

## Details of evaluation items of basic factors concerning the burst of the resin bags

## 樹脂製の袋の破裂に係る基本事象ごとの評価内容詳細

- ① $\alpha$ 崩壊による He ガス      He gas due to  $\alpha$  decay
- ②混入有機物      Mixed organic substance
- ③ポリ容器      Plastic container
- ④混入水分      Mixed water
- ⑤容器内物質間の化学反応（ガス、熱）      Chemical reaction between materials in the container (gas, heat)
- ⑥爆発性物質の爆発（ガス、熱）      Burst of explosive material (gas, heat)
- ⑦可燃性ガスの燃焼・爆発（ガス、熱）      Burn and burst of combustible gas (gas, heat)
- ⑧臨界発生（ガス、熱）      Occurrence of criticality (gas, heat)
- ⑨崩壊熱      Decay heat
- ⑩夏期の高温      High temperature of summer
- ⑪不適切な溶着      Inappropriate weld
- ⑫封入時の傷等      Damage at the time of sealing
- ⑬樹脂製の袋の $\alpha$ 線による劣化      Deterioration of resin bags due to  $\alpha$  ray
- ⑭樹脂製の袋の $\gamma$ 線による劣化      Deterioration of resin bags due to  $\gamma$  ray
- ⑮樹脂製の袋の $\beta$ 線による劣化      Deterioration of resin bags due to  $\beta$  ray
- ⑯樹脂製の袋の熱劣化      Heat deterioration of the resin bags
- ⑰樹脂製の袋の経年劣化      Aging deterioration of the resin bags
- ⑱当時の樹脂製の袋の品質      Quality of the resin bags of the time
- ⑲ポリ容器放射線劣化      Deterioration of the polyester bag due to radiation
- ⑳ポリ容器内突起物混入による損傷      Damage due to entrance of protuberance inside the polyester container
- ㉑貯蔵容器開封時の傷等      Damage etc. at the time of opening the storage container

## ① 「 $\alpha$ 崩壊による He ガス」

### 1. 確認・調査事項

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

### 2. 確認調査方法・内容

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

### 3. 確認・調査結果

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

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

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

○内部確認検査時に開封されたケース

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

○内部確認検査時に開封されなかったケース

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

### 4. 評価結果

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

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

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

### 5. 参考文献

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

表①-1 貯蔵容器内の核燃料からのヘリウム発生量計算結果

Pu 組成	貯蔵容器への 貯蔵までに 発生	貯蔵容器の 開封確認時 までに発生	樹脂製の袋の 破裂時までに 発生	貯蔵容器内の He 存在量			
	(1)	(2)	(3)	(3)-(1)		(3)-(2)	
	[g]	[g]	[g]	[g]	[mL]	[g]	[mL]
A 組成	$9.36 \times 10^{-4}$	$1.39 \times 10^{-3}$	$3.64 \times 10^{-3}$	$2.70 \times 10^{-3}$	15.1	$2.25 \times 10^{-3}$	12.6
B 組成	$7.60 \times 10^{-4}$	$9.69 \times 10^{-4}$	$1.91 \times 10^{-3}$	$1.15 \times 10^{-3}$	6.4	$9.43 \times 10^{-4}$	5.3
C 組成	$1.20 \times 10^{-3}$	$1.55 \times 10^{-3}$	$3.19 \times 10^{-3}$	$1.98 \times 10^{-3}$	11.1	$1.64 \times 10^{-3}$	9.2
D 組成	$1.41 \times 10^{-3}$	$1.87 \times 10^{-3}$	$4.08 \times 10^{-3}$	$2.68 \times 10^{-3}$	15.0	$2.22 \times 10^{-3}$	12.4
E 組成	$6.86 \times 10^{-4}$	$8.89 \times 10^{-4}$	$1.81 \times 10^{-3}$	$1.12 \times 10^{-3}$	6.3	$9.20 \times 10^{-4}$	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 $\alpha$ 線 (He イオン) の飛程は、アクチノイド化合物中で 10  $\mu\text{m}$  程度、有機物中でも 100  $\mu\text{m}$  以下と考えられ、 $\alpha$ 崩壊のエネルギー (5 MeV $\sim$ ) のほとんどを固体に付与することから、 $\gamma$ 線によるエネルギー付与に比べて格段に大きい。

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

### 2. 確認調査方法・内容

調査方法は、(1)  $\alpha$ 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、 $\alpha$ 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 $\alpha$ 線を模擬した He イオンを照射し、発生するガスを定量分析することで、G 値 (エネルギー付与 100 eV あたり発生するガス分子数) を評価した上で、核燃料物質の粉末とエポキシ樹脂の混合物から発生するガス量を算出する方法の 2 種類を用いた。なお、確認のため、(3) エポキシ樹脂への $\gamma$ 線照射によるガス発生の G 値も試験により評価し、 $\alpha$ 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 $\alpha$ 線分解試験の方法

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

表②-1 Cm 粉末とエポキシ樹脂の混合組成

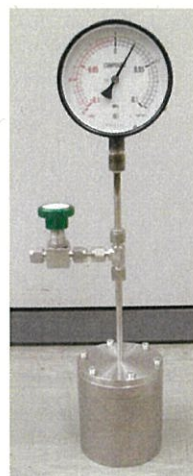
試料名	エポキシ樹脂重量 (mg)			Cm 粉末重量 (mg)	Cm 粉末含有率 (%)
	主剤	硬化剤	樹脂合計		
A	56.35	60.07	116.42	-	-
B	75.75	75.76	151.51	19.36	11.33
C	116.77	114.20	230.97	28.63	11.03

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





左から試料A、B、C  
(ステンレス鋼製の皿の中で混合・固化)



圧力計付き  
密閉容器の外観

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

## (2) エポキシ樹脂への He イオン照射による発生ガス分析方法

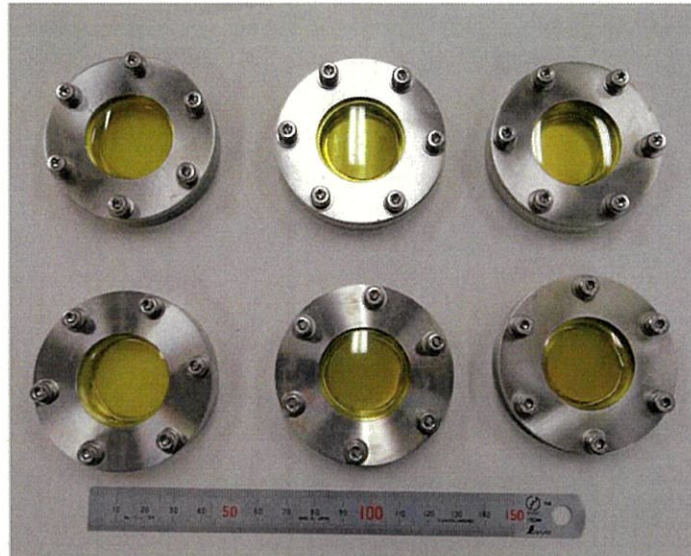
### (a) 試料準備

(1) で用いたものと同じ 2 液混合型のエポキシ樹脂系接着剤の主剤及び硬化剤を 1 : 1 で混合し、直径 26 mm のステンレス鋼製円盤に塗布して厚さ数 100  $\mu\text{m}$  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  $\alpha$  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  $\mu\text{m}$  厚のカプトン製フィルム製で、大気中に取り出した He イオンを照射する事が可能な構造となっている。図②-2 に大気照射セルの写真を示す。

