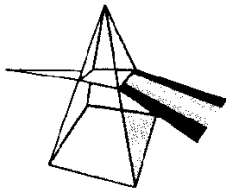


【技術報告】



アスファルト固化処理施設の火災爆発事故による放射性物質の放出量並びに公衆の被ばく線量の評価

須藤 俊幸 清水 武彦

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

資料番号：107-5

Estimation of Released Radioactivity and Dose Equivalents of the Public due to the Fire and Explosion Incident at the Bituminization Demonstration Facility

Toshiyuki SUTO Takehiko SHIMIZU

Investigation Group for Bituminization Demonstration Facility Incident

1997年（平成9）3月11日に発生したアスファルト固化処理施設の火災爆発事故では、施設の窓、シャッター等が破損し、放射性物質が環境へ放出された。事業所内環境モニタリング結果では、施設周辺で ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{238}Pu 、 ^{241}Am が検出され、施設より約20km離れた大洗地区のモニタリング結果では、空気浮遊じんから微量の ^{137}Cs が検出された。また、施設内からは煤等を採取し放射性核種の分析データを取得した。これらの情報に基づき、事故による主要な放射性核種の放出量は、 ^{137}Cs で $1 \sim 4 \text{ GBq}$ 、 α 線放出核種で $6 \times 10^{-4} \sim 9 \times 10^{-3} \text{ GBq}$ 、これらの放出により公衆の受ける預託実効線量当量は $1 \times 10^{-3} \sim 2 \times 10^{-2} \text{ mSv}$ と評価した。これは法令に定められた公衆の線量限度である 1 mSv の約1,000分の1から50分の1である。

During the fire and explosion incident at the bituminization demonstration facility on March 11, 1997, many windows and shutters of the facility were broken and radioactive materials were released from the openings to the outside.

Radionuclides of Cs, Sr, Pu and Am were detected by environment monitoring within the site. In Oarai site (about 20 km away from the facility), a small amount of Cs radionuclides was detected from air dust samples. Some soot within the facility was sampled and radionuclides were analyzed. Based on the above information, released activity was evaluated to be approximately 1 to 4 GBq for ^{137}Cs and 6×10^{-4} to $9 \times 10^{-3} \text{ GBq}$ for α activity.

The maximum committed effective dose equivalent to the public by the release of the above activity was evaluated to be approximately 1×10^{-3} to $2 \times 10^{-2} \text{ mSv}$.

キーワード

アスファルト固化、火災、爆発、事故、放射性物質の放出、公衆被ばく、環境モニタリング

Fire, Explosion, Accident, Bituminization Facility, Activity Release, Public Exposure Dose, Environment Monitoring

1. はじめに

1997年（平成9）3月11日、東海事業所のアスファルト固化処理施設（以下、ASP施設）で火災爆発事故が発生した。爆発により施設の窓、シャッター等が破損し、これらの開口部から放射性物質が環境に放出された。本報告は、事故による放射性物質の放出量及びそれにより公衆の受ける被ばく線量についての評価方法並びにその結果についてまとめたものである。

2. 事故の概要

事故当日の午前10時6分頃、アスファルト充てん室（以下、充てん室）内のアスファルト固化体（以下、固化体）に火災が発生した。10時12分頃から13分頃にかけて約1分間の水噴霧による消火作業を行った直後、セル換気系排気フィルタの日詰まりによると考えられる換気系異常警報が吹鳴し、建家換気系は送風機及び排風機各々1基のみを運転する制限運転状態となった。10時23分頃、建家内負圧バランスの乱れによる汚染拡大の恐れがあると考えて、セル及び建家換気系は全停止さ

れた。この間、汚染した煙はASP施設内、さらに連結された第三低放射性廃液蒸発処理施設（以下、Z施設）にも拡がった。

20時4分頃に起こった爆発により、ASP施設の窓、シャッター等が破損して開口部ができ、閉じ込め機能は完全に失われた。同時に火災が発生し、2時間程度燃焼した後に自然鎮火した模様である。この間、開口部から放射性物質が外部へ放出され、また、一部は、排気設備からも放出された。この排気設備には、第1付属排気筒（以下、付属排気筒）及びZ施設と第二低放射性廃液蒸発処理施設（以下、E施設）の建家換気を排気しているそれぞれの局所排気設備が含まれる。

3. 放射性物質の放出量の推定

最初に排気設備からの放出量の推定について、次に開口部からの放出量の推定について述べる。後者の推定は複数の方法で行い、比較検討して放出量を評価した。

3.1 排気設備からの放出量の推定

(1) 基本的算出方法

排気設備からの放出量は基本的に排気流量及び放射性物質濃度の測定値より求められる。算出手順を以下に述べる。

- ① 各排気設備の排気モニタのサンプリングろ紙を回収し、 α ダスト、 $\beta\gamma$ ダスト採取試料については γ 線スペクトル分析及び放射化学分析により、また、ヨウ素採取試料については γ スペクトル分析により測定し、サンプリング試料の捕集効率を考慮して試料中の放射性物質量を核種別に求める。
- ② 上記の値をサンプリング流量（サンプリング流量率 $\times$ サンプリング期間）で除して、サンプリング期間中の平均濃度を算出する。
- ③ 上記の値に、サンプリング期間中の排風量の

積算値を乗じて放出量を算出する。

(2) 付属排気筒のサンプリング流量率の補正及び排風量の推定

付属排気筒については、事故時に排気モニタのサンプリング流量率、排風率指示値に大きな変動があったため、放出量評価上その影響を補正する必要が生じた。次にこれについて述べる。

1) サンプリング流量率の変動に対する補正

β ダストモニタのサンプリング流量率は、爆発後にサンプリングろ紙の日詰まりにより、約2時間かけて定格流量率70 ℓ/min から38 ℓ/min まで減少した。このため、 β ダストモニタの指示記録及びサンプリングろ紙の分析値を定格流量率でサンプリングした場合に補正して核種平均濃度を求めた。

2) 排風量の推定

付属排気筒の排風量計の指示記録を図1に示す。最初の火災発生前の3月5日9時から11日10時までの排風量は、排風量計の記録に基づき $1.71 \times 10^7 \text{ m}^3$ である。

