

## 福島第一原子力発電所第四号機の水素爆発の謎 － 沸騰水のラジオリシスと水素濃縮 －

東京大学 勝村 庸介

Although it seems that the reactor #4 at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station was destroyed by hydrogen explosion, the origin of the hydrogen has not been made clear yet. Relevant to this subject, the gamma-radiolysis of boiling water has been done. It was found that hydrogen evolution and its enrichment take place under boiling condition.

**Keywords:** hydrogen explosion, hydrogen formation, radiolysis, boiling water, hydrogen enrichment

### 1 はじめに

平成 23 年 3 月 11 日午後 2 時 46 分にマグニチュード 9.0 の巨大地震が三陸沖で発生し、引き続き津波は三陸海岸から仙台湾を中心に、日本の太平洋側の海岸線を襲い、多くの地域に壊滅的な損害を与えた。東京電力福島第一原子力発電所では地震で外部電源喪失をし、非常用発電機が始動したが、使用可能であった 12 台の非常用発電機は 6 号機の 1 台以外、津波で使用不能となった。そのため、緊急停止した 1 号機から 3 号機までの原子炉压力容器内の燃料は冷却不能に陥り、冷却水不足により燃料は水中から露出し、高温下での核燃料被覆管材料であるジルコニウムと水の反応により水素が発生し、これらが原子炉建屋内に充満し、水素爆発を起こし、1, 3 号機の建家が破壊されていった。

4 号機も水素爆発して建家が損傷したと見られる。ところが、4 号機は 1-3 号機と異なり、前年の 11 月末より

定期点検中で、しかも燃料は压力容器から取り出され、燃料プールに保管されていたことから、その状況は他のものと異なり、当初より水素爆発の原因が検討されてきた<sup>1)</sup>。4 号機の燃料プール水の体積は 1,425 m<sup>3</sup> で、総熱量 2.3 MW の崩壊熱を放出する 1,331 体の燃料集合体が保管されていた<sup>1,2)</sup>。4 号機での水素爆発の可能性として、(1)ジルコニウム-水反応、(2)プールのラジオリシス、(3)3 号機からの水素ガスの移行、の三つがあげられていた。プールの水が抜けて、保管燃料が水から露出すればジルコニウム-水反応が生じて、水素が発生し、水素爆発を起こせば燃料内の放射性物質が飛散するため相当な放射能汚染が引き起こされることが想像される。2.3 MW の崩壊熱により全プール水が沸騰蒸発するに要する時間を計算すると 15 日程度になる。しかも、沸騰に至るまでにも 2 日程度は必要である。ところが 4 号機で水素爆発が起こったとされるのは 3 月 15 日 6:10 AM 頃であり、電源喪失から 3.5 日であることから、ジルコニウム-水反応がおこるためには、プールの水が何らかの原因で抜けてしまう必要がある。また、東京電力が可能性として考えている 3 号機から 4 号機への水素ガスの移行についても、3 号機の水素爆発は 3 月 14 日 11:01 AM に起こっており、4 号機の水素爆発の前日、天井の抜けた 3 号機から 4 号機へ水素が移行するのは困難と考えられる。

4 月 13 日には 4 号機のプール水のサンプルリング結果が報告され、I-131, Cs-134, Cs-137 はそれぞれ、220, 88, 93 Bq/cm<sup>3</sup><sup>3)</sup> であり、ジルコニウム-水反応の可能性は低く、さらに 4 月 29 日には水中カメラの撮影結果が報告され、プール内部が破損している様子はみられなかった<sup>4)</sup>。

可能性の (1), (3) が否定されると、残りはラジオリシスである。燃料プールのラジオリシスにおいてはガンマ線の寄与が支配的で、静水（非沸騰状態の水）のラジオリシスでは水素の発生はほとんど見られないことが知られている。商業用のコバルト 60 を用いたガンマ線照射施設では線源のコバルト 60 は水中に保管するので、

