

東海再処理施設アスファルト固化処理施設における

火災爆発事故調査委員会第16回会合資料  
〔事業団作成〕

(平成9年7月17日開催)

1997年12月

動力炉・核燃料開発事業団

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所 技術開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, 4-33 O-aza-Muramatsu, Tokai-mura, Naka, Ibaraki-ken, 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) 1997

(A)

公開資料  
PNC TN8410 97-363  
1997年12月

東海再処理施設アスファルト固化処理施設における  
火災爆発事故調査委員会第16回会合資料  
[事業団作成]

(平成9年7月17日開催)

作成・編集 アスファルト固化処理施設火災・爆発事故  
原因究明・再発防止対策班

要旨

本資料集は、科学技術庁が開催した「東海再処理施設アスファルト固化処理施設における火災爆発事故調査委員会」（以下、事故調査委員会という）第16回会合（平成9年7月17日）において事業団が作成し、説明に使用した資料である。会合は公開で行われ、資料も公開されている。

目 次

第16回事故調査委員会 資料リスト	III
第16回事故調査委員会 図リスト（資料16-3～5）	IV
第16回事故調査委員会 表リスト（資料16-3～5）	V
資料16-3 採取試料の外観等について	1
資料16-4 火災・爆発の放出放射能評価について（その2）	8
資料16-5 原因究明のための試験、解析計画について（資料11-6の改訂）	28

第16回事故調査委員会 資料リスト

資料16-1 東海再処理施設アスファルト固化処理施設における火災爆発事故  
調査委員会第16回会合議事概要（案）

（説明者 科学技術庁）

資料16-2 爆発原因の検討について  
（説明者 吉澤委員：事故調査委員会）

資料16-3 採取試料の外観等について  
（説明者 北嶋：建設工務管理室）

資料16-4 火災・爆発の放出放射能評価について（その2）  
（説明者 須藤主査：再処理工場 工務部 技術課）

資料16-5 原因究明のための試験、解析計画について（資料11-6の改訂）  
（説明者 野尻担当役：安全管理部 安全技術課）

資料16-6 アスファルト固化処理施設に係る安全審査について  
（説明者 科学技術庁）

第16回事故調査委員会 図リスト

資料16- 3

試料採取・分析等に関する計画	3
廃液試料外観	4
エクストルーダ内のアスファルト混合物試料外観	5
アスファルト充てん室内固化体試料外観	6
アスファルト充てん室内固化体試料採取ドラム	7

資料16- 4

アスファルト固化処理施設内の煤及びアスファルト充てん室の灰状物質の $^{137}\text{Cs}/(^{238}\text{U} + ^{239}\text{Pu} + ^{241}\text{Am})$ 放射能比	13
アスファルト固化処理施設内 $\beta$ ダストモニタ指示値の変化	17
アスファルト固化処理施設内 $\beta$ ダストモニタ指示値増加率	17
$\gamma$ 線エリアモニタ指示値の変化	19

第16回事故調査委員会 表リスト

資料16- 4

アスファルト固化処理施設内の煤及びアスファルト充てん室内の灰状物質の核種分析結果	13
固化体から気相への放射能移行割合に関する前提条件	14
アスファルト固化処理施設周辺の空気中浮遊じん中核種分析結果	15
爆発時の施設内空气中放射能量の推定	20

資料16- 5

試験項目と現状	32
---------	----

PNC TN8410 97-363

資料16-3

## 資料16-3

「採取試料の外観等について」

(動力炉・核燃料開発事業団)

平成9年7月17日

アスファルト固化処理施設内の固化処理対象廃液、廃棄物処理場の廃液、アスファルト充てん室内的固化体、及び、エクストルーダ内のアスファルト混合物の試料を採取した。（図－1参照）

#### 1. 廃棄物処理場の廃液の試料外観

テフロンチューブを用いた採取方法（事故調査委員会資料13-5参照）により、331V10（酸性廃液）、331V11（アルカリ性廃液）の各槽から廃液の試料を採取した（図－2参照）。

#### 2. アスファルト固化処理施設内の固化処理対象廃液の試料外観

##### (1) 廃液受入貯槽（A12V21）

サンプリングベンチを用いて（事故調査委員会資料14-4参照）試料を採取した（図－2参照）。

##### (2) 反応槽（A12V30、31）、供給槽（A12V32、33）

テフロンチューブを用いた応急的な採取方法（事故調査委員会資料13-5参照）により、表層、中層、底層の各層を採取した（図－2参照）。また、スターラーにより3時間攪拌した後の槽内均一試料についても採取した（平成9年7月9日実施）。

#### 3. エクストルーダ内のアスファルト混合物の試料外観

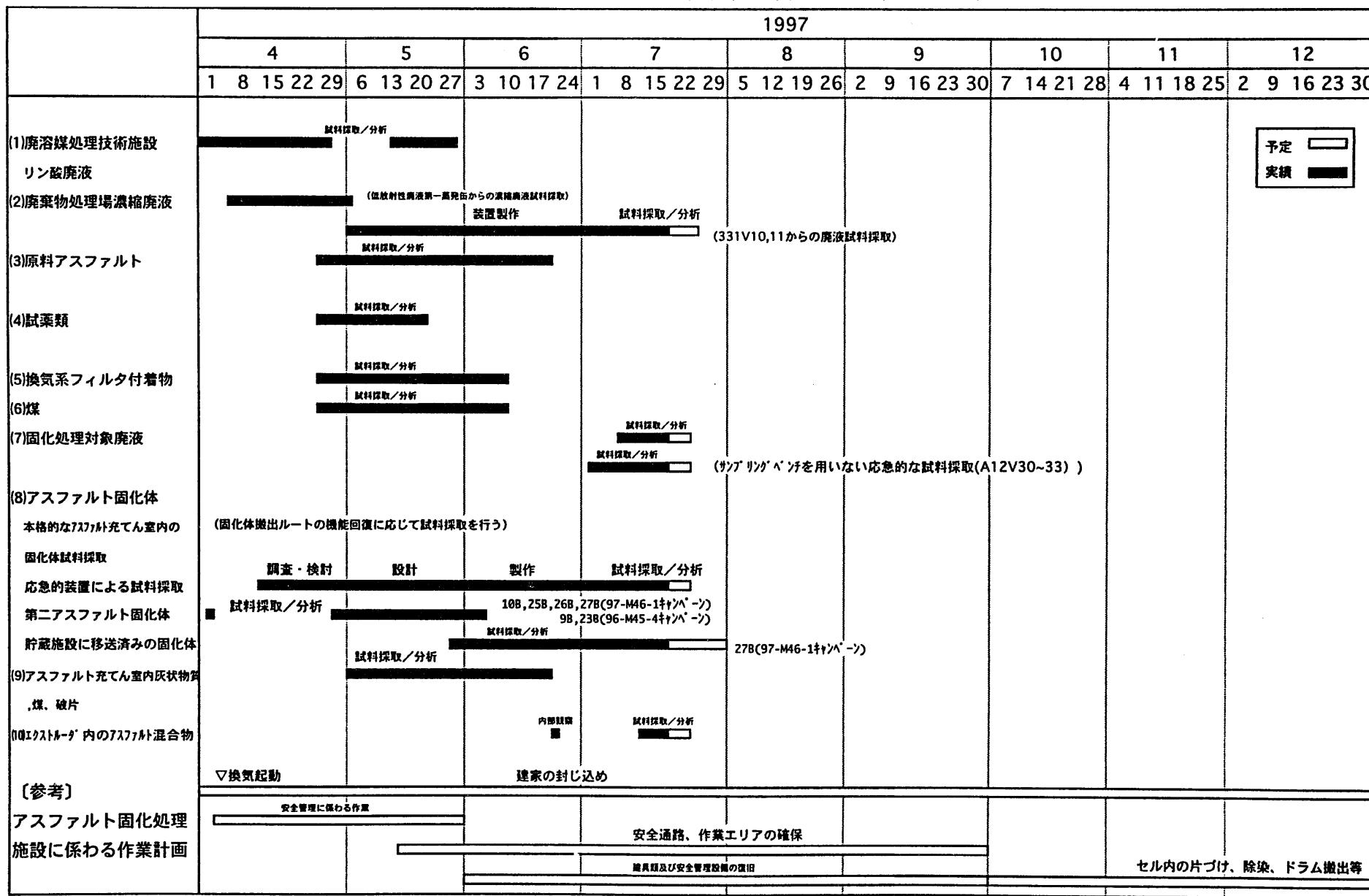
試料採取治具（事故調査委員会資料15-4参照）を用いてエクストルーダ内のアスファルト混合物の試料を採取した（図－3参照）。

#### 4. アスファルト充てん室内的固化体の試料外観

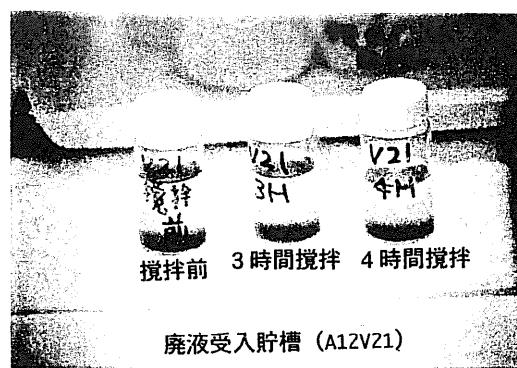
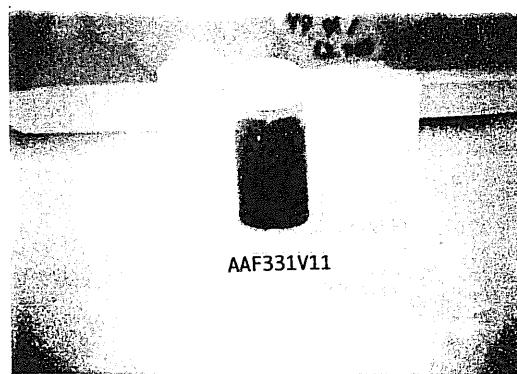
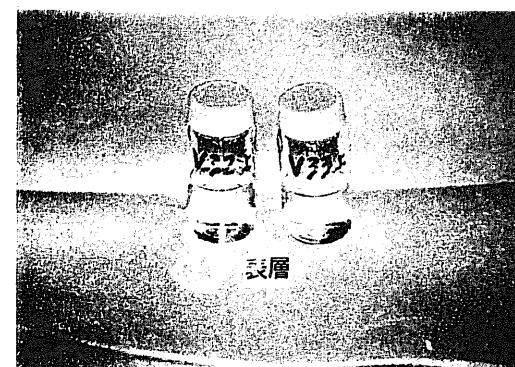
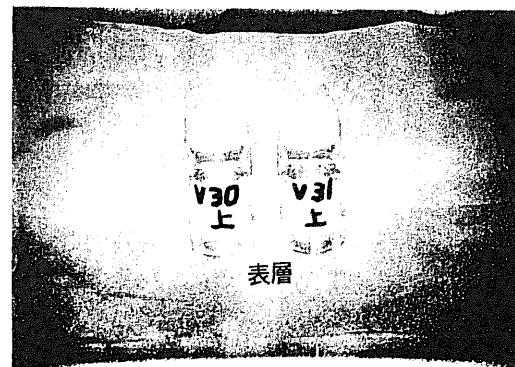
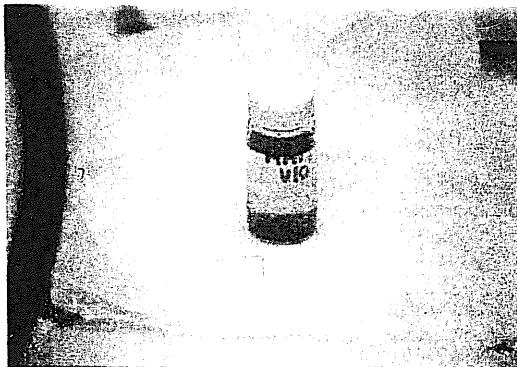
試料採取治具（事故調査委員会資料14-4参照）を用いてアスファルト充てん室内的固化体の試料を採取した（図－4参照）。

