

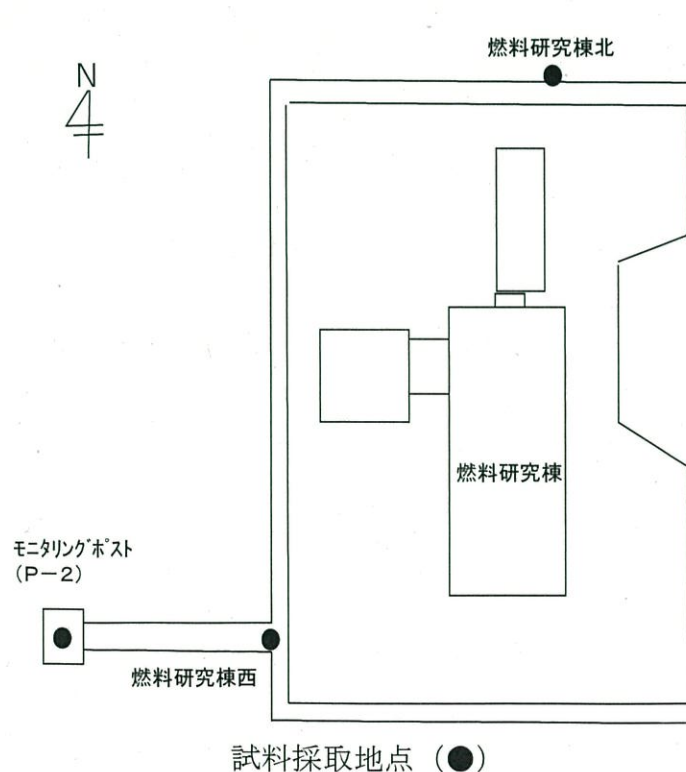
燃料研究棟における汚染に伴う環境モニタリング結果

平成 29 年 6 月 6 日に発生した燃料研究棟における汚染に伴う環境モニタリング（大気塵埃中放射能濃度）の結果は、平成 29 年 6 月 5 日～同年 7 月 10 日において異常はなかった。なお、モニタリングポスト（P-2）内ダストモニタにおいては、現在も試料採取と測定を継続している。

試料採取場所	試料採取期間	^{241}Am 放射能濃度 ^{注1)} (測定終了日時)	全 α 放射能濃度 ^{注2)} (測定終了日時)
燃料研究棟西	6/6 14:57-6/6 17:10	$< 1.8 \times 10^{-9} \text{ Bq/cm}^3$ (6/7 08:18)	$< 2.3 \times 10^{-9} \text{ Bq/cm}^3$ (6/13 11:17)
燃料研究棟北	6/6 18:00-6/6 20:07	$< 3.0 \times 10^{-9} \text{ Bq/cm}^3$ (6/7 21:56)	$< 2.4 \times 10^{-9} \text{ Bq/cm}^3$ (6/13 12:08)
モニタリングポスト (P-2)内ダストモニタ	6/5 9:00-6/12 9:00	$< 1.9 \times 10^{-11} \text{ Bq/cm}^3$ (6/13 07:42)	$< 2.5 \times 10^{-11} \text{ Bq/cm}^3$ (6/16 12:13)
	6/12 9:00-6/19 9:00	$< 1.2 \times 10^{-10} \text{ Bq/cm}^3$ (6/21 06:53)	$< 2.5 \times 10^{-11} \text{ Bq/cm}^3$ (6/23 11:36)
	6/19 9:00-6/26 9:00	$< 1.3 \times 10^{-10} \text{ Bq/cm}^3$ (6/27 14:35)	$< 2.4 \times 10^{-11} \text{ Bq/cm}^3$ (6/30 10:06)
	6/26 9:00-7/3 9:00	$< 1.3 \times 10^{-10} \text{ Bq/cm}^3$ (7/4 13:46)	$< 2.4 \times 10^{-11} \text{ Bq/cm}^3$ (7/7 10:09)
	7/3 9:00-7/10 9:00	$< 1.4 \times 10^{-10} \text{ Bq/cm}^3$ (7/11 14:25)	$< 2.5 \times 10^{-11} \text{ Bq/cm}^3$ (7/14 13:50)

注 1) ^{241}Am 放射能濃度の測定は、法令に基づく排気中濃度限度 ($3.0 \times 10^{-9} \text{ Bq/cm}^3$) を担保する検出限界値を得られる計測時間で、Ge 半導体検出器 γ 線核種分析により実施した。

注 2) 全 α 放射能の測定は、天然放射性核種の減衰を待ち、法令に基づく排気中濃度限度 (^{241}Am 及び ^{239}Pu について $3.0 \times 10^{-9} \text{ Bq/cm}^3$) を担保する検出限界値を得られる計測時間で、低バックグラウンド α/β 線自動測定装置により実施した。



燃料研究棟における排気系統の運転について

平成 29 年 6 月 23 日

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

大洗研究開発センター

燃料研究棟における排気系統の運転について整理した結果を以下に示す。

108 号室の排気系統としては、図 1 に示すように排気第 1 系統（グローブボックス内排気系統）、排気第 2 系統（フード内排気系統）、排気第 3 系統（管理区域内排気系統）が設置されている。

グローブボックス内排気系統は、グローブボックスに装着した高性能フィルタ 1 段によりろ過し、グローブボックス用排気ダクトを経て、さらに排風機室に設備されたプレフィルタ 1 段及び高性能フィルタ 2 段によりろ過した後、排気筒出口から環境に放出する。また、フード内排気系統はフードに装着した高性能フィルタ 1 段によりろ過し、フード用排気ダクトを経て、さらに排風機室に設備されたプレフィルタ 1 段及び高性能フィルタ 2 段によりろ過した後、排気筒出口から環境に放出する。管理区域内排気は管理区域用排気ダクトを経て、排風機室に設備されたプレフィルタ 1 段及び高性能フィルタ 2 段によってろ過した後、排気筒出口から環境に放出する。いずれの排気系統にも高性能フィルタ（捕集効率：99.97%以上（ $0.15\mu\text{m}$ 粒子））を複数段設置しており、各排気系統は同等のろ過性能を有している。

なお、6 月 6 日の当該事象発生前後のフィルタ差圧に変動はなく、現在、日常点検により監視を強化しているが、排気ダストモニタでは有意な放出は確認されておらず排気系統が正常に機能している。

また、商用電源停電時には、非常用発電設備が自動的に起動し、排風機等の保安上重要設備に給電され安全性は確保される（6 月 16 日 16 時 35 分頃に発生した落雷による停電時においても正常に運転され、Pu ダストモニタ No.2(108 号室)の指示値も通常の変動範囲内であった）。

なお、排気第 2 系統、排気第 3 系統を停止する場合、108 号室のみを停止することはできないため、施設全体を排気第 1 系統（グローブボックス内排気系統）のみで運転することになるが、この場合、108 号室を含む全工程室の負圧が外部に対して極めて浅くなることが懸念される。

今後、速やかにフード内の核燃料物質のグローブボックスへの移動、飛散した核燃料物質の回収、108 号室内の除染を順次実施していく予定である。これらの作業時において

汚染の拡大を防止しつつ進めるには排気系統の安定した運転による負圧、気流の維持が必須であり、排気系統の運転を継続する必要がある。

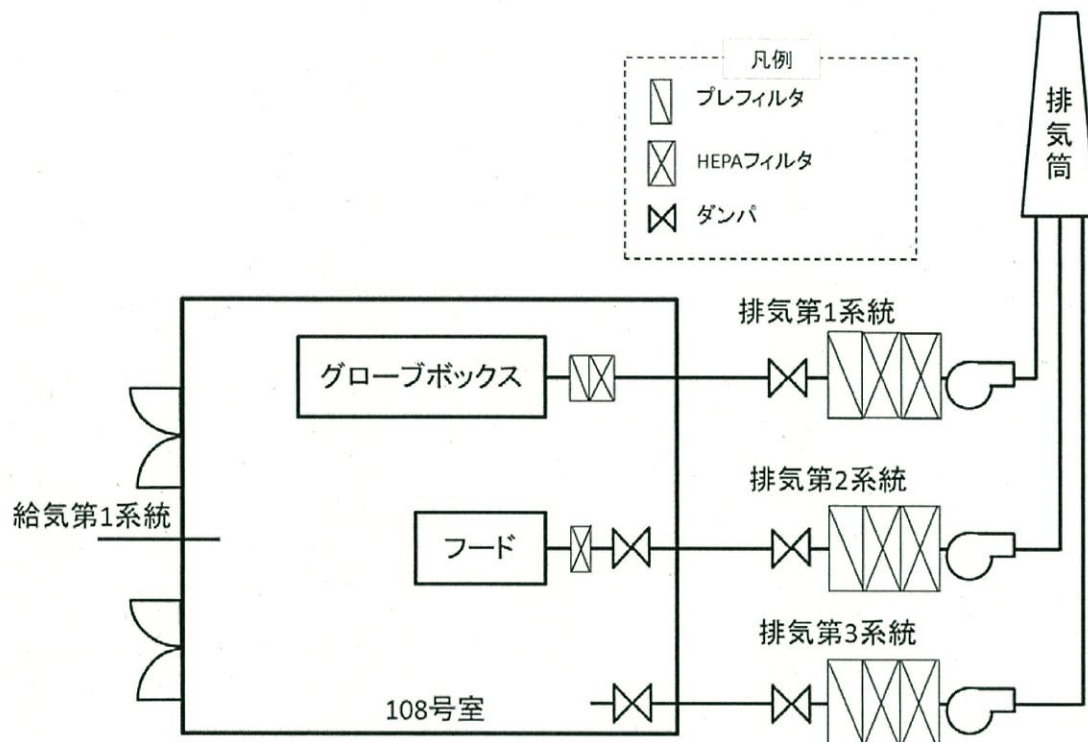


図1 排気系統概要図

現場復旧のスケジュール

(1) 安全確保のための応急措置	
1) フードまでのアクセスルート確保 ————● 7/4	
2) フード内の貯蔵容器の蓋固定 ——● 7/6	
3) フード内の貯蔵容器を搬出し、108号室から101号室へ貯蔵容器移動 ——● 7/20	
(2) 本格的な現場復旧のための措置	
1) 汚染管理の強化 7/12	継続的な改善 ↑
1-1) グリーンハウスの撤去・更新 7/14 ——● 7/20	
2) フード内の除染 7/24頃 ——● 7/26頃	
3) 108号室内の粒子回収+床面除染 7/27頃 ——● 8月上旬	
4) 108号室内の天井部・壁面・GB他構造物の除染	9月中旬 ●
5) 108号室の全域養生撤去+汚染検査	9月下旬 ●
6) グリーンハウスの除染・解体・撤去	9月下旬 ●

※108号室の放射線状況等により、変更する場合があります。

外部被ばく線量（実効線量及び皮膚の等価線量）の評価について

本文6.3項「(1) 外部被ばくによる実効線量の評価」及び「(2) 体表面汚染による皮膚被ばく線量の評価」において記載した被ばく線量評価の詳細を以下に示す。

1. 外部被ばく線量の評価

(1) OSL（光刺激蛍光）線量計による測定

大洗研究開発センターでは放射線業務従事者の日常モニタリング用の基本線量計として OSL 線量計を使用している。この OSL 線量計では、4 個の OSL 素子の上に、それぞれ材質及び厚さの異なるフィルタ（フィルタなし、プラスチック、アルミニウム及び銅）を配置することにより γ 線と β 線の弁別及び入射放射線エネルギーの推定を行い、被ばく線量の評価に必要な精度を担保できるよう設計されており、外部からの放射線が線量計に一樣に入射することが正しい測定の前提条件となる。 γ 線のエネルギーの推定にはアルミニウム (Al) フィルタと銅 (Cu) フィルタに対する透過率の違いを利用して、本被ばく事象における主要な外部被ばく源と考えられる Am-241 の γ 線 (59.5 keV) やそれより低いエネルギーにおいては、両フィルタ下の OSL 素子の読取値の比が約 1.5 以上となる。

作業員の着用していた OSL 線量計は、表面汚染が認められたためグリーンハウス内で保管され、平成 29 年 6 月 13 日に回収された。回収時に行われた表面汚染検査の結果、線量計ケース外側には最大で 1.0×10^3 Bq/cm² の汚染 (2. (2) 参照) が確認されたが、ケースに収納された線量計本体には汚染はなかった。

平成 29 年 6 月 15 日に OSL 線量計の測定を実施した結果、作業員 A、B、C 及び D の 1cm 線量当量は検出下限値 (0.1 mSv) 未満であった。しかし、作業員 E の OSL 線量計では、Al フィルタ下と Cu フィルタ下の OSL 素子の読取値の比が約 0.5 となっており、前述した、今回の被ばく状況で想定される約 1.5 以上という値とは大きく異なっていた。これは、表面に付着していた汚染からの放射線が長時間にわたって線量計に局所的に入射したためと考えられる。したがって作業員 E の OSL 線量計については、評価不能と判定した (表 6.3.1-1)。

また、OSL 線量計に同梱された中性子用の固体飛跡中性子線量計の測定も実施した結果、中性子による有意な被ばくは認められなかった。

(2) 電子式ポケット線量計 (EPD) による測定

平成 29 年 6 月 19 日付報告で既報のとおり、作業員 5 名のうち 3 名が補助線量計として EPD を着用しており、その読取値は 2 μ Sv (作業員 B)、3 μ Sv (作業員 D)、60 μ Sv (作業員 E) であった (表 6.3.1-1)。

この EPD の読取値についても EPD 表面の汚染による寄与が含まれていると考えられるが、各作業員の退域時に読み取られた値であることから、回収までの約 7 日間汚染下にあった OSL 線量計に比べて読取値に対する汚染の寄与は小さいと考えられる。ただし、EPD は 40 keV 以下のエネルギーの光子に感度を持たないため、108 号室の光子エネルギースペクトル (波高分布) を測定した。

(3) 108 号室の線量率及び光子エネルギーの測定

平成 29 年 7 月 4 日に 108 号室の光子エネルギースペクトル (波高分布) を測定した。その結果を図 6.3.1-1 に示す。この結果から 108 号室については Am-241 からの γ 線 (59.5 keV) が支配的であり、

EPD の測定値が過小評価である可能性は低いことが確認された。

(4) 実効線量の評価

以上の結果から、5名の作業員の外部被ばくによる実効線量は、作業員 A、B、C、D については OSL 線量計、作業員 E については EPD をもとに評価を行い、全員記録レベル (0.1 mSv) 未満であると評価した。(表 6.3.1-1)。

なお、平成 29 年 6 月 7 日に測定した 108 号室内の線量当量率は最大で 2 $\mu\text{Sv/h}$ であったことから、同室内に 8 時間滞在しても外部被ばくを評価すると最大で 16 μSv であり、上記の評価と矛盾しない。

表 6.3.1-1 OSL 線量計及び EPD による外部被ばく線量の測定・評価結果

作業員	A	B	C	D	E
測定値 (OSL 線量計)	<0.1mSv	<0.1mSv	<0.1mSv	<0.1mSv	評価不能 ^{*1}
測定値 (EPD)	着用なし	2 μSv	着用なし	3 μSv	60 μSv
実効線量評価結果	X ^{*2}	X ^{*2}	X ^{*2}	X ^{*2}	X ^{*2}

*1 線量計表面汚染の影響があり評価不能

*2 X; 記録レベル (0.1mSv) 未満

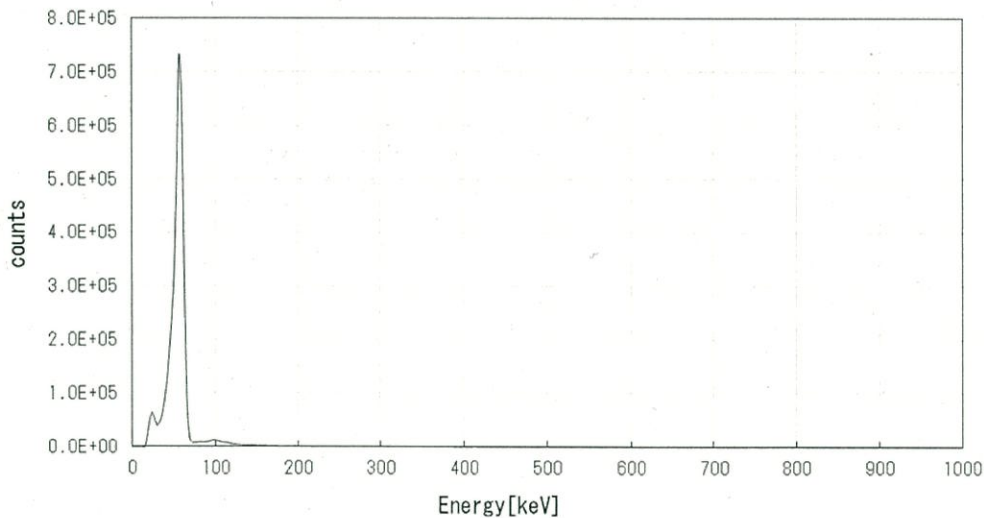


図 6.3.1-1 LaBr₃ スペクトロメータによる 108 号室内の光子エネルギースペクトル測定結果
(平成 29 年 7 月 4 日 約 3 時間測定)

2. 皮膚の等価線量の評価方法

2.1 計算方法

皮膚の等価線量の評価は、表面汚染の測定結果から以下の計算方法を用いて評価した。

(1) 表面汚染の測定結果から表面密度の算出 (出典: JIS Z 4504:2008¹)

¹ JIS Z4504:2008 放射性表面汚染の測定方法— β 線放出核種 (最大エネルギー0.15MeV 以上) 及び α 線放出核種 より。

①直接法で単位面積当たりの放射能 A_s ($\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$) を求める場合

$$A_s = \frac{n - n_B}{\varepsilon_i \times W \times \varepsilon_S} \dots\dots\dots (1)$$

ここに、
 n : 総計数率 (s^{-1})
 n_B : バックグラウンド計数率 (s^{-1})
 ε_i : β 線又は α 線に対する機器効率
 W : 放射線測定器の有効窓(入射窓)面積 (cm^2)
 ε_S : 放射性表面汚染の線源効率

②間接法で遊離性表面汚染の単位面積あたりの放射能 A_{sr} ($\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$) を求める場合

$$A_{SR} = \frac{n - n_B}{\varepsilon_i \times F \times S \times \varepsilon_S} \dots\dots\dots (2)$$

ここに、
 n : 全計数率 (s^{-1})
 n_B : バックグラウンド計数率 (s^{-1})
 ε_i : β 線又は α 線に対する機器効率
 F : ふき取り効率
 S : ふき取り面積 (cm^2)
 ε_S : ふき取り試料の線源効率

(2) 核種別の放射能の算出

対象となる混合物中の各核種の重量から放射能を求める。

質量数 M 、半減期 $T_{1/2}(\text{sec})$ の核種 ^MN が $W(\text{g})$ ある場合、その核種の放射能 $A_{N-M}(\text{Bq})$ は

$$A_{N-M} = W \cdot \frac{\ln(2)}{T_{1/2}} \cdot \frac{A_0}{M} \dots\dots\dots (3)$$

ここに、 A_0 : アボガドロ数 (6.02×10^{23})

となる。前項で求めた表面密度の値は、全ての α 線放出核種の放射能の密度であることから、この値から皮膚の線量を評価する場合は、核種組成(放射能比)を用いて核種別の表面密度を算出する。

(3) 皮膚の等価線量の算出

表面汚染による皮膚の被ばく線量は、表面密度に単位時間あたりの線量換算係数

($[\text{mSv/h}]/[\text{kBq/cm}^2]$)及び被ばく時間を乗じて算出した核種ごとの被ばく線量を合計することにより評価する。今回の評価で対象とした核種の情報を表 6.3.1-2 に示す。

表 6.3.1-2 評価で対象とした核種の情報

核種	半減期 ² (year)	線量換算係数 ³ ([mSv/h]/[kBq/cm ²])	α線放出率 (%)
Pu-238	8.770E+01	3.70E-03	99.9
Pu-239	2.41E+04	1.43E-03	99.7
Pu-240	6.564E+03	3.70E-03	99.9
Pu-241	1.435E+01	0.00E+00	0.0023
Pu-242	3.75E+05	3.70E-03	100
Am-241	4.322E+02	1.95E-02	99.3

2.2 今回の評価

(1) 汚染の核種組成 (放射能比)

現時点では実際の表面汚染の同位体比等に係る情報は得られていないことから、これまでに調査された、破裂した容器に収納されたことが確認されている試料の情報 (本文 表 6.4.1 の 5 種類の同位体組成) を開封時 (平成 29 年 6 月) までの崩壊を考慮した放射能組成に換算し、皮膚被ばく線量が最大となる同位体比を評価し使用した。

(2) OSL 線量計ケースの表面密度

OSL 線量計ケースの表面 (身体に密着した背面部分を除く五面) を拭き取ったスミヤろ紙の測定結果は、バックグラウンド計数を減じた正味値で 27,756 min⁻¹であった。

また、ケースの外形は 3.5 cm(W) × 7 cm(H) × 1 cm(L) であることから、拭き取った表面積は 45.5 cm²とした。この場合、表面密度 (Bq/cm²) は、式 (2) より以下の値となる。なお、機器効率及び線源効率、このときの測定に使用した α β シンチレーション測定装置: JREC ES-7284A について、大洗研究開発センターの通常の放射線管理で使用している値を適用した。

$$A_{sr} = \frac{n - n_B}{\varepsilon_i \times F \times S \times \varepsilon_S} = \frac{27756 / 60}{0.416 \times 0.1 \times 45.5 \times 0.25} = 1.0 \times 10^3$$

(3) 量研 放医研で測定された身体汚染の表面密度

量研 放医研の受け入れ時のサーベイメータによる体表面汚染検査では、最大 140 min⁻¹の汚染が身体の一部に検出されたと発表されている。この場合、表面密度 (Bq/cm²) は、式 (1) より以下の値となる。なお、機器効率及び線源効率は、量研 放医研が当該測定で使用した測定器 (α 汚染サーベイメータ: Aloka TCS-232) と同型の測定器について、大洗研究開発センターの通常の放射線管理で使用している換算係数 (Bq/cpm)、すなわち機器効率 × 線源効率に 60 を乗じた値の逆数を適用した。

² 日本アイソトープ協会、アイソトープ手帳 11 版 (2011) より。

³ D. Delacroix et. al., "Radionuclide and Radiation Protection Data Handbook 2002", Radiation Protection Dosimetry, Vol.98, No.1, 2002 より。ただし、ここでは Pu-240 に対する係数が 0、Pu-242 については記載なしのため、Pu-238 での値を代用し保守的評価となるようにした。

$$A_s = \frac{n - n_B}{\varepsilon_i \times W \times \varepsilon_S} = \frac{140}{71.5} \times 0.225 = 0.44$$

(4) OSL 線量計ケースの表面密度を用いた事象発生から管理区域退域までの線量

OSL 線量計ケースの表面密度の最大値 (1.0×10^3 Bq/cm²) と同じレベルの汚染が身体表面に直接付着したと仮定し、事象発生 (平成 29 年 6 月 6 日 11 時 15 分) から 5 名全員の除染が完了し管理区域を退出した時刻 (同日 18 時 55 分) までの 7.67 時間を最大の被ばく時間として皮膚の線量を評価した。その結果、各核種の合計で約 83 μ Sv となった。

(5) 量研 放医研の測定結果 (公表値) を用いた管理区域退域から放医研での除染完了までの線量

量研 放医研での受入時に検出された汚染 (0.44 Bq/cm²) が、管理区域退域時から残存していたと仮定し、燃料研究棟の管理区域退域時 (平成 29 年 6 月 6 日 18 時 55 分) から本情報が公表されたプレス発表の開始時刻 (平成 29 年 6 月 7 日 17 時) までの約 22 時間を最大の被ばく時間として皮膚の線量を評価した。その結果、各核種の合計で約 0.11 μ Sv となった。

計量管理帳簿による貯蔵容器内容物の調査結果概要

大洗研究開発センター燃料研究棟及び安全管理棟に保管されている計量管理帳簿を収集し、当該貯蔵容器内の核燃料物質の性状を調査した。調査に際しては、バッチ名の付与方法等、文献[1]に示す貯蔵当時の燃料研究棟の計量管理システムに関する報告書を参考とした。

