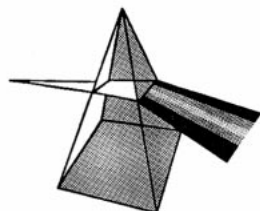


【技術報告】



アスファルト固化処理施設の火災爆発事故における火災原因の検討(2)

三浦 昭彦 佐藤 嘉彦* 鈴木 弘
 小山 智造 横 彰

東海事業所 再処理施設安全対策班
 *東海事業所 再処理センター 技術部

資料番号：8-1

Study on the Cause of the Fire and Explosion Incident at
 Bituminization Demonstration Facility of PNC Tokai Works

Akihiko MIURA Yoshihiko SATO* Hiroshi SUZUKI
 Tomozo KOYAMA Akira MAKI

TRP Safety Evaluation and Analysis Team Tokai Works

*Technology Co-ordination Division, Tokai Reprocessing Center, Tokai Works

1997年3月11日、動燃事業団（現、サイクル機構）東海事業所アスファルト固化処理施設において火災爆発事故が発生した。サイクル機構は、事故発生直後より原因究明活動を実施し、科学技術庁の事故調査委員会やこれに引き続き設置されたフォローアップチームにこれらの調査・検討結果を報告するとともに、1999年3月に調査結果を取りまとめ報告した。この中で、火災事故の原因はエクストルーダ内部での塩の濃縮と堆積によりアスファルト混合物の流下温度が上昇し、ドラム内での蓄熱の結果、硝酸塩／亜硝酸塩とアスファルトの暴走反応に至ったと結論した。本報告は以上の結論に至る各種調査・試験の結果と、事故に至る事象の進展について説明する。

On March 11, 1997, a fire and explosion incident occurred in Bituminization Demonstration Facility (BDF) at Tokai Reprocessing Plant (TRP). The cause of the incident was thoroughly investigated and after thirty meetings of "Investigation Committee of Science & Technology Agency (STA)", STA reported possible cause of this incident. Continually detailed investigation was discussed at "Follow-up Committee of STA". Based on the results of five meetings, JNC concluded that the main cause of fire was frictional heating and viscous heating in the extruder, which provided an unusually high temperature in the bituminized product at filling, since there was no chemical analysis data suggesting the generation of chemical heat. It is considered that these excessive heat generations were due to the decreased feed rate of liquid waste to the extruder. The Follow-up Committee almost agreed to this conclusion.

This paper describes general information concerning the incident and details of the cause of the incident.

キーワード

アスファルト固化処理施設、火災爆発事故、アスファルト固化体、混合物、エクストルーダ、塩濃縮、堆積、火災原因、蓄熱発火、事象進展

Bituminization Demonstration Facility, Fire and Explosion Incident, Bituminized Product, Extruder, Frictional Heat, Viscous Heat, Feed Rate

1. はじめに

1997年（平成9年）3月11日に、動力炉・核燃料開発事業団（現、サイクル機構）東海事業所アスファルト固化処理施設において火災爆発事故が発生した。科学技術庁は「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）を発足させ、30回にわたり会合を行い1997年12月に報告書を取りまとめた。この後、科学技術庁原子力安全局はフ

ォローアップチームを設置し、事故調査委員会において指摘された事故原因及び教訓・提言等の具体的な対応を図るため、検討を継続してきた。5回にわたるフォローアップチーム全体会合の後、1999年3月30日にサイクル機構より、事故調査委員会以来の調査結果を取りまとめ報告した。さらに2000年3月には科学技術庁原子力安全技術顧問会議に最新の検討状況を報告してきた。

前報では、平成10年9月までに得られた調査結

果及び主因と考えられていたブローイング反応による化学的発熱の可能性について説明した。さらに、本報では事故発生以来調査してきた結果、事故調査委員会で挙げられた事故要因をより詳細に調査した結果について説明する¹⁾。

2. 施設の概要

アスファルト固化処理施設は、再処理施設の分離精製工場等から発生した低レベルの放射性廃液をアスファルト固化体として安定な形態に減容固化する施設である。この施設の1階にはエクストルーダと呼ばれる脱水混合機が設置されているエクストルーダ室、アスファルトと放射性廃液の混合物がドラムに充てんされるアスファルト充てん室（以下、充てん室）等が、2階には反応槽及び供給槽が設置されている給液調整セル等が配置されている^{1), 2)}。

低レベル放射性廃液（以下、廃液）は、エクストルーダにてアスファルトと加熱混練され、ターンテーブル上の空ドラムに充てんされる。アスファルトと廃液の加熱混練に使用するエクストルーダは図1のようにバレルとスクリュシャフトによって構成される。バレルはゾーンと呼ばれる8区画に分割されており、ゾーン1には原料アスファルトが、ゾーン2には廃液が供給され、ゾーン3からゾーン7にかけて原料アスファルトと廃液を加熱混練することにより廃液中の水分を蒸発させる。蒸発した水分は、ゾーン4～6の上部に設けられている凝縮器（以下、ドーム）で凝縮される。スクリュシャフトはバレル内に4本設置されており、下流側へ送り出すフライト部と攪拌・混練機能を有するニーディングディスク部により構成される。また、本施設はバッチ式運転を実施しており、供給槽からエクストルーダへの供給ラインを

