

大洗研究開発センター燃料研究棟 における汚染について

平成29年9月6日

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構



燃料研究棟汚染事故対応工程表

【1】

	6月			7月			8月			9月			10月以降
	上旬	中旬	下旬	上旬	中旬	下旬	上旬	中旬	下旬	上旬	中旬	下旬	
報告書等	▼事故発生	▼法令報告(10日報) ▼茨城県からの要請に対する報告書			▼法令報告(第2報)								▼法令報告(最終報) (目標)
現場復旧		貯蔵容器の移動			汚染状況把握・粒子の回収								
原因究明	情報収集・整理、要因リストアップ				(追加調査)								
	フォルトツリー図構築等			事故進展シナリオ検討			分析を踏まえた事故進展シナリオ検討						
				貯蔵容器内部観察、容器内試料及び飛散試料の分析									
				検証試験(樹脂製の袋の破裂事象・エポキシ樹脂の放射線分解)									
				総合評価									
総点検・水平展開		総点検の実施(各拠点)											
					原因究明等を踏まえた追加調査、水平展開								
作業員ケア	▼入院 ▼退院	▼入院 ▼退院	▼入院 ▼退院	▼入院 ▼退院	▼入院 ▼退院	▼入院 ▼退院	▼入院 ▼退院	▼入院 ▼退院	▼入院 ▼退院	▼入院			
													継続して作業員のケアを実施
被ばく評価	▼肺モニタ	バイオアッセイ試料の分析											
				線量評価協力(便測定結果及び核種情報提供等)									
				半面マスク等の汚染分布の調査・分析、108号室内の放管情報等の調査・分析									
													核燃料物質の摂取に関するシナリオ検討

➤ 貯蔵容器内面 ①

- ・蓋のO-リングが裂けるように破損

➤ 樹脂製の袋 ②

- ・一重目(内側)は二重目(外側)より上下に長く、二重目頂部を突き破るように上へはみ出していた
- ・一重目は側面溶着部に沿って縦に開口

➤ ポリ容器 ③

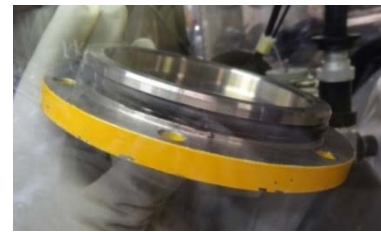
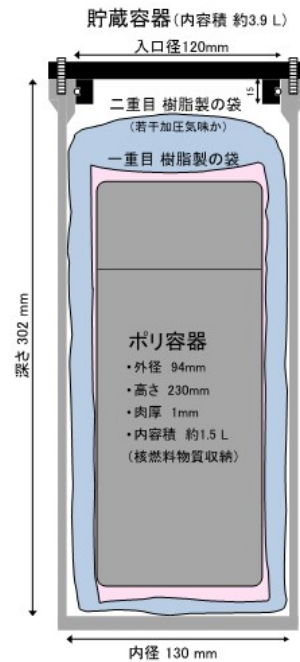
- ・変色と脆化はあるが、破損は無し
- ・蓋と本体は紙テープで固定してあったが、境目でテープが破断

➤ ポリ容器の内容物 ④

- ・X線回折測定済試料(エポキシ樹脂と粉末を混ぜて固化したもの:以下「樹脂固化物」)が、ポリ容器の高さの2/3程度まで収納
- ・ほぼ完全な形状のものと割れたかけらが混在
- ・底部付近に細かいかけら ⑤ と粉末が存在
→300 μ mのメッシュ(目開き)のふるいで分別した粉末は、樹脂固化物に比べてごく少量
- ・いくつかサンプル採取した樹脂固化物1個あたりの線量当量率は、約5~220 μ Sv/h

