

# 大洗研究開発センター燃料研究棟の汚染に係る 貯蔵容器内容物及び破裂時の状況調査結果について

平成 29 年 9 月 20 日  
日本原子力研究開発機構

## (1) 貯蔵容器内容物の調査結果

樹脂製の袋が破裂した当該貯蔵容器の内容物の性状と履歴に関して、計量管理帳簿の調査(添付 6.4.1 参照)、燃料研究棟の月報、技術レポート、点検記録等の資料の調査(添付 6.4.2 参照)及び燃料研究棟に係る職員(退職者含む。)への聞き取り調査(添付 6.4.3 参照)を実施し、明らかになったことは以下のとおりである。

- ① 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(表 6.4.1 参照)が混在している。
- ② 当該貯蔵容器内の核燃料物質は、X 線回折測定済試料を集めたものである。
- ③ 燃料研究棟における X 線回折測定用試料の特徴として、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。試料ホルダー中の樹脂固化物部分の寸法は、約 20×20 mm 又は約 20×18 mm の四角形で、厚さ 1.5 mm 強の平らな形状である。試料作製方法の技術レポートでは、この樹脂固化物 1 個当たり核燃料物質の粉末を 0.2 g 程度使用するとされている。エポキシ樹脂の使用量は 1 g 前後となる。
- ④ 核燃料物質の化合物の種類として、酸化物、炭化物、窒化物が確認されている。また、これらの化合物は、U あるいは Pu のみからなるものと、U と Pu の混合化合物であるものとが混在している。
- ⑤ X 線回折測定後の試料は空気雰囲気グローブボックス内に集約し、樹脂製等の密閉性の低い容器に収納して置かれていた。平成元年 10 月に、当時置かれていた全量のうち約 78 %に相当する量を他の空気雰囲気グローブボックスに移動した。
- ⑥ この移動先のグローブボックスには、アルミニウム製の試料ホルダーから樹脂固化物を打ち抜く治具と酸化加熱処理用の加熱炉が設置されており、移動した核燃料物質はここに 2 年間置かれた後、平成 3 年 10 月に当該貯蔵容器に収納された。
- ⑦ 貯蔵容器へ収納する際の内容器として、燃料研究棟にあった比較的容積の大きい筒状のポリエチレン製容器(以下「ポリ容器」という。)を用いた。このポリ容器は、核燃料物質の保管を目的としたものではなく、グローブボックス内で生じる紙等の可燃性廃棄物や、金属・ガラス等の不燃性廃棄物を一時的に収納しておくために用いられているものである。
- ⑧ 貯蔵容器への収納に際しては、グローブボックス内で核燃料物質をポリ容器に入れてから、樹脂製の袋(ポリ塩化ビニル製、一重目)へのバッグアウト操作によって搬出し、これを更に樹脂製の袋(二重目)に封入した。
- ⑨ 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 7 月に貯蔵容器の蓋を開封し、内部の状態を点検した際の記録の存在が平成 29 年 7 月 14 日に確認された。この点検では、Pu が収納された計 64 個の貯蔵容器について内部の収納物の状況が確認されており、異常の認められたものについては再梱包されている(表 6.4.2 参照)。当該貯蔵容器の記録には、ポリ容器の底部が破損していること、樹脂製の袋が膨張していることの記載があるほか、梱包を更新した後に異常なしとの

記載がある（添付 6.4.2 (3) 参照）。

上記の明らかになった事項に関する補足事項及び状況として考えられることを以下に述べる。

①の同位体組成に関しては、Pu 中に生成する Am-241 は使用過程で除去されているものと、除去されていないものが混在していると推測される。表 6.4.1 中の  $\alpha$  崩壊の実効崩壊定数の比較は、Am-241 を除去していないと仮定した場合の値である。5 種類の同位体組成の Pu の混在比について、計量管理帳簿に記載の供給当事国別重量明細と、全 Pu 重量に対する核分裂性 Pu の重量比の数値から、貯蔵容器内の平均同位体組成を推定した（添付 6.4.4 参照）。また、昭和 58 年時点で Pu 全量から Am-241 を除去したとの仮定の下で、Am 除去の有無による  $\alpha$  崩壊数の相違を評価した。樹脂製の袋破裂に至った諸要因の影響を評価する際には、この平均同位体組成の推定値を用いるとともに、Am 除去の有無についても考慮することとした。

④～⑥に関して、移動先のグローブボックスには、酸化還元炉と呼ばれる加熱炉が設置されていたことから、樹脂固化物を酸化加熱処理することを意図して移動したと考えられる。当時の燃料研究棟在籍者による昭和 60 年及び平成元年に刊行された技術論文には、有機物中の Pu を加熱処理して回収する方法が記載されていることから、酸化加熱処理した核燃料物質をスクラップとして貯蔵し、将来再利用することを想定していたと考えられる。X 線回折測定済試料のうち、炭化物と窒化物については化学的に活性であるとの認識があり、炭化物については試料ホルダーから樹脂固化物を取り外し（打ち抜き）、酸化加熱処理が行われていたことが昭和 60 年の作業月報に記載されている。この処理過程でエポキシ樹脂も分解・除去され、U と Pu の酸化物粉末となる。しかし、当該貯蔵容器内の核燃料物質が上記グローブボックス内に置かれている平成元年から平成 3 年の間に、樹脂固化物を酸化加熱処理したとの記載は作業月報に見られなかったことから、樹脂固化物のまま貯蔵容器に収納された可能性が高い。酸化物粉末の樹脂固化物についても、化学的に安定との認識から、加熱によるエポキシ樹脂の除去を行わないまま貯蔵容器に収納されたと考えられる。

⑦に関して、当時においても金属容器を使用するのが燃料研究棟において業務に従事した職員の一般的な考え方であった。

⑨に関して、具体的な措置作業の記録は見つかっていないが、貯蔵容器内の収納物を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に詰め替えた後、再度バッグアウト操作により樹脂製の袋に封入して貯蔵容器に収納したと推測される。これ以降の当該貯蔵容器内部の状態に関する点検記録類は見つからなかった。

当該貯蔵容器を 108 号室のフード（H-1）から別室のグローブボックス（123-D）に搬入した後、内容物を取り出して各部の外観を観察（図 6.4.1 及び添付 6.4.5 参照）するとともに、試料の分析を行った（添付 6.4.6 参照）。その結果明らかになったことの要点は以下のとおりである。

- ⑩ 貯蔵容器と蓋の内面には樹脂製の袋を損傷するような鋭利な突起物はなかったが、蓋の O-リングには亀裂が確認された。
- ⑪ 一重目（内側）の樹脂製の袋の方が二重目（外側）より上下方向に長く、一重目の袋が二重目の頂部を突き破るように破損していた。
- ⑫ ポリ容器は変色と脆化があるものの、破損していなかった。
- ⑬ ポリ容器の高さの 2/3 程度まで樹脂固化物（ほぼ完全な形状のものと割れたものが混在）が収納されていた。アルミニウム製の X 線回折測定用ホルダーは入っておらず、全てホルダーから打ち抜いた樹脂固化物であった。

- ⑭ ポリ容器底部付近には細かいかけらと粉末があった。
- ⑮ 樹脂固化物（割れたかけらを含む。）の重量は■■■■ g で、ふるい分けした粉末成分は■■■■ g であった。
- ⑯ 粉末成分は数十 μm 以上の粗大な粒子が多く、化学形は二酸化物のほかに炭化物が含まれ、微細な樹脂のかけらも含まれる。U と Pu の混合化合物のほか、ほとんど Pu のみからなる粒子も局所的にはある。
- ⑰ 比較的形状を保持しているものを選別した樹脂固化物の線量当量率は約 5 μSv/h から 220 μSv/h まで幅広く分布しており、飛散物も含めて、U と Pu の混合化合物のほか、ほぼ U のみ及びほぼ Pu のみからなる化合物があることを確認した。
- ⑱ 2 つの樹脂固化物について、内部の粉末の平均粒子径を体積基準により評価した結果、約 22 μm と約 36 μm の値を得た。
- ⑲ 上記以外に、フード前及びフード内の養生シート上から回収した飛散物重量は合わせて■■■■ g であった。分析の結果、飛散物は樹脂固化物のかけらであることを確認した。

上記の貯蔵容器内収納物の観察・分析結果から考えられることは以下のとおりである。

⑩～⑫の結果から、内圧上昇した樹脂製の袋を破損させるような外的物理要因（突起物、異物混入、ポリ容器破片等）はなく、蓋開封時の急激な上方への膨張によって袋の破裂に至ったと考えることができる。また、O-リングに亀裂が生じた時期は蓋開封時か貯蔵期間中か断定できないが、後者の場合には貯蔵中の袋の内圧推移に影響する。

⑮と⑯の結果から、ポリ容器内にあった粉末成分は樹脂固化物断面から崩れ落ちた微細な成分と考えられ、当該貯蔵容器には樹脂固化物を加熱処理して得た酸化粉末は収納されていなかった可能性が高い。

樹脂製の袋の内圧上昇と破裂に至った事象進展を検討するために、貯蔵容器内部の梱包更新時（平成 8 年 7 月）の状態の想定図を、上記観察結果と貯蔵容器の製作図面及びポリ容器の採寸により作成した（図 6.4.2 参照）。図中には樹脂製の袋の採寸と溶着部位の観察に基づき、平らな状態にした際の寸法も示した。貯蔵容器の材質はステンレス鋼（SUS304）製（以下「SUS304 鋼製」という。）であり、蓋には取手が付いている。貯蔵容器本体と蓋の間は O-リングで気密が保たれており、製作時に 3 気圧の加圧下で気密検査が行われている。これは、貯蔵容器内部の加圧を想定したものではなく、臨界管理上の観点から貯蔵容器内への水の浸入を防ぐための設計仕様である。貯蔵容器本体への蓋の固定は 6 本のボルト（M8、SUS304 鋼製）で締め付ける構造である。

ポリ容器の内容積約 1.5 L に対して貯蔵容器の内容積は約 3.9 L であるが、入口径 120 mm に対してポリ容器外径は 94 mm であることから、樹脂製の袋に二重に封入したポリ容器がかろうじて入れられる状態である。ポリ容器の蓋は本体に被せるのみの形式であり、紙テープが巻かれてあったが密閉性は低く、急激な圧力変化が起こらない限りはポリ容器内部と一重目の樹脂製の袋内部は圧力平衡になると考えて良い。一重目の袋が上下方向に長かったことから、ポリ容器上方で折りたたまれていたと推測される。一重目の袋で包んだポリ容器を収納した二重目の袋は、上下方向の余裕は少なかった。

なお、平成 3 年 10 月の貯蔵開始時の収納状態については、使用したポリ容器が梱包更新時と同じ寸法のものかどうか、二重の袋の溶着部位や寸法等が梱包更新時と同等であったかどうかを示す情報は得られなかった。

核物質防護上の観点から■■の箇所は非開示としています。

## (2) 破裂時の状況調査結果

フード内で当該貯蔵容器の蓋を開封する作業中に内部の樹脂製の袋が破裂に至った事象に関して、作業員への状況の聞き取り調査（添付 6.4.7 参照）を実施するとともに、108 号室の現場の写真（図 6.4.3 及び図 6.4.4 参照）を基に、破裂時の状況を以下のとおり整理した。

破裂事象に関して、聞き取り調査内容の重要な点は以下のとおりである。

- ① 貯蔵容器の 6 本のボルトを順に緩めていく過程で蓋が浮き上がってきていた。
- ② ボルトを 4 本外した後、残り 2 本のボルトを緩める際に「シュ」と内圧の抜ける音を聞いており、その際に容器と蓋の隙間のスミヤを採取して汚染がないことを確認した。
- ③ 片手で蓋の取手を持ちながら、残り 2 本のボルトを指で交互に緩めていき、2 本のボルトのネジ山が容器から外れた時点で破裂音とともに蓋が浮き上がった。
- ④ 作業員が聞いた破裂音は「パン」と 1 回である。
- ⑤ 破裂後に養生シート上の飛散物を見た際に「何かで固めてあるものと思った。」