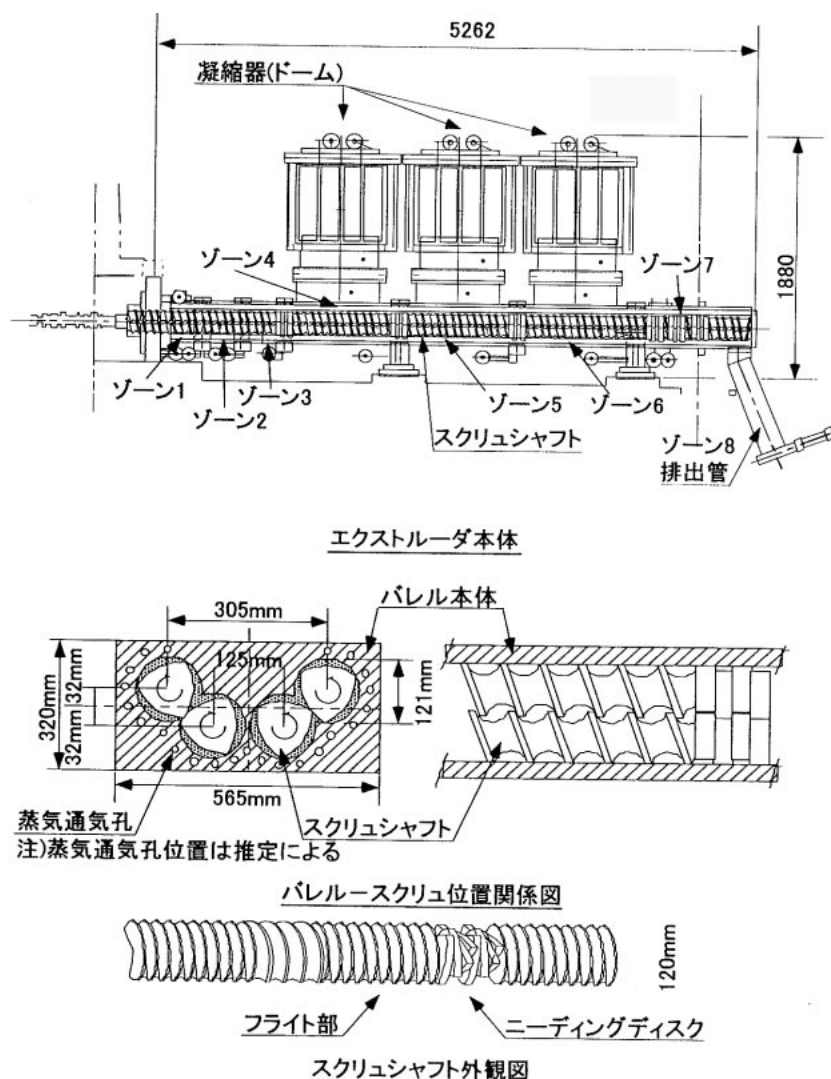


図1 エクストルーダ概観図

2 系統保有している。このため、1、3、5、…バッチのような奇数番目の運転（以下、奇数バッチ）と2、4、6、…バッチのような偶数番目の運転（以下、偶数バッチ）では各々の供給ラインを交互に使用している。

このアスファルト固化処理施設は、1982年（昭和57年）3月に竣工、同年10月に試験運転を開始、1985年（昭和60年）5月10日付で使用前検査に合格し、開発運転を開始した。これまでの処理実績は、処理した廃液量約7,400m³、作製したアスファルト固化体（以下、固化体）約30,000本である。

3. 事故発生の経緯

1997年（平成9年）3月11日の97-M46-1キャンペーン第30バッチ（以下、第を省略）運転中に、アスファルト固化処理施設アスファルト充てん室にて火災が発生した。その後の経緯は以下のとおりである¹⁾。

・10時6分頃

充てん室内の固化体に火災が発生

・10時12分頃

約1分間の水噴霧による消火作業を実施

・10時23分頃

汚染拡大を防止するため、セル換気系及び建家換気系を全停止

・20時4分頃

爆発が発生、破損した施設の窓、シャッター等から、2～3時間にわたって炎や煙が噴出

4. 事故発生直前の運転記録及び原因究明上重要な知見について

4.1 施設の運転概要

アスファルト固化処理の対象となる廃液は、以下のような低放射性濃縮廃液である。

- ① 再処理の各施設から発生する低レベル放射性廃液や廃溶媒などを受け入れ、処理を行う廃棄物処理場（AAF）の低放射性廃液第1蒸発缶で処理した濃縮液
- ② AAFから低レベル放射性廃液を受け入れ、処理等を行う第三低放射性廃液蒸発処理施設の低放射性廃液第3蒸発缶で処理した濃縮液
- ③ 溶媒を分離したTBPを更に処理した後のリン酸を蒸発させた濃縮液

これらの低放射性濃縮廃液は図2のように、各施設から廃液受入貯槽（V20、21）へ送られる。反応槽では、約3m³の廃液を受け入れ、水素イオン濃度の調整や揮発性FPの沈澱処理など必要な給液調整が行われた後、供給槽（V32、33）を

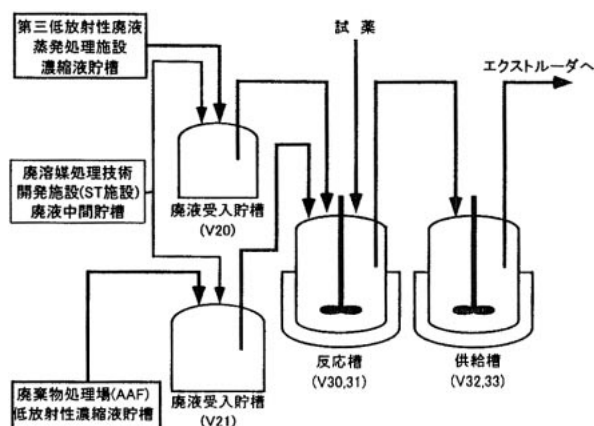


図2 廃液調整工程概略図

経てエクストルーダへ送られ、エクストルーダで原料アスファルトと共に脱水混合される。アスファルト固化処理施設ではこれらの2基ずつある反応槽、供給槽を交互に使うバッチ式の運転を行っていた。

なお、事故直前の運転において処理していた廃液は、AAF及び廃溶媒処理技術開発施設にて溶媒を分離したTBPを更に処理した後のリン酸を蒸発させた濃縮液であった²⁾。

4.2 事故発生直前の運転状態

事故が発生した平成9年のキャンペーンの運転では、作製する固化体の減容率を検討するため、これまでの運転条件に対し廃液供給流量を低下していた。同キャンペーン1バッチから10バッチまでは通常の廃液供給流量である200ℓ/hourで運転を行い、11バッチから25バッチまでは流量を10%低下させ180ℓ/hourで運転を行っていた。さらに、26バッチから事故が発生した30バッチでは流量を20%低下させ、160ℓ/hourで運転していた³⁾。

また、通常では廃液受入貯槽から反応槽への液移送は、攪拌した数時間後に行っていたが、29バッチの廃液は攪拌後すぐに移送していた⁴⁾。

エクストルーダゾーン7温度計及びトルクを示す運転記録を調査した結果、27バッチ後半より温度が上昇し、断続的に冷却水を投入していた。同時にトルクの上昇が確認された²⁾。

運転員の証言によれば、28バッチ以降エクストルーダからドラムに充てんする固化体（以下、ドラムに充てんする前後のアスファルトと廃液の混合物を「混合物」という）に通常とは異なる状態が観察された。運転員の目視により確認された事項は以下のとおりである⁴⁾。

- ① 充てん中の混合物が通常時より柔らかくなった。
- ② 充てん中の混合物から白いもやが立ち上がっていた。
- ③ 充てん中の混合物で発泡が多くなった。
- ④ 冷えた固化体表面に硬い膜が発生していた。