➤ フード前の床から回収した飛散物 ⑥

- ・大小の樹脂固化物が存在



① 貯蔵容器蓋の内面の状態



② 二重目袋頂部の開口の状態



② 破裂後の一重目と二重目の袋の状態



③④ ポリ容器外観と内部の収納状態

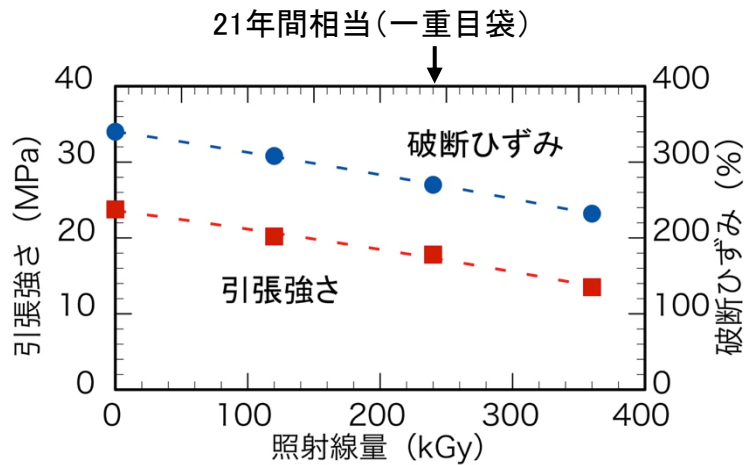


⑤細かいかけら



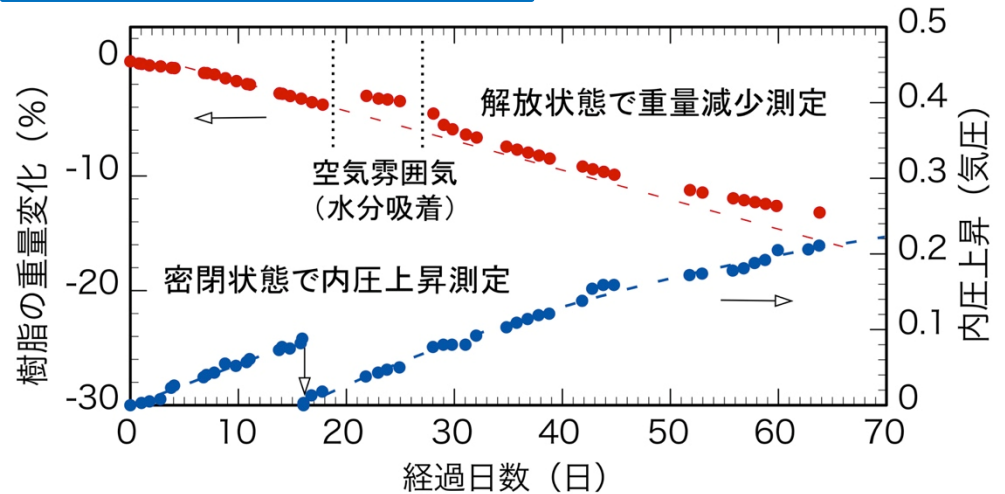
⑥フード前の床のシートから回収した飛散物

γ線照射による袋の強度劣化



・樹脂製の袋の引張強さと破断ひずみは、照射線量にほぼ比例して劣化

エポキシ樹脂のα線分解



・半減期の短いCm含有粉末とエポキシ樹脂を混合・固化して試験を実施した結果、樹脂の分解が進むにつれて重量が減少し、ガスが発生。

袋二重梱包状態での破裂試験

- ・金属製容器に収納された二重梱包の樹脂製の袋を加圧した後、蓋を開放する試験を行い、破裂・破損の様子を観察(図1参照)
- ・γ線照射で劣化させた樹脂製の袋は、内圧が2.5気圧程度以上の場合に事故容器と類似した袋の破損状態を再現した。(図2参照: 外側袋は頂部が開口、内側は溶着部が開口)

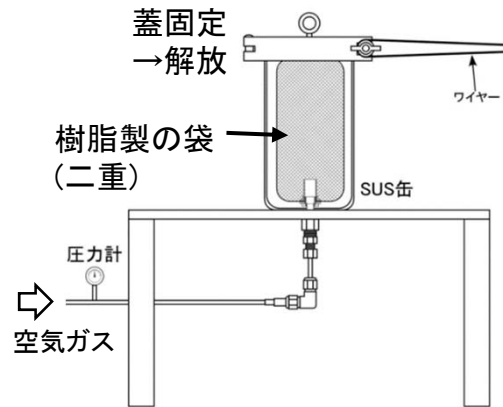


図1 試験の概略図



図2 試験後の樹脂製の袋の写真 (上図: 二重目, 下図: 一重目)

事実関係	情報源
<ul style="list-style-type: none"> ・当該貯蔵容器内の核燃料物質は、天然ウラン(U)とプルトニウム(Pu)であり、Puは同位体組成の異なる5種類が混在 <ul style="list-style-type: none"> →貯蔵容器内試料のX線元素分析により、U/Pu比の計量管理帳簿との整合を確認 →計量管理帳簿の情報から混在状態のPu同位体組成を推定、ガス発生量評価に反映 	①,④
<ul style="list-style-type: none"> ・内容物はX線回折測定済試料(核燃料物質とエポキシ樹脂とを混合したもの) <ul style="list-style-type: none"> →貯蔵容器内部の観察と分析で確認 	①,④
<ul style="list-style-type: none"> ・内容物としてポリ容器を使用 <ul style="list-style-type: none"> →貯蔵容器内部の観察で確認 (破損はなかった) 	①,②,④
<ul style="list-style-type: none"> ・エポキシ樹脂、ポリ容器の放射線分解により、水素等のガスが発生 <ul style="list-style-type: none"> →観察と分析の結果、エポキシ樹脂中にPuが含まれていること、ポリ容器に直接接触する粉末量が少ないことから、エポキシ樹脂の放射線分解が主要因と特定 	①,③,④
<ul style="list-style-type: none"> ・樹脂製の袋は、主にγ線により、劣化が発生 <ul style="list-style-type: none"> →26年間相当の照射量で強度・伸びが最大30%程度低下を確認、21年間相当を模擬したγ線照射では、強度が25%、伸びが21%低下 	③
<ul style="list-style-type: none"> ・γ線照射で劣化した樹脂製の袋は、内圧で破損する。 <ul style="list-style-type: none"> →貯蔵容器内部の実際の梱包状態を模擬した袋二重の破裂試験の結果、内圧が2.5気圧程度以上の場合に事故容器と類似した袋の破損状態を再現した 	③,④

情報源: ①資料調査、②聞き取り、③検証試験、④観察・分析

結論

- ・Puからの放射線によりエポキシ樹脂が分解されガスが発生、21年間の貯蔵期間中に樹脂製の袋の内圧が上昇
- ・貯蔵容器の蓋の開封により、貯蔵容器の蓋によって樹脂製の袋を押さえつけていた力が失われ、放射線で劣化した樹脂製の袋が急激に膨張し、破裂した。

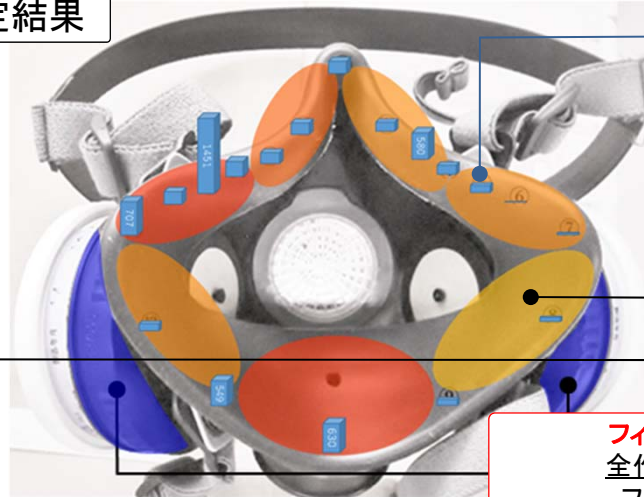
推定原因調査のための半面マスクの測定・分析

(半面マスクの構造や測定の詳細は参考3参照)