最初の火災発生後にASP施設の換気系が停止して、排風率がかなり減少し、正常な測定状態にならないと考えられた。このため、排風量計の指示値を用いずに、付属排気筒の排気モニタと、ASP施設から付属排気筒への排気をモニタリングしている中間排気モニタのそれぞれに設置してあるヨウ素モニタの指示値に基づくヨウ素（ ^{129}I ）収支から排風量を推定した。ASP施設で発生した、 ^{129}I は同施設から排気された後、他からの排気（47,800 m^3/h ）と合流して希釈され、付属排気筒から放出される。ASP施設からの排風率をX（ m^3/h ）とすると次の関係式が成り立ち、これより排風率Xを3,000 m^3/h と評価した。

$$\text{ASP 中間排気モニタ } ^{129}\text{I 濃度} (6.7 \times 10^{-6}) \times X \\ = \text{付属排気筒排気モニタ } ^{129}\text{I 濃度} (3.9 \times 10^{-6}) \\ \times (47,800 + X)$$

^{129}I 濃度は3月11日13時から16時の期間の濃度（cpm/cm³）

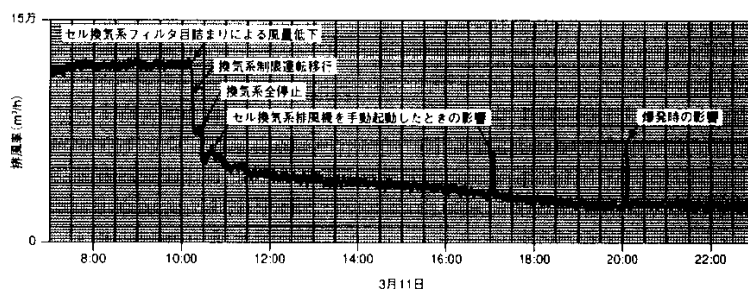


図1 第1付属排気筒の排風量計の指示記録

表1 各排気設備からの放出量

		付属排気筒		Z施設局所排気	E施設局所排気
サンプリング期間		3/5 9:00~3/12 2:50	3/13~4/1	3/5 9:30~3/13 15:30	3/5 9:00~3/13 14:30
区分	核種	放出量 (GBq)			
β 核種	¹⁴ C*	$1.0 \times 10^1 \pm 1.4 \times 10^{-1}$	微	—	—
	¹³⁷ Cs	$1.5 \times 10^{-1} \pm 5.5 \times 10^{-4}$	6.4×10^{-4}	$8.3 \times 10^{-3} \pm 9.7 \times 10^{-6}$	$6.5 \times 10^{-3} \pm 3.0 \times 10^{-7}$
	¹³⁴ Cs	$1.4 \times 10^{-2} \pm 1.7 \times 10^{-4}$	6.1×10^{-5}	$7.4 \times 10^{-4} \pm 2.8 \times 10^{-6}$	$5.6 \times 10^{-5} \pm 8.6 \times 10^{-8}$
	¹⁰⁶ Ru	微	微	$3.2 \times 10^{-5} \pm 8.8 \times 10^{-6}$	微
	⁹⁰ Sr	$2.1 \times 10^{-4} \pm 1.7 \times 10^{-5}$	1.3×10^{-6}	$1.3 \times 10^{-5} \pm 1.8 \times 10^{-6}$	微
	¹²⁹ I	$3.6 \times 10^{-3} \pm 9.1 \times 10^{-5}$	微	$1.7 \times 10^{-4} \pm 1.9 \times 10^{-5}$	微
	¹³¹ I	微	微	微	微
α 核種	²⁴¹ Pu*	$9.4 \times 10^{-4} \pm 1.8 \times 10^{-5}$	微	$3.1 \times 10^{-5} \pm 2.3 \times 10^{-6}$	$2.9 \times 10^{-7} \pm 4.9 \times 10^{-8}$
	Pu(α)	$3.6 \times 10^{-5} \pm 6.8 \times 10^{-7}$	微	$1.2 \times 10^{-6} \pm 8.9 \times 10^{-8}$	$1.1 \times 10^{-8} \pm 1.9 \times 10^{-9}$
	²⁴¹ Am	$1.3 \times 10^{-5} \pm 8.3 \times 10^{-7}$	微	$6.5 \times 10^{-7} \pm 5.7 \times 10^{-8}$	$5.6 \times 10^{-9} \pm 1.2 \times 10^{-9}$
	U(α)	$2.1 \times 10^{-6} \pm 1.7 \times 10^{-7}$	微	微	微

微：検出下限値未満での放出、誤差：1σの計数誤差

*1：通常運転時の放出を含む

*2：施設内の煤、施設外の空気浮遊じんの分析結果に基づき、Pu(α)量を26倍すること算出

最初の火災発生後の排風率は、他施設及びASP施設からの排風率を合計して50,800 m³/hとなり、3月11日10時～12日2時50分までの期間の排風量は 8.5×10^5 m³となる。これと前述の3月5日9時～11日10時までの排風量とを合計して、付属排気筒のサンプリング期間中の排風量を 1.79×10^1 m³と評価した。なお、爆発時に瞬間的に排風率が増加しているが、評価期間全体の総排風量に対する寄与は無視できる程度である。

(3) 放出量の推定結果

前述の手順によって推定した各排気設備からの放出量を表1に示す。付属排気筒については、事故以降の3月13日～4月1日についても極めてわずかではあるが¹³⁷Cs等の放出が認められた。これは、ASP施設内の調査・復旧作業により、床面や換気ダクト等に付着した放射性物質を含んだ塵、煤の剝離等によるものと考えられる。

3.2 開口部からの放出量の推定

排気設備からの放出と異なり、開口部からの放出については、放出流量や放射性物質濃度に関する直接的データがないため、以下の方法により間接的に放出量を評価し、相互に比較検討して推定した。

(1) 環境モニタリングデータからの推定

環境モニタリングデータから、気象データと大気拡散モデルに基づき、その実測値に見合う放出量を推定した。

(2) 固化体中の放射性物質の施設外への移行挙動からの推定

固化体の内蔵放射性物質質量をもとに、放射性物質の放出に関与した固化体の量、火災等による固化体から気相への移行割合、開口部から施設外への放出割合等、固化体から施設外への放出に至る

経路ごとの移行割合を適切に設定することにより放出量を推定した。

3.3 環境モニタリングデータからの推定

事故後、事業所の南方約20kmにある大洗地区において採取された空気浮遊じん中に微量の^{134,137}Csが検出された。また、敷地内ASP施設周辺の空気浮遊じんモニタリングの結果、3地点で有意な^{134,137}Cs、⁹⁰Sr及びα核種(^{238,239,240}Pu、²⁴¹Am)が検出された。これらの環境モニタリングデータを利用して放出量を推定した。