### (b) He イオン照射及び発生水素量分析

量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所 (以下「量研 高崎研」) TIARA のタンデム加速器を利用して、 $\alpha$  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 $\gamma$ 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) $\gamma$ 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 $\gamma$ 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。

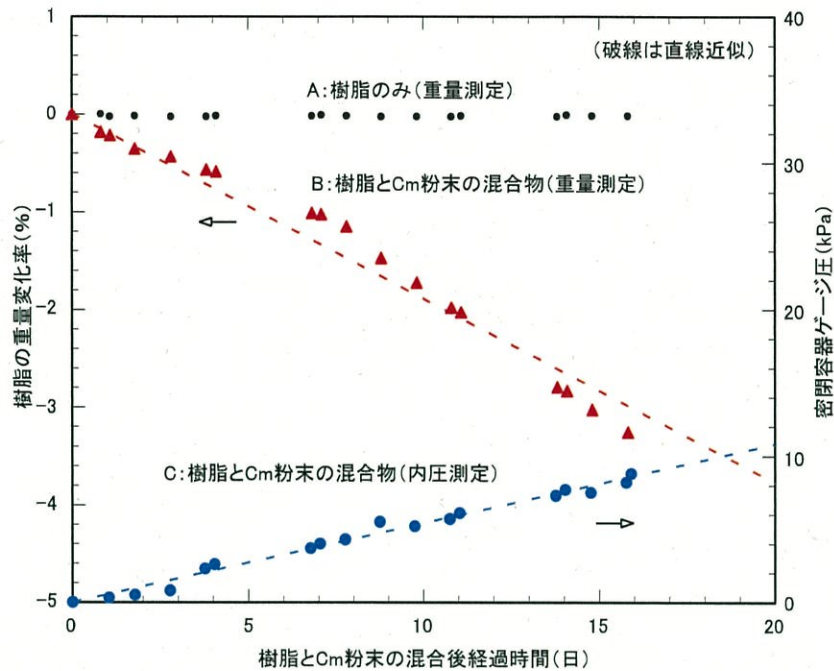
### 3. 確認・調査結果

#### (1) Cm粉末を用いたエポキシ樹脂の $\alpha$ 線分解試験の結果

試料A、Bの樹脂の重量変化率と試料Cの密閉容器の内圧変化の測定結果を図②-3に示す。試料Bのエポキシ樹脂重量変化と試料Cの密閉容器内圧変化は、経過時間に対してほぼ比例していることが確認された。グラフの経過時間（16日間）において、試料A（エポキシ樹脂のみ）の重量減少は0.03%未満で無視できる値であるのに対し、開放系に保持した試料Bのエポキシ樹脂の重量減少率は3.3%（4.93 mg）と有意な値であり、 $\alpha$ 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、 $6.75 \times 10^{-4}$  mol となり、標準状態換算で15.1 mLに相当する。16日経過時点で密閉容器を開封し、その直後に試料Cの重量を測定した



ところ、エポキシ樹脂の重量減少率は0.68% (1.58 mg) であり、同じ経過時間の試料Bに比べて約1/5と小さい値であった。試料Bの外観と比べて、密閉されていた試料Cは樹脂が全体的に膨張していた(図②-4)ことから、密閉の加圧下では、樹脂内で発生したガス分子が外部に放出されにくく、樹脂内で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 密閉容器から取り出した試料C(右端)と解放状態にあった試料A、Bの比較

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



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

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

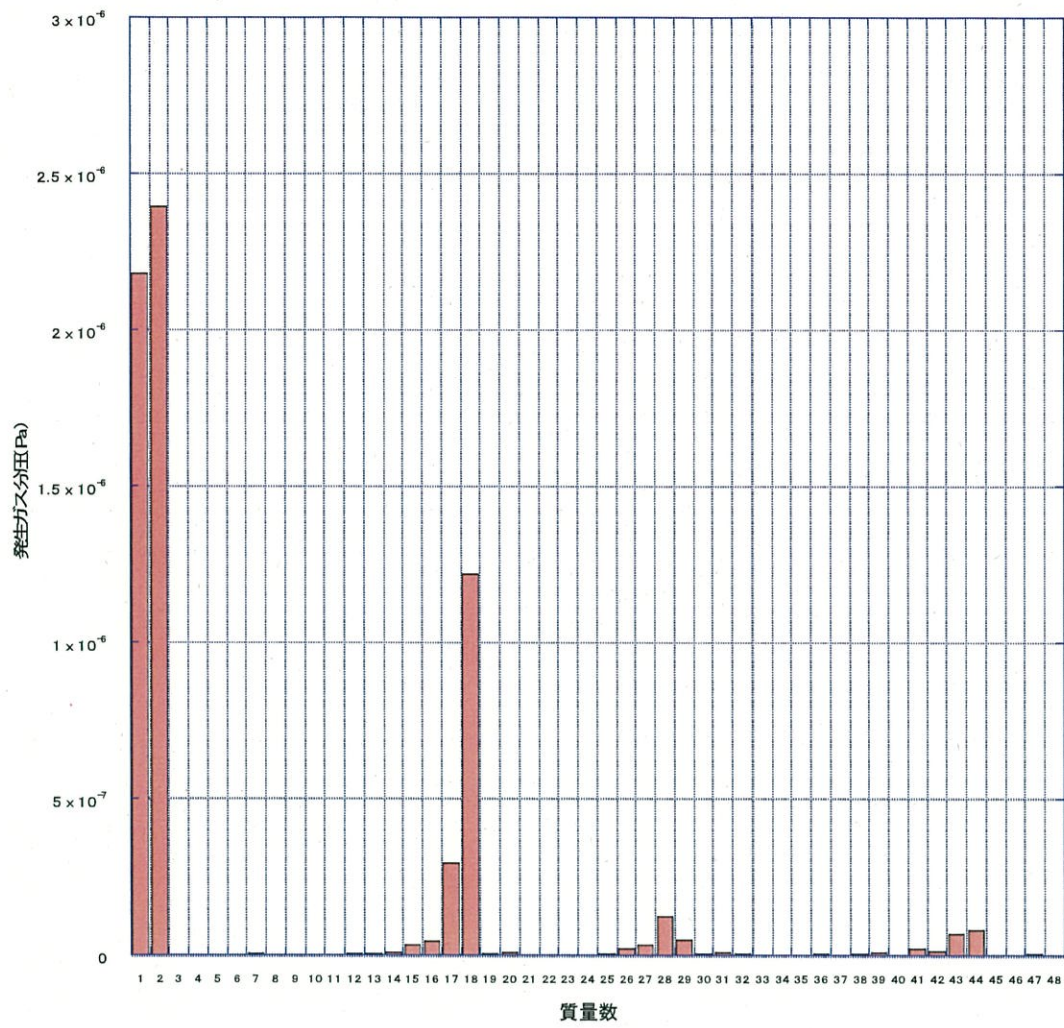
Cm含有粉末の試験結果を元に、エポキシ樹脂の $\alpha$ 線分解によるガス発生G値を評価した。粉末粒子を球状と仮定し、粒子内で発生する $\alpha$ 線のエネルギーの内、粒子内と粒子外にそれぞれ付与される割合を原子力機構のPHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) コード[2]で計算した。その結果、粒子内で発生する全 $\alpha$ 線エネルギーの内、粒子外(すなわちエポキシ樹脂)に付与されるエネルギーの割合として、粉末粒子直径4、10、20  $\mu\text{m}$ の場合にそれぞれ、88.9、70.1、42.5%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