以上

図-1 試料採取・分析等に関する計画



(4)



反応槽 (A12V30,31)

供給槽 (A12V32,33)

## 図-2 廃液試料外観

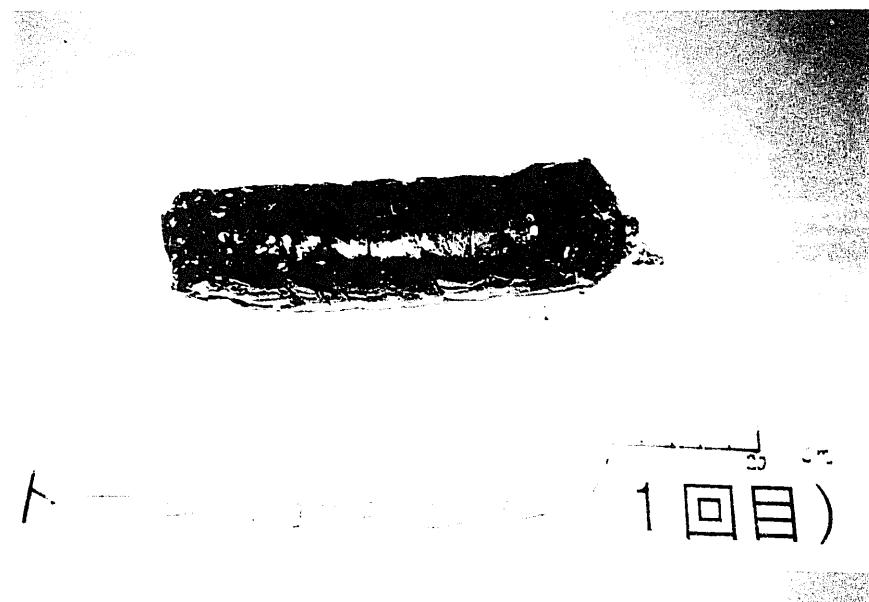
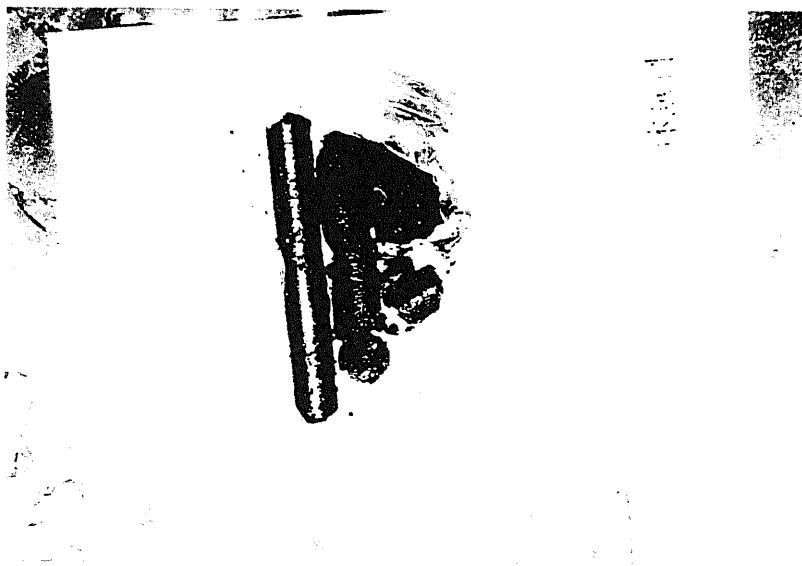


図-3 エクストルーダ内のアスファルト混合物試料外観



ドラムA7

打ち込み深さ；約3.3cm



ドラムA8

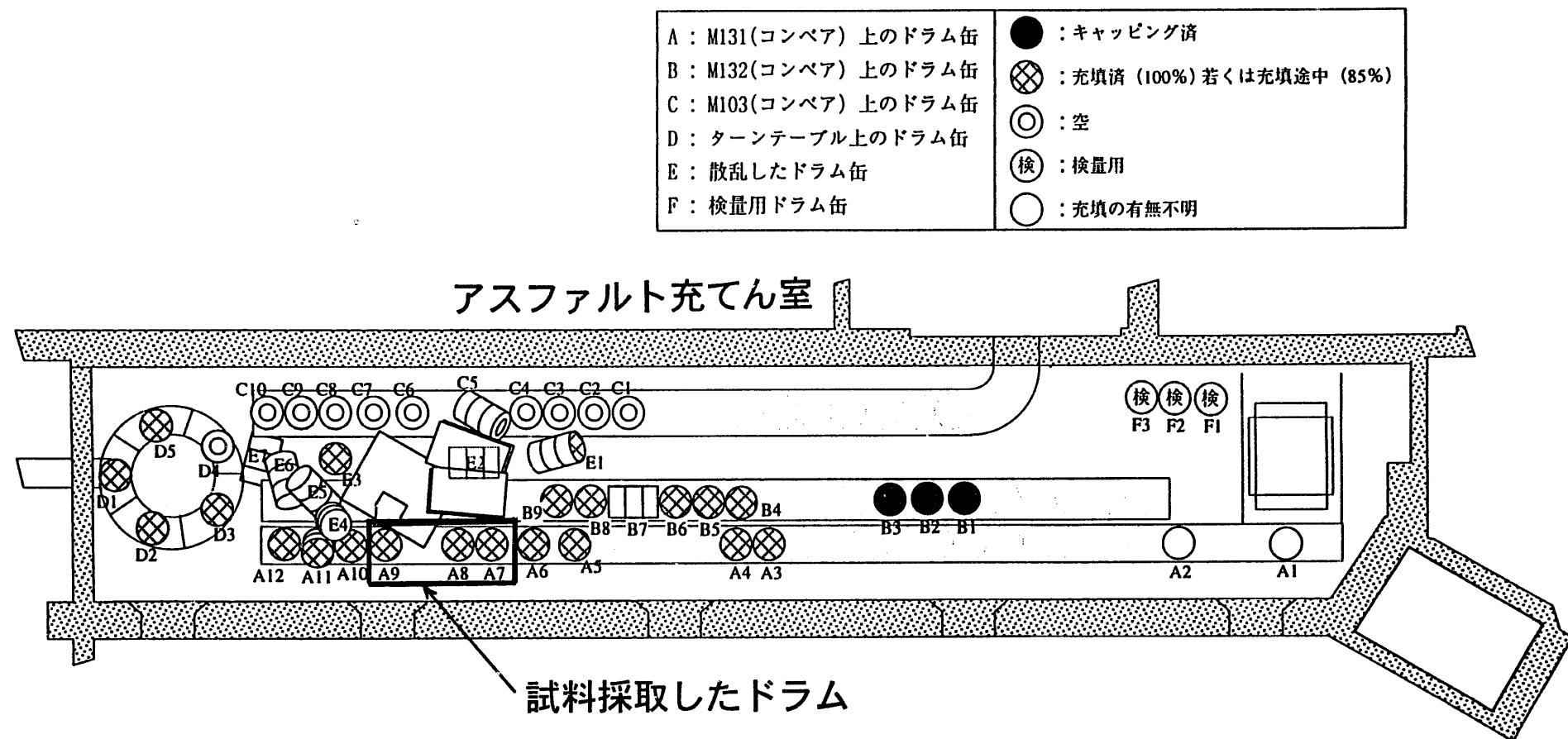
打ち込み深さ；約2.5cm



ドラムA9

打ち込み深さ；約4.5cm

図-4 アスファルト充てん室内固化体試料外観



図一五 アスファルト充てん室内固化体試料採取ドラム

資料16-4

## 「火災・爆発の放出放射能評価について(その2)」

(動力炉・核燃料開発事業団)

平成9年7月17日

## 目次

1. はじめに .....	1
2. アスファルト固化体中の放射能の施設外への移行挙動による推定の方法について .....	1
2.1 放射能放出に寄与したドラムの数に関する前提 .....	1
2.2 固化体から気相への放射能移行割合に関する前提 .....	2
2.3 固化体から気相へ放出された放射能の開口部からの放出割合に関する前提 .....	6
3. 爆発時の放出放射能量の試算 .....	7
3.1 空気に伴って放出された放射能量推定のための前提 .....	7
3.2 空気中放射性物質濃度の推定 .....	7
3.3 推定結果 .....	10
3.3 爆発に伴い壁面等から煤とともに剥離されて放出された放射能量の推定 .....	12
4. 今後の予定 .....	12
5. 参考文献 .....	12

別添1 W.Kluger, et al., "Investigation of Activity Release from Bituminized Intermediate-Level Waste Forms under Thermal Stresses", 1982 の概要

別添2 N.Watabe, et al., "Combustible Properties of LLW Bitumen Packages in a Fire Test", PATRAM'92 の概要