(1) 大洗地区環境モニタリングデータからの推定

動燃事業団大洗工学センター及び日本原子力研究所（以下、原研）の大洗研究所では、事故前後を含む3月10日から17日にかけて採取した空気浮遊じん中に^{134,137}Csが検出された。ASP施設からの放出条件を設定し、正規型パフ拡散モデルによる大気拡散計算コードを用いて、これらの実測値に見合う放出量を推定した。

1) 放出条件の設定

a) 放出パターンの設定

付属排気筒のβダストモニタの変動状況を図2に示す。変動状況は、概略、次の4領域に分けられる。

A：爆発の影響を受けた部分

B、C：爆発後の火災による影響を受けた部分

D：鎮火に向かった部分

付属排気筒からの放出の大部分は、爆発後およそ1時間半程度で放出された。A、B、C部分の合計で全体の87%に相当する。

ASP施設から南約400mのプルトニウム燃料施設（以下、Pu燃）守衛所前の地点で、爆発直後から1時間弱の間隔で3回の空気浮遊じんの採取を行った。採取試料の¹³⁷Cs測定結果では、1回目～

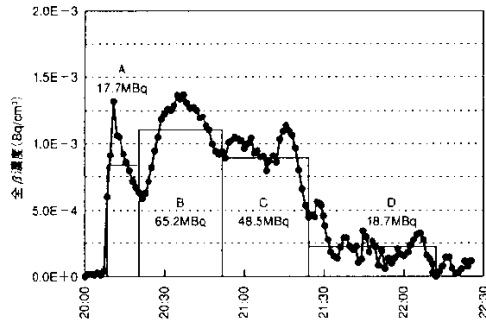


図2 付属排気筒からの放出パターン
(排気モニタのβダスト指示値の微分値)

3回目の連続した時間帯において時間積分濃度（平均濃度×採取時間）を比較すると、2回目の測定結果が1回目と比較して約1/4に減少し、3回目の22時35分以降の測定では検出限界未満となった（図3参照）。これは、爆発のおよそ1時間後以降に開口部からの放出量が減少していく傾向にあったことを示しており、付属排気筒の放出パターンとも矛盾しない傾向である。

その他、屋外監視カメラの煙放出状況の映像記録でも開口部からの放出の様子は、付属排気筒の放出パターンとおおむね類似したものであった。

基本的に爆発後のASP施設の状態に変化はない。上記の放出状況に関する情報を参考にすれば、固化体から放出された放射性物質の付属排気筒への移行割合はほぼ一定であり、開口部からの放出状況は、付属排気筒の放出パターンに反映されているものと考えられる。

したがって、開口部からの放射性物質の放出パターンについても、図2に示す付属排気筒の放出パターンを用いた。

b) 拡散条件の設定

放射性物質が環境に放出された後の拡散については、風向・風速等の気象条件はもとより、放射性物質を含んだ空気の初期段階の広がり、放出源の有効高さが影響する。これらについては次のように設定した。

屋外監視カメラによる開口部からの煙の放出状況はASP施設の建屋幅に近い放出源の広がりであったことから、初期拡散幅として建屋の断面積1,000㎡（幅約50m、高さ約20m）を考慮した。また、煙の日撃情報を参考に、高さ40～60m付近より北からの風によって南方向へと拡散していったものと推定した。

2) 付属排気筒からの放出量の寄与割合

大洗地区のモニタリング結果には、開口部から

表2 大洗地区モニタリング結果への付属排気筒放出量の寄与（ ^{137}Cs ）

地点	動燃大洗	原研大洗
採取期間	3/10 14:06～3/17 10:55	3/10 0:00～3/17 0:00
時間積分濃度 ($\text{Bq}\cdot\text{h}/\text{cm}^3$)	実測値 $6.7\times 10^{-4}\pm 2.9\times 10^{-9}$ 計算値 5.2×10^{-9}	$1.0\times 10^{-7}\pm 3.8\times 10^{-9}$ 9.0×10^{-9}
寄与分 (%)	8	9

の放出量に加え、付属排気筒からの放出の寄与が含まれる。この寄与割合を評価した。

3.1節の結果より付属排気筒からの推定放出量は、 ^{137}Cs について約0.15GBqである。その他の評価条件を後述の表9と同様にして評価した結果を表2に示す。付属排気筒からの放出の寄与は、約10%にとどまる結果となった。この結果は、原研が行った緊急時迅速放射能影響予測ネットワークシステムの大気拡散シミュレーションコードSPEEDIによる計算結果¹⁾とはほぼ同等であった。

3) 放出量の推定結果

モニタリング結果より付属排気筒からの放出の寄与を差し引いた量が開口部からの放出の寄与分に相当するが、2)の結果から前者の寄与が小さいため、実測値はすべて開口部からの放出によるものとして開口部からの放出量を推定した。評価結

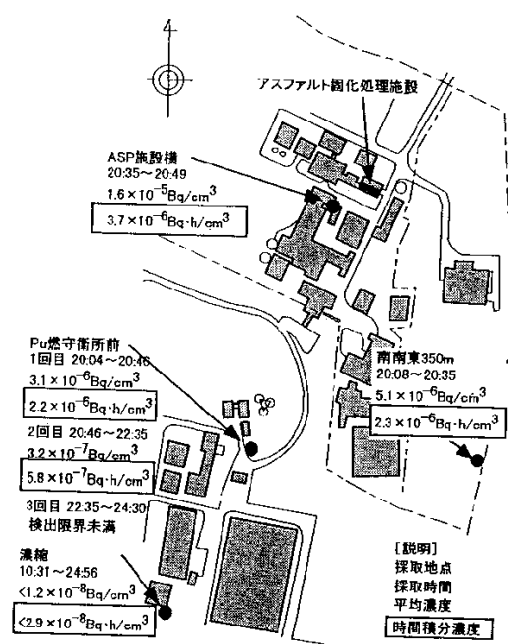


図3 ASP施設周辺の空気浮遊じん採取地点と ^{137}Cs 測定結果

表3 開口部からの放出量の推定

放出源 有効高さ(m)	¹³⁷ Cs放出量 (GBq)	
	動燃大洗	原研大洗
40	1.2	0.6
50	1.3	0.8
60	1.5	0.9

果を表3に示す。開口部からの放出量は、¹³⁷Csで約0.6～1.5GBqと推定された。

(2) 施設周辺の環境モニタリングデータからの推定

火災及び爆発後に実施した敷地内Asp施設周辺の空気浮遊じんモニタリングの結果、3地点で爆発後に有意な^{134,137}Cs、⁹⁰Sr及びα核種が検出された。ここでは、前節の大洗地区環境モニタリングデータからの推定結果と比較するため、¹³⁷Csについて放出量を推定した。3地点の位置と¹³⁷Cs測定結果を図3に示す。