●作業員E作業時装着マスク測定結果

ペンシル型測定器測定結果
及びスミヤ測定結果

給排気弁測定結果



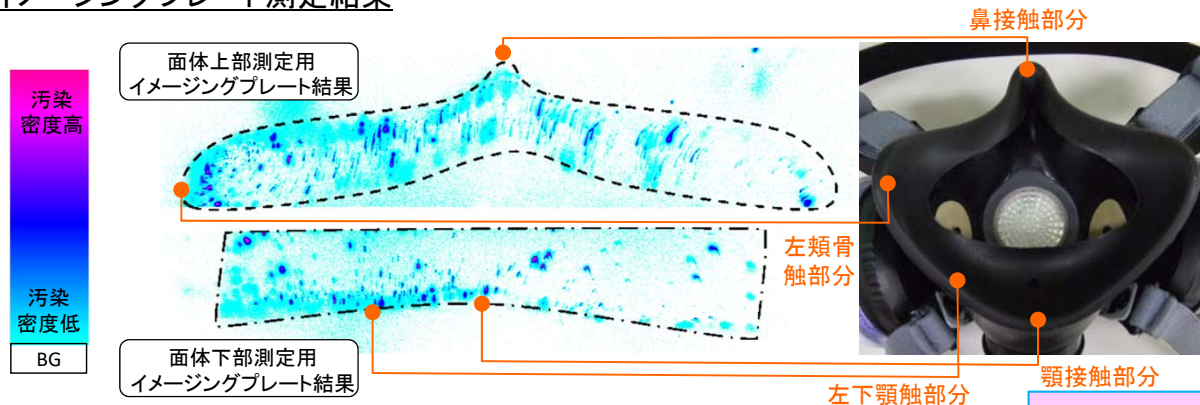
棒グラフ：ペンシル型測定器によるα線測定結果(cpm)

カラーチャート：スミヤ及び給排気弁測定結果

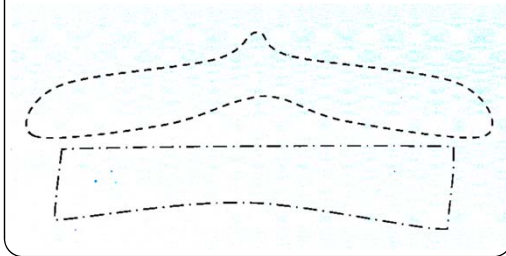


フィルタカートリッジホルダー(内部)
全作業員マスクでBGLレベルであり、
フィルタの健全性が確認できた。

イメージングプレート測定結果



《比較》作業員A作業時装着マスク



作業員Eが作業中に着用していた半面マスクの面体接顔部は、左頬骨及び左下顎接触部分で密度の高い汚染が確認された。また、面体全体が広く汚染しており、接顔部に入り込んだ汚染が半面マスク内に侵入したことが確認された。

聞き取りの結果と合わせて要因分析した結果、破裂時に直接浴びたPu等の粒子及び顔面に付着した汚染がマスク面体と顔面の隙間に入り込み、内部被ばくを引き起こしたと推定される。

法令報告(第2報)後の確認状況について(その1)

1. 総点検による当該貯蔵容器と同様の可能性のあるものの抽出

機構の核燃料物質の貯蔵容器・保管容器を対象に、プルトニウム(Pu)と有機物との混在等により、当該貯蔵容器と同様の可能性のあるものを大まかに抽出。

〈法令報告(第2報)の概要〉

- ① 対象とする貯蔵容器等の総数は、13,878個。
(大洗センターの燃料研究棟と照射燃料試験施設のものは含まず。)
- ② ①のうち、プルトニウム(Pu)を含む貯蔵容器等であって、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、貯蔵容器等内の点検が実施されていないもの(当該容器と同様の可能性のあるもの)は、349個。

〈大洗センターの調査結果の追加〉

- ③ 大洗センターの調査結果を加え、総数は14,770個、当該容器と同様の可能性のあるものは470個となった。

2. 抽出したものの(470個)の保管状況等

- ① 燃料研究棟にある同種の容器45個については、所定の貯蔵庫に識別して安全に保管されている。これらについては、別途記録等を詳細に確認しており、原因究明と再発防止対策を踏まえ、適切に対応していく。
- ② 燃料研究棟以外にある貯蔵容器等のうちセル、グローブボックスで安全に保管されている290個については、ガス発生のおそれや樹脂製の袋への封入状況等について確認、評価し、適切に対応していく。
- ③ 燃料研究棟以外にある貯蔵容器等のうち99個については、以下に示すように内容物及び管理状況を既に確認している。
 - i) ガス発生のおそれのないもの(核燃料物質と有機物が直接接触していない)が19個。
 - ii) ガスの発生を定期点検等で確認しているもの(貯蔵容器等が樹脂製の袋に封入等)が41個。
 - iii) 低Pu富化度のペレットでありガス発生のおそれは低いものが39個。
- ④ 極少量(Pu量; 数十 μ g以下)のPuを含む標準溶液等(アンプルに入った市販品等)が36個。

法令報告(第2報)後の確認状況について(その2)

3. 今後の対応

- ① 取扱量が少量であることから総点検の対象としていなかった核燃料物質以外のアルファ線放出核種やウランの同位体のうちU-233(機構全体で26グラム程度)を含む貯蔵容器等の再確認を行う(実施中、概ね問題のないことを確認)。
⇒これらの結果を②の核燃料物質の管理の改善に資する。
- ② 今回の汚染事故を踏まえ、核燃料物質の貯蔵や保管の形態に応じた適切な管理に向けた改善を図る。具体的には、ガス発生を踏まえた核燃料物質の貯蔵、保管方法、貯蔵容器の条件等に係る機構としての管理基準(ガイドライン)の策定を早急に行う。

事故現場の復旧作業

1. 法令報告(第2報)提出(7月21日)までの実績

- 飛散した粒子を回収し、事故が発生した貯蔵容器と回収した飛散物を108号室から101号室のグローブボックスへ移動。
- 事故直後に緊急設置したグリーンハウスから汚染管理の強化を図ったグリーンハウスへ更新。

2. 法令報告(第2報)提出後の実施状況

(1) フード(H-1)の除染(7月25日~28日)