## 火災・爆発の放出放射能評価について(その2)

### 1. はじめに

アスファルト固化処理施設の火災・爆発により環境へ放出された放射能のうち、排気設備からの放出量については既に事故調査委員会資料 7-9 の中で報告している。ここでは、爆発により破壊された窓、シャッタなどの開口部からの放出量の推定作業の現状報告として、以下の2つについて述べる。

- (1) アスファルト固化体中の放射能の施設外への移行挙動による推定の方法について
- (2) (1)とは別の方法により行った、爆発時に施設内の空気が全量放出されたと仮定した場合の放出量の試算について

### 2. アスファルト固化体中の放射能の施設外への移行挙動による推定の方法について

開口部から放出された放射能の推定は、以下の3項目を設定することによって行う。

- (1) 放射能放出に寄与したドラムの数の設定
- (2) アスファルト固化体の燃焼時および可燃性ガス放出時の固化体中の放射能の気相への移行割合の設定
- (3) 固化体から気相へ放出された放射能の開口部からの放出割合の設定

#### 2.1 放射能放出に寄与したドラムの数に関する前提

##### (1) 火災発生から爆発直前まで

火災発生時には、しゃへい窓(M312)より見える範囲で 29 バッチにあたる約 10 本のドラムが燃焼していることが目撃されている。火災発生(10:06 頃)より 6 分後の 10:12 頃から水噴霧による消火が約 1 分間行われ炎が見えなくなっている。その後、可燃性ガスを発生したものと推定している。また、ターンテーブル上の 30 バッチにあたるドラムも 29 バッチと同様に高温になりガスの発生を起こし、爆発に至ったものと推定されている。

放出放射能評価上は、コンベア上の 29 バッチ以降のドラム(13 本)が全て燃焼を起こし、7 分間燃えていたものとする。その後、爆発が起こるまでの約 10 時間の間、燃焼を起こしたドラム 13 本は可燃性ガスを発生していたものと仮定する。また、ターンテーブル上の 30 バッチの充てんドラム4本については、(2)で述べるように、1 本がこの期間にガスを放出しつくし、3 本は爆発後の燃焼により放射能を放出したものと仮定する。

なお、燃焼量については、「アスファルト固化体の燃焼、消火実験報告書」(事故調査委員会資料 4-6-2 参照)によれば 1 本当たり 3.59kg/分であり、ここでは 3.6kg/分を用いることとする。

## (2) 爆発直後の火災発生から火災終了まで

第 1 付属排気筒のサンプリング試料の目詰まりによりサンプリング流量が低下した時間帯、E, Z 施設の局所排気のダストモニタ指示値が上昇した時間帯、エクストルーダのゾーン 8 の温度変化並びに核物質防護用監視カメラによるビデオ映像記録による施設外への煙の放出状況から、爆発直後に火災が発生し、約2時間程継続した後、自然鎮火した模様である。

ITV カメラによる状況観察によれば、ターンテーブル上のドラムの内、3本はドラム開口部に内容物が溢れて盛り上がっており、ドラム底部の周囲には白または黒色の物質が堆積している。これらのドラムは燃焼して自然鎮火したものと推定する。残りの1本については、他の 3 本のドラムと異なり、ドラム開口部の内部は窪んだ空間が見られることから、燃焼したとしても短時間であったと推定される(事故調査委員会資料 9-2、11-3 「火災・爆発被害状況(その 6, その 8)」参照)。

放出放射能評価上は、3 本のドラム内のアスファルト固化体は全て燃焼したものとし、他の 1 本については爆発前にはほとんどガス放出しつくしたために発火に至らなかつたものとする。

なお、全て燃焼したとする 3 本の充てん量は、2 本が 85%、1 本が充てん中のもので 50% である。また、ガス放出のみとする 1 本は 100% 充てんのものである。

## 2.2 固化体から気相への放射能移行割合に関する前提

放射能の移行割合を、 $\alpha$  核種として Pu, Am について設定する。 $\beta$  核種としては主要核種である  $^{137}\text{Cs}$  について設定する。

これ以外の核種については、 $^{137}\text{Cs}$  を基準に、壁に付着した煤やスミヤ試料の  $\gamma$  スペクトル分析結果に基づく相対割合並びにそれぞれの核種の線量換算係数を考慮して設定していく予定である。また、 $^{14}\text{C}$ ,  $^{129}\text{I}$  についても検討中である。

ここでは、 $\alpha$  核種及び  $^{137}\text{Cs}$  の移行割合の設定について述べる。

### (1) 燃焼した固化体からの放射能の移行割合

#### ① $\alpha$ 核種

$\text{NaNO}_3$  を含む再処理廃液のアスファルト固化体の火災時の放射能の移行割合を測定したものとしては W.Kluger らの文献<sup>(1)</sup>が唯一のものである。この文献によれば、 $\text{NaNO}_3$ /ブローンアスファルト比約 40/60 のアスファルト固化体を入れたドラムを用いて燃焼させた場合の Pu の放出割合は、ドラム内の固化体中の含有量に対して約 8% であった。また、固化体の燃焼時間は約2時間であった。本文献の概要については別添 1 に示した。

これより、 $\alpha$  核種については固化体中の放射能に対して燃焼によりその 10% が放出されるものとする。

## ② $^{137}\text{Cs}$

Cs の移行については、第 9 回事故調査委員会(事故調査委員会資料 9-6)の中で紹介されている EUROBITUM プラントの火災事故の報告<sup>(2)</sup>の中で、次のことが述べられている。即ち、 $^{137}\text{Cs}/\text{全 } \alpha$  放射能比がアスファルト固化体が約 20 であるのに対して換気フィルタのところで採取した試料では約 170 となり、Cs の揮発性を示すものとされている。

EUROBITUM プラントにおけるアスファルト充てん室から換気フィルタまでどの程度の距離があるか不明であるが、揮発性を有する Cs に比べて  $\alpha$  核種は換気ダクト内で沈降あるいは内面に付着していき、移動距離とともに  $^{137}\text{Cs}/\alpha$  放射能比は大きくなっていくと考えられる。即ち、固化体からの放出時点では上記の倍率はもっと小さいと推定される。

アスファルト固化処理施設のいくつかの部屋から採取した煤及びアスファルト充てん室(R152)内のドラム内表面から採取した灰状物質の  $\gamma$  及び  $\alpha$  スペクトロメトリ測定結果を表 1 に示す。また、図 1 は各試料の  $^{137}\text{Cs}/(^{238+239+240}\text{Pu} + ^{241}\text{Am})$  放射能比を比較したものである。爆発により天井ハッチが落ちて、煤煙が直接入り込んだと推定されるアスファルト充てん室(R152)の真上の保守作業室(A234)及びアスファルト充てん室(R152)に隣接したカスク保管室(A121)での放射能比はそれぞれ 100、110、さらに 3 階の部屋の煤の放射能比は 210、900 となっており、基本的にアスファルト充てん室から離れるにしたがって  $^{137}\text{Cs}/\alpha$  放射能比が大きくなっていくことがわかる。

一方、アスファルト固化体の  $^{137}\text{Cs}/\alpha$  放射能比は約 20 である。A234 及び A121 の放射能比は固化体の放射能比の約 5 倍である。従って、Cs の移行割合は  $\alpha$  核種に対して 5 倍、即ち、50%とする。放射能移行割合を以下にまとめる。

核種	放出割合
$\alpha$ 核種	10 %
Cs	50 %

表 1 アスファルト固化処理施設内の煤及びアスファルト充てん室内の灰状物質の核種分析結果

(単位:Bq/g)

		ドラム内 灰状物質		部屋の煤					
	核種	ドラム No.8	ドラム No.9	A121 カスク 保管室	A118 安全管理 分室	A234 保守 作業室	A235 保守エア ロック室	G311 通廊	A333 保守区域
$\alpha$ スペクトル 分析	$^{238}\text{Pu}$	1.5E+3	3.2E+3	1.4E+1	5.8E+1	5.0E+2	3.2E+2	2.3E+1	1.5E+1
	$^{239,240}\text{Pu}$	6.7E+2	1.5E+3	6.4E+0	3.1E+1	2.4E+2	1.4E+2	1.1E+1	6.4E+0
$\gamma$ スペクトル 分析	$^{241}\text{Am}$	1.7E+3	3.6E+3	4.0E+0	8.2E+0	2.5E+2	2.8E+2	7.6E+0	1.3E+1
	$^{144}\text{Ce}$	<4.4E+2	<1.4E+3	<9.4E+0	<1.0E+1	<8.3E+1	<7.9E+1	<2.3E+1	<3.7E+1
	$^{137}\text{Cs}$	2.4E+5	2.7E+5	2.7E+3	1.6E+3	1.0E+5	6.9E+4	8.9E+3	3.1E+4
	$^{134}\text{Cs}$	2.2E+4	2.4E+4	2.4E+2	1.4E+2	9.1E+3	6.1E+3	7.9E+2	2.7E+3
	$^{125}\text{Sb}$	1.2E+3	2.4E+4	<1.2E+1	<1.2E+1	2.0E+2	2.4E+2	<2.9E+1	<4.4E+1
	$^{106}\text{Ru}$	2.3E+4	4.2E+4	4.5E+1	<2.7E+1	3.4E+3	3.8E+3	<4.6E+1	1.7E+2
	$^{60}\text{Co}$	6.7E+2	1.1E+3	<7.1E-1	<1.6E+0	1.3E+2	1.2E+2	<3.8E+0	4.1E+0
$^{137}\text{Cs}/(^{238,239,240}\text{Pu} + ^{241}\text{Am})$ 比		6.2E+1	3.3E+1	1.1E+2	1.6E+1	1.0E+2	9.3E+1	2.1E+2	9.0E+2

注)  $\gamma$ スペクトル分析結果については事故調査委員会資料 12-6, 13-5 で報告しているが、ここでは  $\alpha$ スペクトル分析に伴い、試料を溶解したものを  $\gamma$ スペクトル分析した結果である。(両者の値に大きな違いはない)