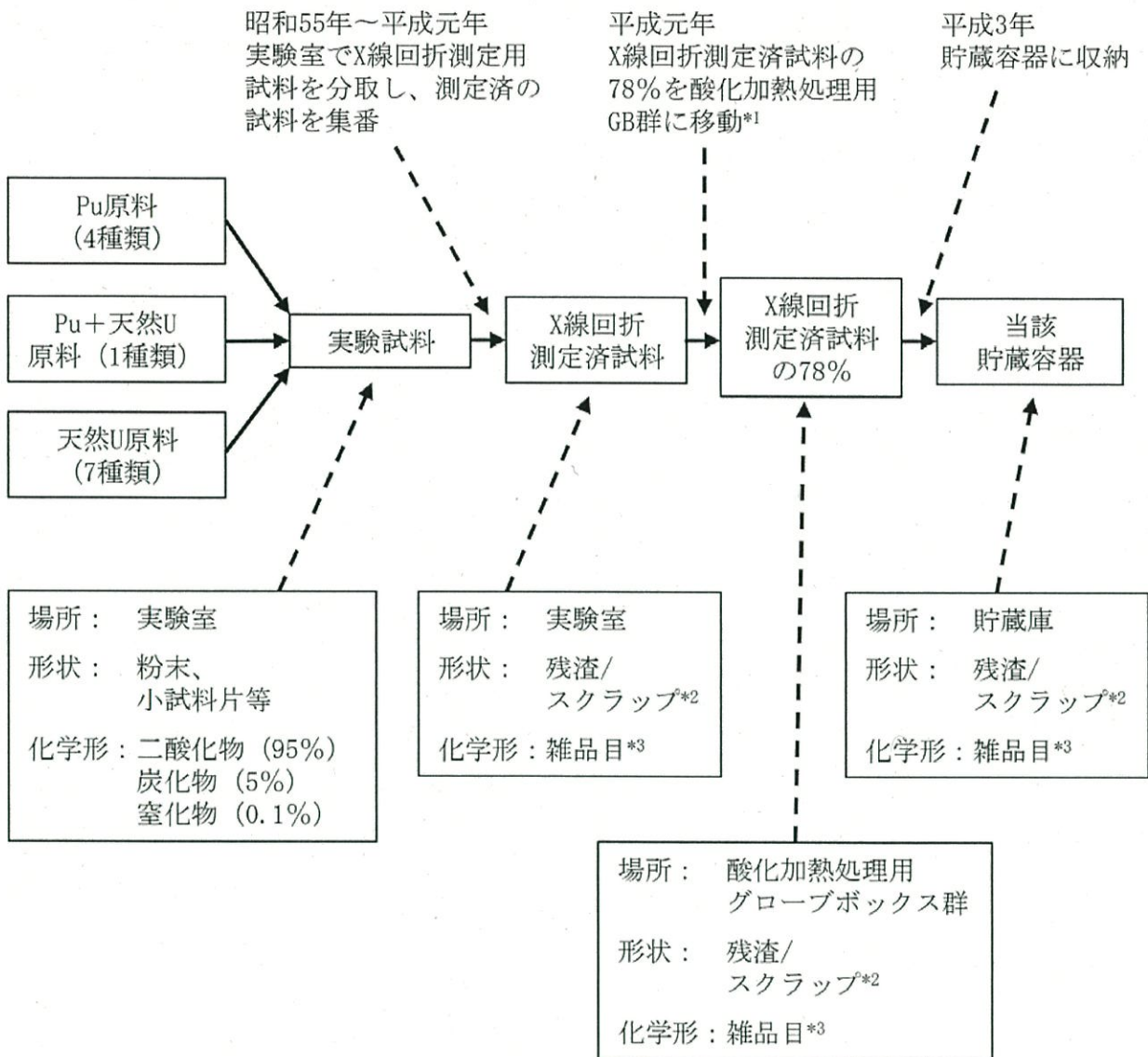
調査結果

当該貯蔵容器内の核燃料物質に関する移動履歴の概要を次項の図 6.4.1-1 に示す。主な移動履歴は以下のとおりである。

- ① 実験試料の原料として、他施設（旧原研東海、旧動燃東海）から貯蔵庫に核燃料物質を受け入れた。当該貯蔵容器内試料の移動元となった原料は、Pu が 4 種類、Pu と天然 U の混合物が 1 種類、天然 U が 7 種類である。Pu の同位体組成として、5 種類が混在していることになる。
- ② ①の原料を、燃料研究棟内の実験室に移動し、各種化合物の作製等の実験で使用した。
- ③ ②の実験試料から一部を分取して X 線回折測定した後、測定済の試料はグローブボックス（以下「GB」という。）内に集約して置かれていた。計量管理帳簿を基に集計した結果、移動元となった実験試料の化学形の内訳は、二酸化物約 95 %、炭化物約 5 %、窒化物約 0.1 % の割合であった（平成元年当時）。
- ④平成元年に、③の全ての X 線回折測定済試料のうちの 78% の量に相当する Pu と U を、実験済試料の酸化加熱処理用の GB 群に移動した。その後、酸化加熱処理を行なったと考えられるが、計量管理帳簿上は「残渣/スクラップ」で変化がないため、実際にどの程度の量を処理したかは明らかでない。
- ⑤平成 3 年に、④の X 線回折測定済試料を、当該貯蔵容器に収納して貯蔵庫に貯蔵した。

したがって、当該貯蔵容器内の核燃料物質は、天然 U と Pu（同位体組成 5 種類混在）からなる X 線回折測定済試料であり、酸化加熱処理用 GB 群に移動され、その 2 年後に貯蔵された。

[1] 阿部、石川、栗原、福島、「燃料研究棟における核燃料物質の管理システム」、JAERI-memo02-284、1990 年 9 月。



- *1 移動元の内訳に関する正確な比率は不明。残りの22%は別のバッチに移動。
- *2 生産の過程で生じた残渣及びスクラップで、リサイクル又は回収され得るもの
- *3 1つのバッチとしてまとめられた、いろいろな化学的形態の物質

図 6.4.1-1 当該貯蔵容器内の核燃料物質の移動履歴概要

燃料研究棟の月報、技術レポート、点検記録に基づく貯蔵容器内容物の調査結果概要

燃料研究棟に所蔵されている過去の月報、技術レポート、貯蔵容器の点検記録等の資料から、当該貯蔵容器に関連する情報を収集し、内容物の性状と貯蔵後の点検履歴に関して調査した。

調査結果

(1) 燃料研究棟月報

過去の燃料研究棟月報を調査した結果、実験済核燃料物質の酸化加熱処理は、昭和55年ごろから実施され、特に平成2年から平成3年にかけて集中的に実施されていた。月報には、その月ごとに処理した炭化物や窒化物の重量が記載されているが、具体的なバッチ名の記載はないことから、当該貯蔵容器内の核燃料物質を酸化加熱処理していたことを直接確認できるデータは月報からは得られない。

平成3年に当該貯蔵容器が貯蔵庫に保管された後、平成8年5月から7月に貯蔵庫に保管されている貯蔵容器の蓋を開けて内部の梱包状態の点検作業が実施され、必要に応じて再梱包が行われていた。平成8年6月の月報には、「核燃料貯蔵容器内に収納された内容物の梱包（ビニルバック、ポリ瓶等）状態の確認検査は、原料プルトニウム入り内容物4本及び非破壊計量用検量線作成試料入り内容物13本について、前月に引き続き行った。その結果、一部の梱包材に経年劣化による薄い変色が見られたので、今回検査した内容物17本の再梱包を行った。」との記載がある。また、7月の月報には、「核燃料貯蔵容器内に収納された内容物の梱包（ビニルバック、ポリ瓶等）状態の確認検査は、実験済プルトニウム試料入り内容物24本について、前月に引き続き行い、貯蔵室内核燃料物質の確認検査を終了した。」との記載がある。しかし、月報には具体的なバッチ名あるいは貯蔵容器番号の記載はない。

(2) 技術レポート等

文献[1]の貯蔵当時の燃料研究棟の計量管理システムに関する報告書から、計量管理帳簿のバッチ名の付与方法及び記号の意味等が判明し、これを基にして添付6.4.1の調査結果が得られた。

文献[2]及び[3]から、燃料研究棟では、X線回折測定用試料の作製方法として核燃料物質の粉末をエポキシ樹脂系の接着剤（主剤と硬化剤の2液混合型）と混合し、アルミニウム製の試料ホルダーに固定する方法を用いていた。（図6.4.2-1）

文献[3]、[4]及び[5]から、貯蔵容器に収納するにあたって、化学的に活性な炭化物と窒化物については、試料ホルダーからエポキシ樹脂固化物を取り外し、グローブボックス内の加熱炉を用いて酸化加熱処理が行われていたと推測される。この過程でエポキシ樹脂も分解し、炭酸ガスや水、タール等の気体として除去される。

文献[6]では、Pu中に生成するAm-241を分離・除去してPuの精製を行っていた記述があるが、文献[7]では、精製作業時の外部被ばくが問題になることから精製を行うのをやめたとの記述がある。文献の発行年から、精製しなくなった時期は1980年（昭和55年）代半ばから後半と推測される。したがって、当該貯蔵容器内に収納されていたPuは、Am-241を分離・除去していたものと、していないものが混在している可能性が高く、実際のAm-241含有率は、Pu入手時の同位体組成分析データから計算で得られる値よりも低いと考えられる。

文献

[1] 阿部、石川、栗原、福島、「燃料研究棟における核燃料物質の管理システム」、JAERI-memo02-284、1990年9月。

- [2] 福島、「U-プルトニウム混合炭化物のX線回折用試料の作成法」、JAERI-M8718、1980年3月。
- [3] 「高速炉用ウラン・プルトニウム混合炭化物及び窒化物燃料の研究開発のあゆみ」、日本原子力研究所、1988年3月。
- [4] T. Yahata, J. Abe, M. Kato and M. Kurihara, "Incineration Method for Plutonium Recovery from Alpha Contaminated Organic Compounds, " *J. Nucl. Sci. Chem.*, 22[8] (1985) p 669-677.
- [5] T. Yahata, "Incineration Method for Plutonium Recovery from Alpha Contaminated Organic Compounds, " *Inorganica Chimica Acta*, 140 (1987) p 279-282.
- [6] 荒井、岩井、前多他、「高出力照射試験用ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作」、JAERI-M 86-094 (1986年7月)。
- [7] 荒井、岩井、前多他、「JMTR 照射キャプセル (84F-10A, 84F-12A, 87F-2A) 用混合炭化物燃料ピンの製作」、JAERI-M 89-060 (1989年5月)。

(3) 貯蔵容器の点検記録

平成3年10月に当該貯蔵容器の貯蔵を開始した後、平成8年5月から7月(一部は平成9年2月)に燃料研究棟の空容器を除く貯蔵容器64個について点検が実施された。点検の結果、当該貯蔵容器の「貯蔵容器梱包更新の記録」(図6.4.2-2参照)には、当該貯蔵容器(No.1010)に関する記述(平成8年7月19日付)として、梱包材劣化状況欄には「ポリエチレン容器底部が変色、破損」、「内容器ビニルバッグが膨張」と、更新後の欄には「異常なし」と記載されている。これに関する具体的な処置作業内容の記録は見つかっていないが、ポリ容器底部にひび割れ等が見られたものの、樹脂製の袋は破損していなかった状況が推測される。そのため、貯蔵容器内の収納物を一度グローブボックスに搬入し、核燃料物質を新しいポリ容器へ移し替え、再度バッグアウトして貯蔵容器へ収納したと考えられる。この平成8年7月の点検・詰替作業以降は、当該貯蔵容器の内部に関する点検記録類は見つかっていない。

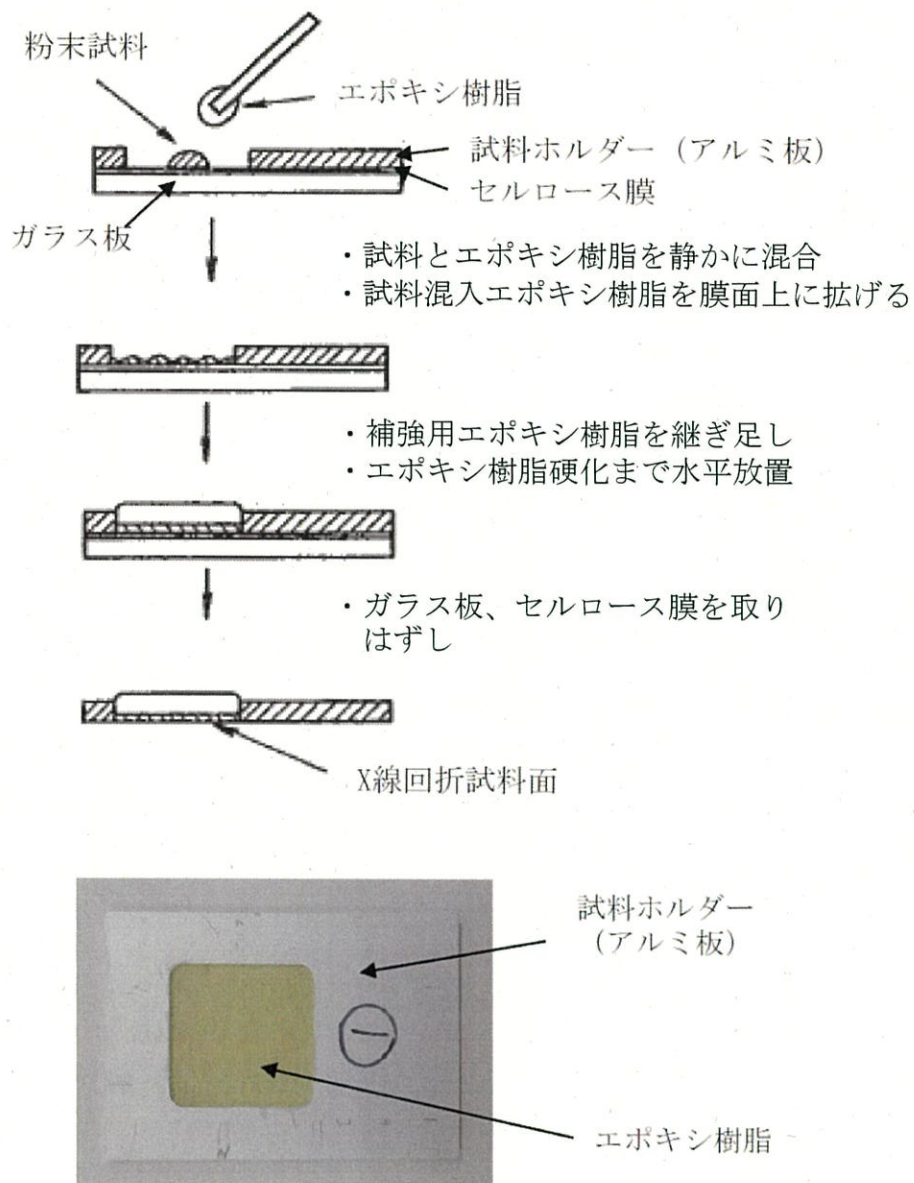


図 6. 4. 2-1 X 線回折測定用試料の作製手順と外観例
(写真は樹脂のみ)

貯蔵容器梱包更新の記録

核燃料物質貯蔵容器No. 1010

平成 8年 7月19日

現 状		更 新 後	
バ ッ チ 番 号	W410	バ ッ チ 番 号	W410
化 学 形	M化合物	化 学 形	M化合物
物 理 形	スクラップ	物 理 形	スクラップ
総 重 量	■ g	総 重 量	■ g
Pu・ ²³⁵ U 重量	■ g	Pu・ ²³⁵ U 重量	■ g
核分裂性物質質量	■ g	核分裂性物質質量	■ g
NU・Th 重量	■ g	NU・Th 重量	■ g
国 籍	F、Q C、Q、U (U)	国 籍	F、Q C、Q、U (U)
備 考		備 考	
<p><u>梱包状態</u></p> <p>内容器：ポリエチレン容器</p> <p><u>内容器内の状態</u></p> <p>1. X線回折斜射試料</p> <p><u>梱包材劣化状況</u></p> <p>ポリエチレン容器底部が変色、破損 内容器ビニルバックが膨張</p>		<p><u>梱包状態</u></p> <p>内容器：ポリエチレン容器</p> <p><u>内容器内の状態</u></p> <p>1. X線回折斜射試料</p> <p><u>梱包材劣化状況</u></p> <p>異常なし。</p>	

図 6. 4. 2-2 平成 8 年 7 月に当該貯蔵容器内の点検を行い、
内容器と樹脂製の袋を交換したと考えられる際の点検記録

核物質防護の観点から■の箇所は非開示としています。

燃料研究棟の関係者（退職者含む）への聞き取りによる貯蔵容器内容物の調査結果概要

昭和52年から平成10年の期間に燃料研究棟において業務に従事した職員52名の中で、管理区域においてグローブボックス又はフードを用いた作業に従事した者は16名であった。そこで、この16名に対して、面談、メール、電話問い合わせを実施し、12名から回答を得た。以下に、聞き取った結果を示す。

調査結果

(1) 炭化物、窒化物から酸化物への安定化処理について

炭化物、窒化物が化学的に活性であることを燃料研究棟従事者はよく認識しており、1名は実施しているところを見たことはないとの回答があったが、残りの調査対象者は、酸化加熱処理を行って安定化させていたとの回答があった。

(2) X線回折測定用試料作製におけるエポキシ樹脂の使用とそれを混合した核燃料物質の処理について

X線回折用試料の作製に関する質問に対して、「従事したことがない」と1名が回答し、残りの11名の調査対象者の中で、「試料作製にエポキシ樹脂を使用していた」との回答が10名からあり、1名は「使用した樹脂がエポキシ樹脂であることを知らなかった」との回答であった。測定終了後の処理については、X線回折用試料の作製に関する質問に対して「従事したことがない」と回答した1名を除く11名中7名から「炭化物、窒化物に対しては酸化加熱処理をしていたが、酸化物に対するエポキシ樹脂の除去については不明」、1名からは「回折用ホルダーから試料を外し、酸化処理を行なった。(PuO₂+UO₂)の混合物についても、UO₂がU₃O₈になるように酸化処理を行なった」との回答であった。また、残りの3名の中で1名は「加熱処理をすることは聞いていたが実際に当該作業を見たことがない」との回答であり、1名は「憶えている限りでは、エポキシ樹脂の除去や酸化処理は行われていなかった」との回答、残りの1名からは無回答であった。

以上から、X線回折測定後、化学的に活性な炭化物、窒化物については、酸化加熱処理が行われ、その処理時にエポキシ樹脂が除去されたと推測されるが、安定な酸化物に関してはエポキシ樹脂の除去については行われなかった可能性がある。

(3) 有機物の放射線分解の危険性に対する認識について

樹脂製の袋やエポキシ樹脂などの有機物は放射線によって分解され、ガスが発生することを認識していたのは6名であり、4名は「分からない」、「それほど意識していなかった」又は「ない」との回答であった。残りは無回答であった。また、ガス発生を認識していたと回答した6名の中に、「大量のガスが発生するとは思わなかった」との回答や、「あとになって考えれば、Pu粉末をエポキシ樹脂に混ぜればガスが発生するのは納得できる」との回答が各1件ずつあった。

以上から、有機物の放射線分解の危険性については、化学的に活性な炭化物、窒化物の取扱いと比較して、その危険性の認識が低かった可能性がある。

(4) 作業マニュアルの存在について

作業マニュアルについては、「あった」との回答が2名であり、「なかったと思う」との回答が6名、「分からない」又は「不詳」が2名、無回答が2名だった。ただし、作業マニュアルがなかったとの回答者の中に、「グローブボックス建設時をまとめた報告書（JAERI-MレポートあるいはJAERI-memo）を利用し

た教育は行われ、それがマニュアルに相当する役割を果たしていた」との回答が2名からあった。また、樹脂製の袋を溶着する方法では、4名が同一の回答であったことから、教育又は作業要領等の説明は行われていたと思われる。

(5) 樹脂製の袋やポリエチレン容器の変質の経験について

樹脂製の袋の劣化の可能性については、3名の調査対象者から「認識している」との回答があった。

(6) 貯蔵容器内容物の内容器について

貯蔵容器に保管する核燃料物質の内容器としては、「金属製容器を使用する」との回答が5名からあり、残りは無回答であった。また、内容器としてポリ容器を使用したことがあるか否かについては、3名が「ない」と回答し、1名は「金属容器（内容器）に入らない異形の物については、一時あったかもしれない。しかし、その後、金属容器に入れ替えるための作業を行い、対策を講じたように思う。」との回答であった。残りは無回答であった。

(7) X線回折測定済試料の一時保管について

6名からX線回折測定済試料については、空気雰囲気グローブボックス内に一時的に容器に保管していたとの回答があり、その内容を総合すると、空気雰囲気グローブボックス内の容器（バットの中に置いた樹脂製容器（タッパー容器）又はガラス容器）に一時保管（置くだけに近い状態）し、一定数たまと、バッグアウトして別の場所（グローブボックス）で保管していたようである。

(8) 貯蔵容器への樹脂製の袋の収納について

調査対象者の中で4名から、樹脂製の袋を貯蔵容器へ収納する様子を聞き取ることができた。その内容を総合すると、貯蔵容器（金属容器）に入れるに当たり、内容器バッグアウト時にできる限り空気を抜き、バッグが容器に密着する状態で貯蔵容器に収めた。余ったバッグ部分はそのまま折りたたんで収納したとのことであった。

(9) 貯蔵容器の一斉点検について

平成8年に燃料研究棟の核燃料物質貯蔵容器内の一斉点検を実施した。その時の状況について、2名から回答があった。1名は、「当時は知らなかった。事象発生後、当時の月報、月間作業計画を見て、行われていることを知った。貯蔵容器の内部まで確認したかどうかは知らない。」との回答であり、他の1名は「全数か否か定かでないが、貯蔵容器内のビニルバッグの健全性（劣化、破損していないか）を確認したことは記憶にある。ただし、内容器の内部までは確認していない。」とのことであった。

貯蔵容器の蓋開封時の状況に関する作業員への聞き取り調査概要

実施日：平成 29 年 6 月 28 日

場 所：大洗研究開発センター 健康管理棟

回答者：作業員 3 名

(1) 貯蔵容器のボルトを緩め、外していく過程について

- ・ 6 本のボルトを、抜けない程度のところまで順に均等に緩めていった。
- ・ 6 本のボルトを緩めた段階で、貯蔵容器の蓋が浮き上がって来ており、容器本体との間に（感覚的には）数 mm くらいの隙間ができていた。
- ・ 緩めたボルトを 1 本ずつ抜いて行く過程で、抜いた箇所からだんだんと蓋が上がって来ていた。
- ・ 4 本のボルトを抜き、残り 2 本のボルトを緩める際に「シュ」と内圧が抜ける音がして、目視では分からないが、その時 O-リングの一部分が容器本体の上端よりも上に来ていたと思った。
- ・ 対角線上に 2 本のボルトが残っている状態で、蓋を手で押さえつけていなくてもボルトで支えられていた。蓋と容器の間に隙間ができていたので、隙間の全周スミヤを採取し、汚染の無いことを確認した。

(2) 残り 2 本のボルトを外す過程から破裂まで

- ・ 残り 2 本のボルトを交互に少しずつ指で緩めていった。その際、蓋を下に押さえつけていたわけではなく、片手で取手を持っていた。その過程で、完全にボルトを蓋から抜き去る前に破裂してしまい、蓋が外れた。
- ・ 結果的には、ボルトのネジ山が容器に掛かっていない状態まで緩めた瞬間に破裂したことになる。
- ・ 破裂時の圧力から考えて、蓋が浮き上がって来るのを蓋の自重で押さえつけられる状況ではないと思った。

(3) 破裂した瞬間の状況について

- ・ 破裂時に O-リングが容器本体の上端よりは上がったと思うが、数 cm も上がっていないと思った。蓋が容器本体から大きく離れてから「パン」と鳴ったわけではない。蓋が飛んだり、ボルトが飛んだりしていない。
- ・ この時すでに写真（図 6.4.2）のように、容器から樹脂製の袋の一部がはみ出していた。
- ・ 破裂音は「パン」と 1 回だった。耳鳴りがして聞こえなくなるほどの音ではなかった。
- ・ （主作業員は）左腹部に風圧は感じたが、飛散物がぶつかった感覚は無かった。視覚でも飛散物を捉えていなかった。フードのガラスがあったからだと思うが、顔には風を感じていない。
- ・ （主作業員の右後方にいた他の作業員は）両太腿の上方あたりに風を感じたが、ものが当たった感覚は無かった。