①及び③から、貯蔵期間中に樹脂製の袋の内圧が上昇していたことは明らかである。また、②で汚染のなかったことから、破裂に至るまでに少なくとも一重目か二重目のどちらかの樹脂製の袋は破損していなかったことになる。内圧の抜ける音は、貯蔵容器内面と袋の間に圧縮されていた空気が放出されたものと推測できる。貯蔵容器の蓋の観察により O-リングに亀裂発生が認められたが、内圧の抜ける音が聞こえたことから、密閉機能を全て失っていたわけではない。④から、一重目と二重目の袋が同時に破裂したか、あるいは一方は貯蔵期間中に破損していたことになる。

破裂後に作業員が撮影した貯蔵容器の写真（図 6.4.3 参照）と内容物の観察結果からは、以下のことが言える。

- ・貯蔵容器上端から樹脂製の袋がはみ出ており、破裂の開口部は袋の側面に沿って縦に裂けるように破損している。上端からはみ出ているのは一重目の袋であり、側面の溶着部に沿って縦に長く開口していた。
- ・二重目の袋は写真に写っていないが、貯蔵容器上端より低い位置で袋の頂部が開口し、そこから一重目の袋が上方にはみ出している。
- ・一重目、二重目ともに袋の上端には溶着部がない。
- ・破裂に伴う開口部は作業員側を向いており、作業員が左腹部に風圧を感じたとの証言と整合している。
- ・袋の内側に見える大きな円形状のものは、ポリ容器の蓋であり、作業員の証言では上下が逆さまになった状態で、写真に見えているのは蓋の内面側である（観察により確認済み）。
- ・蓋の右側の袋内部に黒い物体が見えており、ポリ容器内の核燃料物質が破裂時に飛び出してきた可能性があるが、この写真の撮影以後、蓋の固定作業の際に内部に押し戻されたと推測される。

破裂時に貯蔵容器内から飛散した粒子（飛散物）を回収する作業の際に、フード手前の床養生シートを撮影した写真（図 6.4.4 参照）において、白枠部分を拡大したのが下段の 2 枚の写真である。黒い塊状のものに関して作業員は「何かで固めてあるものと思った」と証言している。これらの飛散物は割れや欠けにより元の形状を保っていないが、観察及び分析により樹脂固化物の一部であることを確認した。フード開口部の空気引き込みの面速が 0.5 m/s 以上であることから、内圧上昇していた樹脂製の袋の破裂に伴う吐き出しの気流に乗り、面速を上回る初速で貯蔵容器内から飛散したことになる。



貯蔵容器から取り出した収納物の全体像  
(H29. 8. 2撮影)



ポリ容器の蓋を外した状態  
(H29. 8. 3撮影)

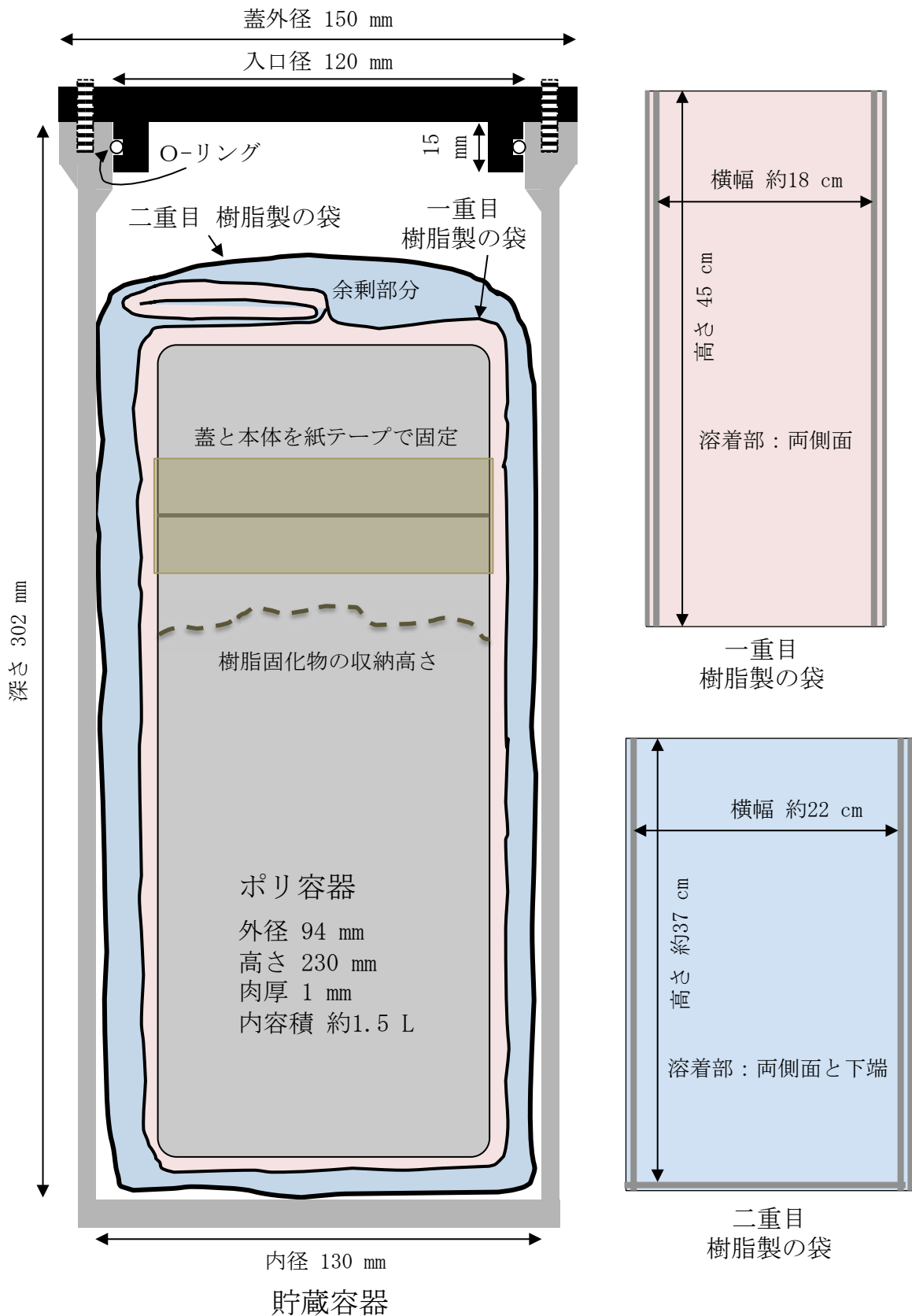


ポリ容器から回収する前の  
樹脂固化物の収納状態  
(H29. 8. 2撮影)



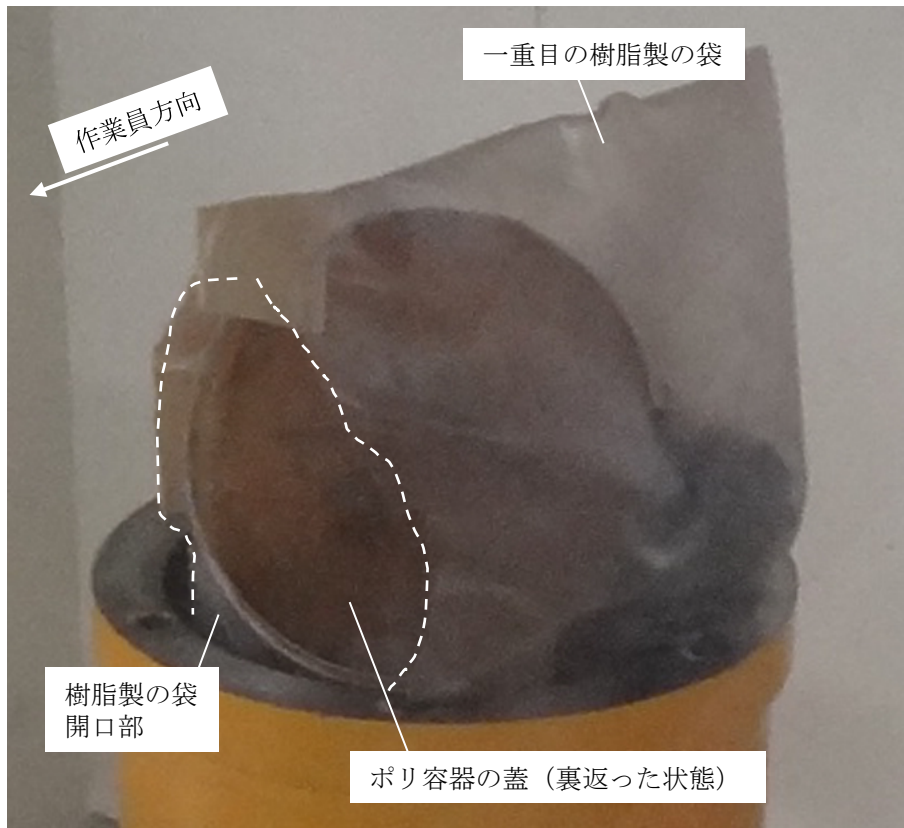
ポリ容器底部付近のかけら成分  
(H29. 8. 4撮影)

図 6. 4. 1 貯蔵容器内容物を取り出した際の外観写真



全高320×胴外径140 mm、胴体肉厚5 mm、底肉厚8 mm、蓋肉厚10 mm、内容積約3.9 L

図 6.4.2 核燃料物質の梱包更新時の収納状態想定図



樹脂製の袋の破裂後に作業員が撮影した写真を拡大

(H29.6.6 撮影)

