

福島第一原子力発電所事故の収束と修復に向けて—水化学の立場から

石樽顕吉

1. はじめに

事故発生から半年余が経過した。国と東京電力は7月19日に“「事故の収束に向けた道筋」進捗状況と当面の取り組み”において、事故収束へのステップ1は概ね目標を達成したとして終了を宣言した。その後実施中のステップ2についても予定より早く終了可能であるとの見通しが最近になって発表された。当初予定通りの進捗は困難との見方もあった中で、ここまで到達できたことを慶び、関係者の努力に心から敬意を表するものである。

ステップ2及びその後の中期的課題のロードマップを見ると、「水処理」や「除染」と言ったキーワードが数多く並んでいる。その関連技術は正に本部会に直結したテーマであるが、これまで本部会は事故対応の活動を行ってこなかった。部会メンバーが各々の組織を通して個別に事故対応に深く関与し、実質的に大きな貢献をしていることは想像に難くない。また、余りに近過ぎるが故に却って学会活動に関り難いという面もあるかもしれない。しかし我が国の原子力発電が未曾有の危機に直面している時、一刻も早い事故の収束と修復のために、我々は学会活動として何もしなくてよいであろうか、何かお手伝いできることがあるのではないかという思いに駆られるのは筆者だけではないであろう。他の部会や専門委員会では既に活発な対応を行っているところもある。例えば「原子力安全」調査専門委員会は緊急シンポジウムを開催したほか、クリーンアップ分科会が、修復計画に向けて、課題の摘出・整理や提言を行っている。一方、バックエンド部会は会員有志により汚染水処理のための吸着剤を対象に基礎データを収集し、その結果をホームページに公表している。

今回の事故の推移をみると、多くの局面に“水”が関わっている。例えば、発端となった津波による“水害”、引き続く炉心冷却水の注入停止、海水の代替注入と淡水への切り替え、水と燃料被覆管との反応により発生した水素による爆発、燃料熔融後の高放射能滞留水の発生と漏洩などが上げられる。ステップ2の後には3年程度を要するとされる中期的課題があり、長期に及ぶと予想される修復過程から廃止措置によって全てが終わるまでにどれだけの年月を要するか現時点では明らかでない。しかし今後の過程において水処理や除染技術はますます重要性を増すものと考えている。本稿では事故の分析、評価、防止対策、収束・修復技術などを考える上で水化学が関与しうる可能性について思いつくままに拾い上げ、本部会として何ができるかを議論するための材料としたい。

2. 水化学の関わり

時系列的に見ると、まず水化学の立場で注目されるのは海水の炉心への注入である。海水注入は1号機で最も早く、津波来襲の約30時間後、2号機で70数時間後、3号機では約48時間後に実施され、3月25-26日にはいずれも淡水注入に戻されている。したがって3機とも2週間程度炉心及び機器・配管系が海水に曝されていたことになる。材料の海

水への曝露はその健全性に大きな影響をあたえるのではとの危惧を生ずる。淡水冷却に戻しても、後述するように、海水成分は一気に除去されるわけではなく、長く残存すると考えられ、長期に亘る影響が懸念される。さらに重要なことは、海水注入が開始された時期には3機全てにおいて、程度の差はあれ、燃料の溶融が起こっていたと想定されることである。水系における燃料溶融はTMI事故においても起こっているが、今回はさらに海水という因子が加わっており、これは壮大な研究テーマである。

水系における核分裂生成物（FP）の化学挙動は原子炉冷却系の水化学のテーマの一つであった筈である。運転経験が浅く運転中に燃料破損が起こっていた時代には、冷却水中にFP核種の一部が検出され、従事者被曝へのFP核種の寄与が無視できなかつたと聞く。国際的に水化学の重要性の認識が高まった第1回（1977年）、第2回（1980年）のボーンマス国際会議では、既に腐食生成物研究の全盛期に入っており、FPに関連しては、放射性ヨウ素の水相から気相への分配を扱った論文がみられる程度である。

ヨウ素の化学挙動は水化学のテーマの一つであるが、シビア・アクシデントの研究課題でもある。シビア・アクシデント研究はTMI事故後の一時期活発に行われた。OECD-NEAの「原子力施設の安全に関する委員会」（CSNI）のもとにシビア・アクシデントの“ソースターム”を扱うワーキング・グループが設置された。TMI事故では、ベントによって250万Ci（93ペタBq）と多量の放射性希ガスが放出された以外は、放射性ヨウ素の ^{15}Cs （0.00056ペタBq）と少量の放出にとどまった。ヨウ素の放出が少なく、セシウムも系内に滞留した原因を明らかにする研究が活発に進められた。破損燃料からヨウ素はヨウ化セシウム（CsI）の形で放出されるとされ、これが水に溶解すれば、気相には移行しない。しかしヨウ素が反応によって化学形を変えれば、気相への移行が起こりうる。この点を明らかにするため、CSNIは「ヨウ素化学」ワーク・ショップを開催した。英国（1985）、カナダ（1988）に続いて第3回は日本（1991）で開かれ、ヨウ素の化学挙動を解析するための平衡論や放射線分解のデータ整備と解析が進められた。筆者は放射線分解のモデル実験を行い、ワーク・ショップに参加して、基礎データの取り纏めのお手伝いをした。ヨウ素水溶液の放射線分解反応は極めて複雑で、ヨウ素放出挙動の把握には計算機シミュレーションが不可欠である。入力データとしてヨウ素種のデータ整備が進められたが、事故を想定すると、種々の因子をモデル的に組み合わせた統合模擬試験が必要とされた。ヨウ素挙動に関連する統合試験としてPHEBUS国際プログラムなどあり、日本も参加していた。

