

文章编号:0253-9950(2012)02-0083-05

利用福岛第一核电厂事故期间 环境监测资料反推事故释放源项

陈晓秋, 杨端节, 李 冰

环境保护部 核与辐射安全中心, 北京 100082

摘要: 2011年3月11日, 日本福岛核事故导致放射性物质向大气环境的大规模释放。本工作利用大气数值预报模式 WRFV2. 2. 1 和大气弥散模式 CALPUFF, 对事故期间放射性物质的大气输运和弥散进行了模拟。应用大气释放源项的逆推算方法, 结合单位释放率条件下的大气弥散模拟结果和环境监测数据, 对福岛第一核电厂1到3号机组向大气环境释放的放射性核素总量进行了评估, 推算的 ^{131}I 和 ^{137}Cs 气载释放量分别为 8.6×10^{16} Bq 和 8.6×10^{15} Bq。

关键词: 释放量; ^{131}I ; ^{137}Cs ; 福岛第一核电厂; 核事故

中图分类号: TL73 **文献标志码:** A

Reverse Estimation of Accidental Release Amounts From Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant by Environmental Monitoring Data

CHEN Xiao-qiu, YANG Duan-jie, LI Bing

Nuclear and Radiation Safety Center, Ministry of Environmental Protection of the People's
Republic of China, Beijing 100082, China

Abstract: The Fukushima Daiichi nuclear power plant accident on March 11, 2011 caused the month-long discharge of radioactive materials into the atmosphere. By using numerical prediction model WRFV2. 2. 1 and dispersion model CALPUFF, atmospheric transport and dispersion of radioactive materials was simulated during the accident. The method of a reverse estimation of source term into environment was applied by combining environmental monitoring data with atmospheric dispersion simulations under the assumption of unit release rate. Preliminary estimation of release amounts of ^{131}I and ^{137}Cs accidentally discharged from Unit 1 through Unit 3 of the Fukushima Daiichi nuclear power plant into the atmosphere was obtained, based on the environmental monitoring data. Release amounts of ^{131}I and ^{137}Cs are 8.6×10^{16} Bq and 8.6×10^{15} Bq, respectively.

Key words: release amounts; ^{131}I ; ^{137}Cs ; Fukushima Daiichi nuclear power plant; nuclear accident

2011年3月11日, 日本本州东海岸附近海域发生里氏9.0级地震, 并引发了强烈的海啸, 受地震与海啸的袭击, 福岛第一核电厂发生了严重

核事故(INES 7级), 造成放射性物质向大气环境的大规模释放。

在核事故应急响应过程中, 为了更好地保护公

众和环境,及时采取应对措施,首先需要对事故过程中气载放射性物质释放的源项进行研判。而不幸的是,福岛第一核电厂受地震及海啸袭击后,机组设备及信息传输系统损伤严重,无法及时获取事故机组的重要安全参数,难以通过堆芯损伤状态进行事故释放源项的分析。但是,在事故期间,厂区内及其周边环境监测设施的 γ 空气剂量率监测系统能够正常运转,且事故发生几天后日本开展了大量的放射性核素空气浓度监测,这为利用环境监测数据反推事故释放源项提供了条件。

利用环境监测数据进行事故释放源项估算的准确性取决于事故释放的进程、事故释放期间的大气弥散条件以及对合适监测点位和监测数据的筛选。本工作根据日本所发布的福岛第一核电厂厂区内和周围环境监测点的监测结果,结合事故释放过程及释放期间的大气扩散状况,进行综合分析后选择了 3 月 15 日福岛第一核电厂以南 11 km 处,以及 3 月 18 日福岛第一核电厂以南 30 km 处这两个监测点的环境监测数据(包括环境 γ 空气剂量率和放射性核素的空气浓度等),对福岛第一核电厂 3 月 26 日前¹³¹I 和¹³⁷Cs 的气载释放源项进行初步评估。

1 福岛第一核电厂释放过程

3 月 11 日 14 : 46 地震发生时,福岛第一核电厂 1 号机组、2 号机组和 3 号机组正处于反应堆满功率运行状态,4 号机组、5 号机组和 6 号机组处于反应堆定期检修中,其中 4 号机组的燃料已转送乏燃料池。地震发生后,1—4 号机组厂房的完整性丧失,相继出现了如下可能与放射性物质释放相关的事件,本工作分机组按照时间顺序摘要如下^[1]。