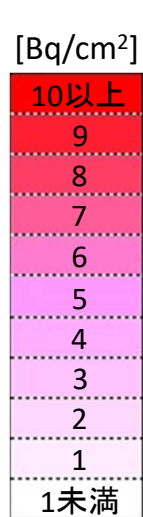
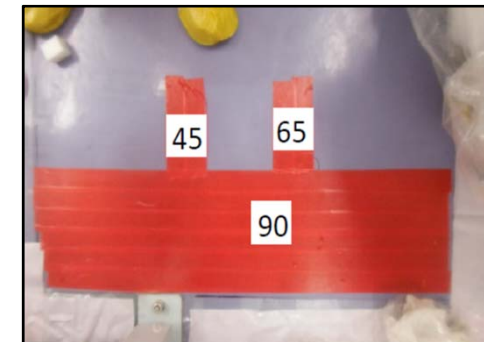
- 内表面については、ストリッパブルペイント(剥離性塗膜材)による除染(汚染箇所ToStrippableペイントを塗布し、固化後、剥離する。)及び濡れウエスによる拭き取り後、表面密度の低下を確認し、再度ストリッパブルペイントを塗布し、残った汚染を固定。
- 外表面については、表面密度を検出限界未満まで除染できたことを確認。

(2) 108号室の床の除染(8月3日~22日)

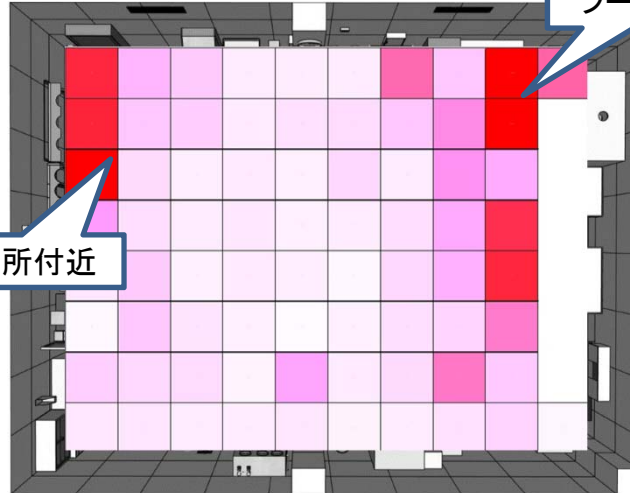
- フード(H-1)近傍と脱装場所付近が高濃度に汚染されていることを確認。
- 濡れウエス等により除染。残った固着汚染部は、粘着テープで固定し(右写真参照)、ビニルシートで養生。

(3) 壁、天井等の除染(8月23日~) : 汚染検査・除染作業を実施中。

粘着テープによる固着汚染部(図中■内)の固定(数字は表面密度[cpm])



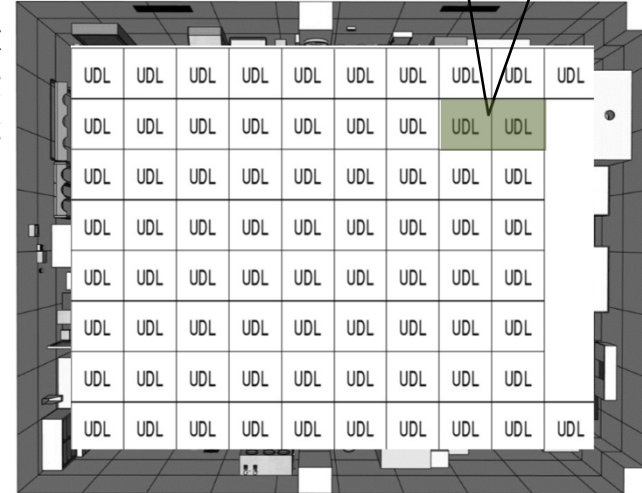
除染前



フード近傍

脱装場所付近

除染後



108号室の床面の平均汚染密度分布(暫定)

UDL: 検出限界未満

まとめ

- 検証試験、及び評価結果から、樹脂製の袋の破裂に至った原因を、「混入していたエポキシ樹脂の放射線分解によるガス発生」と特定した。
- 作業員が着用していた半面マスクの分析結果及び作業員等の聞き取り結果から、内部被ばくは主に、「破裂時に直接浴びたPu等の粒子及び顔面に付着した汚染がマスク面体と顔面の隙間に入り込んだこと」により発生したと推定している。
- 事故が発生したフード及び108号室の汚染検査、除染を着実に実施中。

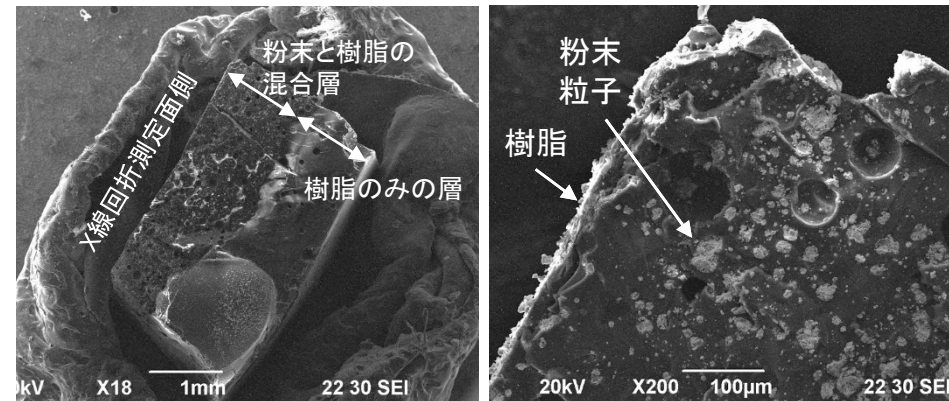
今後の予定

- 当該室(108号室)の汚染検査、除染を継続して実施し、早期の現場復旧を目指す。
- 事故発生及び内部被ばくの要因を明らかにするとともに、再発防止策・水平展開を機構大で立案・実施する。
- 上記を踏まえ、法令報告(最終報)を9月末日途に提出する。
- 量研 放医研と協力し、作業員及び家族へのケアを継続する。