A Mystery of the Hydrogen Explosion at #4 Reactor in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station – Radiolysis of Boiling Water and Hydrogen Enrichment –  
Yosuke KATSUMURA (University of Tokyo),  
〒319-1188 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-22  
東京大学大学院工学系研究科 原子力専攻,  
TEL:03-5841-6979, FAX:03-5841-8624,  
E-mail: katsu@n.t.u-tokyo.ac.jp

もし、ラジオリシスで多量の水素が発生する場合は、水素爆発の危険を想定する必要があるが、現実には想定していない。水素の発生が観測されないからである。とすれば、ラジオリシスで水素が発生するのは、沸騰条件下での可能性がある。このように推論した段階では、沸騰下での水素発生の研究報告が存在していることは知らなかった。また、この頃から終息への工程表が議論されるようになり、第一ステップとして損壊建家に覆いをして放射性物質の飛散を防止することが公表された。再び密閉状態を形成し、沸騰下で水素が発生しようものなら再び水素爆発が発生することもあり得る。そこで、沸騰条件下でのラジオリシスにおける水素発生の確認の実験を緊急に実施すべきとの結論に達した。コバルト 60 照射による緊急実験は高崎量子応用研究所で実施した。ゴールデンウィークの連休前に準備を開始し、緊急に 5 月 12, 13, 15 日の三日間の実験を認めてもらった。初日は線量測定等の準備に費やし、後の二日間で照射実験を実施した。

## 2 沸騰水ガンマ線照射による水素発生実験

非沸騰下での水試料の照射と水素定量は特に困難はない。一方で、沸騰下での照射と水素定量には工夫が必要で、実験にはソクスレー抽出器を使用し、図 1 のような実験照射系を組み上げた。ソクスレー上部に枝管をセットし、このガラス管をメスシリンダに入れた水に入れることにより沸騰状態でソクスレー内部を下界と遮断した。こうすれば、ソクスレー内部で発生した水素は閉じ込められるので、ソクスレー上部にシリコンゴム製のガスサンプリング用のセプタムをセットし、ここからガスをサンプリングし、ガスクロにより定量することができる。水試料は 500 mL、その上部のソクスレーまでが 1035 mL、ソクスレー部は 42 mL、枝管 17 mL であった。

線量率 7 kGy/h で非沸騰下、あるいは沸騰下での純水の照射を 1 時間行った。非沸騰下では水素の発生はほとんど検出できないのに対し、沸騰下では顕著な水素発生を確認し、沸騰下での照射で水素が発生するとの仮説を確認した。しかし、気相内の水素の分布を均一と仮定すると、発生水素量は発生 G 値、 $0.45^{5)}$  よりも大きく、しかも時間が経るに従い濃度が増大することを見いだした。これは水素濃度の濃縮が起こっていることを意味する。二日間の照射実験を終え、この時点で、沸騰下での水の放射線分解で水素が発生すること、さらにこれらは空間上部に濃縮することまでが確認できた。

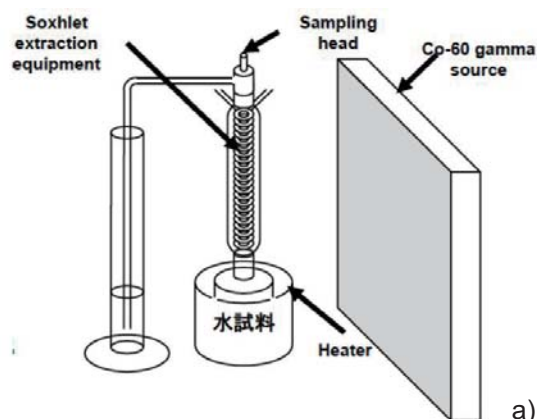


図 1 非沸騰、沸騰下での水試料の照射の概要 a) とその写真 b)

## 3 非照射下での確認実験

コバルト 60 照射実験で水素の濃縮現象を確認した。この現象を更に詳しく検討するために、照射により水素を発生させるのではなく、直接水素を外部から導入して、その挙動を調べることにした。一つは、先の照射実験に使用したシステム同様のソクスレータイプのものであるが、図 2a) に示すような冷却管は蛇管の代わりに大小の球状の数珠をつなげたものを使用している。下部の容器から 10 mL の水素ガスを非沸騰下、沸騰下で注入し、上部のサンプリングポイントで観測した。非沸騰下では、濃縮は起こらず、約 60 分で系内全体積内に均一に分布する。その場合、下部容器に入れる水の容量を