放出量の推定には、爆発後の火災による放射性物質の放出がおさまるまで試料採取を行っているPu燃守衛所前の時間積分濃度の合計である $2.8 \times 10^{-6} \text{Bq} \cdot \text{h}/\text{cm}^3$ を用いた。

1) 評価モデル

南南東350m地点とPu燃守衛所前の1回目の採取期間は同じような時間帯であり、測定された¹³⁷Cs濃度（あるいは時間積分濃度）はほぼ同程度の値である。また、両者の間の距離は約350mである。これらの状況をもとに、次のような評価モデルを仮定した。

事故当時の大気は安定状態（大気安定度E、F）にあった。開口部を出た放射性物質は、初期拡散として南南東350m地点とPu燃守衛所前との間の距離を包含する程度の直径を持つ半円形状に広がった後、平行に採取地点方向に移動していったものとする。この場合、採取地点での時間積分濃度と開口部からの放出量とは次の関係になる。

開口部からの

放射性物質放出速度： $q(t)$ (Bq/h)

採取地点での濃度： $C(t) = \frac{q(t)}{\frac{1}{2}\pi r^2 \cdot u}$ (Bq/h)

放出量： $Q = \int_0^t q(t) dt$ (Bq)

時間積分濃度： $\int_0^t C(t) dt = \frac{\int_0^t q(t) dt}{\frac{1}{2}\pi r^2 \cdot u}$
(Bq·h/cm³)
 $= \frac{Q}{\frac{1}{2}\pi r^2 \cdot u}$

t：採取時間 (h)

表4 施設開口部からの放出量の推定 (¹³⁷Cs)

(1) 広がり半径の影響

計算条件：平均風速2.9m/s
時間積分濃度 2.8×10^{-6} (Bq·h/cm³)

広がり半径 (m)	推定 ¹³⁷ Cs放出量 (GBq)
200	2
250	3
300	4

(2) 風速の影響

計算条件：半円柱半径 250m
時間積分濃度 2.8×10^{-6} (Bq·h/cm³)

風速 (m/s)	推定 ¹³⁷ Cs放出量 (GBq)
1.9	2
2.9	3
3.8	4

r：半円柱の半径 (cm)

u：風速 (cm/h)

したがって、放出量は、採取地点の時間積分濃度に移動面（半円）の面積と風速を掛けることによって得られる。

2) 評価結果

前述の関係を用いて、半円柱の半径を南南東350mとPu燃守衛所前との距離から判断して最低200mとし、一方、10時31分から24時56分まで採取していた濃縮地点での測定結果は検出限界未満で、この位置が南南東350mと南400m地点の中点とASP施設を結ぶ直線に対して約300m離れていることから、これを最大値とした。風速は、地上10mの観測結果から1.9～3.8m/sの範囲とした。

計算結果を表4に示す。¹³⁷Cs放出量として約2～4GBqが得られた。本評価モデルでは、放出点から約400m離れた地点に対して、放射性物質を含んだ空気の広がりを半円柱の直径で400m以上（高さは200m以上）としており、また、放出量は広がり半径の2乗に比例するため、過大評価の傾向にあると考えられる。

3.4 放射性物質の移行挙動に基づく推定

3.3節の環境モニタリングデータからの放出量推定が施設外のデータを用いた方法であるのに対し、ここでは固化体中の放射性核種が施設外へ至る経路までの移行挙動に基づいて放出量を推定するという施設内のデータを用いる方法を試みた。開口部から放出された放射性物質量の推定は、以下の項目を評価することにより行った。

- ① 固化体中の内蔵放射エネルギー
- ② 放射性物質放出に寄与した固化体の量及び燃

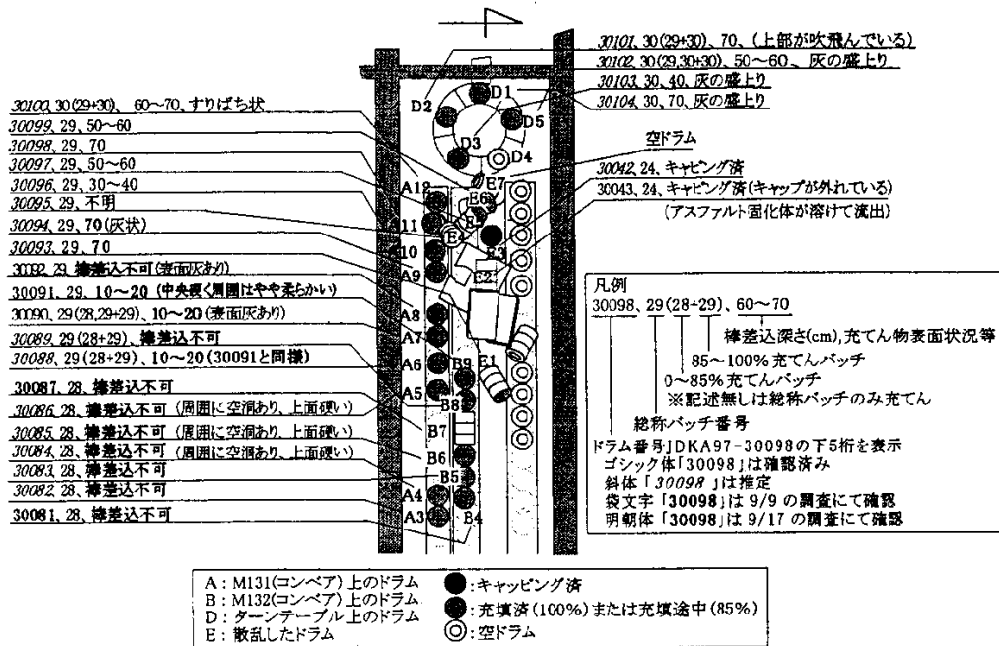


図4 充てん室内の確認状況(平成9年9月17日現在)

焼状態

- ③ 燃焼時の放射性核種の気相への移行割合
- ④ 開口部からの放出割合
- (1) 固化体の内蔵放射能

固化体の内蔵放射性物質量は、固化処理に使用した廃液の放射性核種の分析データと、廃液調整、エクストルーダ運転、ドラム充てん等の運転記録に基づき、事故当時充てん室内にあった31本のドラムごとに、基本的に(廃液の放射性核種濃度)×(エクストルーダへの廃液供給流量)×(充てん時間)の計算により求めた。充てん室内の固化体の全放射能は、全 α 約26GBq、全 β 約840GBq、 ^{137}Cs について約510GBq、ドラム1本当たりでは平均でそれぞれ約0.84、約27、約16GBqであった。

