プルトニウムおよびウランの爆発・火災事故例等の調査に もとづく防護対策上の問題点

角 川 正 義* 井 上 義 教*

Some Considerations on the Methods of Fire-prevention and Fire-fighting for Plutonium and Uranium Fires on the Basis of Literature Survey.

By Masayoshi KADOKAWA and Yoshinori INOUE

The causes of fires of plutonium and uranium in the nuclear facilities are summarized through the literature survey of accidents in the United States and the United Kingdom, and of metallurgical studies. It is noticeable that spontaneous ignition is due to the operations such as of degreasing, leaching, cutting and scraping, to the treatment with nitric acid, or to the existence of moisture, for example, after low-temperature experiment of the metals.

The methods of fire-prevention and fire-fighting at the plutonium fires are also described with the recommendation on the view point of health physics: Aluminum container is likely to have excellent property for the fire prevention. The data of particle size distribution and deposition velocity of plutonium emitted at the fire are also showed. Finally, the efficient agent and technique of fire extinguishing are described with some data from experiences in the accidents and the laboratory experiments.

1. ま え が き

主として米国原子力施設に関する統計^{1)~11)}であるが、過去20年間に発生した爆発・火災事故のうち、放射能汚染をもたらした事例(約40件)を調べてみると、Puおよびウランに関するものがそれぞれ約8%を占めている。これらは通常の火災と異なり極めて毒性の強い煙^{7),12)}を出し、しかも消火方法の選択を誤ると臨界事故、汚染拡大その他思わぬ2次的災害を誘起することがある⁷⁾ので筆者はこれらの事故例について出火原因、消火方法等を調査し今後の防火対策の参考資料を得ることを試みた。この種の調査を始めてみると、世界各国の文献を集めることが予想外に困難であることを知ったが、幸い当研究所内外の方々からの御協力を得てある程度までまとめることができた。ここでは紙数の都合もあるのでその概略を報告する。

2. 発火ないし爆発の原因

2.1 金属自体の発火

ウランおよびPuに関する各国の爆発・火災事例^{1)~11)}を集めて作業別および原因別に分類するとそれぞれ第1表および第2表のようになる。

第1表から解るように、ウランは加熱操作でない場合でも自然発火するがそれらはすべて削屑または粉末の場合に該当する。その中でもとくに脱脂ないし滲出作業^{25),9)}または切削作業後²⁵⁾のように酸化保護膜等を喪失して新しい金属面を露出したと考えられる場合に発火しやすいようである。¹⁸⁾

また低温乾燥後²⁵⁾または野外放置²⁶⁾の場合のように金属表面に露を結んだり湿気が存在するような場合にも自然発火しやすいが、この理由としては水分のためにPuの被膜などが破壊されたり、金属自体と反応して内部応力が増加しその結果脆性増加、粒界欠陥の促進等をもたらして金属表面が細分化する(したがって酸化発熱に寄与する表面積が大となる)ことなどが挙げられ、

* 日本原子力研究所保健物理安全管理部 (Division of Health Physics and Safety, Japan Atomic Energy Research Institute)

第1表 ウラン火災事例の作業別、原因別分類

ウラン形状 作業分類	粉 末	削 屑	塊 状	原 因 (推 定)
脱 脂, 浸 出	4 件	2 件		保護膜そう失 摩 擦→ { 発 熱 { ストレス
切 削	1	1		
運 搬 な ど	0	4		
低 温 乾 燥	3	0		コークス状塊, 湿気 昇 温
加 熱			2 件	
硝 酸 処 理	1	1		発 熱
貯 蔵	0	2		野 外 { 湿 気 撃 { 衝 撃
酸 化 粉 末 サ ン プ リ ン グ	1			不 明
アルゴンでパージ	2	0		
計	12	10	2	

〔註 1〕 上記のほかに、ウラン運搬中の火災が5件ある。それらはトラックまたは貨車自体から出火してウランに燃え移ったものである。

〔註 2〕 この表は次の文献を引用して作成した（統計期間 1945～1965）

TID-5360, TID-5360 Suppl.～Suppl. 5 (1956～1966) Living with radiation, Part II (U.S. AEC)
Review of nuclear incidents (1961); etc.

第2表 Pu 火災事故例の作業別、原因別分類

発火源	作 業 内 容	発生件数	原 因 (推 定)
Pu	詰袋（ビニール）の加熱密封	2	昇 温
	加 熱	1	
	脱 油	1	保護膜そう失
	削 削	1	
	briquetting (たどん化)	1	まさつ, 歪
	低 温 実 験 後	1	
	硝 酸	1	水蒸気凝結?
	そ の 他	2	水素発生, 発熱?
		小計 10	
Pu 以外 の もの (爆発)	可 燃 性 気 体, 溶 媒	6	引 火
	硝 酸	2	発 熱
	そ の 他	1	Pu による化学反応の促進?
		小計 9	

〔註 1〕 上記の発火件数はすべて Pu の削屑（および炭化 Pu 粉末1件）に関する事例である。同一期間中の事故報告には塊状 Pu より発火した事例が見あたらない。（統計期間 1945～1965）

〔註 2〕 この表は第1表と同じ文献を引用して作成した。

る。¹⁹⁾

なお、ウラン削屑運搬中²⁵⁾ および 硝酸 処理中には、^{25), 7-a)} 摩擦熱、反応熱等による発火ないし爆発を生じている事実にも注目すべきであろう。

つぎに Pu 火災の場合は第 2 表に示すとおり、ウラン火災とほぼ同様な作業および原因のもとに発生しているが、Pu の発火現象については Argonne 国立研究所 (米