500, 1000 mL にした時, 気相部分は各々 960, 460 mL となり, 水素濃度は空間容量からの計算に良く一致し 1.0, 2.2% になる. 一方, 沸騰下で同様の実験を進めると, 10 分程度でサンプリングポイントにて, 容器内の水容量 500, 1000 mL に対応して 10, 12% の定常濃度に到達し, 5-10 倍の濃縮を確認した. しかし, 濃縮度はほぼ同程度で, 水の容量には大きく依存しない. 得られた非沸騰下, 沸騰下の水素濃度の時間挙動を図 2b) に示す.

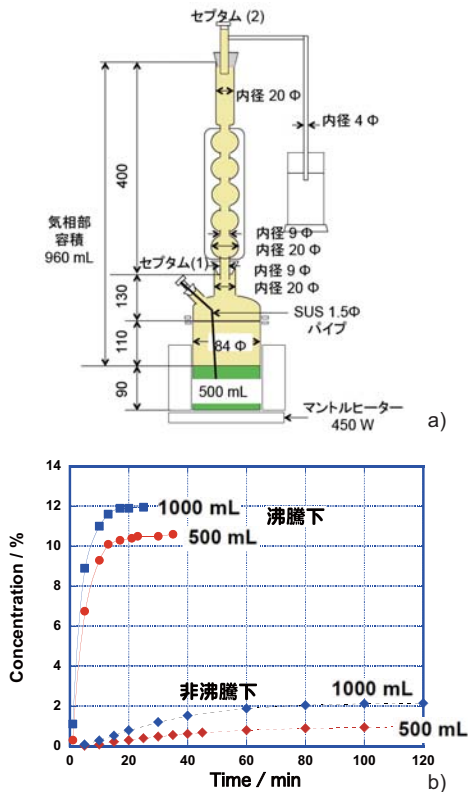


図 2 オフライン実験で使用したソクスレー装置 a). 非沸騰下, 沸騰下で 10 mL の水素ガスを下部容器内の水に導入したときのセプタム (2) でサンプリングした水素濃度の経時変化 b) 500, 1000 mL は下部容器内の水試料の容積を表す

同様の実験を, 図 3a) に示すような 100 L (50 × 50 × 40 cm<sup>3</sup>) のアクリル容器内に 3 L の加熱用水槽をセット, 非沸騰下と沸騰下で, 水槽に 100 mL の水素を注入した時の濃度変化を測定したところ, 非沸騰下では, 上部と底部の, 各々 ① と ④ のサンプリングポイントで 12-13 分経過すると 0.1% 濃度に到達し, これは全空間に均一分布した水素濃度に対応している (図 3b)). 一方, 沸騰下では, 側壁から 5 cm 程度はなれた部分でサ

ンプリングした結果, 注入 30 秒後には 2-3 倍, 60 分後は 2-6 倍程度に濃縮していることが判った (図 3c)).

#### 4 水蒸気凝縮による水素の濃縮機構

以上, 紹介してきた実験結果を踏まえて, 以下に述べるような水素の凝縮機構を考えている.