図 6.4.3 樹脂製の袋の破裂後貯蔵容器上部状態

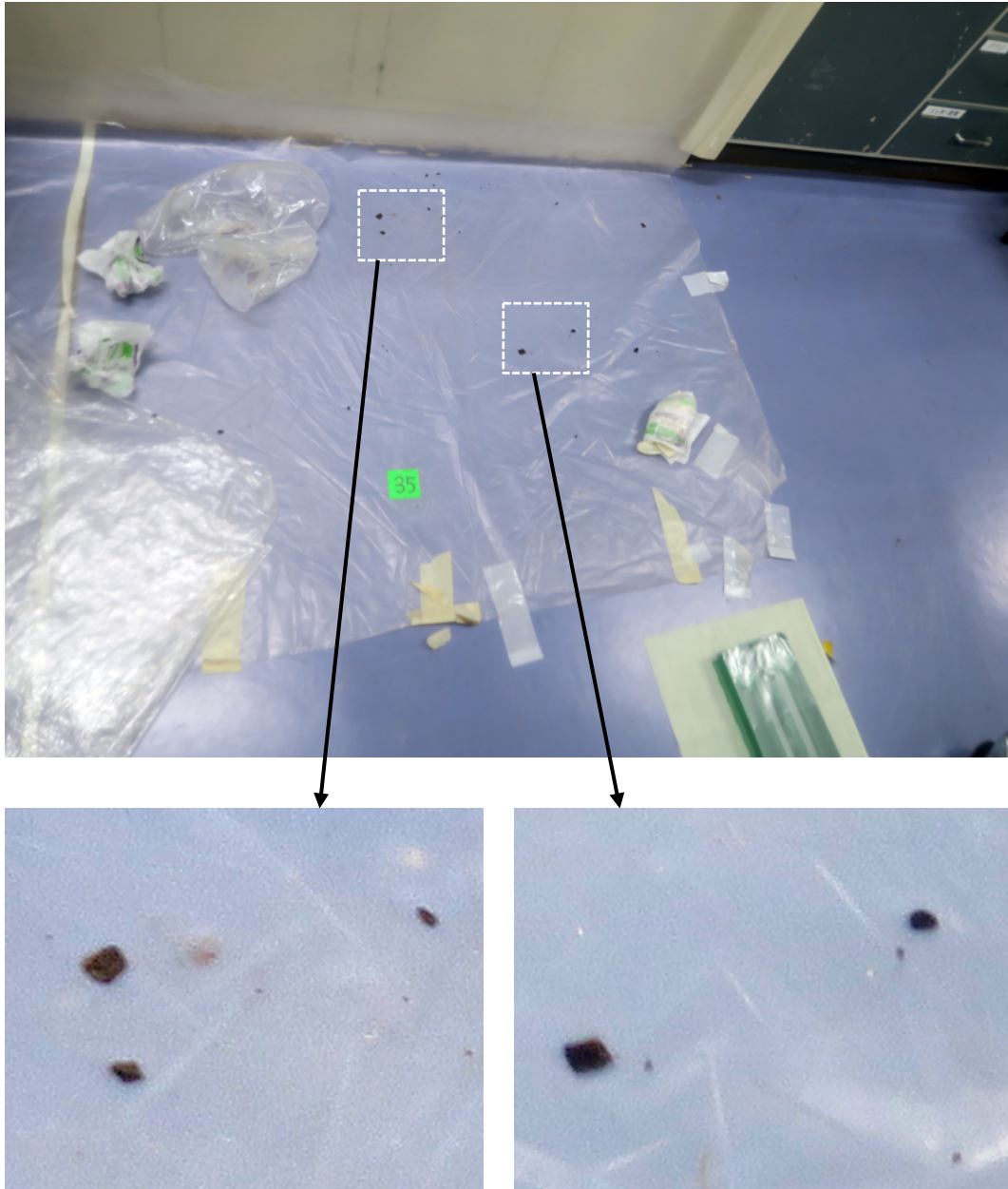


図 6.4.4 フード手前における床養生シート上の飛散物の外観



表 6.4.1 当該貯蔵容器内のプルトニウムの 5 種類の同位体組成

組成名称	A	B	C	D	E
受入年月	昭和 56 年 12 月	昭和 55 年 4 月	昭和 55 年 4 月	昭和 54 年 3 月	昭和 54 年 1 月
払出元	旧動燃東海	旧原研東海	旧原研東海	旧動燃東海	旧原研東海
同位体組成データ (重量%)					
Pu-238	■	■	■	■	■
Pu-239	■	■	■	■	■
Pu-240	■	■	■	■	■
Pu-241	■	■	■	■	■
Pu-242	■	■	■	■	■
Am-241	■	■	■	■	■
組成の年月	昭和 55 年 2 月	昭和 48 年 6 月	昭和 46 年 12 月	昭和 49 年 4 月	昭和 49 年 12 月
年月	$\alpha$ 崩壊の実効崩壊定数* ( $s^{-1}$ )				
平成 29 年 6 月	$3.06 \times 10^{-12}$	$1.23 \times 10^{-12}$	$2.19 \times 10^{-12}$	$2.97 \times 10^{-12}$	$1.20 \times 10^{-12}$

\*Am の分離精製を行っていないと仮定した値

核物質防護上の観点から ■ の箇所は非開示としています。

表 6.4.2 平成 8 年 5 月から平成 9 年 2 月までに実施した貯蔵容器内の点検結果

項目	個数	備考
貯蔵容器点検総数	64	
異常なし	41	
異常あり	23	
異常ありの内訳	樹脂製の袋膨張及びポリ容器底部破損	1 更新 (交換)、当該貯蔵容器 (1010) 内容物「X 線回折済打抜試料」
	樹脂製の袋膨張	1 更新 (交換)、貯蔵容器番号 : 1051 内容物 : $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$
	樹脂製の袋や容器の変色	21 更新 (交換)

## 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。

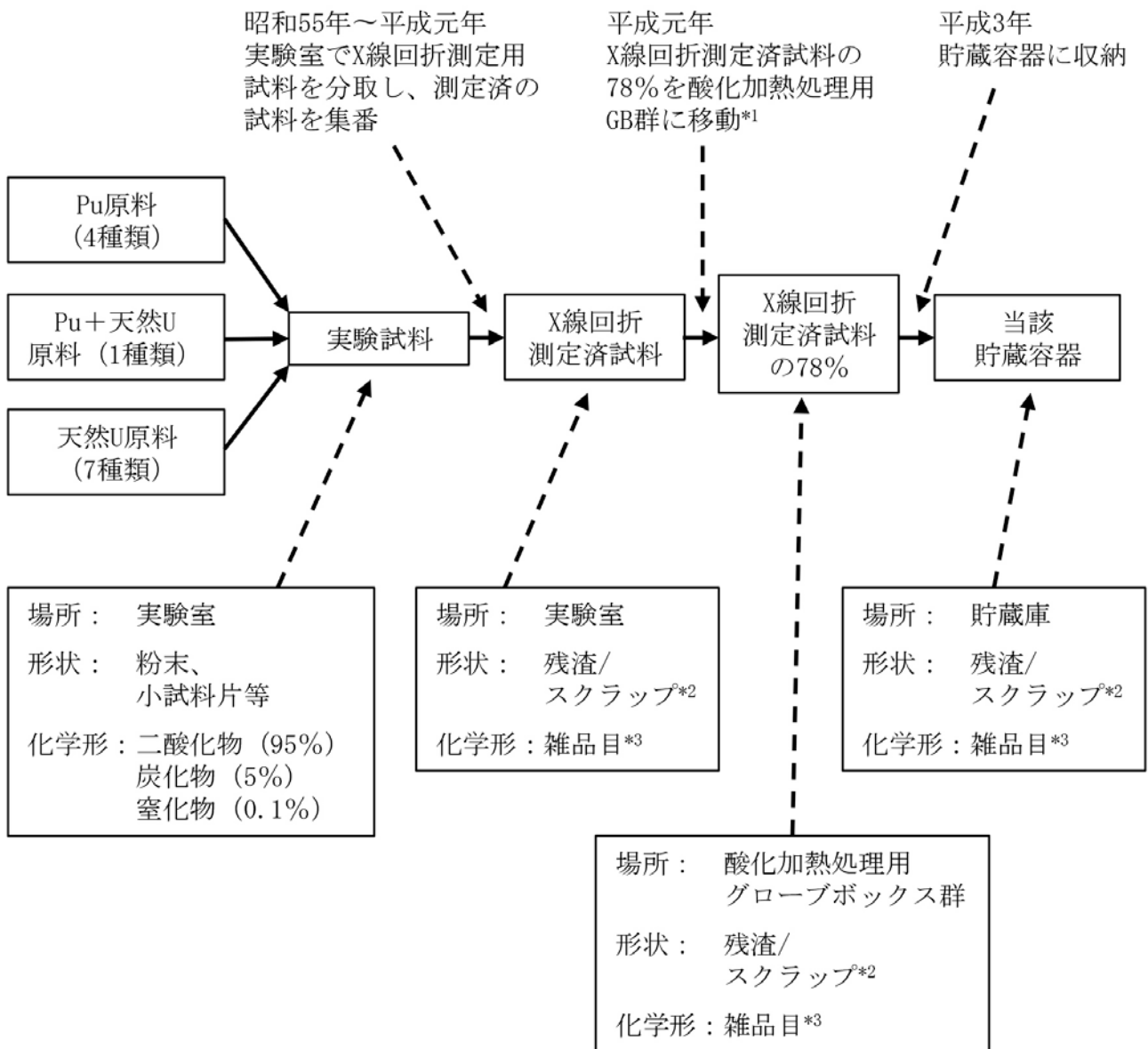
## 調査結果

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約 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。X 線回折測定済試料（樹脂固化物）については、昭和 60 年 9 月から 10 月にかけて U と Pu の混合炭化物約 100 個をホルダーから打ち抜いて加熱処理し、混合酸化物にしたとの記載がある。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。平成元年から貯蔵までの平成 3 年にかけて、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ていない。

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 参照）。文献[2]には、試料 1 個当たり核燃料物質の粉末を約 0.2 g 使用するとされている。エポキシ樹脂の具体的な使用量は記載されていないが、同様の方法で作製した場合に 1 g 前後となる。

文献[3]、[4]及び[5]から、貯蔵容器に収納するに当たって、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。

### (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 日付け）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。

### 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-memo 02-284、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)。

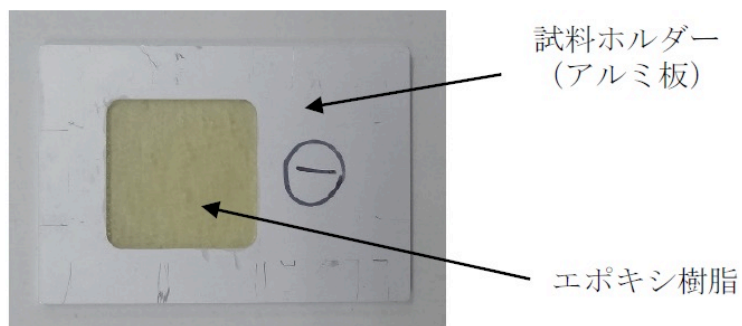
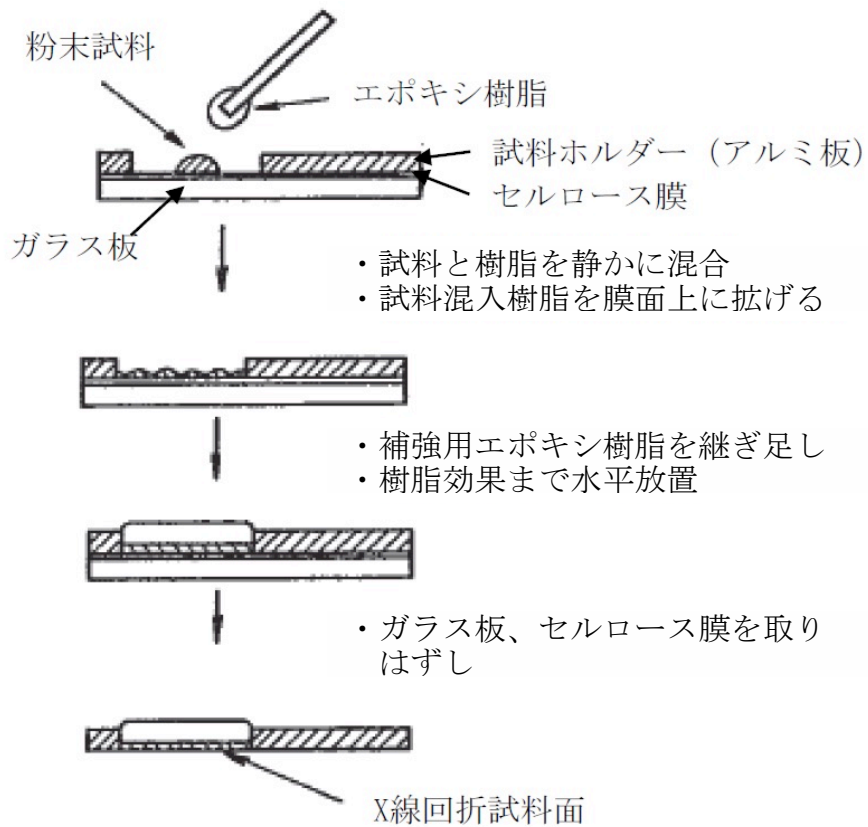


図 6. 4. 2-1 X 線回折測定用試料の作製手順と外観例  
(写真は樹脂のみ)