国) 等において過去数年間にわたり定量的実験が行われているので、^{15)~17)} その得られた結果の一部を紹介してみる。

- (1) 水蒸気が存在すると Pu の酸化反応は著しく進行する。第 1 図は酸化反応による酸素消費量の時間変化を雰囲気中の水蒸気量を種々に変えた場合について調べたものであるが、¹⁶⁾ 水蒸気量が 180 ppm 程度

第 1 図 Pu の酸化進行度におよぼす水蒸気の影響 (Schnitzlein et al)¹⁶⁾

に増えると乾燥空気 (5 ppm 以下) の場合の数 10 倍に達するという結果となっている。ただし 240°C 以上の高温となると水蒸気の存在が酸化反応に影響しないようである。

- (2) 不活性気体の雰囲気中における水蒸気の影響

Sachmann の研究によれば¹⁴⁾、湿ったアルゴン (相対湿度 95%, 25°C) 中における酸化反応は同じように湿った空気中における酸化反応よりも 4 ~ 25 倍程度高いと報告されている。これは空気中の酸化の場合には Pu に保護膜を生じて水蒸気との反応を抑制するためと説明できる。¹⁸⁾

- (3) Pu 金属に不純物が混じると発火点の低くなることがある。

Argonne 研究所で過去数年間にわたり集積されたデータを総合すると第 2 図のようになる。¹⁶⁾ これによると、不純物の影響の度合は Pu 削屑の比表面積 (粗さ) によっても異なるが、Pu と U の合金、および Pu と Fe との合金が発火しやすくなりうることは注目すべきであろう。

なお、Al, Si 等との合金は発火し難くなるようである。¹⁶⁾

第2図 Pu 金属（箔）に種々の元素を添加した場合の発火温度の変化（空气中）

2.2 防火管理上の参考事例

ここで、ウランおよび Pu 以外のものによる発火事例を調べてみよう。第1表、第2表からも解るように、これらは運搬管理および、溶媒・薬品等に関する作業管理が不適当であったものと考えてよい。参考までに、2、3の事例を紹介しよう。

〔事例1〕 冷却剤の錯誤使用による爆発^{2-a),5)}

場 所 米国 Richland, General Electric 社

時 1959年3月31日

爆発原因 Pu 金属加工時に、不活性ガス（アルゴン）雰囲気の下に冷却剤 Trichloroethylene ($\text{HClC} \cdot \text{CCl}_2$) を使用していたが、数ヶ月前に使い尽してその後に類似名の薬品 Trichloroethane ($\text{H}_3\text{C} \cdot \text{CCl}_3$) が配達された。最初はこれを返却しようとしたが、他の用途に使えることに気付いて、これを Trichloroethylene を補充するつもりで、Trichloroethane を補充してしまった。そしてその日1日は無事であったが、翌日（爆発の半時間前）担当者はフード内に少量の（a little puff of）煙を認めた。

事故後の模擬試験でも解るように、Trichloroethaneの方が爆発しやすく、着火原因は Pu 片からの火花であ

ると考えられている。

被 害

- ① 従業員1名、左顔面に第1度の火傷および Pu 汚染（内部沈着量は最大許容量の約20%）
- ② 物的損失…200ドル、除染費用等…7,500～9,500ドル

〔事例2〕 溶媒の漂流・引火爆発^{2-a),7-c)}

場 所 米国, Los Alamos, グローブ・ボックス・ライン

時 1957年8月16日

状 況 機械工がグローブ・ボックス内の旋盤等に可燃性潤滑油と錆止溶液を塗っていたところ、その溶媒蒸気が別に連結されたグローブ・ボックス内へ漂い、その旋盤の錆落作業をしていた電動式ブラシの火花によって引火爆発を起した。

さらにそれと連結されていたグローブ・ボックス内の可燃性 Pu 微粉が誘爆を起したようである。

〔事例3〕 運搬中のタバコ吸殻投入⁵⁴⁾

場 所 米国

時 1962年 1 月26日

状 況 Pu と濃縮ウランを積んでいたトラックのトレーラのカンバス・カバーおよび防水布が発火した。原因は対向車から投げたタバコの吸殻によるものと思われる。

3. 爆発および火災の予防法

ウランおよび Pu に関する防火上の注意事項は過去の事例を分析して学びとるべきであるが、ここでは世界の各研究所で採用している方法を集録し若干の考察を行ってみよう

3. 1 ウラン金属の貯蔵法 (英国 Harwell 研究所²⁵⁾の場合)

- (1) ウラン金属粉末はポリスチレンの袋などに小分けにし、それらを軟鋼製容器に入れる。その容器および蓋は殻状となっており殻内の空所は黒鉛粉末で詰めてある。容器内には不活性気体 (アルゴン) を充填し、容器は耐火練瓦の部屋の中に保管する。(このほか臨界防止上の注意が必要である)。
- (2) ウラン金属の削屑は、動物性油を満たした容器に入れ、耐火練瓦の部屋の中に保管する。

3. 2 Pu 金属の貯蔵法

3. 2. 1 貯蔵容器の選択²²⁾

a. ステンレス鋼缶ないしブリキ缶

〔採用例〕 Rocky Flats Plant, Argonne 国立研究所, Hanford Atomic Products 社 (何れも米国)

b. アルミニウム缶

〔採用例〕 Los Alamos Scientific Laboratory (米国)