1) 福岛第一核电厂 1 号机组

3 月 12 日 15 : 36 发出爆炸音,推测发生氢气爆炸,事后证实反应堆厂房严重损毁。

2) 福岛第一核电厂 2 号机组

3 月 14 日 11 : 01,伴随 3 号机组反应堆厂房的爆炸,反应堆厂房的屋顶墙壁出现了开口;

3 月 15 日 00 : 00,开始排汽;06 : 10,有爆炸音同时抑压水池腔室压力降低;06 : 20 左右,可能是抑压水池腔室发生了事故;

3 月 21 日 18 : 22,冒出白烟;

3 月 22 日 07 : 11,白烟减少至几乎不可见的程度。

3) 福岛第一核电厂 3 号机组

3 月 14 日 11 : 01,3 号机组反应堆厂房附近

发生爆炸;

3 月 16 日 08 : 30,3 号机组冒出水蒸气样白烟;

3 月 21 日 15 : 55,冒出灰色的烟;

3 月 21 日 17 : 55,确认烟开始减少;

3 月 22 日 07 : 11,灰烟转变为白烟,推测冒烟朝着结束的方向发展;

3 月 23 日 16 : 20,反应堆厂房冒出稍显黑色的烟;23 : 30,3 号机组反应堆厂房的冒烟停止。

4) 福岛第一核电厂 4 号机组

3 月 15 日 06 : 14,确认 4 号机组操作区域的墙壁部分破损;09 : 38,反应堆厂房 3 层附近发生火灾;11 : 00 左右员工确认火自行熄灭;

3 月 16 日 05 : 45,再次发生火灾。

根据日本公布的福岛第一核电厂厂区内各监测点的 γ 空气剂量率的测定结果^[2](见图 1),最大剂量率为 11 930 μ Sv/h,出现在 3 月 15 日的正门附近,且 3 月 15 日—16 日厂区的剂量率一直维持在较高水平,表明该时间段内放射性物质的释放对总释放量的贡献最大,如此高的释放率与 2 号机组抑压池爆炸和 4 号机组的厂房损伤有关。

2 气载释放期间的气象条件及污染物分布

为反映出放射性物质事故释放在局地的扩散情况,并为根据 γ 空气剂量率及空气活度浓度监测值反推源项提供大气弥散因子,有必要进行局地小尺度气象条件的模拟。

利用中尺度天气系统数值预报模式 WRFV2.2.1 和扩散模式 CALPUFF 进行了事故期间大气输送和扩散情况的模拟^[3]。采用的计算条

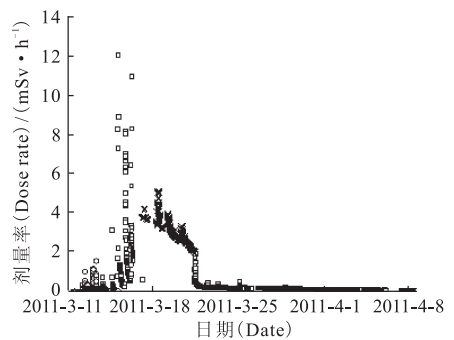


图 1 福岛第一核电厂厂区内监测点的 γ 空气剂量率
Fig. 1 Air dose rate inside Fukushima Daiichi nuclear power plant
□——正门附近(Near main gate),○——MP-4,
×——事物总馆北(监测车)(North of admin. bldg.),
△——MP-5

件:美国环境预报中心(NCEP)发布的 $1^{\circ}\times 1^{\circ}$ FNL 全球分析资料作为输入数据,网格水平格距 2 km,共 50×50 个格点。CALPUFF 模拟区域水平分辨率和水平网格设置与 WRF 一致,模拟时间为 2011 年 3 月 15 日 08 时(协调世界时 UTC+9)开始至 3 月 19 日,假设污染物连续释放,其释放率为 10^5 g/s。得到各时刻污染物的瞬时浓度分布示于图 2。