## 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・ <sup>235</sup> U 重量	■ g	Pu・ <sup>235</sup> 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線回折済打抜試料</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腫張</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線回折済打抜試料</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（梱包更新）したと考えられる際の記録

核物質防護上の観点から■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、電話問合せを実施し、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。(PuO<sub>2</sub>+UO<sub>2</sub>) の混合物についても、UO<sub>2</sub> が U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> になるように酸化処理を行った」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込め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か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。

## 当該貯蔵容器内の 5 種類のプルトニウムの混在比と平均同位体組成の推定

当該貯蔵容器内の 5 種類の同位体組成の Pu について、計量管理帳簿（在庫リスト）に記載の情報から混在比（重量比）を推定し、それを元に平均の同位体組成を算出した。また、Pu 中に生成する Am-241 を除去して Pu を精製していた時期があることから、当該貯蔵容器内の Pu について精製時期を仮定し、Am-241 除去による  $\alpha$  崩壊量への影響を計算により評価した。

### (1) 5 種類の Pu の混在比の推定

表 6. 4. 1 に示した同位体組成 A～E の 5 種類の Pu に関して、計量管理上の供給当事国は組成 C のみがフランスで、残りの 4 種類はイギリスである。在庫リストには、同一バッチ内であっても供給当事国ごとに Pu 元素重量とそのうちの核分裂性 Pu (Pu-239 と Pu-241 の和) の元素重量が記載されている（表 6. 4. 4-1 参照）。したがって、当該貯蔵容器内の Pu のうち、組成 C の Pu 重量は一義的に定まる。一方、残りの 4 種類 (A, B, D, E) について表 6. 4. 1 の同位体組成を比べると、A と D、B と E はそれぞれ完全一致ではないものの、ほぼ同様と見なすことができる。そこで、4 種類を A と B の 2 種類で代表し、それぞれの [核分裂性 Pu]/[全 Pu] 比を用い、A と B を混合した際に表 6. 4. 4-1 中の比 (■) となるように重量比を算出した。その結果、貯蔵容器内の 5 種類の Pu の近似的な混在比として、全 Pu 量に占める組成 A、B、C の内訳を以下のとおり推定した。

$$A/B/C = \text{■} / \text{■} / \text{■} \quad (\text{g})$$

### (2) 平均同位体組成

上記 (1) で算出した同位体組成 A～C の Pu 混在状態に対して、ORIGEN 2 コードを用いた崩壊計算により、貯蔵容器内の Pu 全体の平均同位体組成を求めた。貯蔵開始時（平成 3 年 10 月）、梱包更新時（平成 8 年 7 月）、蓋開封時（平成 29 年 6 月）における平均同位体組成と実効崩壊定数の計算値を表 6. 4. 4-2 に示す。時間の経過とともに Pu-241 は減少し、それに伴い Am-241 は増加する。表 6. 4. 1 に示した組成 A の実効崩壊定数に対して、平均同位体組成の実効崩壊定数は平成 29 年時点で約 77% に相当する。また、He 生成量 (=  $\alpha$  崩壊数) の比は、平成 3 年～平成 8 年で組成 A の 80. 5%、平成 8 年～平成 29 年で 78. 2% である。

### (3) Am-241 除去による $\alpha$ 崩壊数への影響

添付 6. 4. 2 (2) により、Pu 中に生成する Am の分離・除去を行っていたことが技術レポートに記載されているが、当該貯蔵容器内の Pu に対して、具体的にどの時点でどのくらいの割合で除去されていたかは記録類が見つかっていないため明らかでない。当該貯蔵容器内の核燃料物質は平成元年に親バッチから分割（リバッチング）され、以後貯蔵容器に収納される平成 3 年までに試料の出入りはない。昭和 58 年（1983 年）から平成元年（1989 年）の間に親バッチへ加えられた核燃料物質の履歴を調べた結果、Pu 全体の 76% に相当する量は昭和 58 年に加えられていることが分かった。このことと、1980 年代後半以降は Am の除去をやめたとの記載が技術レポートにあることから、当該貯蔵容器内の Pu は昭和 58 年に Am 全量が除去されたとの仮定の下で ORIGEN 2 コードによる崩壊計算を行い、Am 除去の有無による全  $\alpha$  崩壊数の違いを評価した。貯蔵開始時から梱包更新時までと、梱包更新時から蓋開封時までについて、貯蔵容器内の核燃料物質の全  $\alpha$  崩壊数の計算結果を表 6. 4. 4-3 に示す。Am を除去した場合の全  $\alpha$  崩壊数は、除去しない場合に対してそれぞれ 83. 5%、85. 4% であり、昭和 58 年に Am を除去したとしてもその後再び Am が生成し

続けるので顕著な違いは認められなかった。

表 6. 4. 4-1 計量管理帳簿（在庫リスト）に記載の供給当事国別 Pu 元素重量

供給当事国 (組成名称)	全 Pu 元素重量 (g)	そのうち核分裂性 Pu 元素重量 (g)	核分裂性 Pu/全 Pu
イギリス (A, B, D, E)	■	■	■
フランス (C)	■	■	■
計	■	■	■

表 6. 4. 4-2 混在状態の平均の Pu 同位体組成計算値\*1 (重量%)

同位体	平成 3 年 10 月 (貯蔵開始時)	平成 8 年 7 月 (梱包更新時)	平成 29 年 6 月 (開封時)
Pu-238	■	■	■
Pu-239	■	■	■
Pu-240	■	■	■
Pu-241	■	■	■
Pu-242	■	■	■
Am-241	■	■	■
実効崩壊定数 (s <sup>-1</sup> )	2. 00 × 10 <sup>-12</sup>	2. 11 × 10 <sup>-12</sup>	2. 35 × 10 <sup>-12</sup>

\*1 Pu と Am の合計で 100%に規格化

表 6. 4. 4-3 Am 除去の有無による貯蔵容器内核燃料物質全量の α 崩壊数の比較

	平成 3 年 10 月～平成 8 年 7 月 (貯蔵開始から梱包更新まで)	平成 8 年 7 月～平成 29 年 6 月 (梱包更新から開封まで)
Am 除去なし	■ 個	■ 個
Am 除去あり*1	■ 個	■ 個
除去あり/除去なしの比	0. 835	0. 854

\*1 Pu 全量に対して昭和 58 年 6 月に Am 除去を行ったと仮定

核物質防護上の観点から ■ を非開示としています。

## 当該貯蔵容器内容物及び飛散物の観察結果

当該貯蔵容器の蓋を固定した後に別室のグローブボックス内に搬入し、内容物（貯蔵容器内面、樹脂製の袋、ポリ容器、ポリ容器内の核燃料物質）の状態を観察した。また、樹脂製の袋の破裂時に貯蔵容器内から飛散したと思われるかけら状の粒子（飛散物）をフード手前の養生シート上から3個回収した。回収した飛散物と、フード手前及びフード内の養生シートを同じグローブボックス内に搬入して外観を観察した。作業の履歴と観察項目及び結果を以下に示す。

### 1. 作業履歴

- 7月 4日：108号室フード（H-1）前の養生シートの上から、かけら状の飛散物3個を容器に回収
- 7月 6日：回収した飛散物とフード手前養生シートを別室のグローブボックス（123-D）に搬入。フード（H-1）内の当該貯蔵容器の蓋を固定
- 7月20日：フード（H-1）から当該貯蔵容器を別室のグローブボックス（123-D）内に搬入し、蓋を開けて内部の外観を撮影。搬入済のかけら状の飛散物3個の外観を撮影
- 7月27日：フード（H-1）内の養生シートをグローブボックス（123-D）に搬入
- 8月 1日：容器に回収したかけら状の飛散物3個の観察。養生シート上に残っていた飛散物の回収・集約と観察
- 8月 2日：貯蔵容器内容物の取り出し、分別、観察
- 8月 3日：分別した内容物の観察を継続。フード内養生シート上から飛散物回収、外観観察
- 8月 4日：分別した内容物の観察を継続、片付け（整理して金属容器に収納）
- 8月 9日：分別した内容物の追加観察、片付け

### 2. 観察項目・作業内容

#### (1) 貯蔵容器内容物の分別手順

貯蔵容器の蓋開封、ポリ容器（内容器）の蓋回収  
 貯蔵容器から内容物を樹脂製の袋ごと取り出し  
 二重目（外側）の袋の取り外し（ハサミで裁断）  
 一重目（内側）の袋内からポリ容器取り出し  
 ポリ容器内の樹脂固化物を別の容器に移し替え  
 ポリ容器底部付近の粉末と樹脂固化物破片のふるい分け

#### (2) 観察内容

各部外観撮影  
 樹脂製の袋の寸法、厚さ、溶着箇所、破損箇所の観察  
 ポリ容器の状態  
 樹脂固化物（飛散物含む。）の寸法、重量、線量当量率  
 分別した粉末の重量、表面線量当量率

### 3. 観察結果

#### (1) 貯蔵容器内面の状態（図 6. 4. 5-1 参照）

貯蔵容器の蓋内面及び本体内面ともに、樹脂製の袋を損傷するような鋭利な突起物はなかった。また、貯蔵容器内に異物（ボルト、工具等）の混入はなかった。蓋の O-リングには周方向に沿って長い亀裂が確認された。

## (2) 樹脂製の袋の状態（図 6.4.5-2 参照）

貯蔵容器から取り出した内容物の全体像から、二重目の袋の頂部が開口し、そこから一重目の袋が上方に長くはみ出ている状態であった。

一重目（内側）の袋の観察結果は以下のとおり。

- ・ 袋の大きさは、平らにした状態で上下約 45 cm、横幅約 18 cm
- ・ 溶着部は両側面のみで、溶着部に沿って紙テープが貼付してある。
- ・ 片側の側面の溶着部に沿って約 40 cm 開口している。
- ・ 開口部付近の袋の厚さは 0.3 mm で、他の部分と差がない。
- ・ ポリ容器の上端に相当する付近で変色が見られる（破裂時の微粉末付着によると考えられる。）。

二重目（外側）の袋の観察結果は以下のとおり。

- ・ 袋の大きさは、平らにした状態で上下約 37 cm、横幅約 22 cm
- ・ 溶着部は両側面と底部
- ・ 頂部で裂けたように開口しており、開口部の幅は約 10 cm
- ・ 開口部付近の袋の厚さは 0.22～0.28 mm であり、他の部分より薄くなっている。
- ・ 頂部及び底部付近で若干の変色が認められる。

## (3) ポリ容器（図 6.4.5-3 参照）

- ・ 外観上は、特に底部付近の変色が著しい。
- ・ 破損は認められなかったが、胴体部分を掴んだ際の感触から脆化が認められる。
- ・ 蓋の上面にはマジックペンで「X線打抜」と記載されている。
- ・ 蓋と容器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している。
- ・ 蓋、本体ともに内面には細かい粉末が付着している。

## (4) ポリ容器内容物（図 6.4.5-4 参照）

外観上の観察結果は以下のとおり。

- ・ ポリ容器高さの 2/3 程度まで X 線回折測定済試料（樹脂固化物）が収納されており、それ以外の異物や内容物、アルミニウム製試料ホルダーはなかった。
- ・ 樹脂固化物はほぼ完全な形状のものと割れたかけら状のものが混在している。
- ・ 樹脂固化物の形状は比較的平坦なものと反り返ったものがある。
- ・ 外観上の色は褐色から黒色まで様々なものがある。
- ・ ポリ容器底部付近には、細かいかけらと粉末が混在しており、これを目開き 300 μm のふるいを用いて粉末成分を分別した。

重量と線量当量率に関する観察結果は以下のとおり。

- ・ ポリ容器内の樹脂固化物（かけらを含む。）は ■ g、粉末成分は ■ g である。
- ・ ほぼ完全な形状の樹脂固化物 10 個について、それぞれグローブ越しに電離箱式サーベイメータで線量当量率を測定した結果、約 5～120 μSv/h まで幅広く分布している。