鉄製容器とアルミ製容器のどちらが良いかについて、筆者は防火上の観点からは後者の方に利点があると考ええる。その理由として

- ① Al の方が熱伝導率が高いので熱の発散が早い。
- ② Pu が鉄との共存状態で発火すると、自然性の高い Pu-Fe 合金となり¹⁶⁾、かつ共融点が下って^{34),39)} 410°C (〔註〕 Fe の融点 1530°C よりも低い) 程度で融けるので容器に穴の開くことができる。²²⁾

これに反し、Pu-Al 合金の発火点¹⁶⁾ (590°C) は純粋の Pu (520°C) よりも高く¹⁶⁾、また共融点^{34),39)} も高い (650°C~800°C) ので容器に穴が開いたり容器のために 焰の拡大する心配が少ない。(第 2 図参照)

3. 2. 2 貯蔵容器内の雰囲気を選択²²⁾

a. 不活性ガス (N₂ または Ar)

〔採用例〕 フランス原子力防災部, Mound Laboratory, Argonne 国立研究所

b. 不活性液体 (油など)

〔採用例〕 Mound Laboratory, ニューメック社

c. 乾燥空気

〔採用例〕 Hanford Atomic Products 社, Savannah River Plant

ここに掲げた雰囲気のとれを選択するのが良いかは別として、それぞれの場合には次の配慮が必要である。

- ① 不活性ガス中で保存する場合は、貯蔵前と出荷前に、Pu 金属表面に酸化保護膜を形成させること。²²⁾
- ② 不活性ガスあるいは乾燥空気の場合は、混入水蒸気を十分に管理すること。たとえば寒冷時に露を結ばぬように、雰囲気中の露点温度がその地域で予想される最低温度以下とすることが望ましい。
- ③ 油などの不活性液体中に保存した後は、脱油作業の際に発火^{2-a), 3-c)}しないよう温度、水蒸気および不純物等の管理に充分留意すること。

4. 火災時に予想される事態

前述のように火災の防止には万全の措置を講ずべきであるが、それと共に、火災発生時に予想される事態を充分に把握して、被曝防止上の対策を練っておくことが望ましい。

4. 1 ウラン金属の発火時の特徴²⁶⁾

一般に、金属ウラン片の燃焼は同じ形の金属 Mg の燃焼と非常に良く似ており、燃焼部分からは局所的に強烈な熱と光を放出する。粉末ないしウラン削屑の場合は瞬間的に爆発的な烈しさと燃焼するが、塊状ウランの場合は非常にゆるやかで直径 1 インチのウラン金属棒が燃えつきるのに 24 時間も要することがある。いずれの場合も炎は見えないが、鉄製の容器や盆などに穴を開けるほどに強い熱を発する。

4. 2 Pu 金属の発火時の特徴

Pu 金属自体が発火する際には炎が見えない^{1-a)}。しかし強烈な酸化にともなう高熱を発するので、白色の閃光をとめない、またステンレス鋼などを融溶かすこともある^{7-b)}。この際に生ずる共融合金^{7),34)}は自然性である⁷⁾ことに留意すべきである。なお Pu 金属表面に酸化物被膜があるときは、閃光が遮ぎられて発火に気付かないことも考えられる。⁷⁾

4. 3 Pu 火災時に予想される空気汚染など

すべて原子力施設の火災の場合には空気汚染が問題となり、十分な呼吸保護具の着用が必要となるが、とくに Pu 火災の場合には汚染空気毒性が厳しい。燃えている Pu 金属から放散される汚染物は大部分が不溶性の酸化物 (PuO₂ 等) であるが、²⁷⁾ その最大許容濃度¹²⁾ (過 40 hr の値) $4 \times 10^{-11} \mu\text{Ci/ml}$ すなわち $6.5 \times 10^{-10} \mu\text{g/ml}$ は不溶性天然 U の値¹²⁾ ($1.8 \times 10^{-4} \mu\text{g/ml}$) の約 30 万倍に相当する。この濃度はまた 20ℓ (約 1 分間の呼吸量) の空気の中に直径 1 μ の PuO₂ 粒子ならば 2 ~ 3 ケ含まれた状態に相当するともいえる。⁵³⁾

実際に Pu 金属が燃えると、どの程度の粒子が放出されるかについては K. Stewart の実験的研究がある⁴³⁾。彼は Pu 金属およびデルタ合金について温度および気流を種々に変えた場合に生ずる酸化 Pu 粒子の粒径および

浮遊・沈着の状態について、第3表、第4表および第3図のような値を報告している。

Stewart はさらに Pu 粉末を呼吸した場合に肺中に残留する量を粒径分布との対応のもとに考察し、実際の放出率に補正を加えて「実効放出源強度」という概念を述べている。(第3表の「註」参照)

この実効的放出源強度の値を 気象学的 拡散式 (Pasquill の式) と結びつけると Pu 火災現場の風下に居る人が Pu 粉末を吸入することにより受ける肺沈着量および被曝量の目安を得ることができる(第4図)。ここで PuO_2 粉末の肺に関する生物学的半減期を 1 年とすると、一生涯に受ける被曝量が 10rem に相当する 吸入初期の肺沈着量は約 $7.2\text{m}\mu\text{Ci}$ となると想定した。