放射線分解で水素分子が生成し, その G 値は 0.45 である. しかし, 大容量の静水中では水素の拡散は速くなく, 界面に至る前に OH ラジカルにより消費され, 低い定常濃度を維持する. ところが, 沸騰状態では, 水と水蒸気の界面が増大し, 気相への移行が加速され, 結果的に水素の水相から気相への移行が生じる. 我々の実験で, 沸騰水下での水素発生は確認できているものの, その発生 G 値は決定できていないが, 20 年以上も前に原子炉事故を想定した実験の一環として電力会社, プラントメーカーとの共同実験として実施され, G 値としては 0.36, 0.27 などの値が報告されている<sup>6)</sup>. 気相に移行した水素は水蒸気の流れに乗って移動し, 水蒸気は冷たい容器壁に接触して凝結する. しかし, 水素は凝結しない. 高温では水蒸気圧は高く空気成分は相対的に減少する. 従って, その部分に留まれば, 結果的に水素濃縮がもたらされる. この効果はソクスレーのような局所濃縮のみでなく, アクリル箱のような大きな容器壁でも観測されたことが重要である. この過程は定性的には確認できたと考えられるが, 今後, 定量的な解析が必要であろう. 沸騰下では水蒸気が連続的に発生する. 2.3 MW の崩壊熱では毎秒 1.68 m<sup>3</sup> (100 °C 換算) の水蒸気が発生するので, 室内を一気圧に保つためには, もともと存在していた空気が室外へ逃げてゆく必要がある. もし, 3, 4 号機共通の排気管を通じて出てゆくとすると, 3 号機からの水素流入説は否定されよう.

#### 5 1F4 での水素爆発機構の推定

本実験で確認された, 沸騰下での放射線分解による水素発生, その濃縮効果を踏まえて, 水素爆発の推定を試みた.

1F4 の燃料プールも電源喪失により冷却機能が失われた. 1400 m<sup>3</sup> のプール水が 2.3 MW の崩壊熱で 40 °C から沸騰に至るまでには約 1.8 日要する. 従って, 1F4 のプールは水素爆発までに丸 1 日以上, 沸騰により水素が発生していたと思われる.

一方, 水中の水素の発生量 G 値 0.45 で崩壊熱のうち 10% が放射線として水分解に効く<sup>7)</sup> として計算すると, 水素の発生量は 22.1 m<sup>3</sup>/日, 20% であれば, 44.2 m<sup>3</sup>/日 (25 °C 換算) となる. 1F4 の燃料貯蔵プール部を含む



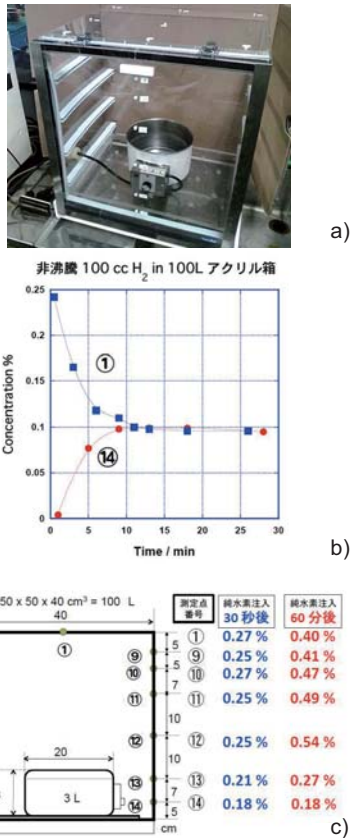


図3 100 L のアクリル箱 (50 × 50 × 40 cm<sup>3</sup>) の写真 a), 非沸騰時に水素ガスを底部の 3 L の水槽から注入後の水素の濃度変化 b), 沸騰時に水素ガス注入後 30 秒, 60 分後のサンプリングポイント毎の水素濃度 c)

5F のサイズについては公式データを手に入れていないが, 48 m × 35 m × 10 m とすれば 16,800 m<sup>3</sup> である。そのうち壁面から 0.1 m の領域に水素が濃縮存在しているとすれば, 天井と側壁部分の総容量は 334 m<sup>3</sup> となる。この領域に発生水素が局在するとし, 空気中水素濃度 4.1% の爆鳴気を形成するには, 334 × 0.041 = 13.7 m<sup>3</sup> の水素が有れば十分で, 一日間の沸騰下水素発生で十分供給することが出来る。このことから, 1F4 の水素爆発は, 使用済燃料プールの沸騰水の放射線分解で発生した水素で説明することは可能である。