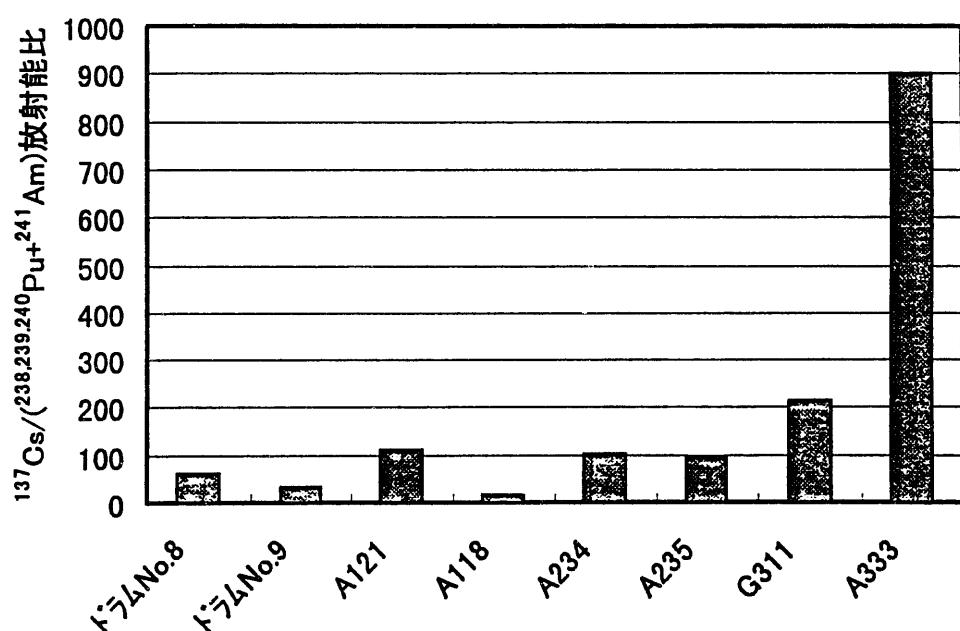


図 1 アスファルト固化処理施設内の煤及びアスファルト充てん室内の灰状物質の  
 $^{137}\text{Cs}/(^{238,239,240}\text{Pu} + ^{241}\text{Am})$ 放射能比

## (2) ガスを発生している状態の固化体からの放射能の移行割合

ある程度高温状態で化学反応によりガスを発生しているアスファルト固化体は、燃焼状態に比べて穏やかに放射能が出ている状態と考えられる。このような状態における放射能の移行割合についての報告はないが、参考となるものとして N.Watabe らの行った PWR 型原子力発電所から出る廃液のアスファルト固化体の燃焼実験報告<sup>(3)</sup>がある。この文献によれば、 $\text{NaBO}_2$ ／ストレートアスファルト比約 40/60 のアスファルト固化体を入れたドラムを燃焼させた場合の核種の放出量は、ドラム内の固化体中の含有量に対して以下に示す割合であった。Eu は  $\alpha$  核種の代用として使用しているものである。また、固化体の燃焼時間は約 12 時間であった。本文献の概要については別添2に示した。

核種	放出割合
Co, Sr, Eu	$4.4 \times 10^{-1} \sim 3.6 \times 10^{-2} \%$
Cs	$1.5 \times 10^0 \sim 4.7 \times 10^{-1} \%$

火炎を伴わないガス発生を起こしている固化体からの放出割合は、上記の燃焼状態の放出割合よりは小さいものと考えられるため、これを採用することは妥当と考えられる。従って、ここでは以下のように仮定する。

核種	放出割合
$\alpha$ 核種	0.5 %
Cs	2 %

以上の固化体から気相への放射能移行割合に関する前提条件を下表にまとめる。

表 2 固化体から気相への放射能移行割合に関する前提条件

	最初の火災	消炎後爆発直前	爆発後の火災
考慮するドラムの数	13	14	3
燃焼量	$13 \text{ 本} \times 3.6 \text{ kg/分} \times 7 \text{ 分}$	-	3 本全量燃焼
移行割合			
$\alpha$ 核種	0.1	0.005	0.1
$^{137}\text{Cs}$	0.5	0.02	0.5

### 2.3 固化体から気相へ放出された放射能の開口部からの放出割合に関する前提

固化体から気相へ放出された放射能は、アスファルト充てん室(R152)を出て、複数の部屋や通廊あるいは換気系を通って開口部に達し、そこから外部へ放出された。

この放出経路についての残留放射能を推定する目的で、現在までに、入域及び採取の可能な範囲で、施設内の各部屋の壁、床及び換気ダクト内面などよりスミヤ試料採取を行っているが、最も放射能が残留していると考えられるアスファルト充てん室(R152)については、十分なスミヤ試料採取が得られない状況である。また、換気ダクトについては小さな測定孔や破損した箇所の隙間などよりスミヤ採取を実施しているが、採取箇所が限られた位置となり、また、ふき取り面積やふき取り効率についても評価上困難な面が多い。

従って、ここでは事故時の放出量評価に関する E.M.Flew らの文献<sup>(4)</sup>において示されている、閉じ込め機能について著しく被害を受けた建物での、火災時の揮発性粒子状エアロゾルの放出割合である 0.1 を  $^{137}\text{Cs}$  に対して採用することとする。

一方、 $\alpha$  核種の放出割合に関する参考データとして、アスファルト固化処理施設周辺の空气中浮遊じん中核種分析結果(事故調査委員会資料 8-7 参照)に基づく  $^{137}\text{Cs}/\alpha$  放射能比を表 3 に示す。これを基に、 $^{137}\text{Cs}$  の放出割合を基準として  $\alpha$  核種の放出割合を設定することとする。 $^{137}\text{Cs}/\alpha$  放射能比は約 500~1600 の範囲となっている。これらは前節の表 1 で固化体から気相への  $\alpha$  核種の放出割合を基準とした  $^{137}\text{Cs}$  の放出割合の設定に使用した  $^{137}\text{Cs}/\alpha$  放射能比である約 100 に対して 5~16 倍であるため、 $\alpha$  核種の開口部からの放出割合として  $^{137}\text{Cs}$  の放出割合である 0.1 の 1/5~1/16 の範囲を考慮する。即ち 0.006~0.02 の範囲を用いることとする。

以上より、固化体から気相へ放出された放射能の開口部からの放出割合について以下のように仮定する。

核種	放出割合
$\alpha$ 核種	0.6~2 %
Cs	10 %

表 3 アスファルト固化処理施設周辺の空气中浮遊じん中核種分析結果

(Bq/cm<sup>3</sup>)

場所	採取時間(3/11)	$^{137}\text{Cs}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}/(^{238,239,240}\text{Pu} + ^{241}\text{Am})$ 比
アスファルト 固化処理施設横	20:35~20:49	1.6E-05	5.1E-09	1.9E-09	2.8E-09	1.6E+03
南南西350m地点	20:08~20:35	5.1E-06	3.7E-09	1.7E-09	4.6E-09	5.1E+02
ブル燃守衛所前	20:04~20:46	3.1E-06	1.3E-09	5.8E-10	1.1E-09	1.0E+03
	20:46~22:35	3.2E-07	1.3E-10	6.6E-11	1.1E-10	1.0E+03

### 3. 爆発時の放出放射能量の試算

爆発時には、爆発により破損したアスファルト固化処理施設の窓・シャッタ等の開口部から、施設内に滞留していた放射能を帯びた空気や壁面等へ煤といっしょに付着していた放射能の一部が押し出されたものと考えられる。

ここでは、2章の放射能の移行割合の設定とは別に、爆発時の放出放射能量について試算を行ったので報告する。

#### 3.1 空気に伴って放出された放射能量推定のための前提

爆発時には、施設内の 1 階以上の部屋の空気は全て開口部より外へ放出されたものと仮定する。爆発前の施設内の空気中の放射性物質濃度については、一部の部屋に設置された  $\beta$  ダストモニタ及び  $\gamma$  線エリアモニタの記録を基に算出する。

#### 3.2 空気中放射性物質濃度の推定

アスファルト固化処理施設内には  $\beta$  ダストモニタが 1 階に 4 台 ( $\beta-1\sim4$ )、2 階に 2 台 ( $\beta-5\sim6$ )、4 階に 1 台 ( $\beta-7$ ) と合計 7 台設置されている。 $\beta$  ダストモニタの指示記録(事故調査委員会資料2-4参照)に基づく火災発生から爆発時までの指示値を図 2 に、また、単位時間当たりの指示値増加率を計算したもの図 3 に示す。

単位時間当たりの指示値増加率は空気中放射性物質濃度に対応しており、アスファルト充てん室 (R152) に隣接している部屋では火災直後に高い放射性物質濃度となり、その後爆発時までは減少していくかまたはほぼ一定値を示しているように見える。この傾向は、火災時に放出された放射能が、煤煙に伴って時間とともに沈降あるいは壁面に付着していくことにより放射性物質濃度が減少し、火災消火後から爆発までのドラムからの放射能放出が少なかったことを意味するものとも考えられるが、煤煙によるろ紙の目詰まりにより  $\beta$  ダストモニタの空気吸引流量が低下しているということも考えられる。

このような状況を考慮して、各部屋の空気中放射性物質濃度の推定は次に述べる手順により行った。

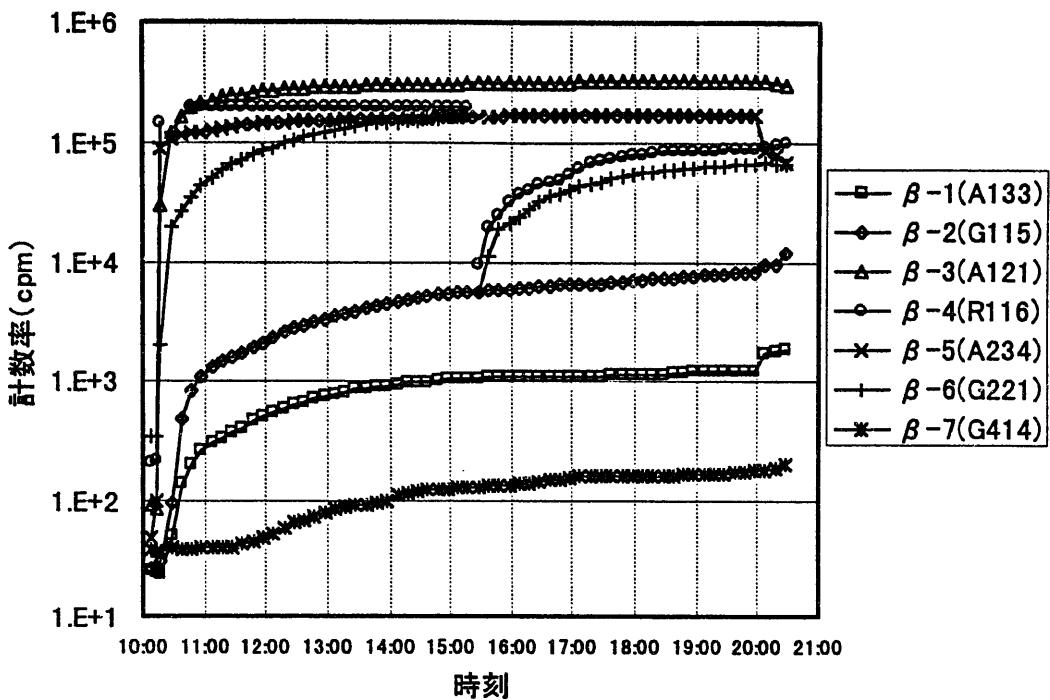


図 2 アスファルト固化処理施設内  $\beta$  ダストモニタ指示値の変化  
(10:20 以前は 5 分間隔、それ以降は 10 分間隔にチャート記録より読みとったものである)