第3表 酸化Pu粉末の大気中への放散程度⁴³⁾

Pu 粒子生成の状況		酸化物の大気中への放出率 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2 \cdot \text{hr}$	実効放出源強度 $\mu\text{Ci}/\text{min} \cdot \text{per}$ $\text{cm}^2 \text{ Pu surface}$
室温における酸化	静止空気 { 純 Pu 金属	5×10^{-4}	10^{-6}
	{ デルタ合金	5×10^{-5}	10^{-7}
	擾乱空気 { 純 Pu 金属	5.0	10^{-2}
	{ デルタ合金	0.5	10^{-3}
120°C における酸化	静止空気 { 純 Pu 金属	5×10^{-3}	10^{-5}
	{ デルタ合金	5×10^{-2}	10^{-4}
	擾乱空気 { 純 Pu 金属	5×10^3	10
	{ デルタ合金	50	5×10^{-3}
400~500°C における発火しない酸化	静止空気 { 純 Pu 金属	10	2×10^{-2}
	{ デルタ合金	10	2×10^{-2}
	擾乱空気	4×10^4	2
融点以上で酸化しつつ燃える場合		酸化物の放出される割合	1kg の Pu 金属塊から放出される酸化 Pu 粒子の実効割合
		静止空気	2×10^{-4}
		擾乱空気	1
			$2 \times 10^3 \mu\text{Ci}$
			$10^4 \mu\text{Ci}$

〔訳者註〕 実効放出源強度は次のようにして算出してあるようである。なお初期残留率については第3図の註を参照。(Pu塊のCi数)×(放出率)× $\frac{1}{4}$ (肺中の初期残留率)

4. 4 空中に浮遊している酸化 Pu 粒子の沈着

沈着速度を次式で定義すると、第4表から解るように、粒径 $2 \sim 30 \mu$ の Pu 酸化物の沈着速度は $3 \sim 5 \text{ cm/sec}$ となる。

$$\text{沈着速度} = \frac{\text{沈降した酸化 Pu 粒子の数 (個数/cm}^2 \cdot \text{sec)}}{\text{空中に浮遊している酸化 Pu 粒子の数 (個数/cm}^3 \text{)}}$$

また Chambalein は草の上への沈着実験にもとづき、
1 μ 以下の微粒子の沈着速度は 0.1~0.3cm/sec であり
また10 μ 以上の密度の大きな粒子は沈着速度が重力降下

の終速度に一致すると述べている。(42), (47)

S.K. Friedlander らが野外で行った Pu 棒燃焼実験 (燃焼温度 600~800°C) によれば、浮遊粒子の大部分が放出点から 200 ヤード (180 米) 以内に沈降している。^{42), 46)}

また ORNL の事故 (1959年11月20日) には 0.6g の Pu・硝酸混合物がドアを通して屋外に放散されたが、現場附近の地面の α 汚染が 100cm^2 あたり 10^5dpm であったものが約 300m 離れると 10^2dpm (約 $5 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/}$

第 4 表 発火点以上で Pu を酸化させて生成した粒子の浮遊ならびに沈着の性質

実験番号	雰 囲 気	試 験 材 料	全酸化物の 質量平均直径	浮遊する割合	浮遊成分の 質量平均直径	浮遊成分の 沈 着 速 度
1	空 気	δ 合金棒片	400 μ	1.5×10^{-5}	8 μ	4.8 cm/sec
2	"	純 Pu 棒片	350	1.5×10^{-5}	8	3.4
3	"	"	670	2.4×10^{-3}	11	3.5
4 (a)	"	δ 合金棒片	400	1.3×10^{-4}	4.5	3.7
4 (b)	"	4 (a) 実験の残渣 (金属+酸化物)	800	—	—	—
4 (c)	"	4 (b) 実験の残渣 (金属+酸化物)	800	—	—	—
5	"	δ 合金切屑	1000	6×10^{-5}	2.1	3.6
6	"	"		—	—	—
7	"	"		1×10^{-4}	2.1	4.2
8	"	"		—	—	—
9	炭 酸 ガ ス	"	750	—	—	—
10	窒 素	"	酸化しないか ごくわずか	—	—	—
11	酸 素	"	非常にわずか	—	—	—
12	"	δ 合金円板	"	2.1×10^{-2}	0.3	7.3
13	O ₂ : N ₂ = 30:70	δ 合金棒片	290	1.8×10^{-4}	29	3.2
14	O ₂ : N ₂ = 40:60	δ 合金円板	1100	1.9×10^{-4}	16	3.2

第 3 図 Pu が酸化の際に放散した粉末の粒径分布⁴³⁾

第4図 Pu 火災時に風下方向へ放散される Pu 粉末を吸入することによる肺沈着量と被曝の分布

cm^2) となっている。^{2-b),9),10)}

放散された酸化 Pu 粒子が空气中に滞留して浮遊している時間については, Tanner の計算結果⁴⁸⁾が参考とならう。彼は酸化 Pu (比重11.5) の球形粒子が室温のもとで重力沈降するとの想定にもとづき計算した結果, 天井の高さ3mの室内では, 直径 10μ より大きな粒子ならば99.9%が10分以内に沈降し終るが, 1μ 程度の粒子の場合には10時間以上必要であるという数値を出している。

野外に放散された粒子の場合には気象学的および地理学的に多数の要因が関係してきて一概には云えないが, Stewart の報告によれば, 約37日経過しても微細な粒子の半分が残留浮遊しているようである。⁴²⁾

次に, 床または地面等に沈着した酸化 Pu 粉末は風, 人の歩行, 車両の通行等により再浮遊し, また汚染面積を拡大することが考えられる。この問題の定量的評価は困難であるが, 再浮遊現象に関し2, 3の実験的報告が