## 6 今後の課題と展開

非沸騰下での水溶液の放射線照射では水素は気相部に発生しない。水中から液面への水素移動に時間を要すること, 水中の二次的な反応過程に巻き込まれ(例えば,

H<sub>2</sub> + OH → H + H<sub>2</sub>O), 定常濃度が低くなるためである。しかし, 沸騰が生ずると気泡が多数発生し, 生成水素は容易に気相に移動することになる。しかし, この過程については実験が行われ, 報告されている<sup>6)</sup>。本研究でも定量実験を進めており, 線量率 2.2 kGy/h のもとで沸騰した純水からは G(H<sub>2</sub>)=0.24, 3.5% 食塩水からは G(H<sub>2</sub>)=0.54 の水素発生を検出した。溶質の有無や線量率にも依存するようで, さらに実験を続ける必要がある。

本実験で明らかになったことは 1F4 の建物の水素爆発の説明の一つの可能性であるが, 実際にこれが原因であったかどうかは依然として不明である。この点をさらに検討するためにはもっと大きな実験体系での実験を実施する必要がある。本実験では, 100 L の容積内での挙動であり, 実際の対象は 10,000 m<sup>3</sup> 以上の巨大な容積であり, 小さなスケールの実験をどのようにスケールアップして考えるかが今後の大きな問題である。

## 7 おわりに

本実験は東大・JAEA 連携「原子力における放射線効果」研究グループ(メンバーは勝村庸介<sup>a,b)</sup>, 工藤久明<sup>a,b)</sup>, 室屋裕佐<sup>a)</sup>, 岩松和宏<sup>b)</sup>, 山下真一<sup>c)</sup>, 田口光正<sup>c)</sup>, 永石隆二<sup>d)</sup>, 林銘章<sup>d)</sup>, 熊谷友多<sup>d)</sup>, 平出哲也<sup>d)</sup>, 山口真<sup>e)</sup>, 端邦樹<sup>f)</sup>, 岡壽崇<sup>g)</sup>, 松浦千尋<sup>h)</sup>, a) 東京大学工学系研究科原子力専攻, b) 東京大学工学系研究科原子力国際専攻, c) 日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門, d) 日本原子力研究開発機構原子力基礎工学部門, e) 日本原子力研究開発機構地層処分部門, f) 日本原子力研究開発機構安全研究センター, g) 日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター, h) NPO 科学技術社会研究所) で実施したものである。照射実験は, 山下真一, 平出哲也, 松浦千尋, 岩松和宏, 田口光正の各氏が, オフライン実験は松浦千尋氏が中心となって実施した。実施に当たっての, 原子力機構の吉田善行博士, 各部門のリーダーのご理解に感謝する。東大工学系研究科の副研究科長の関村直人教授には本実験の支援, 関連情報を提供頂き, 大変にお世話になった。この場を借りてお礼を申し上げたい。

1F4 の水素爆発への問題を考えるきっかけを与えてくださった大阪大学の山口彰教授に感謝する。さらに, 佐治博士, さらに氏のメール“Earthquake”の配信先の放射線化学者, C. Stuart (AECL, カナダ), D. Bartels (Univ. of Notre Dame, 米国), H. Sims (NNL, 英国), S. A. Kabakchi (Kurchatov Institute of Atomic Energy, ロシア) 他コメントに感謝する。

参考文献

- 1) E. Kintisch, *Science* **2011**, 332, 24.
- 2) 崩壊熱は計算推定値.
- 3) 東電 4 月 13 日モニタリング結果公表データ  
(東京電力プレスリリース 2011 年 4 月 29 日).
- 4) 東電 4 月 29 日プール内撮影データ  
(東京電力 TEPCO ニュース 2011 年 4 月 29 日).
- 5) G. V. Buxton, C. L. Greenstock, W. P. Helman, A. B. Ross, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **1988**, 17, 513.
- 6) H. Ito, T. Sato, A. Watanabe, M. Fukazawa, E. Ibe, H. Karasawa, F. Totsuka, *Proceedings of the International ENS/ANS Conference on thermal reactor safety* **1988**, Vol. 4, 1604.
- 7) 1.7-6 in NRC regulatory guide 1.7, **1978**.