4.3 充てん室内等の被害状況調査

事故後、充てん室内の固化体の燃焼状態を確認した結果、コンベア及びターンテーブル上に残された29バッチの大部分及び30バッチの固化体すべてが燃焼していた。特にターンテーブル上のすべての固化体が完全に燃焼していた⁵⁾。

5. 火災原因の検討

前報²⁾では、混合物中の硝酸／亜硝酸塩とアスファルトとの酸化還元反応及びエクストルーダ内の摩擦による発熱要因について検討してきた。本報では、これらの検討の後、より詳細に実施した種々の化学的要因の検討とエクストルーダ内での物理的発熱要因の検討の内容について説明する。さらに、これらの検討により推定された固化体の燃焼に至る限界温度や事象の進展について説明する。

5.1 化学的要因の検討

(1) 推定しうる化学的要因の検討

事故発生直後から、その原因を以下のように推定し、これに応じて運転記録の分析、運転員からの聞き取り調査、化学分析及び熱分析を実施してきた。はじめに比較的単純な原因として、以下の可能性を検討した。

- ① 廃液等への異物の混入
- ② 試薬の調整失敗
- ③ エクストルーダの温度制御の失敗
- ④ ターンテーブル／コンベア上での外部からのドラムの加熱

しかし、分析・調査を進めた結果、上記のような単純な原因だけではなく、次のような様々な原因の可能性も検討する必要があることが判明した。

⑤ 析出塩の微細化

廃液供給流量を低下させたため、通常より水分の蒸発が完了する時間が短くなり、析出した塩が長時間加熱混練され微細化する可能性があった。

⑥ 沈殿物による触媒効果

29バッチでの廃液は廃液受入貯槽（V21）における攪拌の直後に送液されたため、V21内の

沈殿物がエクストルーダやドラムへ送られ、触媒として作用した可能性があった。

⑦ 空気による酸化反応

廃液供給流量を低下し、蒸発完了が早くなった結果、ドーム内にはほとんど蒸気が存在しなかったと考えられる。このため空気中の酸素が容易にアスファルトに取り込まれ、発熱反応を引き起こす可能性があった⁶⁾。

(2) 化学的発熱に関する調査及び分析

以上の推定要因を確認するために、各々に対する調査及び化学分析を実施した。実施された調査及び分析の結果は以下のとおりである。

① 廃液等への異物の混入

廃液受入貯槽（V21）、反応槽（V30、31）及び供給槽（V32、33）中の廃液の化学分析を実施した。塩、陽イオン及びTBP、DBP等の有機物の濃度は通常時と変わらなかった。また、27～30バッチで充てんされたアスファルト固化体についても塩濃度、陽イオン分析等を実施し、それらの濃度は通常時の範囲内であり、塩の局在化も見られなかった。それに加えて、調整試薬及び原料アスファルトについてもイオン濃度等の分析を行ったが、異常な混入物は見られなかった^{5), 7)}。

② 試薬の調整失敗

調整試薬をサンプリングし、分析を行ったが、濃度は通常時と同等であった。

③ エクストルーダの温度制御の失敗

エクストルーダの温度記録から、過度の温度上昇は見られなかったが、27バッチにエクストルーダゾーン7で190℃以上の温度が確認された。しかし、この際にはすぐに冷却操作が行われ、28バッチ中頃まで190℃以下に制御していた。その後、ゾーン7の温度は通常時の温度（180℃）に戻り、冷却操作を停止した⁸⁾。

④ ターンテーブル／コンベア上でのドラムの加熱

充てん室内には固化体を外部から加熱するような装置・機器等はなく、固化体が外部から加熱される要因はなかった。

⑤ 析出塩の微細化

レーザ回折式粒度分布測定装置を用いて、アスファルト固化体中の塩の粒度分布を測定した。廃液供給流量を変化させた10、25、29バッチ（それぞれ200ℓ/hour、180ℓ/hour、160ℓ/hourに相当）で充てんされたアスファルト固化体中の塩の平均粒子径は、それぞれ32、21、27μmであり、廃液供給速度に依存しないことが確認された⁵⁾。したがって、廃液供給速度の低下に

よって塩粒子の微細化は生じなかったと考えられる。

⑥ 沈殿物による触媒効果⁵⁾

アスファルト固化体及びV21中の廃液における金属イオン及び陰イオン濃度を測定したが、通常時の濃度と変わらず、触媒になり得る成分は認められなかった。さらに、沈殿物の触媒としての効果を確認するために、V21から採取した沈殿物を過剰に添加した混合物を調製し、加速速度熱量計（ARC）を用いて熱分析を行った。図3に示すように、過剰に沈殿物を添加した混合物の発熱開始温度などの熱的挙動は、これを含まない混合物と同等であった。以上から、沈殿物による触媒効果は確認できなかった。

⑦ 空気による酸化反応

事故時の発熱反応で生成した官能基を確認するために、アスファルト固化体の赤外吸光（IR）分析を行った。空気雰囲気中及び窒素雰囲気中で加熱した模擬固化体のIRスペクトルと充てん室内に残された実固化体のIRスペクトルを比較すると、窒素雰囲気中で模擬固化体を加熱したときの結果と同等であり、事故時の酸化は空気中の酸素によるものではないことが示された^{5), 9)}。

以上①～⑦の結果から、事故発生時の固化体の反応性が通常より大きいとは認められなかった。よって、事故時の固化体の化学的性質は通常時とほぼ変わらなかったと考えられる。

(3) 充てん時及び充てん後のアスファルト固化体の温度の調査

運転員の証言から、28バッチ以降充てんされた混合物は、流動性が良くなり、多くの白いもやが見られたことが分かっている。これらの現象は、流下観察試験の結果からドラム充てん時に混合物の温度が通常より高かったことを示している¹⁰⁾。