あるので参考となる部分を紹介する。いま再浮遊係数を次式で定義すると,

$$\text{再浮遊係数} = \frac{\text{空中に浮遊する汚染物の濃度 } (\mu\text{Ci}/\text{m}^3)}{(\text{床または地面の})\text{表面汚染濃度 } (\mu\text{Ci}/\text{m}^2)}$$

この値は沈着表面, 粒子, および攪拌状態等により大きく変動し, $1 \times 10^{-2}\text{m}^{-1}$ (ペンキ塗装コンクリート床, 微細な粒子, 機械的攪拌および気流の場合) から 10^{-13}m^{-1} (砂漠, 沈着後長時間経過した Pu 粒子, 自然の気流) に至る広範囲な値をとる⁴²⁾。

事故的に放出された PuO_2 粒子の再浮遊係数としては, J. Mishima らは管理区域内で $10^{-5} \sim 10^{-6}\text{m}^{-1}$ という値を提示している。なお放出後の時間経過にともない風化作用 (Weathering) を受けて再浮遊係数が小さくなり, その場所の土壌表層に混りこんで固定化する傾向がある。⁴²⁾

5. 消火方法および消火後の処置

5.1 これまでの火災に使用された消火剤の効果

第2節にあげた各国の火災事例^{1)~11),26)}について消火方法を調べてみると第5表および第6表のようになる。

ウラン火災の場合は、備付消火器を使って消火することができ^{1-a)}、砂を用いても火勢を弱化できるが²⁶⁾、水を使った時には火勢の拡大することがあった^{1-a)}のは留意すべきであろう(第5表)。

またプルトニウム火災の場合には、砂で火勢を弱めえたこともある⁵⁾が、一般に効果的で安全な消火剤は実用化されていないようである(第6表)。たとえば炭酸ガス消火器を用いた場合にはPu汚染物がガス圧のために飛散^{1-a),7-a)}し、四塩化炭素を使った場合には爆発を起すおそれがある^{2-a),3-c)}。また消火法をいろいろ試みた末、最後に噴霧水消火法で鎮火した事例がある^{2-a)}が、これはプルトニウムが既に燃えつきていたものとも考えられるので、噴霧水法が果して効果的だったかどうかは解らない。

第5表 ウラン火災の消火事例

消 火 剤	使用 件数	使用 効果
消 火 器 備 付	2	鎮 火
旋盤の冷却剤	1	"
水	2	"
"	1	火勢拡大
乾 燥 し た 砂	2	火勢弱化
塩化バリウム	1	役立たず

第6表 プルトニウム火災の消火事例

消 火 剤	使用 件数	使用 効果
炭 酸 ガ ス	4	鎮火せずPu飛散
四 塩 化 炭 素	1	Pu 飛散
"	1	爆 発
水	1	鎮 火 ?
砂	1	くすぶる

5.2 望ましい消火剤

金属火災の特質上、消火剤としては次の要件を備えることが必要である。

第5図 Pu火災に対する粉末消火剤(弗化物系 TEC)の効果³⁵⁾(削屑 13 g, 棒片 77 g)

- (1) 発火した金属上に撒布した場合に何らかの窒息効果ないし冷却効果をもつこと(このためには、撒布した消火剤が多量の潜熱を吸収して融解し、粘着性のある被覆を形成すること)。
- (2) 臨界事故誘発の危険性が無いこと^{7-b)}、(火災現場にある濃縮ウランまたはプルトニウムが最小臨界量以上存在する場合には、中性子減速剤ないし反射剤となる物質、たとえば H, D, He, Be, C などの元素が消

火剤の中に含まれないことが望ましい)。

- (3) 高温のもとで Pu に接触しても化学的に安定であること。
- (4) 吸湿性、潮解性がなく、長期間の保存に耐えられること。
- (5) なおできうれば、消火後に Pu を消火剤から分離回収できること。

これらの要件を満たすことを目標として、次のような消火剤が開発されている。

(1) Met-L-X 主成分 NaCl (融点 800°C)

あらゆるタイプの金属火災に効果のある乾燥粉末として米国の Ansul Chemical Company で開発されたものである。NaCl に流動性をもたす物質、熱にあって NaCl を固化させる物質、水を弾じく物質等が添加されている。³⁷⁾

(2) TEC (3 重共晶物)

これは英国で採用されている消火剤で、はじめ塩化物 (KCl, BaCl₂, NaCl) の 3 重共晶物 (融点 630°C) が開発された³⁴⁾が、粉末状 Pu の火災には効果が無いので、次に弗化物 (LiF, NaF, KF) の共晶物 (融点約 600°C) が開発された。³⁵⁾ (このの 難点は 弗化物の毒性のため製造が困難なことである。)

現在までに Pu 火災に対する効能を確かめられた消火剤はこの弗化物系 3 重共晶物のみのようである。その試験結果の一部を第 5 図に示す。燃えている Pu (700~800°C) を TEC 消火剤で被うと、第 5 図のように温度が急速に低下し、6~7 分後には 200°C 以下となった。15分後に Pu を TEC 被覆から取出すと、強固な TEC 溶解被膜 (frit) で囲まれていた。³⁵⁾

5. 3 危険な消火剤

出火当初における撒水消火法は、とくにプルトニウム火災の場合において、燃焼助長の危険がある。^{1-a), 16), 19)} なお天然ウラン、劣化ウランの場合を除いて臨界事故誘発の危険をともなう。^{7), 38)}