- (2) 放射性物質放出に寄与した固化体の量及び燃焼状態に関する前提

1) ドラムの燃焼状況

9月9日及び17日に科学技術庁の事故調査委員会による充てん室内の調査が行われた。このときドラムごとに固化体の燃焼量把握のために行われた、棒状治具を用いた差込み深さの確認状況を図4に示す。

この調査結果^{2), 3)}によれば、最初の火災はまずコンベア上のドラムE1が内部発熱により自然発火し、

可燃性ガスを発生していたと考えられるコンベア上の他のドラム数本に引火したと推定されている。これらのドラムの一部は水噴霧による消火作業後でも燃焼が停止せず、換気系の停止による酸素不足状態の中で不完全燃焼を継続し、可燃性物質を放出していたものと考えられている。

爆発は、最初の火災に起因する可燃性物質が充満していたところに、ターンテーブル上のドラムD2の内部発熱による自然発火により起こったものと考えられており、その後、ターンテーブル上の残りのドラムD1、D3、D5が発火したと推定されている。

各ドラム内の固化体の燃焼量については、すべて燃焼したと考えられるドラムの棒の差込み深さが約70cmであることから、70cmに対する各ドラムの棒の差込み深さの割合だけ燃焼したものとした。なお、各ドラムの棒の差込み深さとして図4に示した範囲の中央の値を採用した。

2) 燃焼状態に関する前提

燃焼したドラムの観察結果では、ターンテーブル上のドラムはD2を除き灰が盛り上がった状態で、一方、コンベア上のドラムは灰表面が比較的平らあるいは窪んだ状態であるため、燃焼の仕方は同じではなかったと考えられる。一方は激しい燃焼、

他方は燻るような穏やかな燃焼で可燃性物質を放出し、放射性核種の放出割合も異なるものと考えられるが、確定できる状況にない。ここでは次の2ケースを想定して評価を行った。

- ・ケース1：燃焼したものはすべて激しい燃焼をしたと仮定する保守的なケース
- ・ケース2：内部発熱で自然発火したとされるドラムE1、D2に加え、灰が盛り上がっているドラムD1、D3、D5はすべて激しい燃焼、ドラムE1以外のコンベア上のドラムは、火災発生から水噴霧終了までの7分間は激しい燃焼、残りの燃焼分は穏やかな燃焼と仮定する、ケース1よりは現実的と考えられるケース。

3) 燃焼速度についての前提

前記ケース2の、コンベア上のドラムの最初の7分間の燃焼量については次のように評価した。

過去の燃焼実験結果⁶⁾によればドラム1本当当たりの燃焼速度は最大3.59kg/分と報告されている。また、この実験で燃焼させた模擬固化体の塩濃度は53%であるが、今回火災を起こした29、30バッチの塩濃度は約44%と若干低い。塩濃度（硝酸塩が主成分）が低いことにより燃焼速度も遅くなることが考えられるが、ここでは3.6kg/分を用いた。ドラム1本当当たりの固化体重量は約250kgである。これより7分間の燃焼時間では約25kgが燃焼することになるため、燃焼割合は10%とした。

(3) 固化体中の放射性核種の施設外への移行挙動に関する前提

固化体から気相、気相から施設外への放射性核種の移行挙動の推定方法について述べる。最初に、放出量評価及び線量評価上の主要核種となる α 核種（^{238,239,240}Pu、²⁴¹Am）と^{134,137}Csについての移行割合を推定し、次に、他の核種の移行割合を、各種試料の α 核種あるいは¹³⁷Csとの放射能比に基づいて設定した。

1) 燃焼時の気相への移行割合に関する前提

固化体が燃焼した場合に、固化体中から気相へ移行する放射性核種の割合を核種ごとに推定した。燃焼状態については激しい燃焼と穏やかな燃焼のそれぞれについて移行割合を設定した。なお、移行割合は次式で定義されるものである。

$$\text{移行割合} = \frac{\text{気相へ放出される放射性核種量}}{\text{燃焼した固化体中の放射性核種量}}$$

- a) 激しい燃焼状態での移行割合
- i) α 核種の移行割合

硝酸ナトリウム（NaNO₃）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性物質の移行

割合を測定したものとしては Kluger らの実験⁹⁾が唯一のものである。これによれば、NaNO₃/ブローンアスファルト比40/60の固化体を入れたドラムを用いて燃焼させた場合の Eu（Pu 代替元素として使用）の放出割合は、固化体中の含有量に対して $8 \pm 1\%$ であった。

今回火災を起こした固化体の塩濃度（硝酸塩が主成分）は約44%で、Kluger らが試験に用いたものと同程度の組成であること、両者ともブローンアスファルトを使用していること、Kluger らの試験での燃焼継続時間は約2時間で、今回ほとんど燃えつくしているターンテーブル上のドラムの火災の継続時間も2時間程度であることから、両者の燃焼条件は類似しており、Kluger らのデータを今回の燃焼時の移行割合に適用できると考えられる。したがって、 α 核種については燃焼により10%が固化体から放出されるものとした。

ii) ^{137,134}Cs

Cs の移行については、EUROBITUM のアスファルト固化処理プラントの火災事故報告⁶⁾の中で、固化体の¹³⁷Cs/ α 放射能比が約20であるのに対し、換気フィルタから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。

揮発性を有するCsに対し、 α 核種は不揮発性である。Csは火災中ではガスで、火炎を出てから微小粒子となって移動していくのに対し、 α 核種は火災中で煤煙に付着し大粒子となって移動していく。移動過程で重力沈降と相互の凝集により煤煙中の¹³⁷Cs/ α 放射能比は移動距離（時間）とともに大きくなっていくと推定されている⁷⁾。

充てん室内のドラム内表面から採取した灰状物質、施設内のいくつかの部屋から採取した煤、排気モニタさらに環境モニタリング試料の¹³⁷Cs/ α 放射能比を図5に示す。

爆発により充てん室(R152)天井のリムーバブルルーフが落ちて、火災の煤煙が直接入り込んだと推定される保守作業室(A234)、その隣の保守エアロック室(A235)及び充てん室に隣接したカスク保管室(A121)での¹³⁷Cs/ α 放射能比はそれぞれ約100、93、110、また、3階の部屋の煤の放射能比は約210、900、さらに施設外の環境モニタリングや排気モニタの試料では一部を除いて1,000以上となっており、充てん室から離れるに従い¹³⁷Cs/ α 放射能比が大きくなっていく傾向が見られる。なお、ASP 施設近辺の表土と南南東350m地点の空気浮遊じんの結果が他のモニタリングデータに比べて低いのは、爆発時に施設内から放出された煤の影響を受けたものと考えられる。