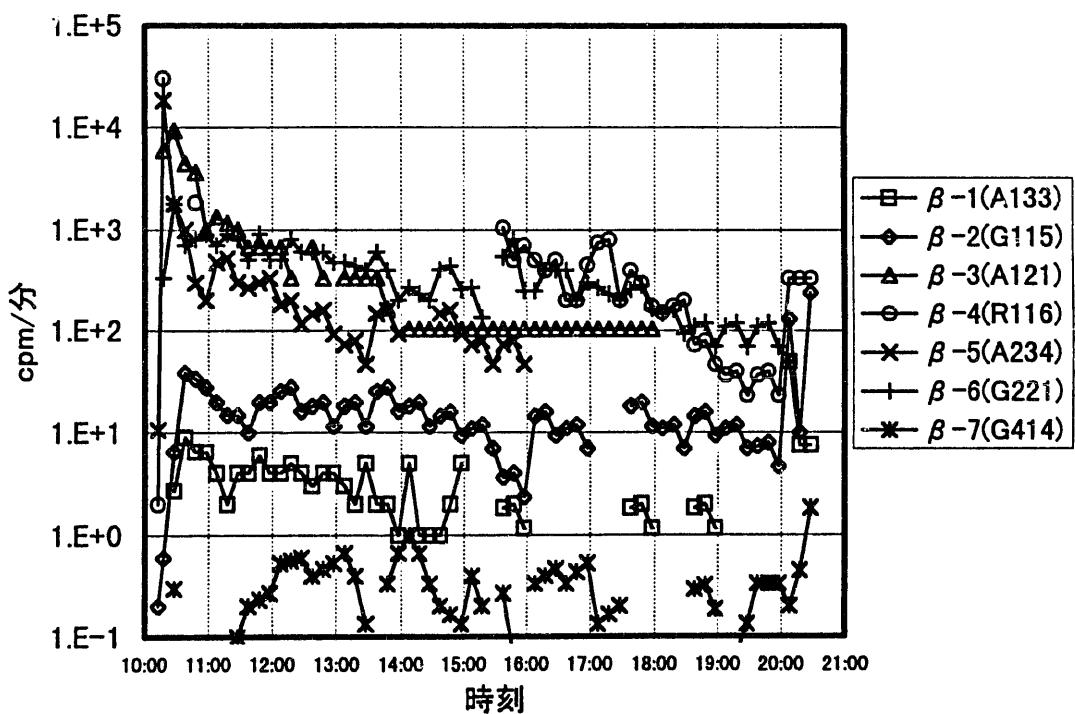


図 3 アスファルト固化処理施設内  $\beta$  ダストモニタ指示値増加率

### (1) 使用する $\beta$ ダストモニタ指示値増加率のデータ

火災後の $\beta$ ダストモニタの空気吸引流量の低下を考慮し、火災発生直後の指示値増加率のなかで最大のものを使用する。即ち、火災発生後から約30分までのデータを用いることとする。但し、 $\beta$ -7については14時頃に最大値をもつため、このデータを用いる。

### (2) エアースニッファデータの利用

火災後爆発までの間に、2箇所のエアースニッファのろ紙交換が行われている(3月7日装着、15時50分交換;AS-11(A131に設置)及びAS-17(A236に設置))。これらのろ紙は火災発生から火災時の高い放射性物質濃度の状態を含めて、以後5時間44分空気採取していたことになる。

エアースニッファの空気吸引流量については、ろ紙交換を行った作業員より、流量がいくらだったかは不明であるが、かなり流量が低下していたとの情報がある。従って、通常の空気吸引流量は60L/minであるところを、ここでの評価上はその1/10の6L/minを使用する。

これに基づいて計算される空气中放射性物質濃度は、以下に示すように、隣接した近辺の部屋の $\beta$ ダストモニタのデータより得られる濃度と比較しても大きな矛盾がないと考えられる値が得られるので、これを用いることとする。

- AS-11(A131に設置)より得られる空气中放射性物質濃度  $2.6E-3Bq/cm^3$

(1)より得られる、隣接したコンベア室(R116)及びエクストルーダモータ室(A133)の空气中放射性物質濃度がそれぞれ  $3.4E-2$ ,  $7.5E-6 Bq/cm^3$  であり、上記濃度はこの中間になる。

- AS-17(A236に設置)より得られる空气中放射性物質濃度  $1.9E-3Bq/cm^3$

(1)より得られる、近接した保守作業室(A234)の空气中放射性物質濃度  $3.1E-2Bq/cm^3$  より1桁小さく、また、カスク保管室(A121)と通ずるハッチを通じて放射能がもれてきたと考えられるカスク操作室(G221)の空气中放射性物質濃度  $1.6E-3 Bq/cm^3$  と同じオーダーの濃度である。

### (3) $\gamma$ 線エリアモニタ指示記録に基づく補正

$\beta$ ダストモニタが設置されている部屋に $\gamma$ 線エリアモニタも設置されている部屋について、 $\gamma$ 線エリアモニタ指示値(事故調査委員会資料4-8参照)の変化を確認し、その中で有意な指示値の変化を示しているものについて図4に示した。

これによると、カスク操作室(G115)に2つある $\gamma$ 線エリアモニタのうち、西側にある $\gamma$ -6の指示値は火災による上昇後は一定であるが、東側にある $\gamma$ -7の指示値はゆっくりと増加している。また、保守作業室(A234)にある $\gamma$ -11の指示値は17:30以降より増加している。これが、空气中放射性物質濃度の増加を示すものか、あるいはモニタ表面への放射性物質の付着による影響なのか不明である。

指示値の増加を示したこれらの2の部屋の空气中放射性物質濃度については、 $\beta$

ダストモニタ指示値増加率の最大値を採用している時刻である 10:30 頃の  $\gamma$  線エリアモニタの指示値に対する 20:00 の指示値の倍率を、(1)に従って得られる  $\beta$  ダストモニタデータからの空气中放射性物質濃度に掛けることによって濃度を補正することとする。即ち、カスク操作室(G115)については 3 倍、保守作業室(A234)については 2 倍するものとする。

#### (4) $\beta$ ダストモニタ、エアースニッファによるデータが無い部屋についての設定

$\beta$  ダストモニタもエアースニッファによるデータもない部屋の空气中放射性物質濃度については、部屋の配置関係と扉、ハッチなどの部屋間の連絡状態を考慮して、前記(1)～(3)に従って算出した 9 部屋の空气中放射性物質濃度を保守的に振り分ける。

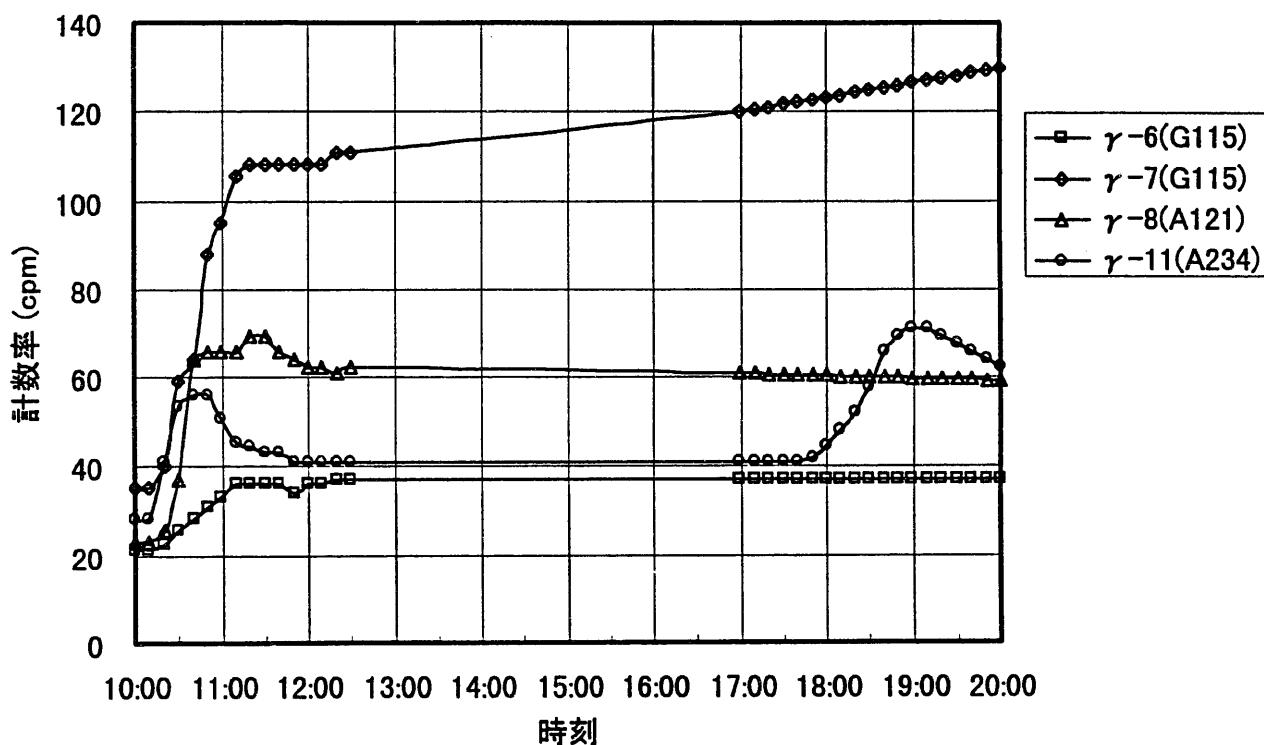


図 4  $\gamma$  線エリアモニタ指示値の変化

(10 分間隔にチャート記録より読みとったものである。途中プロットマークのない部分は直線的に変化しているため読み取りを行っていない)