また炭酸ガス消火法は効果が無いばかりでなく、かえって汚染を拡大したという事実を 5.1 で紹介したが、同様の理由で粉末消火器、重曹 (ドライケミカル)、酸アルカリ (Soda acid) 消火器、および四塩化炭素消火器も不適当な場合がある。^{7-b)}

なおグローブ・ボックス内のプルトニウムが発火した場合には不活性ガス (Ar, He, N₂ 等) を使用することがあるが、この場合にはガス中に水分を含んでいないことが必要である¹⁶⁾。またグローブ・ボックスの密閉ないし氾濫機能を損うと汚染拡大とか窒息死事故等起すお

それがあるから注意を要する。²⁴⁾

5. 4 消火要領に関する若干の参考意見 (抜すい)

グローブ・ボックス内で Pu 金属が発火した場合にとるべき措置としては、Appleton および Dunster らが述べている方法²⁴⁾が参考となろう。すなわち、

「ボックス内で Pu が燃え出した場合は、乾燥粉末消火剤をサジですくって蔽せるのがよい。このときは気前良く大量に撒布すべきである。もしできるならば、粉末消火剤に包まれた Pu を粉末消火剤に残っている金属製容器の中へ、サジで移し変えるのが良い。あとに残された消火剤粉末はかき集めて金属容器中の Pu の上へ放り込めばよい。それから後の処置はグローブ・ボックスのデザインによって異なる。

グローブ・ボックスの内部へ外界の空気が入ると、燃えている Pu は火勢が強くなる。ところがその金属容器をグローブ・ボックス内に残しておけば、Pu は燃え尽きて Pu 酸化物その他の安定な化合物となり、Pu が粉末または煙状として外部に洩れ出すことが少なくなる。」

また別の要領として Holliday らの報告³⁴⁾も参考となろう。

すなわち「グローブ・ボックス内の小さな火災の消火法として、約 2kg の消火剤粉末 (TEC) を容れた袋 (薄い P.V.C. 製) を火の上に落すことで成功した。

また拡大した火災の場合は、不活性ガスを使用する粉末撒布器で消火剤を吹き掛けるべきである。」

TEC 等の理想的な消火剤が手許に無い場合には、応急的に他の物質を使用して火勢を抑制しなければならない。しかし何でも撒布すれば良いという訳にはゆかないが、乾燥した食塩、砂、酸化マグネシウム、弗化カルシウム^{7-b)}などは使用して良い。しかし、これらは完全な消火剤ではないから、多孔性粉末被覆の下でゆっくりした燃焼が続く、被覆をかき乱すと再び燃え上ることになる。なお黒鉛^{7-b)}も火焰抑制剤とされているが、Pu が臨界量以下でなければ臨界超過の危険がある。しかし中性子吸収剤²⁸⁾ (Cd 等) を併用する方法もある。

また微量の Pu が発火した場合には、銅片または銅のブランケットで蔽うのが効果的¹³⁾といわれている。それは銅の熱伝導性および熱容量が大きく、したがって冷却効果を期待できるためである。

これらの消火剤を使う場合は、いずれの場合でも濡ったもの、濡れたものを使わぬよう細心の注意を必要とする。水分または水素が存在すると火勢が強まるからである。¹⁶⁾

またグローブ・ボックス内の消火の際に、外部から空

気が流れこむと火勢が強まるから、グローブ・ボート等を開けないようにしなければならない。²⁸⁾このためにはグローブ・ボックス内に粉末消火剤等を常備する必要がある。

最後に、ウラン火災に対する考え方として、U.S.AECには「濃縮ウランの火災は一般に燃えるままにしておく。それは非常に貴重なので、回収できるように又汚染を避けるためにできれば煙霧を集めるように設計した集塵装置の中で燃えるままにしておくべきである。(中略)濃縮ウランが消火剤と混合されると、純粋なものと金属に戻ることは一般には不可能である。このような損失は燃えるままにしておくよりはずっと高くつく。……」という見解がある。⁷⁻⁶⁾国情により考え方に多少の相異はあると思うが注目すべき意見といえよう。

5. 5 消火後または爆発後に残る問題

(1) 消火後残留物の自然発火および毒性の存続

これは比較的小規模の火災の後に特に注意しなければならないが、消火後の残留物の中にはウランまたはプルトニウム金属が含まれており、これらが空気、水等に触れて再発火することがある。³⁴⁾また毒性は如何なる過程を得ても消滅しないから、その取扱いには細心の留意を要する。

(2) 消火後または爆発後に残留物を集積することによる臨界事故の危険性

残留物の中にはウラン、プルトニウムのほかに C. H その他の減速剤、反射剤を形成する物質が含まれていることがあるから、³⁴⁾これら残留物の収集と処理にあたっては臨界管理に関する十分な配慮が必要であろう。

(3) 放射性汚染の処理および管理

Oak Ridge における1959年の Pu 放散事故の際に、Dr. Morgan 保健物理部長のとした次の処置が参考となろう。³³⁾

まず一般公衆に対しては、

- (a) 事故を起した工場へ流入する水を切り、廃水池への流れを最小にする。
- (b) Pu で汚染した水を汲み取って 廃棄物捨場のピッチに運ぶ。
- (c) Pu で汚染された廃棄物が散るのを防ぐ。
- (d) 一般見学を中止する。
- (e) 近傍のサーベイを行なう。

次に研究所の作業員に対しては、

- ① 皮膚汚染のモニターを行う。
- ② 衣服のチェック、汚染区域へ入る人に防護衣、靴カバー、帽子等を着用させる。

③ 尿、糞試料の採取を可能なかぎり実施し、24時間作業で分析する。(別の研究所では鼻汁採取を考えているところもある。²¹⁻⁶⁾)