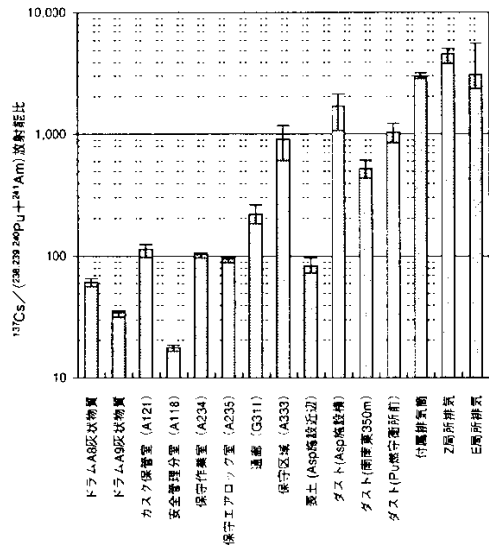


図5 各種採取試料の $^{137}\text{Cs}/\alpha$ 放射能比
(誤差範囲は 3σ の計数誤差を示す)

充てん室に近接したA234、A235及びA121の放射能比は固化体の放射能比(約20)の約5倍である。したがって、Csの移行割合を α 核種に対して5倍の50%と推定した。

b) 穏やかな燃焼状態での移行割合

穏やかな燃焼状態に相当する放射性核種の移行割合についての報告はないが、関連した報告として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⁷⁾がある。実験では、 NaBO_2 /ストレートアスファルト比約40/60の固化体を入れたドラムを燃焼させてCs、Sr、Co、Euの放出割合を測定している。また、固化体の燃焼時間は約12時間とゆっくりとした燃焼であった。

この実験は硝酸塩を含まないアスファルト固化体を用いた燃焼実験であり、今回の事故の固化体とは条件が異なるため、これを適用することに過小評価の恐れはあるが、ここでは参考評価として、報告された移行割合の範囲の中で最大の値を用いた評価を行った。すなわち、放出割合を α 核種について0.5%、Csについて2%と設定した。

2) 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性核種は、充てん室を出て、複数の部屋や通路あるいは換気系を通して開口部に達し、そこから外部へ放出された。Flewら⁸⁾は、事故時の放出量評価において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を0.1としている。これを ^{137}Cs の開口部からの放出割合に適用した。

爆発後にASP施設横、南南東350m地点及びPu燃守衛所前で採取された空気浮遊じんの $^{137}\text{Cs}/\alpha$ 放射能比はそれぞれ約1,600、510、1,000であった。これらは、前述の1)a)で ^{137}Cs の移行割合の設定に使用した施設内の煤の $^{137}\text{Cs}/\alpha$ 放射能比(約100)に対して5~16倍であるため、 α 核種の開口部からの放出割合を、 ^{137}Cs の放出割合の1/5~1/16である0.6~2%の範囲と推定した。

3) その他核種の移行割合

a) ^{106}Ru 、 ^{125}Sb 、 ^{144}Ce 、 ^{60}Co

これらの核種の移行割合については、固化体中の ^{137}Cs に対する放射能比($(A_i/A_{\alpha})_{\text{固化体}}$)と、1)a)で述べたCsの移行割合を推定するために用いた煤中の ^{137}Cs に対する放射能比($(A_i/A_{\alpha})_{\alpha}$)の比に比例すると仮定し、次式で評価した。

$$\text{核種 } i \text{ の移行割合} = ^{137}\text{Cs} \text{ の移行割合} \times \frac{(A_i/A_{\alpha})_{\alpha}}{(A_i/A_{\alpha})_{\text{固化体}}}$$

なお、 ^{144}Ce 、 ^{60}Co の開口部からの放出割合については、これらの核種が揮発性をもたないことから α 核種の移行割合と同じとした。

b) ^{90}Sr

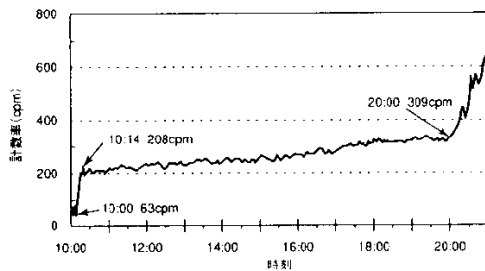
Srも揮発性をもたないことから、燃焼時の移行割合は α 核種の移行割合と同じものを用いた。

一方、ASP施設周辺の空気浮遊じんの核種分析で ^{90}Sr が測定されており、開口部からの放出割合についてはこのデータを利用した。図3で示したASP施設横、南南東350m、Pu燃守衛所前の3地点の空気浮遊じんの $^{90}\text{Sr}/\alpha$ 放射能比は、それぞれ 3.8 ± 1.3 、 3.7 ± 0.4 、 3.4 ± 0.4 とほぼ一定の値(約4)が得られた。固化体の $^{90}\text{Sr}/\alpha$ 放射能比は約10であるので、 α 核種を基準にして ^{90}Sr は施設周辺の空气中へ約0.4倍の量が移行したことになる。したがって、 ^{90}Sr の開口部からの放出割合は α 核種の設定に対してその0.4倍とした。

c) ^{129}I

排気設備からの放出量(表1)によれば、付属排気筒及びZ施設の局所排気からの放出量の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比はそれぞれ 2.4×10^{-2} 、 2.0×10^{-2} とほぼ等しい。一方、固化体中の放射能比は 2.4×10^{-3} であるため、排気設備から排出される時点で $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比が約10倍になっており、 ^{129}I が ^{137}Cs より移行しやすいことを示している。

先に ^{137}Cs の移行割合は50%と推定しており、放出量評価上、激しい燃焼状態では燃焼重量分の固

図6 第1付属排気筒の¹²⁹Iモニタ指示値の変化

化体に含まれる¹²⁹Iの全量(100%)が気相へ放出されるものと仮定した。

一方、穏やかな燃焼状態での¹²⁹Iの気相への移行割合は、付属排気筒の¹²⁹Iモニタのデータを利用して設定した。図6に付属排気筒の¹²⁹Iモニタの指示値を示す。

ケース2で消火作業前の激しい燃焼状態とその後の穏やかな燃焼状態を仮定しているときの、固化体から放出された¹²⁹Iが付属排気筒から放出される割合は一定と仮定すると、火災時及び消火作業後の固化体からの¹²⁹I放出量と、両期間の¹²⁹Iモニタの指示値増分とは次の関係になる。

$$\frac{(208-63)F_1}{R_1} = \frac{(309-208)F_2}{I-I}$$

F_1 : 火災時の付属排気筒の排风量 (=12万 m^3/h)