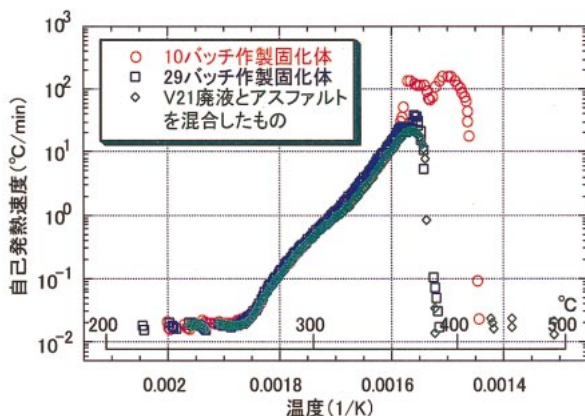


図3 充てん室内固化体のARC測定結果

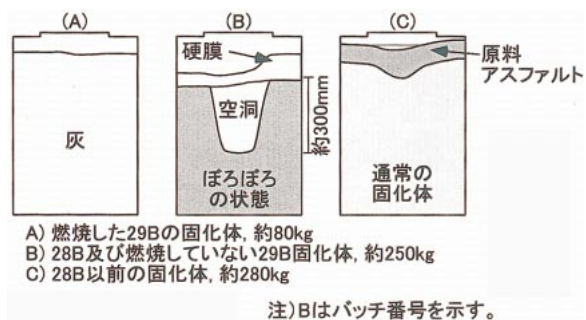


図4 充てん室内固化体の観察結果

それに加えて、ドラム内の固化体を調査したところ、28バッチ以降に充てんされたほとんどの固化体で固化体の脆化、中央上部での空洞の生成、表面における硬質部の生成といった異常が確認された（図4）。模擬固化体を230℃以上に長時間保持したところ、同様の状態になることが確認された。したがって、28バッチ以降の燃焼しなかった固化体も通常より高い温度で充てんされたと考えられる^{5), 11)}。

以上のことから、エクストルーダ内で温度が上昇し、ドラムへ充てんされる時に温度が十分に高かったと考えることが妥当である。

5.2 物理的要因の検討

(1) 小型エクストルーダを用いた物理的発熱現象確認試験

充てんした混合物の反応性に特異な点が見られず、事故発生直前及び発生時には混合物温度が通常時より高かったと考えられるため、エクストルーダ内での発熱要因を検討した¹²⁾。エクストルーダ内では混合物が滞留する時間が非常に短いため、エクストルーダ内で生じる発熱現象は、十分に滞留時間を要する化学的発熱よりも、混合物の粘度に起因した粘性発熱であると考えられる。粘性発熱現象は、エクストルーダなどを使用するプラスチックの成型加工などの産業界において、一般的な現象である。この現象による発熱挙動を確認するため、実験室規模の小型エクストルーダ（以下、試験機）を用いて物理的な発熱挙動の確認試験を実施した。

アスファルト固化処理施設に設置されているエクストルーダ（以下、実機）は、120mmφのスクリュを4本持つ水平型4軸押出機である（図1及び図5参照）。これに対し、試験機は50mmφのスクリュを2本持つ水平型2軸押出機である。実機は図5のように4本のスクリュを有するが中央部

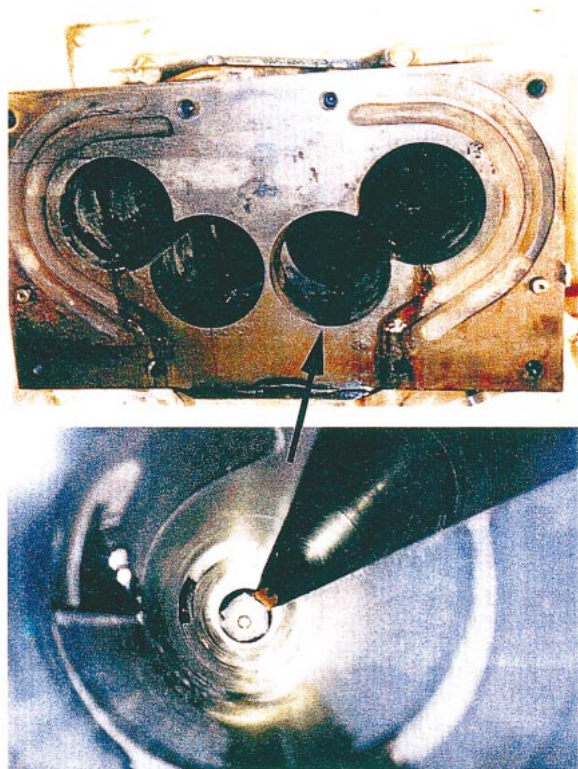


図5 実機のパレル外観写真
(ゾーン8側から)

ではスクリュのかみ合いはなく、ドーム開口部を除き2軸の押出機を2機つなぎ合わせた構造となっているため、2軸押出機においても実機で発生しうる発熱現象を確認できる。

11バッチから廃液供給流量を10%低下させていたが、事故が発生した直前の26バッチから廃液供給量を更に10%減少させた運転を行っていた。このため、本試験では廃液供給量の差による温度・トルクの経時変化を確認した。この試験の際、塩とアスファルトの比(S/B比)を実機と同様に45wt%となるように、廃液及びアスファルトの流量を調節した。また、使用した模擬廃液の組成は

実廃液の分析データに基づいて調製した。

この試験を実施する前に、キャピラリーレオメータにより、塩濃度をパラメータとした模擬混合物の動粘度を測定した。この結果、模擬混合物の180~200℃付近における模擬混合物粘度は、塩濃度の上昇に伴い上昇することが確認された¹³⁾。

試験の結果を図6及び表1に示す。図6のようにバレル温度に大きな変化は見られなかったが、混合物温度は常にバレル温度より高く、表1のように廃液供給流量の減少に伴い、トルク及び混合物温度が上昇することが確認された。また、試験後バレル温度を低下させスクリュシャフトを抜き出して観察するとともにスクリュシャフトのニーディングディスク部に付着している固化体を採取し、塩濃度の分析を実施した。この結果、図7のように塩が混合物から分離・析出し、バレルの内壁面のニーディングディスク部を中心に堆積しているのが確認された。また表1に示すようにスクリュシャフトに付着した混合物の塩濃度の方が、排出された固化体の塩濃度に比べ高いことが確認

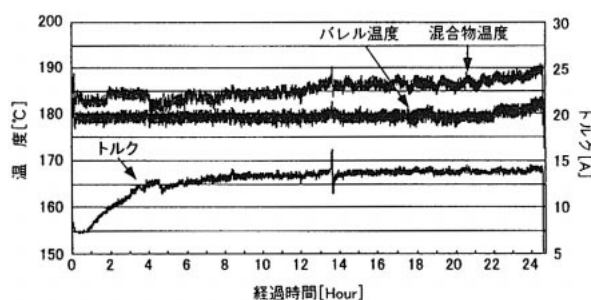


図6 長時間運転におけるトルク及び温度の挙動

表1 測定した混合物中の塩濃度

廃液供給流量	作製した固化体中の塩濃度	ニーディングディスク部の塩濃度	塩濃度上昇率
6.5r /hour	47.9wt%	49.1wt%	1.2wt%
2.6r /hour	44.2wt%	50.6wt%	6.4wt%



