

大洗研究開発センター燃料研究棟の汚染に係る 破裂要因の分析による事象発生の原因推定及び対策の検討について

平成 29 年 9 月 20 日
日本原子力研究開発機構

樹脂製の袋の破裂要因分析のため、フォルトツリー解析を行った。まず、「貯蔵容器内容物及び破裂時の状況調査結果」をベースとして、原因を特定すべき事象（トップ事象）を最外層のバウンダリである「二重目樹脂製の袋の破裂」として、その要因となる事象をこれ以上分解できない基本事象にまで順次分解することにより、フォルトツリー図を構築した。次に、抽出された基本となる要因（基本事象）各々の影響度評価を行って原因を推定し、対策を検討した。

(1) 樹脂製の袋の破裂事象要因分析のためのフォルトツリー図構築

図 7.1.1 に、構築したフォルトツリー図を示す。トップ事象である「二重目樹脂製の袋の破裂」は、「二重目樹脂製の袋の内圧上昇」及び「二重目樹脂製の袋の破損条件到達（条件変化含む。）」の 2 つの事象が重畳した場合に発生するとした。

「二重目樹脂製の袋の内圧上昇」については、内圧上昇による一重目樹脂製の袋の破裂あるいは破損、又は一重目樹脂製の袋の膨張により発生するとした。前者の「一重目樹脂製の袋の破裂あるいは破損」は、「二重目樹脂製の袋の破裂」と同様に、「一重目樹脂製の袋の内圧上昇」及び「一重目樹脂製の袋の破損条件到達（条件変化含む。）」の 2 つの事象の重畳により生じる。

一重目樹脂製の袋の破裂あるいは破損要因のうち、「一重目樹脂製の袋の内圧上昇」について、「内部でのガス発生」及び「内部温度上昇」を挙げた。

「内部でのガス発生」については、内蔵する Pu 等の有機物との相互作用や化学反応を要因として考え、基本事象として図 7.1.1 に示す①～⑧の 8 つの要因を考えた。一方、「内部温度上昇」をもたらす事象としては、化学反応熱の発生等による温度上昇を考え、基本事象として図 7.1.1 に示す⑤～⑩の 6 つの要因を考えた。

「一重目樹脂製の袋の破損条件到達（条件変化を含む。）」をもたらす事象としては、樹脂製の袋の品質劣化によるものと傷等によるものと考え、基本事象として図 7.1.1 に示す⑪～⑳の計 11 の要因を考えた。

以上のとおり、トップ事象「二重目樹脂製の袋の破裂」をもたらす要因として計 21 個の基本事象を抽出してフォルトツリー図を構築した。

(2) 各基本事象の影響度評価結果

構築したフォルトツリー図を構成する基本事象 21 個それぞれについて、「貯蔵容器内容物及び破裂時の状況調査結果」から得られた情報に加えて、作業員への聞き取り調査、帳票類・作業記録等の確認、現地調査、概略評価・文献調査及び検証試験により得られる情報に基づき、各基本事象がトップ事象である二重目樹脂製の袋の破裂に与える影響度（重要度）を評価した。評価に際し、以下の値を用いた。

- ・ガス発生による内圧上昇を計算するための基準となる体積は、貯蔵容器の容積 3.9 L から内容物としてポリ容器及び樹脂固化物の体積相当である 0.4 L を減じた 3.5 L とした（添付 7.1.1 ①「 α 崩壊による He ガス」参照）。

- ・樹脂製の袋に対する γ 線の挙動を粒子・重イオン輸送計算コードPHITSによりシミュレーションした結果より、樹脂製の袋への γ 線照射試験における21年間の貯蔵期間相当の照射量（吸収線量）を、一重目と二重目の樹脂製の袋に対してそれぞれ227 kGy及び108 kGyとした（添付7.1.2参照）。
- ・貯蔵容器を模擬した金属容器及び蓋による外部からの拘束下において、未照射及び照射した樹脂製の袋を破裂又は破損するまで加圧する試験を行った結果から、貯蔵容器開封時に類似した樹脂製の袋の破裂又は破損状況をもたらす内圧は2.5気圧程度以上とした（添付7.1.3参照）。

「二重目樹脂製の袋の破裂」に与える影響評価結果の一覧を表7.1.1に示す。また、評価の詳細を添付7.1.1に示す。「内部でのガス発生」のうち、樹脂製の袋の内圧増加に有意な影響を与え得る基本事象は、②「混入有機物」、③「ポリ容器」及び④「混入水分」の3つであり、21年間の貯蔵期間中のガス発生量は、それぞれ48 L、0.18 L及び0.09 Lと評価された。このことから、樹脂製の袋の破裂の主な要因は、発生ガスの評価量がほかの2つより圧倒的に多い②「混入有機物」であることを特定した。

なお、④「混入水分」によるガス発生量の評価については、吸着水分の全量が分解する等過度に保守的な仮定をしていることから、実際にはその影響は無視できると考えられる。

(3) 樹脂製の袋が破裂に至った原因の特定

フォルトツリー解析により、樹脂製の袋の破裂は、主に②「混入有機物」の基本事象により発生したことを特定した。樹脂製の袋が破裂に至った原因を時系列で表した推定シナリオは以下のとおりである（図7.1.2参照）。

- ・平成3年にPu等の核燃料物質を含む樹脂固化物をポリ容器に入れ、ポリ容器を樹脂製の袋によって二重に封入し、貯蔵容器内に入れて貯蔵した。
- ・貯蔵期間中、主にPuからの α 線によりエポキシ樹脂が分解して水素やメタン等のガスが発生し、樹脂製の袋が膨張した。
- ・5年後の平成8年に貯蔵容器内容物の点検を行った。その結果、ポリ容器の破損、樹脂製の袋の膨張等が確認されたため、梱包更新を行った。
- ・その後21年間の貯蔵期間中、放射線の影響により樹脂製の袋が劣化するとともに、ガス発生による内圧が貯蔵容器開封時に類似した樹脂製の袋の破裂又は破損状況をもたらす内圧を超過した。しかしながら、樹脂製の袋は、貯蔵容器による拘束で破裂せずに留まっていた。
- ・フードで貯蔵容器内部を点検するため貯蔵容器の蓋を開封した。その結果、貯蔵容器による拘束を失って樹脂製の袋内外の圧力均衡が崩れ、樹脂製の袋の容器や蓋等で拘束されていない部分が、放射線照射によりもたらされた樹脂製の袋の引張強度や破断伸び低下の影響もあり、線状に裂ける形で破裂開口した。

以上の推定シナリオに基づき、発生ガス（水素及びメタン）の樹脂製の袋や貯蔵容器のOリングを通じた漏えいを考慮して、貯蔵期間中の樹脂製の袋の内圧上昇を計算した。計算の詳細は添付7.1.4に示す。エポキシ樹脂に含まれる核燃料物質の平均粒径、Amの精製有無及びOリングからのガス透過割合には不確かさがある。このためこれらの不確かさを考慮して、エポキシ樹脂からのガス発生量及びOリングを通じたガスの漏えい量が異なる3つのケースについて21年間の内圧上昇を計算した。図7.1.3に樹脂製の袋の内圧計算結果を示す。樹脂製の袋の内圧計算結果には大きな幅があるが、いずれのケースも、21年後の貯蔵容器開封時においては、貯蔵容器開封時に類似した樹脂製の袋の破裂又は破損状況をもたらす内圧である2.5気圧を超えた。

(4) 樹脂製の袋が破裂に至った事象への対策

事象の影響度評価や推定シナリオにおいて示したように、樹脂製の袋の内圧上昇及び劣化を避けることが樹脂製の袋の破裂防止に必要であることから、その具体的な対策を検討した。以下に樹脂製の袋の破裂を防止するための対策を示す。

- ・Pu、Am 等 α 比放射能が高い核種を含む試料は、収納前に熱処理等を行うことにより、多量のガスを発生させるエポキシ樹脂等を除去すること。

この熱処理は、内圧上昇をもたらす可能性が否定できない吸着水分の放射線分解ガス発生の防止にも有効であると考えられる。

- ・Pu、Am 等 α 比放射能が高い核種を含む粉末状の試料は、ポリ容器等の有機物への密着を避けるために金属容器へ収納すること。

金属容器への収納は、Pu 等から発生する低エネルギーの γ 線の遮蔽にもある程度の効果が望まれ、下述する樹脂製の袋の放射線劣化への防止策としても一定の効果を発揮することが期待される。

- ・Pu、Am 等 α 比放射能が高い核種を微量含む各種標準試料等をポリ容器に収納しているものについては、膨張や変色等が発生する時間を事前に見積もり、適切な周期でこれらの目視による点検と交換を行う等の対策を取ること。

ポリ容器は、 α 線による照射を受けた場合、劣化や変色が γ 線による照射を受けた場合と比べてより短い期間で生じる可能性が考えられる。このため、適切な期間での点検や梱包更新を行うことにより、発生ガスによる内圧上昇と樹脂製の袋等の破損を防止することが重要である。