## (2) Heイオン照射による水素ガス発生G値の評価結果

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

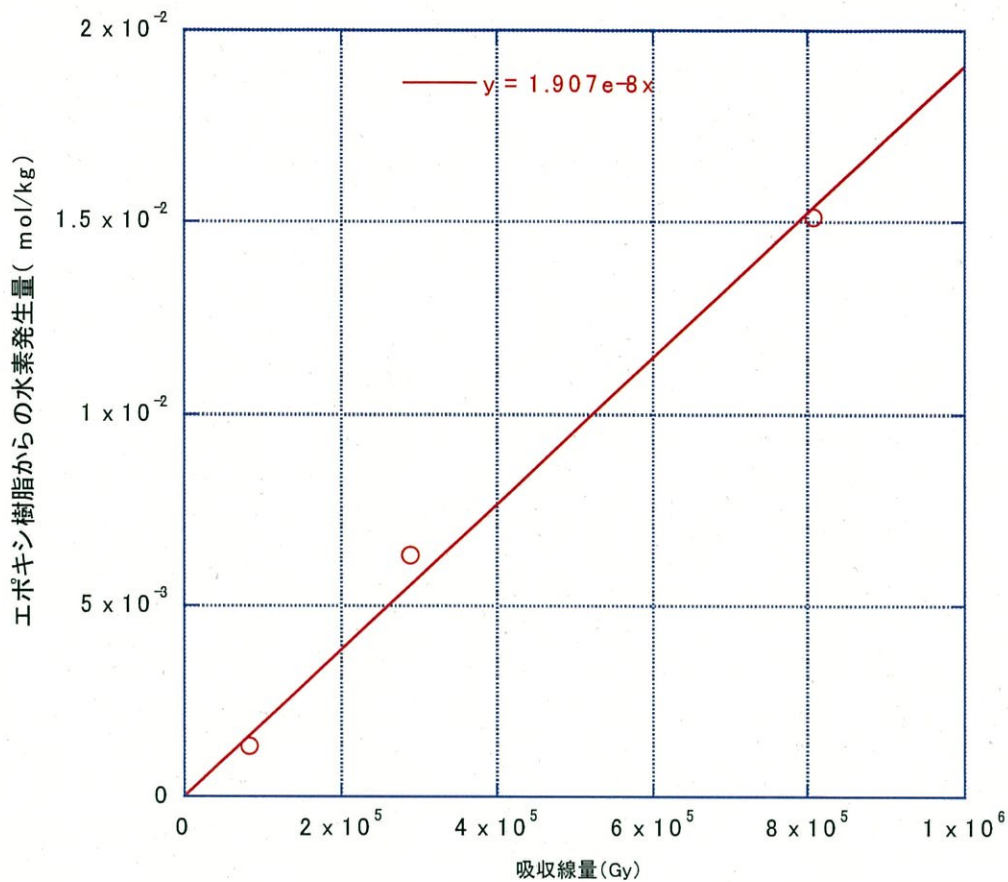
Heイオン(照射クーロン数:約1.4  $\mu\text{C}$ ~14  $\mu\text{C}$ )照射後の大気照射セル内の気体をガスクロマトグラフで測定した結果を図②-6に示す。イオン照射による吸収線量は、84 kGy~810 kGyで、水素ガス発生量としては、エポキシ樹脂に対して $1.9 \times 10^{-8}$  mol/Jが得られた。

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



図②-5 エポキシ樹脂に対する He イオン照射時の発生ガス質量スペクトル





図②-6 エポキシ樹脂に対するヘリウムイオン照射時の水素ガス発生量

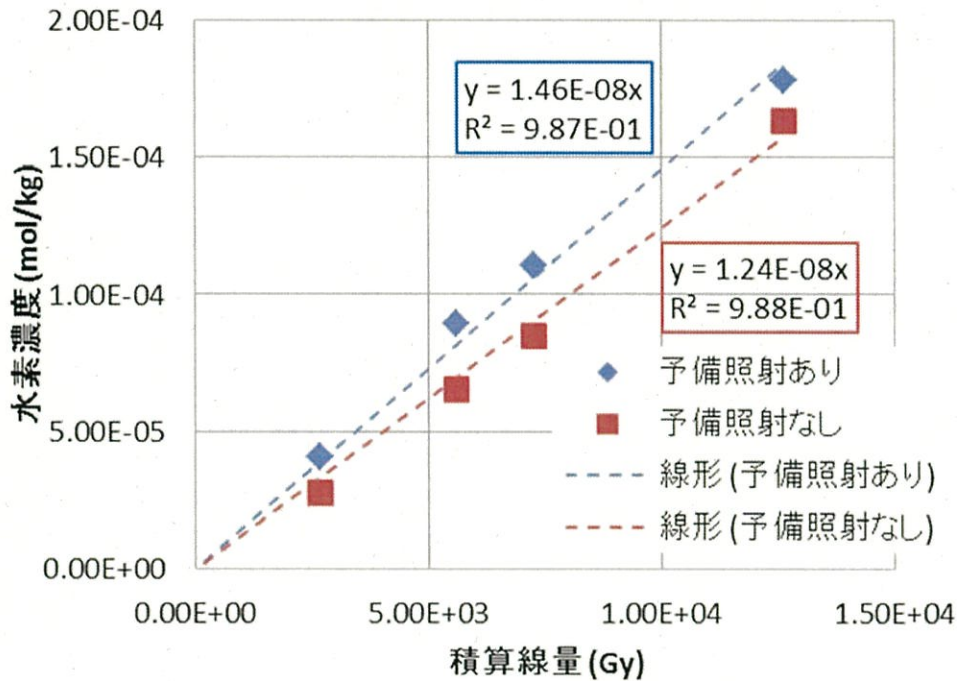
(3) エポキシ樹脂の $\gamma$ 線照射によるG値（ガス発生量）の評価結果

$\gamma$ 線照射量と水素発生量の測定結果を表②-2及び図②-7に示す。予備照射の有無の影響があることが分かる。図②-7の線図の傾きより水素ガス発生量を求めた結果、予備照射ありでは $1.5 \times 10^{-8}$  mol/J、なしでは、 $1.2 \times 10^{-8}$  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 $\gamma$ 線照射で、約 $2.9 \times 10^{-3}$  mol/kgの水素が発生し、標準状態での体積に換算すると、エポキシ樹脂1 kgあたり70 mLの水素が発生すると推定される。



表②-2 エポキシ樹脂の水素ガス発生量測定結果

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



図②-7 エポキシ樹脂のγ線照射量と水素ガス発生量の関係

#### 4. 評価結果

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

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

## 5. 参考文献

- [1] Z. Chang, Jay A. Laverne, “Hydrogen Production in  $\gamma$ -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 $\alpha$ 線照射を受けて分解し、ガスが発生することが予想される。ここでは、ポリ容器内面が直接核燃料物質に接触している状態を仮定し、貯蔵期間中に発生するガス量を概略評価した。

#### 2. 確認調査方法・内容

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

ポリ容器の $\alpha$ 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27mm円板状）を加工し、エポキシ樹脂と同様の手法により、5.5 MeVのHeイオンを照射して行った。ガス分析により得られたG値を用い、貯蔵期間中にポリ容器から発生し得るガス量を評価した。