- 参考1 樹脂製の袋の破裂に至った原因の究明
- 参考2 被ばく経路の推定に係る要因分析
- 参考3 放射性物質の摂取(内部被ばく)に至った原因の推定状況
- 参考4 肺モニタ測定について

➤ 樹脂固化物 ㊄

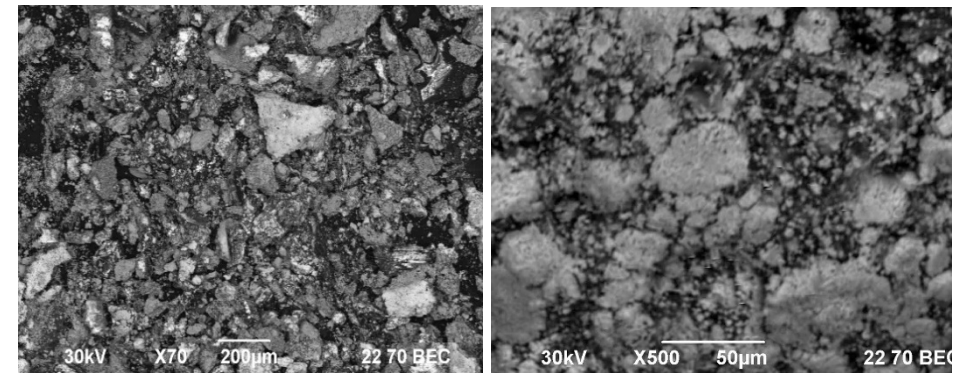
- 線量当量率の低、中、高(約10~220 μ Sv/hの範囲)の3種類の樹脂固化物断面を電子顕微鏡とX線元素分析で観察・分析
- 断面は樹脂と粉末を混合した層と、樹脂のみの層の二層
- 分散している粉末粒子の大きさは数 μ m~50 μ m超まで分布(右の画像では平均約20 μ m)
- 低線量当量率試料はほぼUのみ



㊄ 樹脂固化物の断面全体像(左)と拡大像(右)の例
(線量当量率の高い試料、約220 μ Sv/h)

➤ ふるい分けた粉末成分 ㊄

- 粉末粒子の大きさは、1 μ m程度から300 μ mに近いものまである。
(体積的には数十 μ m以上の成分が大部分)
- 多くの分析点ではU/(U+Pu)比は0.8 \pm 0.1の範囲
- ふるい分けた粉末にも樹脂が含まれていることから、粉末成分は樹脂固化物を加熱処理したものではなく、樹脂固化物から崩れ落ちた細かい成分と推測



㊄ 粉末成分の観察像(左:低倍像、右:高倍像)