由图 1 可知,3 月 15 日 8 时至 3 月 16 日 24 时期间是放射性物质大气释放水平最高的时段,因此本工作重点关注了此时气象场的变化。由图 2 中污染物的分布特征可以看出,3 月 15 日午前污染物主要分布在释放点南偏西的陆地一侧,16 时污染物分布转向西偏北方向,夜间又转至南向。由此可以判断,受气象场的影响,在 16 日之前所释放的气载放射性物质造成了陆地一侧的大范围污染,而在 16 日以后释放的气载放射性物质则主要输送到释放点东南的洋面上。通过浓度场分布可得到不同监测点位处的大气弥散因子,可对释放源项进行推算。

3 大气环境释放源项的评估

3.1 采用环境监测数据的源项推算方法

核素 i 向环境的气载释放总量 Q_i 为

$$Q_i = \sum_j Q_{ij} T_j \tag{1}$$

其中: Q_{ij} 为核素 i 在时间段 j 向大气环境的释放率, Bq/s; T_j 为时间段 j 的释放时间, s。

核素 i 在时间段 j 向大气环境的释放率可通过监测的空气浓度与大气弥散因子(即单位释放率 1 Bq/s 条件下的空气浓度)的比值进行推算。

$$Q_{ij} = \frac{M_i}{C_i} \tag{2}$$

其中: M_i 为核素 i 的空气活度浓度, Bq/ m^3 ; C_i 为核素 i 的大气弥散因子, s/ m^3 , 可通过上节模拟的污染物分布而获得。

在核素的空气浓度监测数据缺失条件下,也可通过监测的由烟羽中或/和沉积在地面的某种核素所致的 γ 空气剂量率与计算的该核素单位释放率条件下的 γ 空气剂量率之比,推算该核素向环境的气载释放率。