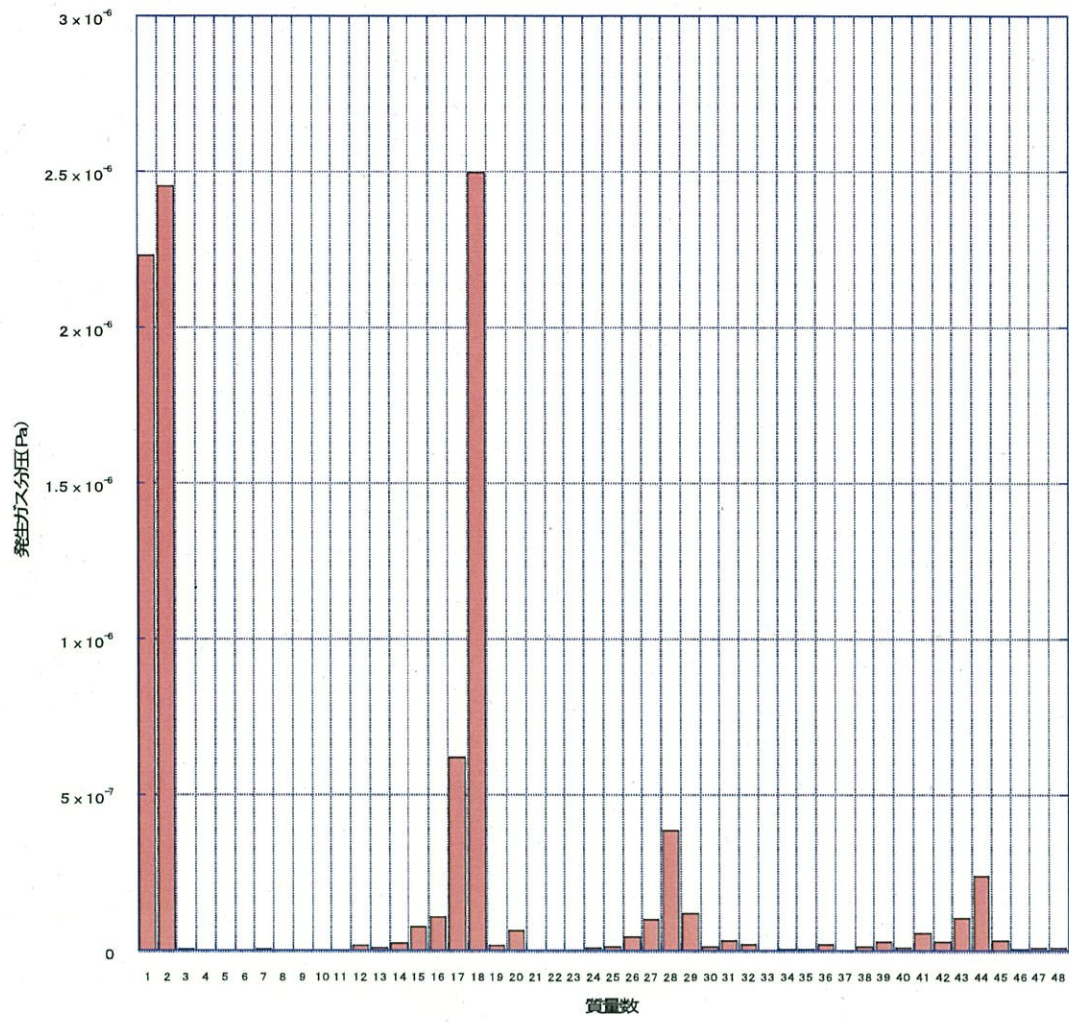
#### 3. 確認・調査結果

##### (1) ポリ容器試料へのHeイオン照射によるG値の評価結果

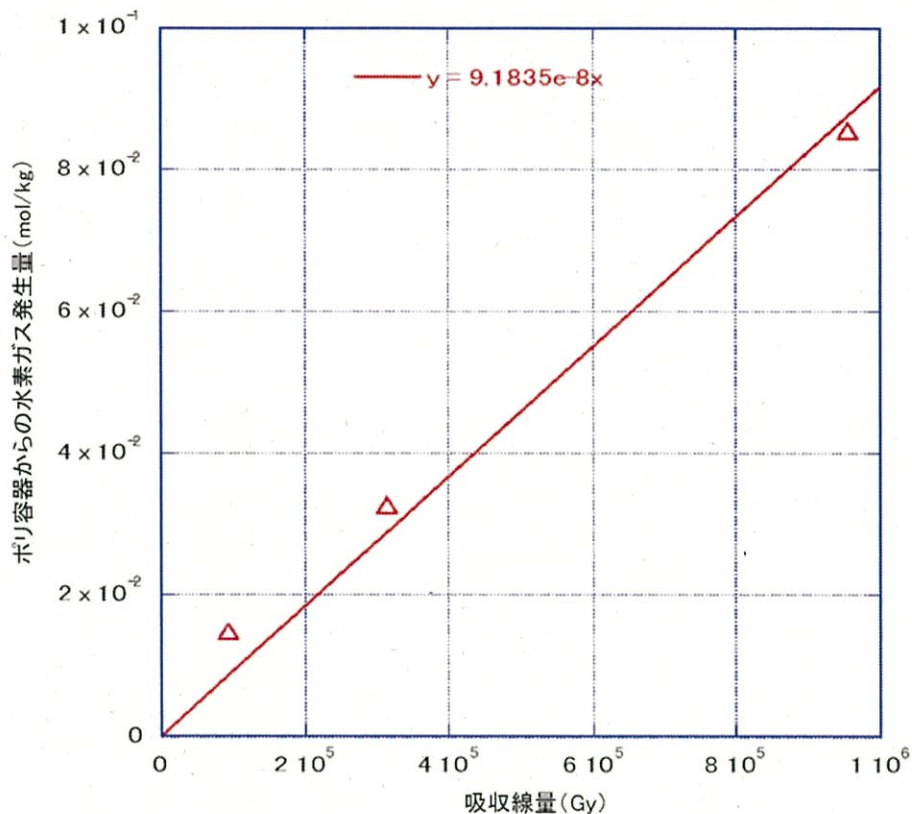
5.5 MeVのHeイオン（ビーム電流：約5 e nA）をポリ容器試料に照射し、その際に発生したガスの分圧をQ-Massで測定した結果を図③-1に示す。水素（質量数1, 2）の他、水とその分解物（質量数17, 18）が多く発生していることが判る。前者に関しては、樹脂材料が分解した際に発生する水素であり、後者に関しては試料表面に吸着していた水と推察される。水の生成が多い理由としては、ポリ容器が長期間（26年以上）大気中で保管されていたことが原因と考えられる。その他、放射線分解で発生する分子としては、一酸化炭素（質量数28）、メタンとその分解物（質量数14, 15, 16）、エチレンとその分解物（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

Heイオン（照射クーロン数：約1.5 $\mu$ C～15 $\mu$ 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 $9.2 \times 10^{-8}$  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 $\alpha$ 線分解で発生する全ガスのG値を1.4と評価した。