(4) 破裂後の状況や処置について

- ・ 破裂した時に「モヤモヤした煙のようなもの」が見えたことに関して、煙草の煙のような白っぽい感じがした。ごく短い間だけパッと飛んで、すぐに拡散して見えなくなった。粉末という感じではなかった。

- ・ 破裂から写真（図 6. 4. 2）を撮影するまでに、状況保存を優先して貯蔵容器には触れていない。
- ・ 樹脂製の袋の開口部は、主作業員が上から見て 7 時方向（真正面よりも幾分左寄り）を向いており、左腹部に風圧を感じたのと整合する。
- ・ 写真（図 6. 4. 2）で見えているのは二重目の袋で、主作業員の位置からは容器内部の一重目の袋は見えなかった。
- ・ ポリ容器の蓋は上下逆転して内面が上側を向いていた。
- ・ 写真右側の袋内に見えている、黒い核燃料物質らしきものは、主作業員の位置からは見えなかった。
- ・ 主作業員の位置からは貯蔵容器内の状況は見えなかったが、フード前の床の養生シート上に散らばった飛散物を見て、何かで固めてあるものと思った。
- ・ 実験室外の職員と措置に関して相談し、状況保存の観点からとりあえずできる措置として、貯蔵容器の蓋を閉めることとした。
- ・ その際、貯蔵容器上端からはみ出ている部分は、容器上端と同じくらいの高さまで手のひらで慎重に押し込んだ。
- ・ その後、蓋を載せてボルトを締めることを試みたが、ボルトの先端が容器本体に届かない距離まで蓋が浮いており、上手く出来なかった。
- ・ Oリングが容器上端に掛かっており、半気密状態にはなっていると思った。内圧が上がっていて破裂したので、気密状態にするリスクも考えられた。

以上

γ線照射による樹脂製の袋の吸収線量評価

1. 確認・調査事項

貯蔵期間（平成8年10月～平成29年6月）中における貯蔵容器内に存在する核燃料物質（U、Pu（Puの崩壊によるAm含む）の崩壊で放出されるγ線による樹脂製の袋の劣化を検討するために、樹脂製の袋の吸収線量を評価する。

2. 確認調査方法・内容

公表されているポリ容器、樹脂製の袋（2層）、貯蔵容器の形状、寸法及び材質に基づき、図7.1.1-1に示す計算体系を設定した。2層の樹脂製の袋は、内側はポリ容器の外面に、外側は貯蔵容器の内面に密着しているとした。

平成3年10月の時点で表7.1.1-1の組成の核燃料物質（U、Pu（Puの崩壊によるAm含む）の混合物が、ポリ容器下部に充填されていたとし、その崩壊で放出されるγ線の挙動を粒子・重イオン輸送計算コードPHITS[1]を用いてシミュレーションし樹脂製の袋の吸収線量を計算した。γ線のエネルギー分布は、表1の組成に基づきDECDC2[2]のデータを用いて求め、崩壊による核燃料物質（U、Pu（Puの崩壊によるAm含む）組成の時間変化に伴うγ線のエネルギー分布の変化も考慮した。

3. 確認・調査結果

図7.1.1-2に、平成3年10月を起点とし、内側と外側の樹脂製の袋における吸収線量率の経過年数に対する変化を示す。線源となる核燃料物質（U、Pu（Puの崩壊によるAm含む）の混合物により近い内側の樹脂製の袋が外側に比べて、より高い吸収線量率になる。平成8年7月に貯蔵容器の点検・更新作業が実施され樹脂製の袋が交換された記録が確認されたことから、内側と外側、それぞれの吸収線量率の経過年数変化を5年目以降でフィッティングし、その積分から21年間の積算の吸収線量を算出し、内側樹脂製の袋：227 kGy、外側樹脂製の袋：108 kGyとの結果を得た。

4. 評価結果

貯蔵容器の内容物の形状や材質、核燃料物質（U、Pu（Puの崩壊によるAm含む）混合物の組成の経過年数変化を考慮し、γ線による樹脂製の袋の吸収線量を計算シミュレーションにより評価した。得られた吸収線量を再現するγ線の照射実験により、貯蔵期間中の樹脂製の袋の照射劣化を評価することができると考えられる。

5. 参考文献

- [1] Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS, Version 2.52, J. Nucl. Sci. Technol. 50:9, 913-923 (2013)
- [2] Nuclear decay data for dosimetry calculation: Revised data of ICRP Publication 38, JAERI 1347 (2005)

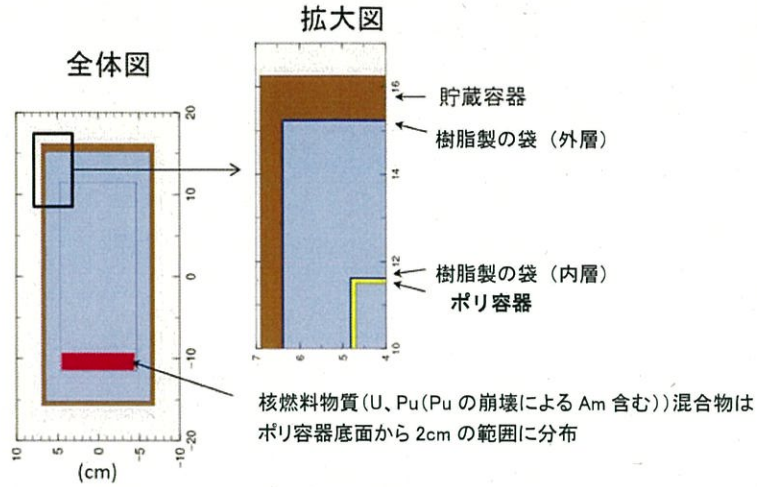


図 7.1.1-1 計算に用いたポリ容器、樹脂製の袋、貯蔵容器の寸法と核燃料物質 (U、Pu (Puの崩壊によるAm含む)) 混合物の配置

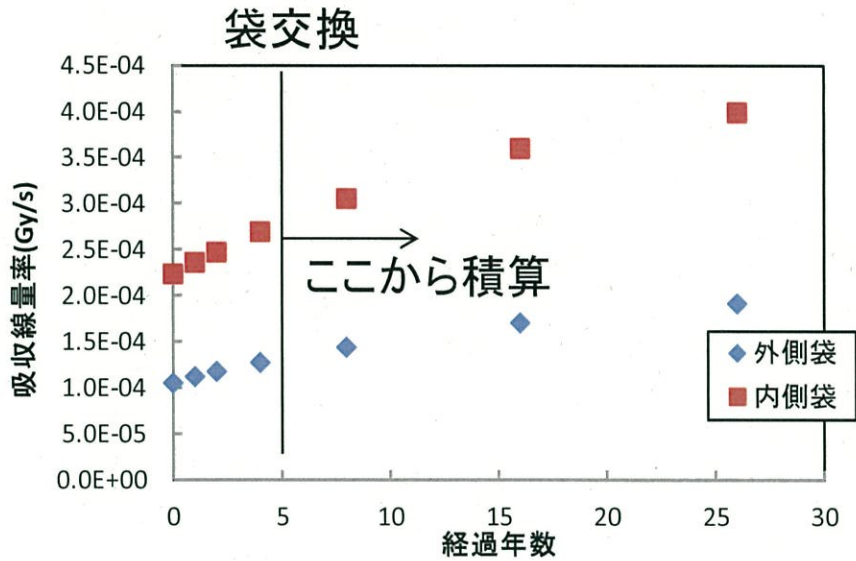


図 7.1.1-2 経過年数に対する吸収線量率の変化

表 7.1.1-1 収納されている可能性のある核燃料物質 (U、Pu (Puの崩壊によるAm含む)) の放射能 (平成3年10月時点)

核種	放射能(GBq)	核種	放射能(GBq)
U-234	■	Pu-238	■
U-235	■	Pu-239	■
U-236	■	Pu-240	■
U-238	■	Pu-241	■
Am-241	■	Pu-242	■

核物質防護の観点から■の箇所は非開示としています。

樹脂製の袋の強度評価

1. 確認・調査事項

- 1.1 樹脂製の袋の耐圧性能
- 1.2 容器蓋開封時の樹脂製の袋の膨張状況

2. 確認調査方法・内容

2.1 樹脂製の袋の耐圧性能

(1) [評価・文献]

製造メーカーから標準品の強度データを入手した。

(2) [検証試験]

以下に示す要領で標準の樹脂製の袋を用いて破裂試験を行い、耐圧評価を行った。

一つ目の試験として、シーラで溶着、密封した樹脂製の袋に、空気ガスのガスボンベを接続し、ガス配管には圧力計を接続し、ガスを注入して樹脂製の袋を破裂させる試験を行った。二つ目の試験として、当該破裂事象の写真を参考にその状況を模擬して、同様の樹脂製の袋を、底部に約φ20mmの穴をあけたステンレス缶（ステンレス缶内径が貯蔵容器入口径サイズに近いφ120mm×h220mm又は同内径が貯蔵容器内径サイズに近いφ133mm×h250mm）に収納し、ステンレス缶底部の穴を通して樹脂製の袋にガスを送り込む方法で破裂試験を行った。本試験はステンレス缶の蓋がない状態での試験とした。試験体系図を図7.1.2-1に示す。

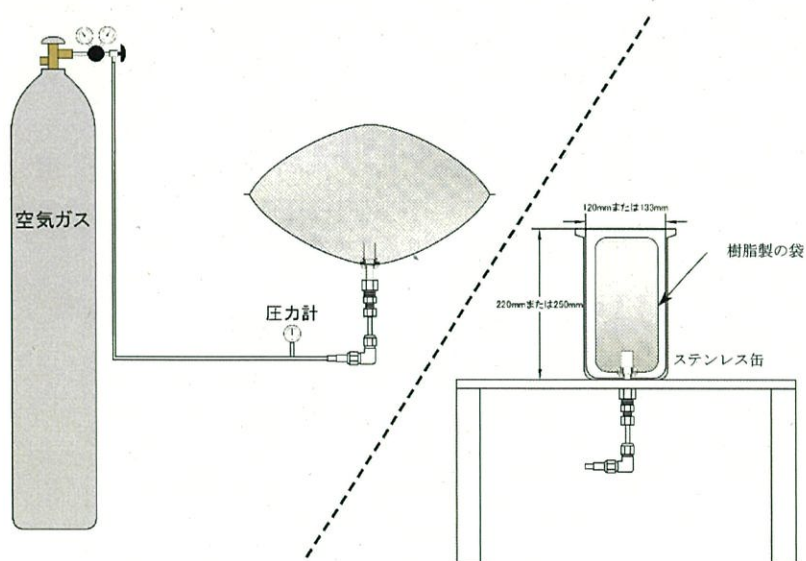


図 7.1.2-1 試験体系図

2.2 容器蓋開封時の樹脂製の袋の膨張状況

(1) [聞き取り調査]

聞き取り調査の報告書から容器蓋開封時の状況について情報収集した。

(2) [検証試験]

本試験では2.1-(2)に示した試験よりも事象発生時の状態に近い体系での評価として、以下に示

す要領で樹脂製の袋の破裂試験を行い、蓋開封時の膨張状況について評価した。

シーラで溶着した樹脂製の袋を、底にφ20 mmの穴をあけたステンレス缶（φ133 mm×h250 mm）に収納した。ステンレス缶の底の穴を通して樹脂製の袋に空気ガスのガスボンベを接続し、ガス配管に圧力計を接続した。聞き取り調査で得られた情報を考慮し、樹脂製の袋の膨らみにより僅かに蓋が空くように、ステンレス缶に蓋を乗せてチェーンで軽く拘束した。ガスを注入して樹脂製の袋が破裂するときの膨張の様子を記録し、破裂箇所の観察を行った。試験体系図を図7.1.2-2に示す。

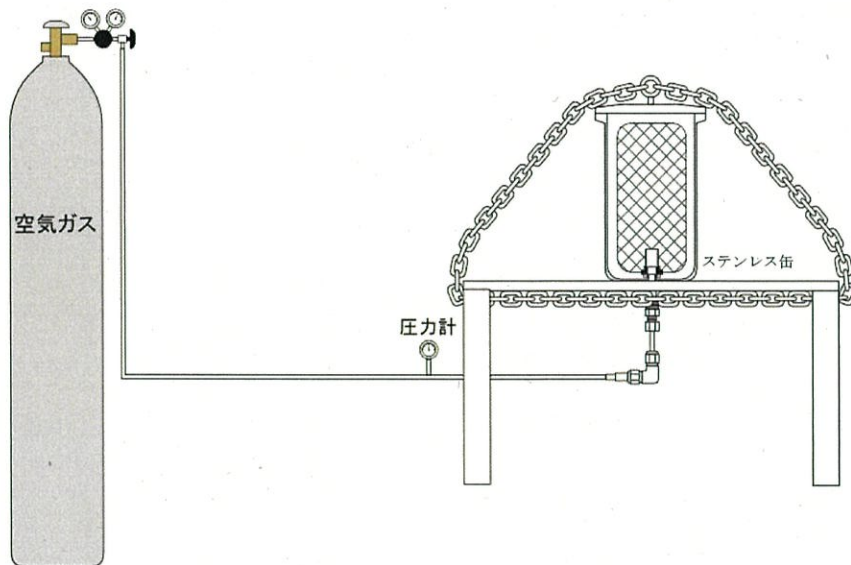


図 7.1.2-2 試験体系図

3. 確認・調査結果

3.1 樹脂製の袋の耐圧性能

(1) [評価・文献]

樹脂製の袋の構成素材である「PVC 梨地フィルム C32」の最近の物性仕様は製造メーカーにより表7.1.2-1のとおり規定されている。

表 7.1.2-1 「PVC 梨地フィルム C32」の物性仕様^{*1}

引張強度 [MPa]	14.7 以上
伸び [%]	200 以上

^{*1} JIS K 6732 準拠

また、樹脂製の袋の重ね溶着部及び底溶着部（図7.1.2-3参照）の強度物性値は製造メーカーにより測定されており、表7.1.2-2に示すとおりである。

表 7.1.2-2 PVC の引張強度*2

	測定結果(平均) [MPa]
重ね溶着部	9.08
底溶着部	6.80

*2 試験片は JIS K 6251 に規定するダンベル状 2 号形

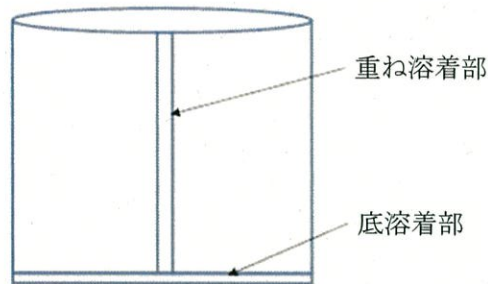


図 7.1.2-3 PVC バッグ (樹脂製の袋) 概略図

(2) [検証試験]

樹脂製の袋にガス配管を直接接続した試験では、加える空気圧 (1~6 kgf/cm²) をパラメータにして、試験を実施した。また、ステンレス缶を用いた試験では、サイズの異なる 2 種類のステンレス缶を用い、缶上部からはみ出る樹脂製の袋の寸法 (0~200 mm) 及び内部に加える空気圧 (1~6 kgf/cm²) をパラメータにして、試験を実施した。試験条件と結果の一覧を以下の表 7.1.2-3 に示す。また、表中の破裂箇所の詳細について図 7.1.2-4 に示す。

表 7.1.2-3 破裂試験条件と結果

No	ステンレス缶 寸法 φ×h[mm]	ステンレス 缶からはみ 出るバッグ 長さ[mm]	送入ガス 圧力*3 [kgf/cm ²]	破裂箇所 ※No. 7~31にお いては図 7.1.2-4のA~E	破裂箇所 の形状	破裂時 配管内 ゲージ圧*4 [MPa]	破損部の 大きさ [mm]	破損まで の時間 [秒]
1	なし	-	1.5	溶着部	穴	0.04	5	28
2	なし	-	3	溶着部	穴	0.08	5	10
3	なし	-	6	溶着部	穴	0.14	10	6
4	なし	-	1	溶着部	穴	0.033	2	34
5	なし	-	1	溶着部	穴	0.032	4	21
6	なし	-	1	溶着部	穴	0.033	3	44
7	120×220	20	1	A (生地部)	放射状	0.060	50	19
8	120×220	40	1	C (生地部)	放射状	0.055	50	25
9	120×220	50	1	C (生地部)	放射状	0.042	90	65
10	120×220	100	1	C (生地部)	直線	0.030	130	600
11	120×220	200	1	E (溶着部)	穴	0.021	1	540
12	120×220	50	3	C (生地部)	放射状	0.08	50	4
13	120×220	100	3	C (生地部)	放射状	0.06	70	10
14	120×220	100	3	C (生地部)	放射状	0.07	70	10
15	120×220	100	3	C (生地部)	放射状	0.07	100	11
16	120×220	50	6	C (生地部)	放射状	0.16	40	3
17	120×220	100	6	C (生地部)	放射状	0.16	90	5
18	120×220	100	6	C (生地部)	直線	0.14	100	4
19	120×220	100	6	C (生地部)	放射状	0.13	80	5
20	133×250	0	1	A (生地部)	放射状	0.050	60	75
21	133×250	100	1	C (生地部)	直線	0.035	130	680
22	133×250	100	1	C (生地部)	放射状	0.030	130	540
23	133×250	100	1	C (生地部)	直線	0.029	140	510
24	133×250	100	3	C (生地部)	放射状	0.06	100	16
25	133×250	100	3	C (生地部)	放射状	0.07	60	10
26	133×250	100	3	C (生地部)	放射状	0.07	110	16
27	133×250	0	3	A (生地部)	放射状	0.1	40	4
28	133×250	0	6	A (生地部)	放射状	0.14	40	4
29	133×250	100	6	C (生地部)	放射状	0.14	70	6
30	133×250	100	6	C (生地部)	放射状	0.15	110	7
31	133×250	100	6	C (生地部)	放射状	0.14	90	7

*3 ガスポンベのレギュレータの2次圧、*4 配管に接続した圧力計の指示値

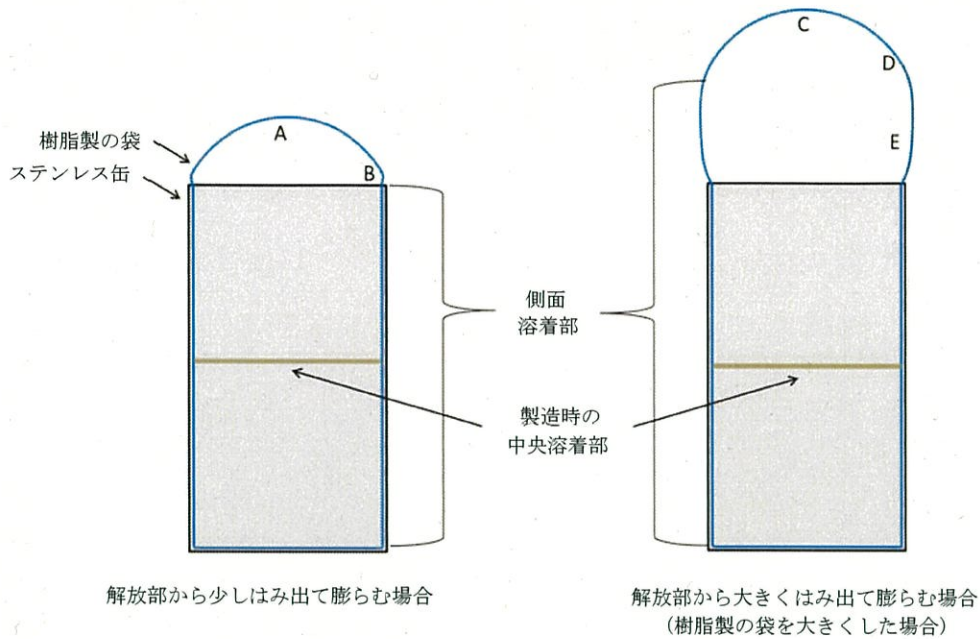


図 7.1.2-4 破裂箇所の概略図

樹脂製の袋にガス配管を直接接続した試験では、すべての試験において溶着部と生地部の境界付近に 2~10 mm 程度の穴が開き、ガスが抜けるという挙動であった。破裂直前の配管内の圧力は大気圧+0.032~0.14 MPa (1.32~2.4 気圧) であった。

ステンレス缶 (蓋なし) 内に装荷した樹脂製の袋にガスを送入すると、ステンレス缶内面で拘束された部分は膨らむことができないため、ステンレス缶上側の解放部で膨らんで破裂する結果となった。この際の破裂直前の配管内の圧力は大気圧+0.021~0.16 MPa (1.21~2.6 気圧) であった。

表 7.1.2-3 の破裂箇所の A 及び C は上部の中央付近 (生地部)、B 及び D は上部の端 (生地部)、E は側面の溶着部である。破裂状態の例として、No. 9 (放射状)、No. 10 (直線)、No. 11 (穴) の写真を図 7.1.2-5~図 7.1.2-7 に示す。

破裂箇所と破損形状について、ステンレス缶から大きくはみ出ない場合、側面すなわち溶着部がステンレス缶内面に拘束されるため、上部のみがドーム状に膨らんだ。その結果、ドーム状に膨らんだ中央付近 (A) から放射状に破裂した。また、ステンレス缶から大きくはみ出る場合もバッグ上部 (C) かつ生地部から破損するケースが多かったが、はみ出ている側面にも張力がかかることから、条件によっては破裂部の形状が穴空きや直線となるケースがあった。また、1 ケースのみではあるが溶着部と生地部の境界付近からの破損が観察された (No. 18)。この場合は小さな穴が空いてガス漏れする緩やかな破損挙動であった。また、形状が穴空きや直線となるケースは破損までの時間が長い (100 秒以上)、すなわち比較的ゆっくりと膨張した試験において観測された挙動であった。

表 7.1.2-3 の破裂時配管内圧力について、送入ガス圧力を高くして樹脂製の袋が膨らむ速度を速くすると、破裂時の内圧は大きくなる傾向が示された。6 kgf/cm² で急激にガスを送入した場合、破裂時の内圧は大気圧+0.14~0.16 MPa (2.4~2.6 気圧) となった。一方、送入ガス圧力が低く比較的緩やかにガスを送入した試験 (挿入ガス圧力: 1 kgf/cm²、破損までの時間: 100 秒以上、No. 10・No. 11・No. 21~23) では、破裂時の内圧は大気圧+0.021~0.035 MPa (1.21~1.35 気圧、平均 1.29 気圧) となった。



図 7.1.2-5 破裂状態の例 No. 9 (放射状)



図 7.1.2-6 破裂状態の例 No. 10 (直線)



図 7.1.2-7 破裂状態の例 No. 11 (穴)

3.2 容器蓋開封時の樹脂製の袋の膨張状況

(1) [聞き取り調査]

6本のボルトを緩めた際に蓋が押し上げられた。6本中4本を外し、残り2本のボルトを交互に少しずつ緩め、完全にボルトを抜き去る前に蓋が浮き上がり、破裂した。Oリングが容器本体の上端よりは上がった時点で「パン」と鳴った。蓋が容器本体から大きく離れてから「パン」と鳴ったわけではない。破裂音が聞こえ、蓋をフード内に置いた時点で、容器からバッグの一部がはみ出していた。個人の感覚によるが破裂音は「耳が痛くなるほど大きな音」であったと、作業員の1人から証言された。

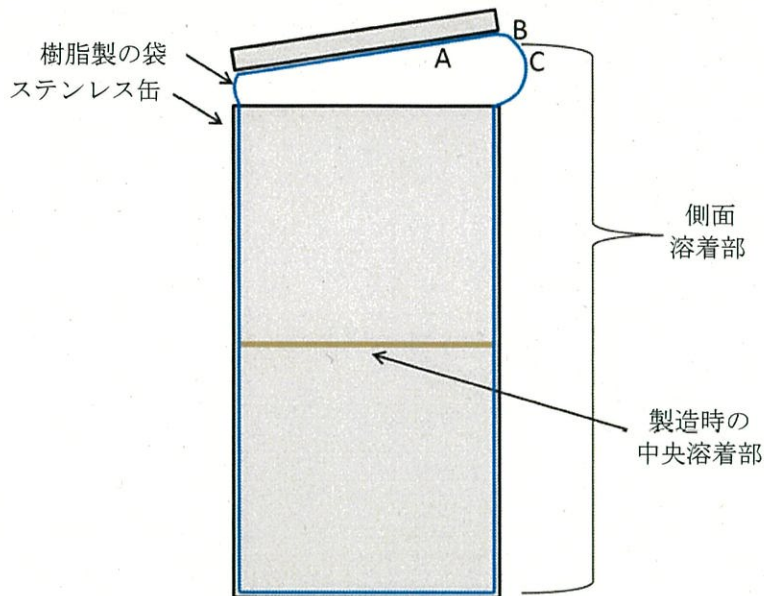
(2) [検証試験]