对于某种核素的地面沉积照射,单位释放率 1 Bq/s 条件下 γ 空气剂量率可通过烟羽在地面的沉积过程计算。沉积的地面假设为半无限大面源,则空气 γ 剂量率为

$$\dot{D}_a = c_{gr} DF_{gr} \tag{3}$$

其中: $\dot{D}_a$ 为 γ 空气剂量率, Sv/s; c_{gr} 为沉积密度, Bq/ m^2 ; DF_{gr} 为地面沉积外照射剂量转换系数,

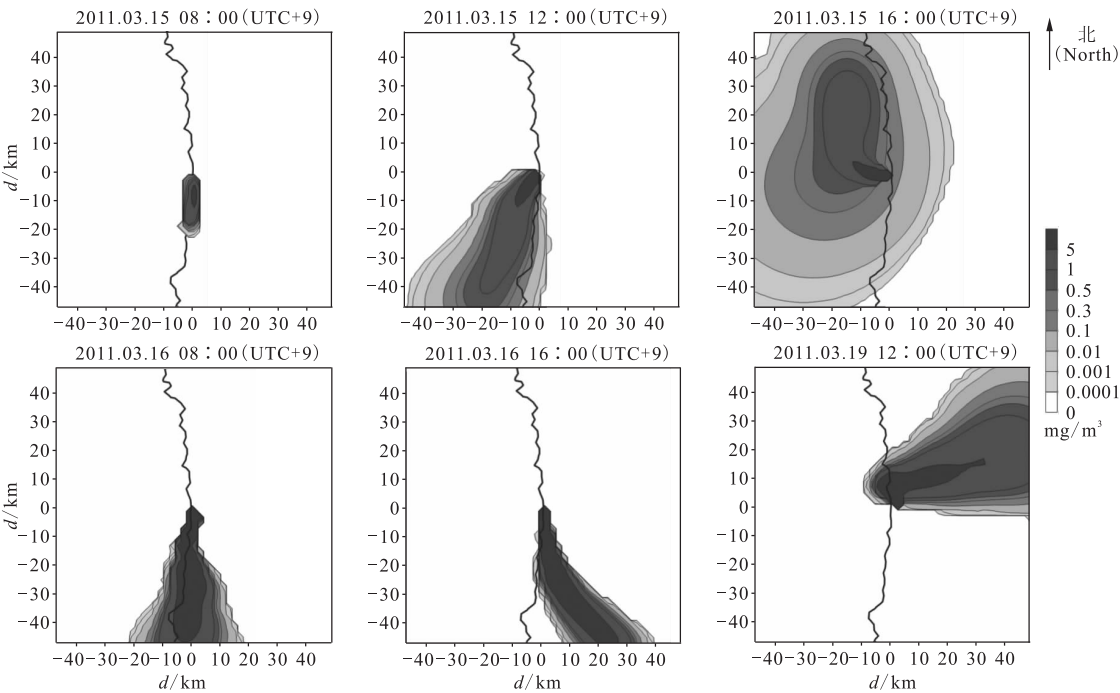


图 2 污染物模拟计算的不同时刻瞬时浓度分布

Fig. 2 Modelled contamination concentration distribution at different times

0 表示模拟的释放点(0 is the simulated release point)

$(\text{Sv} \cdot \text{s}^{-1})/(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2})$ 。

核素的地面沉积密度 c_{gr} 可以表示为

$$c_{\text{gr}} = \frac{C_0 v_d (1 - e^{-\lambda_E t_b})}{\lambda_E} \quad (4)$$

其中: C_0 为核素在单位释放率 1 Bq/s 条件下计算的空气活度浓度, Bq/m^3 ; v_d 为核素的沉积速率, m/s ; λ_E 为核素 i 的有效去除常数, $\lambda_E = \lambda_i + \lambda_s$, $1/\text{s}$; λ_i 为核素 i 的衰变常数, $1/\text{s}$; λ_s 为核素 i 除衰变外的去除常数, $1/\text{s}$; t_b 为沉积时间, s 。

在结合大气扩散模拟计算与环境监测数据进行核素释放率推算时, 应注意以下几点:

(1) 根据气象条件, 在监测点位中筛选确定计算位置点, 该点应在时空分布上与释放时间及释放烟云到达时间有较好的对应关系;

(2) 筛选监测数据值时, 需要选择那些时间变化特征明显并对计算结果有较大贡献的那些监测资料;

(3) 应根据机组状态、气象条件和监测结果的时间变化进行综合分析, 以确定释放持续时段。

由前文所述的事故机组的状态及厂区剂量率监测数据可知, 3 月 15 日—16 日时间段内的释放对总释放量的贡献最大, 鉴于早期空气浓度监测数据的缺失, 根据期间的气象条件, 选取福岛第一核电站以南约 11 km 处的 γ 空气剂量率, 推算 3 月 15 日向环境的释放率。从 3 月 18 日开始, 日本在厂址附近采样监测了放射性核素的空气浓度, 因此, 可采用放射性核素空气浓度监测数据推算 3 月 18 日向环境的释放率。

由于核事故期间, 地面沉积照射考虑的主要贡献核素是 ^{131}I 和 ^{137}Cs , 因为 ^{131}I 和 ^{137}Cs 地面沉积的外照射 γ 剂量转换系数差别很小, 因此, 不妨先假设全部按 ^{131}I 进行计算, 然后再按实测的相关空气浓度数据统计进行 ^{131}I 和 ^{137}Cs 的分配。另外, 地面沉积照射中, 由于湿沉积贡献相对干沉积较小, 计算过程中仅考虑了干沉积的作用, 对核素气载释放量评估可能造成稍许的影响。

3.2 放射性物质大气释放率的评估

(1) 3 月 15 日大气释放率的评估

根据图 1 的福岛第一核电站厂区内各监测点 γ 空气剂量率的测定结果, 可认为大量的气载释放发生在 3 月 15 日。然而, 在 3 月 15 日, 因没有空气浓度的监测数据, 核素的释放率可通过烟羽飘走后沉积于地面的核素所致 γ 空气剂量率的计算值和实测值的比较求出。选择 3 月 15 日

23:00 左右发生的一次大规模放射性释放(当时正门附近的空气 γ 剂量率高达 $8\,000 \text{ Sv/h}$ 以上), 来反映 3 月 15 日福岛第一核电站的核素释放状况。考虑到当时的气象条件为偏北风, 因此选择距离福岛第一核电站以南约 11 km 处的监测点数据进行分析^[4], 在此期间该监测点有着较为连续的空气 γ 剂量率数据(图 3)。