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



図③-2 ポリ容器試料に対する He イオン照射時の水素ガス発生量

(2) 貯蔵容器内のポリ容器からのガス発生量の評価結果

(a) 核燃料物質の全量が U と Pu の混合酸化物粉末の場合

表 6.4.1 の組成 A を Pu の代表組成として、天然 U との混合二酸化物を仮定すると、理論密度は 11.095 g/cm<sup>3</sup> となる。この ■% の密度で粉末が充填されていると仮定すると、充填体の体積は ■ cm<sup>3</sup> で、ポリ容器（内径 92 mm）の底面積 66.5 cm<sup>2</sup> に対して粉末充填高さは ■ cm となる。これらから、粉末充填体がポリ容器内面と接触している面積（底面と周面）に厚さ ■ μm 分を掛け合わせた有効体積は ■ cm<sup>3</sup> であり、その内部に含まれる二酸化物粉末は ■ mol である。ここから生じる α 粒子の ■ がポリ容器に入射すると仮定する。

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

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

核物質防護上の観点から ■ の箇所は非開示としています。



(3) Puのみが全て酸化物粉末である場合

Uの多くはエポキシ樹脂と混合されており、Puの大部分は酸化加熱処理により酸化物粉末としてポリ容器に充填されている場合を想定した。同位体組成Aを代表組成としてPuO<sub>2</sub>の理論密度を11.478 g/cm<sup>3</sup>と算出した。この■%の密度でポリ容器に充填されていると仮定すると、充填高さは■cmである。ポリ容器との接触面積に厚さ■μmを掛け合わせた有効体積は■cm<sup>3</sup>であり、ここから生じるα粒子の■がポリ容器に入射すると仮定する。

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

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

#### 4. 評価結果

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

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

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



#### ④「混入水分」

##### 1. 確認・調査事項

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

##### 2. 確認調査方法・内容

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

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

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

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

##### 3. 確認・調査結果

■■■■ gのPu試料及び■■■■ gの天然U試料が共に酸化物形態をとっていたとすると、貯蔵容器収蔵時の酸化物粉末試料の合計重量は■■■■ g (■■■■ mol) となり、それには■■■■ wt%の水分吸着量の場合は■■■■ g (■■■■ mol) のH<sub>2</sub>Oが、■■■■ wt%の水分吸着量の場合は■■■■ g (■■■■ mol) のH<sub>2</sub>Oが含まれることになる。このH<sub>2</sub>O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H<sub>2</sub>及び■■■■ molのO<sub>2</sub>が、■■■■ wt%の水分吸着量の場合は■■■■ molのH<sub>2</sub>及び■■■■ molのO<sub>2</sub>が発生する。すなわち、各々合計すると■■■■ molと■■■■ molになり、その体積は標準状態で1.65 Lと2.75 Lとなる。

当該貯蔵容器については、平成8年7月の内部確認検査において開封されていると考えられるので、放射線分解により発生したH<sub>2</sub>及びO<sub>2</sub>は開封時に放出されるが、同時に核燃料物質は開封時の環境に含まれる水分を吸着し、開封検査後（再梱包後）に吸着した水分を放射線分解するため、開封検査前と同量のH<sub>2</sub>及びO<sub>2</sub>が発生し、貯蔵容器内に滞留することになると考えられる。

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

##### 4. 評価結果

貯蔵期間中に試料に吸着した水分が全て放射線分解された場合のH<sub>2</sub>及びO<sub>2</sub>ガス発生量は、水分吸着量を■■■■ wt%とした場合には1.65 L、水分吸着量を■■■■ wt%とした場合には2.75 Lであり、貯蔵容器内の発生気体滞留可能体積2.3 Lに比して72%ないしは120%となり、樹脂製の袋の内圧上昇の主な要因の一つになりえる。

核物質防護上の観点から■■の箇所は非開示としています。

## 5. 参考文献

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



## ⑤「容器内物質間の化学反応（ガス、熱）」

### 1. 確認・調査事項

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

### 2. 確認調査方法・内容

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

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

### 3. 確認・調査結果

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

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

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



\*：各化合物の標準生成エンタルピー[2]より反応熱を算出

#### 3.1 ガス発生量の計算

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

##### 【UCについて】

UCの全量 ( $\blacksquare$  mol) がH<sub>2</sub>Oと反応した場合、 $\blacksquare$  molのCH<sub>4</sub>が発生し、その体積は標準状態で1.52 Lとなる。

##### 【PuCについて】

PuCの全量 ( $\blacksquare$  mol) がH<sub>2</sub>Oと反応した場合、 $\blacksquare$  molのCH<sub>4</sub>が発生し、その体積は標準状態で0.0749 Lとなる。

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

#### 【PuNについて】

PuNの全量が $\text{H}_2\text{O}$ と反応した場合、 $\blacksquare$  molの $\text{NH}_3$ と $\blacksquare$  molの $\text{H}_2$ が発生する。すなわち、合計すると $\blacksquare$  molのガスが発生し、その体積は標準状態で0.0305 Lとなる。

以上より、貯蔵容器内に存在するUC、PuC、及びPuNと $\text{H}_2\text{O}$ とが反応することにより生成されるガスは1.63 Lとなる。

#### 3.2 発熱量の計算

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

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

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

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

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

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

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

#### 4. 評価結果

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

発熱量は、炭化物及び窒化物に対してそれぞれ約35.1 kJ及び0.3 kJであり、エポキシ樹脂中に含まれる水分との反応により単位時間当たりの発熱量は最大で0.226 Wとなる。この発熱量は⑨「崩壊熱」評価において使用した崩壊熱0.5 Wよりも低く、0.5 Wの発熱量による容器内温度上昇は+2℃であったため、0.226 Wの場合は+1℃以下となる。しかも、この0.226 Wの発熱は、炭化物及び窒化物の $\text{H}_2\text{O}$ との反応が継続する封入後43時間のみ発熱である。

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



貯蔵容器内でのガス発生及び発熱は殆ど無かったものと考えられる。

#### 5. 参考文献

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

## ⑥「爆発性物質の爆発（ガス・熱）」

### 1. 確認・調査事項

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

### 2. 確認調査方法・内容

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

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

### 3. 確認・調査結果

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

まず、化学平衡計算により N、H、O を含む系で高温・高圧条件（温度 23 °C～223 °C、圧力 1 atm～100 atm）において安定相を評価した結果、 $\text{N}_2$ 、 $\text{O}_2$ 、 $\text{H}_2\text{O}$  が生成するのみで硝酸アンモニウム（ $\text{NH}_4\text{NO}_3$ ）の生成は無かった。これより熱力学的平衡条件においては硝酸アンモニウム等の爆発性物質が生成する可能性は無いことが分かった。

次に、 $\alpha$ 線、 $\gamma$ 線照射条件下の検討において、文献調査（及び He イオン照射の検証実験）により、エポキシ樹脂を対象とした $\gamma$ 線照射（10 MGy）で $\text{H}_2$ や $\text{CH}_3$ を放出した試料のフーリエ変換赤外分光（FT-IR）結果より、アミノ基に相当するピークは照射前後で変化はなく、ニトロ基に相当するピークは観察されなかったことが分かった[1]。また、エポキシ樹脂内の C-C、C-H、N-H 結合とニトロ基で存在する N-O 結合の乖離エネルギー[2]を比較した結果、607 kJ/mol（C-C）、337.2 kJ/mol（C-H）、377 kJ/mol（NH-H）、305 kJ/mol（NO-O）となり、NO-O が最も低いエネルギーで乖離することが分かった。以上のことから、照射によりニトロ基は生成せず、仮にニトロ基が生成しても照射下では安定には存在しない可能性が考えられ、 $\alpha$ 線、 $\gamma$ 線照射条件下においてニトロ基を有する爆発性物質は生成する可能性は低いことが分かった。

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



けている。

#### 4. 評価結果

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

#### 5. 参考文献

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

## ⑦「可燃性ガスの燃焼・爆発（ガス、熱）」

### 1. 確認・調査事項

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

### 2. 確認調査方法・内容

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

### 3. 確認・調査結果

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

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

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

### 4. 評価結果

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

### 5. 参考文献

[1] 住友化学科学株式会社ホームページ, [http://www.sumitomo-chem.co.jp/acryl/03tech/b3\\_gas.html](http://www.sumitomo-chem.co.jp/acryl/03tech/b3_gas.html).