樹脂製の袋にガスを送入すると、ステンレス缶内面及び蓋で拘束された部分は膨らむことができないため、蓋が浮いてできた隙間から膨らみ、破裂する結果となった。この際の破裂直前の配管内の圧力は大気圧+0.1~0.3 MPa (2.0~4.0 気圧) であった。試験パラメータは送入ガス圧力 (2~6 kgf/cm²)、ステンレス缶と蓋の隙間 (20~70 mm) である。試験条件と結果の一覧を以下の表 7.1.2-4 に示す。また、表中の破裂箇所の詳細について図 7.1.2-8 に示す。

表 7.1.2-4 破裂試験条件と結果

No.	ステンレス缶寸法 φ×h[mm]	ステンレス缶からはみ出る バッグ長さ [mm]	送入ガス 圧力*5 [kgf/cm ²]	蓋の 隙間 [mm]	破裂箇所 ※図 7.1.2-8 の A, B, C	破裂箇所の 形状	破裂時 配管内 ゲージ圧*6 [MPa]	破損部の 大きさ [mm]	破損まで の時間 [秒]
1	133×250	100	2	70	A (生地部)	放射状	0.10	50	190
2	133×250	100	2	40	A (生地部)	放射状	0.14	30	230
3	133×250	100	2	35	B (生地部)	放射状	0.14	30	190
4	133×250	100	3	40	C (溶着部)	穴	0.14	10, 2	6
5	133×250	100	3	50	A~B (生地部)	直線	0.17	80	6
6	133×250	100	6	20	B (生地部)	放射状	0.30	20	5
7	133×250	100	6	40	B (生地部)	放射状	0.22	20	3
8	133×250	100	6	40	B (生地部)	放射状	0.22	25	4
9	133×250	100	6	40	A (生地部)	直線	0.24	55	5
10	133×250	100	6	35	B (生地部)	直線	0.25	45	6
11	133×250	100	6	35	A~B (生地部)	直線	0.25	70	6
12	133×250	-45	2	25	A (生地部)	直線	0.10	50	175
13	133×250	-50	2	30	A (生地部)	直線	0.12	50	230
14	133×250	-60	2	25	A (生地部)	直線	0.13	50	195

*5 ガスボンベのレギュレータの2次圧、*6 配管に接続した圧力計の指示値



上方向を蓋に拘束されて膨らむ場合

図 7.1.2-8 破裂箇所の概略図

破裂箇所の A は生地部、B は溶着部に近い生地部、C は溶着部である。樹脂製の袋の膨張の様子と破損形状の例として、No. 9 (放射状)、No. 10 (穴)、No. 11 (直線) の写真を図 7.1.2-9～図 7.1.2-11 に示す。「3.1 樹脂製の袋の耐圧性能」に示した蓋なしの試験と比べると、穴や直線の破損形状になるケースが多くなっており、蓋の拘束が加わったためと考えられる。また、蓋なしの試験に比べて開口部が少ない分、樹脂製の袋のはみ出る部分が小さく、はみ出た部分が膨張して破裂に至り、破損部分も小さくなっている。また、蓋なしの試験に比べて破裂時の配管内圧力が比較的高くなった。

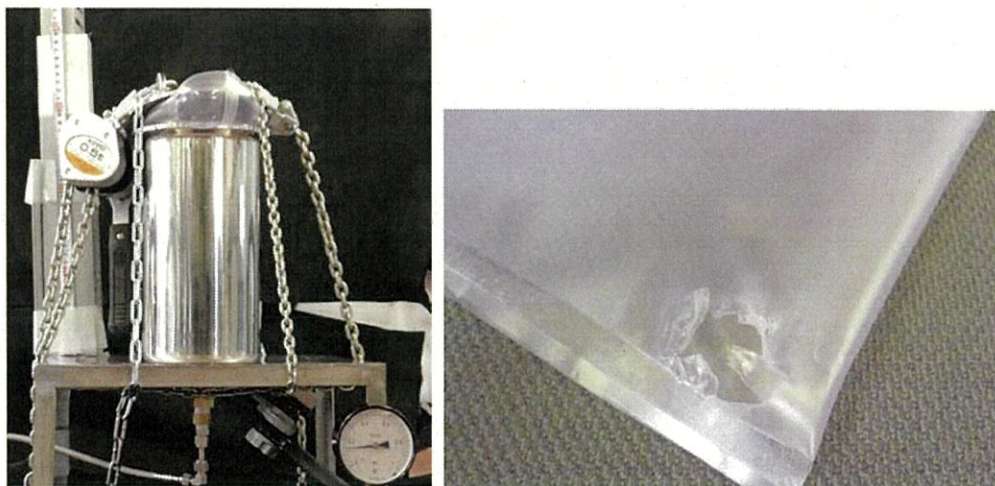


図 7.1.2-9 樹脂製の袋の膨張の様子と破損状態 No. 3 (放射状)

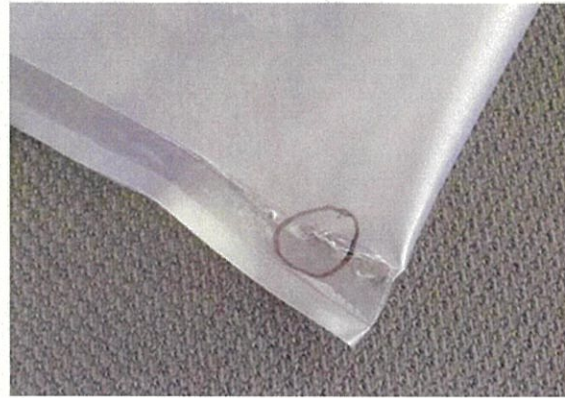


図 7.1.2-10 樹脂製の袋の膨張の様子と破損状態 No. 4 (穴)



図 7.1.2-11 樹脂製の袋の膨張の様子と破損状態 No. 5 (直線)

4. 評価結果

4.1 樹脂製の袋の耐圧性能

文献から得られる樹脂製の袋の引張強度は、加工が施されていない生地部に比べ、重ね溶着部及び底溶着部が弱い。また、引張試験では生地部が約 300 %の伸び（約 4 倍の長さ）を示すことが分かった。したがって、密閉した樹脂製の袋の内圧が上昇し、仮に理想的な球状に膨らんだとすると、樹脂製の袋の接線方向にかかる張力はすべての場所で同じと考えられ、引張強度が弱い溶着部が破損することになる。これは樹脂製の袋にガス配管を直接接続した試験において溶着部から破損した結果とよく合っている。

一方で、ステンレス缶に入った樹脂製の袋が膨らむ際の挙動は複雑であり、ステンレス缶内の壁面や蓋などの拘束部分が存在することから樹脂製の袋にかかる張力は場所によって様々なため、解析的な手法から破裂箇所や破裂時の内圧を評価することは困難である。

検証試験における破裂箇所と形状に関して、樹脂製の袋がステンレス缶から大きくはみ出すケース及びはみ出さないケースのいずれも破裂箇所は A もしくは C の樹脂製の袋の上部の中央付近（生地部）が多かった。これは、ステンレス缶の側面及び底面によって樹脂製の袋の膨張が制限されたため、ステン

レス缶上部の開放部に膨張が進み、最も拘束部分から遠い樹脂製の袋上部の中央付近が膨張しやすかったことに起因すると考えられる。また、大きくはみ出すケースの場合は条件によって破損形状が穴空きや直線となるケースがあり、これは破損までの時間が長い（100 秒以上）、すなわち比較的緩やかに膨張した試験において観測された挙動であった。事象発生時の樹脂製の袋の写真において破裂箇所放射状の破損形状が見られないことから、事象発生時の樹脂製の袋は比較的緩やかに膨張して破裂し、穴空きや直線形状等の破損に至った可能性が考えられる。

検証試験における耐圧に関して、送入ガス圧力が高い場合は圧力と流量の関係から樹脂製の袋内と配管内圧力の間に圧力差が生じてしまう。圧力差の小さい、送入ガス圧力が低く比較的緩やかにガスを送入した試験における破裂時の内圧は大気圧+0.021~0.035 MPa（1.21~1.35 気圧）であった。これより標準の樹脂製の袋は1.20 気圧以上の内圧で破裂する可能性がある。

以上より、樹脂製の袋は生地部より溶着部の方が弱く破損しやすいが、破損は張力のかかり方に大きく依存する。当時の破裂事象時の写真情報から樹脂製の袋は貯蔵容器内で拘束されていたと推測され、少なくとも放射状の破損は見られない。これと検証試験の結果から事象発生時の樹脂製の袋は比較的緩やかに膨張して破裂した可能性が考えられる。また、標準の樹脂製の袋は1.20 気圧以上の内圧で破裂すると推測される。

また、今後、現地調査を行い、破裂箇所や破損形状を特定して破裂に至る経緯を評価することが重要である。

4.2 容器蓋開封時の樹脂製の袋の膨張状況

聞き取り調査では、蓋を僅かに上げた段階で内部の樹脂製の袋が破裂したことを示す証言が得られていることから、樹脂製の袋の膨張は僅かで、比較的緩やかに進行したと考えられる。

検証試験において、樹脂製の袋の膨らみにより緩やかに蓋が開封されて、隙間から見えている箇所が破裂した。これは事象が発生した貯蔵容器の蓋の開封状況に近い試験であったと考えられる。一方で、検証試験では、標準の樹脂製の袋を用いたため伸びが大きいこと、ステンレス缶と蓋の隙間が20~70mmと作業者の聞き取り調査記録での蓋の開度よりは大きめであったと推測されること、ステンレス缶と蓋の開口幅をチェーンで強制的に制限したことは、当時の破裂事象を再現できなかった点である。

検証試験では樹脂製の袋のサイズは一定とし、送入ガス圧力のみを変更した。送入ガス圧力と蓋とステンレス缶の隙間に関しては、送入ガス圧力が低いと隙間が大きくなる傾向が示されたが、断定できるほどではない（2 kgf/cm²：35~70 mm、6 kgf/cm²：20~40 mm）。一方、送入ガス圧力を高くして樹脂製の袋が膨らむ速度を速くすると、破裂時の内圧は明らかに大きくなる傾向が確認された。2 kgf/cm²でゆっくりとガスを送入した場合、破裂時の内圧は2.0~2.4 気圧となり、6 kgf/cm²で急激にガスを送入した場合、破裂時の内圧は3.2~4.0 気圧となった。この送入ガス圧力と破裂時の内圧の関係は、蓋なし場合の破裂試験結果と同様であるが、蓋がある場合の方が全体的に破裂時の内圧が高い。これは、隙間からはみ出して膨らんだ箇所の体積を球と見なした場合の直径（球相当径）で比較すると、蓋がない場合の試験で膨張した箇所の球相当径よりも蓋がある場合の球相当径が小さかったためと考えられる。一般的に、張力（樹脂製の袋に対して接線方向の力）が一定の場合、球相当径が小さい（曲率半径が小さい）場合の方が内圧（樹脂製の袋に対して垂直の力）は高くなる。破裂試験において蓋で上面を

拘束した場合、解放された隙間が小さいため、隙間から小さくはみ出して膨らんだ。このため、球相当径が小さくなり破裂に必要な張力に達するためには高い内圧が必要になったと考えられる。

当時の破裂事象が起こったステンレス缶及び樹脂製の袋においては、Oリングが容器本体の上端よりは上がった時点で「パン」と鳴ったとの証言が得られている。従って、試験条件よりもさらに隙間が小さく、このような小さい隙間から樹脂製の袋がはみ出して破裂したとは考えにくい。本試験のNo. 12～No. 14 は樹脂製の袋を短くして、蓋の隙間を 20 mm～30 mm と小さくした試験である。このときの樹脂製の袋内圧は 2.0 気圧～2.3 気圧と見積もられた。劣化した樹脂製の袋については標準品よりも強度や伸びが低下するため、当時の破裂事象時の樹脂製の袋の場合はわずかに蓋を押し上げた後、放射線や加圧による脆化により大きく伸びずに破裂したと推測される。現地調査によってステンレス缶の容積と樹脂製の袋の寸法を比較し、これらの比率を合わせたうえで破裂試験を行い、破裂過程を確認することが必要と考える。

今回の破裂事象に対して原因究明のために実施した樹脂製の袋の種々の破裂試験における配管内圧力の最大値、最小値について表 7. 1. 2-5 にまとめた。照射した樹脂製の袋のデータについては添付 7. 1. 3 ⑭「樹脂製の袋のγ線による劣化」から引用した。送入ガス圧力が低い場合は樹脂製の袋内と配管内の間の圧力差が小さく、配管内圧力は袋内圧力とほぼ同等と考えられるが、送入ガス圧力が高い場合は圧力と流量の関係から樹脂製の袋内と配管内圧力の圧力差が大きく、配管内圧力は袋内の圧力よりも高い指示値を示していると考えられる。

表 7. 1. 2-5 中での最小値 (1. 21 気圧) は未照射樹脂製袋を用いた蓋なしステンレス缶で実施したものであり、溶着部に小さな穴が開いてガスが抜ける挙動を示した。一方で作業員の聞き取り調査記録では、作業員が破裂音を聞き、風圧を感じていることから袋が破裂していると考えられ、状況から小さな穴が開いたとは考えにくいことに注意する必要がある。また、最大値 (4. 0 気圧) は未照射樹脂製袋を用いた蓋ありステンレス缶で実施したものであり、生地部が膨れて放射状に破裂する挙動を示した。この試験の送入ガス圧は高く、袋の内圧よりも高い圧力を指示していると考えられる。

表 7. 1. 2-5 各破裂試験条件と配管内圧の最大・最小値

照射有無	ステンレス缶有無	蓋有無	送入ガス圧力 [kgf/cm ²]	破裂箇所	破裂箇所の形状	配管内ゲージ圧 [MPa]	配管内圧力 [atm]	
未照射	なし	-	1	溶着部	穴	0. 032	1. 32	内圧最小値
未照射	なし	-	6	溶着部	穴	0. 14	2. 4	内圧最大値
未照射	あり	なし	1	溶着部	穴	0. 021	1. 21	内圧最小値
未照射	あり	なし	6	生地部	放射	0. 16	2. 6	内圧最大値
未照射	あり	あり	2	生地部	直線	0. 10	2. 0	内圧最小値
未照射	あり	あり	6	生地部	放射	0. 30	4. 0	内圧最大値
照射	あり	なし	1	生地部	直線	0. 042	1. 42	-
照射	あり	あり	1	生地部	直線	0. 09	1. 9	内圧最小値
照射	あり	あり	1	生地部	直線	0. 11	2. 1	内圧最大値

樹脂製の袋の破裂に係る基本事象ごとの評価内容詳細

- ① α 崩壊による He ガス
- ②混入有機物
- ③ポリ容器
- ④混入水分
- ⑤容器内物質間の化学反応（ガス、熱）
- ⑥爆発性物質の爆発（ガス、熱）
- ⑦可燃性ガスの燃焼・爆発（ガス、熱）
- ⑧臨界発生（ガス、熱）
- ⑨崩壊熱
- ⑩夏期の高温
- ⑪不適切な溶着
- ⑫封入時の傷等
- ⑬樹脂製の袋の α 線による劣化
- ⑭樹脂製の袋の γ 線による劣化
- ⑮樹脂製の袋の β 線による劣化
- ⑯樹脂製の袋の熱劣化
- ⑰樹脂製の袋の経年劣化
- ⑱当時の樹脂製の袋の品質
- ⑲ポリ容器放射線劣化
- ⑳ポリ容器内突起物混入による損傷
- ㉑貯蔵容器開封時の傷等

① 「 α 崩壊による He ガス」

1. 確認・調査事項

貯蔵期間（平成 8 年 10 月～平成 29 年 6 月）中に、貯蔵容器内に存在する核燃料物質の α 崩壊で生成される He ガス量を計算により導出し、樹脂製の袋の内圧上昇に対する寄与程度を評価する。

2. 確認調査方法・内容

貯蔵容器内に貯蔵されていた核燃料物質について、貯蔵期間中に α 崩壊で生成される He ガス量を計算し、He ガス量と貯蔵容器内の発生気体滞留可能体積とを比較することにより、貯蔵容器内圧上昇へ及ぼす影響の程度を評価する。

3. 確認・調査結果

U と Pu の混合試料 5 種について、ORIGEN2 コード[1]と JENDL-4.0[2]により貯蔵容器への貯蔵時まで、健全性確認点検時まで、及び樹脂製の袋の破裂事象時までに発生した He 量を求め、その差分から試料の貯蔵容器内の He 存在量を導出した。

He 生成/存在量計算結果を表①-1 に示す。貯蔵容器内の He 存在量は、Pu が全て A 組成であった場合に最も大きくなった。

ここで、破裂事象が発生した貯蔵容器については、平成 8 年 7 月の健全性確認点検において開封検査の対象となった可能性があり、内部確認点検時に開封され発生した He が環境放出されたケースと、開封されなかったケースでの貯蔵容器内の He 存在量は次のとおりとなった。

○内部確認検査時に開封されたケース

- ・He 重量： 2.25×10^{-3} g
- ・He の標準状態での体積：12.6 mL

○内部確認検査時に開封されなかったケース

- ・He 重量： 2.70×10^{-3} g
- ・He の標準状態での体積：15.1 mL

4. 評価結果

貯蔵期間中にアクチノイドの α 崩壊により生成/放出される He ガス発生量は、健全性確認点検時に開封されたケースでは 12.6 mL、開封されなかったケースでは 15.1 mL と評価*1 され、何れにせよ貯蔵容器内の発生気体滞留可能体積 2.3 L*2 に比して 1 %以下（0.5 %= $0.0126/2.3 \times 100$ ，0.7 %= $0.0151/2.3 \times 100$ ）と極めて小さく、樹脂製の袋の内圧上昇への寄与も極めて小さいと考えられる。

*1) 樹脂製の袋と貯蔵容器の O-リングを水素が透過してガス圧が下がることは考慮していない。

*2) 発生気体滞留可能領域の体積で、貯蔵容器の内容積（3.9 L）からポリ容器の外容（1.6 L）を減じたもの。なお、ここでは当該体積を小さく見積もる（ガス発生時の圧力上昇を大きく見積もる）ために、ポリ容器内は充填物で満たされており空間はない、とした。

5. 参考文献

- [1] M. J. Bell, “ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code”, ORNL-4628, 1973.
- [2] 奥村啓介ら, “JENDL-4.0 に基づく ORIGEN2 用断面積ライブラリセット:ORLIBJ40”, JAEA-Data/Code 2012-032, 2013.

表①-1 貯蔵容器内の核燃料からのヘリウム発生量計算結果

Pu 組成	貯蔵容器への 貯蔵までに 発生	貯蔵容器の 開封確認時 までに発生	樹脂製の袋の 破裂時までに 発生	貯蔵容器内の He 存在量			
	(1)	(2)	(3)	(3)-(1)		(3)-(2)	
	[g]	[g]	[g]	[g]	[mL]	[g]	[mL]
A 組成	9.36×10^{-4}	1.39×10^{-3}	3.64×10^{-3}	2.70×10^{-3}	15.1	2.25×10^{-3}	12.6
B 組成	7.60×10^{-4}	9.69×10^{-4}	1.91×10^{-3}	1.15×10^{-3}	6.4	9.43×10^{-4}	5.3
C 組成	1.20×10^{-3}	1.55×10^{-3}	3.19×10^{-3}	1.98×10^{-3}	11.1	1.64×10^{-3}	9.2
D 組成	1.41×10^{-3}	1.87×10^{-3}	4.08×10^{-3}	2.68×10^{-3}	15.0	2.22×10^{-3}	12.4
E 組成	6.86×10^{-4}	8.89×10^{-4}	1.81×10^{-3}	1.12×10^{-3}	6.3	9.20×10^{-4}	5.2

② 「混入有機物」

1. 確認・調査事項

ポリ容器内の核燃料物質が有機物と混在している場合、放射線から付与されるエネルギーにより化学結合が切断され、水素や炭化水素 (C-H) 等の種々のガスが発生する。固体中で発生した α 線 (He イオン) の飛程は、アクチノイド化合物中で 10 μm 程度、有機物中でも 100 μm 以下と考えられ、 α 崩壊のエネルギー (5 MeV \sim) のほとんどを固体に付与することから、 γ 線によるエネルギー付与に比べて格段に大きい。

当該貯蔵容器には、X線回折測定用試料としてエポキシ樹脂と混合されたままの核燃料物質が含まれている可能性が高いことから、エポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生に関して、試験及び計算評価によりその影響の度合いを検討した。

2. 確認調査方法・内容

調査方法は、(1) α 崩壊の半減期の短い Cm-244 を含有した酸化物粉末 (以下「Cm 粉末」という。) とエポキシ樹脂を混合し、 α 線分解による樹脂の重量減少と密閉状態でのガス発生による内圧上昇を直接的に観察する方法と、(2) エポキシ樹脂に α 線を模擬した He イオンを照射し、発生するガスを定量分析することで、G 値 (エネルギー付与 100 eV あたり発生するガス分子数) を評価した上で、核燃料物質の粉末とエポキシ樹脂の混合物から発生するガス量を算出する方法の 2 種類を用いた。なお、確認のため、(3) エポキシ樹脂への γ 線照射によるガス発生の G 値も試験により評価し、 α 線による寄与と比較検討した。

(1) Cm 粉末を用いたエポキシ樹脂の α 線分解試験の方法

使用した Cm 粉末は、Cm-244 (半減期 18.1 年) とその娘核種 (Pu-240) からなる二酸化物粉末である。この粉末を乳鉢で粉碎し、2 液混合型のエポキシ樹脂系接着剤と所定の比率で混合・固化した試料を 2 個作成した。混合組成は表②-1 のとおりである。

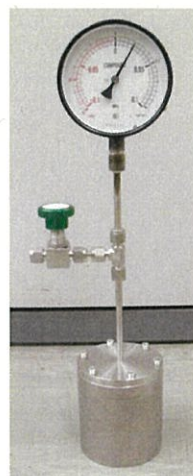
表②-1 Cm 粉末とエポキシ樹脂の混合組成

試料名	エポキシ樹脂重量 (mg)			Cm 粉末重量 (mg)	Cm 粉末含有率 (%)
	主剤	硬化剤	樹脂合計		
A	56.35	60.07	116.42	-	-
B	75.75	75.76	151.51	19.36	11.33
C	116.77	114.20	230.97	28.63	11.03

アルゴン雰囲気 (水分濃度 2 ppm 以下) のグローブボックス中で、試料 B は開放状態で毎日重量を測定し、エポキシ樹脂の分解による重量減少率を算出した。試料 A (エポキシ樹脂のみ) は、B の参照用として同様に毎日重量測定し、樹脂のみで変化があるかの確認用に用いた。試料 C は、図②-1 に示す圧力計付きの密閉容器 (有効内容積 194 mL) に同じアルゴン雰囲気下で密閉し、ガス発生による圧力上昇値を毎日記録した。図②-1 には、試料 A~C の作製時の外観写真も示す。



左から試料A、B、C
(ステンレス鋼製の皿の中で混合・固化)