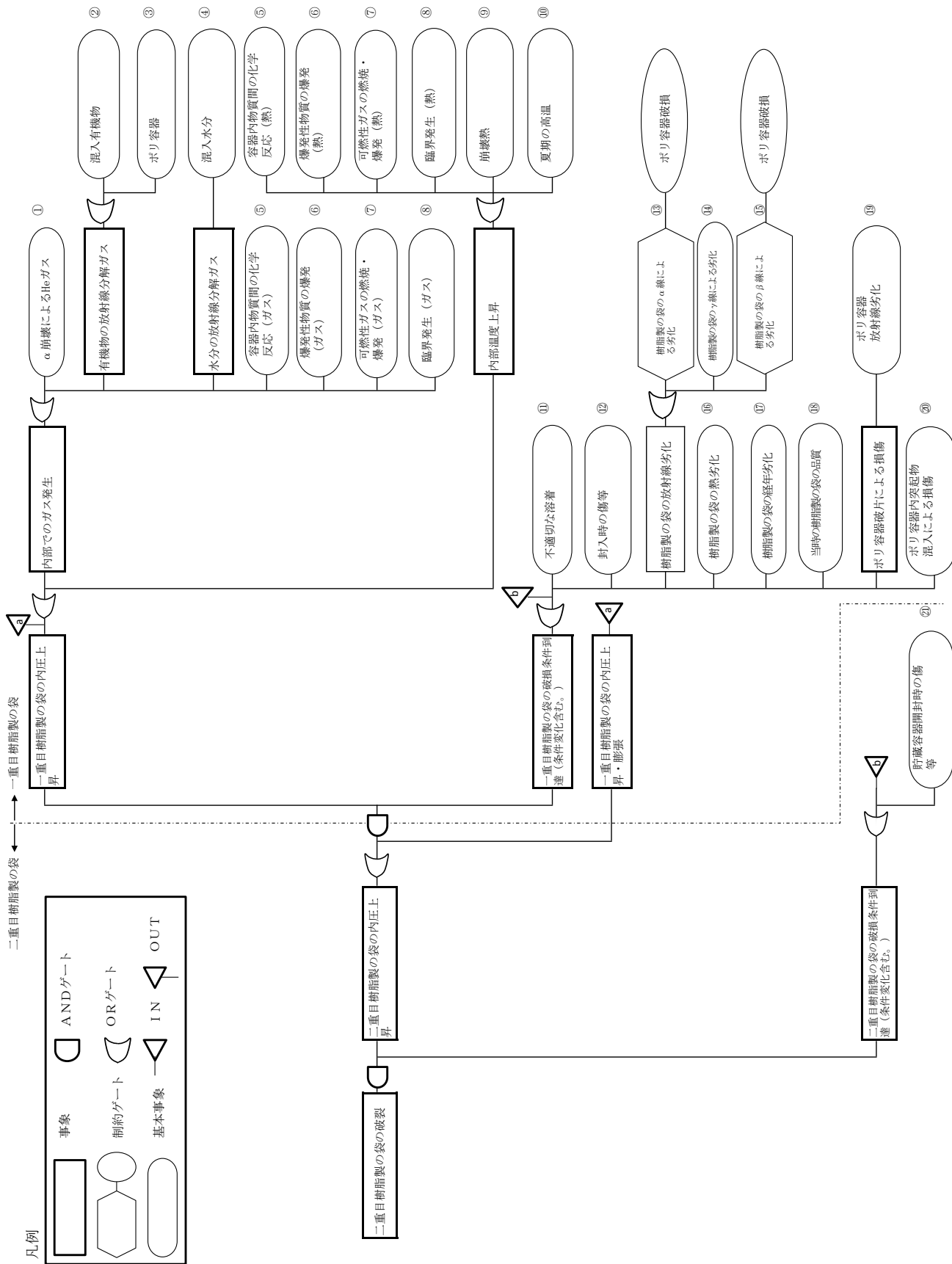


図7.1.1 樹脂製の袋の破裂要因に係るフォルトツリー図

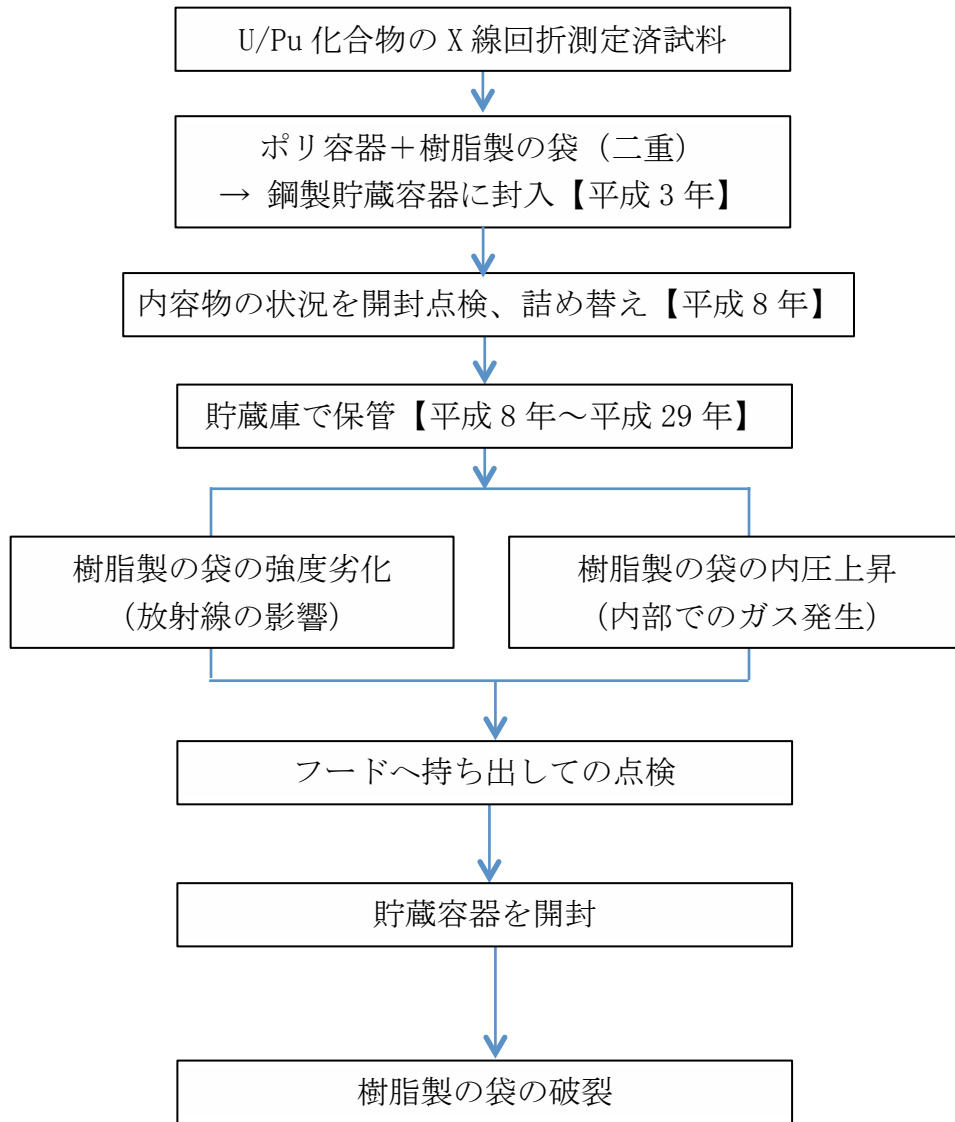


図 7. 1. 2 樹脂製の袋の破裂に至る推定シナリオ

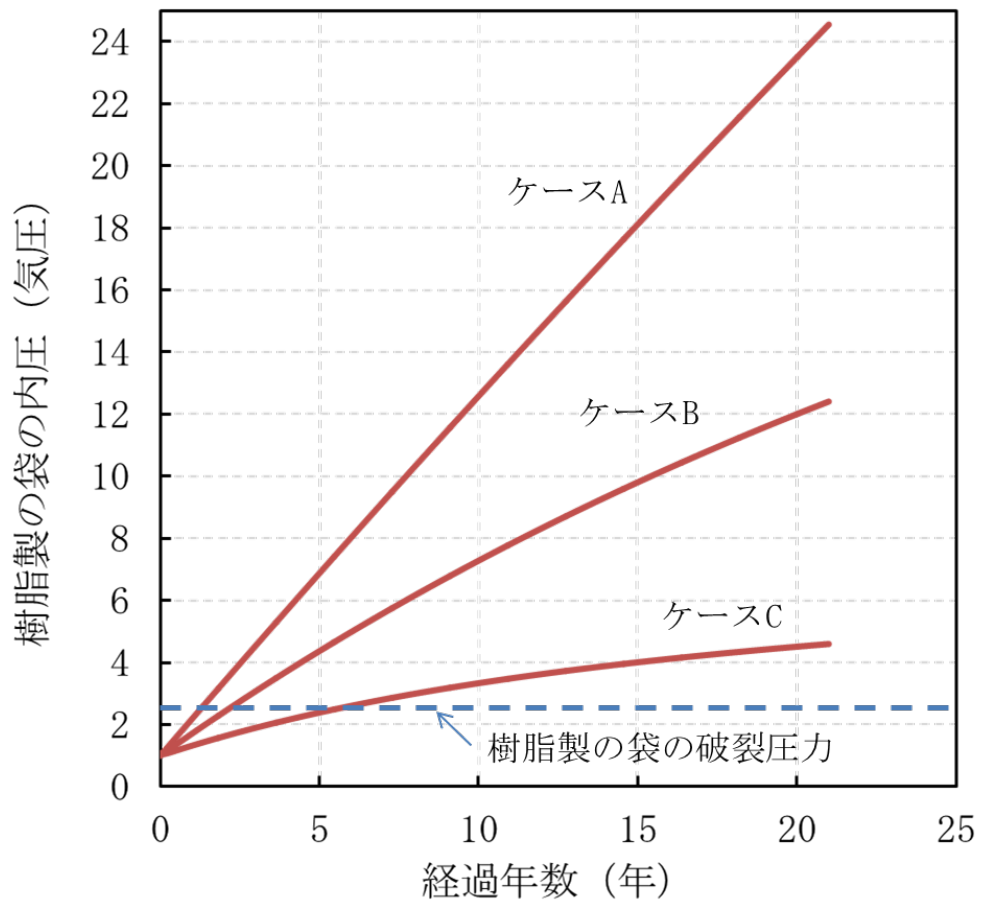


図 7.1.3 樹脂製の袋の内圧の経時変化の計算結果

表7.1.1 樹脂製の袋の破裂に係る基本事象の影響度評価

基本事象No.	基本事象名	影響度 (*1)	確認・調査事項	作業者等への聞き取り調査 (*2)	帳票類・作業記録等確認 (*2)	現地調査 (*2)	概略評価・文献情報 (*2)	検証試験 (*2)	各種調査の実施内容、調査・評価結果等
①	崩壊によるHeガス	×	5種Pu同位体組成の中で、最も厳しい条件でHe発生量を評価	—	●	—	●	—	貯蔵容器内にあるPuの中で、α崩壊が最大となるPu同位体組成を用いて、21年間のHe発生量を計算した。その結果、発生量は12.6 mL (標準状態換算) であり、影響は小さい。
②	混入有機物	○	聞き取り調査等により混入有機物の種類及び量を推定する	●	●	●	—	—	主たる混入有機物はエポキシ樹脂である。エポキシ樹脂はX線回折用試料作成時に使用され、エポキシ樹脂固化物は■ g、粉末様の物は■ gであった。
③	ポリ容器	△	混入有機物の放射線分解による発生ガス量、内容物形状 (塊、分布等) 及びポリ容器への接触状況を確認	—	—	—	●	●	エポキシ樹脂のα線分解によるガス発生 (m-244のα線照射による圧力上昇試験や量研 高崎研におけるエポキシ樹脂へのHeイオン照射試験の結果から、ガス発生率は積算照射量とともに低下することが分かった。これらを考慮して、G値を0.22と見積もった。その結果、21年間のガス発生量は、Pu粉末粒径を20 μmとした場合、48 L (標準状態換算) である。
④	混入水分	×	混入水分の量 (核物質の物理形態を確認した上で評価)	—	●	—	●	—	ポリエチレンのα線分解によるガス発生 貯蔵容器内の粉末■ gを全てHeとPuの混合化合物粉末と仮定し、それらがポリ容器底部に存在するとした場合の評価を行った結果、21年間のガス発生量は0.18 L (標準状態換算) であり、②「混入有機物」に比べて寄与は小さいものの、一定程度の寄与があると考えられる。
⑤	容器内物質間の化学反応 (ガス、熱)	×	化学反応による熱及び発生ガス種・量の推定	●	●	—	●	—	粉末■ g全量を核燃料物質粉末と仮定し、文献調査結果を基に吸着水分量を■ wt%として計算を行った結果、吸着水分量は0.05 gである。
⑥	爆発性物質の爆発 (ガス、熱)	×	爆発性物質生成の検索、有無 (量、爆発可能性など)、衝撃・影響等の有無の調査	●	—	—	●	—	上記吸着水分量を基に評価した放射線分解によるガス発生量は0.09 L (標準状態換算) である。吸着水分の全量が分解する等、過度に保守的な仮定をしていることから、実際にはその影響は無視できると考えられる。
⑦	可燃性ガスの燃焼・爆発 (ガス、熱)	×	水素等の燃焼範囲への到達可能性、爆発発生等の有無	●	—	—	●	—	炭化物及び窒化物が加水分解を起こした場合、それぞれメタン及びアモンニアの生成が考えられる。樹脂固化物の分析結果から、炭化物又は窒化物 (あるいはその双方) がエポキシ樹脂に含まれていることが分かった。特に炭化物については水分との反応性が高く水分と接触した場合即座に加水分解を生じることから、この結果は貯蔵期間中に炭化物又は窒化物 (あるいはその双方) の加水分解がほとんど起こらなかったことを示している。これらより、本事象の影響は小さいと考えられる。
⑧	臨界発生 (ガス、熱)	×	臨界可能性	—	●	—	—	—	作業者への確認の結果、破裂時の爆発による異臭等無し。平衡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、爆発性物質の生成並びにその爆発によるガス及び熱発生の可能性は低い。
⑨	崩壊熱	×	崩壊熱量と熱パラメータ	●	●	—	●	—	作業者への確認の結果、樹脂製の袋破裂時の爆発による異臭や火災等無し。貯蔵容器内の同位体組成を用いた計算を行った結果、崩壊熱はα崩壊による寄与が大きいことから、貯蔵容器内にあるPuの同位体組成を用いた計算を行った結果、崩壊熱は最大で0.5 Wである。これによる容器内温度上昇は2°C以下であり、内圧上昇 (*8) は0.01気圧以下である。このことから、崩壊熱による内部温度上昇への影響は小さいと考えられる。また、作業者証言 (「ゴム手袋越しであるが、貯蔵容器側面を手で触つてみて、温度上昇はなかった」) から、発熱は小さい。

*1 ○：影響大、△：影響あり、×：小 (無視できる)

*2 ○：実施予定、▲：一部実施済み、●：実施済み、—：実施しない

*3 一重目の樹脂製の袋の容積3.9 Lに対して、内容物0.4 Lを減じた値として、3.5 Lを考慮し、これに対する内圧上昇を計算

核物質防護上の観点から■の箇所は非開示としています。

基本事象No.	基本事象名	影響度 (*1)	確認・調査事項	作業者等への聞き取り調査 (*2)	帳票類、作業記録等確認 (*2)	現地調査 (*2)	概略評価・文献情報 (*2)	検証試験 (*2)	各種調査の実施内容、調査・評価結果等
⑩	夏期の高温	×	夏期の室内温度	●	-	-	-	-	作業記録の調査結果等によると、封入は夏に実施された。このため夏期の温度上昇ほとんど無く、内圧上昇へ及ぼす影響は小さいと考えられる。
⑪	不適切な溶着	×	現物の破損箇所 (溶着性)	-	-	●	-	-	貯蔵容器内容物の観察結果からは、溶着部の不良箇所は観察されなかった。これより、本事象の影響は小さいと考えられる。
⑫	封入時の傷等	×	現物確認により傷等の有無	-	-	●	-	-	貯蔵容器内容物の観察結果からは、傷等は観察されなかった。これより、本事象の影響は小さいと考えられる。
⑬	樹脂製の袋のα線による劣化	×	樹脂製の袋のα線照射による劣化度合い ポリ容器現物確認による劣化有無 (樹脂製の袋が直接α線源に接していたか) を確認	-	-	●	-	-	樹脂製の袋にα線による劣化をもたらすためには、ポリ容器の破損により内部の核燃料物質が放出して樹脂製の袋に接触することが必要であるため、ポリ容器の観察を行った。その結果、ポリ容器の破損は認められなかった。また、樹脂製の袋の劣化も認められなかったことから、本事象の影響は小さいと考えられる。
⑭	樹脂製の袋のγ線による劣化	△	樹脂製の袋のγ線照射による劣化度合い	●	-	●	●	●	樹脂製の袋のγ線照射試験 (量研 高崎研) により劣化度合いを評価。樹脂製の袋のγ線照射試験後、引張試験を実施した結果、照射に伴い引張強度及び破断伸びは線形的に低下し、240 Kgy (21年間の貯蔵期間相当) では、未照射のものに比べてそれぞれ約25%及び約21%低下することが分かった。
⑮	樹脂製の袋のβ線による劣化	×	樹脂製の袋のβ線照射による劣化度合い	-	-	-	●	-	Pu-241のβ線変に伴い放出されるβ線エネルギーは0.0208 MeVとα線のものに比べて大幅に小さいことから、⑩「樹脂製の袋のα線による劣化」における評価に含まれる。
⑯	樹脂製の袋の熱劣化	×	樹脂製の袋の熱による劣化度合い 樹脂製の袋の熱解析結果と過去の基準値との比較	●	-	-	●	-	文献による高温での樹脂製の袋の伸びデータからの外挿を正しいとすると、室温付近においては樹脂製の袋の伸びが有意に低下する時間は、貯蔵期間に比べて長い。また、作業者への聞き取り調査や内部温度上昇に係る評価の結果、貯蔵容器の温度上昇は小さいことがわかったことから、本事象が樹脂製の袋の破損条件変化に影響する度合いは小さいと考えられる。
⑰	樹脂製の袋の経年劣化	×	樹脂製の袋の経年による劣化度合い	●	-	-	●	-	温度上昇として考えられる事象 (⑤～⑩) の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ではない。
⑱	当時の樹脂製の袋の品質	×	数十年前の樹脂製の袋の品質調査 (強度等)	-	-	-	●	-	文献調査の結果、貯蔵期間中に樹脂製の袋の破断に至る強度や伸びの低下はほとんど生じないことがわかった。樹脂製の袋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が、放射線の影響の方が大きい。そのため、本項目は放射線による劣化 (⑬及び⑭) に含まれる。
⑲	ポリ容器放射線劣化	×	ポリ容器現品の放射線による劣化度合い	-	-	●	-	●	樹脂製の袋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。品質に変更がないことから影響度合いは小さいと考えられる。
⑳	ポリ容器内突起物混入による損傷	×	突起物等混入の有無	-	-	●	-	-	ポリ容器のγ線照射試験による劣化度合い評価を実施した結果、360 Kgy (21年間の貯蔵期間相当) まで照射してもやや変色する程度で、柔軟性もほとんど変化なく、劣化は認められなかった。また、ポリ容器を実際に触れてみた感触からは、α線によると思われるポリ容器脆化の傾向が認められたが、破損は無かった。このことから、本事象の影響は小さいと考えられる。
㉑	貯蔵容器開封時の傷	×	現物調査による開封時の傷付の有無	●	-	●	-	-	貯蔵容器内容物の観察結果、突起物等の混入は認められなかった。これより、本事象の影響は小さいと考えられる。
㉒	貯蔵容器開封時の傷	×	現物調査による開封時の傷付の有無	●	-	●	-	-	作業者聞き取りの結果、傷付身に係る記言なし。また、貯蔵容器内容物の観察結果、傷等は認められなかった。これより、本事象の影響は小さいと考えられる。

*1 ○：影響大、△：影響あり、×：小 (無視できる)

*2 ○：実施予定、▲：一部実施済み、●：実施済み、-：実施しない

*3 一重目の樹脂製の袋の容積3.9 Lに対して、内容物0.4 Lを減じた値として、3.5 Lを考慮し、これに対する内圧上昇を計算

樹脂製の袋の破裂に係る基本事象ごとの評価内容詳細（抜粋）

- 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
- ⑭ 樹脂製の袋の γ 線による劣化

① 「 α 崩壊による He ガス」

1. 確認・調査事項

貯蔵期間（平成 3 年 10 月～平成 29 年 6 月、ないしは平成 8 年 7 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の α 崩壊で生成される α 粒子が全て He ガスになるとして*1、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。

*1) 発生する He ガス量を保守的に見積もる（多めに見積もる。）ため、 α 粒子が全て He ガスになると仮定した。

3. 確認・調査結果

3.1 発生気体滞留可能領域の体積

核燃料物質の α 崩壊により生成した He ガスは、貯蔵容器内の空間領域（以下「発生気体滞留可能領域」という。）に滞留することになるため、はじめに当該領域の体積を導出した。

発生気体滞留可能領域は、貯蔵容器の内容積からポリ容器の体積及び樹脂固化物の体積を減じて求められる。

- ・貯蔵容器の内容積 = $(13/2)^2 \times \pi \times 28.7 + (10/2)^2 \times \pi \times 1.5$
= 3927 [cm³]
- ・ポリ容器の体積 = ポリ容器の外容積 - ポリ容器の内容積
= $(9.4/2)^2 \times \pi \times 23 - (9.2/2)^2 \times \pi \times 22.8$
= 81 [cm³]
- ・樹脂固化物の体積 = 360 [cm³]*2
- ・発生気体滞留可能体積 = 3927 - 81 - 360
= 3486 [cm³] → 3.5 [L]

なお、発生気体滞留可能領域体積は、以降の確認・調査においても上記の 3.5 [L]を用いる。

2) 添付 6.4.5 の「比較的形状を保持している樹脂固化物 51 個」の観察結果より、樹脂固化物の比重は約■■■と推定され、ポリ容器内にある樹脂固化物の重量が■■■■ g であることから、その体積を 360cm³とした。

3.2 貯蔵期間中に α 崩壊で生成される He ガス量

5 種の Pu 組成（A 組成～E 組成）について、各々を天然ウランと混合させた条件で、ORIGEN2 コード [1]と JENDL-4.0[2]により以下 2 期間に生成される He ガス量を求めた。

- ・貯蔵容器への貯蔵 ～ 梱包更新（平成 3 年 10 月～平成 29 年 6 月）
- ・梱包更新 ～ 樹脂製の袋の破裂（平成 8 年 7 月～平成 29 年 6 月）

He ガス量計算結果を表①-1 に示す。特に、梱包更新から樹脂製袋の破裂までの貯蔵期間（平成 8 年 7 月～平成 29 年 6 月）の He ガス量については、Pu が全て A 組成であった場合に最も大きく、次のとおりとなった。