試験後のスクリュシャフト上堆積塩の状況



試験後のパレル内壁面に堆積した塩



パレル内壁面側

図7 試験後のスクリュ観察結果

された。

実機の運転では析出した塩を洗浄するために、各バッチの終了後に廃液供給ライン及びドームから水を供給している。このような塩の洗浄効果を確認するために、各試験が終了した後、水及びアスファルトを供給する運転を約20分間実施した。この際、サンプルを5分ごとに採取し、塩濃度の測定を実施した。水の供給を開始した後、作製した固化体の塩濃度は徐々に減少し、20分後に採取したサンプルの塩濃度は4.9wt%まで減少していることが確認された。このことから、水を供給することによって、エクストルーダ内に堆積した塩が流出し、洗浄されるが、20分程度の運転では塩がエクストルーダ中に残っている可能性があることが分かった。

さらに、粘性発熱による混合物温度の上昇を流体解析によって推定した。この結果、実機エクストルーダにおいて45wt%の塩濃度がこれより更に10wt%上昇した際には、粘性発熱量が増大し、設定温度180℃に対し、約30～45℃程度の温度上昇があると評価された¹⁴⁾。

以上の結果、廃液供給流量を低下させた場合、エクストルーダのニーディングディスク部にて塩濃度が上昇することが判明した。このため、ニーディングディスク部にて発生する粘性発熱が増大し、ドラムへの充てん温度が上昇したと考えられる。

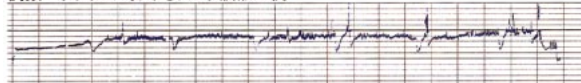
(2) エクストルーダ運転データの分析

試験機において確認された現象と、事故発生時のキャンペーン中の運転記録の関連を調査するため、事故が発生したキャンペーン（97-M46-1）のエクストルーダ温度・トルクチャートを詳細に分析した⁸⁾。

実機のエクストルーダの運転において、エクストルーダ内部に析出した塩及びドームに付着した塩を洗浄するため、各バッチの終了後に廃液供給ライン及びドーム上部から水を供給している。このため、各バッチのスタート時にはトルクが低下している。また、ドーム部に付着した塩を除去するため、各バッチの運転中に一定時間間隔で自動的にドームに蒸気を供給している。このドームの洗浄運転をA.D.C. (Automatic Dome Cleaning) という。

通常の廃液供給流量（200ℓ/hour）における偶数バッチの典型的なトルク挙動は、図8（6バッチ）のように時間の経過とともに上昇している。一定間隔でトルクが減衰し、すぐに回復しているが、これはA.D.C.によりエクストルーダ内に水が供給されたため、一度トルクが低下したものと考

偶数バッチ(6B)におけるトルク波形の例



奇数バッチ(9B)におけるトルク波形の例

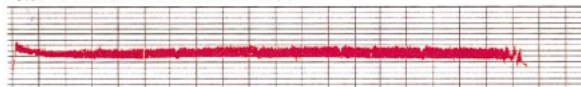


図8 偶数バッチと奇数バッチのトルク波形の例

えられる。また、通常の廃液供給流量における奇数バッチのトルクの典型的な挙動は、図8のように変動は大きいものの低い範囲で安定している。

通常の廃液供給流量における偶数バッチでは、運転開始から徐々にトルクが上昇していることから、試験で見られたような塩の堆積現象が発生していたと考えられる。一方、通常の供給流量における奇数バッチではA.D.C.時のトルク変動は見られるものの、トルクの上昇は偶数バッチほどには顕著ではない。このことから、塩の堆積現象の影響は、偶数バッチにおける影響ほど大きくはないと考えられる。

エクストルーダを用いるプラスチックの成型加工などの業界では、材料不均質の要因となる押出機内の脈流現象が報告されている¹⁵⁾。これは、押出機内のある部分に一度材料が滞留した後再び流れ始め、この滞留一流動を繰り返す現象である。この現象は、通常“スティックスリップ現象”と呼ばれ、トルクが大きく変動し、材料不均質が生じる。試験機において材料供給バレルの温度が低下した際に、トルクの大きな変動と材料流れの不均一が観察された。このような事実から、通常供給流量における奇数バッチでは、このスティックスリップ現象が発生し、これによりエクストルーダ内の流れが不均一となり、塩の堆積現象の発生を緩和していたと考えられる。

廃液供給流量20%低下した（160ℓ/hour）26バッチから事故が発生した30バッチまでのトルク及びゾーン7温度計指示値を図9に示す。26バッチ以降では、一定トルク幅で変動していた奇数バッチでさえ経時的なトルク上昇が見られ、A.D.C.時のトルク降下が顕著に見られた。また、バッチ開始時のトルク値が徐々に上昇していることが分かる。27バッチでは警報設定温度よりゾーン7温度が上昇したため、バレルの冷却運転を実施している。さらに28バッチではトルクオーバによる2度のノーマルシャットダウン（トルク及び温度の異常が生じた際にエクストルーダ運転が自動的に停