圧力計付き
密閉容器の外観

図②-1 Cm 粉末とエポキシ樹脂の固化試料外観 (左) と圧力計付き密閉容器

(2) エポキシ樹脂への He イオン照射による発生ガス分析方法

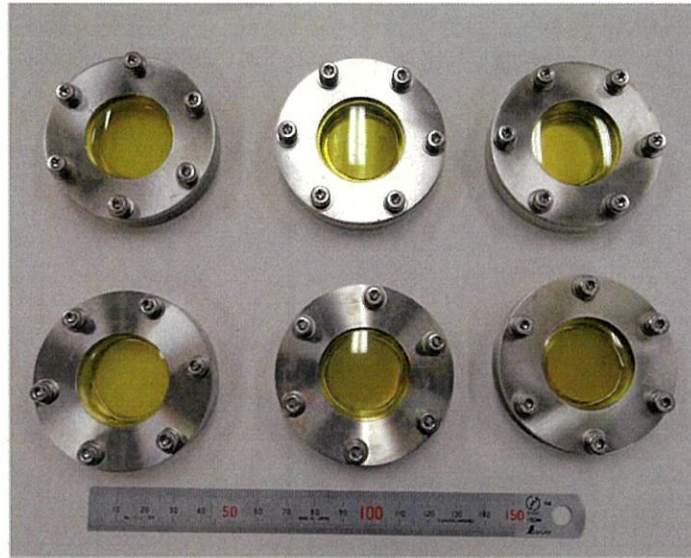
(a) 試料準備

(1) で用いたものと同じ 2 液混合型のエポキシ樹脂系接着剤の主剤及び硬化剤を 1 : 1 で混合し、直径 26 mm のステンレス鋼製円盤に塗布して厚さ数 100 μm に固化したものを試料として用いた。また、実環境と同じ大気中での α 線照射を模擬するため、ステンレス鋼製の大気照射セルを利用した。このセルのビーム入射部は、7.5 μm 厚のカプトン製フィルム製で、大気中に取り出した He イオンを照射する事が可能な構造となっている。図②-2 に大気照射セルの写真を示す。

(b) He イオン照射及び発生水素量分析

量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所 (以下「量研 高崎研」) TIARA のタンデム加速器を利用して、 α 粒子を模擬した 5.5 MeV の He イオンを試料に照射し、発生したガスの成分を四重極質量分析器 (Q-Mass) で測定した。

大気環境を模擬する大気照射セルへの He イオン照射を行った。タンデム加速器で 9 MeV に加速された He イオンを利用し、大気取り出し窓と空気中でのエネルギー減衰により、5.5 MeV に減衰した He イオンを試料に照射した。照射後、セル内の気体を水上置換により捕集し、ガスクロマトグラフにより発生ガス量の評価を行った。分析ガス種に関しては、高分子の放射線分解生成物で過半を占める水素に対して行った[1]。



図②-2 大気照射セルの写真

(セル内にエポキシ樹脂試料を設置し、1気圧の空気で満たされている)

(3) エポキシ樹脂の γ 線照射によるG値(ガス発生量)の評価試験方法

(a) 試料準備

(1)で用いたものと同じ2液混合型のエポキシ樹脂系接着剤の主剤及び硬化剤を1:1で混合し、ポリプロピレン製クリアファイルに塗布して厚さ約1mmの板状に固めた後、剥がして、約1cm角の正方形に切断した。切断した試料は予備照射を行うものと予備照射を行わない試料に分けた。

(b) γ 線照射及び発生水素量分析

量研 高崎研の食品照射棟第2セルにて、6 kGy/hで60時間の予備照射を行った。予備照射ありの試料と照射なしの試料をそれぞれガラス瓶に入れてゴム栓で密封し、0.76、1.6、2.8、3.6 kGy/hの4条件の γ 線照射線量率にてそれぞれ3.5時間、室温で照射した。試料数は予備照射あり、なしともに1個とした。

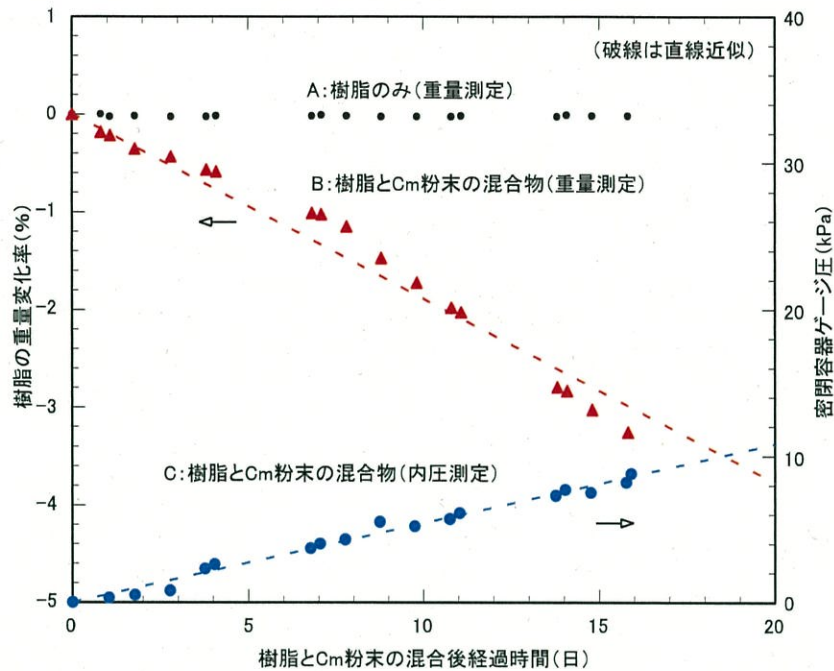
照射後、シリンジでガラス瓶内のガスを取り出し、ガスクロマトグラフを用いて水素発生量を定量分析した。

3. 確認・調査結果

(1) Cm粉末を用いたエポキシ樹脂の α 線分解試験の結果

試料A、Bの樹脂の重量変化率と試料Cの密閉容器の内圧変化の測定結果を図②-3に示す。試料Bのエポキシ樹脂重量変化と試料Cの密閉容器内圧変化は、経過時間に対してほぼ比例していることが確認された。グラフの経過時間(16日間)において、試料A(エポキシ樹脂のみ)の重量減少は0.03%未満で無視できる値であるのに対し、開放系に保持した試料Bのエポキシ樹脂の重量減少率は3.3%(4.93mg)と有意な値であり、 α 線による分解が起こっていたことを裏付けている。一方、試料Cの密閉容器内圧は16日間で8.6 kPa上昇した。この内圧上昇をガス発生量に換算すると、 6.75×10^{-4} molとなり、標準状態換算で15.1 mLに相当する。16日経過時点で密閉容器を開封し、その直後に試料Cの重量を測定した

ところ、エポキシ樹脂の重量減少率は0.68% (1.58 mg) であり、同じ経過時間の試料Bに比べて約1/5と小さい値であった。試料Bの外観と比べて、密閉されていた試料Cは樹脂が全体的に膨張していた(図②-4)ことから、密閉の加圧下では、樹脂内で発生したガス分子が外部に放出されにくく、樹脂内でミクロな気泡を形成していることが示唆される。試料Cのガス発生量と重量減少から、ガス種を水素とメタンの2種混合と仮定して組成を概算評価し、97%が水素、3%がメタンとの結果を得た。



図②-3 Cm粉末と混合したエポキシ樹脂の重量変化率と密閉状態の内圧変化



図②-4 密閉容器から取り出した試料C(右端)と解放状態にあった試料A、Bの比較

上記の試験結果を貯蔵容器内のPuに換算し、エポキシ樹脂中に分散したPu 1gあたりから発生するガス量を評価した。Cm含有粉末の実効崩壊定数は $1.90 \times 10^{-10} \text{ s}^{-1}$ であり、16日間で発生した α 粒子の数は 1.66×10^{16} 個であるので、 α 粒子1個あたりから発生したガス分子の数は 2.45×10^4 個と算出される。貯蔵容器内の代表組成A(表6.4.1参照)のPu 1gあたりから、エポキシ樹脂と混合されていた場合に発生するガス量は以下のとおりである。まず、平成3年10月の貯蔵開始から平成8年7月の点検時まで(4.75年間)に、Pu 1gあたりから発生する α 粒子の数は 9.63×10^{17} 個である。代表組成Aの α 線の平均エネルギー(5.28 MeV)とCm-244の α 線のエネルギー(5.8 MeV)の比を考慮して、エポキシ樹脂

中のPu 1 gあたりから4.75年間に発生するガス分子の数を算出すると、 2.15×10^{22} 個 (0.0356 mol) となり、標準状態換算で0.80 Lのガスが発生することになる。同様に、平成8年7月(再梱包)から樹脂製の袋が破裂した平成29年6月までの20.92年間では、Pu 1gあたりの α 粒子の発生数は 4.78×10^{18} 個、ガス分子の発生量は 1.07×10^{23} 個 (0.177 mol) で、標準状態換算で3.96 Lのガスが発生することになる。

なお、この評価は実際の貯蔵容器内のPuと比べて、以下の点で過大評価になっている可能性が高い。1点目は、5種類のPuの同位体組成のうち、最も α 粒子発生数の多い組成Aを代表として用いていること。2点目は、上記試験はCm粉末とエポキシ樹脂を混合した直後の状態からのデータであるのに対し、貯蔵容器内の試料はエポキシ樹脂との混合後、グローブボックス中で最低でも2年以上経過していることである。 α 線によるエポキシ樹脂の分解が進むにつれて、ガスの発生速度が低下してくる可能性があるため、Cm粉末を混合したエポキシ樹脂の重量と密閉状態での内圧変化の観察を継続して実施中である。

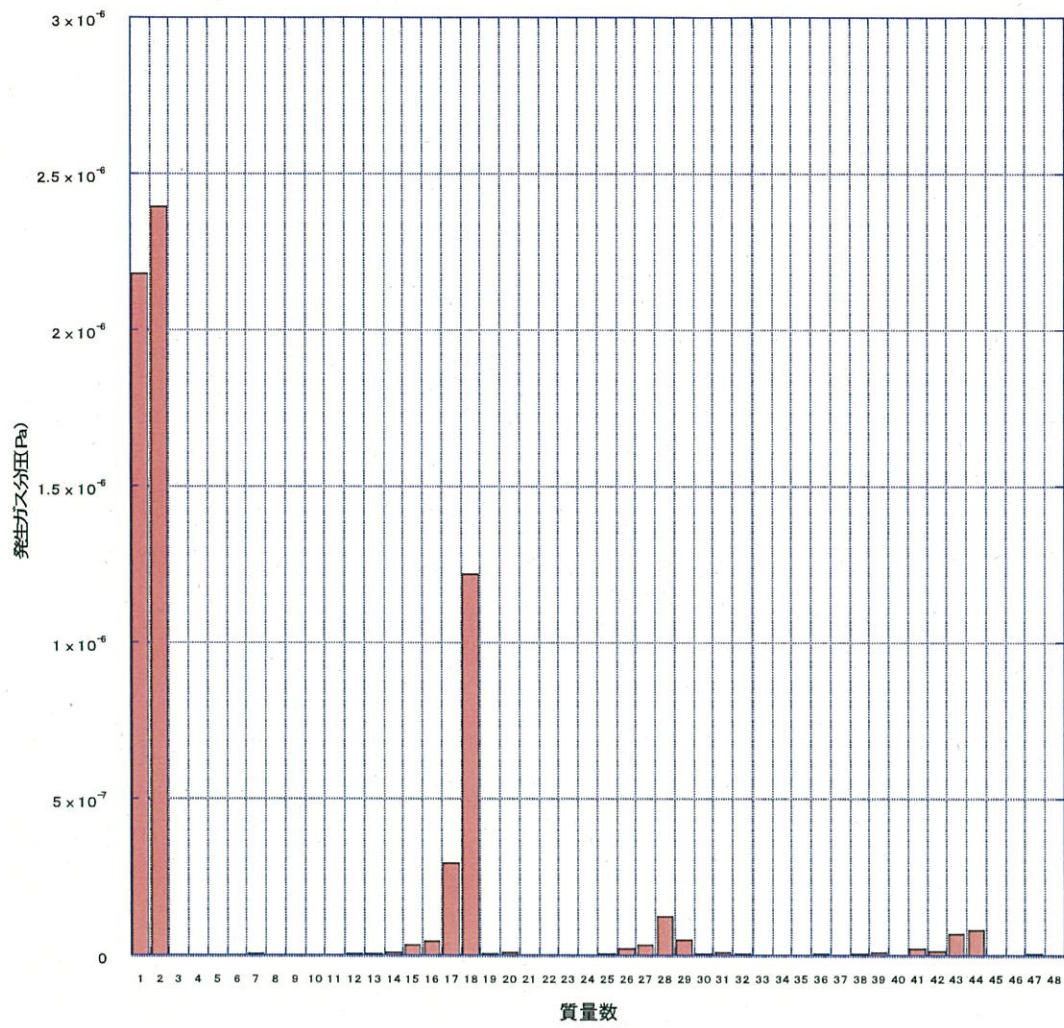
Cm含有粉末の試験結果を元に、エポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生G値を評価した。粉末粒子を球状と仮定し、粒子内で発生する α 線のエネルギーの内、粒子内と粒子外にそれぞれ付与される割合を原子力機構のPHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) コード[2]で計算した。その結果、粒子内で発生する全 α 線エネルギーの内、粒子外(すなわちエポキシ樹脂)に付与されるエネルギーの割合として、粉末粒子直径4、10、20 μm の場合にそれぞれ、88.9、70.1、42.5%の値を得た。これに対応するG値の評価結果は、0.47 (4 μm)、0.60 (10 μm)、0.99 (20 μm) である。乳鉢で粉碎した粉末の平均粒子径は、数 μm ~10 μm 程度の範囲と考えられるので、有効なG値の範囲は、およそ0.5~0.6と考えられる。

(2) Heイオン照射による水素ガス発生G値の評価結果

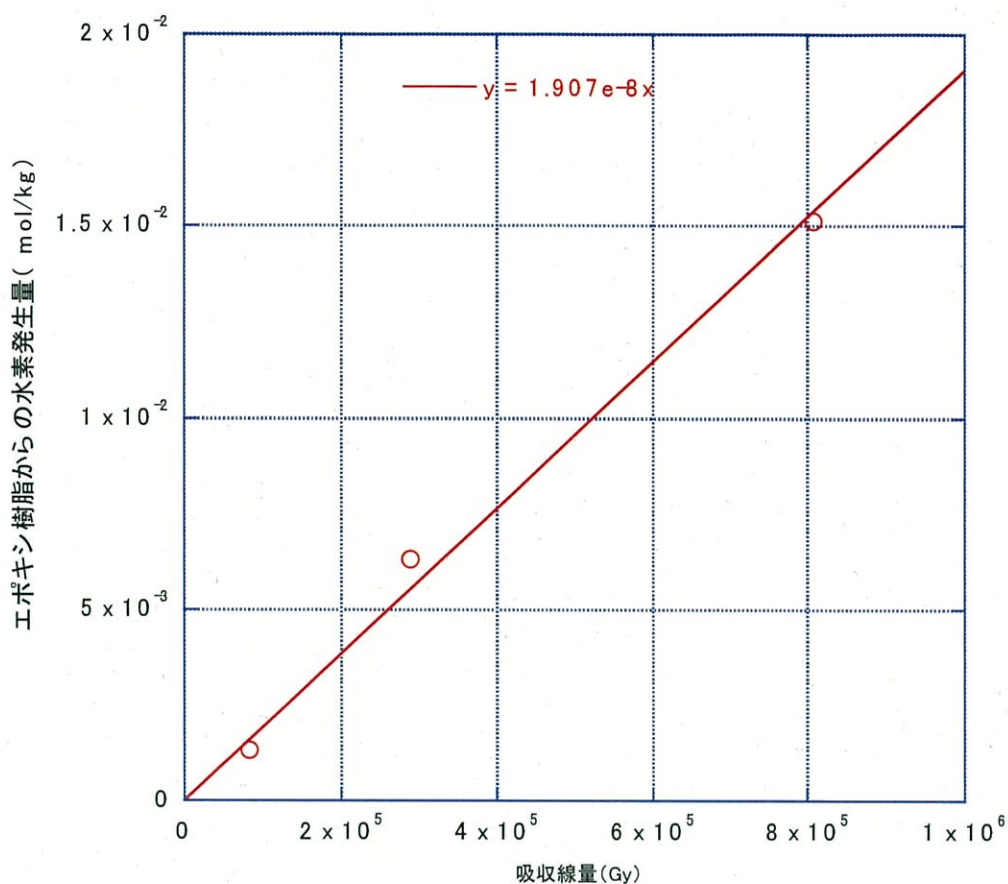
5.5 MeVのHeイオン(ビーム電流:約5 e nA)をエポキシ樹脂試料に照射し、その際に発生したガスの分圧をQ-Massで測定した結果を図②-5に示す。水素(質量数1, 2)の他、水とその分解物(質量数17, 18)が多く発生していることが判る。前者に関しては、樹脂材料が分解した際に発生する水素であり、後者に関しては試料表面に吸着していた水と推察される。その他、放射線分解で発生する分子としては、一酸化炭素(質量数28)、メタンとその分解物(質量数14, 15, 16)、エチレンとその分解物(質量数26, 27, 28)があるが、試料表面に吸着していた窒素(14, 28)、酸素(質量数16, 32)の質量数と一部が同じであるため定量は難しい。また、二酸化炭素(質量数44)の発生も確認された。表面吸着ガスの影響があるため、保守的な評価になるが、全圧から水(質量数17, 18)と水素イオン(質量数1)の分圧を除き、水素発生量の割合を評価すると83%となる。

Heイオン(照射クーロン数:約1.4 μC ~14 μC)照射後の大気照射セル内の気体をガスクロマトグラフで測定した結果を図②-6に示す。イオン照射による吸収線量は、84 kGy~810 kGyで、水素ガス発生量としては、エポキシ樹脂に対して 1.9×10^{-8} mol/Jが得られた。

水素ガス発生量としては、エポキシ樹脂に対して 1.9×10^{-8} mol/Jであり、この値をG値に換算すると0.18となる。このG値のCm粉末を用いたエポキシ樹脂の α 線分解試験の結果との違いは、Heイオン照射では、主に表面のみにHeイオンが作用したことで、照射量が多かったことによるものと考えられる。



図②-5 エポキシ樹脂に対する He イオン照射時の発生ガス質量スペクトル



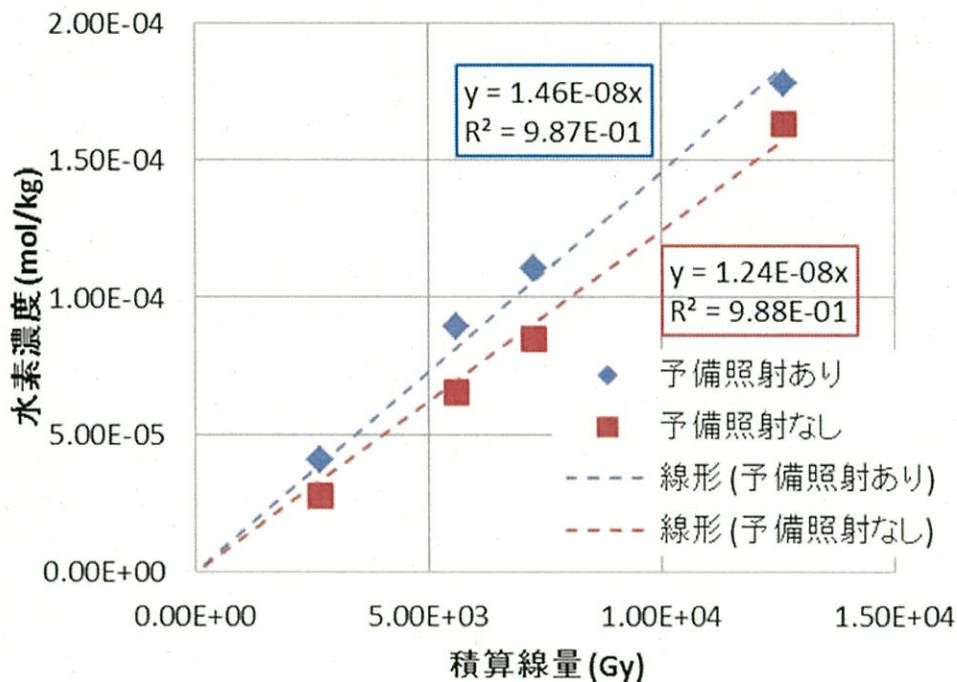
図②-6 エポキシ樹脂に対するヘリウムイオン照射時の水素ガス発生量

(3) エポキシ樹脂の γ 線照射によるG値（ガス発生量）の評価結果

γ 線照射量と水素発生量の測定結果を表②-2及び図②-7に示す。予備照射の有無の影響があることが分かる。図②-7の線図の傾きより水素ガス発生量を求めた結果、予備照射ありでは 1.5×10^{-8} mol/J、なしでは、 1.2×10^{-8} mol/Jが得られた。この結果得られた水素ガス発生量のうち高い値である予備照射ありでの値を用いると200 kGyの γ 線照射で、約 2.9×10^{-3} mol/kgの水素が発生し、標準状態での体積に換算すると、エポキシ樹脂1 kgあたり70 mLの水素が発生すると推定される。

表②-2 エポキシ樹脂の水素ガス発生量測定結果

予備照射	積算線量 (kGy)	サンプル重量 (g)	水素発生量 (mol)
あり	2.68	5.0445	2.07×10^{-7}
	5.59	5.0773	4.55×10^{-7}
	7.28	5.0725	5.99×10^{-7}
	12.64	5.0904	9.05×10^{-7}
なし	2.68	5.0185	1.39×10^{-7}
	5.59	5.0259	3.29×10^{-7}
	7.28	5.0015	4.25×10^{-7}
	12.64	5.0091	8.19×10^{-7}



図②-7 エポキシ樹脂のγ線照射量と水素ガス発生量の関係

4. 評価結果

Cm 粉末と混合したエポキシ樹脂のα線分解の試験結果から評価された水素ガス発生量のG値0.5～0.6に対して、エポキシ樹脂に外部からHeイオンを照射した場合の水素ガス発生量のG値は0.18と小さい値であった。ここでは、核燃料物質の粉末をエポキシ樹脂と混合したX線回折測定用試料に近い体系である前者の結果を評価に採用することとした。エポキシ樹脂中に固化されたPu 1 gあたり水素ガス発生量は、平成3年10月の貯蔵開始時から平成8年7月までの4.75年間で最大0.80 Lで、内圧上昇への寄与は+35%である。また、平成8年7月から平成29年6月までの20.92年間ではPu 1 gあたり最大3.96 Lで、内圧上昇への寄与は+172%である。

なお、 γ 線照射による分解生成ガスに関しては、エポキシ樹脂 1 kg あたり 70 mL の水素ガス発生量であるので、内圧上昇に対する寄与は小さい。

5. 参考文献

- [1] Z. Chang, Jay A. Laverne, “Hydrogen Production in γ -ray and Helium-Ion Radiolysis of Polyethylene, Polypropylene, Poly(methyl-methacrylate), and Polystyrene”, Journal of Polymer Science Part A: Polymer Chemistry, pp. 1656-1661, Volume 38, Issue 91, 2000.
- [2] T. Sato, K. Niita, N. Matsuda et al., “Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS, Version 2.52”, J. Nucl. Sci. Technol. vol. 50(9), pp. 913-923 (2013).