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

4. 評価結果

梱包更新から樹脂製袋の破裂まで（平成 8 年 7 月～平成 29 年 6 月）の貯蔵期間中に核燃料物質の α 崩壊で生成される He ガス量は、Pu 組成が最も保守的とした場合（He ガス発生量を多く見積もるケースで、Pu が全て A 組成の場合）でも 12.6 mL と評価され、貯蔵容器内の発生気体滞留可能体積 3.5 L に比して 0.4 % ($\equiv 0.0126/3.5 \times 100$) 以下と極めて小さく、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。

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	He 生成量			
	貯蔵容器への貯蔵 ～ 梱包更新 (平成 3 年 10 月～平成 8 年 7 月)		梱包更新 ～ 樹脂製の袋の破裂 (平成 8 年 7 月～平成 29 年 6 月)	
	[g]	[mL]	[g]	[mL]
A 組成	4.53×10^{-4}	2.5	2.25×10^{-3}	12.6
B 組成	2.09×10^{-4}	1.2	9.43×10^{-4}	5.3
C 組成	3.45×10^{-4}	1.9	1.64×10^{-3}	9.2
D 組成	4.61×10^{-4}	2.6	2.22×10^{-3}	12.4
E 組成	2.03×10^{-4}	1.1	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～）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、内容物の観察の結果、X線回折測定済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たことから、エポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生に関して、試験及び計算によりガス発生量を評価した。

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当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個作製した。混合組成は表②-1のとおりである。

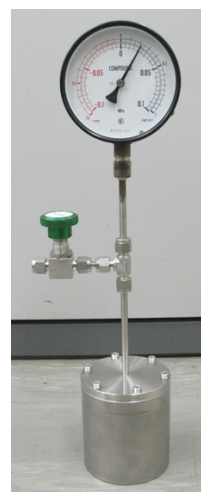
表②-1 Cm粉末とエポキシ樹脂の混合組成

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

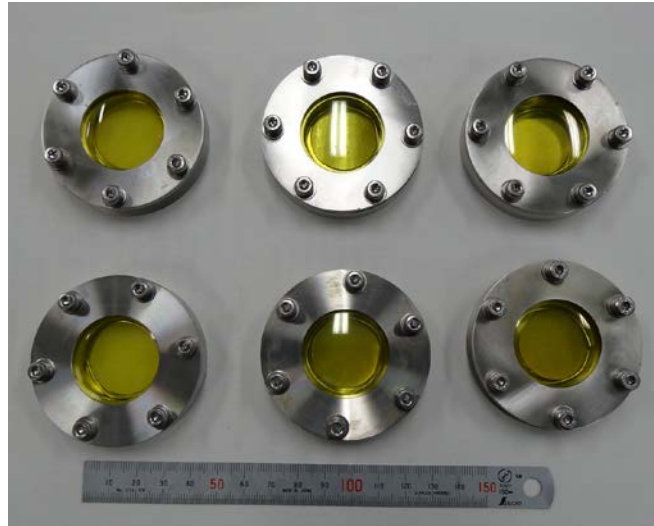
(a) 試料準備

(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で、大気中に取り出した He イオンを照射すること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 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。

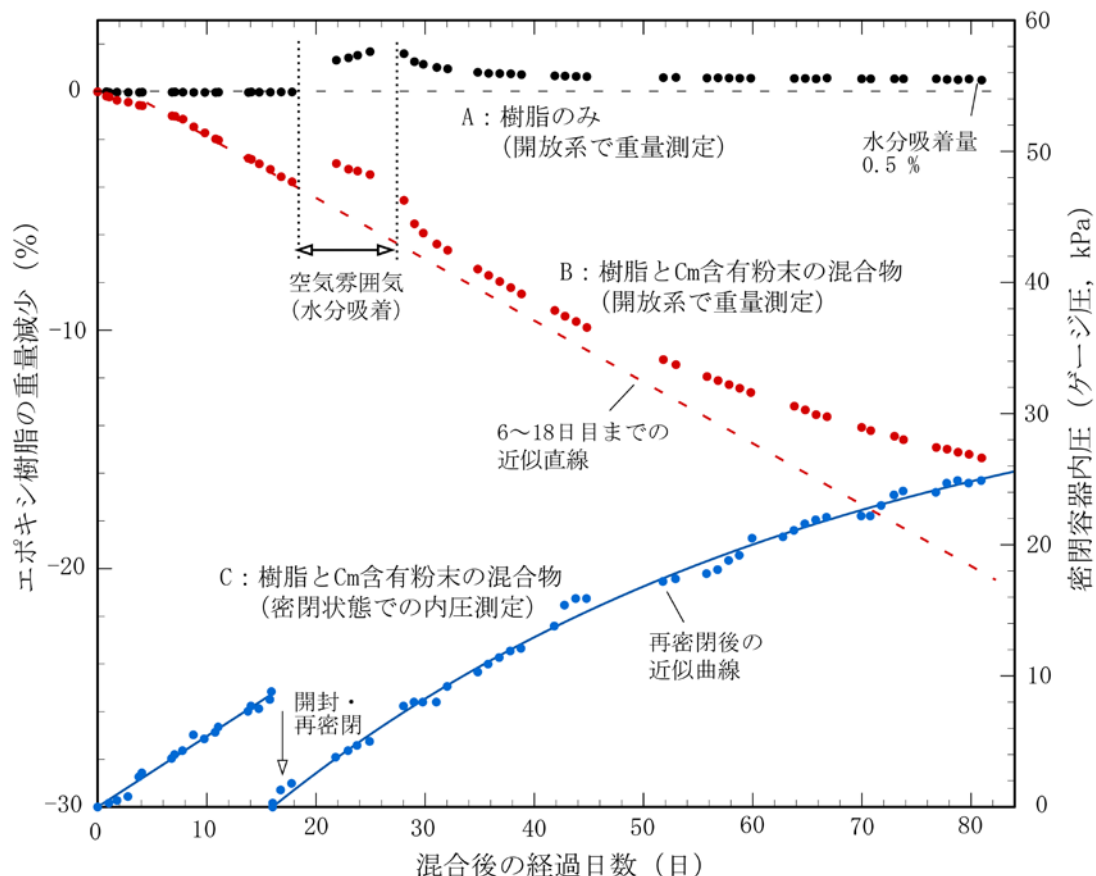
照射後、シリンジでガラス瓶内のガスを取り出し、ガスクロマトグラフを用いて水素発生量を定量分析した。

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。試験開始後16日目に一度密閉容器を開封して試料Cを取り出し、重量を測定した。グラフ上16日目までは、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%(4.93 mg)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。密閉容器の開封直後に試料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、樹脂内でマイ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 16 日目に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

試料 C の重量測定後に再び密閉状態とし、内圧変化の測定を 81 日目まで継続した。その間、一時的にグローブボックスの雰囲気（空気）としたため、開放系にあった試料 A と B は水分吸着により重量が一時的に増え、再びアルゴン雰囲気にした後も完全には元の重量に戻らなかった。平衡状態で試料 A には 0.5 %の水分が吸着していた。グラフ上、40 日目以降から試料 B の重量減少、試料 C の内圧上昇

ともに、明らかに変化が鈍ってくる傾向が確認された。内圧上昇により、発生したガスが樹脂の外へ放出されにくくなっていることに加え、開放系での重量減少も鈍っていることから、粉末粒子周辺の樹脂の分解が進んだことによりガスが発生しにくい状態へと次第に変化していると考えられる。長期間の変化では、いずれガス発生源がなくなり内圧は一定値に飽和するとの推測から、16日目以降の内圧上昇に対して以下に示す指数関数を当てはめ、近似曲線を得た。

$$\Delta P = A[1-\exp[-B(t-16.03)]]$$

上式で ΔP は内圧上昇 (kPa)、 t は経過時間 (日)、 A と B はデータへのフィッティングで得られる定数であり、 A は内圧上昇の飽和値を、 B は飽和に至る時定数を意味している。 A 値として34(kPa)、 B 値として 2.0×10^{-2} (1/日)を得た。

なお、式中の16.03は、16.03日時点で再密閉したことを意味する。

Cm粉末とエポキシ樹脂の混合物からのガス発生データから、貯蔵容器内の樹脂固化物からのガス発生量を評価するに当たり、粉末の粒子径が異なるため直接当てはめることはできない。添付6.4.6から、樹脂固化物内の粉末の平均粒子径が22 μm と36 μm であったのに対し、Cm粉末は酸溶液からの沈殿で生成されているので数 μm 程度の微細な粉末と推測される。そのため、Cm粉末のデータから、貯蔵容器内の樹脂固化物の状況に見合ったガス発生G値を以下のとおり評価した。

貯蔵容器内の樹脂固化物は、固化から貯蔵開始までに8年程度解放状態で保持されている。Cm粉末の実効崩壊定数 $1.90 \times 10^{-10} \text{ s}^{-1}$ に対し、添付6.4.4の表6.4.4-2に示した貯蔵容器内のPuの推定同位体組成の実効崩壊定数は $2.11 \times 10^{-12} \text{ s}^{-1}$ であるので、Cm粉末の方が90倍大きい。したがって、平成3年の貯蔵開始から平成29年の開封までの26年間は、グラフ上の32日目から138日目までの状態に概ね対応していると考えられる。

近似曲線からの外挿により、32日目から138日目までの密閉容器内圧変化は、9.3 kPaから31.1 kPaに相当し、この間の正味のガス分子発生数は 1.3×10^{21} 個と算出される。一方、この期間のCm粉末の α 崩壊数は 1.10×10^{17} 個である。これらの数値からG値を評価する際に、粉末粒子内で減衰する α 線エネルギーの効果を考慮する必要がある。表②-2は、粒子内で発生する全 α 線エネルギーのうち粒子外(エポキシ樹脂)に付与される割合を、粒子径をパラメータとしてPHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) コード[2]で計算した結果である。この割合を α 崩壊数に乘じ、エポキシ樹脂に付与される実質的なエネルギーの補正を行なった結果、26年間の貯蔵期間に相当する平均のG値として、Cm粉末の粒子径4 μm を仮定した場合に0.18、10 μm を仮定した場合に0.23の値を得た。

表②-2 粒子内で発生する α 線エネルギーのうち粒子外に付与されるエネルギーの割合

粒子直径 (μm)	粒子外に付与されるエネルギーの割合
4	0.889
10	0.701
20	0.425
30	0.293
35	0.231

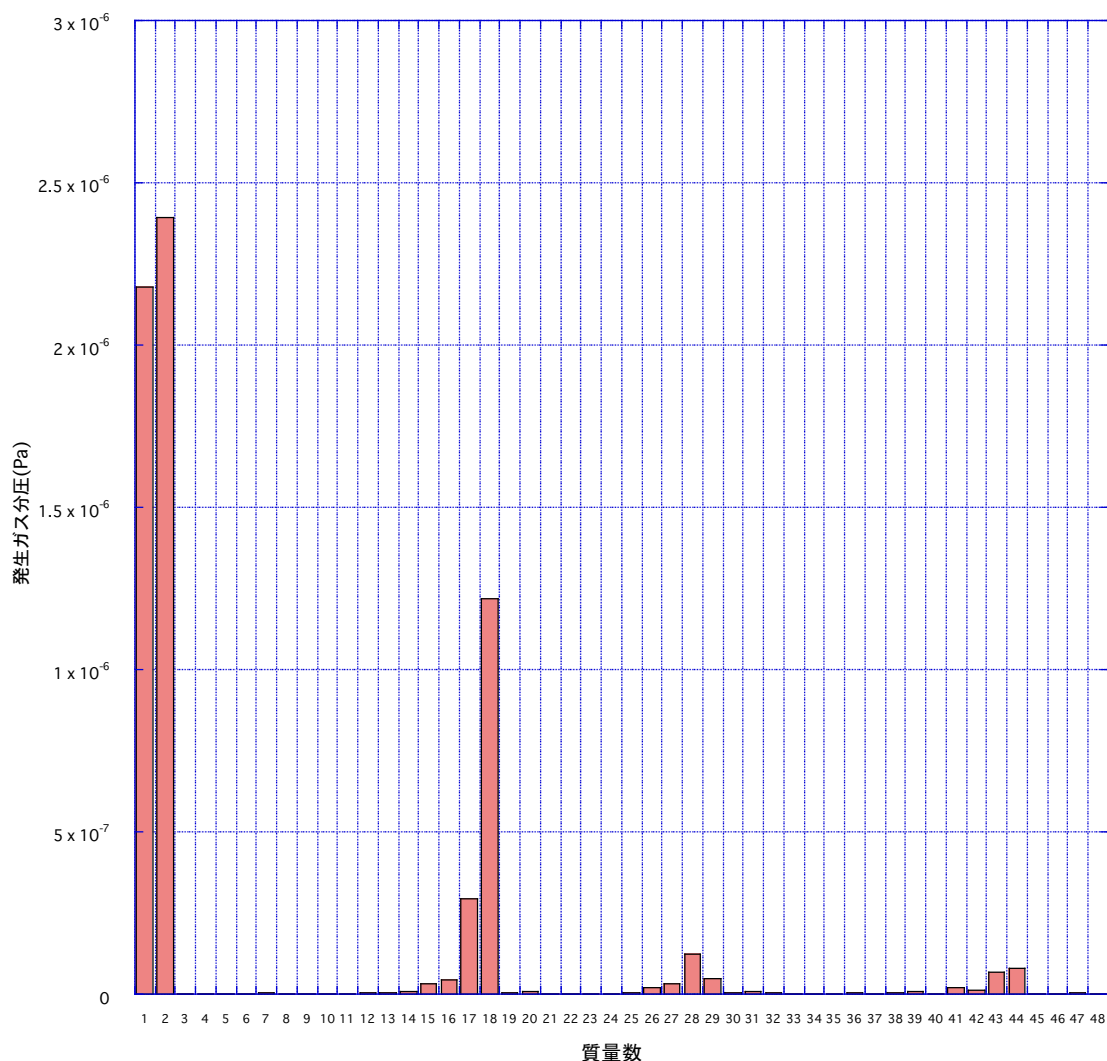
(2) He イオン照射による水素ガス発生G値の評価結果

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

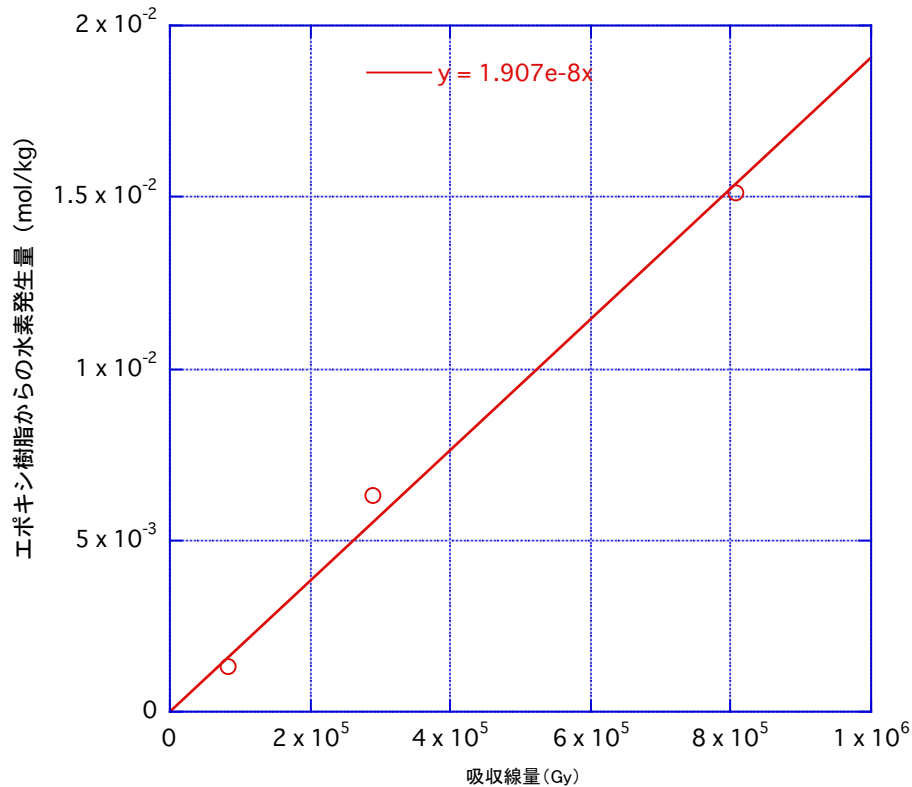
スの分圧をQ-Massで測定した結果を図②-5に示す。水素（質量数1, 2）のほか、水とその分解物（質量数17, 18）が多く発生していることが判る。前者に関しては、樹脂材料が分解した際に発生する水素であり、後者に関しては試料表面に吸着していた水と推察される。その他、放射線分解で発生する分子としては、一酸化炭素（質量数28）、メタンとその分解物（質量数14, 15, 16）、エチレンとその分解物（質量数26, 27, 28）があるが、試料表面に吸着していた窒素（14, 28）、酸素（質量数16, 32）の質量数と一部が同じであるため定量は難しい。また、二酸化炭素（質量数44）の発生も確認された。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。水素発生量が全ガス発生量の83%であることから、全ガス発生に対するG値は、簡易的に $0.18 \times 100 / 83 = 0.22$ となる。