F_2 : 消火作業後の付属排気筒の排风量 (=50800 m^3/h)

R_1 : 火災時(激しい燃焼状態)の固化体からの¹²⁹I放出量
(=7.6 $\times 10^{-7}$ GBq、固化体の燃焼分の含有量の100%放出を仮定)

$I-I$: 消火作業後(穏やかな燃焼状態)の固化体からの¹²⁹I放出量

f : 穏やかな燃焼状態での¹²⁹Iの固化体から気相への移行割合

I : 穏やかな燃焼状態で¹²⁹I放出に寄与した固化体中の¹²⁹I含有量 (=2.0 $\times 10^{-1}$ GBq、全燃焼量から激しく燃焼した分を差し引いた固化体量の含有量)

これより、穏やかな燃焼状態での¹²⁹Iの固化体から気相への移行割合は10%と計算される。また、激しい燃焼状態での気相への移行割合を¹³⁷Csに比べて2倍の設定としたため、固化体から気相へ移行した¹²⁹Iの開口部からの放出割合も¹³⁷Csの2倍の20%とした。

d) ¹⁴C

固化体の燃焼により¹⁴Cがどの程度放出されるかについては不明である。放出量評価上、激しい燃焼状態に対しては燃焼重量分の固化体に含まれ

る¹⁴Cの全量が気相へ放出されるものと仮定した。また、穏やかな燃焼状態での移行割合は¹²⁹Iと同じ10%を仮定した。開口部への移行割合については固化体からガス形態で放出されることを考慮し100%を仮定した。

4) 移行割合のまとめ

1)～3)で推定した各核種の移行割合の設定を表5にまとめた。各核種移行量の相対関係は実測データに基づいた設定となっているが、設定の起点となる移行割合の絶対値の設定は、文献値(Klugerら⁵⁾及びFlewら⁶⁾に基づいた設定となっている。

(4) 放出量の推定

1)～(3)で前提とした固化体中の各核種の放射能、各固化体の燃焼割合、固化体中の放射性核種の施設外への移行挙動に基づいて算出した各核種の開口部からの放出量を、燃焼状態について想定したケース1、2(3.4(2)の2)参照)それぞれについて表6に示す。¹³⁷Csについては、ケース1、2でそれぞれ約8、約4GBqとなった。他の核種も含めて、両ケースで2倍程度の違いである。

表5 各核種の移行挙動の推定

核種	固化体から気相への移行割合		開口部からの放出割合
	激しい燃焼状態	穏やかな燃焼状態	
¹⁴ C	100%	10%	100%
¹²⁹ I	100%	10%	20%
⁹⁰ Sr	10%	0.5%	0.3～0.8%
¹⁰⁶ Ru	10～30%	1%	2～5%
¹²⁵ Sb	10～20%	0.8%	2～4%
¹⁴⁴ Ce	5～10%	0.4%	0.6～2%
⁶⁰ Co	5～30%	1%	
¹³⁴ Cs	50%	2%	10%
¹³⁷ Cs			
α 核種	10%	0.5%	0.6～2%

表6 開口部からの放出量

(単位: GBq)

核種	ケース1	ケース2
¹⁴ C	5.5E+0	2.8E+0
⁶⁰ Co	1.8E-4～3.6E-3	1.1E-4～1.7E-3
⁹⁰ Sr	2.4E-2～6.3E-2	1.1E-2～3.1E-2
¹⁰⁶ Ru	4.1E-2～3.1E-1	2.1E-2～1.5E-1
¹²⁹ I	7.5E-2	3.9E-2
¹²⁵ Sb	4.3E-3～1.7E-2	2.1E-3～8.2E-3
¹⁴⁴ Ce	6.2E-4～4.1E-3	3.1E-4～2.0E-3
¹³⁴ Cs	7.9E-1	3.8E-1
¹³⁷ Cs	8.0E+0	3.9E+0
Pu(α)	1.0E-3～3.4E-3	5.0E-4～1.7E-3
²⁴¹ Am	4.0E-3～1.3E-2	2.0E-3～6.5E-3

表7 各種推定方法による¹³⁷Cs放出量推定結果

評価方法	推定 ¹³⁷ Cs 放出量 (GBq)
放射性核種移行挙動に基づく推定	4～8
大気環境モニタリングデータからの推定	1～2
敷地内環境モニタリングデータからの推定	2～4
(参考) SPEEDIコードによる推定 ¹⁾	1～2(ファクタ10)

3.5 開口部からの放出量推定結果

3.3節で行った環境モニタリングデータに基づく¹³⁷Cs放出量推定及び3.4節で行った放射性核種の移行割合に基づいた推定結果を表7にまとめた。表には環境モニタリングデータとSPEEDIを用いた原研の推定結果¹⁾も記載した。

放射性核種の移行挙動に基づく推定が複数の関係因子を推定した評価であるのに対し、環境モニタリングデータからの推定は、大気拡散のシミュレーション計算並びにその計算条件設定に誤差要因を含んではいるが、事故当時の気象条件が安定しており比較的シミュレートしやすい状況であったことと、放出量が直接反映されている環境モニタリングデータそのものを利用している点で、前者の推定よりは相対的に精度よい推定となっていると考えられる。したがって、¹³⁷Cs放出量は、環境モニタリングデータに基づいた推定により、1～4 GBqと評価した。

他の核種については、各核種の放出量の相対割合を反映した評価をしている3.4節の移行挙動に基づく放出量推定結果を利用して次のように評価した。すなわち、表6より各核種の¹³⁷Csに対する放射能比を求め、これを上記の¹³⁷Cs放出量評価値

に乗じることによって求めた。なお、放射能比は表6で大きい放出量を与えるケース1の結果の上限側の値を用いて求めた。

各核種の放出量の評価結果を表8に示す。また、¹⁴Cについては他の核種の推定方法と異なり移行割合設定に利用できる実測データがなく独立した仮定を設けて評価したものであるため、ケース1、2の結果をそのまま別枠に記載した。