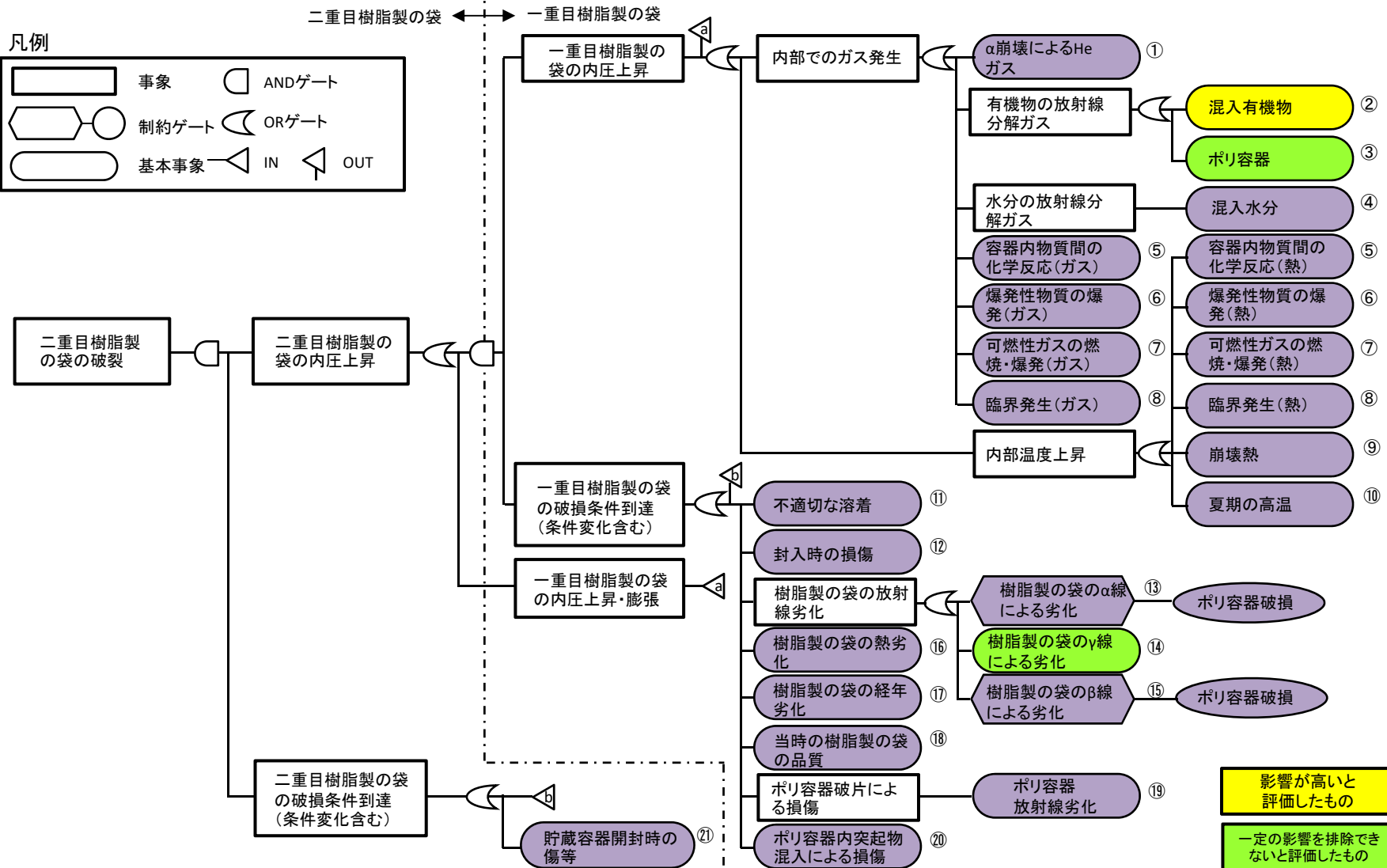
➤ 飛散物

- 樹脂固化物と同様に粉末粒子が分散しており、樹脂固化物のかけらであることを確認

➤ その他

- UとPu以外の金属元素では、研究の過程で添加した微量のNi(ニッケル)、希土類のSm(サマリウム)等を検出

貯蔵容器内収納物の観察・分析結果を反映



①～⑧:「内部でのガス発生」に係る要因、⑤～⑩:「内部温度上昇」に係る要因(⑤～⑧:「内部でのガス発生」及び「内部温度上昇」に係る要因)、⑪～㉑:「一重目樹脂製の袋の破損条件到達(条件変化を含む)」に係る要因

- 影響が高いと評価したもの (Yellow box)
- 一定の影響を排除できないと評価したもの (Green box)
- 影響が低いと評価したもの (Purple box)

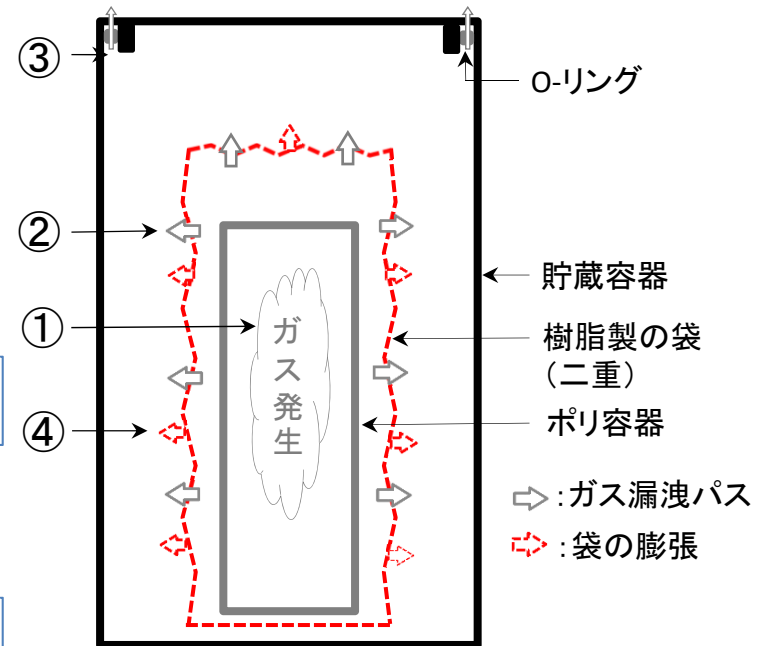
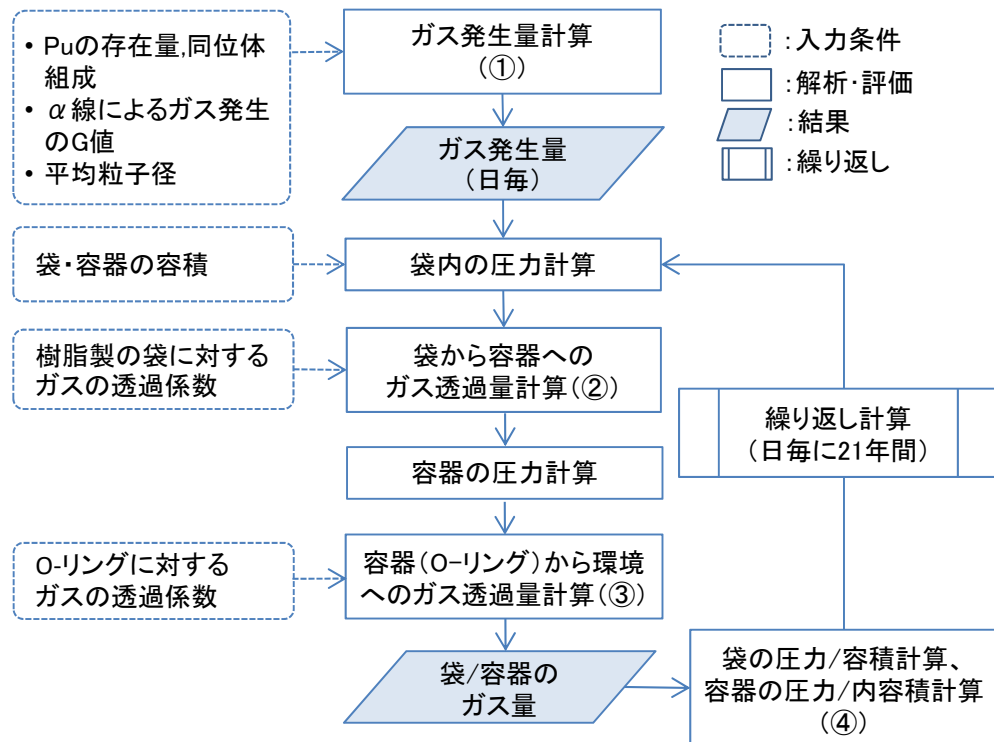
内圧上昇の計算手法について

【シナリオ】

- ・ 主としてエポキシ樹脂の放射線分解ガス*により、21年間の貯蔵期間中に袋が膨張
- ・ 発生ガスの一部は袋やOリング部を透過するが、透過しないガスにより袋の内圧は破損圧力以上まで上昇（貯蔵期間中には貯蔵容器による拘束で袋は破損せず）
- ・ 貯蔵容器の蓋開封により外部からの拘束が無くなり、袋が一気に膨張し破裂