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



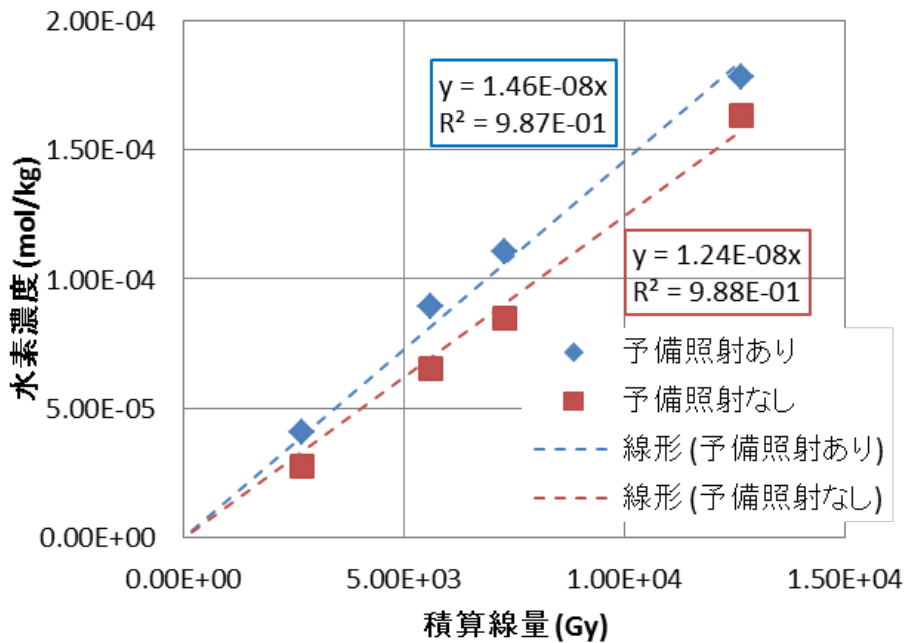
図②-6 エポキシ樹脂に対するヘリウムイオン照射時の水素ガス発生量

(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②-3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の線図の傾きから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当たり70 mLの水素が発生すると推定される。

表②-3 γ 線照射による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したガス発生G値0.18~0.23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ガス発生G値は0.22であり、同程度の値であった。貯蔵容器内の樹脂固化物からのガス発生量評価に際して、ここでは発生ガスの定量分析に基づいているとともに、粒子径に依存しない結果であるHeイオン照射の結果(G値0.22)を用いることとした。発生ガス量の計算には、添付6.4.4に示したPuの同位体組成A~Cの推定平均組成に基づき、Am除去あり/なしの両条件を考慮した。粉末粒子径は、添付6.4.6に示した分析結果を参考に、20 μm と35 μm の2種類に加え、これらよりも小さい10 μm の場合も想定した。貯蔵容器内の核燃料物質全量に対して、平成3年10月の貯蔵開始時から平成8年7月の梱包更新時までと、梱包更新から平成29年6月の蓋開封時までのガス発生量計算結果を表②-4に示す。ガス発生量にはAm除去の有無よりも粉末粒子径が大きく影響することが分かる。

評価上考慮していないが、実際にはガス発生量が低くなる可能性がある要因として以下2点が挙げられる。

- ・ 内圧上昇の効果：Cm粉末の試験に比べて、実際の貯蔵容器内の内圧上昇は10倍以上あったと推測され、その際には発生したガスが放出されず樹脂内に保持される割合が高くなると推測される。
- ・ 粒子近接の効果：PHITSコードでの計算により、エポキシ樹脂内の α 粒子の最大飛程は40 μm 程度である。粉末粒子表面間の距離がこれよりも近い場合は、粉末粒子から出た α 粒子がエネルギーを全て樹脂に付与する前に別の粉末粒子に衝突してエネルギーを失うため、実効的なG値は低くなる。添付6.4.6の観察像では、実際に粉末粒子がかなり近接した試料が見られる。

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1kg当たり70mLの水素ガス発生量であるので、内圧上昇に対する寄与は α 線照射に比べて無視できるほど小さい。

表②-4 貯蔵容器内の樹脂固化物からのガス発生量の評価結果*1

同位体組成条件*2	粉末粒子径 (μm)	平成3年10月～ 平成8年7月の ガス発生量 (L)	平成8年7月～ 平成29年6月の ガス発生量 (L)
組成 A～C の推定平均組成 (Am 除去なし)	10	16.5	79.5
	20	10.0	48.2
	35	5.44	26.2
同 (Am 除去あり)	35	4.54	22.4

*1 ガス体積は標準状態換算 (0°C、1 気圧)、ガス発生 of G 値 0.22 を使用

*2 添付 6.4.4 参照

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の粉末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

貯蔵容器内部の観察の結果、ポリ容器の底部付近から \blacksquare g の粉末が回収された。元素分析の結果、この粉末中の U/Pu 比は、計量管理帳簿に記載の核燃料物質全量の U/Pu 比と整合している。そこで、添付 6.4.4 に示した Pu の平均同位体組成推定値を用い、天然ウランとの混合酸化物を仮定し、化合物組成を $U_{0.734}Pu_{0.266}O_2$ と定めた。Am の除去は行われていないと仮定し、平成 3 年の貯蔵開始から平成 8 年の梱包更新時まで、及び梱包更新時から平成 29 年の蓋開封時までについて、添付 6.4.4 の表 6.4.4-3 に記載の α 崩壊数を基にガス発生量を評価した。酸化物粉末の理論密度を上記同位体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 粒子の飛程は約 10 μ m であるから、単純な幾何学近似と α 線の発生方向から、ポリ容器内面から 5 μ m 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の半分がポリ容器に付与されると仮定した。

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。

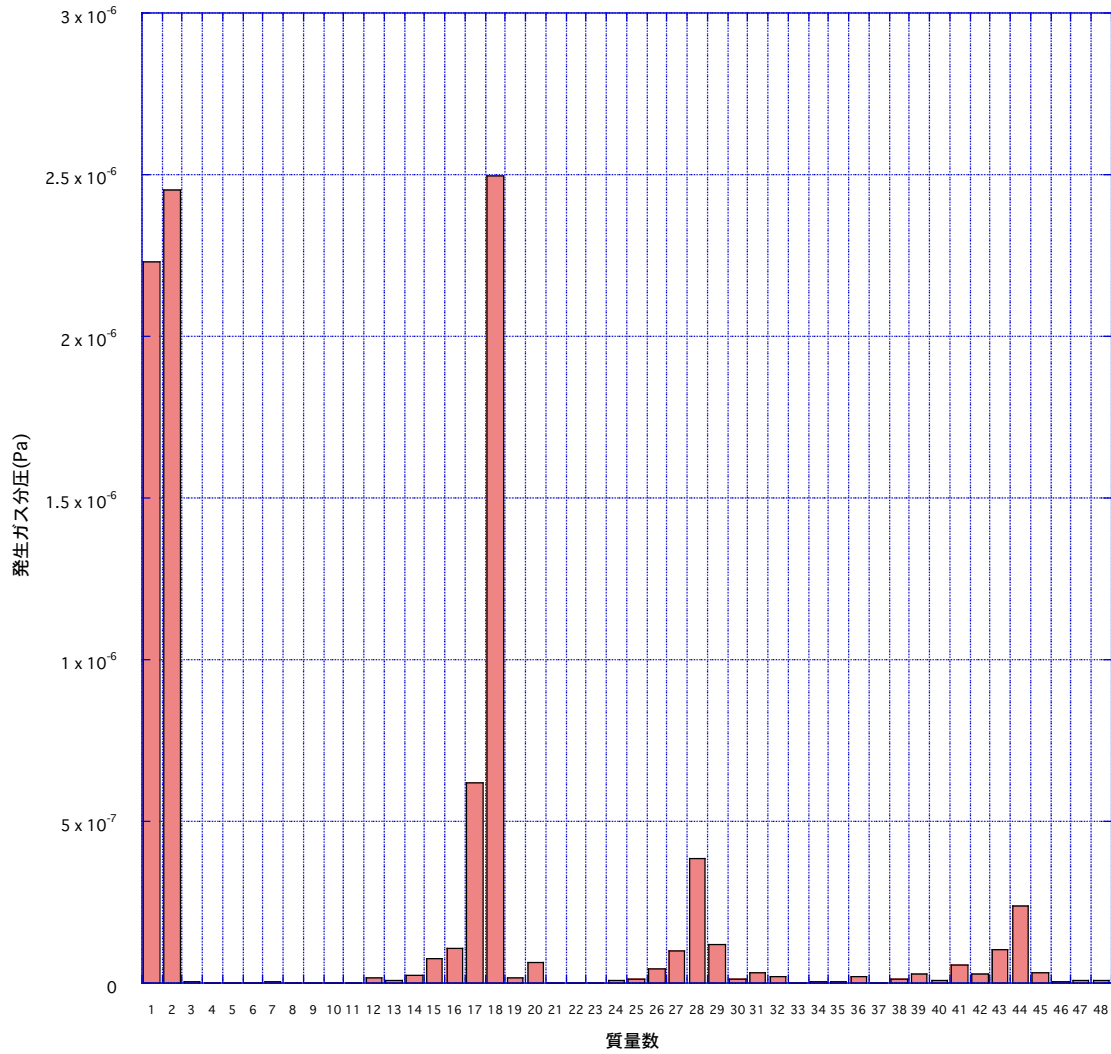
3. 確認・調査結果

(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

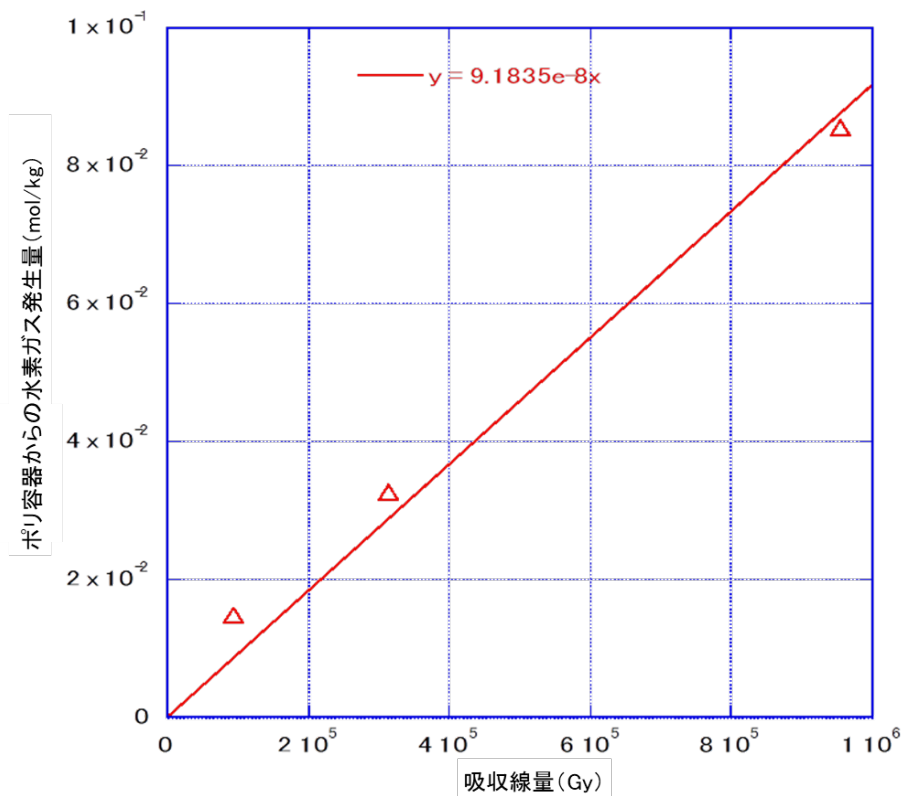
5.5 MeV の He イオン（ビーム電流：約 5 e nA）をポリ容器試料に照射し、その際に発生したガスの分圧を Q-Mass で測定した結果を図③-1 に示す。水素（質量数 1, 2）のほか、水とその分解物（質量数 17, 18）が多く発生していることが判る。前者に関しては、樹脂材料が分解した際に発生する水素であり、後者に関しては試料表面に吸着していた水と推察される。水の生成が多い理由としては、ポリ容器が長期間（26 年以上）大気中で保管されていたことが原因と考えられる。その他、放射線分解で発生する分子としては、一酸化炭素（質量数 28）、メタンとその分解物（質量数 14, 15, 16）、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 μ C～15 μ C）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

同位体組成を考慮した酸化物粉末の理論密度は 11.09 g/cm^3 で、この 40 %の密度で充填された場合の粉末充填体積は $\blacksquare \text{ cm}^3$ である。ポリ容器の底面積 66.48 cm^2 に対して充填高さはわずかに $\blacksquare \text{ mm}$ となるので、ポリ容器と粉末の接触面として底面だけを考える。底面積に $5 \mu\text{m}$ の厚さをかけた有効体積は $3.32 \times 10^{-2} \text{ cm}^3$ で、粉末充填体積に対する割合は \blacksquare である。一方、貯蔵容器中の核燃料物質全量に対する粉末成分中の金属元素重量の割合は \blacksquare である。貯蔵容器内の全 α 崩壊数 (表 6.4.4-3 参照) にこれら 2 つの割合とさらに $1/2$ を乗じると、ポリ容器に入射する α 粒子数が得られ、梱包更新までの 5 年間で \blacksquare 個、梱包更新後の 21 年間で \blacksquare 個となる。

含有する α 崩壊核種の組成と崩壊定数の重みをつけた平均の α 粒子エネルギーは 5.29 MeV である。これと G 値 1.4 を用いて、 α 粒子 1 個当たり発生するガス分子数は 7.41×10^4 個と算出される。この値に上記のポリ容器に入射する α 粒子数を乗じ、発生するガス量として、梱包更新までの 5 年間で 37.5 ml ($1.67 \times 10^{-3} \text{ mol}$)、梱包更新後の 21 年間で 181 ml ($8.07 \times 10^{-3} \text{ mol}$) を得た。

4. 評価結果

貯蔵容器内部の観察結果を基に、ポリ容器底面に U と Pu の混合酸化物が一様に接触していたとして、 α 線分解により発生する標準状態のガス量は、平成 3 年 10 月の貯蔵開始から平成 8 年 7 月の梱包更新時までに 37.5 ml 、梱包更新時から平成 29 年 6 月の蓋開封時までに 181 ml である。

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。

④「混入水分」

1. 確認・調査事項

貯蔵期間（平成 8 年 7 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。

検討に際しては、貯蔵期間（梱包更新～樹脂製の袋の破裂；平成 8 年 7 月～平成 29 年 6 月）内に放射性物質の核壊変に伴う放射線により、粉末試料に吸着されている水分の全量が放射性分解されたと仮定する。

3. 確認・調査結果

現地調査にて、貯蔵容器 No. 1010 のポリ容器内には粉末が [] g あることが確認された。

当該粉末が全て核燃料物質の酸化物であった場合、[] g は約 [] mol (= [] / (238.051 + 15.999 × 2))；核燃料物質の質量数として、核燃料中に最も多く含まれると思われる U-238 の値 238.051 を使用) に相当する。当該粉末には、[] wt%の水分吸着量の場合は [] g ([] mol = [] / (1.008 × 2 + 15.999)) の H₂O が、[] wt%の水分吸着量の場合は [] g ([] mol = [] / (1.008 × 2 + 15.999)) 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 0.00248 mol と 0.00413 mol になり、その体積は標準状態で 0.055 L と 0.093 L となる。

なお、当該貯蔵容器については、平成 8 年 7 月の梱包更新時に開封されており、放射線分解により発生した H₂ 及び O₂ はその際に放出されるが、同時に核燃料物質試料は開封時の環境に含まれる水分を吸着し、梱包更新後にそれを放射線分解するため、梱包更新前と同量の H₂ 及び O₂ ガスが発生し、貯蔵容器内に滞留することになると考えられる。

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 ガスの合計発生量は、水分吸着量を [] wt%とした場合には 0.055 L、水分吸着量を [] wt%とした場合には 0.093 L であり、貯蔵容器内の発生気体滞留可能体積 3.6 L に比して 1.6 % (= 0.055 / 3.6 × 100) ないしは 2.7 % (= 0.093 / 3.6 × 100) となり、樹脂製の袋の内圧上昇への寄与も小さいと考えられる。

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.