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



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

## ⑧「臨界発生（ガス、熱）」

### 1. 確認・調査事項

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

### 2. 確認調査方法・内容

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

### 3. 確認・調査結果

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

Pu : ■■■ g

U-235 : ■ g

合計 : ■■■ g

※いずれも元素重量

### 4. 評価結果

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

### 5. 参考文献

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



## ⑨「崩壊熱」

### 1. 確認・調査事項

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

### 2. 確認調査方法・内容

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

### 3. 確認・調査結果

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

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

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

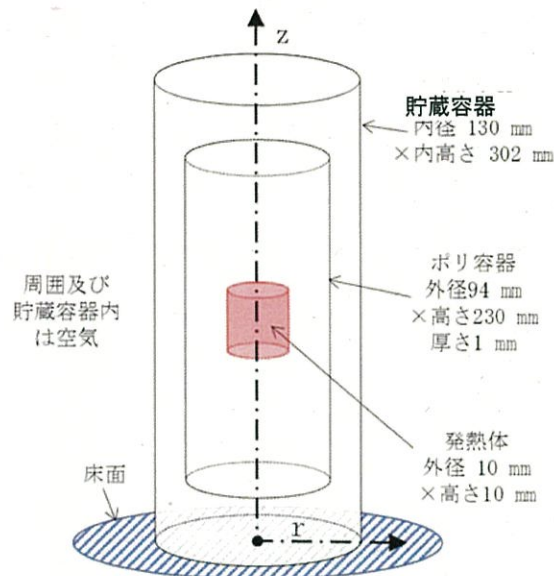
ここで半径：r [m]、単位体積当たりの発熱量： $S_c$  [W/m<sup>3</sup>]、温度：T [K]、高さ：z [m]、熱伝導率： $\lambda$  [W/(m K)]である。