*）ポリ容器及び吸着水分の放射線分解ガスによる内圧上昇はごくわずか

【内圧計算のフロー】



内圧上昇の評価結果

【主な計算条件とガス発生量】

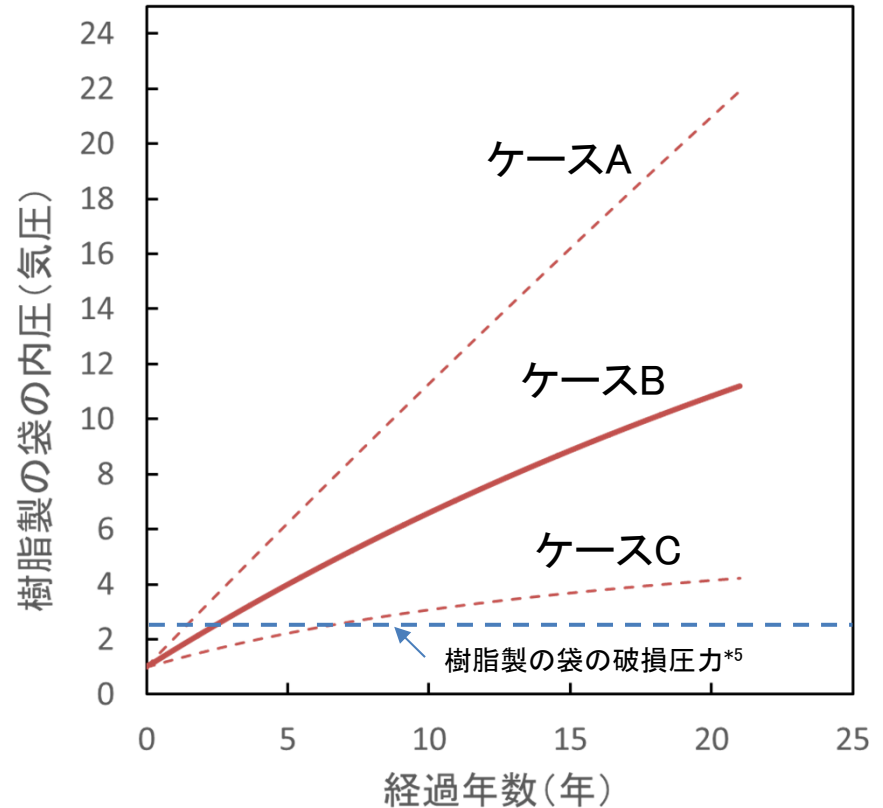
ケース		A	B	C
Pu同位体組成		混在状態の推定値		
α線によるガス発生 のG値*1		0.22 (検証試験から)		
平均粒子径		10 μm	20 μm	35 μm
樹脂製の 袋	ガス透過 係数*2	2.7 × 10 ⁻¹⁰ (水素) ^a		
		3.0 × 10 ⁻¹² (メタン) ^a		
O-リング	ガス透過 係数*2	1.3 × 10 ⁻⁹ (水素) ^b	3.9 × 10 ⁻⁹ (水素) ^c	
		3.3 × 10 ⁻¹⁰ (メタン) ^b		
漏洩面積*3		1 mm幅	5 mm幅	5 mm幅
Am除去*4		無	無	有
21年間のガス発生量		79.5 L	48.2 L	22.4 L

【出典】 a 住友化学株式会社技術資料, http://www.sumitomo-chem.co.jp/acryl/03tech/b3_gas.html
 T.D. Stark, et al., Geosynthetics International, 2005, 12, No. 1
 b 桜シール株式会社技術資料, <http://www.sakura-seal.co.jp/category/1981184.html>
 c 株式会社パッキンランド技術資料,
<https://www.packing.co.jp/GOMU/kitaitoukasei1.htm>

【計算結果】

- 各種計算条件により評価値には大きな幅があるが、発生したガスにより内圧は、樹脂製の袋の破損圧力を超える(袋が破損する領域となる)

【袋の内圧推移計算結果】



- *1 単位吸収エネルギー(100eV)あたりの生成ガス分子数
- *2 単位はcc・cm/cm²・s・10mmHg。O-リングのガス透過係数は文献によりある程度の差異(幅)があり、今回のO-リングのガス透過係数は約3倍の違いがある。
- *3 O-リングと密封対象ガスの接触面積のことで、この面積が大きければガスの透過割合も大きくなる
- *4 容器封入前に、Puの精製(不純物のAmを除去)を実施したかの有無
- *5 破裂試験において、事故容器と類似した袋の破損状態を再現した圧力は、2.5気圧程度以上であった。類似状況等に起因する誤差があると考えられ、およそ2.5気圧以上で破裂すると考えている。

経路の推定に係る要因分析

(現段階での評価であり、さらなる調査の結果を加え変更することがある)

想定された被ばくのタイミング毎に要因を洗い出し、聞き取りや汚染状況の調査結果等に基づき可能性を判定した。

事象	放射性物質摂取の原因	調査項目	調査結果		
半面マスクを着用した状態で内部被ばくが発生	樹脂製の袋の破裂時の放射性物質の摂取	破裂時の吸入	破裂時の濃度上昇によるマスクろ過材の放射性物質の透過	半面マスクの調査結果からろ過材の放射性物質の透過がなかったことが確認されたことから可能性はない。	
		108号室内での放射性物質の摂取	半面マスクの密着性の低下	破裂時の密着性の低下に伴う吸入摂取	作業員A:× B:○ C:× D:△ E:◎
				会話等による密着性の低下に伴う吸入摂取	作業員A:△ B:○ C:○ D:○ E:◎
	発汗等による密着性の低下に伴う吸入摂取			作業員A:△ B:○ C:○ D:○ E:◎	
	脱装及び除染時の放射性物質の摂取		汗の滴りによる頭部等の汚染の侵入に伴う経口摂取	室内では汗が滴るほどではなく、侵入した汗の飲み込みによる経口摂取の可能性は低い。(作業員A~E:×)	
			半面マスク交換時等の吸入摂取	作業員A:× B:△ C:△ D:△ E:△	
			身体除染時の経口摂取	作業員は、自らの頭部及び顔面に汚染がある状況を確認しており、汚染水の飲み込みには注意していたことから経口摂取の可能性は低い。(作業員A~E:×)	
			鼻腔除染時の経口摂取	作業員は、自らの頭部及び顔面に汚染がある状況を確認しており、汚染水の飲み込みには注意していたことから経口摂取の可能性は低い。(作業員A~E:×)	