今回の事故は水素爆発の恐ろしさをまざまざと見せつけた。TVに映し出される爆発と無残な残骸の姿は一般の人々に核爆発が起こったと誤解を与えかねないものであった。筆者は1-4号機で水素爆発が起こったと考えているが、爆発の大きさと時間には差異がある。最も早く起こったのは1号機で、津波来襲のほぼ24時間後（3月12日）、次は3号機で14日、4号機と2号機は15日で、爆発の場所は1,3,4号機で原子炉建屋である。2号機では圧力抑制室付近で爆発音があったが水素爆発と確認されたものではない。4号機については後述するが、1-3号機の水素爆発までの時間差は電源喪失後の非常用炉心冷却装置

の作動した時間の違いによるものと考えられる。1号機には非常用復水器（IC）が設置されていたが、津波来襲後作動しなかったため、最も早く水素爆発が起きている。解析によれば、1-3号機において爆発時点で既に燃料の過熱による炉心溶融が起きていたと計算され、結果的には水素爆発が放射性物質の広範な飛散に繋がっている。

水素の発生は燃料被覆管中のジルコニウムと水（蒸気）の反応（1）によるとされる。



炉心で発生した水素は先ず格納容器中に漏洩し、さらに原子炉建屋内に出て、蓄積し爆発に至ったということであろう。水素の格納容器への漏出は安全評価における事故シナリオに包括されており、爆発防止対策として格納容器は窒素ガスで封じられている。しかし原子炉建屋内への漏出は想定されていない。水素と恐らく燃料から放出されたヨウ化セシウムあるいはヨウ素が原子炉建屋に到る経路、セシウムやヨウ素の移行時の形状や挙動、水素の蓄積挙動の解明などは注目されるテーマである。確かめてはないが、PHEBUS プログラムなどで類似の状況が扱われているのではないかと考えている。

反応（1）は言うまでもなくジルコニウムの腐食を表し、水化学では炉水温度近傍での ZrO_2 生成速度に関心があるが、事故関連では高温領域での水素生成が重要である。（1）は発熱反応（586KJ/mol）で、反応の活性化エネルギーが大きく、反応速度は約 1000℃以上で時間に対して放物線則に従うことが知られている。発熱反応による発生熱は燃料温度を急上昇させ、水素発生を促進することに繋がる。放物線則に従うことは反応が拡散律速に支配されて進むことを表すが、燃料溶融が起きた状況での（1）式反応速度についてデータは無いようである。1,3号機では炉心損傷の後相当の時間を経て原子炉建屋で水素爆発が起こっており、この間の水素生成速度の評価が欲しいところである。

水の放射線分解は原子炉水化学の重要なテーマの一つであるが、事故時の化学にも関りをもつと考えている。今回の事故では炉心に一時海水注入が実施された。海水系における放射線分解と生成物の燃料・材料健全性及び溶融燃料との相互作用への影響などが気になるところである。

水の放射線分解は水素の発生とも関る可能性がある。筆者が特に気にしているのは4号機である。地震発生時、この炉は定期検査中で全燃料が燃料プールに移され、炉心には全く燃料が無かったが、3月15日には原子炉建屋で水素爆発が起きている。この水素について、当初燃料プールの損傷により水位が低下し、燃料の露出が起って（1）式により発生したと推定されたが、その後ベント系排気管を通して3号機からの流入の可能性が考えられている。筆者は燃料プールにおける水の放射線分解の可能性を疑っている。4号機プールには1300体以上の多数の燃料が存在し、その放射線によってプール内で生成し、気液界面から沸騰等によって気相へ移行した水素は原子炉建屋の換気系が停止すれば、建屋内に蓄積する可能性がある。

燃料プールの冷却は、4号機を別にしても、1-3号機における事故後のアクシデント・マネジメント（AM）で大きな負担となっている。今回、燃料プールへの海水注入後

淡水に戻されているが、合わせて2-4号機では多量のヒドラジン、また3号機ではpH調整のためホウ酸注入が行われており、燃料プールの水化学も研究テーマとなるであろう。いずれにしても、燃料プールの更なる安全確保は、4号機のような特異なケースも含めて、今後の重要な検討課題である。