③「ポリ容器」

1. 確認・調査事項

ポリ容器に直接核燃料物質が収納されている場合、ポリ容器の内面は α 線照射を受けて分解し、ガスが発生することが予想される。ここでは、ポリ容器内面が直接核燃料物質に接触している状態を仮定し、貯蔵期間中に発生するガス量を概略評価した。

2. 確認調査方法・内容

ポリ容器内面の α 線分解によりガスが発生しやすい状況として、ポリ容器内の核燃料物質が全て U と Pu の混合酸化物粉末である場合と、②の結果から想定される Pu の全量が酸化物粉末である場合の二通りを仮定した。酸化物粉末の理論密度を組成データから計算により求め、その 40 % の密度で粉末がポリ容器に充填されたと仮定し、粉末充填体とポリ容器内面の接触面積を算出した。粉末粒子内の α 粒子の飛程は 10 μm であるから、単純な幾何学近似により、ポリ容器内面から 5 μm の範囲内にある粉末粒子中で発生する α 粒子の全エネルギーがポリ容器に付与されると仮定するとともに、全方位に放出される α 粒子の半分がポリ容器内面に到達することを考慮した。

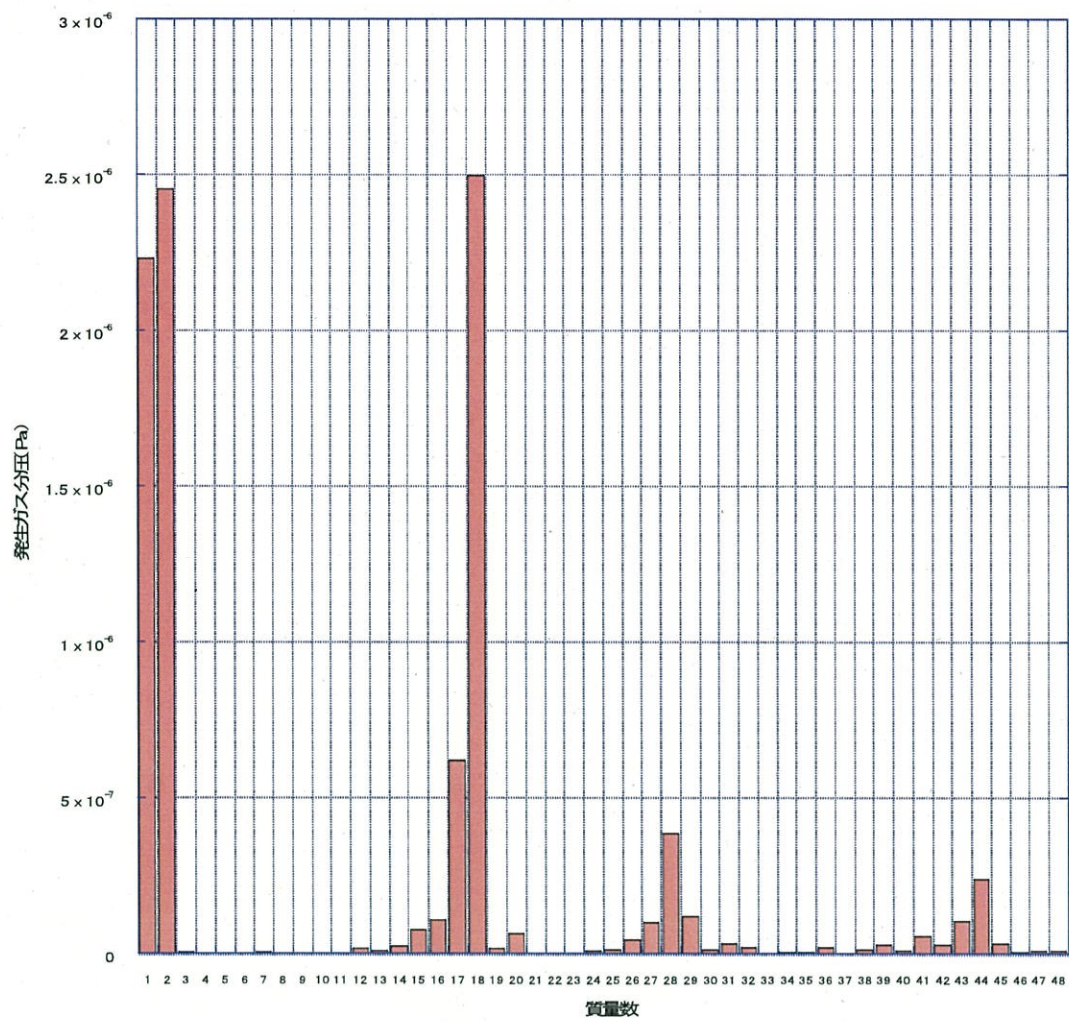
ポリ容器の α 線分解で発生するガスの G 値の評価は、貯蔵容器内に収納されているものと同じポリ容器を切断して試料片（直径 27 mm 円板状）を加工し、エポキシ樹脂と同様の手法により、5.5 MeV の He イオンを照射して行った。ガス分析により得られた G 値を用い、貯蔵期間中にポリ容器から発生し得るガス量を評価した。

3. 確認・調査結果

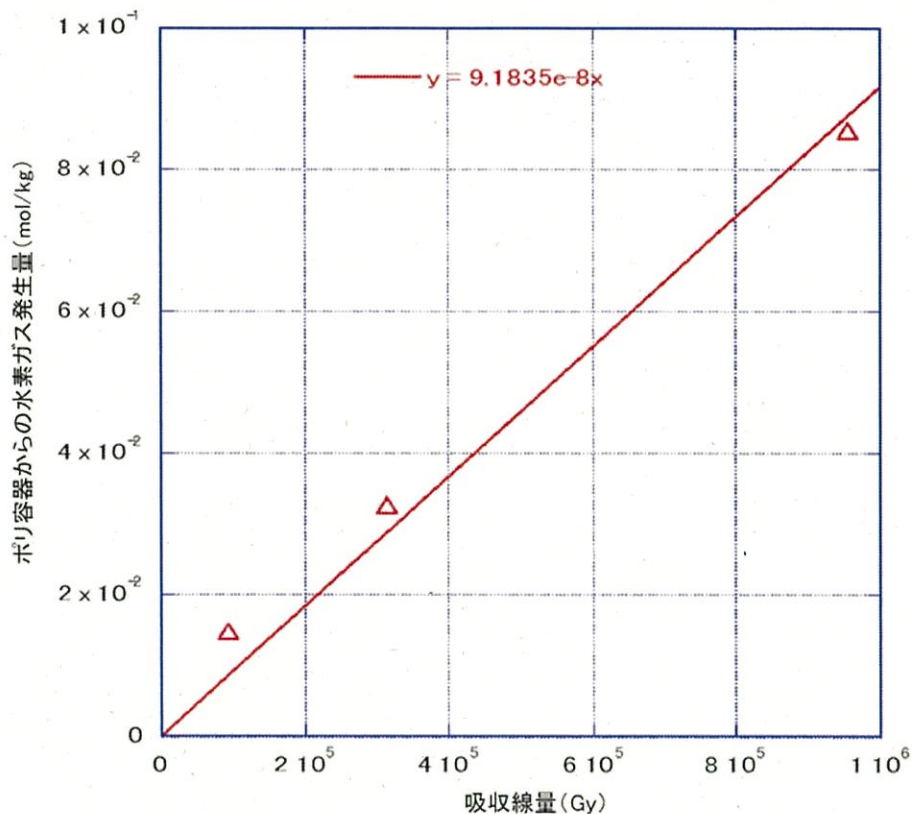
(1) ポリ容器試料への He イオン照射による G 値の評価結果

5.5 MeV の He イオン（ビーム電流：約 5 e nA）をポリ容器試料に照射し、その際に発生したガスの分圧を Q-Mass で測定した結果を図③-1 に示す。水素（質量数 1, 2）の他、水とその分解物（質量数 17, 18）が多く発生していることが判る。前者に関しては、樹脂材料が分解した際に発生する水素であり、後者に関しては試料表面に吸着していた水と推察される。水の生成が多い理由としては、ポリ容器が長期間（26 年以上）大気中で保管されていたことが原因と考えられる。その他、放射線分解で発生する分子としては、一酸化炭素（質量数 28）、メタンとその分解物（質量数 14, 15, 16）、エチレンとその分解物（質量数 26, 27, 28）があるが、試料表面に吸着していた窒素（14, 28）、酸素（質量数 16, 32）の質量数と一部が同じであるため定量は難しい。また、二酸化炭素（質量数 44）の発生が確認されたため、試料表面が酸化している可能性がある。表面吸着ガスの影響があるため、保守的な評価になるが、全圧から水（質量数 17, 18）と水素イオン（質量数 1）の分圧を除き、水素ガス発生量の割合を評価すると 61 % となる。

He イオン（照射クーロン数：約 1.5 μC ～15 μC ）照射後の大気照射セル内の気体をガスクロマトグラフで測定した結果を図③-2 に示す。イオン照射による吸収線量は、93 kGy～950 kGy で、水素ガス発生量としては、ポリ容器に対して 9.2×10^{-8} mol/J が得られた。この値は、エポキシ樹脂の 4.8 倍に相当すること、さらに水素ガスが全体の 61 % であることを加味し、ポリ容器の α 線分解で発生する全ガスの G 値を 1.4 と評価した。



図③-1 ポリ容器試料片に対する He イオン照射時の発生ガス質量スペクトル



図③-2 ポリ容器試料に対する He イオン照射時の水素ガス発生量

(2) 貯蔵容器内のポリ容器からのガス発生量の評価結果

(a) 核燃料物質の全量が U と Pu の混合酸化物粉末の場合

表 6.4.1 の組成 A を Pu の代表組成として、天然 U との混合二酸化物を仮定すると、理論密度は 11.095 g/cm³ となる。この ■% の密度で粉末が充填されていると仮定すると、充填体の体積は ■ cm³ で、ポリ容器（内径 92 mm）の底面積 66.5 cm² に対して粉末充填高さは ■ cm となる。これらから、粉末充填体がポリ容器内面と接触している面積（底面と周面）に厚さ ■ μm 分を掛け合わせた有効体積は ■ cm³ であり、その内部に含まれる二酸化物粉末は ■ mol である。ここから生じる α 粒子の ■ がポリ容器に入射すると仮定する。

貯蔵容器に収納した平成 3 年 10 月から点検で開封した平成 8 年 7 月までの 4.75 年間で、ポリ容器入射した α 粒子の数は ■ 個と算出される。また、α 粒子のエネルギーとして Am-241 の 5.5 MeV で代表し、G 値として ■ を用いると、ポリ容器に入射した α 粒子 1 個あたりのガス分子発生数は ■ 個となる。したがって、この期間にポリ容器内で発生するガス分子の数は ■ 個（■ mol）となり、標準状態換算で 70 mL である。

平成 8 年 7 月の再梱包から平成 29 年 6 月までの 20.92 年間にポリ容器中に発生するガス量も同様の手法で計算した。この期間にポリ容器に入射する α 粒子数は ■ 個であるから、発生するガス分子の数は ■ 個（■ mol）となり、標準状態換算で 0.35 L である。

核物質防護上の観点から ■ の箇所は非開示としています。

(3) Puのみが全て酸化物粉末である場合

Uの多くはエポキシ樹脂と混合されており、Puの大部分は酸化加熱処理により酸化物粉末としてポリ容器に充填されている場合を想定した。同位体組成Aを代表組成としてPuO₂の理論密度を11.478 g/cm³と算出した。この■%の密度でポリ容器に充填されていると仮定すると、充填高さは■cmである。ポリ容器との接触面積に厚さ■μmを掛け合わせた有効体積は■cm³であり、ここから生じるα粒子の■がポリ容器に入射すると仮定する。

平成3年10月から平成8年7月までの4.75年間で、ポリ容器に入射したα粒子の数は 7.21×10^{16} 個と算出される。発生するガス分子の数は■個(■mol)で、標準状態換算で0.21 Lとなる。

平成8年7月から平成29年6月までの20.92年間では、ポリ容器に入射したα粒子の数は 3.58×10^{17} 個と算出される。発生するガス分子の数は■個(■mol)で、標準状態換算で1.03 Lとなる。

4. 評価結果

核燃料物質の粉末がポリ容器内面に接触した状態で、α線分解により発生するガス量は、粉末がUとPuの混合酸化物か、Pu酸化物かで3倍程度の相違が生じる。

ポリ容器内の核燃料物質の全量がUとPuの混合酸化物粉末であった場合、平成3年10月の貯蔵時から平成8年7月の点検時までに発生するガス量は標準状態で70 mLであり、内圧上昇への寄与は+3%である。平成8年7月の再梱包時から平成29年6月までに発生するガス量は標準状態で0.35 Lであり、内圧上昇への寄与は+15%である。

一方、粉末がPuの二酸化物であった場合、平成3年10月の貯蔵時から平成8年7月の点検時までに発生するガス量は標準状態で0.21 Lであり、内圧上昇への寄与は+9%である。平成8年7月の再梱包時から平成29年6月までに発生するガス量は標準状態で1.03 Lであり、内圧上昇への寄与は+45%である。

④「混入水分」

1. 確認・調査事項

貯蔵期間（平成8年10月～平成29年6月）中に、貯蔵容器内に存在する核燃料物質試料粉末に吸着した水分の放射線分解により生成されるガス量を計算により導出し、樹脂製の袋の内圧上昇に対する寄与程度を評価する。

2. 確認調査方法・内容

水が放射性物質と混在している場合に、放射線から付与されるエネルギーにより分解され、水素と酸素が発生する。

一般的に粉末の含水量は粒度や周囲の湿度に依存し、各種報告では粉末の核燃料物質の大気中での含水率として■■■■ wt%とされている[1][2]。ここでは、ガス生成量の範囲を見積もるために、水分吸着量として■■■■ wt%及び■■■■ wt%の両ケースについて検討する。

容器中には■■■■ gの天然U試料及び■■■■ gのPu試料が含まれているとし、水分吸着量を保守的（大きめに）に見積もるため、それらは全量粉末であるとする。

貯蔵期間内に、上記放射性物質の核壊変に伴う放射線により、吸着されている水が放射性分解されたと仮定する。

3. 確認・調査結果

■■■■ gのPu試料及び■■■■ gの天然U試料が共に酸化物形態をとっていたとすると、貯蔵容器収蔵時の酸化物粉末試料の合計重量は■■■■ g (■■■■ mol) となり、それには■■■■ wt%の水分吸着量の場合は■■■■ g (■■■■ mol) のH₂Oが、■■■■ wt%の水分吸着量の場合は■■■■ g (■■■■ mol) のH₂Oが含まれることになる。このH₂Oが全量放射線分解された場合、■■■■ wt%の水分吸着量の場合は■■■■ molのH₂及び■■■■ molのO₂が、■■■■ wt%の水分吸着量の場合は■■■■ molのH₂及び■■■■ molのO₂が発生する。すなわち、各々合計すると■■■■ molと■■■■ molになり、その体積は標準状態で1.65 Lと2.75 Lとなる。

当該貯蔵容器については、平成8年7月の内部確認検査において開封されていると考えられるので、放射線分解により発生したH₂及びO₂は開封時に放出されるが、同時に核燃料物質は開封時の環境に含まれる水分を吸着し、開封検査後（再梱包後）に吸着した水分を放射線分解するため、開封検査前と同量のH₂及びO₂が発生し、貯蔵容器内に滞留することになると考えられる。

すなわち、破裂事象が発生した貯蔵容器が内部確認検査で開封されたか否かに関わらず、粉末の核燃料物質に吸着した水分の放射線分解により生成されるガス量は最大で1.65 Lないしは2.75 Lとなる。

4. 評価結果

貯蔵期間中に試料に吸着した水分が全て放射線分解された場合のH₂及びO₂ガス発生量は、水分吸着量を■■■■ wt%とした場合には1.65 L、水分吸着量を■■■■ wt%とした場合には2.75 Lであり、貯蔵容器内の発生気体滞留可能体積2.3 Lに比して72%ないしは120%となり、樹脂製の袋の内圧上昇の主な要因の一つになりえる。

核物質防護上の観点から■■の箇所は非開示としています。

5. 参考文献

- [1] 高橋 俊也ら, “酸化ウラン粉末, ペレットおよび燃料ピンの水分の分析”, 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所技術レポート, TN841-74-52, 1974.
- [2] 北川 修ら, “ウラン-プルトニウム混合酸化物粉末への水分の吸着挙動”, 日本原子力学会 2004 秋の大会, G32, 2004.

⑤「容器内物質間の化学反応（ガス、熱）」

1. 確認・調査事項

炭化物及び窒化物と水分の反応により貯蔵容器内で発生したガス量と発熱量を計算により導出し、内圧及び温度上昇への寄与程度を評価する。

2. 確認調査方法・内容

職員（退職者含む）への聞き取り調査や作業記録確認等により、炭化物及び窒化物の大気中で安定な酸化物とする酸化処理の実施有無を確認する。

また、炭化物及び窒化物の酸化処理がなされず、エポキシ樹脂に固められたまま貯蔵容器に封入されたと仮定し、炭化物と水の反応により生成するガス発生量、並びに反応熱とエポキシ樹脂に含まれる水分からの発熱量を算出し、炭化物及び窒化物と水分の反応の有無とその後の貯蔵容器内の温度変化について検討する。

3. 確認・調査結果

作業員への聞き取り調査、作業記録確認等の結果から、貯蔵容器に収納された平成3年以前においても炭化物及び窒化物の水分との反応によるガス生成及び発熱反応は認識されており、貯蔵容器封入前に炭化物及び窒化物を大気中で安定な酸化物とする酸化処理が実施されていた可能性が高い。

このことから、貯蔵容器内に炭化物及び窒化物はほとんど存在していない可能性が高い。しかし、炭化物及び窒化物を酸化処理がなされず、貯蔵容器に封入されたことを想定し、以下において炭化物及び窒化物と水の反応によるガス発生量及び発熱量を算出して、樹脂製の袋の内圧上昇に対する寄与程度を評価した。

計量管理の帳簿より貯蔵容器内における炭化物はUが最大で約 \blacksquare g でPuが約 \blacksquare g、窒化物はPuが約 \blacksquare g であり、それぞれ \blacksquare mol、 \blacksquare g \blacksquare mol、 \blacksquare mol で、合計すると \blacksquare mol となる。炭化物/窒化物と水との反応は以下の熱化学方程式で表される[1], [2]。



*：各化合物の標準生成エンタルピー[2]より反応熱を算出

3.1 ガス発生量の計算

UC、PuC、及びPuNの全量が貯蔵容器に存在する水と反応すると仮定し、(1)～(3)式に基づき発生するガス量を評価した。

【UCについて】

UCの全量 (\blacksquare mol) がH₂Oと反応した場合、 \blacksquare molのCH₄が発生し、その体積は標準状態で1.52 Lとなる。

【PuCについて】

PuCの全量 (\blacksquare mol) がH₂Oと反応した場合、 \blacksquare molのCH₄が発生し、その体積は標準状態で0.0749 Lとなる。

核物質防護上の観点から \blacksquare の箇所は非開示としています。

【PuNについて】

PuNの全量が H_2O と反応した場合、 \blacksquare molの NH_3 と \blacksquare molの H_2 が発生する。すなわち、合計すると \blacksquare molのガスが発生し、その体積は標準状態で0.0305 Lとなる。

以上より、貯蔵容器内に存在するUC、PuC、及びPuNと H_2O とが反応することにより生成されるガスは1.63 Lとなる。

3.2 発熱量の計算

(1)～(3)式より炭化物及び窒化物の発熱量はそれぞれ約35.1 kJ及び約0.3 kJとなる。

これらの炭化物はエポキシ樹脂に固められており、炭化物への水分の供給はエポキシ樹脂に吸水されている水分により行われるため、その供給に要する時間を計算した。②「混入有機物」の評価における仮定と同様に炭化物約1 gに対し、約10 gのエポキシ樹脂で固められていたと想定した場合、炭化物及び窒化物 \blacksquare gに対しては約 \blacksquare gのエポキシ樹脂が使用されたこととなる。

炭化物及び窒化物は、エポキシ樹脂で固められた上で空気グローブボックス内に保管され、その後、貯蔵容器に封入される。エポキシ樹脂は空気グローブボックス内雰囲気の水蒸気を吸収し、炭化物及び窒化物はその水蒸気と反応するが、ここでは貯蔵容器内での反応発熱量を大きく見積もるため、炭化物及び窒化物の全量がグローブボックス内で水蒸気と反応せず貯蔵容器に封入され、貯蔵容器内で水分と接触した瞬間に反応する、と仮定する。これは、グローブボックスが非常にドライな環境で、エポキシ樹脂もまた水分を吸収していない状態で貯蔵容器に封入されたことを意味する。

エポキシ樹脂の吸水率は23℃、24時間で1 g当たり約0.8%[3]との報告がある。水を全く含まない状態で貯蔵容器に封入されたエポキシ樹脂は、24時間で約1.45 gの水分を吸収することとなる。

\blacksquare gの炭化物及び窒化物がすべて水と反応するには \blacksquare gの水分が必要となり、貯蔵容器内でエポキシ樹脂がこの量の水分を吸収するには \blacksquare 時間を要する。

すなわち、エポキシ樹脂中の炭化物及び窒化物と水との反応は貯蔵容器への収納後43.5時間を要し、発熱量は35.4 kJである。単位時間当たりの発熱量は0.226 Wとなる。

⑨「崩壊熱」における貯蔵容器内の温度評価において、崩壊熱を0.5 Wと仮定した場合の貯蔵容器内の平均温度上昇は+2℃以下であったため、炭化物と水分の反応による0.226 Wではより低い温度上昇となる。

4. 評価結果

炭化物の約 \blacksquare gと窒化物の約 \blacksquare gの水分との反応により発生すると考えられるガス量は1.63 Lであり、貯蔵容器内の空間領域2.3 Lに比して71%となり樹脂製の袋の内圧上昇への寄与は無視し得ない。

発熱量は、炭化物及び窒化物に対してそれぞれ約35.1 kJ及び0.3 kJであり、エポキシ樹脂中に含まれる水分との反応により単位時間当たりの発熱量は最大で0.226 Wとなる。この発熱量は⑨「崩壊熱」評価において使用した崩壊熱0.5 Wよりも低く、0.5 Wの発熱量による容器内温度上昇は+2℃であったため、0.226 Wの場合は+1℃以下となる。しかも、この0.226 Wの発熱は、炭化物及び窒化物の H_2O との反応が継続する封入後43時間のみ発熱である。

職員（退職者含む）からの聞き取りから、実際にはほとんど炭化物及び窒化物は存在しないと考えられるが、仮に存在していたとしても平成3年の封入開始から43.5時間で速やかに反応が終了することから、

貯蔵容器内でのガス発生及び発熱は殆ど無かったものと考えられる。

5. 参考文献

- [1] ウラン濃縮研究棟火災事故調査委員会, “ウラン濃縮研究棟火災事故調査委員会報告書”, JAERI-Review 98-011, 日本原子力研究所, 1998年3月.
- [2] I. Barin ed., “Thermochemical Data of Pure Substances, 3rd Ed., vol. II”, VCH, 1995.
- [3] アラルダイト製品カタログ, http://www.jp.aralditeadhesives.com/index.php?option=com_docman&view=download&alias=153-araldite-2011-jp-acap&Itemid=146
- [4] S. Sugihara, et al., “Hydrolysis of Uranium Nitrides”, J. Nucl. Sci. Technol. 6 (5), p.237 ~ 242 (May 1969).

⑥「爆発性物質の爆発（ガス・熱）」

1. 確認・調査事項

文献等により爆発性物質生成（量、爆発可能性など）、衝撃・影響等の有無を調査し、爆発性物質の生成・爆発可能性を検討する。

2. 確認調査方法・内容

文献、化学平衡計算等により、高温・高圧条件下や α 線、 γ 線照射条件下における爆発性物質の生成可能性を調査する。高温・高圧条件下での生成可能性については、爆発性物質の一例として、硝酸アンモニウムを対象とした化学平衡計算により生成可能性を確認する。

また、爆発性物質が生成したと仮定した場合に爆発性物質の一例として硝酸アンモニウムの特性、現地調査の結果を踏まえて生成・爆発可能性を検討する。仮に爆発条件に達すると想定される場合には、その衝撃・影響等を調査する。

3. 確認・調査結果

エポキシ樹脂はアミノ基（ $-\text{NH}_2$ ）を有する硬化剤を用いていることから、一定量（エポキシ 1 kg に対して約 20 g）の N を含有しており、エポキシ樹脂中には爆発性物質に含まれるニトロ基（ $-\text{NO}_2$ ）やアジド基（ $-\text{N}_3$ ）の構成元素である N、O が含まれる。一般的にアミノ基からニトロ基に変化するためには、強力な酸化剤である濃硝酸が必要とされている。貯蔵容器内等で強力な酸化剤は存在し得ないためアミノ基がニトロ基に変化することは無いと考えられるが、高温・高圧条件下や α 線や γ 線等の放射線照射下であったことが想定されるため、これらの条件における生成可能性を検討した。

まず、化学平衡計算により N、H、O を含む系で高温・高圧条件（温度 23 °C～223 °C、圧力 1 atm～100 atm）において安定相を評価した結果、 N_2 、 O_2 、 H_2O が生成するのみで硝酸アンモニウム（ NH_4NO_3 ）の生成は無かった。これより熱力学的平衡条件においては硝酸アンモニウム等の爆発性物質が生成する可能性は無いことが分かった。

次に、 α 線、 γ 線照射条件下の検討において、文献調査（及び He イオン照射の検証実験）により、エポキシ樹脂を対象とした γ 線照射（10 MGy）で H_2 や CH_3 を放出した試料のフーリエ変換赤外分光（FT-IR）結果より、アミノ基に相当するピークは照射前後で変化はなく、ニトロ基に相当するピークは観察されなかったことが分かった[1]。また、エポキシ樹脂内の C-C、C-H、N-H 結合とニトロ基で存在する N-O 結合の乖離エネルギー[2]を比較した結果、607 kJ/mol（C-C）、337.2 kJ/mol（C-H）、377 kJ/mol（NH-H）、305 kJ/mol（NO-O）となり、NO-O が最も低いエネルギーで乖離することが分かった。以上のことから、照射によりニトロ基は生成せず、仮にニトロ基が生成しても照射下では安定には存在しない可能性が考えられ、 α 線、 γ 線照射条件下においてニトロ基を有する爆発性物質は生成する可能性は低いことが分かった。

以上の検討結果より、貯蔵容器内において硝酸アンモニウム等の爆発性物質が生成する可能性は想定し難い。さらに、仮に爆発性物質が生成したとしても、例えば硝酸アンモニウムの場合、爆発には 260 °C 以上もの高温が必要である[3]。⑨「崩壊熱」における貯蔵容器内の温度評価結果で、容器内の最高平均温度上昇は+2 °Cと小さいことが分かっており、260 °C以上もの温度になる可能性は無い。したがって、例え硝酸アンモニウムが生成したとしても爆発は生じ得ない。さらに作業員への聞き取り調査の結果、破裂時における異臭等は無いことが分かっており、爆発性物質の生成及び爆発が生じなかったことを裏付

けている。

4. 評価結果

エポキシ樹脂において高温・高圧下での熱平衡条件や α 線及び γ 線照射条件では爆発性物質である硝酸アンモニウムは生成せず、また爆発温度である 260 °C 以上にも達していないため、爆発性物質の生成及びその爆発の可能性は低く、爆発によるガス生成及び熱発生の可能性は低い。

5. 参考文献

- [1] J. Dawson, et al., “Initial studies on the effects of radiation, thermal ageing and aqueous environments on the stability and structure of candidate polymeric encapsulant materials”, Mineralogical Magazine, 76(8), pp. 2985-2994, December 2012.
- [2] T. L. Cottrell, “The Strengths of Chemical Bonds”, 2nd ed., Butterworth, London, 1958.
- [3] スティーブン・ジョセフ・バブラ, “硝酸アンモニウムの偶発的な爆発を防止するための方法および装置”, 特開平 7-54792, 1995.