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

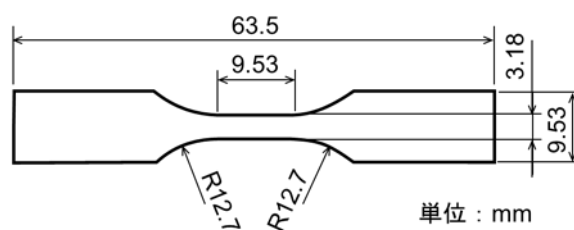
2. 確認調査方法・内容

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。また、追加試験用として、樹脂製の袋（長さ 2.4 m×直径約 54 cm ϕ 、厚さ 0.3 mm、）を長さ 20cm 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 42 枚を打ち抜き、このうち 15 枚を試験に用いた。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、26 年間の積算照射線量に相当する照射線量 360 kGy の照射を行った。また、追加試験として、引張試験片 10 枚を用い、6 kGy/h で 20 時間及び 40 時間照射し、一重目及び二重目の樹脂製の袋の 21 年間の積算照射線量に相当する照射線量 240 kGy 及び 120 kGy の照射を引張試験片 5 枚ずつについてそれぞれ行った。両試験とも、室温で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。照射終了後、外観観察を行った。

2) 引張試験

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。

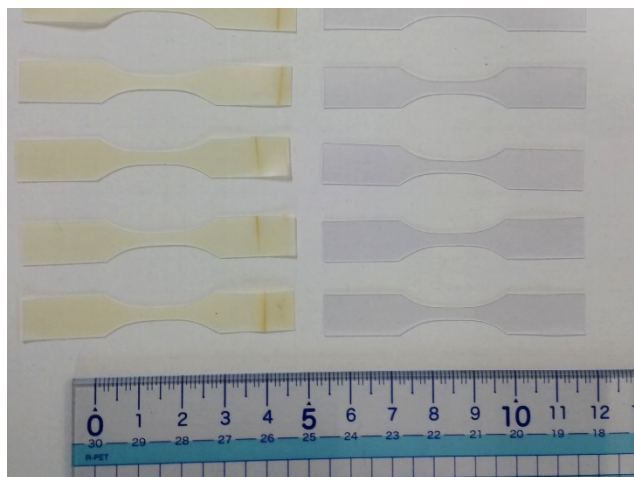
3. 照射線量確認・調査結果

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。図⑭-2 に非照射と照射後の引張試験片の外観観察結果を示す。照射した試験片は茶色く変色が見られ、高照射線量ほど変色の度合いが大きかったが、もろくなるなどの劣化が認められなかった。



(a) 360 kGy 照射した試料（360 kGy 照射）及び非照射の試料（右側の 5 個）



(b) 240 kGy 照射した試料（左上側の 5 個）、120 kGy 照射した試料（右上側の 5 個）
及び非照射の試料（下の 5 個）

図⑭-2 非照射と照射後の引張試験片の外観観察結果

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

一ジ部の幅 3.18 mm、標点間距離 10 mm から求めた引張強度（公称応力）と破断伸び（公称ひずみ）に換算して示す。図⑭-3 に公称の引張強度及び公称の破断伸びの照射線量依存性を示す。この図には、前回実施した 26 年間の積算照射線量に相当する 360 kGy の γ 線照射後の引張試験結果も示している。樹脂製の袋の引張強度及び破断伸びは、照射線量が増加するにしたがってほぼ比例して低下している。360 kGy の γ 線照射により、樹脂製の袋の引張強度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。120 kGy の γ 線照射により、樹脂製の袋の引張強度は非照射に比べて公称応力値として 23.8 MPa から 20.2 MPa に約 15 %低下し、240 kGy では 17.8 MPa に約 25 %低下した。また破断伸びは破断時の公称ひずみ値として、120 kGy では 340 %から 308 %に約 9 %低下し、240 kGy では 270 %となり、約 21 %低下した。

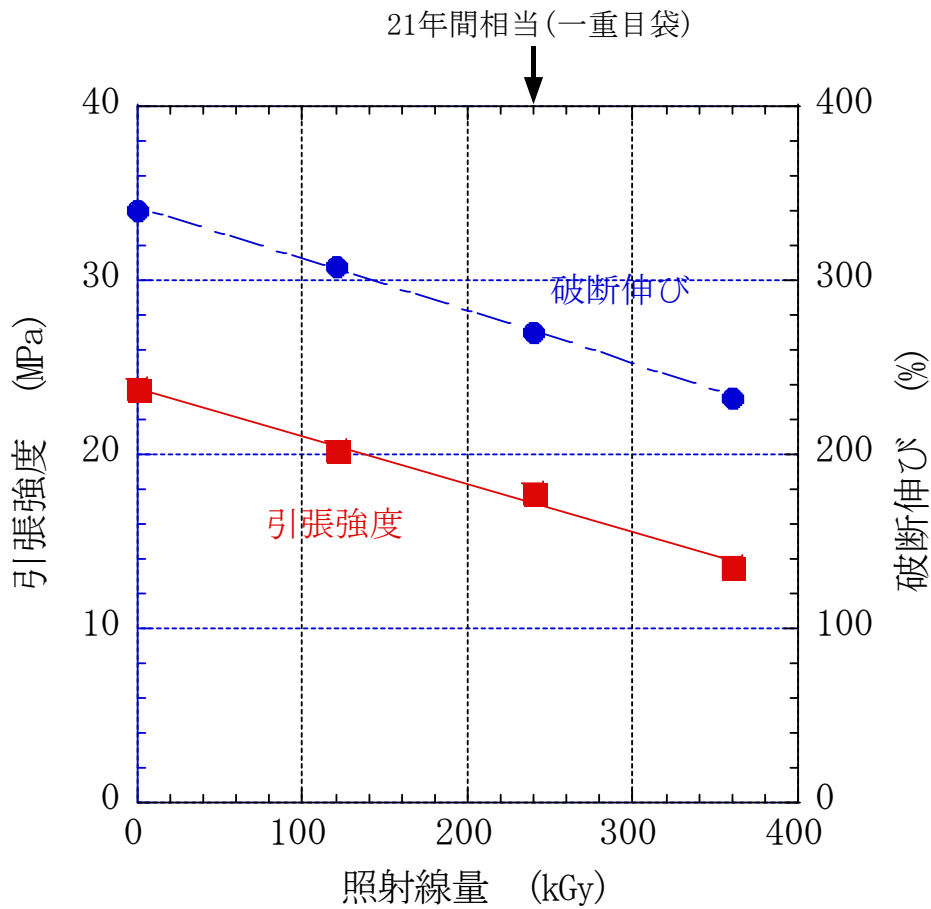
表⑭-1 樹脂製の袋の非照射及び照射後引張試験結果

(a) 360 kGy 照射の場合

	引張強度 (公称応力、MPa)		破断伸び (公称ひずみ、%)	
	非照射	360 kGy 照射	非照射	360 kGy 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

(b) 120 kGy 及び 240 kGy 照射の場合

	引張強度 (公称応力、MPa)			破断伸び (公称ひずみ、%)		
	非照射	120 kGy 照射	240 kGy 照射	非照射	120 kGy 照射	240 kGy 照射
No. 1	25.1	20.5	17.9	330	310	280
No. 2	22.5	19.9	18.4	350	310	270
No. 3	23.8	20.5	17.3	350	300	270
No. 4	23.4	19.5	17.2	340	310	260
No. 5	23.9	20.5	18.3	330	310	270
平均	23.8	20.2	17.8	340	308	270



図⑭-3 樹脂製の袋の引張強度及び破断伸びの照射線量依存性

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度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。120 kGy の γ 線照射により、樹脂製の袋の引張強度は非照射に比べて約 15 % 低下し、240 kGy では約 25 % 低下した。また破断伸びは 120 kGy の γ 線照射では非照射に比べて約 9 % 低下し、240 kGy では約 21 % 低下した。

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（Pu（Pu の崩壊による U 及び 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 7.1.2-1 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 7.1.2-1 の組成の核燃料物質（Pu（Pu の崩壊による U 及び 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 7.1.2-1 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（Pu（Pu の崩壊による U 及び 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 7.1.2-2 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（Pu（Pu の崩壊による U 及び 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（Pu（Pu の崩壊による U 及び 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)

表 7.1.2-1 収納されている可能性のある核燃料物質 (Pu (Pu の崩壊による U 及び 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	■

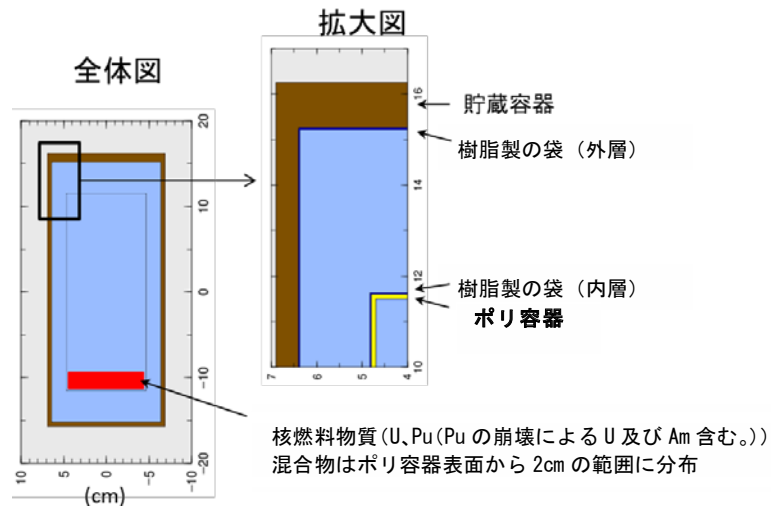


図 7.1.2-1 計算に用いたポリ容器、樹脂製の袋、貯蔵容器の寸法と核燃料物質 (Pu (Pu の崩壊による U 及び Am 含む。)) 混合物の配置

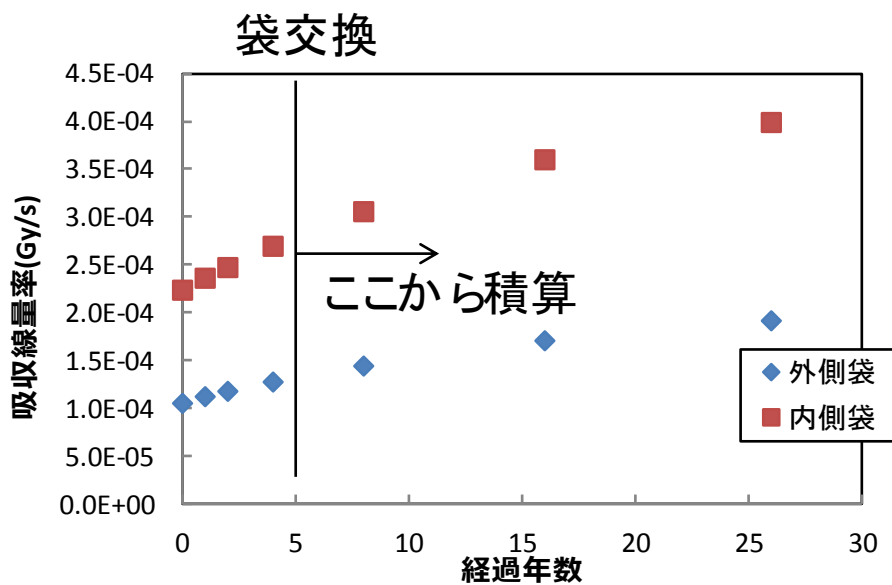


図 7.1.2-2 経過年数に対する吸収線量率の変化

核物質防護上の観点から ■ 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 γ 線照射後の樹脂製の袋（二重梱包）を用いた破裂挙動評価

本報告では、既報（法令報告第2報）にて実施した「樹脂製の袋の強度評価」（本報告に後述する「参考資料：樹脂製の袋の強度評価（法令報告再2報）を参照」）に引き続き、事故後の調査において得られた当該樹脂製の袋の寸法等の情報を基に試験体系を見直して試験を実施した。また、既報では未照射の樹脂製の袋を用いて破裂事象の基本的な挙動を中心に評価を行ったが、本試験では当該破裂事象の樹脂製の袋の寸法等の情報を反映し、また、量研 高崎研にて一重目及び二重目の樹脂製の袋にそれぞれ当該樹脂製の袋が貯蔵容器内で21年間照射された分に相当する γ 線照射を行うことによって、より事象発生時の状態に近い体系での試験を実施した。

2. 確認調査方法・内容

2.1 γ 線照射後の樹脂製の袋（二重梱包）を用いた破裂挙動評価

(1) [検証試験]

1) 試料準備

事故後の調査結果として、当該樹脂製の袋の寸法（溶着部の内寸、一重目：縦 450 mm × 横 160 mm、二重目：縦 370 mm × 横 205 mm）が得られており、また、準備した試験用の金属製容器の寸法（ ϕ 133 mm × h 250 mm）が実際の貯蔵容器の寸法（入口径 ϕ 120 mm × h 302 mm）と若干異なることから、試験用の樹脂製の袋の縮尺（溶着部の内寸）はこれらの比を合わせて以下のとおりとした。（図 7. 1. 3-1） 試験時に二重梱包の袋をステンレス缶に装荷する際は袋を図 7. 1. 3-2 のようにした。

- ・一重目の縦：450 mm × (250 mm / 302 mm) \approx 370 mm
- ・一重目の横：160 mm × (133 mm / 120 mm) \approx 175 mm
- ・二重目の縦：370 mm × (250 mm / 302 mm) \approx 310 mm
- ・二重目の横：205 mm × (133 mm / 122 mm) \approx 230 mm

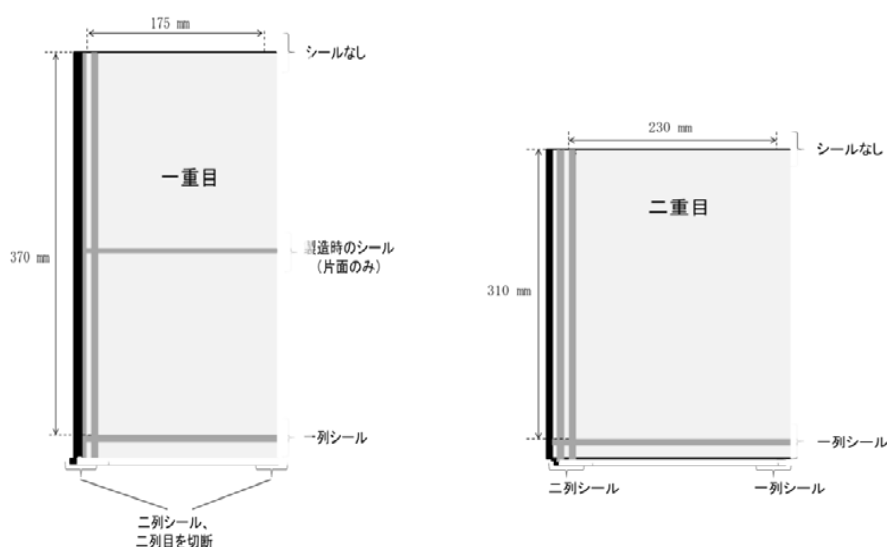


図 7. 1. 3-1 試験用樹脂製の袋の概略図（左図：一重目，右図：二重目）

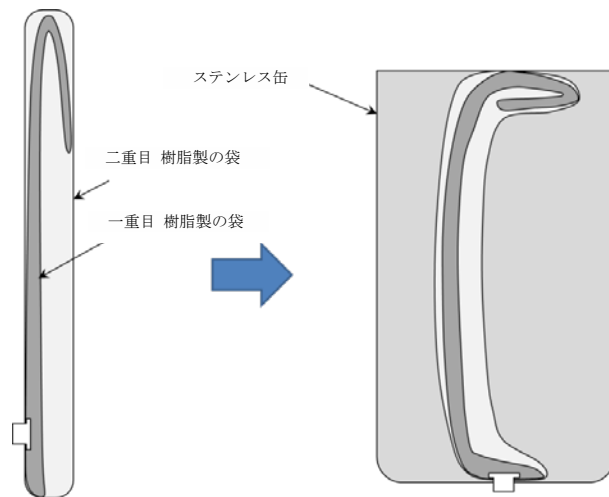


図 7. 1. 3-2 二重梱包の概略図

本試験で使用した照射済の樹脂製の袋は、上記の寸法で作製した袋を量研 高崎研の食品照射棟第2セルにて照射した。一重目及び二重目の袋についてそれぞれ 6 kGy/h で 40 時間及び 20 時間の照射とし、一重目は 240 kGy、二重目は 120 kGy とした。(それぞれの 21 年間分の照射量に相当)