4. 公衆被ばく線量当量の推定

事故の影響を把握するため、事故に伴って放出された放射性物質により一般公衆の受ける被ばく線量当量を推定した。

4.1 評価条件

公衆の被ばく線量を推定するための評価条件を表9にまとめた。被ばく経路については、一過性

表9 公衆被ばく線量当量推定のための評価条件

	付属 排気筒	開口部	E, Z 局所排気
排 出 量	表1参照	表8参照	表1参照
放出パターン	2時間放出、図2の分布		1時間の均等放出
放 出 高 さ	海拔96m	地上40m	地上放出
初期拡散幅	— 建家断面積1,000m ²		
吹き上げ高さ	考慮しない		
気 象 デ ィ タ	地上70m(海拔100m)及び10mのデータ、べき乗則による風速の補正及び風向・風速の東海、大気データを内挿		地上10m
大気拡散計算モデル	正規型パフ拡散モデル		

表10 公衆の預託実効線量当量評価結果

(単位: mSv)

放 出 経 路	窓、シャッター等 の開口部	付属排気筒		E施設 局 所 排気口	Z施設 局 所 排気口
		3/5～ 3/12	3/13～ 4/1		
¹⁴ C	2.6E-5～5.1E-5	4.0E-6	N. D.	—	—
⁶⁰ Co	1.3E-8～1.3E-6	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
⁹⁰ Sr	1.6E-5～1.6E-4	5.1E-8	1.6E-11	N. D.	9.1E-8
¹⁰⁶ Ru	9.1E-6～3.7E-4	N. D.	N. D.	N. D.	7.9E-8
¹²⁵ Sb	2.0E-8～3.0E-7	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
¹²⁵ I	3.4E-6～1.5E-5	6.4E-8	N. D.	N. D.	8.7E-8
¹³⁴ Cs	2.0E-5～7.9E-5	1.3E-7	2.9E-11	1.5E-9	2.0E-7
¹³⁷ Cs	1.3E-4～5.3E-4	9.2E-7	2.0E-10	1.2E-8	1.5E-6
¹⁴⁴ Ce	1.2E-7～2.9E-6	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
²⁴¹ Pu	1.1E-4～1.8E-3	1.6E-6	—	1.4E-8	1.5E-6
Pu (α)	1.8E-4～3.7E-3 ^{*2}	3.1E-6	N. D.	2.7E-8	3.0E-6
²⁴¹ Am	9.3E-4～1.3E-2	1.1E-6	N. D.	1.4E-8	1.6E-6
U (α)	— ^{*1}	4.8E-8	N. D.	N. D.	N. D.
合計	1.4E-3～2.0E-2	1.1E-5	2.5E-10	6.8E-8	8.0E-6

N. D.: 検出限界未満

*1: 全α放射能から²⁴¹Am放射能を差し引いたものをPu(α)として評価しており、U(α)の寄与はPu(α)に含まれる。

表8 開口部放出量の推定値

	核種	放出量 (GBq)
β核種	⁶⁰ Co	0.00002～0.002
	⁹⁰ Sr	0.003～0.03
	¹⁰⁶ Ru	0.005～0.2
	¹²⁵ I	0.009～0.04
	¹²⁵ Sb	0.0005～0.008
	¹³⁴ Cs	0.1～0.4
	¹³⁷ Cs	1～4
	¹⁴⁴ Ce	0.00008～0.002
α核種	²⁴¹ Pu ^{*2}	0.003～0.05
	Pu(α) ^{*1}	0.0001～0.002
	²⁴¹ Am	0.0005～0.007
	¹⁴ C	3～6

*1: 全α放射能から²⁴¹Am放射能を差し引いたものをPu(α)としている。

*2: 施設内の煤、施設外の空気浮遊じんの分析結果に基づき、Pu(α)量を26倍にすることで算出

の放出であることから主要な経路と考えられる吸入摂取のみを評価した。呼吸率は、ICRP Pub. 23¹⁰⁾に示される標準人の活動時の呼吸率 $1.2\text{ m}^3/\text{h}$ を用いた。摂取量から実効線量当量への換算係数は、「環境放射線モニタリングに関する指針」（平成元年3月30日原子力安全委員会決定）から引用した。なお、 ^{125}Sb 及び ^{241}Am については、法令に定められた年摂取限度から算出した。

4.2 評価結果

各放出経路からの敷地境界外における呼吸摂取による預託実効線量当量の評価結果を表10に示す。預託実効線量当量は約 $0.001\sim 0.02\text{ mSv}$ と推定され、そのほとんどは開口部からの放出に起因するものとなった。

5. おわりに

アスファルト固化処理施設の火災爆発事故による放射性物質の放出量並びにそれにより公衆の受ける被ばく線量を評価した。

環境モニタリングデータや施設内から採取した煤等の核種分析データに基づき、放射性物質の放出量は、 ^{137}Cs を主とする β 線放出核種（ ^{14}C を除く）で約 $1\sim 4\text{ GBq}$ 、 $^{238,239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am の α 線放出核種で約 $6\times 10^{-4}\sim 9\times 10^{-3}\text{ GBq}$ と評価した。これらの放出により公衆の受ける預託実効線量当量は最大で約 $1\times 10^{-3}\sim 2\times 10^{-2}\text{ mSv}$ と評価した。この値は法令に定められた公衆の年間の

線量限度である 1 mSv の約1,000分の1から50分の1に相当する。

参考文献

- 1) 科学技術庁：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，“資料7-13 アスファルト固化処理施設における火災・爆発事故により環境に放出された放射性セシウムのSPEEDIコードによる推定結果”，平成9年4月24日、及び、茅野政道、永井晴康，“動燃アスファルト固化処理施設事故による ^{137}Cs の環境放出量の推定”，日本原子力学会誌，Vol.39，No.8（1997）。
- 2) 同上，“資料23-2 アスファルト固化処理施設のアスファルト充填室の調査結果について（その2）”，平成9年9月18日。
- 3) 同上，“資料29-8 火災爆発原因についての検討”，平成9年11月27日。
- 4) “アスファルト固化体の燃焼、消火実験報告書”，PNC TJ8710-97-001（1997）。
- 5) 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*, (1982).
- 6) M.Demonie, et al., “The Fire Incident In the EUROBITUM Plant on December 1, 1981”, *ETR-314*, (1990).
- 7) 科学技術庁：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，“資料25-2 Cs/α 放射能比の移行距離による変化について（その2）”，平成9年10月2日。
- 8) N.Watabe, et al., “Combustible Properties of LLW Bitumen Packages in a Fire Test”, *PATRAM'92*, (1992).
- 9) 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).
- 10) “Report of the Task Group on Reference Man”, *ICRP Publication 23*, (1975).