⑦「可燃性ガスの燃焼・爆発（ガス、熱）」

1. 確認・調査事項

貯蔵期間（平成8年10月～平成29年6月）中に、貯蔵容器内に発生する可燃性ガス量を計算により導出し、水素等の燃焼範囲への到達可能性、爆発発生等の有無を調査する。

2. 確認調査方法・内容

計量管理の帳簿におけるPuの組成等の情報から、エポキシ樹脂やポリカーボン容器への放射線照射により発生する可燃性ガスの発生率を算出する。想定し得る貯蔵容器内の空気量を考慮して、貯蔵容器内における燃焼範囲への到達期間を算出し、作業員への聞き取り調査結果も踏まえて爆発発生の可能性を検討する。

3. 確認・調査結果

②「混入有機物」、③「ポリ容器」及び④「混入水分」の評価結果より、可燃性ガスとして生成する H_2 ガスの発生率として1日当たり最大 3.2×10^{-5} molを想定した。貯蔵容器内（ポリ容器は充填されていると仮定：2.3 L）の標準状態の空気中に含まれる空気量は約0.10 molとなる。樹脂製の袋からの H_2 の漏洩率は、 2.7×10^{-10} cc/cm²・s・10 mmHg [1]、貯蔵容器のO-リングからの H_2 の漏洩率は、 4.0×10^{-6} cc・cm/cm²・s・atm [2]であり、樹脂製の袋は貯蔵容器内寸法（φ130 mm×302 mm）で厚さ0.3 mm、貯蔵容器のO-リングは外径φ120 mm、幅2 mmとして計算すると、貯蔵期間中における全水素ガス発生量の約68%の水素ガスが漏洩することとなる。以上の条件により、空気中における水素の燃焼範囲（4.0～75 vol.% [3]）となる期間を見積もったところ、貯蔵開始後136日以降では水素爆発が生じる可能性があることが分かった。

水素爆発における最小着火エネルギーは約0.02 mJ [4]と低く、その着火源としては貯蔵容器が動いた際の試料間の摩擦等によって生じる静電気が考えられる（0.02 mJは体を感じない程度の静電気エネルギー）。しかしながら、貯蔵容器は静置されていたことから摩擦等により静電気が生じる可能性は低く、爆発は生じなかったものと考えられる。また、仮に爆発したとしても、作業員への聞き取り調査の結果から貯蔵容器開封に二重目の樹脂製の袋が健全だったことから、爆発の発生は想定しがたい。

一方、破裂時には水素が空気と混合され、燃焼範囲となりガスの流動等による静電気の発生により水素爆発が生じる可能性が考えられる。しかしながら、作業員への聞き取り調査により、破裂音のみで炎も異臭も無く、高温にもなっていないことが分かっており、水素爆発は生じなかったものと考えられる。

4. 評価結果

エポキシ樹脂の水素等の放射線分解ガスによる貯蔵中の爆発は、着火源の可能性は考え難いため可能性は低い。

5. 参考文献

[1] 住友化学科学株式会社ホームページ, http://www.sumitomo-chem.co.jp/acryl/03tech/b3_gas.html.

[2] 桜シール株式会社ホームページ, <http://www.sakura-seal.co.jp/category/1981184.html>.

- [3] 柳生 昭三 他, “水素の爆発危険性についての研究 (第 1 報) —水素の爆発限界に及ぼす圧力の影響—”, 産業安全研究所研究報告 RIIS-RR-18-1, 1969.
- [4] 佐藤 保和 他, “安全に関わる水素の性質、安全工学”, vol. 44 No. 6 (2005) 378.

⑧「臨界発生（ガス、熱）」

1. 確認・調査事項

貯蔵容器に収納されている核燃料物質により臨界が生じ、ガスや熱が発生する可能性を調査する。

2. 確認調査方法・内容

貯蔵容器に収納されている核燃料物質の質量を調査し、臨界に係る制限値以下であることを確認する。

3. 確認・調査結果

貯蔵容器に収納されている核燃料物質の質量を計量管理の帳簿等により調査した。その結果、以下に示す重量の核分裂性物質（Pu 及び U-235）が収納されていることがわかった。

Pu : ■■■ g

U-235 : ■ g

合計 : ■■■ g

※いずれも元素重量

4. 評価結果

収納されている核燃料物質重量は、湿式条件での Pu-239 の最小臨界質量 510 g に安全係数を見込んだ推奨制限値 220 g [1] より大幅に小さい質量であったことから、臨界発生の可能性は無い。

5. 参考文献

[1] Nuclear Safety Guide, TID-7016 Rev. 1, 1961.

⑨「崩壊熱」

1. 確認・調査事項

貯蔵期間（平成 8 年 10 月～平成 29 年 6 月）中に、貯蔵容器内に存在する核燃料物質試料の崩壊熱による発熱量と貯蔵容器内の温度分布を計算により導出し、貯蔵容器内の温度上昇の有無による内圧上昇への影響を評価する。

2. 確認調査方法・内容

計量管理の帳簿より貯蔵容器内の核燃料物質の崩壊熱を計算する。この崩壊熱を一つの発熱源として貯蔵容器内に設置し、円筒座標系の二次元定常数値解析により容器内の温度分布及び平均温度を算出し、崩壊熱による貯蔵容器内の温度変化について検討する。

3. 確認・調査結果

①「 α 崩壊による He ガス」における評価と同様に、 \blacksquare g の U と \blacksquare g の Pu の混合試料について、 α 崩壊が最も多くなる組成（A 組成）で ORIGEN2 コードにより崩壊熱を計算した結果、約 0.48 W となった。

崩壊熱を 0.5 W と想定して、図⑨-1 に示した貯蔵容器内の構造を模擬（貯蔵容器内寸法： ϕ 130 mm \times 302 mm、ポリ容器外寸法： ϕ 94 mm \times 230 mm）した円筒座標系における温度分布の二次元定常数値解析を実施した。伝熱メカニズムとしては、より断熱性が高くなることで保守的な条件として対流や輻射による伝熱は考慮せず、熱伝導のみとし、貯蔵容器（ステンレス鋼：16.0 W/(m \cdot K)）及びポリ容器（ポリエチレン：0.34 W/(m \cdot K)）の熱伝導率を考慮した[1]。発熱源に関しては、実際は大半がエポキシ樹脂に固定されポリ容器内に分散しているものと想定されるが一つの発熱源を断熱性の高い条件（周りを空気で囲む）で貯蔵容器内に配置することとし、最も温度が高くなる保守的な寸法として ϕ 10 mm \times 10 mm とした。数値解析は、r - z 軸における 1 mm \times 1 mm のメッシュに対して、以下の定常熱伝導方程式[2]を離散化した式により実施し、初期温度として 40 $^{\circ}$ C (313 K) を設定した。

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \lambda \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \left(\lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right) + S_c = 0 \quad (\text{⑨-1})$$

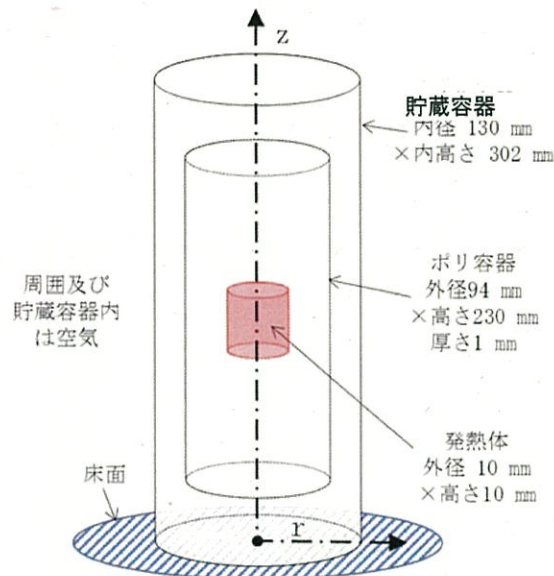
ここで半径：r [m]、単位体積当たりの発熱量： S_c [W/m 3]、温度：T [K]、高さ：z [m]、熱伝導率： λ [W/(m K)]である。

断熱性が高いと考えられる配置条件として、空気よりも熱伝導率の良いポリ容器及び貯蔵容器からの距離が最も遠くなる r 軸方向の中心を発熱源の設置場所とした。温度分布を解析した結果、発熱体中心温度が最も高く、発熱体から離れると温度は指数関数的に低下することが分かった。容器内の発熱源の配置において最も断熱性が高いと考えられる条件として、r 軸及び z 軸方向の中心に発熱源を配置した条件で計算した結果、貯蔵容器内部の平均温度は 41.7 $^{\circ}$ C となり、0.5 W の発熱量による温度上昇は +1.7 $^{\circ}$ C となった。この温度上昇による内圧上昇割合は 0.6 % となる。よって、崩壊熱による内圧上昇への影響は殆ど無い。

核物質防護の観点から \blacksquare の箇所は非開示としています。

4. 評価結果

α 線が最も多くなるPu組成を用いた条件で崩壊熱は約0.5 Wであった。これによる容器内温度上昇は最大でも+2 °C以下である。この温度上昇による内圧上昇割合は1 %以下であり、崩壊熱による内圧上昇への影響は殆ど無い。



図⑨-1 二次元定常数値解析のモデル (図中の配置は最も温度が高くなる条件)

5. 参考文献

- [1] 日本機械学会編, “伝熱工学資料 改訂第5版”, 日本機械学会, 2009.
- [2] スハス V. パタンカー著, “コンピュータによる熱移動と流れの数値解析”, 森北出版株式会社, 1985.

⑩ 「夏期の高温」

1. 確認・調査事項

夏期の室内温度上昇による内圧上昇への影響を調査する。

2. 確認調査方法・内容

貯蔵容器への収納時期、夏期の温度を想定して、温度上昇による内圧上昇への影響を評価する。

3. 確認・調査結果

作業記録の調査結果等によると、核燃料物質の貯蔵容器への封入は秋に実施された。その時の気温を10℃として、夏場の温度上昇20℃を見込んだとしても、内圧上昇割合は、7.1%であった。

4. 評価結果

夏場の温度上昇が内圧上昇へ及ぼす影響は、「内部でのガス発生」における各事象での内圧上昇割合と比べて十分に小さく、影響は小さい。

⑪ 「不適切な溶着」

1. 確認・調査事項

1.1 現物の破損個所（溶着性）

2. 確認調査方法・内容

2.1 現物の破損個所（溶着性）

(1) 現地調査

現地調査による破損個所の特定は未実施。

3. 確認・調査結果

(2) 現地調査

未実施。

4. 評価結果

事象発生時の樹脂製の袋の写真からは溶着不良個所の判断ができないため、現地調査が必要。

⑫ 「封入時の傷等」

1. 確認・調査事項

1.1 現地調査により傷等の有無

2. 確認調査方法・内容

2.1 現地調査により傷等の有無

(1) 現地調査

現地調査による傷等の有無の確認は未実施。

3. 確認・調査結果

(1) 現地調査

現地調査は未実施。

4. 評価結果

事象発生時の樹脂製の袋の写真からは判断できないため、現地調査が必要。調査の結果、傷が見つかったら、破裂試験による耐圧性能評価実施を検討。

⑬ 「樹脂製の袋の α 線による劣化」

1. 確認・調査事項

1.1 樹脂製の袋の α 線照射による劣化度合い

2. 確認調査方法・内容

2.1 樹脂製の袋の α 線照射による劣化度合い

(1) 現地調査

現物のポリ容器の健全性の確認未実施。

3. 確認・調査結果

3.1 樹脂製の袋の α 線照射による劣化度合い

(1) 現地調査

現地調査は未実施。

樹脂製の袋が α 線によって劣化するには、 α 線を遮蔽しているポリ容器に収納された核燃料物質がポリ容器外に漏出することが必要になる。よって、現地調査を行い、ポリ容器の健全性を確認することが必要である。

4. 評価結果

現物のポリ容器の健全性について、目視による外観の変化、変色度合い、触診による表面の変化等を確認し、 α 線照射による樹脂製の袋の劣化の可能性を確認する予定。

⑭ 「樹脂製の袋の γ 線による劣化」

1. 確認・調査事項

1.1 樹脂製の袋の γ 線照射試験による劣化度合い評価

- (1) γ 線照射後の引張試験による劣化度合い評価
- (2) γ 線照射後の破裂試験による劣化度合い評価

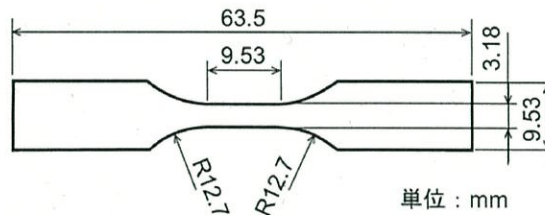
2. 確認調査方法・内容

2.1 樹脂製の袋の γ 線照射試験による劣化度合い評価

- (1) γ 線照射後の引張試験による劣化度合い評価

1) 試料準備

樹脂製の袋（長さ 3 m×直径約 30 cm ϕ 、厚さ 0.3 mm）を長さ 20 cm に切断後、切断片から試験片打ち抜き治具を用いて引張試験用試験片を 20 枚作成した。試験片は ASTM D1822 L タイプであり、寸法は図⑭-1 に示すものである。



図⑭-1 ASTM D1822 L タイプの引張試験片の寸法図

引張試験片 10 枚を用い、量研 高崎研の食品照射棟第 2 セルにて、6 kGy/h で 60 時間照射し、樹脂製の袋の吸収線量評価結果に基づき、照射量 360 kGy の照射を行った。試験片は一方のつかみ部をクリップに留め、水平に渡した針金に吊るすようにして照射した。温度は室温であった。

2) 引張試験

照射終了後、外観観察を行った。

量研 高崎研の引張試験装置（東洋精機製 STPOGRAGH VE50）を用い、非照射の試料と上記の照射を行った試料の引張試験を行った。5 つの試料に対して観察及び測定を行い、その平均値を測定結果とした。試験は室温にて行った。なお、試験前にゲージ部両端にペンにて距離 10 mm の標点を描いて、目視にて破断直前の標点間距離を測定して破断時標点間距離とした。

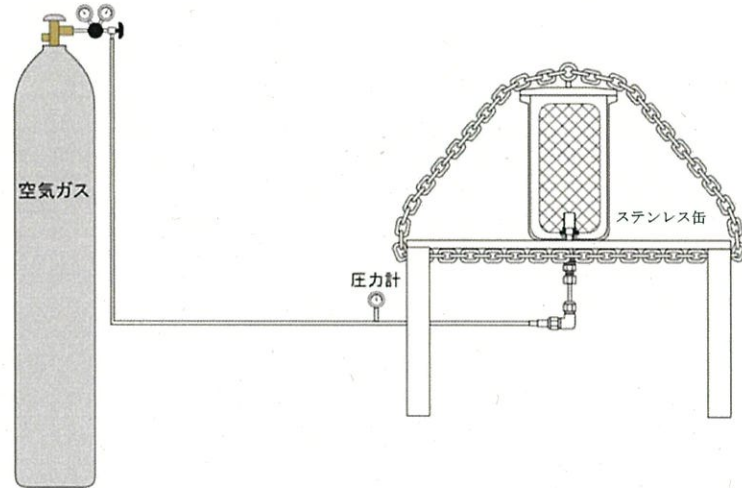
- (2) γ 線照射後の破裂試験による劣化度合い評価

1) 試料準備

樹脂製の袋を長さ 1 m に切断した後、量研 高崎研の食品照射棟第 2 セルにて、6 kGy/h で 60 時間照射し、照射量 360 kGy の照射を行った。試料は丸めて束ねた状態とし、同時に試験を行うポリ容器の試料（円筒状に輪切りしたもの）に入れた。

2) 破裂試験

以下に示す要領で非照射の樹脂製の袋を用いて破裂試験を行い、耐圧評価を行った。シーラで溶着、密封した樹脂製の袋を、底にφ20 mmの穴をあけたステンレス缶(φ133 mm×h250 mm)に収納した。ステンレス缶の底の穴を通して樹脂製の袋に空気ガスのガスボンベを接続し、ガス配管に圧力計を接続した。本試験では蓋のない状態と蓋のある状態の二通りの試験とした。蓋なしの試験については、「添付 7.1.2 樹脂製の袋の強度評価」に記載の方法で実施した。蓋ありの試験では、樹脂製の袋の膨らみにより僅かに蓋が空くように、ステンレス缶に蓋を乗せてチェーンで軽く拘束した。ガスを注入して樹脂製の袋が破裂するときの圧力計のゲージ圧を記録し、破裂箇所の観察を行った。試験体系図を図⑭-2に示す。



図⑭-2 試験体系図

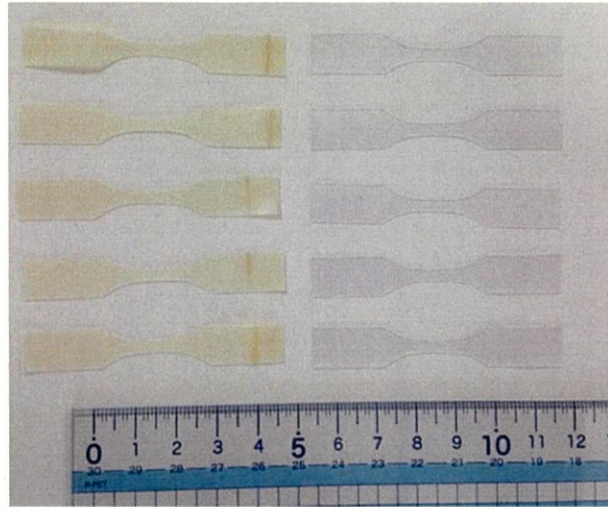
3. 確認・調査結果

3.1 樹脂製の袋のγ線照射試験による劣化度合い評価

(1) γ線照射後の引張試験による劣化度合い評価

1) 外観観察結果

照射終了後の引張試験片を非照射の試験片と比較して外観観察を行った。照射した試験片は茶色く変色が見られたが、脆くなるなどの劣化が認められないことから引張試験が可能と判断した。図⑭-3に非照射と360 kGy照射後の引張試験片の外観観察結果を示す。



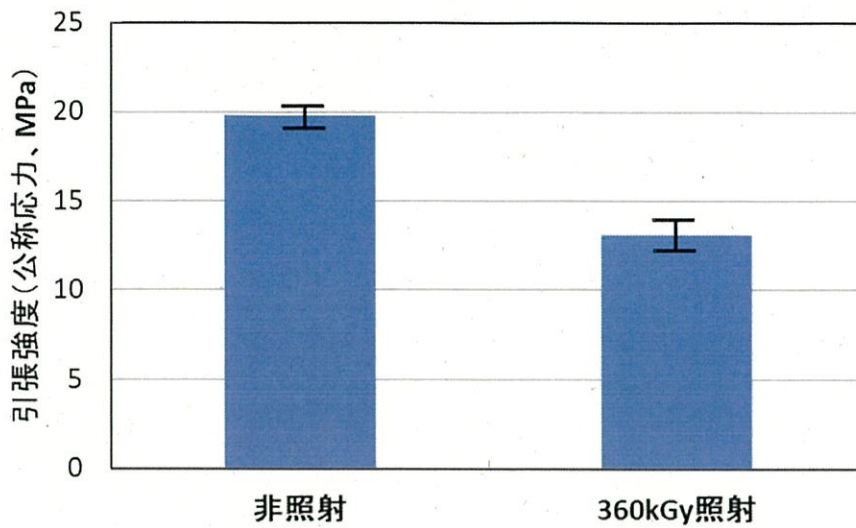
図⑭-3 非照射と照射後の引張試験片の外観観察結果
(左側の5個は360 kGy照射した試料、右側の5個は非照射の試料)

2) 引張試験結果

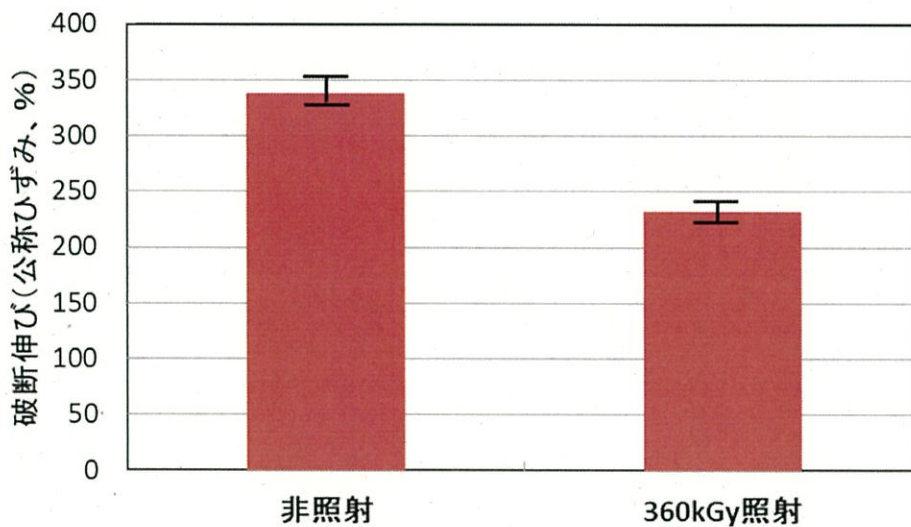
表⑭-1 に非照射及び照射後の引張試験結果を、引張試験前の樹脂製の袋の厚さ 0.3 mm、ゲージ部の幅 3.18 mm、標点間距離 10 mm から求めた引張強さ（公称応力）と破断伸び（公称ひずみ）に換算して示す。図⑭-4 に公称の引張強度、図⑭-5 に破断伸びの結果を比較して示す。360 kGy の γ 線照射により、樹脂製の袋の引張強さは公称応力値として 19.8 MPa から 13.1 MPa に約 34 % 低下した。また、破断伸びは破断時の公称ひずみ値として 338 % から 232 % に約 31 % 低下した。

表⑭-1 樹脂製の袋の非照射及び照射後引張試験結果

	引張強度 (公称応力、MPa)		破断伸び (公称ひずみ、%)	
	非照射	360kGy照射	非照射	360kGy照射
No.1	20.6	13.1	350	220
No.2	19.3	13.2	350	230
No.3	19.2	12.9	330	230
No.4	19.4	12.4	320	240
No.5	20.5	14.0	340	240
平均	19.8	13.1	338	232