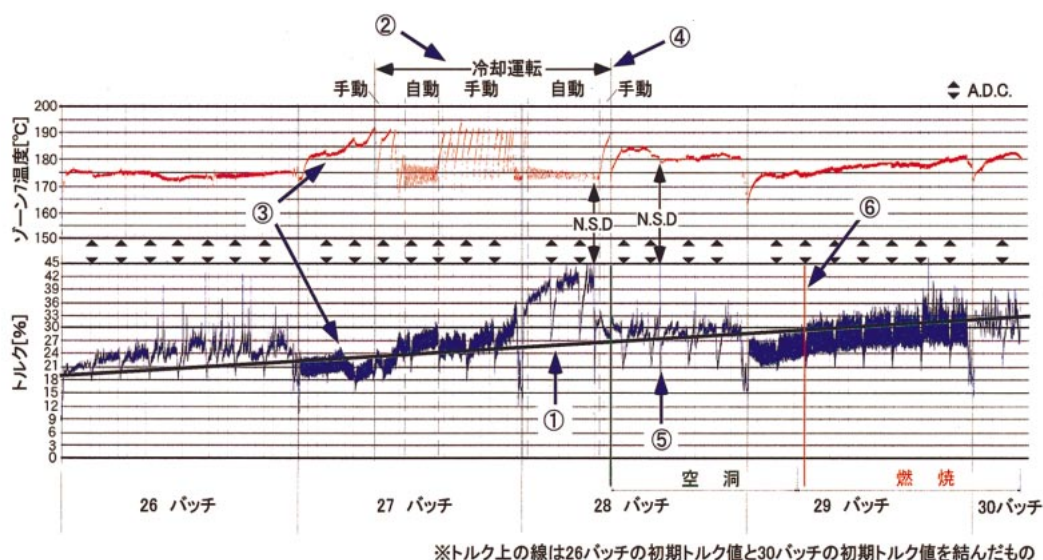


図9 26Bから30Bまでのトルク及びゾーン7温度と進展事象

止すること：以下、N.S.D.）が作動した。バッチごとにドーム洗浄運転を実施しているものの完全には洗浄できず、供給流量を低下した26バッチから継続的にトルクが上昇し、A.D.C.後のトルクがA.D.C.前のトルクより高くなっていることから、塩の堆積が促進されエクストルーダスクリューと塩との摩擦が徐々に大きくなり、A.D.C.の際に水に溶けた塩は下流のニーディングディスク部に滞留し、この部分の塩濃度の上昇に寄与したと考えられる。廃液供給流量が低下したため、ニーディングディスク部に流入する材料（混合物）の圧力は小さくなり、このためニーディングディスク部に流入したA.D.C.による塩は滞留しやすくなったと考えられる。

奇数バッチである27バッチと29バッチにおいてさえ経時的なトルク上昇が見られたのは、供給流量を低下させたことによりスティックスリップ現象だけでは塩を押出すことができなくなっていたためと考えられる。すなわち、27バッチ以降で混合物温度が上昇したのは、堆積した塩によるスクリューとの摩擦及び下流側のニーディングディスク部に流入した塩による、局所的な塩の濃縮作用に伴う混合物粘度の上昇（粘性発熱の増大）に起因すると考えられる。

(3) エクストルーダ内における混合物の発熱現象

ニーディングディスク部は材料（混合物）の搬送能力を有しないため¹⁶⁾、上流側からスクリューフライトにより大きな押出圧力が加えられ、この部分の材料（混合物）に下流に向かう大きな圧力が掛かることが知られている。エクストルーダ運転

温度（約180℃）では、ニーディングディスク部の混合物中のアスファルトは水分が蒸発した後の塩成分より流動性が高いため早く流出し、塩の濃縮現象が生じたものと考えられる。しかし、供給流量が低下した際には、ニーディングディスク部の通過速度が遅くなり（滞留時間が長くなり）、流動性の良いアスファルト分がより選択的に流出することによって塩濃度が上昇する（塩濃縮現象が顕著になる）。このために、粘度が増し、粘性発熱が促進した。

また、供給流量が低下した場合、水分の蒸発が終了する時間が短くなり、塩がより早く析出する。このため、塩の堆積量が上昇し、トルクが上昇する。堆積量が増加したため、通常と同様の洗浄運転では堆積した塩は洗浄しきれなくなったと考えられる。

以上のように、廃液供給流量の低下は、塩の濃縮・堆積現象を増大させる効果があるものと考えられる。また、塩濃縮現象は混合物自体が発熱要因となるため、混合物温度の上昇への寄与は大きい。一方、塩の堆積現象はそれ自体スクリューとの摩擦により混合物の温度上昇への寄与が考えられるが、それ以上にバレル内壁面に堆積するため温度が上昇した混合物の放冷を妨げる役目を担ったと考えられる。

以上の考察により、図9に示した運転記録と発生事象はほぼ整合すると考えられる。したがって、供給流量の低下が塩の濃縮現象を増大させ、粘性発熱量を大きくし、ドラムに充てんする前に混合物温度を十分上昇させる可能性が示された。

5.3 数値解析によるドラム内固化体の温度の推定

化学的・物理的発熱要因の検討結果から、混合物の充てん温度が十分に高かったことが考えられ、事故発生に至る熱暴走反応は、高温域でのアスファルトと硝酸塩の発熱反応に起因するものと考えられる。SemenovやFrank-Kamenetskiiによれば、このような熱暴走反応に至る限界温度は、化学反応によって発生する熱量と放熱のバランスによって決定されるとしている¹⁷⁾。限界充てん温度を推定するため、ドラムに充てんした混合物の熱流体解析を実施した。また、解析に用いた物性値や化学反応定数は解析を実施するために測定を実施し、これにより得られた値を採用した。

解析は初期温度（充てん温度）をパラメータとし、230～250℃まで初期温度を変えて計算した。この際、ドラム内の温度分布は一様であると仮定した。この結果から、限界充てん温度はおよそ250℃であると算出された。

また、どの程度の発熱が混合物温度の上昇に寄与するかを見積もるためにARCの検出限界（およそ3 mW/g）に近い、発熱量（0.3～3 mW/g）をパラメータとした解析を実施した。この計算における発熱のモデルは、発熱が通常の充てん温度である180℃（設定値）から、一定の発熱があり、温度が上昇するとともにARCで測定された発熱に移行するとした。この結果、上記の結果に比べ1 mW/gの発熱が生じていると仮定した場合、限界充てん温度は240℃にまで低下し、同様に3 mW/gと仮定した場合、190℃にまで低下した。しかし、ARCの検出限界の10分の1程度の発熱量（0.3mW/g）では、限界充てん温度に大きな降下が見られなかった。したがって、180～250℃において、限界温度の降下に寄与する熱量は1～3 mW/g程度であることが推定された。

5.4 爆発後に発生した第二の火災についての推定

エクストルーダのゾーン8の熱電対は、爆発後に図10に示すように、400℃以上に達する2つの大きな温度上昇の記録を残している。また、ターンテーブル上のいくつかの固化体の灰が上部に盛り上がり、爆発後に建物外に2時間以上にわたって黒煙が排出されたことなどから、爆発後にターンテーブル上の固化体が燃焼していたと結論づけられている¹⁾。このため、過去に実施された燃焼消火実験¹⁸⁾のデータを参考に、充てん室モデルを作成し、気流温度・ふく射強度等を算出し、

このデータを用いてエクストルーダ排出管（ゾーン8）への熱的影響及び燃焼したドラムに隣接するドラムへの熱的影響を解析により推定した。

爆発後最初の温度上昇に相当する火災が、ターンテーブル上で充てんしてから最も時間が経過しているNo.30101（図11）固化体から発生したと仮定し、この固化体の火災によりゾーン8の温度が図10に示すように上昇するかを、伝熱モデルによる解析によって検討した。その結果、ゾーン8温度は図10に示されたような急激な温度上昇は得られなかった。よって、このような急激な温度上昇を生じさせる固化体はよりエクストルーダに近いNo.30104であると推定できる。