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

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

#### 4. 評価結果

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



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

#### 5. 参考文献

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



## ⑩ 「夏期の高温」

### 1. 確認・調査事項

夏期の室内温度上昇による内圧上昇への影響を調査する。

### 2. 確認調査方法・内容

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

### 3. 確認・調査結果

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

### 4. 評価結果

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

## ⑪ 「不適切な溶着」

### 1. 確認・調査事項

#### 1.1 現物の破損個所（溶着性）

### 2. 確認調査方法・内容

#### 2.1 現物の破損個所（溶着性）

##### (1) 現地調査

現地調査による破損個所の特定は未実施。

### 3. 確認・調査結果

##### (2) 現地調査

未実施。

### 4. 評価結果

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



## ⑫ 「封入時の傷等」

### 1. 確認・調査事項

#### 1.1 現地調査により傷等の有無

### 2. 確認調査方法・内容

#### 2.1 現地調査により傷等の有無

##### (1) 現地調査

現地調査による傷等の有無の確認は未実施。

### 3. 確認・調査結果

#### (1) 現地調査

現地調査は未実施。

### 4. 評価結果

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

### ⑬ 「樹脂製の袋の $\alpha$ 線による劣化」

#### 1. 確認・調査事項

##### 1.1 樹脂製の袋の $\alpha$ 線照射による劣化度合い

#### 2. 確認調査方法・内容

##### 2.1 樹脂製の袋の $\alpha$ 線照射による劣化度合い

###### (1) 現地調査

現物のポリ容器の健全性の確認未実施。

#### 3. 確認・調査結果

##### 3.1 樹脂製の袋の $\alpha$ 線照射による劣化度合い

###### (1) 現地調査

現地調査は未実施。

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

#### 4. 評価結果

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

## ⑭ 「樹脂製の袋の $\gamma$ 線による劣化」

### 1. 確認・調査事項

#### 1.1 樹脂製の袋の $\gamma$ 線照射試験による劣化度合い評価

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

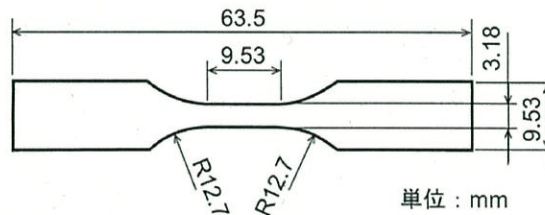
### 2. 確認調査方法・内容

#### 2.1 樹脂製の袋の $\gamma$ 線照射試験による劣化度合い評価

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



図⑭-1 ASTM D1822 L タイプの引張試験片の寸法図

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

##### 2) 引張試験

照射終了後、外観観察を行った。

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

- (2)  $\gamma$ 線照射後の破裂試験による劣化度合い評価

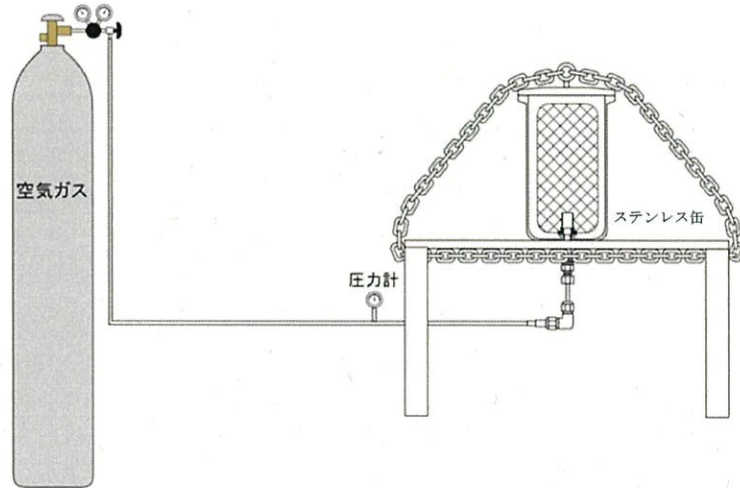
##### 1) 試料準備

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



## 2) 破裂試験

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



図⑭-2 試験体系図

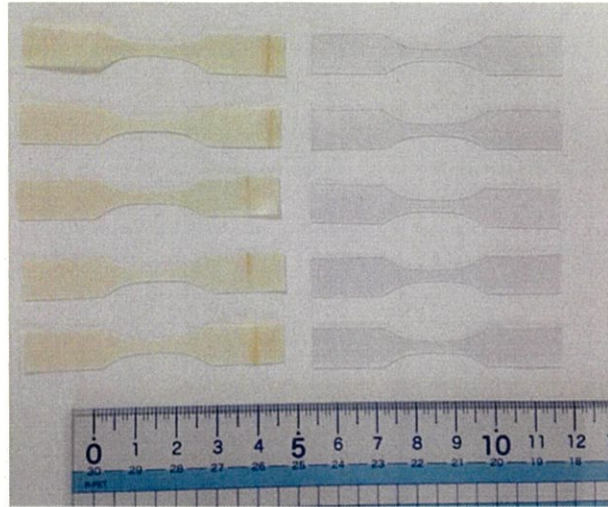
## 3. 確認・調査結果

### 3.1 樹脂製の袋のγ線照射試験による劣化度合い評価

#### (1) γ線照射後の引張試験による劣化度合い評価

##### 1) 外観観察結果

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



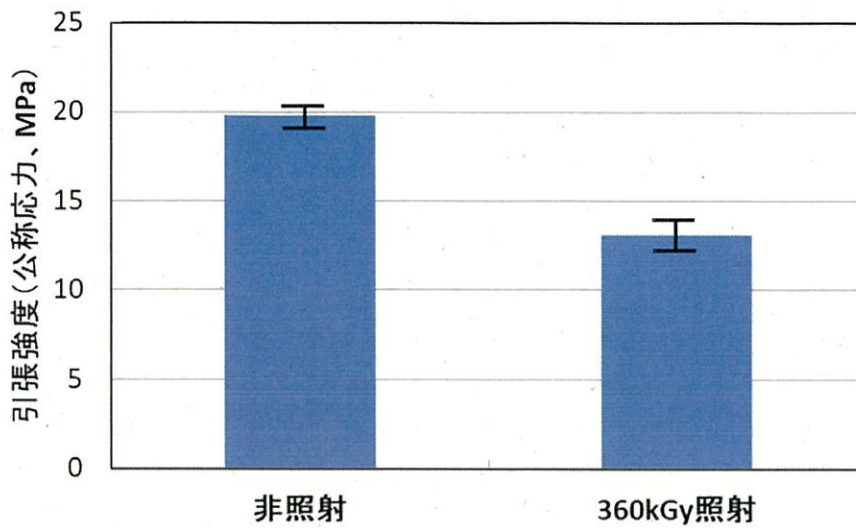
図⑭-3 非照射と照射後の引張試験片の外観観察結果  
(左側の5個は360 kGy照射した試料、右側の5個は非照射の試料)

## 2) 引張試験結果

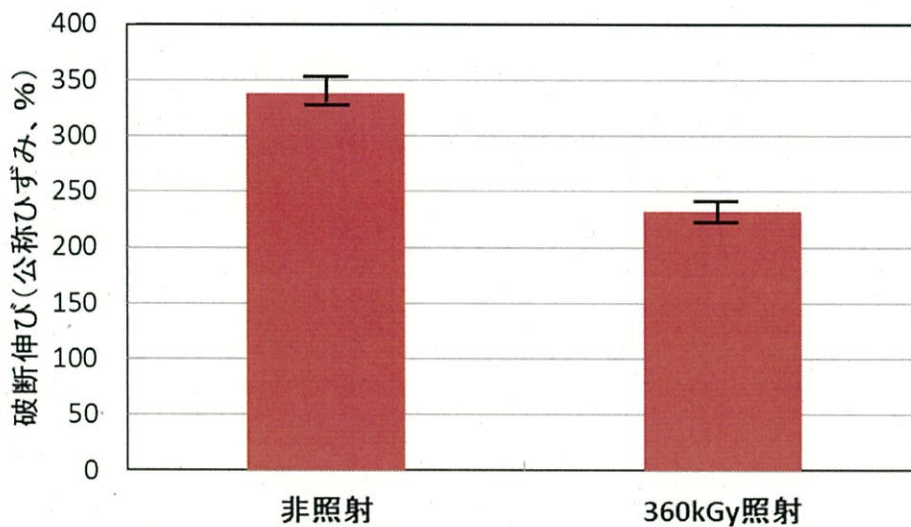
表⑭-1 に非照射及び照射後の引張試験結果を、引張試験前の樹脂製の袋の厚さ 0.3 mm、ゲージ部の幅 3.18 mm、標点間距離 10 mm から求めた引張強さ（公称応力）と破断伸び（公称ひずみ）に換算して示す。図⑭-4 に公称の引張強度、図⑭-5 に破断伸びの結果を比較して示す。360 kGy の $\gamma$ 線照射により、樹脂製の袋の引張強さは公称応力値として 19.8 MPa から 13.1 MPa に約 34 % 低下した。また、破断伸びは破断時の公称ひずみ値として 338 % から 232 % に約 31 % 低下した。

表⑭-1 樹脂製の袋の非照射及び照射後引張試験結果

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



図⑭-4 樹脂製の袋の非照射及び照射後引張強度の比較結果



図⑭-5 樹脂製の袋の非照射及び照射後破断伸びの比較結果

(2)  $\gamma$ 線照射後の破裂試験による劣化度合い評価

1) 外観観察結果

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

2) 破裂試験結果

蓋なしの試験では、缶上部からはみ出る樹脂製の袋の長さを 0 mm、内部に加える空気圧を 1 kgf/cm<sup>2</sup>として実施した。約 290 秒で破裂に至った。非照射の樹脂製の袋と同様に、ステンレス缶内面で拘束された部分はそれ以上膨らむことができないため、ステンレス缶上側の解放部で膨らん



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



図⑭-6 蓋なし試験 破裂直前の樹脂製の袋の写真



図⑭-7 蓋なし試験 破裂後の樹脂製の袋の写真

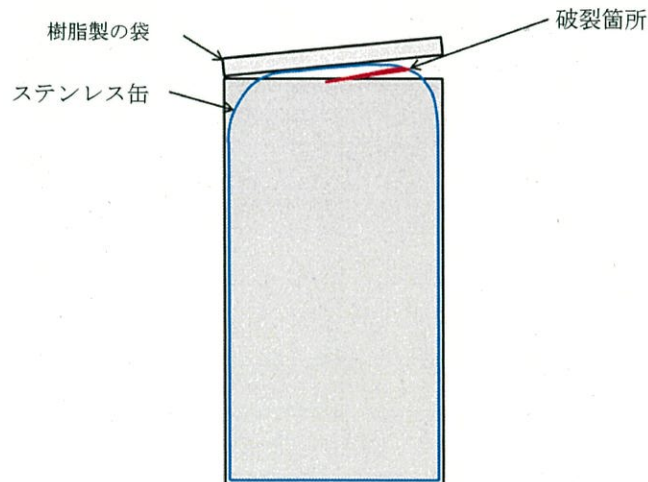
蓋ありの試験では、缶上部からはみ出る樹脂製の袋の寸法は袋が膨張した際に蓋部に接触し、拘束される状態を模擬するために55 mmとし、内部に加える空気圧を1 kgf/cm<sup>2</sup>として試験を実施した。約250秒で破裂に至った。非照射の樹脂製の袋と同様に、ステンレス缶内面で拘束された部分は膨らむことができないため、ステンレス缶上側の10 mm程度空いた隙間の解放部で膨らんで破裂する結果となった。2回の試験ではどちらも非照射の樹脂製の袋のケース(放射状の破損形状)と異なり、破損形状は80 mm程度の直線的であった(図⑭-9)。劣化した樹脂製の袋の破裂時の内圧は大気圧+0.09 MPa及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