核物質防護上の観点から ■ の箇所は非開示としています。

- ・欠けのあるものも含めた樹脂固化物 51 個について、同様に線量当量率を測定（距離約 10 cm）した結果、最大で 160  $\mu\text{Sv/h}$ 、平均で 30  $\mu\text{Sv/h}$  である。
- ・上記 51 個の樹脂固化物の重量は、1 個当たり最小で ■■■ g、最大で ■■■ g、合計 ■■■ g である。
- ・上記 51 個の樹脂固化物をそれぞれ撮影した写真から寸法を読み取り、51 個分の体積を評価した結果は合計で ■■■  $\text{cm}^3$  であり、上記の合計重量から平均の密度を ■■■  $\text{g/cm}^3$  と算出した。
- ・粉末成分の線量当量率をグローブ越しに測定した結果、約 180  $\mu\text{Sv/h}$  である。
- ・粉末成分をふるい分けした際にふるい上に残ったかけら成分の重量は ■■■ g で、線量当量率は 0.55  $\text{mSv/h}$  である。

#### (5) 飛散物（図 6.4.5-5 参照）

飛散物の外観から、X 線回折測定済試料（樹脂固化物）の割れたかけらと推測される。養生シート上から集約したものの中には、貯蔵容器の塗装片等の細かい混入物も見られた。フード前の養生シート上から回収した飛散物の総重量は ■■■ g、フード内の養生シート上から回収した飛散物の総重量は ■■■ g である。

#### 4. 観察結果から分かったこと

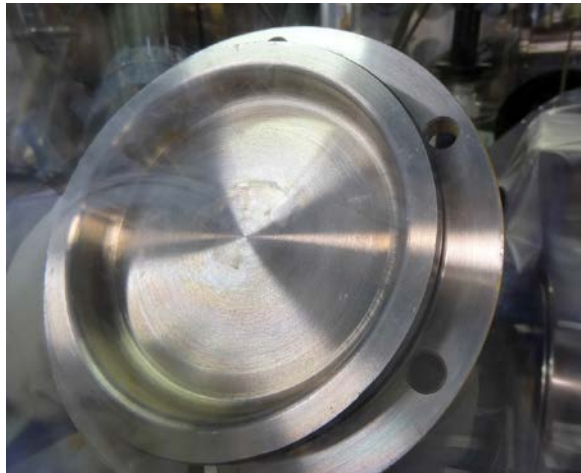
ポリ容器内の収納物の大部分はエポキシ樹脂で固化された X 線回折測定済試料であり、粉末成分は少量であった。観察を行う以前には、Pu を含有した樹脂固化物を加熱処理により酸化物粉末にして貯蔵容器に収納した可能性も想定されたが、観察結果からは加熱処理した粉末は収納されていなかった可能性が高い。

エポキシ樹脂の密度は約 1.2  $\text{g/cm}^3$  であり、これに密度 11  $\text{g/cm}^3$  程度の核燃料物質の粉末を混合した際には樹脂固化物の密度は 1.2  $\text{g/cm}^3$  よりも大きくなる。これに対し、貯蔵容器内から取り出した樹脂固化物の平均密度は ■■■  $\text{g/cm}^3$  と低いことから、 $\alpha$  線照射により樹脂が分解・ガス化して重量が減少したことを示している。

一重目の樹脂製の袋の寸法は、内部のポリ容器に対して高さ方向に余裕があるのに対し、二重目の袋の寸法は、内部の収納物に対して高さ方向にほとんど余裕のない状態であった。

貯蔵容器蓋の O-リングには長い亀裂が確認されたが、貯蔵期間中に貯蔵容器内圧が高くなったことで変形の影響により生じたものか、経年劣化の影響で蓋開封作業時に生じたものかは断定できない。

核物質防護上の観点から ■■■ の箇所は非開示としています。



蓋の内面 (H29. 7. 20撮影)



蓋のO-リングの状態 (H29. 7. 20撮影)

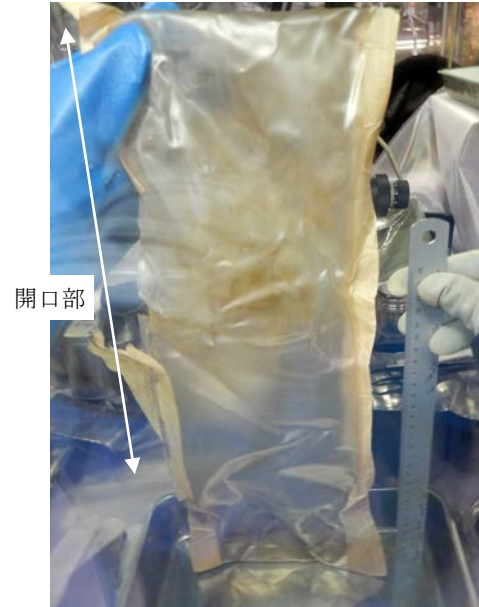


貯蔵容器本体の内面 (H29. 7. 20撮影)

図6. 4. 5-1 貯蔵容器内面の外観写真



貯蔵容器から取り出した収納物の全体像 (H29. 8. 2撮影)



一重目 (内側) の袋の全体像 (H29. 8. 3撮影)



二重目 (外側) の袋の全体像 (H29. 8. 2撮影)



二重目 (外側) の袋頂部の開口部分 (H29. 8. 2撮影)

図6. 4. 5-2 破損した樹脂製の袋の外観写真

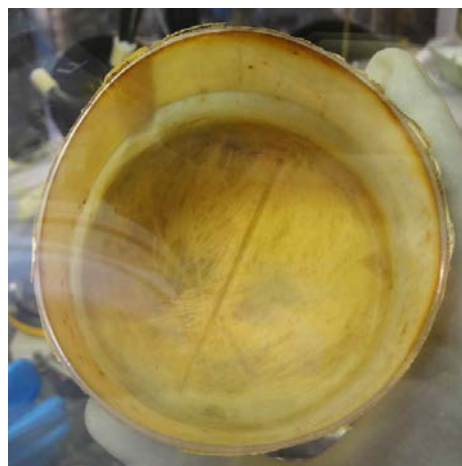




底面側外観 (H29. 8. 3撮影)



蓋を被せた状態 (H29. 8. 3撮影)



蓋の内面の状態 (H29. 8. 3撮影)



蓋を外した状態 (H29. 8. 3撮影)

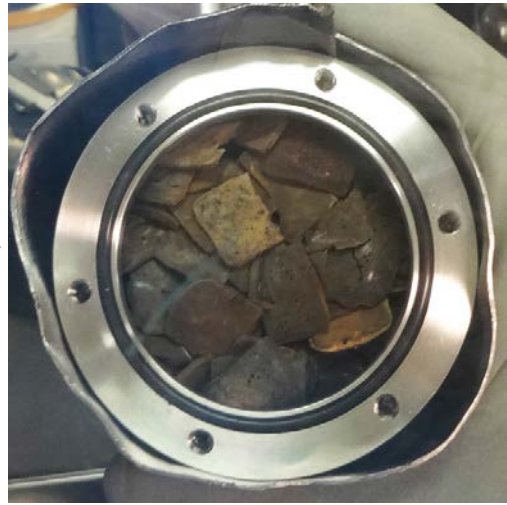


内容物回収後の容器内面の状態  
(H29. 8. 3撮影)

図6. 4. 5-3 ポリ容器 (内容器) の外観写真



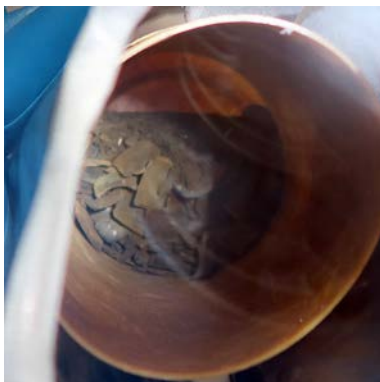
ポリ容器から回収する前の収納状態  
(H29. 8. 2撮影)



別の金属容器へ収納した状態  
(H29. 8. 3撮影)



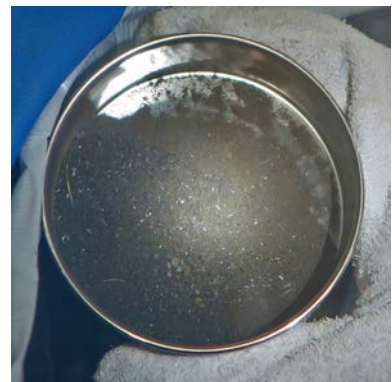
樹脂固化物の外観観察時の写真 (H29. 8. 3撮影)



ポリ容器底部の細かい  
かけらと粉末 (H29. 8. 2撮影)



ふるい分けした後の  
かけら成分 (H29. 8. 4撮影)



ふるい分けした後の  
粉末成分 (H29. 8. 2撮影)

図6. 4. 5-4 ポリ容器内容物の外観写真



↓ フード前養生シート上の飛散物 (H29. 7. 4撮影)



フード前養生シート上から回収した  
飛散物の外観 (H29. 7. 20撮影)



フード前養生シート上から  
回収・集約した飛散物  
(H29. 8. 2撮影)



フード内養生シート上から回収・集約した飛散物  
(H29. 8. 3撮影)

図6. 4. 5-5 フード前及びフード内養生シート上から回収した  
飛散物の外観写真

## 当該貯蔵容器内容物及び飛散物の分析結果

当該貯蔵容器内から回収した核燃料物質（樹脂固化物及び粉末成分）とフード前の養生シート上から回収した飛散物の分析を行い、エポキシ樹脂の $\alpha$ 線分解によるガス発生量評価に必要な情報を整理した。

### 1. 作業履歴

- 8月18日：SEM/EDS 観察用試料の選別、分取
- 8月21日：SEM/EDS 観察用試料を装置が設置された別室のグローブボックスへ搬入し、観察用に加工、粉末成分試料を観察・分析
- 8月22日：SEM/EDS による粉末成分試料の観察・分析
- 8月23日：SEM/EDS による樹脂固化物試料の予備観察
- 8月24日：SEM/EDS による樹脂固化物試料の観察・分析
- 8月25日：SEM/EDS による樹脂固化物試料及び飛散物試料の観察・分析
- 8月28日：SEM/EDS による樹脂固化物試料の高倍率観察
- 8月29日：SEM/EDS による樹脂固化物試料の観察・分析
- 8月30日：SEM/EDS 用の観察試料を元のグローブボックスへ搬入、容器に収納
- 9月 4日：X線回折測定用の粉末試料を装置の設置された別室のグローブボックスへ搬入し、X線回折測定
- 9月 5日：X線回折測定、測定後の試料を元のグローブボックスへ搬入、容器に収納

### 2. 分析対象試料

- ・ 貯蔵容器内から回収・分別した粉末成分（目開き 300  $\mu\text{m}$  のふるいを通したもの）
- ・ 貯蔵容器内から回収した樹脂固化物（X線回折測定済試料、線量当量率別に4個）
- ・ フード手前の養生シート上から回収した飛散物（樹脂固化物のかけらと推測されるもの2個）

### 3. 分析方法・項目

#### (1) SEM/EDS による表面観察・元素分析

走査電子顕微鏡と付属のエネルギー分散型 X 線元素分析装置（SEM/EDS）による観察と元素分析（主に U と Pu の比率）を行なった。金属製の試料台の上にカーボン製の両面テープを貼り付け、その上に粉末、樹脂固化物、飛散物をそれぞれ固定して観察試料とした。粉末成分については、全量をよく攪拌した上で少量を採取し、両面テープ上に付着させた。樹脂固化物については、線量当量率が高いもの、中くらいのもの、低いものをそれぞれ選択した上でニッパーによりかけら状に切断し、両面テープ上に固定して断面の観察を行なった。かけら状の飛散物についても同様に観察した。観察・分析上の着眼点は以下のとおりとした。