○:被ばく経路として可能性が高いと評価したもの △:可能性があると評価したもの
 ×:可能性が低いと評価したもの ◎:○のうち、線量限度との関係で重大な被ばく経路を示す

破裂時に直接浴びたPu等の粒子及び顔面に付着した汚染がマスク面体と顔面の隙間に入り込み、内部被ばくを引き起こしたと推定される。

推定原因調査のための半面マスクの測定・分析

●半面マスクの構造



マスク前面



マスク前面(フィルターカートリッジ取り外し状態)



マスク着用者側

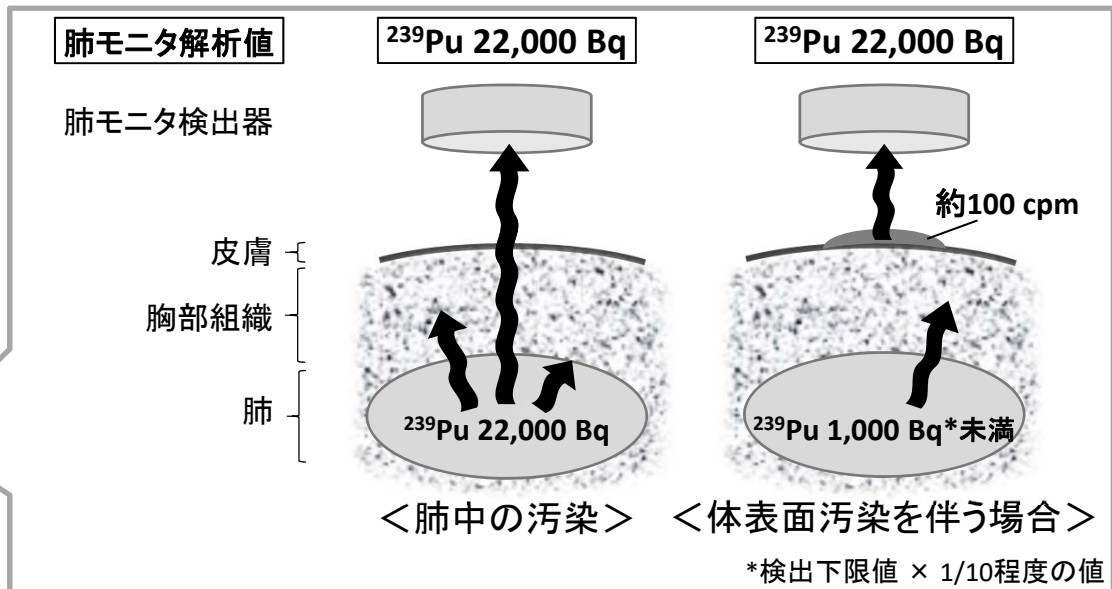
●測定概要

実施項目	ペンシル型測定器による面体接顔部の汚染のα線測定	イメージングプレートによる面体(顔側)のα線汚染分布測定	フィルタカートリッジホルダー(内部)から採取したスミヤのα線測定	面体(顔側)から採取したスミヤと給排気弁のα線測定
目的	面体接顔部の汚染の相対強度分布測定による、汚染侵入の痕跡調査	面体(顔側)の汚染の詳細分布測定による、汚染侵入の痕跡調査	フィルタの健全性の確認	面体(顔側)の汚染の相対強度分布測定による、汚染侵入の痕跡調査
方法	ペンシル型検出器による面体接顔部18カ所の汚染のα線直接測定	イメージングプレートを用いたα線測定による面体(顔側)上の汚染の付着位置の測定	左右のフィルタカートリッジホルダー(内部)の汚染のスミヤ採取と採取したスミヤのα線測定	面体(顔側)7カ所の汚染のスミヤ採取と採取したスミヤのα線測定及び取り外した給排気弁のα線測定
作業状況等	<p>測定箇所</p> <p>ペンシル型測定器</p> <p>測定箇所(全18カ所)及び測定の様子</p>	<p>頭部マネキン</p> <p>面体上部測定用イメージングプレート</p> <p>装着方向</p> <p>半面マスク</p> <p>面体下部測定用イメージングプレート</p> <p>測定の概略図</p>	<p>スミヤ採取の様子</p>	<p>面体のスミヤ採取範囲</p> <p>面体のスミヤ採取範囲(全7カ所)</p>
結果	作業員B,D,Eの作業中及び作業員Eの交換後のマスクを測定し、いずれも汚染を検出(例 作業員Eの作業中のマスク:5ページ参照)	作業員A以外の作業員の作業中及び交換後のマスクで、汚染分布を検出(例 作業員Eの作業中のマスク:5ページ参照)	全作業員マスクでBGLレベルであり、フィルタの健全性が確認できた。	スミヤ：作業員B,D,Eの作業中及び作業員Eの交換後のマスクを測定し、いずれも汚染を検出 給排気弁：全てのマスクの給排気弁を測定し、作業員C,D,Eの作業中のマスクで汚染を検出(例 作業員Aの作業中のマスク:5ページ参照)

肺モニタ測定値と体表面汚染との関係の評価

肺モニタは、肺中の汚染からの放射線のうち、胸部組織を透過して検出器まで到達するものの割合を考慮して放射能を算出する。

被検者の体表面に汚染が存在した場合、その汚染からの放射線は遮へいされずに計数されるため、実際の肺中放射能よりも過大評価となる。



人体形状ファントムの胸部表面に²⁴¹Am線源を設置して肺モニタにて測定し、測定値と体表面汚染の関係を求めた。

【結果】

肺モニタ検出器近傍の胸部表面に、サーベイメータで100 cpm程度の体表面汚染があれば、肺モニタにて²³⁹Pu 22,000 Bqと解析される。