さらに、燃焼する固化体が隣接するドラムへ与えるふく射加熱及び対流・伝導伝熱の効果を前節と同様の手法で検討した。この結果、隣接する固化体表面の一部を強く加熱する効果はあるものの、固化体温度全体の温度を上昇させることは

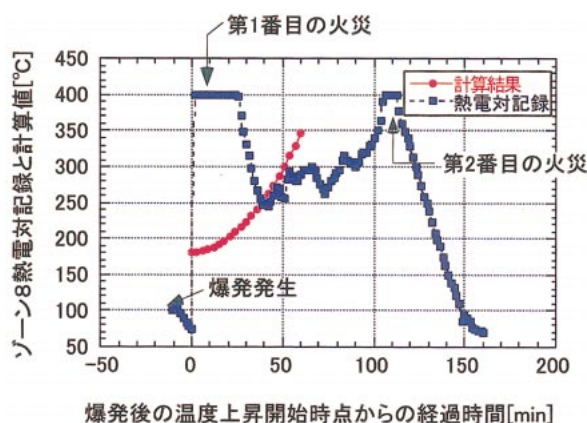
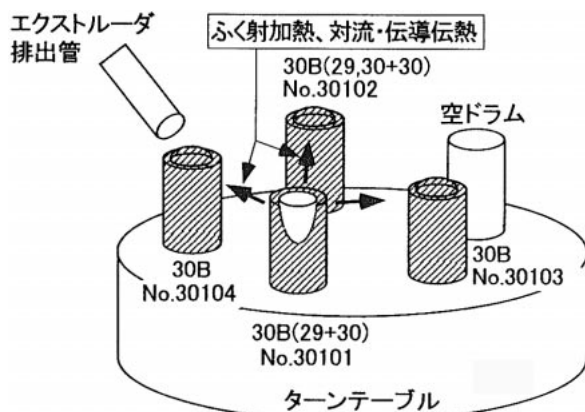


図10 爆発後のエクストルーダゾーン8熱電対の記録と計算結果



注) Bはバッチ番号, No.はドラム番号を示す。

図11 事故時のドラムの位置関係

きなかった。したがって、燃焼したすべての固化体の充てん温度はそれ自体でも放置すれば発火し得る温度であったと考えられる。

最後に、同様の手法にて10時6分頃発生したコンベア上の火災による28バッチドラムへの熱的影響についても検討した。この結果、複数の固化体の火災からのふく射加熱、充てん室内部の高温の雰囲気からの伝導加熱では、28バッチで作製した固化体内部に特に大きな昇温は生じないと結論づけられた¹⁹⁾。

5.5 事故発生の経緯

過去の運転経験やこれまでの調査の結果、トルクの上昇と混合物温度の上昇には密接な関係があるものと考えられる。エクストルーダ運転記録には塩の堆積効果による運転開始からのトルクの上昇及びA.D.C.時のトルク降下が見られる。また、粘度のある流体の混練プロセスでは粘性発熱も十分に生じうる現象であり、ニーディングディスク部での塩の濃縮による粘度上昇も生じていたと考えられる。したがって、これらの現象は事故発生時に特異な現象ではない。しかし、試験機を用いた試験により、エクストルーダへの廃液供給流量の低下が塩の濃縮及び堆積現象を発展させる可能性が高いことを確認した。したがって、エクストルーダへの廃液供給流量を低下させた26バッチから各事象が発生し、最終的に火災事故につながったと考えられる。以下に、26バッチ以降に発生した事象について推定した結果を示す（以下の番号は図9内の番号に相当）。

- ① 26バッチ以降各バッチのスタート時のトルク及び運転時のトルクが長期的に上昇している。これは、塩の堆積現象の進行に다가って上昇したものと考えられる。
- ② ゾーン7温度が急上昇したため、自動及び手動の冷却操作を実施した。これは、流量低下に伴う塩の濃縮作用の結果が現れ始めたものと考えられる。
- ③ 27バッチのトルク挙動は奇数バッチに特徴的なトルクの大きなふれが見られるほか、徐々にふれの中心が上昇している。A.D.C.直後にトルク及び温度が上昇していることから、A.D.C.による水により下流に塩が流され、下流側のニーディングディスク部で滞留し、粘性が上昇したためトルクと粘性発熱により温度が上昇したと考えられる。
- ④ 冷却操作と混合物の発熱を繰り返すうち、ゾーン7温度計指示値が安定した。ゾーン7温度

計指示値が安定したのは、急激な温度変化を繰り返すことによりバレルの温度収縮（約30℃で1mm程度）が頻繁に生じたため、バレル内面に付着した塩のはく離等により、温度の正確な感知ができなくなったものと考えられる。

- ⑤ 冷却運転を停止したため、N.S.D.の後、トルク及び混合物温度が上昇し、このころ充てんした固化体には硬膜の生成や空洞が見られるといった異常が認められた。塩の濃縮・堆積現象の影響が大きくなったためと考えられる。
- ⑥ 29バッチの2回目のA.D.C.の操作の後、トルク及び混合物温度が上昇し、このころに充てんした固化体はすべて燃焼していた。28バッチ終了後の洗浄運転における洗浄の効果が十分でないために、バッチ開始時のトルクが高くなり、塩の濃縮・堆積現象によるトルク・温度の上昇がより大きくなったと考えられる。

5.6 まとめ

実機に比べ試験機では、試験機内に滞留する混合物や、ドラムに充てんした混合物量が十分に小さいため、充てんした混合物は蓄熱・発火に至らなかった。また、本報では事象進展の説明において推論を加えた部分も残されているが、廃液流量低下に伴う濃縮・堆積現象の寄与の拡大は試験で確認したとおりである。よって、今回の事故発生の原因は、エクストルーダ内部での過度の酸化還元反応ではなく、塩の濃縮と堆積により混合物の充てん温度が通常時より上昇したことによって、ドラム充てん後の蓄熱の結果、硝酸／亜硝酸塩とアスファルトの暴走反応に至ったとの結論を得た¹⁾。

6. 必要な安全対策と継承すべき知見

6.1 運転管理上の問題点

事故調査委員会において、運転管理上の問題点は以下のように指摘された。

- ① 事故時の対応等に関する問題
的確な情報把握、放射線管理情報の一元的把握、情報伝達の簡素化等
- ② 運転に関する問題
運転計画の作成／変更時の審査、処理対象物質の把握等
- ③ 教育訓練に関する問題
過去の知見の反映、事故事例に即した訓練等
- ④ 施設に関する問題
運転監視設備の健全性維持、安全監視設備の事故時機能保持等