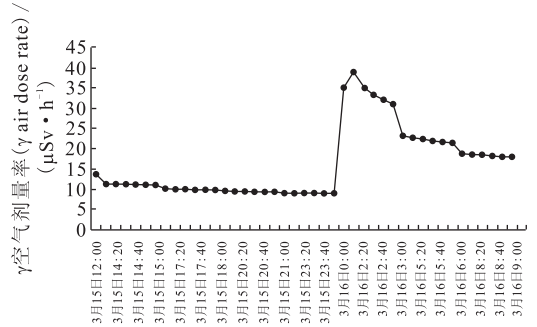


图 3 福岛第一核电站以南约 11 km 处 γ 空气剂量率
Fig. 3 γ air dose rate at sample point about 11 km south from Fukushima Daiichi nuclear power plant

由图 3 可见, 福岛第一核电站以南约 11 km 处, 从 3 月 16 日 0:00 开始, γ 空气剂量率开始显著上升, 然后, 随着烟羽的逐渐移走, 到 3 月 16 日 9:00, γ 空气剂量率基本稳定。在 0:00—9:00 时间段(9 h)内, 可以认为事故烟羽经过该点时放射性物质在地面累积沉积所致 γ 空气剂量率约为 $9 \times 10^{-6} \text{ Sv/h}$ 。

通过第 2 节的局地气象条件的模拟计算, 3 月 16 日在第一核电站以南约 11 km 处的大气弥散因子约为 $1 \times 10^{-7} \text{ s/m}^3$, 即 ^{131}I 单位释放率(1 Bq/s)在此处所致空气活度浓度约为 $1 \times 10^{-7} \text{ Bq/m}^3$ 。 ^{131}I 的干沉积速率假设为 0.003 m/s ^[5], 衰变常数为 $9.98 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$, 除衰变外的去除常数为 $1.62 \times 10^{-8} \text{ s}^{-1}$ ^[6], 则由式(4)计算的 ^{131}I 单位释放率(1 Bq/s)条件下 9 h 内 ^{131}I 干沉积造成的地面沉积密度为 $9.6 \times 10^{-6} \text{ Bq/m}^2$, ^{131}I 地面沉积 γ 外照射剂量转换系数为 $1.37 \times 10^{-12} (\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1})/(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2})$, 则由式(3)计算的 ^{131}I 干沉积所致的 γ 空气剂量率为 $1.3 \times 10^{-17} \text{ Sv/h}$ 。

由此推算第一核电站 3 月 15 日 ^{131}I 的大气释放率为 $6.8 \times 10^{11} \text{ Bq/s}$, 即 $2.4 \times 10^{15} \text{ Bq/h}$ 。

(2) 3 月 18 日大气释放率的评估

通过第 2 节的局地小尺度气象条件的模拟计算, 3 月 18 日在计算点(福岛第一核电站以南

30 km)处的弥散因子约为 $1 \times 10^{-9} \text{ s/m}^3$, 即¹³¹I 单位释放率(1 Bq/s)条件下, 在计算点处所致空气活度浓度为 $1 \times 10^{-9} \text{ Bq/m}^3$ 。计算点附近测量的空气活度浓度约为 33 Bq/m^3 , 由式(2)推算的福岛第一核电厂 3 月 18 日¹³¹I 的大气释放率为 $3.3 \times 10^{10} \text{ Bq/s}$, 即 $1.2 \times 10^{14} \text{ Bq/h}$ 。

(3) 3 月 12 日至 3 月 26 日的大气释放量的估算

对福岛第一核电厂 3 月 12 日至 3 月 26 日期间气载释放源项进行初步评估, 可假定以高释放率(取 3 月 15 日的推定值 $2.4 \times 10^{15} \text{ Bq/h}$)持续释放了 1 d 估算, 其余 13 d 的释放率均按照 3 月 18 日的释放率($1.2 \times 10^{14} \text{ Bq/h}$)估算。则由式(1)计算的 3 月 12 日至 3 月 26 日的大气释放总量为 $9.5 \times 10^{16} \text{ Bq}$ 。按已有的核素浓度测量数据,¹³¹I 与¹³⁷Cs 的气载释放量比例可粗略取为 10 计算, 则¹³¹I 和¹³⁷Cs 气载释放量分别为 $8.6 \times 10^{16} \text{ Bq}$ 和 $8.6 \times 10^{15} \text{ Bq}$ 。

