.95	0.95
9 (bottom)	2.97	0.60	0.43	0.38	0.36	0.35	0.42
All	3.65	1.46	1.20	1.14	1.17	1.22	1.22

Table 16: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of strontium-89 to strontium-90 in unit 3

Axial node	Batch						
	1(MOX)	1(UO ₂)	2	3	4	5	All
1 (top)	5.30	5.27	1.55	0.78	0.57	0.49	1.06
2	5.28	5.21	1.46	0.70	0.49	0.42	1.03
3	5.28	5.19	1.43	0.67	0.47	0.39	1.01
4	5.28	5.19	1.44	0.67	0.47	0.39	1.01
5	5.28	5.20	1.44	0.67	0.46	0.39	1.01
6	5.28	5.20	1.44	0.67	0.46	0.38	1.01
7	5.28	5.21	1.45	0.68	0.47	0.38	1.01
8	5.29	5.23	1.49	0.71	0.50	0.42	1.03
9 (bottom)	5.30	5.28	1.57	0.80	0.59	0.50	1.07
All	5.28	5.21	1.45	0.68	0.48	0.40	1.02

Table 17: Batch-wise and axial node-wise calculation-to-measurement ratio for the radioactivity ratio of tellurium-132 to tellurium-129m in unit 3

Axial node	Batch						
	1(MOX)	1(UO ₂)	2	3	4	5	All
1 (top)	1.02	1.78	1.57	1.42	1.36	1.34	1.46
2	1.06	1.73	1.39	1.24	1.18	1.15	1.32
3	1.07	1.73	1.37	1.23	1.17	1.14	1.31
4	1.07	1.73	1.38	1.23	1.17	1.15	1.32
5	1.07	1.74	1.39	1.24	1.18	1.16	1.33
6	1.07	1.76	1.41	1.26	1.20	1.18	1.35
7	1.07	1.78	1.44	1.29	1.23	1.20	1.37
8	1.05	1.80	1.49	1.33	1.26	1.23	1.40
9 (bottom)	1.01	1.82	1.67	1.56	1.50	1.48	1.56
All	1.07	1.75	1.42	1.26	1.21	1.18	1.35

4 おわりに

事故直後における4つの同位体放射能比について、原発構内の土壌放射能測定データから外挿した値と数値計算値を比較し、データとしてまとめた。なお、全炉心の評価値は、4つの同位体放射能比について50%の差異で測定値と一致した。

本評価では名古屋大学の遠藤知弘氏から、ピンセル計算のための数密度情報や文献情報など、種々の情報を快くご提供いただいた。ここに深い謝意を表する。

参考文献

- [1] Endo T, Sato S, Yamamoto A. Estimation of average burnup of damaged fuels loaded in Fukushima Dai-Ichi reactors by using the $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio method. Paper presented at: Int. Conf. on Physics of Reactors, PHYSOR2012; 2012 April 15-20; Knoxville, TN.
- [2] Yamamoto T, Radioactivity of fission product and heavy nuclides deposited on soil in Fukushima Dai-Ichi nuclear power plant accident. J. Nucl. Sci. Technol. 2012;49;1116-1133.
- [3] Chiba G, Analysis of radioactivity of the ground surface measured at the Fukushima-Daiichi nuclear power plant site. In: Harada H, Yokoyama K, Iwamoto N, Nakamura S, Houra H. Proc. of the 2011 Symposium on Nuclear Data;2011 Nov. 16-17; Ibaraki (Japan): JAEA-Conf 2012-001: Japan Atomic Energy Agency; 2012;123-128.
- [4] Okumura K, Okamoto T. Nuclide inventories of spent fuels from light water reactors. JAEA-Data/Code 2011-020. Ibaraki (Japan): Japan Atomic Energy Agency; 2011.
- [5] Nishihara K, Iwamoto H, Suyama K. Estimation of fuel compositions in Fukushima-Daiichi nuclear power plant. JAEA-Data/Code 2012-018. Ibaraki (Japan): Japan Atomic Energy Agency; 2012.
- [6] Katakura J, Kataoka M, Suyama K, Jin T, Ohki S. A set of ORIGEN2 cross section libraries based on JENDL-3.3 library: ORLIBJ33. JAERI-Data/Code 2004-015. Ibaraki (Japan): Japan Atomic Energy Research Institute; 2004.[in Japanese]
- [7] Katakura J. JENDL FP decay data file 2011 and fission yields data file 2011. JAEA-Data/Code 2011-025. Ibaraki (Japan): Japan Atomic Energy Agency; 2011.
- [8] Shibata K, Iwamoto O, Nakagawa T, Iwamoto N, Ichihara A, Kunieda S, Chiba S, Furutaka K, Otuka N, Ohsawa T, Murata T, Matsunobu H, Zukeran A, Kamada S, Katakura J. JENDL-4.0: a new library for nuclear science and engineering. J. Nucl. Sci. Technol. 2011;48;1-30.