### 3.3 推定結果

前節に従って評価した各部屋の空气中の放射能量を表 4 に示す。爆発時にアスファルト固化処理施設の1階以上の部屋に滞留している空气中放射性物質が全て放出されたと仮定した場合の放出放射能量は、全  $\beta$  で約 0.2GBq となる。この程度のオーダーの放射能が爆発時に放出された空気に伴って放出されたと考えられる。

表4 爆発時の施設内空气中放射能量の推定

階	部屋名	容積(m3)	濃度(Bq/cm3)	備考	滞留量(MBq)	
階段室 エレベータ室	G010 A060	4.1E+2 1.2E+2	1.6E-3 3.1E-2	G221と同じ A231と同じ	6.5E-1 3.7E+0	
1F	R116 R122 R151 R152 A118 A121 A123 A130 A131 A133	2.0E+2 2.9E+1 8.8E+1 5.3E+2 7.8E+1 9.3E+1 4.1E+1 3.3E+2 2.9E+2 1.1E+2	3.4E-2 3.4E-2 3.4E-2 3.4E-2 9.4E-3 9.4E-3 3.4E-2 3.1E-2 2.6E-3 7.5E-6	$\beta$ -4 R152と同じ R152と同じ R116と同じ A121と同じ $\beta$ -3 R116と同じ A231と同じ AS-11 $\beta$ -1	6.8E+0 9.8E-1 3.0E+0 1.8E+1 7.3E-1 8.7E-1 1.4E+0 1.0E+1 7.4E-1 8.4E-4	
	G111 G112 G113 G114 G115 W120	7.8E+1 1.2E+2 7.6E+1 1.8E+2 6.3E+2 6.2E+2	1.0E-4 1.0E-4 1.0E-4 1.0E-4 1.0E-4 9.4E-3	G115と同じ G111と同じ G112と同じ G112と同じ $\beta$ -2 A121と同じ	8.1E-3 1.3E-2 7.8E-3 1.9E-2 6.5E-2 5.8E+0	
	1F合計				48.8	
2F	R251 A231 A232 A233 A234 A235 A236 G212 G214 G215 G216 G217 G218 G219 G220 G221 G227	1.4E+2 2.1E+2 6.6E+1 9.6E+1 2.3E+2 6.0E+1 3.7E+2 1.4E+2 2.1E+2 5.3E+2 2.3E+2 8.4E+1 2.9E+2 1.4E+2 2.4E+2 1.1E+3 6.2E+1	3.4E-2 3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 1.9E-3 1.0E-4 1.0E-4 1.6E-3 1.6E-3 1.6E-3 1.6E-3 1.6E-3 1.6E-3 1.6E-3 1.6E-3	R116と同じ A235と同じ A231と同じ A231と同じ $\beta$ -5 A234と同じ AS-17 G112と同じ G212と同じ G216と同じ G221と同じ G218と同じ G216と同じ G221と同じ G216と同じ G216と同じ	4.8E+0 6.4E+0 2.0E+0 3.0E+0 7.1E+0 1.8E+0 7.1E-1 1.5E-2 2.2E-2 8.5E-1 3.8E-1 1.3E-1 4.7E-1 2.3E-1 3.8E-1 $\beta$ -6 9.9E-2	2F合計 30.2
3F	R352 R359 A314 A331 A332 A333 A334 A336 A341 G311 G312 G315 G316	1.1E+2 1.7E+1 1.4E+2 1.1E+2 1.4E+2 1.4E+2 1.4E+2 1.0E+3 1.2E+1 5.2E+1 1.4E+2 2.6E+2 7.8E+2	3.4E-2 3.4E-2 3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 1.6E-3 1.6E-3 1.6E-3 1.6E-3	R116と同じ R116と同じ A332と同じ A130と同じ A331と同じ A332と同じ A331と同じ A331と同じ A331と同じ G010と同じ G311と同じ G311と同じ G221と同じ	3.9E+0 6.0E-1 4.2E+0 3.2E+0 4.4E+0 4.3E+0 4.3E+0 3.2E+1 3.7E-1 8.3E-2 2.2E-1 4.2E-1 1.3E+0	3F合計 58.8
4F	A431 A433 A434 A435 A436 G411 G414 G415 G416	9.7E+1 5.4E+1 6.1E+1 1.2E+2 6.3E+2 5.7E+1 5.7E+2 2.7E+2 4.9E+2	3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 3.1E-2 1.6E-3 9.0E-7 1.6E-3 1.6E-3	A130と同じ A431と同じ A435と同じ A431と同じ A431と同じ G010と同じ $\beta$ -7 G411と同じ G415と同じ	3.0E+0 1.6E+0 1.9E+0 3.5E+0 1.9E+1 9.1E-2 5.1E-4 4.3E-1 7.9E-1	4F合計 30.5
5F	A521 A531 G511	3.6E+1 3.3E+1 3.2E+1	3.1E-2 3.1E-2 1.8E-3	A130と同じ A521と同じ G010と同じ	1.1E+0 1.0E+0 5.1E-2	5F合計 2.2
合計		1.3E+4			1.7E+2	

### 3.3 爆発に伴い壁面等から煤とともに剥離されて放出された放射能量の推定

爆発に伴い壁面等から剥離されて放出された煤などは、アスファルト固化処理施設周辺の比較的近い範囲で地表面に沈降したものと考えられる。

これらの煤とともに放出された放射能量を、施設周囲の汚染した表土の放射能を積算した形で見積もることについての検討を行う予定である。

## 4. 今後の予定

今後は、本報告で設定したアスファルト固化体中の放射能の施設開口部への移行挙動に基づき、開口部からの放出量を求めていく。

また、これとは別に、施設の開口部周辺より採取したスマヤ試料の放射能測定データを利用し、ここから放出された放射能量を見積もることを試みる予定である。

一方、東海事業所内で得られている事故当日の気象データ、放射線モニタリングデータ及び排気設備からの放射能放出状況、アスファルト固化処理施設から煙の放出状況並びに大洗地区での放射線モニタリングデータなどを用いた検討作業を進めているところである。

一般公衆の線量当量評価に大きく左右する放出パターン及び拡散条件などについても併せて検討を行っているところである。

## 5. 参考文献

1. W.Kluger, et al., "Investigation of Activity Release from Bituminized Intermediate-Level Waste Forms under Thermal Stresses", Proceedings of an International Symposium on the Conditioning of Radioactive Wastes for Storage and Disposal, Utrecht, the Netherlands, 21-25 June 1982
2. M.Demonie, et al., "The Fire Incident In the EUROBITUM Plant on December 15, 1981", ETR-314, 1990
3. N.Watabe, et al., "Combustible Properties of LLW Bitumen Packages in a Fire Test", PATRAM'92, 1992
4. Elizabeth M.Flew, et al., "Assessment of the Potential Release of Radioactivity from Installations at AERE, Harwell. Implications for Emergency Planning", IAEA-SM-119/7, 1969

## 別添1

W.Kluger, et al., "Investigation of Activity Release from Bituminized Intermediate-Level Waste Forms under Thermal Stresses", 1982

## 概要

$\text{NaNO}_3$  を含む再処理廃液のアスファルト固化体の火災時の、Pu 放出割合の測定試験結果の報告である。Pu を用いたホットのラボスケール試験(固化体試料 100mg)と、 $\text{PuO}_2$ (融点 2390°C)の代わりに  $\text{Eu}_2\text{O}_3$ (融点 2330°C)を用いたコールドのフルスケール試験(175L ドラム)を実施している。

ラボスケール試験では DTA 炉を用い、Pu 量の測定は  $\gamma$  スペクトロメトリ( $^{241}\text{Pu}$  の娘核種の  $^{237}\text{U}$  の 208keV を放射平衡に達する 1 月以上後に測定)により行っている。フルスケール試験では、燃焼した燃料オイルの中にドラムを置いて固化体を燃焼させている。燃焼残さの Na 量と排気を捕捉したフィルタの Eu/Na 比を求めることにより間接的に Eu の移行割合を求めている。Eu の測定は中性子による放射化測定により行っている。

表1に試験に用いたアスファルト固化体組成の組成を、図1にフルスケール試験装置を示す。

表1 試験用アスファルト固化体組成

	ラボスケール試験(ホット)		フィールド試験(コールド)
	PuO <sub>2</sub>		$\text{Eu}_2\text{O}_3$
組成(wt%)	(1)	(2)	(3)
アスファルト	60.0 (R85/40)	60.0 (R85/40)	60.0 (B15)
$\text{NaNO}_3$	25.1	35.8	39.8
無機スラリー <sup>*1</sup>	10.7		
$\text{PuO}_2$	4.2	4.2	0.2

\*1:  $\text{CaSO}_4$ ,  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{K}_2\text{Ni}[\text{Fe}(\text{CN})_6]$

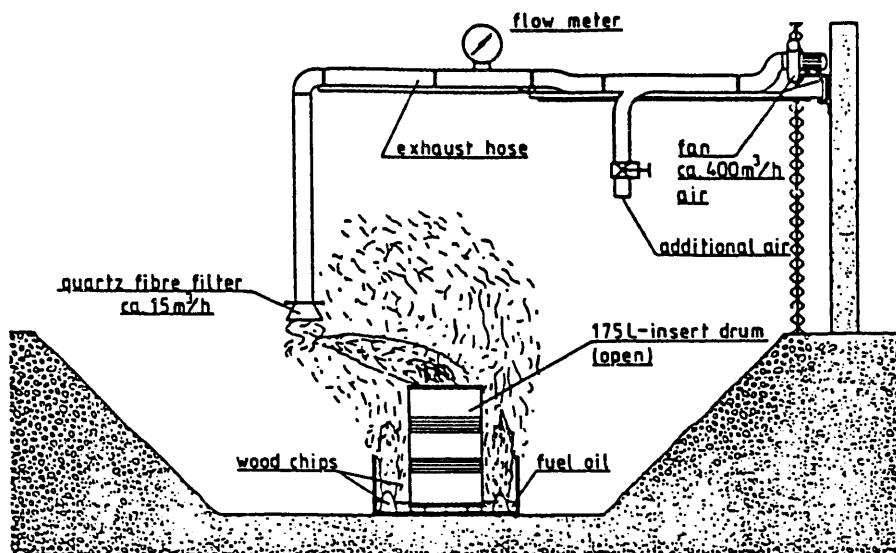


図1 フルスケール試験装置

試験結果を表2に示す。フルスケール試験での最高ドラム表面温度は 1200°C、ドラムの燃焼時間は約2時間であった。

表2 試験結果

試験 No.	試験条件	重量ロス(%)	Pu/Am/Eu ロス(%)	Na ロス(%)
(1)	900°C 30 分(DTA 炉) 0.1g	72.5±0.2 no Am losses	3.8±2 (Pu)	
(2)	900°C 30 分(DTA 炉) 0.1g	79.1±1 14.4±2.4 (Am)	13.8±1.6 (Pu)	
(3)	800°C, オイル火炎中 30 分 175L ドラム	74±1.5	8±1 (Eu)	32±3