2) 破裂試験

① 試験①：二重梱包、蓋なし試験

試験①では二重梱包とした照射済樹脂製の袋をステンレス缶に収納し、蓋がない体系での破裂試験を実施した (図 7. 1. 3-3)。

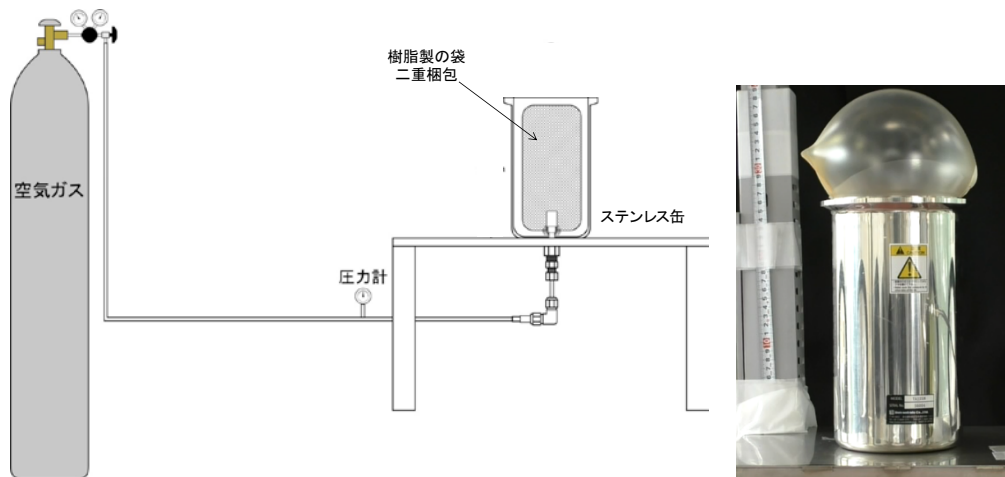


図 7. 1. 3-3 試験①の概略図と試験時の写真

② 試験②：二重梱包、蓋あり試験（チェーンで蓋を拘束）

試験②では二重梱包とした照射済樹脂製の袋をステンレス缶に収納し、蓋をチェーンで拘束し、樹脂製の袋が膨らむことより蓋が僅かに開く体系での破裂試験を実施した（図 7.1.3-4）。

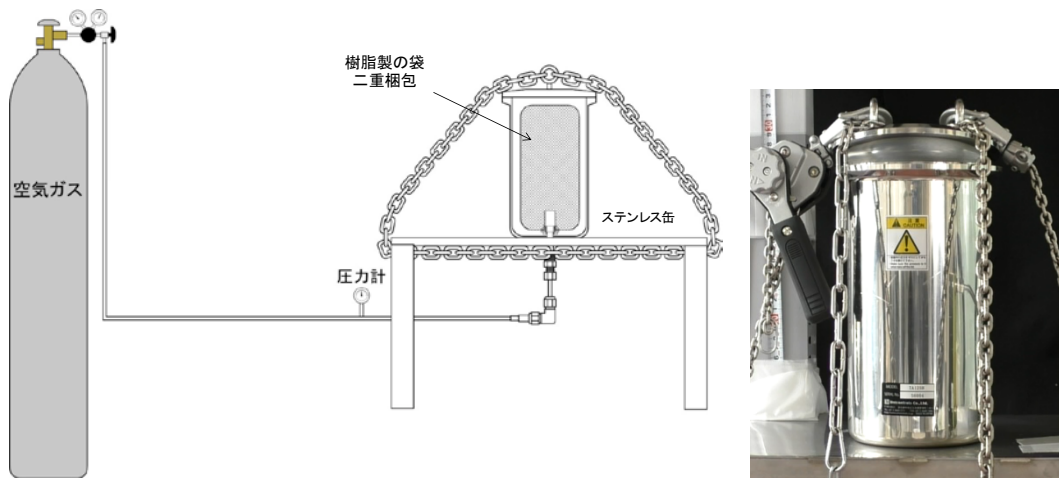


図 7.1.3-4 試験②の概略図と試験時の写真

③ 試験③：二重梱包、蓋あり試験（クランプリングで蓋を拘束）

試験③では二重梱包とした照射済樹脂製の袋をステンレス缶に収納し、蓋をクランプリングで拘束した。樹脂製の袋の膨らみでは蓋は開かず、クランプリング固定用の蝶ねじに取り付けたワイヤーを引っ張ることで、クランプリングが外れ、樹脂製の袋が急激に膨らむことにより蓋が外れる体系での破裂試験とした（図 7.1.3-5）。

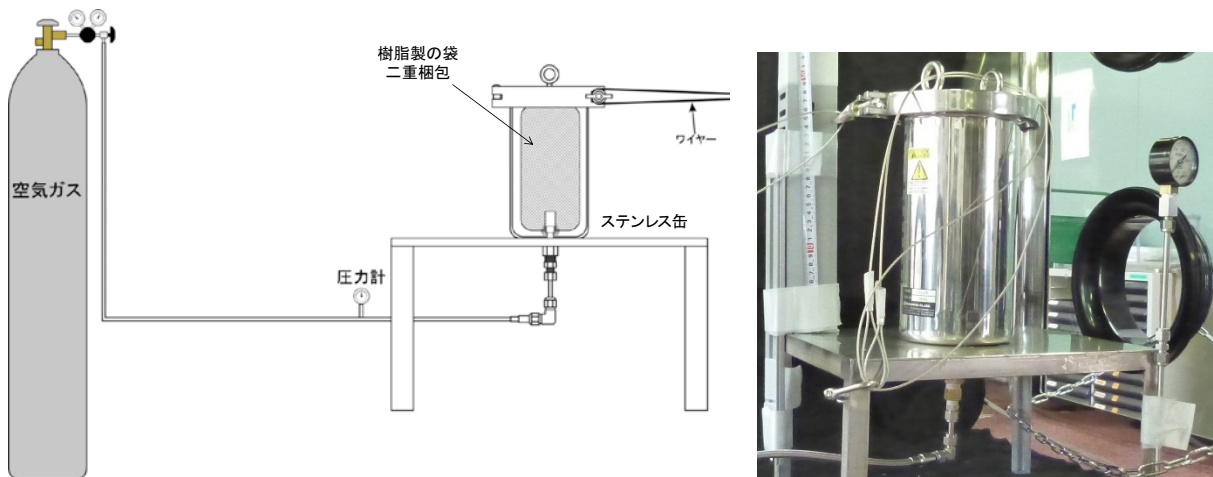


図 7.1.3-5 試験③の概略図と試験時の写真

3. 確認・調査結果

3.1 γ線照射後の樹脂製の袋（二重梱包）を用いた破裂挙動評価

(1) [検証試験]

1) 試験①：二重梱包、蓋なし試験

試験結果を表 7.1.3-1 に示す。

表 7.1.3-1 試験①の結果【二重梱包、蓋なし試験】

試験 No.	試験結果										破損位置
	破裂までの時間 (秒)		破裂時配管内絶対圧 (気圧) ^{※2}		破裂箇所		破裂箇所の形状		破裂箇所の大きさ (mm)		
1	510	290	1.4	1.8	A	A	直線	直線	110	100	
2	300	260	1.5	1.8	A	A	直線	直線	90	120	

※1 破線の左は一重目、右は二重目の結果

※2 測定した圧力は大気圧との差（圧力計のゲージ圧）であり、ゲージ圧=(絶対圧-1 [気圧])/10 [MPa]である

本条件では蓋がない上部から樹脂製の袋が大きくはみ出して膨らみ、二重目が破裂、その後、一重目が破裂した（図 7.1.3-6）。二重目、一重目ともに上部の中央部で破裂し、破裂箇所の形状は直線状であった。また、一重目と二重目の破裂により大きな破裂音が 2 回聞こえた。試験 No.2 の破裂後の写真を図 7.1.3-7 に示す。蓋の拘束が無い条件では二重目、一重目がそれぞれ大気圧 +0.08 MPa (1.8 気圧)、大気圧+0.04~0.05 MPa (1.4~1.5 気圧) で破裂する結果を得た。

二重目が破裂する際は一重目も耐圧に寄与していることから、二重目の破裂する際の圧力が一重目のそれよりも高いと考えられる。これより、蓋の拘束が無い条件では樹脂製の袋の破裂には約 1.5 気圧以上の圧力が必要であると推測される。

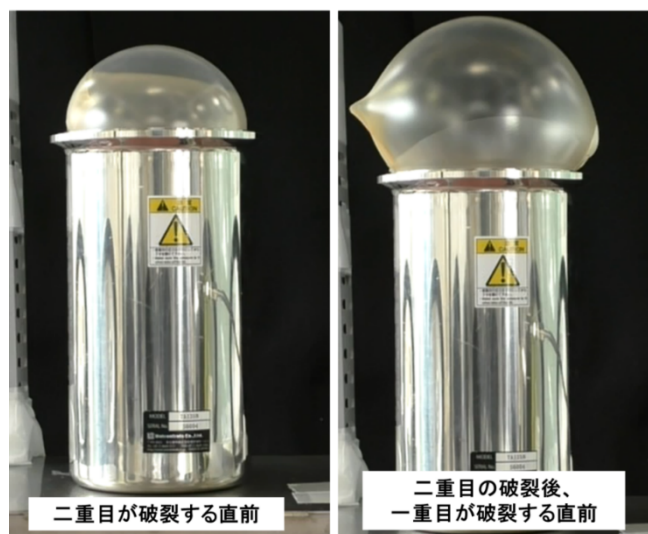


図 7.1.3-6 試験①-No.2 の破裂直前の写真



図 7.1.3-7 試験①-No. 2 の試験後の写真（左図：二重目、右図：一重目）

2) 試験②：二重梱包、蓋あり試験（チェーンで蓋を拘束）

試験結果を表 7.1.3-2 に示す。

表 7.1.3-2 試験②の結果【二重梱包、蓋あり試験（チェーンで蓋を拘束）】

試験 No.	試験結果										破損位置	
	破裂までの 時間（秒）		破裂時配管内 絶対圧（気圧）※2		破裂箇所		破裂箇所 の形状		破裂箇所の 大きさ（mm）		樹脂製の袋	ステンレス缶
1	981	980	3.6	3.8	A	A	直線	直線	40	100		
2	595	590	2.6	2.8	A	A	直線	直線	32	105		
3	780	780	4.2	4.2	A	A	直線	直線	70	80		

※1 破線の左は一重目、右は二重目の結果

※2 測定した圧力は大気圧との差（圧力計のゲージ圧）であり、ゲージ圧=（絶対圧-1 [気圧]）/10 [MPa]である

本条件では、二重目が破裂し、その後一重目が破裂するか、同時に破裂する結果となった（図 7.1.3-8）。試験 No. 1 の破裂後の写真を図 7.1.3-9 に示す。本試験では二重目、一重目ともにステンレス缶の蓋の隙間で膨らみが大きくなり、頂部の生地部分で破裂した。破裂箇所の形状は直線状になり、破裂時は一重目、二重目ともに大きな破裂音が聞こえた。二重目の破裂穴と一重目の破裂穴はほぼ重なっており、二重目の破裂穴から一重目が僅かに外に出ていた。本試験での破裂時の圧力は 2.6 気圧（ゲージ圧：0.16 MPa）から 4.2 気圧（ゲージ圧：0.32 MPa）と比較的に高い圧力が必要であること、破裂時の容器と蓋の隙間が小さいと破裂時のゲージ圧は大きくなる傾向があること、破裂時の圧力に大きな幅があることが分かった。

図 7.1.3-10 に試験②-No. 2 の破裂時に観測された煙の写真を示す（写真の右上部）。本試験において破裂時にこのような“煙”が観察されており、試験時の樹脂製の袋の内圧が高い場合には比較的明確に観察され、内圧が低い場合は観察しにくい傾向にあった。また、この煙は約 1 秒以内で拡散し見えなくなった。これは樹脂製の袋内の空気中の水蒸気が破裂する際の断熱膨張により急激に冷却されて水滴になり、その後、周囲の温度により再度水蒸気に戻り消えるためと考えられる。

上記、本試験における“煙”の発生については、「添付 6.4.7 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」の「(4) 破裂後の状況や処置について」において「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。」との証言と一致する。



図 7. 1. 3-8 試験②-No. 3 の破裂直前の写真

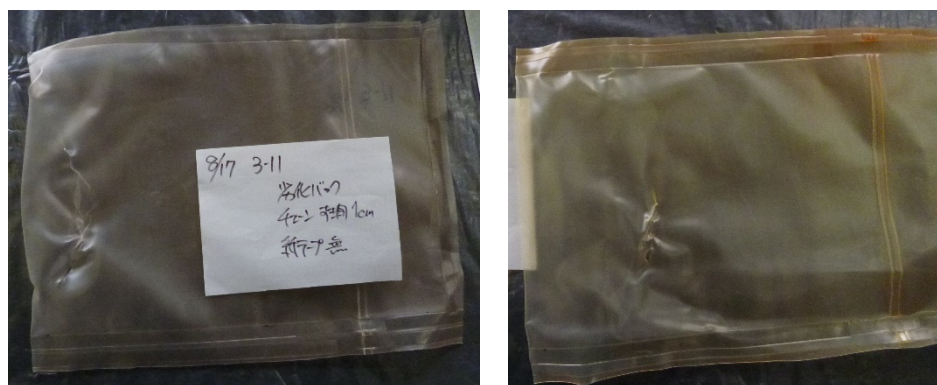


図 7. 1. 3-9 試験②-No. 1 の試験後の写真（左図：二重目、右図：一重目）



図 7. 1. 3-10 試験②-No. 2 の破裂時に観測された煙の写真

3) 試験③：二重梱包、蓋あり試験（クランプリングで蓋を拘束）

試験結果を表 7. 1. 3-3 に示す。

表 7. 1. 3-3 試験③の結果【二重梱包、蓋あり試験（クランプリングで蓋を拘束）】

試験 No.	試験結果										破損位置
	破裂までの時間 (秒)		破裂時配管内絶対圧 (気圧) ^{※2}		破裂箇所		破裂箇所の形状		破裂箇所の大きさ (mm)		
1	1	0	2.5	2.5	B	A	直線	直線	20	110	
2	無	0	無	2.6	無	A	無	放射	無	90	
3	無	0	無	2.8	無	A	無	放射	無	80	
4	0	0	4.0	4.0	B	A	直線	放射	200	90	
5	0	0	4.0	4.0	B	A	直線	放射	180	80	