- ・ 分別した粉末成分の粒子径、形状、U と Pu の比率、U と Pu 以外の金属元素の有無
- ・ 樹脂固化物中の粉末粒子径、U と Pu の比率、線量当量率による相違、U と Pu 以外の金属元素の有無
- ・ 飛散物が貯蔵容器内の樹脂固化物由来であることの確認

#### (2) X 線回折測定による化学形の同定

ふるい分けした粉末成分から少量を採取し、乳鉢中で粉碎した後に Cu 管球を X 線源とした X 線回折測

定を行い、得られた回折ピークをデータベースと照合して含有する化合物の化学形を同定した。

#### 4. 分析結果

##### (1) 粉末成分

粉末成分の観察像を図 6. 4. 6-1 に示す。観察像 (a) と (b) の背景の黒色部分はカーボンテープである。粉末粒子の大きさは、1  $\mu\text{m}$  程度の微細なものからふるいの目開きである 300  $\mu\text{m}$  に近いものまで幅広く存在しているが、微細な成分は相対的に少なく、体積的には数十  $\mu\text{m}$  以上の成分が大部分を占めている。また、粗大な成分は角張った形状のものが多く見られる。写真 (c) は粗大な粒子の表面を拡大観察したものであり、背景の暗部はエポキシ樹脂で、明るい部分が粉末粒子である。

EDS による元素分析の X 線スペクトルの例を図 6. 4. 6-2 に示す。(a) は平均的な組成を評価するために視野全体の面分析を行った例であり、金属元素を U と Pu で規格化して簡易定量分析 ( $L\alpha$  線のピーク高さの比で評価) した結果、U/(U+Pu) 比 (U 含有率) は 0.74 であった。個々の粒子表面で約 60 点の点分析を行った結果でも、大部分は U 含有率が  $0.8 \pm 0.1$  の範囲内であった。一方、(b) は、局所的に見られた Pu 含有率の高い粒子の例で、Pu/(U+Pu) 比 (Pu 含有率) は 0.87 であった。U と Pu 以外の金属元素では、(c) に示す通り点分析で局所的に Ni が検出された。Ni の由来として、炭化物燃料への焼結助剤利用を目的とした Pu-Ni-C 系化合物の研究が行われていた経緯がある [1]。Pu-241 の娘核種である Am-241 に関しては、定量評価できるほどの有意な強度の Am のピークは検出されなかった。軽元素に関しては、酸素とともにいずれの X 線スペクトルにおいても比較的強度の高い炭素のピークが検出された。

粉末成分の X 線回折プロファイルを図 6. 4. 6-3 に示す。蛍石型構造の二酸化物 ( $\text{UO}_2$ 、 $\text{PuO}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$  等) に由来する 2 相の回折ピークのほかに、岩塩型構造の炭化物 ( $\text{UC}$ 、 $\text{PuC}$ 、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}$  等) と角度がよく一致する鋭い回折ピークが確認された。元素分析で検出された Ni については、可能性のある化学形は  $\text{PuNiC}_2$  であるが、これに由来する回折ピークはなかった。ほかには、粉末試料を充填した白金製ホルダーに由来する回折ピークと、同定できなかった回折ピークがある。

以上の観察像と元素分析結果から、分別した粉末は樹脂固化物の表面やかげらの断面から脱離した粉末粒子と樹脂の微細なかげらであると考えられ、貯蔵期間中に徐々に発生したか、あるいは X 線回折用ホルダーから樹脂固化物を打ち抜く作業の際に発生した細かい成分を回収し、樹脂固化物とともにポリ容器に収納したと推測される。また、粉末成分中に炭化物と考えられる化合物が含まれることから、樹脂固化物を酸化加熱処理した酸化物粉末は当該貯蔵容器に収納されていなかった可能性が高い。

##### (2) エポキシ樹脂固化物

線量当量率の高、中、低で選別した 3 個の樹脂固化物の断面の観察像を図 6. 4. 6-4 に示す。左側の全体像では、固化時の方法に起因して、粉末とエポキシ樹脂を混合した層と後から樹脂のみを充填した層が明確に分かれている。右側の拡大像からは、数  $\mu\text{m}$  の微細な成分から最大 50  $\mu\text{m}$  以上までの大きさの粉末粒子が樹脂中に分散していることが分かる。また、試料によって樹脂と粉末の混合比に個体差が見られ、粒子間の近接度合いが異なる。いずれの試料にも 50  $\mu\text{m}$  前後の気泡痕が見られ、樹脂の  $\alpha$  線分解で発生したガスが放出されずに蓄積されていた可能性が考えられるが、線量当量率の高低に関わらず気泡痕があることと、樹脂のみの層にもあることから、試料作製時に巻き込んだ空気 (又はアルゴン) が気泡として残ったまま固化された可能性もある。

図 6. 4. 6-4 に示した 3 個の試料と、後述の 1 個 (図 6. 4. 6-5) について、それぞれ 20 点前後の点分析によって Pu/(U+Pu) 比 (Pu 含有率) を評価し、線量当量率と比較した結果は以下のとおりである。

- ・ 線量当量率：高 (約 220  $\mu\text{Sv/h}$ )、Pu 含有率： $0.17 \pm 0.06$
- ・ 線量当量率：高 (約 153  $\mu\text{Sv/h}$ )、Pu 含有率： $0.77 \pm 0.17$

- ・線量当量率：中（約 56  $\mu\text{Sv/h}$ ）、Pu 含有率：0.15 $\pm$ 0.04
- ・線量当量率：低（約 14  $\mu\text{Sv/h}$ ）、Pu 含有率： $\sim$ 0

線量当量率が低いものはUのみの化合物と考えて良いが、中くらいのもの高いものとは、線量当量率とPu含有率の間に明確な比例関係は見られなかった。このことから、個々の樹脂固化物中の粉末量が大きく異なることや、Puの同位体組成（Am含有率）が異なる可能性が考えられる。

UとPu以外の金属元素では、線量当量率約 153  $\mu\text{Sv/h}$ の試料で希土類のSm（サマリウム）が検出された。EDSによるX線スペクトルを図 6.4.6-5 に示す。Smの由来として、酸化燃料に種々の希土類元素を添加した際の熱伝導率への影響を研究していた経緯がある[2]。

### (3) 飛散物

かけら状の飛散物2個について観察と元素分析を行った。観察像を図 6.4.6-6 に示すとおり、ポリ容器内の樹脂固化物と同様に粉末粒子が樹脂に分散した断面組織であり、飛散物は樹脂固化物が割れたかけらであることを確認した。

なお、元素分析の結果、飛散物中の粉末粒子は一方はほぼPuからなる化合物、他方はほぼUからなる化合物であった。

## 5. 樹脂固化物中の粉末粒子径の評価

エポキシ樹脂の $\alpha$ 線分解によるガス発生量の評価において、粉末粒子内部で発生した $\alpha$ 粒子のエネルギーは、粉末の外へ到達するまでに結晶内で減衰するため、粉末粒子径が重要な情報である。線量当量率の高い試料と中くらいの試料それぞれ1個について、観察画像上で個々の粒子径を読み取り整理した結果を図 6.4.6-7 に示す。粉末粒子内で発生する $\alpha$ 粒子の数は粒子重量（=体積）に比例することから、粒子径の単純な算術平均ではなく、粉末粒子の全体積に対する個々の粒子体積の累積分布を求め、累積度数が50%となる粒子径（ $D_{50}$ ）を平均の粒子径とした。 $D_{50}$ 値として図の(a)のグラフからは約 22  $\mu\text{m}$ 、(b)のグラフからは約 36  $\mu\text{m}$ を得た。

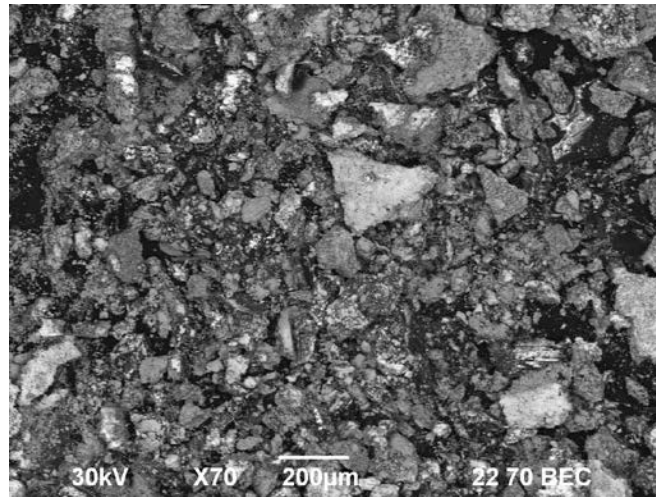
## 6. まとめ

SEM/EDSによる観察・元素分析とX線回折測定の結果から明らかになった点は以下のとおりである。

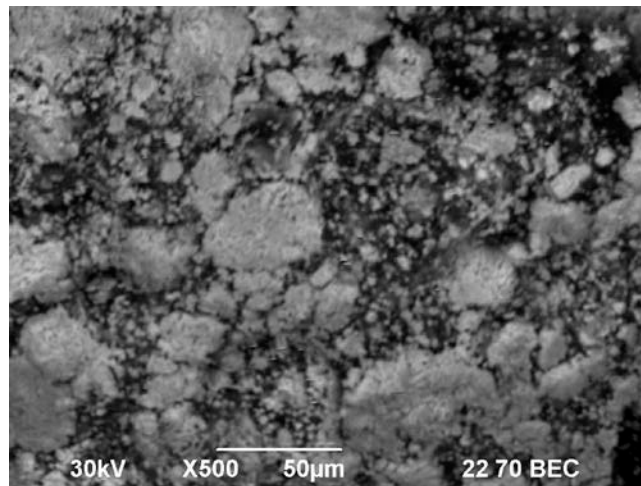
- ・粉末成分の分析結果から、平均的なUとPuの比率は計量管理帳簿に記載の重量比と概ね整合する。
- ・ポリ容器内の粉末成分は、粗大な成分が多いこと、樹脂も含んでいること、炭化物が検出されたことから、樹脂固化物を加熱処理して得た粉末ではなく、樹脂固化物断面から生じた微細な成分である可能性が高い。
- ・核燃料物質の化学形として、少なくとも二酸化物と炭化物が含まれる。化合物はUのみからなるもの、Puのみからなるもの、UとPuの混合化合物がある。
- ・個々の樹脂固化物中の粉末重量には大きな幅があることが示唆される。
- ・樹脂固化物中の粉末の平均粒子径として、2個の試料から約 22  $\mu\text{m}$ と約 36  $\mu\text{m}$ を得た。
- ・飛散物は、樹脂固化物が割れたかけらである。

### (参考文献)

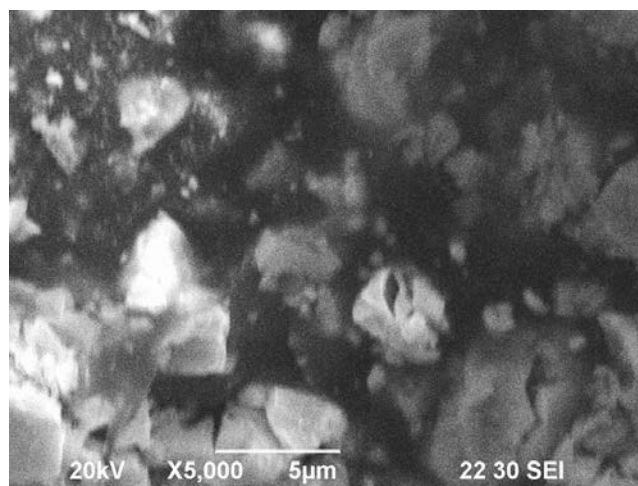
- [1] Y. Arai, Y. Suzuki, T. Sasayama, H. Watanabe, Ternary compounds  $\text{PuNiC}_2$  and  $\text{PuCoC}_2$ , Journal of Nuclear Science and Technology, 19 (1982) 257-260.
- [2] 福島奨, 希土類元素を含む酸化燃料の熱伝導度, JAERI-memo 61-174 (1986年6月).