## 別添2

N.Watabe, et al., "Combustible Properties of LLW Bitumen Packages in a Fire Test", PATRAM'92

## 概要

PWR 型原子力発電所から出る廃液のアスファルト固化体の燃焼実験報告である。ビーカースケール試験(固化体 100cc)及び 200L ドラム試験(固化体 160~170L)が行われた。アスファルト固化体は、60/40 ストレートアスファルトと Co, Sr, Cs, Eu, NaBO<sub>2</sub>·1/2H<sub>2</sub>O 化合物との混合物である。Eu は  $\alpha$  核種の代用として使用している。試験に用いたアスファルト固化体の組成を表1に示す。

ビーカースケール試験装置を図1に、ドラム試験装置を図2に示す。どちらも雰囲気温度 30→835°Cまでを 35 分間で加熱している。

ビーカー試験では、加熱終了後自然鎮火した。分解ガスの組成は、C<sub>1</sub>~C<sub>40+</sub>の広範囲の炭化水素と H<sub>2</sub>O、450°Cでは 40%程度の割合で C<sub>40+</sub>炭化水素であった。放出ガスの容量は約 27kl/kg であった。

ドラム試験では加熱終了後 12 時間燃焼が継続した。各成分の放出割合を表2に示す。また、固化体の重量減少は約 20%であった。

表1 試験に用いたアスファルト固化体の組成

成分	含有割合	備考
Co, Sr, Cs	0.2wt%	硫酸塩として
Eu	0.2wt%	酸化物として
NaBO <sub>2</sub> ·1/2H <sub>2</sub> O	40wt%	塩／アスファルト=40/60

表2 各成分の放出割合

成分	放出割合*
Co, Sr, Eu	$4.4 \times 10^{-1} \sim 3.6 \times 10^{-2} \%$
Cs	$1.5 \times 10^0 \sim 4.7 \times 10^{-1} \%$