ステップ2の重要な目標である原子炉の冷温停止を順調に達成するには、高放射能の滞留水を処理する循環注水冷却系が引き続き長期間安定に稼働できることが必須である。このシステムは急ごしらえであったにも拘わらず、関係者の努力によって、初期トラブルを克服し、安定した運転段階に入っているように見える。これは①油分離装置、②セシウム吸着装置、③除染装置及び④淡水化装置からなるとされ、②、③は海外の技術であるという。1200 t/日程度の処理能力があるが、処理水の約半量を注水に回すので、対象となる汚染水を処理し終わるには半年程度かかるとされる。この処理施設でセシウムのDFは 10^6 程度であり、塩素濃度は20ppm程に下げられている。8月下旬にはセシウム吸着処理施設（サリー）による施設の増強が行われた。これらのシステムや運転データについては、技術ノウハウのためか、極めて限られた情報しか公表されていない。長期にわたる安定性の確保や水処理に付随して発生する廃棄物の低減などの課題が想定され、関連した情報には関係者の関心が高いばかりでなく、これを分析・評価することは、ステップ2以後の燃料取り出し作業のために必要な技術開発の検討にも不可欠なものと考えている。しかるべき段階で可能な限り公表されることを期待したい。

プラントからの燃料の取り出しは、ステップ2後における極めて困難で大きな課題である。まずは燃料プールからの取り出しが先行することになるが、大部分の燃料に大きな損傷はないと評価されているのは心強い。しかし一時海水環境におかれた燃料もあって、健全性にどのような影響が現れているかは気になるところであり、得られる結果は貴重である。

炉心からの損傷燃料の取り出しは、長時間を要し、そのための技術開発を必要とする大難事業と考えている。炉心における燃料の状況が全く把握されていない段階での見通しではあるが、格納容器に水張りをしたうえで、水中での取り出しが計画されている。原子炉建屋内の除染や格納容器内部の調査が不可欠であり、破損燃料と接している水のサンプリング、分析、処理や、水張りができたとして、この張り水の処理・管理など水化学の出番が生まれそうである。圧力容器から損傷燃料を取り出した例はTMI事故で経験があるが、今回は損傷燃料の格納容器内への流出も想定され、これらの燃料を取り出すには計りしれない技術的及び非技術的困難が予想される。遠隔操作や監視技術など広く多数の分野の専門家が連携し、技術開発を進め、総力を挙げて立ち向かうべき課題である。TMIなどの海外における貴重な経験も十分に学習し、英知を結集して取り組むべきと考えている。

3. 今後の取組み

以上、筆者の独断で思いつくままに、シビア・アクシデントの発生から収束・修復

のステップの中で、水化学が関与できる可能性について拾い上げてきた。これらの事象はこれまで本部会の研究活動に必ずしも包含されてこなかったものである。我々は安定的に運転されるプラントにおける純化された、あるいは *taylor-made* の冷却水の問題に特化して検討してきたため、FP で高濃度に汚染され、海水が多量に浸入した冷却水は考えたことが少なく、今回のようなケースは“想定外”となってしまう。しかし後付けの反省とて言えば、やはり学会活動としては不十分だったのではないか。学術的には、希薄溶液系に比して、濃厚溶液系は扱いが難しい。我々は容易な希薄溶液系だけを扱ってきたわけである。濃厚溶液系はこれまで扱ってこなかったとは言え、全く異なった分野ではなく、希薄溶液系の延長線上の問題である。例えば、大きな燃料破損があれば FP 濃度は高まるであろうし、復水器に大幅な海水漏洩があれば、塩分濃度も当然高くなる。我々はそういった状況が起こらないように、水化学管理を行ってきたわけである。しかし今回不幸にして、他の要因で“想定外”の事象が起こってしまった。類似の事象が起こった過去の事例を研究し、得られた教訓を改めて紐解いて研究し、今後の活動に役立てることも極めて重要である。これを機会にこれまで取り上げてこなかった問題を、水化学研究の幅と厚みを広げる意味で、部会活動の一部として研究対象に取り込むことを提案したい。

既に述べたように、本部会はこれまで学会として福島事故対応の活動を行ってこなかった。現在までに、シビア・アクシデントの防止対策や対応策の強化について今回の事故から既に数々の教訓が得られているが、事故解析等が進むにつれて更に教訓の収集が進むであろう。事故の分析、評価、防止対策あるいは事故後の対策の検討の中で、我々の立場から何が出来るかを考えた上で、水化学として、あるいは水化学的視点で貢献できる事象を抽出して提言していくことが重要である。更に言えば、いかに辛くとも、今回の事故を正面から受け止め、その究明の中から反省と教訓を引き出して、これを後世に伝えていくこと、特に海外の関係者に発信していくことが我々に課せられた責務ではないであろうか。2014 年に日本での開催が予定されている水化学の国際会議はまたとないこのチャンスである。海外からの参加者は恐らくこの点に大きな関心を持って参加するであろうし、このようなテーマを掲げることによって、参加者の拡大も期待できるであろう。

繰り返しになるが、2014 年の国際会議のためだけというより、これを視野に入れながら、今後、本部会活動の一部として福島事故対応の技術的検討を定例研究会などで取り上げることを提案したい。その検討のためにアドホックのワーキング・グループを設けるのも一案であろう。

平成 23 年 9 月 25 日記