(a) 低倍像 (反射電子像)

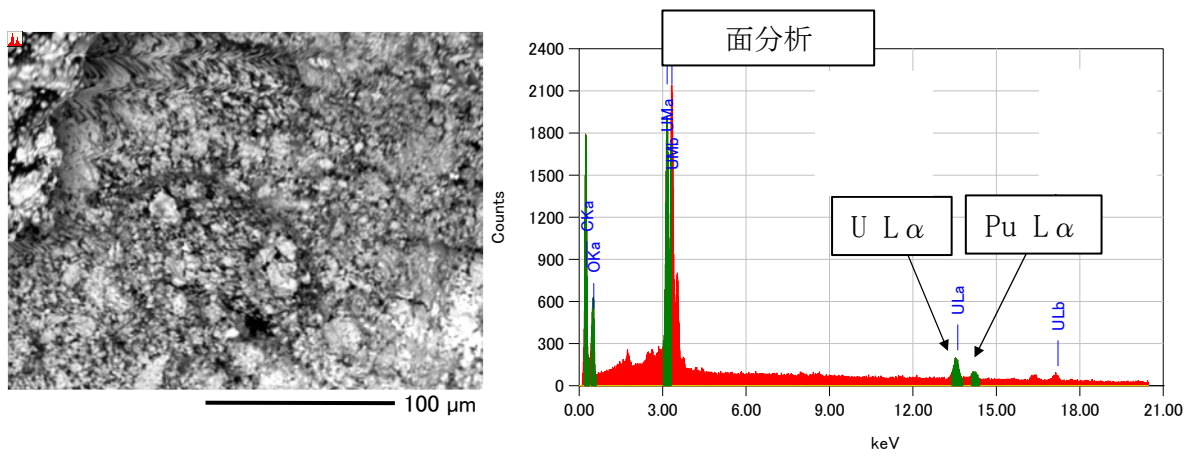


(b) 中倍像 (反射電子像)

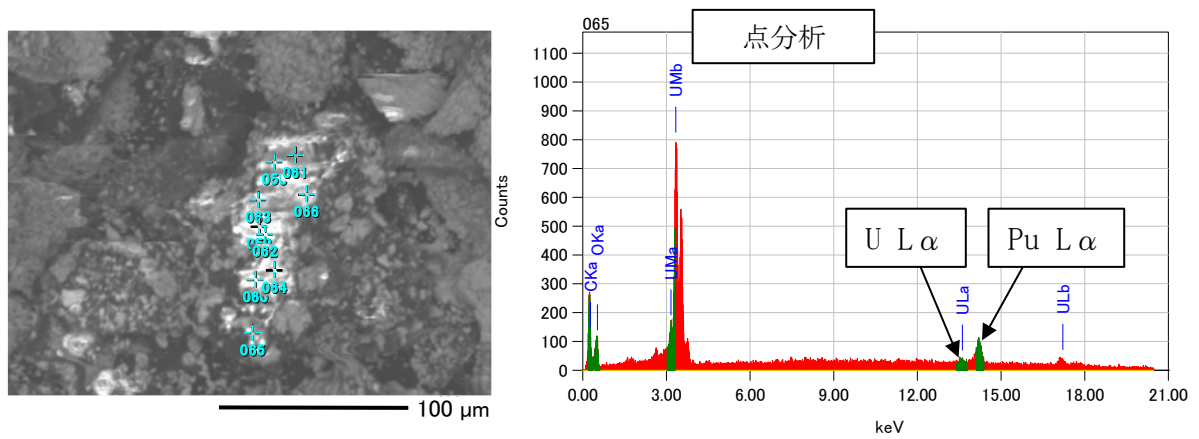


(c) 高倍像 (反射電子像)

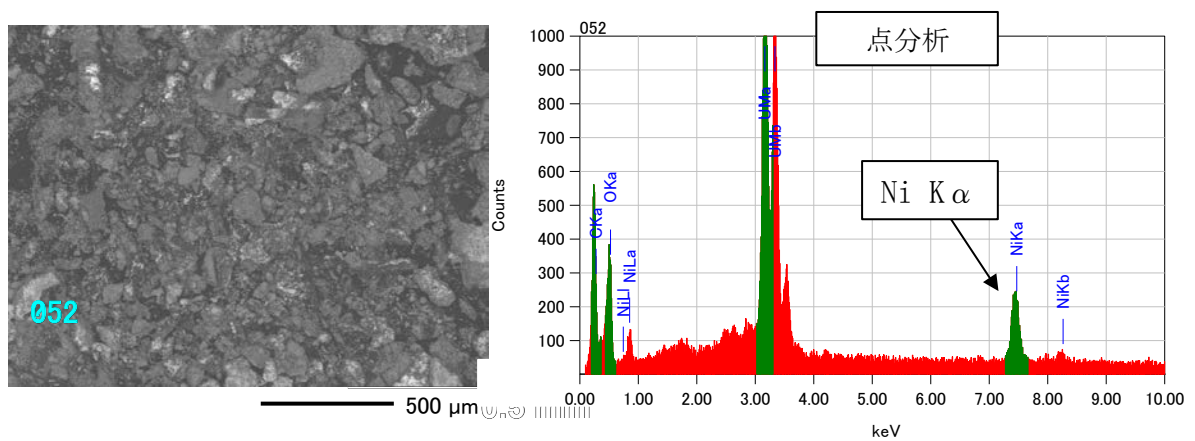
図6.4.6-1 粉末成分の観察像



(a) 面分析 (平均的なU含有率の評価の例、 $U/(U+Pu) \sim 0.74$ )



(b) 点分析 (局所的にPu含有率が高い粒子の例、 $Pu/(U+Pu) \sim 0.87$ )



(c) 点分析 (局所的にNiが検出された例)

図6.4.6-2 粉末成分のEDSによるX線スペクトルの例



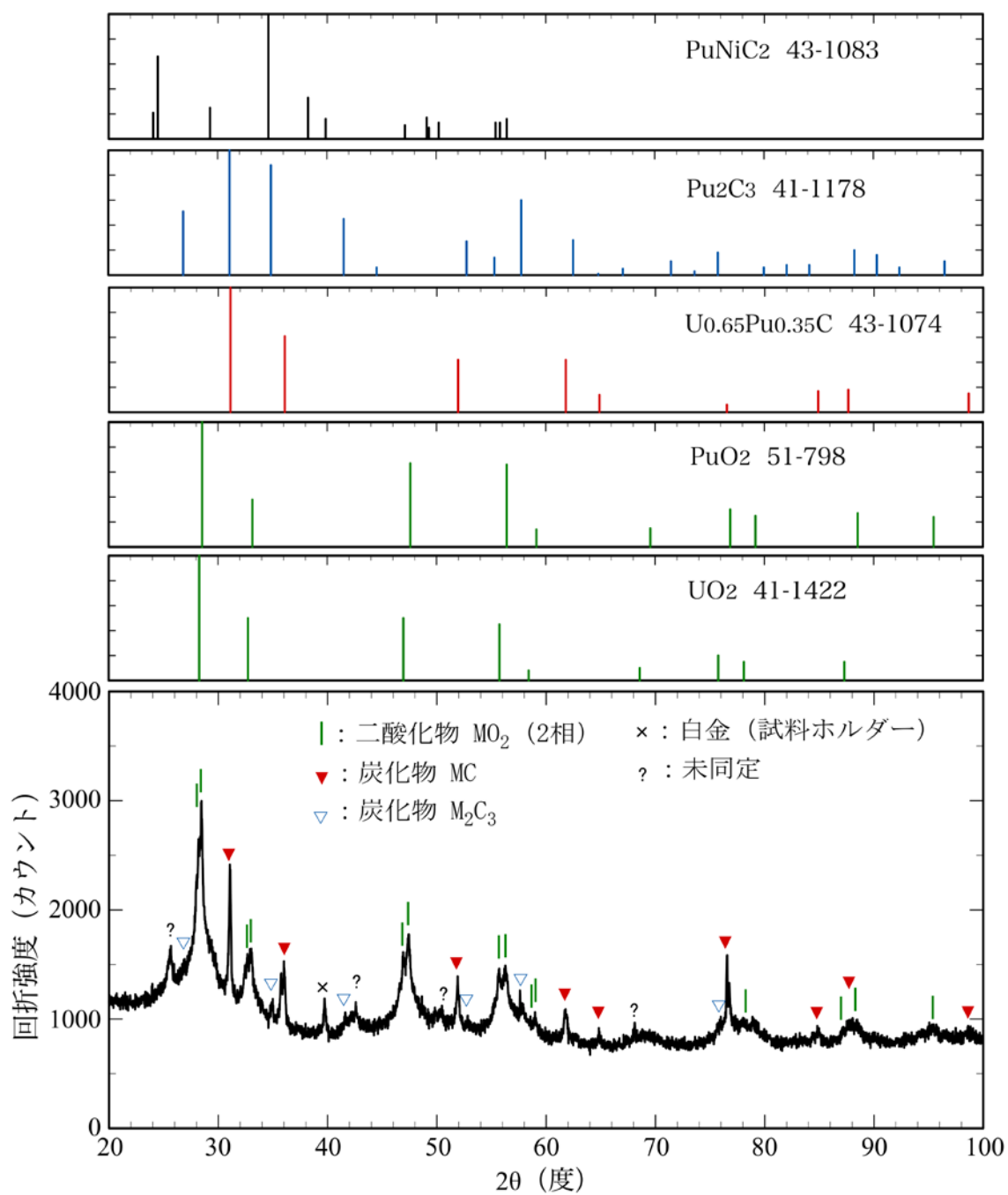
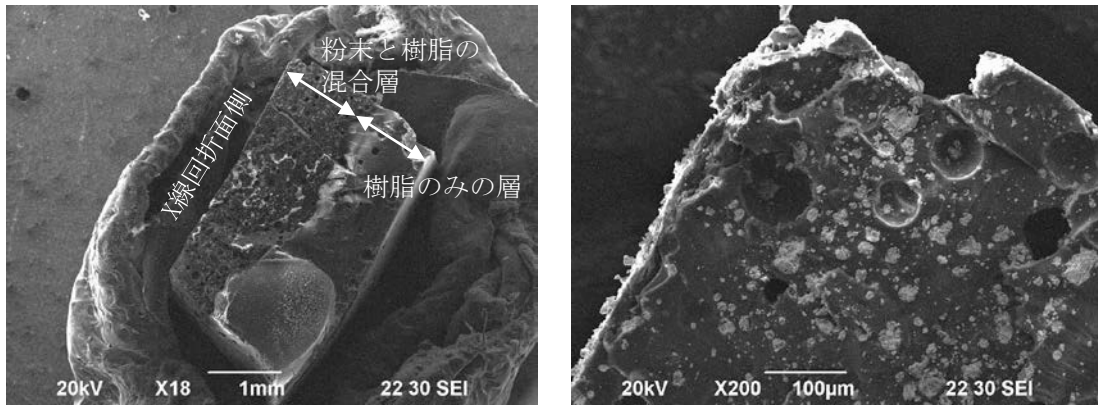
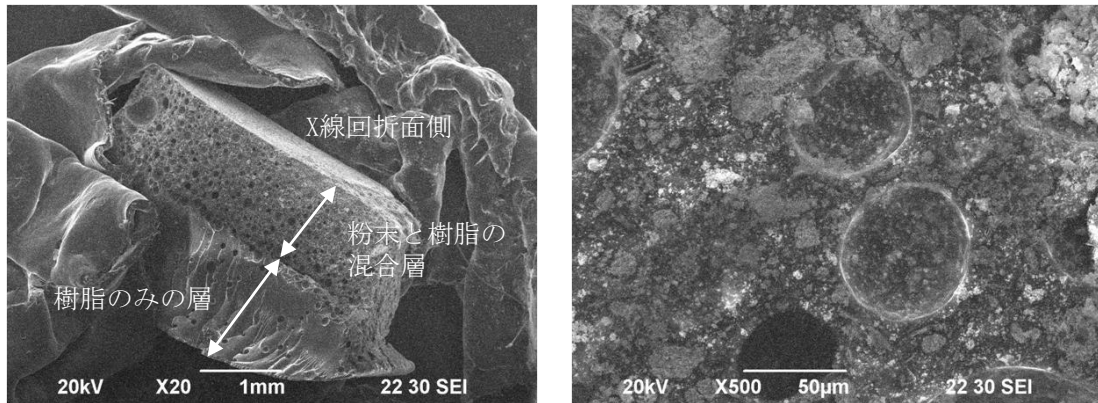