図⑭-8 蓋あり試験 破裂直前の樹脂製の袋の写真



図⑭-9 蓋あり試験 破裂後の樹脂製の袋の写真



図⑭-10 蓋あり試験 破裂箇所と破損形状の概略図

#### 4. 評価結果

##### 4.1 樹脂製の袋の $\gamma$ 線照射試験による劣化度合い評価

###### (1) $\gamma$ 線照射後の引張試験による劣化度合い評価

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

(2)  $\gamma$ 線照射後の破裂試験による劣化度合い評価

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

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



## ⑮ 「樹脂製の袋のβ線による劣化」

### 1. 確認・調査事項

樹脂製の袋のβ線照射による劣化度合い

### 2. 確認調査方法・内容

#### 2.1 現物確認

現物の樹脂製の袋の健全性の確認

#### 2.2 評価・文献

樹脂製の袋について、β線による劣化に関する検討を行った。

### 3. 確認・調査結果

#### 3.1 現物確認

現物の樹脂製の袋の健全性の確認未実施。

#### 3.2 調査

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

β線の最大飛程 R (g/cm<sup>2</sup>) と最大エネルギー E<sub>max</sub> (MeV) の間の関係は、Feather の式で表される；

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

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

上記関係式の適用下限である 0.15 MeV のβ線では、R は 0.030 g/cm<sup>2</sup> (=0.407×0.15<sup>1.38</sup>) であり、密度 1 g/cm<sup>3</sup> の物体の場合には 0.03 cm (=0.03/1) 以上の厚さがあればβ線は透過できない。

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

ポリ容器の密度は 0.92~0.95 g/cm<sup>3</sup> 程度、上部/底部及び側面の肉厚は 0.1 cm であり、0.15 MeV のβ線における最大飛程から考えても、Pu-241 のβ崩壊によって放出されるβ線はポリ容器を透過できず、当該β線による樹脂製の袋の劣化への影響はないと判断できる。

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

### 4. 評価結果

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

## ⑩ 「樹脂製の袋の熱劣化」

### 1. 確認・調査事項

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

### 2. 確認調査方法・内容

#### 2.1 樹脂製の袋の熱による劣化度合い

##### (1) 聞き取り調査

聞き取り調査の報告書から熱劣化に関する情報収集を試みた。

##### (2) 評価・文献

樹脂製の袋の原材料である PVC の熱劣化に関する文献調査を行った。

#### 2.2 樹脂製の袋の熱解析結果と過去の基準値との比較

##### (1) 評価・文献

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

### 3. 確認・調査結果

#### 3.1 PVC の熱による劣化度合い

##### (1) 聞き取り調査

貯蔵容器に触れたところ、温度上昇はなかったとの証言があった。

##### (2) 評価・文献

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

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

表⑩-1 空気中での PVC の寿命

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

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

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

### 3.2 樹脂製の袋の熱解析結果と過去の基準値との比較

#### (1) 評価・文献

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

### 4. 評価結果

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

### 5. 参考文献

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



## ⑰ 「樹脂製の袋の経年劣化」

### 1. 確認・調査事項

#### 1.1 樹脂製の袋の経年による劣化度合い

### 2. 確認調査方法・内容

#### 2.1 樹脂製の袋の経年による劣化度合い

##### (1) 聞き取り調査

聞き取り調査の報告書から経年劣化に関する情報収集を試みた。

##### (2) 評価・文献

経年劣化に関する文献調査及び製造メーカーへの聞き取り調査を行った。

### 3. 確認・調査結果

#### 3.1 樹脂製の袋の経年による劣化度合い

##### (1) 聞き取り調査

経年劣化の度合いに関する証言は得られなかった。

##### (2) 評価・文献

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

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

### 4. 評価結果

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

### 5. 参考文献

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

## ⑱ 「当時の樹脂製の袋の品質」

### 1. 確認・調査事項

#### 1.1 数十年前の樹脂製の袋の品質調査（強度等）

### 2. 確認調査方法・内容

#### 2.1 数十年前の樹脂製の袋の品質調査（強度等）

##### (1) 評価・文献

製造メーカーへの聞き取り調査を行った。

### 3. 確認・調査結果

#### 3.1 数十年前の樹脂製の袋の品質調査（強度等）

##### (1) 評価・文献

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

### 4. 評価結果

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

## ⑱ 「ポリ容器放射線劣化」

### 1. 確認・調査事項

ポリ容器の  $\gamma$  線照射試験による劣化度合い評価

### 2. 確認調査方法・内容

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

### 3. 確認・調査結果

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



図⑱-1 非照射と照射後のポリ容器の外観観察結果

### 4. 評価結果

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



## ⑳ 「ポリ容器内突起物混入による損傷」

### 1. 確認・調査事項

ポリ容器内への突起物混入有無

### 2. 確認調査方法・内容

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

### 3. 確認・調査結果

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

### 4. 評価結果

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

## ② 「貯蔵容器開封時の傷等」

### 1. 確認・調査事項

#### 1.1 現地調査による開封時の傷付与の有無

### 2. 確認調査方法・内容

#### 2.1 現地調査による貯蔵容器開封時の傷付与の有無

##### (1) 聞き取り調査

聞き取り調査の報告書から開封時の傷付与の有無について情報収集を試みた。

##### (2) 現地調査

現地調査からの開封時の傷付与の有無の推定は未実施。

### 3. 確認・調査結果

#### 3.1 現地調査による開封時の傷付与の有無

##### (1) 聞き取り調査

傷付与に関する証言は得られなかった。

##### (2) 現地調査

未実施。

### 4. 評価結果

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

Directions from the president of the JAEA

- All the executive directors of the JAEA must let the people they supervise know the points below by today and ensure their compliance.
  - ① Reconfirm the principle of “putting safety first”
    - Check again to make sure safety before handling nuclear fuel materials.
    - To prevent the same kind of accident, suspend similar tasks handling nuclear fuel materials until directions to allow their restart are issued.
  - ② Reaffirm the social responsibility of the JAEA as an expert group in the field of nuclear energy
    - Have an awareness as an expert and reaffirm that your behavior has social responsibility
  - ③ Ensure risk prediction activities
    - Predict potential risks and act in the way to reduce risks
  
- Promptly check again if there is room for improvement in your way of management and if there are issues which the governance does not cover effectively
  
- This accident has a significant meaning that can influence the continuance of the JAEA. With this in mind, place the highest priority on addressing this accident.
  
- Specifically, give directions below to the each of the work-sites
  - Have an awareness and sense of tension regarding handling radioactive materials
  - Check completely the facility/equipment, work environment and work process before starting work
  - Supervisors must not allow starting work until the above requirements are all fulfilled



## Result of the total inspection concerning storage, handling, etc. of nuclear fuel material 添付9.2

核燃料物質の貯蔵及び取扱い作業等に関する総点検の結果について

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

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

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

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

## 1. 実施期間

平成29年6月15日～平成29年7月7日

## 2. 実施内容

## (1) 核燃料物質の貯蔵容器等の現場確認の実施について

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

## (2) 核燃料物質の貯蔵及び取扱い作業等に関する総点検の実施について

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

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

## 3. 結果

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

(1) 核燃料物質の貯蔵容器等の現場確認の実施について

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

※専用の金属容器に収納し貯蔵ピットに保管されているなどの状態

(2) 核燃料物質の貯蔵及び取扱い作業等に関する総点検の実施について

① 類似作業の停止指示に対する対応状況

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

② 貯蔵容器等の管理状況

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

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

表 貯蔵容器等の調査結果

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

平成 29 年 7 月 20 日現在

③ 取扱い作業の要領等の整備

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

④ 緊急時対応に係る調査

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

以上