※1 破線の左は一重目、右は二重目の結果

※2 測定した圧力は大気圧との差（圧力計のゲージ圧）であり、ゲージ圧=（絶対圧-1 [気圧]）/10 [MPa]である

本試験ではクランプリング解除後、開放部で樹脂製の袋全体が大きくはみ出して膨らみ、二重目は上部中央付近で破損した。試験 No. 4 及び No. 5 では一重目が二重目とほぼ同時に破裂し、破裂音は1回であった。また、一重目の樹脂製の袋が縦方向の溶着部で大きく裂け、破裂事象発生時の状況と類似した袋の破損状態となったことを確認した。この際の圧力は4気圧（ゲージ圧：0.3MPa）であった。破裂状況の例として試験 No. 4 の試験後の樹脂製の袋の写真を図 7. 1. 3-11 に、事象発生時の当該樹脂製の袋の観察結果を図 7. 1. 3-12 に示す。試験 No. 1 では2.5気圧（ゲージ圧：0.15MPa）で一重目が溶着部から2cm程度の幅で破損し、試験 No. 2 及び No. 3 では2.6、2.8気圧でも破裂しないという結果になった。

上記の結果から、事象発生時の破裂状況に近い模擬試験において、破裂時の圧力としては2.5気圧付近の圧力を超えると破裂事象発生時の状況と類似した事象が発生し始めると推測され、また、4気圧付近では事象発生時の当該樹脂製の袋の破損状態を再現するような状態を確認できた。



図 7. 1. 3-11 試験③-No. 4 の試験後の写真（左図：二重目、右図：一重目）

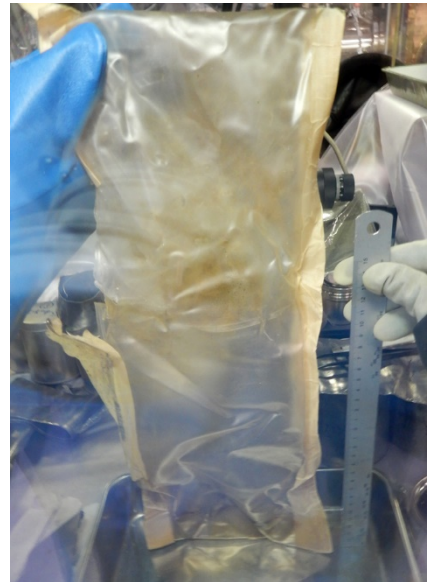
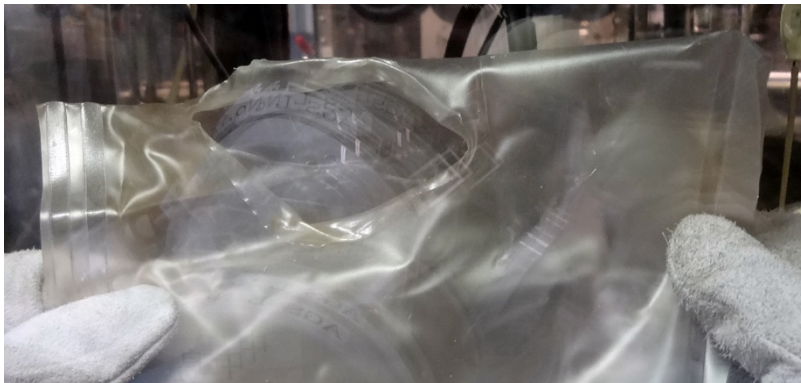


図 7.1.3-12 事象発生時の当該樹脂製の袋の観察結果（左図：二重目，右図：一重目）

4. 評価結果

4.1 γ 線照射後の樹脂製の袋（二重）を用いた破裂挙動評価

本試験は、事象発生後の調査結果として、当該樹脂製の袋の寸法が得られたことから、これらの情報（一重目、二重目の当該樹脂製の袋の寸法等）を反映した試験を実施した。

本試験は量研 高崎研にて照射量が一重目は 240 kGy、二重目は 120 kGy（それぞれ、6 kGy/h \times 40、20 時間）の照射を行った樹脂製の袋を用いて実施した。機械的強度については「添付 7.1.1 ⑭樹脂製の袋の γ 線による劣化」において評価されており、照射済樹脂製の袋の引張強さについては、240 kGy 照射された袋（一重目）が約 25 %の低下、120 kGy 照射された袋（二重目）が約 15 %の低下としている。また、破断伸びについては、240 kGy 照射された袋（一重目）が約 21 %の低下、120 kGy 照射された袋（二重目）が約 9 %の低下としている。これらは「添付 7.1.1 ⑭樹脂製の袋の γ 線による劣化」に記載されている 360 kGy で照射された樹脂製の袋の引張強さや破断伸びも含めて比較するとそれぞれが照射量にほぼ比例して物性値が低下していることがわかる。

「試験①：二重梱包、蓋なし試験」では、蓋がない上部から樹脂製の袋が大きくはみ出して膨らみ、二重目が破裂、その後 10 秒程度の間において一重目が破裂した。二重目、一重目ともに上部の中央部で破裂し、破裂箇所の形状は直線状であった。また、一重目と二重目の破裂により大きな破裂音が 2 回聞こえた。蓋の拘束が無い条件では二重目、一重目がそれぞれ大気圧+0.08 MPa（1.8 気圧）、大気圧+0.04~0.05 MPa（1.4~1.5 気圧）で破裂する結果を得た。二重目が破裂する際は一重目も耐圧に寄与していることから、二重目の破裂する際の圧力が一重目のそれよりも高いと考えられる。

「試験②：二重梱包、蓋あり試験（チェーンで蓋を拘束）」では、二重目が破裂し、その後一重目が破裂する、もしくは同時に破裂する結果となった。破裂時は二重目、一重目ともにステンレス缶の蓋の隙間で膨らみが大きくなり、頂部の生地部分で破裂した。破裂箇所の形状は直線状になり、一重目と二重目の破裂により大きな破裂音が 2 回聞こえた。破裂時の圧力は 2.6 気圧（ゲージ圧：0.16 MPa）から 4.2 気圧（ゲージ圧：0.32 MPa）と比較的に高い圧力が必要であること、破裂時の容器と蓋の隙間が小さいと破裂時のゲージ圧は大きくなる傾向があること、破裂時の圧力に大きな幅があることが分かった。また、今回の試験において破裂後約 1 秒内において“煙”が観察されており、試験時の樹脂製の袋の内圧が高い場合には比較的明確に観察され、内圧が低い場合は観察しにくい傾向にあった。これは樹脂製の袋内の空気中の水蒸気が破裂する際の断熱膨張により急激に冷却されて水滴になり、その後、周囲の

温度により再度水蒸気に戻り消えるためと考えられる。

「試験③：二重梱包、蓋あり試験（クランプリングで蓋を拘束）」では、クランプリング解除後、開放部で樹脂製の袋全体が大きくはみ出して膨らみ、二重目は上部中央付近で破裂した。ゲージ圧が比較的に高かった試験（絶対圧：4 気圧、ゲージ圧：0.3 MPa）では一重目が二重目とほぼ同時に破裂し、破裂音は一回であった。また、一重目の樹脂製の袋が縦方向の溶着部で大きく裂け、破裂事象発生時の状況と類似した袋の破損状態となったことを確認した。同様な試験結果は絶対圧：2.5 気圧（ゲージ圧：0.15 MPa）でも観察されたが、一重目が溶着部から 2 cm 程度の幅で破損しており、事象発生時の当該樹脂製の袋（一重目）の破損の大きさに比べて小さい。また、これよりもゲージ圧が若干高い試験（絶対圧：2.6、2.8 気圧）では一重目の樹脂製の袋が膨らむだけで破裂しないという結果になった。これらより、2.5 気圧付近の圧力を超えると破裂事象発生時の状況と類似した事象が発生し始めると推測され、4 気圧付近では事象発生時の当該樹脂製の袋の破損状態を再現するような状態を確認できた。

樹脂製の袋の内圧の計算

1. 確認・調査事項

樹脂製の袋の内圧上昇による破裂の主な原因は、エポキシ樹脂の α 線による分解ガスであることを特定し、推定シナリオを構築した。本文に記載した推定シナリオに沿った樹脂製の袋の内圧上昇の経時変化を計算した。

2. 確認調査方法・内容

2.1 内圧計算手順

本文に記載の推定シナリオに沿って、樹脂製の袋及び貯蔵容器の O-リングを通した発生ガスの漏えいを考慮して、数値解析により樹脂製の袋の内圧経時変化を計算した。計算モデル及び手順をそれぞれ図 7.1.4-1 及び図 7.1.4-2 に示す。エポキシ樹脂等からのガス発生 (①)、発生ガスによる樹脂製の袋の内圧上昇と樹脂製の袋を通した貯蔵容器内部への漏えい (②)、貯蔵容器内部の内圧上昇と貯蔵容器 O-リングを通した貯蔵容器外へのガスの漏えい (③)、その結果生じる樹脂製の袋の内圧変化と容積 (発生気体滞留可能体積) 変化、及び袋-貯蔵容器間領域の内圧変化と容積 (発生気体滞留可能体積) 変化 (④) を 1 日間の時間幅で行い、21 年間分の計算を繰り返した。

なお、1 日間の時間幅による数値解析手法は、ガスの発生と樹脂製の袋の透過からなる体系に対して行った数値解析の結果と解析解が一致することから、妥当であると考えられる。以下に①～④の各手順における計算内容を示す。

- ① α 線によりエポキシ樹脂及びポリ容器が分解することによる日ごとのガス発生量を(1)式により計算した。

$$s_i = \frac{V_{gas,i}}{t} \quad (1)$$

ここで、

s_i : 日ごとのガス発生量 (cm³)

$V_{gas,i}$: ガス種 i の貯蔵開始から貯蔵容器開封までの全発生ガス量 (cm³)

t : 貯蔵開始から貯蔵容器開封までの期間 (21 年間)

- ② 樹脂製の袋内部におけるガス種 i の t 日後のガス分圧 $P_{pvc,i,t}$ を(2)式により計算した。右辺第一項は前日のガス分圧、第二項は発生したガスと樹脂製の袋を通して袋-貯蔵容器間に漏えいしたガスの分圧を示す。

なお、ガスはポリ容器から漏えいするものとし、圧力計算においてポリ容器の影響は考慮しなかった。

$$P_{pvc,i,t} = P_{pvc,i,t-1} + \frac{s_i - GTR_{pvc,i} (P_{pvc,i,t-1} - P_{cont,i,t-1})}{V_{pvc,t-1}} P^0 \quad (2)$$

ここで、

$P_{pvc,i,t}$: 樹脂製の袋内部におけるガス種 i の t 日後の分圧 (atm)

$V_{pvc,t}$: 樹脂製の袋内部における t 日後の発生気体滞留可能体積 (cm^3)

$GTR_{pvc,i}$: 樹脂製の袋に対するガス種 i の 1 日当たりの透過係数 (cm^3/atm)

$P_{cont,i,t}$: 袋-貯蔵容器間における t 日後のガス種 i の分圧 (atm)

P^0 : 大気圧 (atm)

- ③ 袋-貯蔵容器間におけるガス種 i の t 日後のガス分圧 $P_{cont,i,t}$ を(3)式により計算した。右辺第一項は前日のガス分圧、第二項は樹脂製の袋を通して袋-貯蔵容器間に漏えいしたガスと貯蔵容器 O-リングを通して貯蔵容器外に漏えいしたガスの分圧を示す。

$$P_{cont,i,t} = P_{cont,i,t-1} + \frac{GTR_{pvc,i}(P_{pvc,i,t-1} - P_{cont,i,t-1}) - (GTR_{Oring,i}P_{cont,i,t-1})}{V_{cont,t-1}} P^0 \quad (3)$$

ここで、

$V_{cont,t}$: 袋-貯蔵容器間における t 日後の発生気体滞留可能体積 (cm^3)

$GTR_{Oring,i}$: 貯蔵容器 O-リングに対するガス種 i の 1 日当たりの透過係数 (cm^3/atm)

- ④ ②及び③のガス物質収支 (内圧変化) に応じた樹脂製の袋の容積 (発生気体滞留可能体積) を(4)式、袋-貯蔵容器間の容積 (発生気体滞留可能体積) を(5)式により計算した。

$$V_{pvc,t} = \frac{P_{pvc,t}V_{pvc,t-1}}{(P_{pvc,t} + P_{cont,t})/2} \quad (4)$$

$$V_{cont,t} = V^0 - V_{pvc,t} \quad (5)$$

ここで、

V^0 : 貯蔵容器内の発生気体滞留可能体積 (cm^3)

- ⑤ ①～④を 1 日間の時間幅で 21 年間分の計算を繰り返し、貯蔵開始後約 21 年間の樹脂製の袋の内圧を(6)式により計算した。

$$P_{pvc} = \sum_i \sum_t P_{pvc,i,t} \quad (6) \text{式}$$

ここで、

P_{pvc} : 貯蔵開始後約 21 年後の樹脂製の袋の内圧 (atm)

2.2 内圧計算条件

(1) ガス発生量計算条件

(1)式で用いるガス発生量の計算条件を表 7.1.4-1 に示す。ガスの発生量は、内圧上昇への影響度が大きいエポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生量 (添付 7.1.1 ②) とポリ容器の α 線分解によるガス発生量 (添付 7.1.1 ③) から求めた。また、添付 7.1.1 ②及び③におけるガス発生量は、

標準状態（0℃、1 気圧）において算出された値であるため、内圧計算では 25℃における換算値を用いた。Pu 粒子径及び貯蔵前の Am-241 の除去の有無をガス発生量計算のパラメータとし、内圧が最大となるケース A（21 年間で 87.0 L）、標準となるケース B（21 年間で 52.8 L）、内圧が最小となるケース C（21 年間で 24.6 L）を設定した。

(2) 圧力計算条件

(2)～(5)式で用いる圧力計算（発生気体滞留可能体積）条件を表 7.1.4-2 に示す。樹脂製の袋は発生したガスにより内部の圧力が高くなり、図 7.1.4-1 に示すように膨張し、袋が伸長することでほぼ貯蔵容器内容積一杯（3387 cm³）まで膨張するものとした。

なお、現地調査の結果より、一重目の樹脂製の袋の縦寸法が二重目の袋のものよりも長いことが分かり、二重目の樹脂製の袋の頂部を一重目の樹脂製の袋が突き破っていたが、二重目の樹脂製の袋の破裂時期については特定困難であるため、ここでは貯蔵容器開封時まで一重目と二重目の樹脂製の袋と一緒に膨張・伸長するものと仮定した。

(3) 透過量計算条件

(2)、(3)式で用いる透過量計算条件を表 7.1.4-3 に示す。樹脂製の袋及び貯蔵容器 O-リングを通したガスの透過量は、水素ガス及びメタンガスの透過係数[1-4]をそれぞれ用いて計算した。ケース A においては、O-リングが高圧により貯蔵容器蓋-容器間の隙間（1 mm 幅）に入った場合を想定し、漏えい面積を小さく設定した。ケース C においては、O-リングの透過係数が最大となる文献値を使用した。

なお、貯蔵容器内外において分圧が変わらない空気（窒素及び酸素）の漏えいは考慮しなかった。

3. 確認・調査結果

図 7.1.4-3 及び表 7.1.4-2 にそれぞれ貯蔵期間中における樹脂製の袋の内圧経時変化（絶対圧）の計算結果及び貯蔵開始後約 21 年の時点における内圧計算結果を示す。内圧が最大となるケース A で 24.6 気圧、最小となるケース C で 4.6 気圧となった。この内圧は、添付 7.1.3 に示す貯蔵容器開封時に類似した樹脂製の袋の破裂又は破損状況をもたらす内圧である 2.5 気圧を超えた。

なお、本計算で考慮したパラメータ以外にも、長時間のα線照射により G 値が変化すること、エポキシ樹脂に含有される核燃料物質粉末自身の遮蔽効果、高圧下でのエポキシ樹脂内における発生ガスの保持、O-リングのシール性能劣化等、不確かさが大きく内圧上昇を低下させる因子がいくつかあるが、これらを定量的に評価することは困難であるため、本計算においては考慮しなかった。

4. 評価結果

計算条件により評価値には大きな幅があるものの、エポキシ樹脂及びポリ容器のα線分解により発生したガスに起因する内圧は、貯蔵容器開封時に、貯蔵容器開封時に類似した樹脂製の袋の破裂又は破損状況をもたらす内圧である 2.5 気圧を超えた。