\* 著者との確認により、原文の数値には記載ミスがあり、ここに正しい数値を記載した

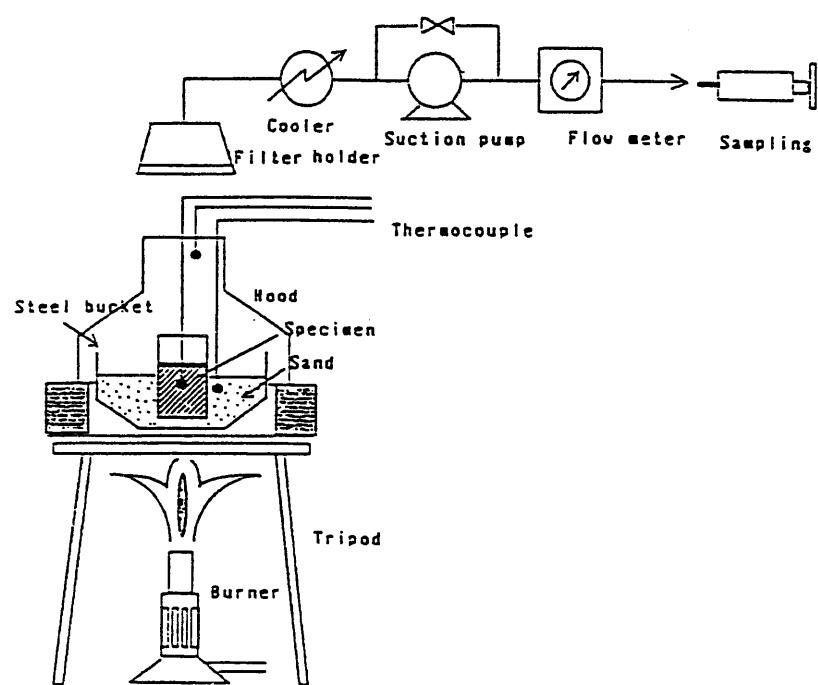


図1 ビーカースケール試験装置

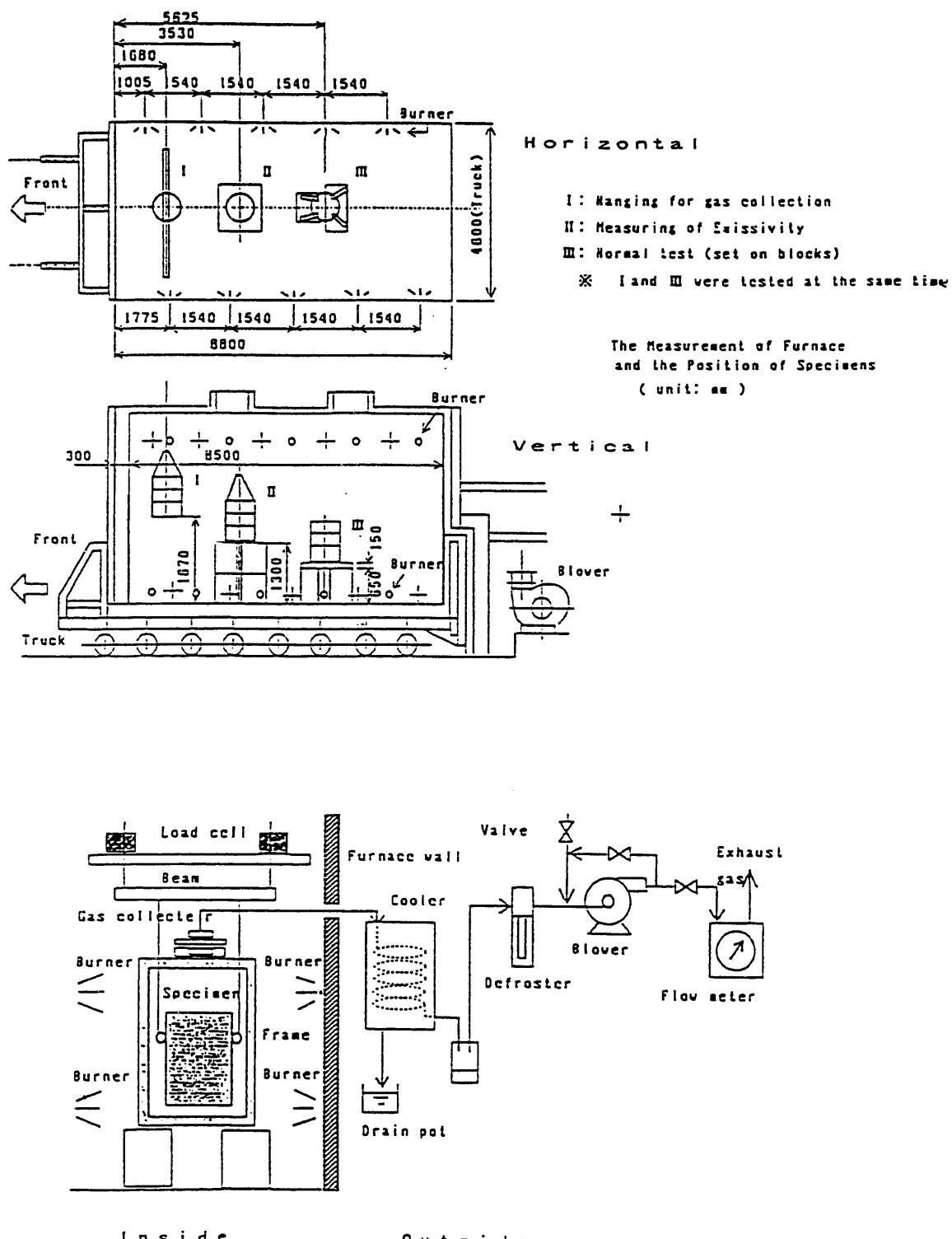


図2 ドラム試験装置

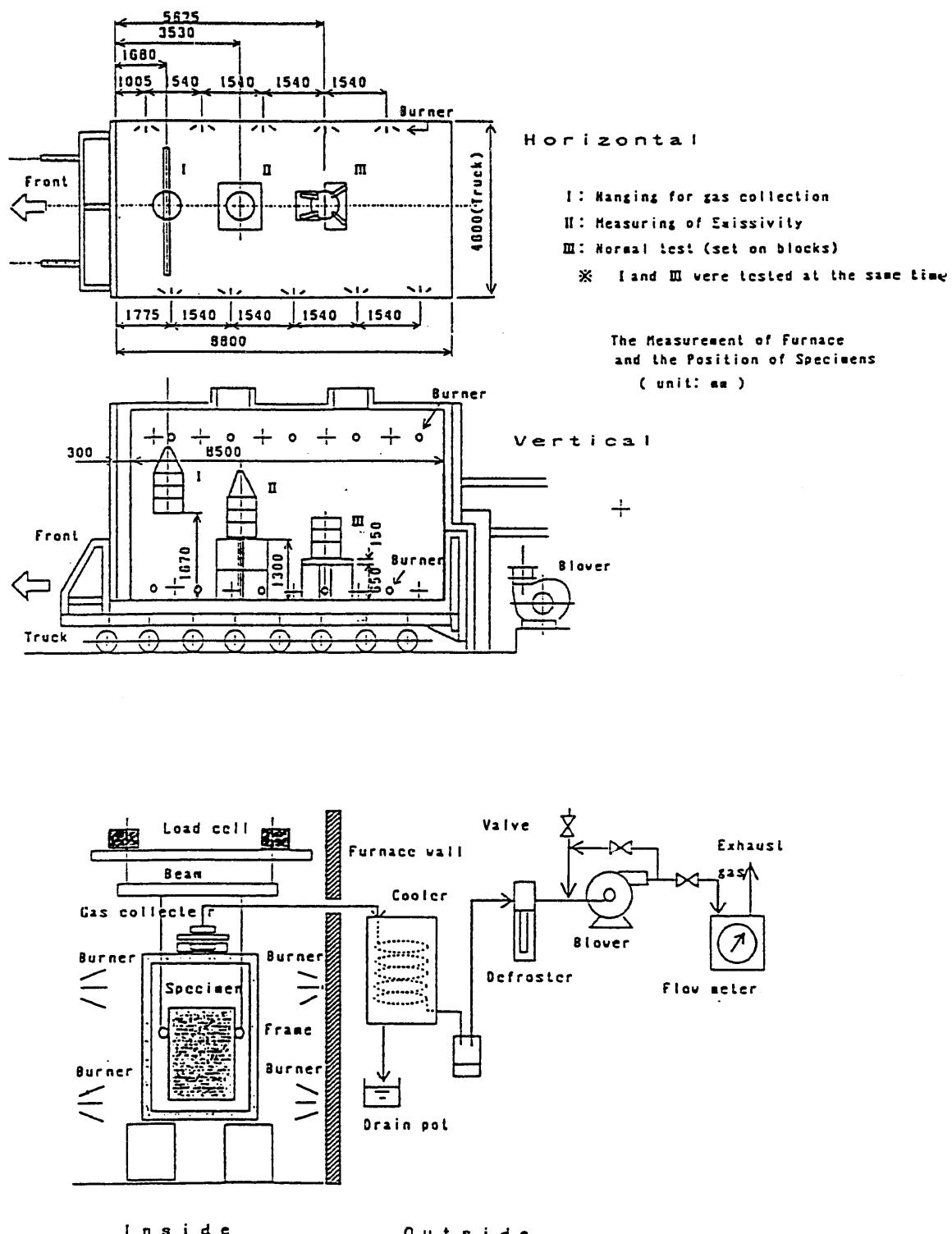


図2 ドラム試験装置

資料16—5

資料 1 6 - 5

原因究明のための試験、解析計画について  
(資料 1 1 - 6 の改訂)

(動力炉・核燃料開発事業団)

平成 9 年 7 月 17 日

## 1. 試験

原因究明作業に当たって、これまでに事故現場の被害状況及び運転状況の調査を実施すると共に現場などに残された試薬、廃液、固化体等の分析を計画し順次実施してきている。現在これらの調査から得られた結果を基に火災から爆発に至る各原因の推定を行っているが、各推定を確証又は補足するために以下に示す各試験を7月末までに実施する計画である。(表一1参照)

### 1.1 単純系の素反応に関する基礎試験

火災の原因究明の為に、現場に残された廃液及び固化体の試料採取と分析を計画している。特に熱特性に関しては密封セル示差走査熱量計（SC-DSC）や加速速度熱量計（ARC）を使った測定試験を実施するが、その測定条件の確認や比較的単純な系での吸・発熱ピークの確認、吸・発熱ピークのS/B比への依存性等の基礎的な情報を把握し、ホット試料の測定データの解析評価に資するために、事前に固化体に含まれる可能性のある物質についての基礎的な熱特性を調査しておく必要がある。

以下に、実施する試験項目を示す。

#### (1) SC-DSC を用いた試験（コールド試験）

- ①アスファルト(Asp)とNaNO<sub>3</sub>, NaNO<sub>2</sub>との反応の吸・発熱挙動の測定
- ②TBPとNaNO<sub>3</sub>, NaNO<sub>2</sub>との反応の吸・発熱挙動の測定
- ③TBPの劣化物(DBP)とNaNO<sub>3</sub>, NaNO<sub>2</sub>との反応の吸・発熱挙動の測定
- ④n-ドデカンとNaNO<sub>3</sub>, NaNO<sub>2</sub>との反応の吸・発熱挙動の測定
- ⑤金属等による触媒効果等の確認

#### (2) ARC を用いた試験（コールド試験）

①模擬アスファルト塩混合物、②TBP試薬等にNaNO<sub>3</sub>/NaNO<sub>2</sub>を添加した試料、について最も過酷な条件である密封断熱系での自己反応性物質の暴走反応に関する発熱挙動の確認と反応速度の推定に係る試験を行う。さらに、①の試料についてARCで発生する熱分解ガスをガスクロマトグラフィ(GC)及びガスクロマトグラフィ質量分析計(GC-MS)を用いてガス分析を行う。

### 1.2 模擬固化体の作製とその基礎データの取得（コールド試験）

本試験及び他の試験に模擬固化体を供給するために数ℓ程度の模擬固化体を作製し、それを使用して固化体の自己発熱による温度上昇等の熱解析を実施するための基礎的なデータ（熱伝導率、比熱等）を取得する他、空気を巻き込んだアスファルトの酸化による発熱反応等についても確認試験を実施する。

### 1.3 実廃液、実固化体等の発熱特性確認試験（ホット試験）

アスファルト固化処理施設に残された廃液及び廃棄物処理場（AAF）の濃縮廃液を採取し、それを蒸発乾固（約110℃）した上で単独でSC-DSC等で測定すると共

に、アスファルト固化処理施設に残された廃液（V21,V32,V33）の蒸発乾固物と原料アスファルトと一緒にSC-DSCやARCの測定セルに入れてその発熱特性を測定する。また、充てん室内の充てんドラムから採取した実固化体、エクストルーダのドーム1から採取した混合物及び既に貯蔵されている貯蔵固化体（10B,27B）の発熱特性をSC-DSC及びARCを用いて測定する。

#### 1.4 熱分解で発生する可燃性ガスの確認試験（コールド試験）

JIS (K7217)に基づく燃焼ガス分析及びGC-MSにより模擬固化体の加熱時に発生する可燃性ガスの種類及び量を確認し、爆発に寄与した可燃性ガスを特定する。

### 2. 計算解析

計算解析については以下の目的で実施するものである。

- ・施設の被害状況や事故の進展などを解析的に評価することを通じて、その解析過程又は結果において事故原因究明に有用な知見を得る。
- ・火災・爆発の事故例の一つとして、各研究分野における各種解析に必要なデータ等を提供でき得るよう、独自に解析を実施することを通じてデータ整理を行う。  
解析項目を以下に示す。

#### 2.1 ドラムの発熱解析

- ・アスファルト固化体から周囲空気へ対流で放熱する放熱量と固化体内の発熱量を考慮した固化体内の温度分布を算出
- ・使用コード：3次元非定常熱輸送計算コード

#### 2.2 エクストルーダ内の温度解析

- ・エクストルーダ内のアスファルト混合物の温度をパラメータとして、加熱操作及び冷却操作を考慮してエクストルーダ内の温度分布、温度変化を算出
- ・使用コード：3次元非定常熱輸送計算コード

#### 2.3 火災時の温度・圧力解析

- ・最初の火災時におけるセル・室の圧力、温度変化の算出
- ・使用コード：火災解析コード

#### 2.4 爆発時の各部屋境界部等の圧力評価

- ・破壊状況を基に破壊モードを検討し、破壊に必要な引張（あるいはせん断）荷重を計算して、最低圧力（非破壊機器については最高圧力）を推定する。

## 2.5 爆発時の換気系の圧力解析

- ・セル換気系ダクト等の破損状況を考慮して、セル換気系における発生圧力を算出
- ・使用コード：換気系爆発解析コード

## 2.6 爆発時の各部屋の圧力解析

- ・爆発時に発生した各部屋の圧力を算出
- ・使用コード：多区画内燃焼解析コード

## 2.7 爆発後の火災の解析

- ・爆発後の火災における放射性物質の放出量の推定の参考とするため、発生した爆発後に解放された各部屋の温度・圧力を算出
- ・使用コード：多区画内燃焼解析コード

表一 1 試験項目と現状

	試験項目	内容	現状
コード試験 (32)	<p>1. 単純系の素反応に関する基礎試験            ① Asp と NaNO<sub>3</sub>, NaNO<sub>2</sub>との反応の吸・発熱挙動の測定            ② TBP と NaNO<sub>3</sub>, NaNO<sub>2</sub>との反応の吸・発熱挙動の測定            ③ TBP の劣化物 (DBP) と NaNO<sub>3</sub>, NaNO<sub>2</sub>との反応の吸・発熱挙動の測定            ④ n-ドデカンと NaNO<sub>3</sub>, NaNO<sub>2</sub>との反応の吸・発熱挙動の測定            ⑤ ガス分析            ⑥ 金属等による触媒効果等の確認</p> <p>2. 模擬固化体の作製とその基礎データの取得            ① 発熱反応確認試験</p> <p>3. 热分解で発生する可燃性ガスの確認試験            ① JIS (K7217) による燃焼ガス分析            ② GC-MS による熱分解ガスの測定</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>①～④については密封セル示差走査熱量計 (SC-DSC) 又は加速速度熱量計 (ARC) による測定。⑤は模擬固化体について ARC で発生した熱分解ガスを GC 及び GC-MS で測定。⑥については触媒の可能性を持つ化合物等を模擬固化体に混入させた上で密封セル示差走査熱量計 (SC-DSC) 等による測定。</li> <li>数百mℓ規模での空気巻き込みによる Asp の酸化反応の確認</li> <li>温度をパラメータとした原料 Asp 及び模擬 Asp 固化体からの熱分解ガスの測定</li> </ul>	①～⑤については資料 10-4-1 及び資料 13-6-1 で既に報告済み ⑥については現在試験実施中  現在試験実施中  現在試験実施中
ホット試験	<p>1. 実廃液の発熱特性確認試験            ① Asp 固化処理施設 (V21,30～33)            ② AAF 施設 (331V10,11)</p> <p>2. 実 Asp 固化体の発熱特性確認試験            ① 貯蔵固化体 (10B,27B)            ② エクストルーダ内混合物            ③ 充てん室内固化体</p> <p>3. 実廃液と Asp の発熱特性確認試験            (V21,V32,V33)</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>密封セル示差走査熱量計 (SC-DSC) 等による測定</li> <li>密封セル示差走査熱量計 (SC-DSC) 、 加速速度熱量計 (ARC) 等による測定</li> <li>密封セル示差走査熱量計 (SC-DSC) 、 加速速度熱量計 (ARC) 等による測定</li> </ul>	現在試験実施中  現在試験実施中  現在試験実施中