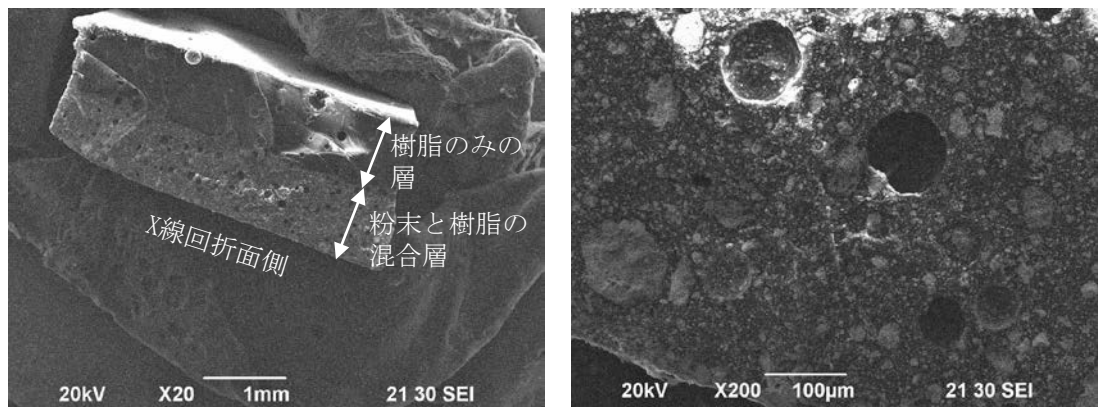
図6.4.6-3 粉末成分のX線回折プロファイルとデータベース\*との比較  
 (\*ICDD : The International Center for Diffraction Data)



(a) 線量当量率：高 (約220  $\mu\text{Sv/h}$ 、二次電子像)



(b) 線量当量率：中 (約56  $\mu\text{Sv/h}$ 、二次電子像)



(c) 線量当量率：低 (約14  $\mu\text{Sv/h}$ 、二次電子像)

図6.4.6-4 線量当量率で選別したエポキシ樹脂固化物3個の断面観察像  
(左：全体像、右：拡大像)

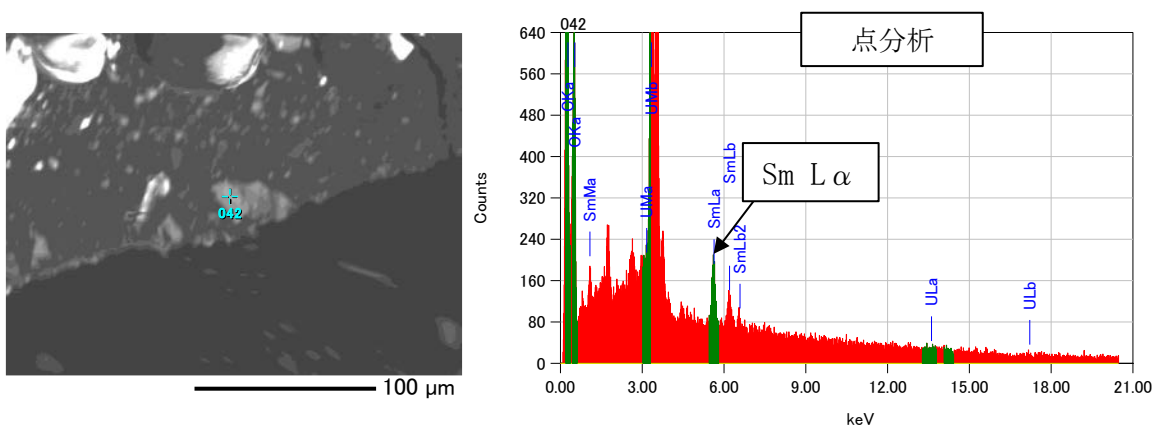
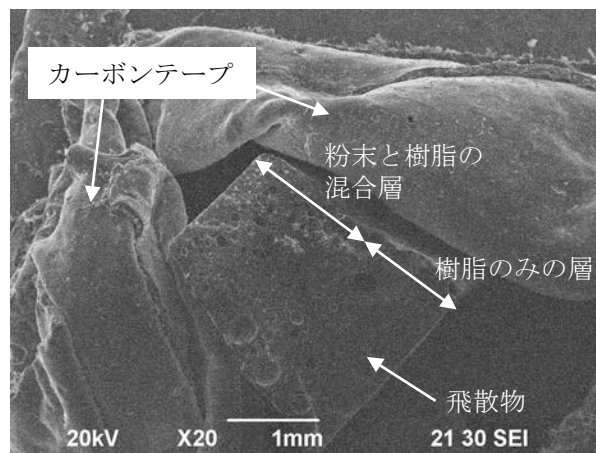
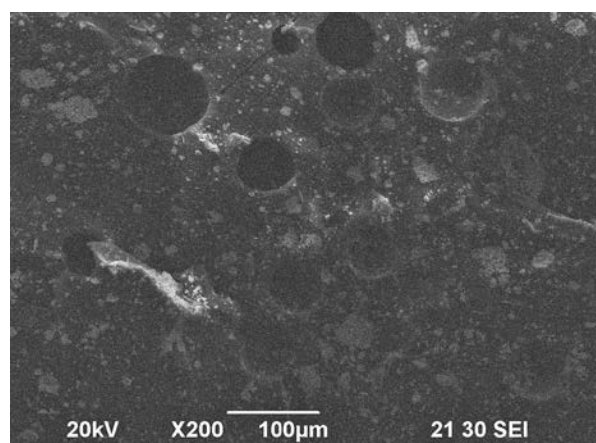


図6. 4. 6-5 樹脂固化物のEDSによるX線スペクトルの例  
(線量当量率：高（約153  $\mu\text{Sv/h}$ ）、希土類のSmを検出)

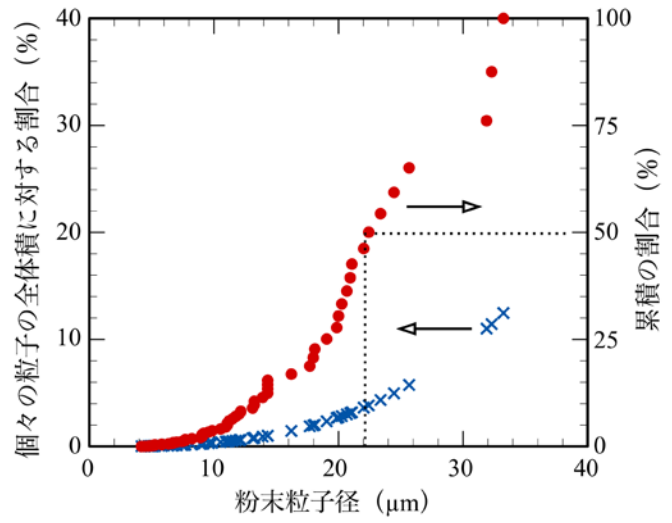
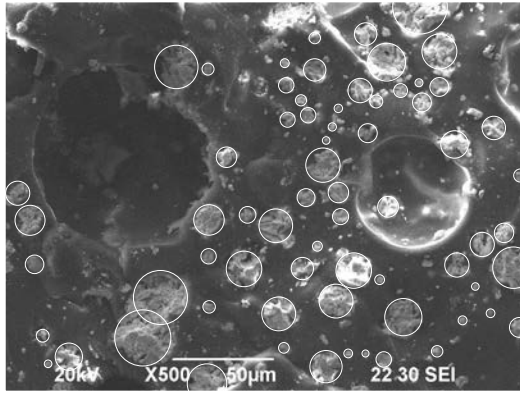


(a) 全体像（二次電子像）

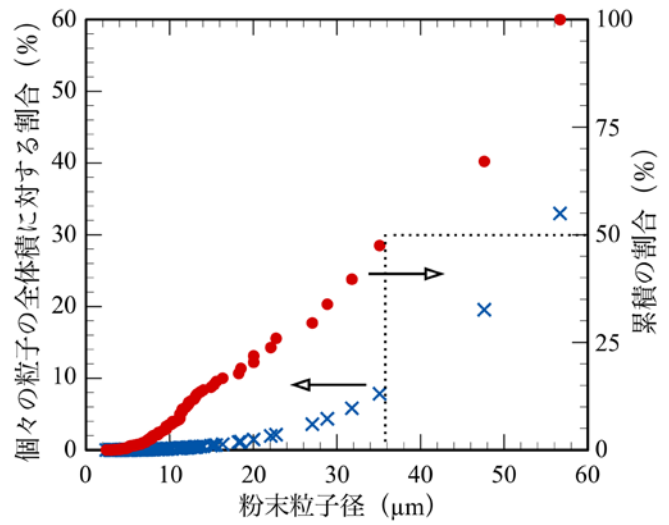
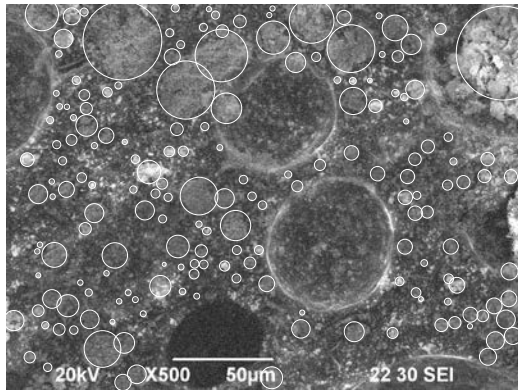


(b) 拡大像（二次電子像）

図6. 4. 6-6 かけら状の飛散物の観察像



(a) 線量当量率：高 (約220  $\mu\text{Sv/h}$ )



(b) 線量当量率：中 (約56  $\mu\text{Sv/h}$ )

図6.4.6-7 観察像からの平均粒子径の評価  
(左：観察像上で粒子径の読み取り、右：体積基準による粒度分布グラフ)

## 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きており、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きていた。
- ・ 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きていたと思った。
- ・ 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、汚染のないことを確認した。

## (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る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、蓋が浮き上がってく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、ボルトが飛んだりはない。
- ・ この時すでに写真（図 6. 4. 3）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。（主作業員は）キーンと耳鳴りがして聞こえなくなるほどの音ではなかった。（別の作業員は）耳が痛くなるほど大きな音だった。
- ・ （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）両太腿の上方辺りに風を感じたが、ものが当たった感覚はなかった。

## (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 6.4.3）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 6.4.3）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