日本内阁府原子力安全委员会(NSC)及日本原子力研究开发机构(JAEA)通过大气弥散计算结果(即单位释放率所致的空气浓度)与环境监测数据的对比, 进行了释放率的逆推算, 给出 3 月 12 日至 4 月 6 日期间福岛第一核电站各反应堆放射性物质大气释放量的评估结果, 即¹³¹I 为 $1.5 \times 10^{17} \text{ Bq}$, ¹³⁷Cs 为 $1.2 \times 10^{16} \text{ Bq}$ ^[7], 本工作估计的气载释放量约为 JAEA 评估值的 60%。

4 结论与建议

本工作从福岛第一核电厂各核电机组的事故进程出发, 结合大气弥散条件和环境监测数据对福岛第一核电厂在事故过程中放射性核素大气释放总量进行了评估。总结如下:

(1) 在缺乏核事故大气释放源项直接测量结果的情况下, 将核事故应急环境监测结果和大气弥散模拟结果相结合, 可在一定的可信度上反推相应释放时刻的释放源项。

(2) 利用放射性核素的空气浓度和 γ 空气剂量率监测结果, 计算的 3 月 12 日至 3 月 26 日¹³¹I 和¹³⁷Cs 气载释放量分别为 $8.6 \times 10^{16} \text{ Bq}$ 和 $8.6 \times 10^{15} \text{ Bq}$ 。

(3) 大规模释放期间出现了较强的雨雪过程, 本工作仅考虑干沉积而未考虑湿沉积地面照

射的影响, 可能对¹³¹I 和¹³⁷Cs 气载释放量评估造成稍许影响。

(4) 释放量最大的 3 月 15 日缺乏空气浓度监测的数据, 采用 γ 空气剂量率数据进行推算, 会进一步加大对释放源项评估的不确定性。

尽管有着很大的不确定性, 但在发生严重事故条件下, 当难以根据堆芯状态确定事故源项的情况下, 采用环境监测数据反推事故源项对于应急决策及公众剂量评估方面是一个非常重要的手段。因此, 需要进一步研究利用环境监测数据反推事故源项的技术, 并将这种功能纳入到核事故放射性后果评价系统中。

参考文献:

- [1] 日本経済産業省原力安全・保安子院. 地震被害情報(第 94 報)(4 月 15 日 08 時 00 分現在)[OL]. <http://www.meti.go.jp/press/2011/04/20110415002/20110415002-1.pdf>, 2011-04-15.
- [2] 日本政府原子力災害対策本部. 原子力安全に関する IAEA 閣僚会議に対する日本国政府の報告書-東京電力福島原子力発電所の事故について-[OL]. http://www.kantei.go.jp/jp/topics/2011/iaea_houkokusho.html, 2011-06-07.
- [3] 朱好, 蔡旭晖, 张宏升, 等. 内陆丘陵河谷地区小风条件下的大气扩散模拟研究[J]. 环境科学学报, 2011, 31(3): 613-623.
- [4] 東京電力株式会社. 福島第二原子力発電所の現状について【午後 3 時 00 分時点】[OL]. http://www.tepco.co.jp/cc/press/betu11_j/images/110316d.pdf, 2011-03-16.
- [5] U. S. Nuclear Regulatory Commission. RASCAL 4: Description of Models and Methods[R]. USA: U. S. Nuclear Regulatory Commission, 2010.
- [6] International Atomic Energy Agency. Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment, IAEA Safety Reports Series No. 19[R]. Vienna: IAEA, 2001.
- [7] Masamichi Chino, Hiromasa Nakayama, Haruyasu Nagai, et al. Preliminary Estimation of Release Amounts of ¹³¹I and ¹³⁷Cs Accidentally Discharged From the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Into the Atmosphere[J]. J Nucl Sci Tech, 2011, 48(7): 1 129-1 134.