【参考文献】

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

[2] T.D. Stark, et al., Geosynthetics International, 2005, 12, No. 1

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

[4] 株式会社パッキンランドホームページ, <https://www.packing.co.jp/GOMU/kitaitoukasei1.htm>

表 7.1.4-1 ガス発生量の計算条件と計算結果

ケース		A	B	C
エポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生 (添付 7.1.1 ②)	Pu 同位体組成	平均同位体組成		
	α 線によるガス発生 の G 値	0.22		
	ガス組成*1	水素 83%、メタン 17%		
	平均粒子径	10 μm	20 μm	35 μm
	Am-241 除去	無	無	有
	21 年間のガス発生量*2	86.8 L (79.5 L)	52.6 L (48.2 L)	24.4 L (22.4 L)
ポリ容器の α 線分解による ガス発生 (添付 7.1.1 ③)	21 年間のガス発生量*2	0.20 L (0.18 L)		
21 年間のガス発生量合計		87.0 L	52.8 L	24.6 L

*1: 水素以外のガスとしては、検証試験 (添付 7.1.1 ②及び③) の結果から得られたガス種のうち、0-リングの透過係数の低いメタンを設定[3]

*2: 25°C、1 気圧におけるガス発生量 (括弧内は標準状態 0°C、1 気圧における値)

表 7.1.4-2 圧力計算条件

ケース		A	B	C
樹脂製の袋	貯蔵開始時の発生気体 滞留可能体積 (初期値) *1	1156 cm ³		
	最大の発生気体滞留 可能体積*2	3386 cm ³		
袋-貯蔵容器間	貯蔵開始時の発生気体 滞留可能体積*3 (初期値)	2332 cm ³		
貯蔵容器	発生気体滞留可能体積	3486 cm ³		

*1 : 一重目の樹脂製の袋がポリ容器に密着しているとして、ポリ容器の内容積 ($(9.2/2)^2 \times \pi \times 22.8 = 1516 \text{ cm}^3$) からエポキシ樹脂 (360 cm³: 添付 7.1.1 ①) の体積を差し引いた体積

*2 : 貯蔵容器内における発生気体滞留可能体積 (3486 cm³: 添付 7.1.1 ①) に対して袋-貯蔵容器間に 100 cm³ の空間領域が残ると設定

*3 : 貯蔵容器内容積 (3927 cm³) からポリ容器外容積 ($(9.4/2)^2 \times \pi \times 23.0 = 1595 \text{ cm}^3$) を差し引いた体積

表 7.1.4-3 透過量計算条件

ケース		A	B	C
樹脂製の袋	ガス透過 係数*1	2.7×10 ⁻¹⁰ (水素 [1]) 3.0×10 ⁻¹² (メタン [2])		
	漏えい面積*2	1620 cm ²		
	厚さ*3	0.6 mm		
貯蔵容器 (O-リング)	ガス透過 係数*4	1.4×10 ⁻⁹ (水素 [3]) 3.3×10 ⁻¹⁰ (メタン[3])	3.9×10 ⁻⁹ (水素 [4]) 3.3×10 ⁻¹⁰ (メタン[3])	
	漏えい面積*5	3.8 cm ² (1 mm 幅)	18.9 cm ² (5 mm 幅)	
	厚さ*6	5.1 mm		

*1：単位は cc cm/cm² s 10mmHg

*2：一重目の樹脂製の袋の表面積 (18×45×2 = 1620 cm²) を設定

*3：一重目と二重目の樹脂製の袋は膨張して一体となるため、樹脂製の袋の厚さの2倍 (0.3 mm×2 = 0.6 mm) を設定

*4：単位は cc cm/cm² s 10mmHg (参考文献では単位が異なるため、この単位に換算)

*5：貯蔵容器の寸法から O-リング装着時の幅を設定

最大ケースにおいては、高圧により蓋-容器間の溝 (1mm 幅) に O-リングがはみ出した場合を想定

*6：圧縮時の O-リングに対して線径 (φ 5.7 mm) の断面積と等価になるように設定 ((5.7/2)²×π÷5)

表 7.1.4-4 貯蔵開始後約 21 年における樹脂製の袋の内圧計算結果

ケース	内圧：絶対圧 (気圧)	樹脂製の袋の 状態*1
A	24.6	破裂
B	12.4	破裂
C	4.6	破裂

*1：検証試験において得られた貯蔵容器開封時に類似した樹脂製の袋の破裂又は破損状況をもたらす内圧は 2.5 気圧以上

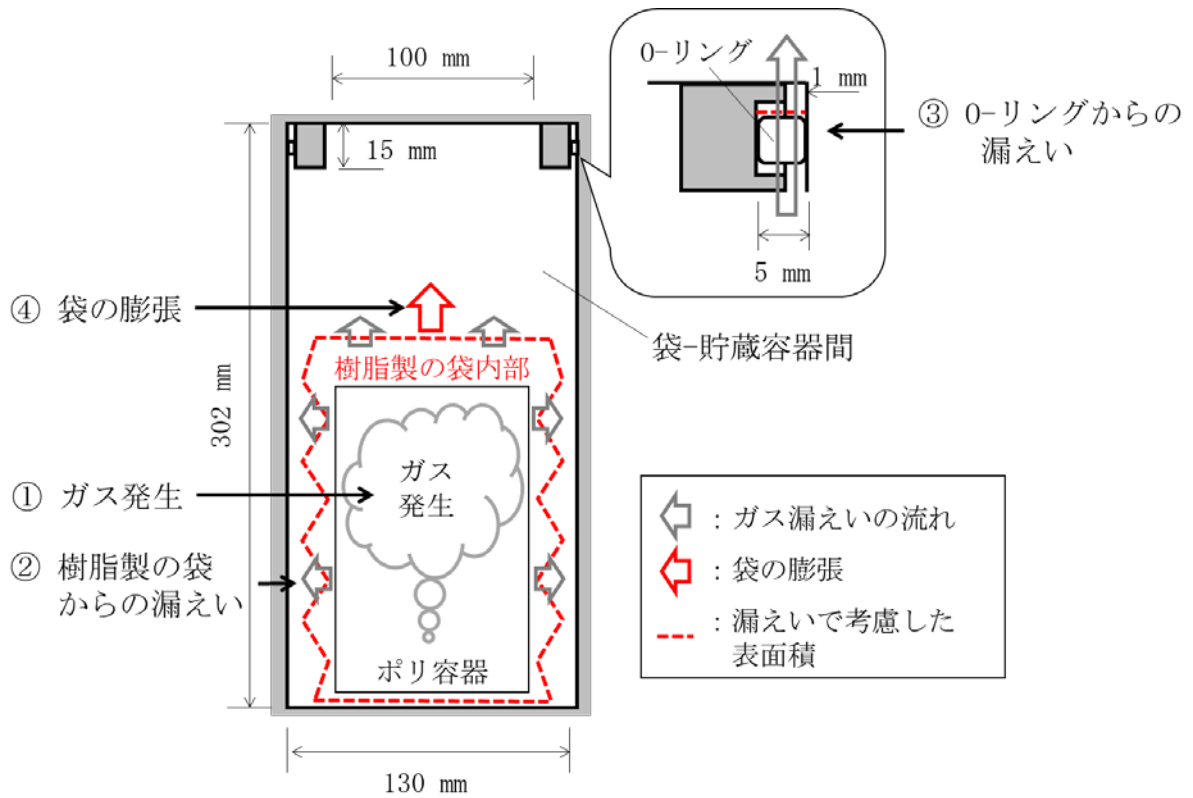


図 7. 1. 4-1 樹脂製の袋及び貯蔵容器の内圧計算モデル

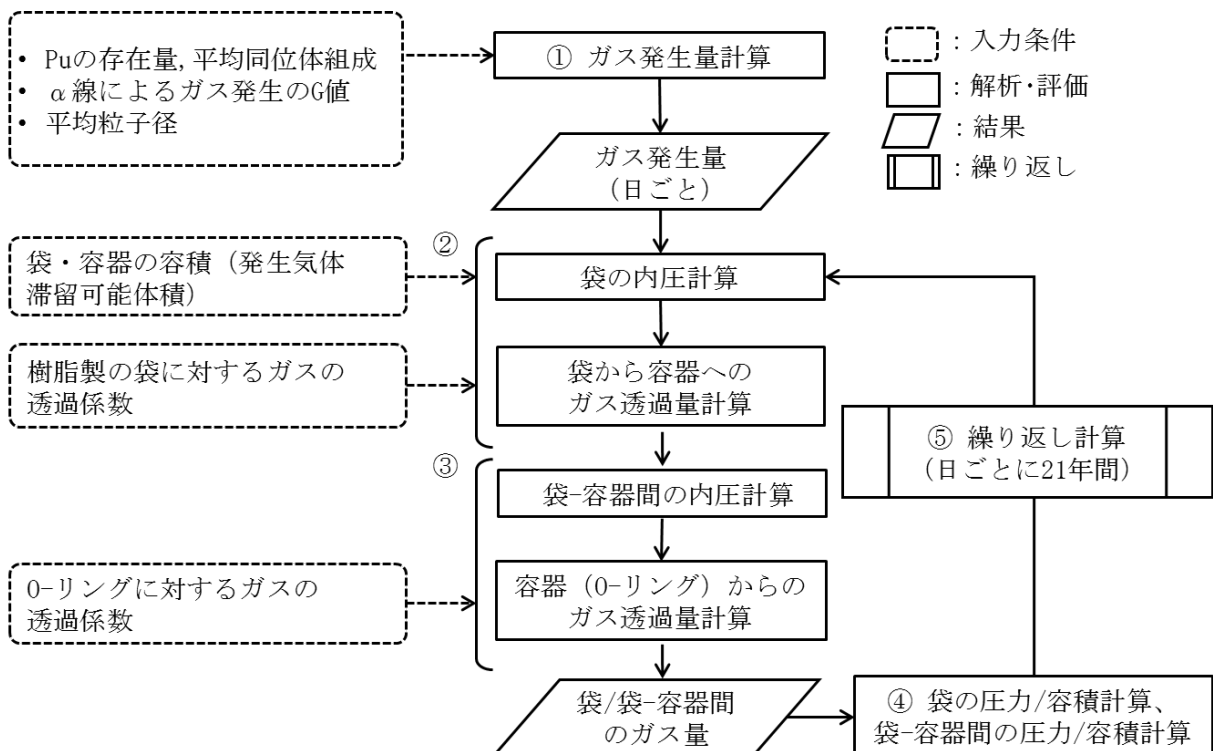


図 7. 1. 4-2 樹脂製の袋及び貯蔵容器の内圧計算手順

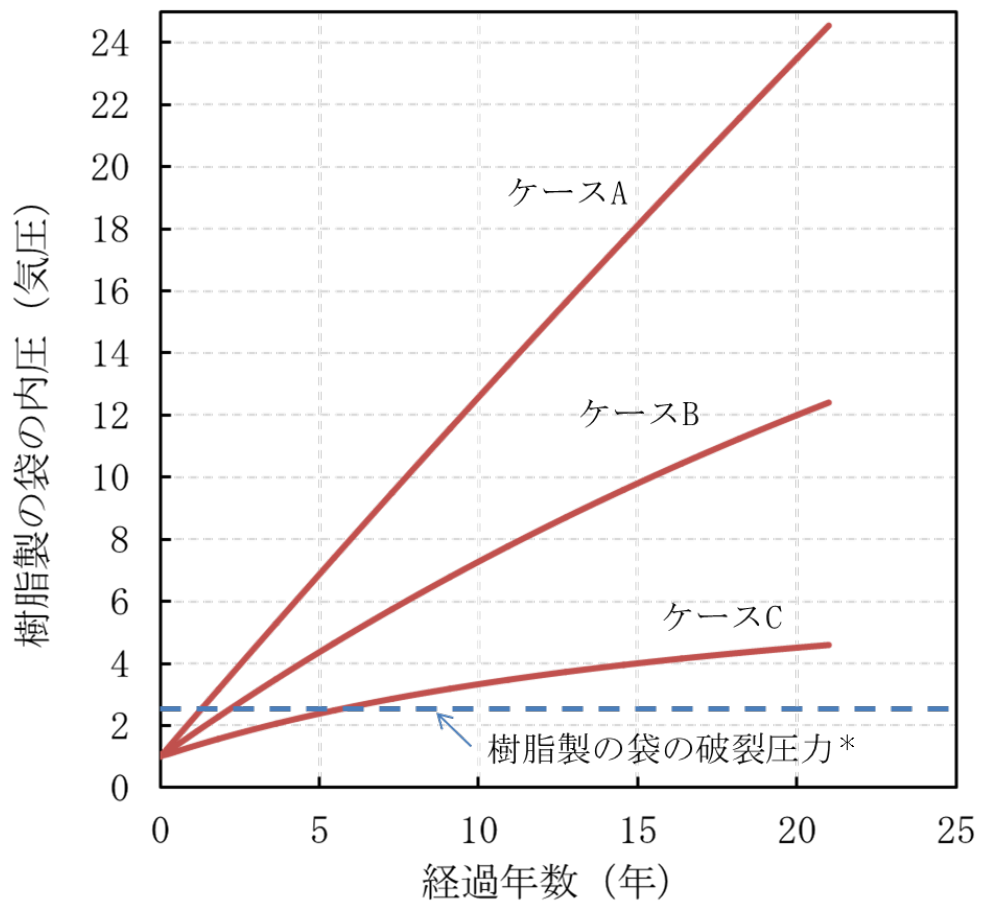


図 7. 1. 4-3 貯蔵開始後約 21 年間の樹脂製の袋の内圧経時変化の計算結果

*：破裂試験において、貯蔵容器開封時に類似した樹脂製の袋の破裂又は破損状況をもたらす内圧は、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。

【参考】樹脂製の袋内圧の増減要因について

樹脂製の袋の内圧計算においては、現状で分かっている範囲の定量的条件を前提とした結果を示したが、不確かさが大きく影響度合いを定量的に示すことが困難な以下の条件は、圧力計算では考慮しなかった。

- 1) G 値の経時変化
- 2) 核燃料物質自身の遮蔽効果
- 3) 発生ガスによる樹脂固化物内での気泡形成（樹脂固化物内での保持）
- 4) O-リングのシール性能劣化

上記は、何れも樹脂製の袋内部の圧力を下げる方向にあると考えられる。各々についての概説を以下に記載する。

1) G 値の経時変化

今回の評価では、エポキシ樹脂への He 照射試験から G 値として 0.22（添付 7.1.1 ②）を使用しており、この G 値は貯蔵容器への貯蔵から樹脂製の袋の破裂に至る約 21 年間一定であると仮定している。実際は、粒子径の周囲 $40\ \mu\text{m}$ （エポキシ樹脂中における α 線の飛程）の範囲で分解できる樹脂が減少し、G 値は緩やかに減少していくものと考えられる。

2) 核燃料物質自身の遮蔽効果

α 線のエポキシ樹脂における飛程を考慮すると粒子が密にある場合には、放出された α 線はほかの粒子に衝突しエネルギーを吸収される割合が多くなり、ガスの発生量は低くなる。実際は、多少なりともこの効果があると考えられるが、エポキシ樹脂中の核燃料物質の分布（ミクロ的な分布）を正確に評価することは困難である。

3) 発生ガスの樹脂固化物内での気泡形成

添付 7.1.1 「②混入有機物」において、 Cm-244 を含有した酸化物粉末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圧力上昇を直接的に観察している。得られた結果から「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。」と考察している。実際は、多少なりともこの効果があったと考えられるが、高圧における樹脂中のガス保持量を正確に評価することは困難である。

4) O-リングのシール性能劣化

O-リングが物理的に破損するとそのシール性能は劣化する。O-リングの物理的破損要因としては、経時劣化、放射線照射による劣化、はみ出し現象*1 等が考えられる。実際に発生時期は不明であるが現地調査（添付 6.4.5）において貯蔵容器 O-リングに亀裂が観察されている。これらの劣化により比較的緩やかに（徐々に）シール性能劣化に影響を及ぼすものと考えられる。しかし、発生程度や時期などは環境条件等によって大きく異なり、その効果も不明である。

*1) シール対象からの圧力で O-リングが溝の隙間に噛み込んでしまう現象で、この現象が進行すると O-リングがむしれて破損する。