図⑭-4 樹脂製の袋の非照射及び照射後引張強度の比較結果



図⑭-5 樹脂製の袋の非照射及び照射後破断伸びの比較結果

(2) γ 線照射後の破裂試験による劣化度合い評価

1) 外観観察結果

照射終了後の引張試験片と非照射の試験片との外観を比較した。照射した試験片は茶色く変色が見られたが、脆くなるなどの劣化が認められなかった。

2) 破裂試験結果

蓋なしの試験では、缶上部からはみ出る樹脂製の袋の長さを 0 mm、内部に加える空気圧を 1 kgf/cm²として実施した。約 290 秒で破裂に至った。非照射の樹脂製の袋と同様に、ステンレス缶内面で拘束された部分はそれ以上膨らむことができないため、ステンレス缶上側の解放部で膨らん

で破裂する挙動を示した。非照射の樹脂製の袋のケースと異なり、破裂箇所の形状は 90 mm 程度の直線的であった (図⑭-7)。劣化した樹脂製の袋の破裂時の内圧は大気圧+0.042 MPa (1.42 気圧)、缶からはみ出た部分の膨らみは約 90 mm であった。破裂直前の樹脂製の袋の写真を図⑭-6 に、破裂後の樹脂製の袋の写真を図⑭-7 に示す。



図⑭-6 蓋なし試験 破裂直前の樹脂製の袋の写真



図⑭-7 蓋なし試験 破裂後の樹脂製の袋の写真

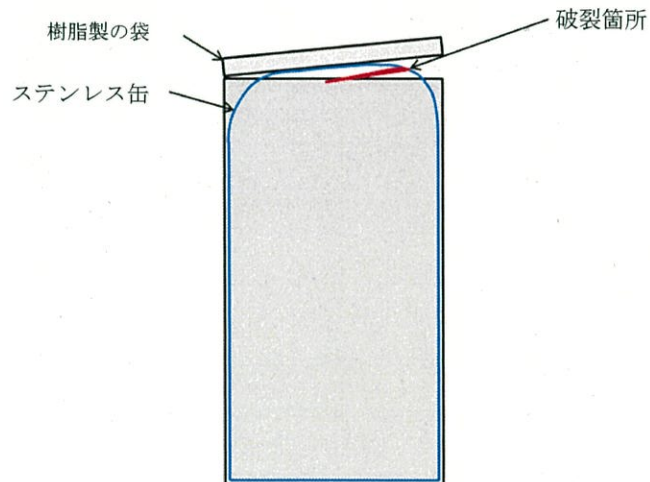
蓋ありの試験では、缶上部からはみ出る樹脂製の袋の寸法は袋が膨張した際に蓋部に接触し、拘束される状態を模擬するために-55 mm とし、内部に加える空気圧を 1 kgf/cm^2 として試験を実施した。約 250 秒で破裂に至った。非照射の樹脂製の袋と同様に、ステンレス缶内面で拘束された部分は膨らむことができないため、ステンレス缶上側の 10 mm 程度空いた隙間の解放部で膨らんで破裂する結果となった。2 回の試験ではどちらも非照射の樹脂製の袋のケース (放射状の破損形状) と異なり、破損形状は 80 mm 程度の直線的であった (図⑭-9)。劣化した樹脂製の袋の破裂時の内圧は大気圧+0.09 MPa 及び大気圧+0.11 MPa (1.9、2.1 気圧) であった。破裂直前の樹脂製の袋の写真を図⑭-8 に、破裂後の樹脂製の袋の写真を図⑭-9 に示す。また、破裂箇所と破損形状の概略図を図⑭-10 に示す。



図⑭-8 蓋あり試験 破裂直前の樹脂製の袋の写真



図⑭-9 蓋あり試験 破裂後の樹脂製の袋の写真



図⑭-10 蓋あり試験 破裂箇所と破損形状の概略図

4. 評価結果

4.1 樹脂製の袋の γ 線照射試験による劣化度合い評価

(1) γ 線照射後の引張試験による劣化度合い評価

360 kGy の γ 線照射により、樹脂製の袋の引張強さは公称応力値として 19.8 MPa から 13.1 MPa に約 34 %低下し、引張延性は破断時の公称ひずみ値として 338 %から 232 %に約 31 %低下した。

(2) γ 線照射後の破裂試験による劣化度合い評価

蓋なしの試験に関して、ステンレス缶からはみ出た樹脂製の袋の破裂時の膨らみは、非照射の樹脂製の袋の直径（130 mm）に比べ、360 kGy の γ 線照射をした樹脂製の袋の直径（90 mm）は約 31 % 低下した。また、破裂時の内圧は同様に 0.050 MPa から 0.042 Mpa に約 16 % 低下した。

蓋ありの試験に関して、劣化した樹脂製の袋の膨らみにより蓋がゆっくりと僅かに空いて破裂に至った過程及び樹脂製の袋の側面と上部を拘束点とした点は、当時の破裂事象を模擬している。一方、本試験では蓋の開度を強制的に制限しており、同種の蓋あり開度の制限なしの試験条件において蓋が飛んでいる例もあることから、本試験における樹脂製の袋の内圧は蓋の開度を強制的に制限したことにより蓋が載っている状態よりも高かったと推測される。また、本試験体系における劣化した樹脂製の袋の内圧（1.9、2.1 気圧）はこの試験に近い条件の非照射の樹脂製の袋の試験での値（例えば 2.2 気圧）と比較して小さい傾向があることから劣化した樹脂製の袋は非照射の袋に対して耐圧性や伸びの特性が低下していると考えられる。また、今回の γ 線照射により劣化した樹脂製の袋の破裂試験において、樹脂製の袋が耐えられた圧力の範囲は 1.42～2.1 気圧であった。

⑮ 「樹脂製の袋のβ線による劣化」

1. 確認・調査事項

樹脂製の袋のβ線照射による劣化度合い

2. 確認調査方法・内容

2.1 現物確認

現物の樹脂製の袋の健全性の確認

2.2 評価・文献

樹脂製の袋について、β線による劣化に関する検討を行った。

3. 確認・調査結果

3.1 現物確認

現物の樹脂製の袋の健全性の確認未実施。

3.2 調査

Pu-241 は、14.4 年の半減期でβ崩壊し Am-241 に壊変する。このβ崩壊に伴い放出されるβ線による樹脂製の袋の劣化の影響について評価する。

β線の最大飛程 R (g/cm²) と最大エネルギー E_{max} (MeV) の間の関係は、Feather の式で表される；

$$\cdot R = 0.542 \times E_{\max} - 0.133 \quad \text{ただし、} 0.8 \text{MeV} < E_{\max}$$

$$\cdot R = 0.407 \times E_{\max}^{1.38} \quad \text{ただし、} 0.15 \text{MeV} < E_{\max} < 0.8 \text{MeV}$$

上記関係式の適用下限である 0.15 MeV のβ線では、R は 0.030 g/cm² (=0.407×0.15^{1.38}) であり、密度 1 g/cm³ の物体の場合には 0.03 cm (=0.03/1) 以上の厚さがあればβ線は透過できない。

Pu-241 のβ崩壊によって放出されるβ線の E_{max} は 0.0208 MeV で、上記関係式の適用範囲外であるものの、前出の 0.15 MeV のβ線より最大飛程は短くなる。

ポリ容器の密度は 0.92~0.95 g/cm³ 程度、上部/底部及び側面の肉厚は 0.1 cm であり、0.15 MeV のβ線における最大飛程から考えても、Pu-241 のβ崩壊によって放出されるβ線はポリ容器を透過できず、当該β線による樹脂製の袋の劣化への影響はないと判断できる。

ただし、当該貯蔵容器については、平成8年7月の健全性確認点検において開封されていると考えられ、ポリ容器底部の黄変及び破損がみられる、との報告もあった。すなわち、ポリ容器破損部からβ崩壊核種である Pu-241 が樹脂製の袋に漏れ出ている可能性もあるが、その場合にはα崩壊核種も同時に漏れ出ているはずであり、崩壊定数（β崩壊核種のほうが1桁大きい）と1崩壊あたりの放出エネルギー（β崩壊核種の方が2桁小さい）の積から考えても、漏れ出たβ崩壊核種の樹脂製の袋に及ぼす影響は漏れ出たα崩壊核種の影響に包含されると考えられる。

4. 評価結果

現物のポリ容器の健全性を目視による変色度合いや、触れてみることにより確認し、β線照射による樹脂製の袋劣化の可能性を確認予定。

⑩ 「樹脂製の袋の熱劣化」

1. 確認・調査事項

- 1.1 樹脂製の袋の熱による劣化度合い
- 1.2 樹脂製の袋の熱解析結果と過去の基準値との比較

2. 確認調査方法・内容

2.1 樹脂製の袋の熱による劣化度合い

(1) 聞き取り調査

聞き取り調査の報告書から熱劣化に関する情報収集を試みた。

(2) 評価・文献

樹脂製の袋の原材料である PVC の熱劣化に関する文献調査を行った。

2.2 樹脂製の袋の熱解析結果と過去の基準値との比較

(1) 評価・文献

温度上昇の要因として考えられる基本事象 (⑤～⑩) の評価結果を参考に評価した。

3. 確認・調査結果

3.1 PVC の熱による劣化度合い

(1) 聞き取り調査

貯蔵容器に触れたところ、温度上昇はなかったとの証言があった。

(2) 評価・文献

PVC の劣化に与える熱の影響は過去の評価試験 [1] により以下のとおり報告されている。

- ・劣化の原因は PVC に添加されている可塑剤の飛散及び PVC の分解であると考えられる。
- ・可塑剤の飛散により PVC の重量減少が 17 % になる、あるいは PVC の分解により吸光度が 0.25 になると伸びが半減する。
- ・伸びが半減するまでの時間を寿命と定義すると、空気中での PVC の寿命は表⑩-1 のとおりである。

表⑩-1 空気中での PVC の寿命

温度 [°C]	寿命 [h]
120	30
105	120
100	200
90	310
80	1,200

また、表⑩-1 に示す温度と PVC の寿命の関係から、室温付近の温度 (30 °C、25 °C、20 °C)

における寿命の評価が外挿によって可能と仮定すると、30℃で約320,000h(約37年)、25℃で約640,000h(約73年)、20℃で約1,280,000h(約146年)と見積もられる。

3.2 樹脂製の袋の熱解析結果と過去の基準値との比較

(1) 評価・文献

温度上昇の要因として考えられる基本事象(⑤~⑩)の評価結果を考慮したが、いずれも貯蔵期間中に有意な劣化をもたらすほどの温度上昇はないと考えられる。

4. 評価結果

文献調査結果をもとに室温付近での劣化の影響を評価し、PVCの寿命と定義した伸びが半減するまでの時間は貯蔵期間に比べて長いと推定した。また、温度上昇の要因として考えられる事象では有意な温度上昇はなく、熱劣化は放射線劣化の影響よりも小さい。さらに作業者の聞き取り結果から貯蔵容器の温度上昇もなかったことから、本項目の寄与度合いは小さいと考えられる。

5. 参考文献

- [1] ビニルバッグ検討委員会, “ビニルバッグ検討委員会報告書”, PNC-ZN5410-88-003, 1988

⑰ 「樹脂製の袋の経年劣化」

1. 確認・調査事項

1.1 樹脂製の袋の経年による劣化度合い

2. 確認調査方法・内容

2.1 樹脂製の袋の経年による劣化度合い

(1) 聞き取り調査

聞き取り調査の報告書から経年劣化に関する情報収集を試みた。

(2) 評価・文献

経年劣化に関する文献調査及び製造メーカーへの聞き取り調査を行った。

3. 確認・調査結果

3.1 樹脂製の袋の経年による劣化度合い

(1) 聞き取り調査

経年劣化の度合いに関する証言は得られなかった。

(2) 評価・文献

樹脂製の袋の経年劣化による影響については東海再処理センターにおいて実施された未使用の樹脂製の袋及び照度の小さな倉庫にそれぞれ8年、30年保管された樹脂製の袋を用いた引張試験及び外観観察の結果[1]より以下のとおり報告されている。

- ・樹脂製の袋の破断時の伸びは保管期間の増加に伴い増加する傾向が見られる（8年保管で11.4%増加、30年保管で15.7%増加）。
 - ・樹脂製の袋の破断時強度は保管期間が増加しても大きな低下は見られない。
 - ・30年保管した樹脂製の袋は若干黄色に変色しており、表面に孔食状の丸い凹みが見られる。
- また、製造メーカーへの聞き取り調査の結果、経年劣化は主に紫外線の影響によることが分かった。

4. 評価結果

文献調査の結果、30年間の保管による樹脂製の袋の破断時強度及び伸びの低下はほとんどないことが分かった。また、製造メーカー聞き取り調査から経年劣化は主に紫外線の影響によるが、貯蔵期間中は貯蔵容器により遮光されており、また、放射線の影響の方が比較的に大きいため、本項目は⑬、⑭及び⑮に包含される。

5. 参考文献

- [1] 独立行政法人 日本原子力研究開発機構, “「JNFL 再処理工場」に関わる委託業務報告書(グローブ及びビニルバックの放射線劣化評価試験)”, 契約番号 24J105, 2013.

⑱ 「当時の樹脂製の袋の品質」

1. 確認・調査事項

1.1 数十年前の樹脂製の袋の品質調査（強度等）

2. 確認調査方法・内容

2.1 数十年前の樹脂製の袋の品質調査（強度等）

(1) 評価・文献

製造メーカーへの聞き取り調査を行った。

3. 確認・調査結果

3.1 数十年前の樹脂製の袋の品質調査（強度等）

(1) 評価・文献

製造メーカー聞き取りの結果、樹脂製の袋の原材料は平成2年頃から変更されていないことを確認した。

4. 評価結果

製造メーカーへの聞き取り調査により、購入当時より原材料等の変更がないことを確認した。品質に変更がないことから寄与度合いは小さいと考えられる。

⑱ 「ポリ容器放射線劣化」

1. 確認・調査事項

ポリ容器の γ 線照射試験による劣化度合い評価

2. 確認調査方法・内容

ポリ容器の胴部を高さ約 4 cm の輪切りに切断した後、量研 高崎研の食品照射棟第 2 セルにて、6 kGy/h で約 60 時間照射し、照射量 360 kGy の照射を行い、照射終了後、外観観察を行い、劣化度合いを確認する。

3. 確認・調査結果

照射終了後の引張試験片を非照射のものと比較して外観観察を行った。照射した試料は若干の黄色化がみられたが、柔軟性もほとんど変化はなく、脆くなるなどの劣化が認められなかった。図⑱-1 に非照射と照射後の試料の外観観察結果を示す。



図⑱-1 非照射と照射後のポリ容器の外観観察結果

4. 評価結果

360 kGy の γ 線照射により、ポリ容器は非照射に比べて変色は小さく、柔軟性もほとんど変化はなく、脆くなるような劣化は認められなかった。したがって、ポリ容器が放射線劣化により破碎して、その破片により樹脂製の袋が損傷を受ける可能性はほとんどないと考えられる。

⑳ 「ポリ容器内突起物混入による損傷」

1. 確認・調査事項

ポリ容器内への突起物混入有無

2. 確認調査方法・内容

貯蔵容器への収納時におけるポリ容器内への突起物の混入有無について、収納当時の作業員への聞き取り調査等を行い、突起物がポリ容器外に出て樹脂製の袋を破損した可能性を評価する。

3. 確認・調査結果

収納当時の作業員等への聞き取り調査の結果、突起物収納に係る情報は聞き出せなかった。

4. 評価結果

貯蔵容器内容物の確認に係る作業員への聞き取り調査結果より、貯蔵容器蓋開封作業時に内部の気体が漏洩したが、漏洩直後の蓋周辺部の汚染は無かった。以上から、二重目樹脂製の袋は破損していなかったことが推定できる。このことより、ポリ容器内突起物混入による損傷は無いと判断できる。

②「貯蔵容器開封時の傷等」

1. 確認・調査事項

1.1 現地調査による開封時の傷付与の有無

2. 確認調査方法・内容

2.1 現地調査による貯蔵容器開封時の傷付与の有無

(1) 聞き取り調査

聞き取り調査の報告書から開封時の傷付与の有無について情報収集を試みた。

(2) 現地調査

現地調査からの開封時の傷付与の有無の推定は未実施。

3. 確認・調査結果

3.1 現地調査による開封時の傷付与の有無

(1) 聞き取り調査

傷付与に関する証言は得られなかった。

(2) 現地調査

未実施。

4. 評価結果

聞き取り調査から傷付与に関する証言は得られなかったが、ボルトを外した瞬間に樹脂製の袋が破裂したという状況から、本項目の寄与度合いは小さいと考えられる。確認のため、現地調査が必要。

平成 29 年 6 月 8 日

児玉

理事長指示

○大洗燃料研究棟での内部被ばくを踏まえて、全役員は配下職員全員に以下の事を本日中に周知・徹底すること

① 安全最優先の再徹底

- ・ 核燃料物質の取扱う際に、安全確保がされていることを再確認すること
- ・ 同様の事故を発生させないため、核燃料物質を扱う類似の全作業を別途指示があるまで停止すること

② 原子力の専門家集団としての社会的責任

- ・ 専門家としての自覚をもち、自らの行動が社会的責任を有することを再認識すること

③ 危険予知活動の徹底

- ・ 潜在的なリスクを考え、リスク低減を図り行動することを徹底すること

○また、「自らのマネジメントに改善すべき点はないか?」、「ガバナンスが効いていない点はないか?」を至急再点検のこと

○本件、機構の存続にも影響を及ぼす重大な、深刻な事態と認識して最優先項目として上記の対応をすること

○具体的な作業にあたっては、各現場に下記を指示すること

- ・ 放射性物質を取り扱う自覚と緊張感を持つこと
- ・ 施設・設備、作業環境、作業手順を徹底的に点検した上で作業に入ること
- ・ 管理者は上記ができていない作業は許可しないこと

以上

核燃料物質の貯蔵及び取扱い作業等に関する総点検の結果について

大洗研究開発センターで発生した燃料研究棟における汚染について、現場復旧及び原因究明のための作業が続いているところであるが、類似事象の再発防止の観点から、現状で把握されている原因や管理上の問題点を踏まえ、機構全体における核燃料物質の貯蔵及び取扱い作業等の管理状況を再確認する必要がある。

また、平成29年6月8日には、「安全最優先の再徹底」及び同様の事故を発生させないための類似作業の停止、「原子力の専門家集団としての社会的責任」並びに「危険予知活動の徹底」を周知徹底するよう理事長指示が発信されている。

このため、原因究明の後に実施する対策の水平展開に向けて核燃料物質の管理状況を把握するとともに、理事長指示（特に類似作業の停止の指示）の周知徹底の状況を確認することとし、調査、点検を実施した。さらに、理事長の追加指示（平成29年6月30日）に基づき、機構内の核燃料物質を貯蔵及び保管する容器（以下「貯蔵容器等」という。）の健全性を確認するための調査、点検を実施した。調査、点検の概要を以下に示す。

なお、大洗研究開発センターの照射燃料試験施設及び燃料研究棟の貯蔵容器等については、現場復旧等の作業を優先するため、この総点検の結果から除外している。

1. 実施期間

平成29年6月15日～平成29年7月7日

2. 実施内容

(1) 核燃料物質の貯蔵容器等の現場確認の実施について

核燃料物質の貯蔵容器等の健全性を確認するため、可能な範囲の貯蔵容器等の目視確認や、目視できないものについては点検記録等による現状の貯蔵・保管状態の調査、点検を実施した。調査、点検の対象は、核燃料物質を貯蔵、保管する貯蔵容器等で内容物である核燃料物質が容器から飛散する可能性が考えられ、作業員や施設の汚染、更には作業員の内部被ばくを引き起こすおそれがあるものとし、試薬ビン等の少量の核燃料物質が貯蔵等されている容器もすべて対象とした。

(2) 核燃料物質の貯蔵及び取扱い作業等に関する総点検の実施について

燃料研究棟における汚染を踏まえ、類似事象の再発防止を目的とした水平展開に向けて、各拠点における核燃料物質の貯蔵及び取扱い作業等に関して以下の調査、点検を実施した。

- ① 類似作業の停止指示に対する対応状況
- ② 貯蔵容器等の管理状況（貯蔵容器等の材質、内部点検の有無、密封性の有無、開封後の経過年数、内容物の核種、化学形態、有機物混在の有無、貯蔵等の場所、容器内部の保管状況）
- ③ 取扱い作業の要領等の整備（貯蔵容器等の内容物点検や取扱い作業に関する要領の有無等）
- ④ 緊急時対応に係る調査（汚染や被ばく事故の緊急時対応に関する要領の有無等）

3. 結果

本総点検により、以下の事項を確認した。今後は、原因分析の結果を踏まえ、必要に応じて貯蔵容器等の点検内容、取扱い作業の管理や緊急時対応に関する点検結果のより詳細な調査等を行い、再発防止に向けた水平展開を計画・実施する予定である。

(1) 核燃料物質の貯蔵容器等の現場確認の実施について

現状の貯蔵容器等について、現場で目視によりき裂、変形、転倒、内容物の漏えい等の観点から健全性を確認した。なお、目視により確認できないものは、直近の点検結果や貯蔵容器等の構造等※から、安全に貯蔵、保管されていることを確認した。

※専用の金属容器に収納し貯蔵ピットに保管されているなどの状態

(2) 核燃料物質の貯蔵及び取扱い作業等に関する総点検の実施について

① 類似作業の停止指示に対する対応状況

類似作業（核燃料物質が封入されている貯蔵容器等の開封作業）の停止の指示に対する対応状況について確認した結果、各拠点において現場まで指示が周知され、該当作業が行われていないことを確認した。

② 貯蔵容器等の管理状況

現状の貯蔵、保管状態について、主に貯蔵容器等内の核燃料物質の核種、有機物混在の有無、樹脂製の袋や容器への封入等の貯蔵容器等内部の保管状況、貯蔵容器等内部の点検有無について調査し、これらの貯蔵・保管状況を把握した。

調査、点検を行った貯蔵容器等は 13,878 個で、特に燃料研究棟における汚染の直接原因となった貯蔵容器等に関する調査を受けて、これに類似するものとして、プルトニウムが含まれる貯蔵容器等であって、ガスの発生の観点から有機物の混在又は樹脂製の袋や容器に封入されているおそれがあり（不明なものを含む）、貯蔵容器等内の点検が実施されていないものは、349 個で全体の約 2.5 %であった（下表参照）。

表 貯蔵容器等の調査結果

調査内容	個数
① 調査した貯蔵容器等の数	13,878
② ①のうちプルトニウムが含まれるもの	3,539
③ ②のうち有機物の混在又は樹脂製の袋や容器に封入されているおそれのあるもの	2,280
④ ③のうち容器内の点検が実施されていないもの	349

平成 29 年 7 月 20 日現在

③ 取扱い作業の要領等の整備

貯蔵容器等の点検作業に対する要領が整備されているか調査した。その結果、貯蔵容器等を開封して点検を実施している部署では、点検等が要領等に定められていることを確認した。今後、必要に応じて、原因分析の結果を踏まえたより詳細な調査及び対策の実施に繋げる。

④ 緊急時対応に係る調査

緊急時対応に係る要領等について調査した。その結果、汚染や被ばく事故のおそれがある部署では、汚染や被ばく事故の対応が要領等に定められていることを確認した。今後、必要に応じて、今回の事象の調査結果を踏まえたより詳細な調査及び対策の実施に繋げる。

以上

平成 29 年 7 月 21 日
 日本原子力研究開発機構
 大洗研究開発センター

法令報告「燃料研究棟における汚染について」正誤表

核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律第 62 条の 3 に基づき原子力規制委員会へ報告した平成 29 年 6 月 19 日付け 29 原機（大福材）007「燃料研究棟における汚染について」について、報告書内の記載に誤りがありましたので、以下の正誤表に示す通り誤りを訂正致します。

正 誤 表

別添における記載箇所

1 ページ	4.1 項 10 行目	(誤) 二重のゴム手袋	(正) ゴム手袋 (2 重)
3 ページ	注釈 2 の記載箇所	(誤) 3 ページ	(正) 2 ページ
4 ページ	5 項 3 行目	(誤) 図 11	(正) 図 9
4 ページ	5 項 3 行目	(誤) 図 12	(正) 図 10
4 ページ	7 項 7 行目	(誤) 図 11	(正) 図 9
4 ページ	7 項 7 行目	(誤) 図 12	(正) 図 10
4 ページ	7 項 7 行目	(誤) 図 13	(正) 図 11
14 ページ	図 9 グラフ縦軸の単位	(誤) μ Gy/h	(正) nGy/h
16 ページ	図 11 グラフ縦軸の単位	(誤) s ⁻¹	(正) s ⁻¹

以上