④ スミヤ、空気、落下塵等の試料をラジオ・オートグラフと放射能計数法によって測定する。

⑤ 汚染区域への立入禁止(特に傷のある人)

⑥ チェッキング・ステーション 2 箇所の設置

⑦ 食堂に入る人の靴のチェック(2日間)

⑧ 研究所より出る車のチェック

⑨ 研究所に出入する人の記録

⑩ 汚染を想定される人の自宅のチェック

また施設面の汚染拡大防止策としては、

(i) 道路にタール塗装を行ない砂利を敷く

(ii) 汚染の想定される歩道、垣根、壁、および車輛等に厚いペンキを塗装する。

(iii) 屋根を新しくする。

(iv) 通路を制限し、入口、温度調節装置、換気装置を密封する。また汚染検査所等の床面へ吸収紙を敷く。

(v) 汚染したトラック等を地下に埋没する。

(事故現場の近くにあつた車両は Pu 汚染物のために汚染した。これは時間があれば汚染除去し得たであろうが、汚染の拡大を防ぐために止むを得ず埋没した。クレーン車で注意深く移動した。)

6. あ と が き

概略の報告に留めようと筆をとったが、書き出してみると思ったより紙数の要ることが解った。

たまたま原子力学会からもこの問題に関する執筆依頼を受けたので、個々の事故例の具体的記述とその反省資料、防火ならびに消火対策上必要な施設、Pu の発火に関する実験資料および Pu 取扱法などは原子力学会誌を借りて述べることにし、ここでは保健物理および消防活動面の諸問題を中心に報告することとなった。

なお、Pu に関する文献調査を続けてゆくうちに、次の事項の解決が重要であるに拘らず未解決であることを知った。① Pu 金属の自然発火の定量的性質、② 安価、安全かつ効果的な消火剤、③ 不燃性フィルターなど、④ Pu 施設周辺の整備ないし立地条件。これらの面について今後の研究・開発の推進を期待したい。

最後に、この報告を作成するにあたり、火災問題を取扱う機会を与えて下さった日本原子力研究所保健物理安全管理部、坂岸昇吉部長、宮永一郎次長および丸山吉三安全対策課長に深く感謝しております。また終始貴重な

る御指導を賜った菊池栄助氏および海外情報資料の入手に親切的な御支援を下さいました原子力局・高橋劭技官、尾野了一技官；原子燃料会社・鈴木恭一郎氏、木下睦氏および日本原子力研究所・菊池武雄氏、志知大策氏、大

西武氏、南賢太郎氏、松山謙三氏、島貫良一氏、石原豊秀氏、藤田稔氏、赤石準氏、古川和男氏、江村悟氏、野本昭二氏に厚くお礼申し上げます。

(42年7月15日受理)

引 用 文 献

- 1-a) Daniel F. Hayes: A summary of incidents involving radioactive material in atomic energy activities, TID-5360 (1956)
- 1-b) Daniel F. Hayes: TID-5360 Suppl. (1957)
- 2-a) U.S. AEC: A summary of industrial accidents in U.S. AEC facilities, TID-5360 Suppl. 2 (1959)
- 2-b) U.S. AEC: TID-5360 Suppl. 3 Rev. (1961)
- 2-c) U.S. AEC: TID-5360 Suppl. 4 (1963)
- 2-d) U.S. AEC: TID-5360 Suppl. 5 (1965)
- 3-a) U.S. AEC: Serious Accidents No. 237 (1964)
- 3-b) U.S. AEC: Serious Accidents No. 242 (1965)
- 3-c) U.S. AEC: Serious Accidents No. 246 (1965)
- 3-d) U.S. AEC: Serious Accidents No. 258 (1965)
- 3-e) U.S. AEC: Serious Accidents No. 261 (1966)
- 3-f) U.S. AEC: Serious Accidents No. 130
- 4) J. Barghusen and A.A. Jonke: Incident in plutonium processing facility at Hanford, Reactor Fuel Processing, Vol. 7, No. 4 (1964)
- 5) U.S. AEC: Accident and fire prevention information, Issue No. 96 (1959)
- 6) E.A. Putzier: Plutonium hazards and accident experiences, RFP-621, pp 6~10 (1965)
- 7-a) U.S. AEC: Living with radiation, Part II, pp 162~163
- 7-b) ibid, pp 149~151
- 7-c) ibid, pp 168~169
- 7-d) ibid, pp 181~186
- 7-e) ibid, p. 107
- 8) D.R. McFee and H.V. Rhude Jr: Cutting wheel residues of plutonium waste causes explosion, Health Physics, Vol. 10, No. 10, pp 757~760 (1964)
- 9) Henry B. Smets: Review of nuclear incidents, pp 122~123 (1961?)
- 10) 角川正義, 井上義教: 放射能火災の原因とその対策(その1), 硝酸による火災その他, (1966)
- 11-a) B.A.J. Lister 講演: プルトニウムの保健物理的問題についての特集, 日本保健物理協議会ニュース, No. 10-11-12, pp 13~14 (1964)
- 11-b) ibid, pp 15~17
- 11-c) ibid, pp 22~23
- 11-d) ibid, p. 33
- 11-e) ibid, p. 46
- 11-f) ibid, pp 49~60
- 11-g) ibid, pp 76~83
- 12) 日本放射性同位元素協会: 体内放射線の許容線量, ICRP シリーズ 2, (1960)
- 13) 日本原子力研究所: プルトニウム取扱施設取扱要領, I 総則, (1966)