6.2 技術的な問題

上記の運転管理上の問題点を解決するためには、まず安全性を評価できる技術力を有することが必要である。しかし、まさにこの点において、本事故では運転計画を変更しようとした時に安全性を評価しようとしても、塩の濃縮と堆積といった現象やこれに伴う発熱事象の拡大といった点に関する知見を有していなかったため、困難であったと思われる。これを可能にするための課題を以下に示す。

(1) 重要な工程機器の挙動の確認

異常な挙動をした時に安全上の影響が大きい機器については、事前にその挙動とメカニズムを十分に確認しておくことが必要である。定常条件範囲内だけでなく、これを越える条件における挙動もある程度開発段階で押さえておかねばならない。開発とは通常条件での性能を確認するだけではないことを、もう一度認識し直すことが重要である。

(2) 処理対象物の十分な理解

今回の検討では、不純物混入による発熱反応は認められなかったが、これを確認するまでは不純物の影響により、不純物の混入により火災につながる可能性も十分考えられた。処理対象物の成分や化学的影響、考えられる化学反応を十分に把握しておくことが重要である。

(3) 技術情報の継承・伝達

約20年前に実施してきた燃焼消火試験の知見が次の世代に伝えられなかったことが爆発を招いた。開発や試運転、もしくは運転時に得た知見は次の世代、次の担当者へ確実に継承すること（垂直方向の技術情報共有）、また担当が異なっても周囲の技術者に知らしめておくこと（水平方向の技術情報共有）が必要である。

(4) 国際情報の収集

海外で発生した事故に対し情報収集を密に実施し検討すべきである。フランスでは海外の情報を積極的に入手し設備の改良を行っている。我々も想像力を働かせながら、自主的にかつ能動的に事故の進展の仕方やその発生防止策、拡大防止策を検討すべきであった。

普段から関連する海外情報を収集するとともに、海外の関連機関との協力関係を確立し、安全情報も共有することが望ましい。

7. おわりに

今回のアスファルト固化処理施設の火災爆発事故は、我が国の核燃料サイクル施設で初めての

規模な事故であり、環境への放出放射能は周辺住民の方々の健康に影響を及ぼすことはなかったものの、社会的影響は極めて大きなものとなった。

事故の原因については、事故発生直後から究明活動を行い事故調査委員会に報告し、運転管理面の改善点を含めて再発防止に必要な対策や事故のシナリオが究明された。さらに、その詳細を検討するために化学的あるいは物理的な要因について各種調査・試験・解析等を行い、事故調査委員会に引き続き設置されたフォローアップチームへ報告してきた。これまでの原因究明活動の結果、火災の主要因は、エクストルダ内部での塩の濃縮と堆積によりアスファルト混合物の温度が上昇し、蓄熱の結果硝酸塩／亜硝酸塩とアスファルトの暴走反応に至ったとの結論を得た。

本報告は2年以上にわたる原因究明活動の結果を取りまとめたものであるが、上記の原因究明の技術的な検討内容とともに、継承すべき知見として本究明活動を通じて得られた教訓も併せて記載した。

事故発生以降、事業団として更にはサイクル機構へと移行してからも様々な改善活動を行ってきたが、事故から得た教訓や活動の趣旨と合わせて、本報が再びこのような事故を起こさないための一助となれば幸いである。

謝辞

専門的視点からのご指導をいただいたアドバイザーの先生方々、現場調査や試料採取・分析、評価・解析等多大なご協力をいただいた方々、我々の活動に対して支援、ご指導をいただいた方々等関係各位に対してこの場を借りて改めて感謝いたします。

参考文献

- 1) 再処理施設安全対策班：“アスファルト固化処理施設火災爆発事故の原因究明結果について”，JNC TN8410 99-027（1999）。
- 2) 小山智造，柴田淳広 他：“アスファルト固化処理施設の火災爆発事故における火災原因の検討”，動燃技報，No.107，p.43（1998）。
- 3) 動燃事業団：“97-M46-1キャンペーン運転計画書（改訂版）の解説”，事故調査委員会資料8-4（1997）。
- 4) 小林健太郎，藤田秀人 他：“火災原因に関する調査(2)～火災時の状況と運転データ”，日本原子力学会「1998春の年会」予稿集，M18，p.667（1998）。
- 5) 柴田淳広，加藤良幸 他：“アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～アスファルト充填室内ドラム等調査結果～”，JNC TN8410 99-029（1999）。
- 6) 動燃事業団：“原因究明のために参考にすべき内外における同種の施設の事故例”，事故調査委員会資料4-5（1997）。
- 7) 山内孝道，藤田秀人 他：“原因究明のための運転状況調査－アスファルト固化処理施設火災・爆発事故の原因究明・再発防止

12 技術報告

- に関する報告(4/7)ー”，PNC TN8410 98-047（1998）。
- 8）鈴木 弘，三浦昭彦 他：“アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～エクストルーダの運転記録の評価～”，JNC TN8410 99-043（1999）。
- 9）佐野雄一，柴田淳広 他：“アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～赤外吸収測定によるアスファルト固化体の酸化反応評価～”，JNC TN8410 99-033（1999）。
- 10）加藤良幸，青山 誠 他：“高温アスファルトの流下試験”，JNC TN8410 97-319（1997）。
- 11）重留義明，加藤良幸 他：“アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～模擬固化体を用いた発熱特性試験～”，JNC TN8410 99-035（1999）。
- 12）鈴木 弘，三浦昭彦 他：“アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～小型2軸エクストルーダ試験～”，JNC TN8410 99-041（1999）。
- 13）三浦昭彦，鈴木 弘 他：“アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～アスファルト・混合物の粘度測定～”，JNC TN8410 99-040（1999）。
- 14）サイクル機構：“アスファルト固化処理施設火災爆発事故中期的課題の検討結果の内容”，フォローアップチーム全体会合資料5-3（1999）。
- 15）沢田慶司：“プラスチック押出成形の最新技術ー応用から自動化までー”，ラバーダイジェスト社，（1993）。
- 16）三浦昭彦，鈴木 弘 他：“アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～エクストルーダに係わる調査～”，JNC TN8410 99-039（1999）。
- 17）J. N. Bradley：“火災と爆発ー燃焼現象のすべてー”，三共出版，（1972）。
- 18）動燃事業団：“原因究明調査のために参考とすべき技術開発に関する試験結果”，事故調査委員会資料4-6（1997）。
- 19）三浦昭彦，鈴木美寿：“アスファルト固化処理施設火災爆発事故の中期的課題の対応～充てん室内火災のシミュレーション～”，JNC TN8410 99-046（1999）。