- 14) J.F. Sachmann, *Nature* 197, 587 (1963)
- 15) J.G. Schnizlein and D.F. Fischer: Isothermal oxidation of plutonium, ANL-6687, pp 171~177 (1963)
- 16) J.G. Schnizlein and D.F. Fischer: Plutonium oxidation and ignition studies, ANL-6800, pp 359~383, (1964)
- 17) J.G. Schnizlein et al: Metal oxidation and ignition studies, ANL-6808, pp 70~72.
- 18) 角川正義, 井上義教: 放射能火災の原因とその対策(その2), ——主として Pu 火災の発火原因に関する文献翻訳集——, JAERI-memo No. 2533 (1967)
- 19) Richard B. Smith: Pyrophoricity— A technical mystery under vigorous attack, *Nucleonics*, (Dec) pp 28~33 (1956)
- 20) A. Chappelier 講演: 原子力施設における火災対策, 日本原子力学会誌, Vol. 6, No. 1 pp 45~49 (1964)
- 21-a) 原子燃料公社, 東海, プルトニウム研究開発室: プルトニウム燃料研究施設安全対策書, pp 97~99 (1964)
- 21-b) *ibid*, pp. 189~202
- 21-c) *ibid*, pp 203~208
- 22) 江村 悟: グローブ・ボックスの製作とその取扱技術, JAERI-memo, No. 2046, pp. 85~97 (1965)
- 23) J.D. Moseley: Study of plutonium oxide heat generation in a wood moderated container, RFP-418, pp 1~29 (1964)
- 24) G.J. Appleton and H.J. Dunster: Fighting plutonium fires, AHSB (RP) R6, pp 33~36 (1961)
- 25) H. Lloyd: The control of uranium fires, AERE M/R 1075 (1952)
- 26) R.B. Smith: The fire properties of metallic uranium, TID-8011 (1956)
- 27) R.K. Hilliard: Probable volatilization of plutonium during a fire, HW-71743 (1961)
- 28) 日本原子力研究所: プルトニウム研究棟応急措置要領 (1966)
- 29) 日本火災学会: 火災便覧 pp 681~685 (1955)
- 30) 日本放射性同位元素協会: 放射線施設の火災対策 (1961)
- 31) L.J. King, W.T. McCarley: Plutonium release incident of November 20, 1959, ORNL-2989
- 32) J.R. Parrott: Decontamination of cells 6 and 7, building 3019, following plutonium-release incident, ORNL-3100 (TID-4500, 16th ed.)
- 33) 石原豊秀: オークリツチ国立研究所における1959年11月20日の爆発事故, 日本原子力研究所防護隊訓練てびき, pp 116~130 (1964)
- 34) J. Holliday: The extinguishing of uranium and plutonium fires, TRG-Report 86 (D)
- 35) J. Holliday and W.A. Conway: The extinguishing of plutonium fires, TRG-Report 342 (D)
- 36) Edmund D. Zetafsky: Special dry power extinguishing agents, *Quarterly of NFPA*, October, pp 154~157 (1960)
- 37) Engineering Department, Wisconsin: Demonstration of Ansul Met-L-X extinguishers for metal fires, pp 60~69 (1950)
- 38) Goodyear Atomic Co.: Nuclear safety guide, TID-7016 Rev. 1 pp 7~19 (1961)
- 39-a) 赤石 準: 保健物理のためのプルトニウムの化学, JAERI-memo No. 2322, pp 18~20 (1966)
- 39-b) *ibid*, pp 51~57
- 40) IAEA: Environmental monitoring in emergency situations, Safety Series No. 18, pp 14~15 (1966)
- 41) T.S. Macley: The glove box fire test results, ORNL-TM-923, pp 1~9 (1964)
- 42) J. Mishima: A review of research on plutonium releases during overheating and fires, HW-83668 (1964)

- 43) K. Stewart: The particulate material formed by the oxidation of plutonium, Progress in Nuclear Energy, Series IV, Vol. 5, pp 535~579 (1963)
 - 44) R.K. Hilliard: Characteristics of burning plutonium, HW-77531 (1963)
 - 45) 原子力気象調査会 : 東海村の煙突から出る廃棄物の拡散に関する調査, (1959)
 - 46) S.K. Friedlander et al: Deposition of suspended particles from turbulent gas streams, Ind. and Eng. Chem. Vol. 49, No. 7, pp 1151~1156
 - 47) A.C. Chambalein: Transport of particles across boundary layers, AERE-M-112 (1962)
 - 48) H.G. Tanner: Evanescence of cloud chamber aerosols, Arch. of New York Academy of Science (1963)
 - 49) 古川和男, 井口八枝 : ナトリウム火災の研究, 改訂版 (NAA-SR-4383 訳), JAERI-memo No. 2184, p 96 (1966)
 - 50) 島貫良一 (談) : MS-3 の Mg 火災に対する試験結果 (1966)
 - 51) 井上義教, 角川正義 : Pu 金属火災の消火実験に関する文献訳集 (JAERI-memo に投稿準備中)
 - 52) Mieczystaw Taube: Plutonium, Pergamon Press (Polish Scientific Publishers), (1964)
 - 53) American Industrial Hygiene Association: Respiratory protective devices manual, p 105 (1963)
 - 54) D.E. Patterson et al: A summary of incidents involving USAEC shipments of radioactive material (1962)
-