大洗研究開発センター燃料研究棟における汚染に係る

調査結果に基づき推定した事象発生原因について

平成 29 年 7 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、「6.4 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を考え、基本事象として図 7.1.1 に示す⑪~⑫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」により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。評価に先立ち、前提となる以下の3つの事項を定めた。

1) 貯蔵容器の容積 3.9 L から内容物としてポリ容器の外容積である 1.6 L を減じた 2.3 L に対する

ガス発生量の割合を「内圧上昇割合」と定義した。

- 2) 樹脂製の袋へのγ線照射試験における照射量(吸収線量)の評価(添付 7.1.1)はγ線の挙動を粒子・重イオン輸送計算コード PHITS を用いてシミュレーションすることにより計算した。
- 3) 樹脂製の袋の耐圧性能評価のための試験(以下「破裂試験」という。)方法と結果(添付 7.1.2) 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うことにより、耐圧性能を評価した。その結果、樹脂 製の袋の破裂又は破損をもたらす内圧上昇割合は90 %~300 %であることがわかった。

「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 7.1.3 に示す。以下に評価の結果を記す。

- 一重目及び二重目の樹脂製の袋の内圧上昇要因のうち、すべての「内部でのガス発生」事象に影響する「内部温度上昇」については、⑨「崩壊熱」及び⑩「夏期の高温」の2つの基本事象における最大温度上昇を加算した22 ℃の温度上昇による内圧上昇割合を計算した。その結果、内圧上昇割合は7.8%となった。樹脂製の袋の破裂又は破損をもたらす内圧上昇割合は90%~300%であることから、「内部温度上昇」が与える影響は小さい。しかしながら、今後の原因特定に向けたより正確な評価においては、本「内部温度上昇」に係る影響も考慮する。
- 2)「内部でのガス発生」のうち、樹脂製の袋の内圧上昇割合に有意な影響を与える基本事象は、② 「混入有機物」、③「ポリ容器」及び④「混入水分」の3つであると評価された。樹脂製の袋の破裂 は、これら②~④の3つの複合事象として発生したと考えられる。

(3) 樹脂製の袋が破裂に至った推定原因及びその対策

フォルトツリー解析により、樹脂製の袋の破裂は、②「混入有機物」、③「ポリ容器」及び④「混入 水分」の3つの基本事象が複合して発生したものと推測された。すなわち、主に②~④の複合事象に よりガスが発生し、21年間の貯蔵期間中の内圧上昇が樹脂製の袋の破裂をもたらす内圧上昇割合を超 過したが、貯蔵容器による拘束力で破裂せずに留まっていた。樹脂製の袋が、貯蔵容器蓋の開封によ り拘束力を失って樹脂製の袋内外の圧力均衡が崩れ、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強度や伸び低下の影響により、線状に裂ける形で破裂開口した と推測される。

以上の推定原因に基づき、本樹脂製の袋破裂事象への対策を検討した。

まず、樹脂製の袋の内圧の過度の上昇を避けるために、放射線分解ガスを発生させる有機物とPuの 密着を防止した状態で収納することが必要である。他方、樹脂製の袋やポリ容器等の放射線等による 劣化は、上述したように密着すれば大きなエネルギーを与えるα線の発生源であるPuを有機物から分 離したとしても、γ線の影響もあり、長期の保管では劣化は避けられない。これらのためには、以下 のような対策が必要と考えられる。

1) 収納前に試料の熱処理等を行って、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

この核燃料物質の熱処理は、内圧上昇をもたらすと考えられるもう一つの要因である吸着水分の放 射線分解ガス発生の防止にも有効であると考えられる。

2) 粉末状の核燃料物質のポリ容器等の有機物への密着を避けるため、金属製の容器に収納すること 金属製の容器への収納は、Pu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。

主な原因として推定された②~④の基本事象のうち、②「混入有機物」及び③「ポリ容器」について は、Pu からのα線と有機物の相互作用で生じる。これらの基本事象の影響度の評価精度を向上させ、 事象進展シナリオを推定するためには、α線の飛程が短いことを考えると、今後、原因特定に向けて 以下の分析等を行う必要がある。

- 1) 貯蔵容器内の核燃料物質や有機物の配置等に係る情報の確認
- 2) エポキシ樹脂に固定されている核燃料物質の種類
- 3) エポキシ樹脂の量
- 4) 核燃料物質の粉末の粒径、量、分布
- 5) 貯蔵容器の調査により必要となったその他の分析

以上



樹脂製の袋の破裂に係る基本事象の影響度評価 表7.1.1

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 (1/2)	事象名 影響度 確認・調査事項 概略評 等への 額、作 微節 価・文 検証 事象名 (*1) 確認・調査事項 関き取<業記録 調査 前法 (*1) 確認・調査事項 9.調査 就情報 (*2) (*2) (*2) (*2) (*2) (*2) (*2)	よるHeガ 5種Pu同位体組成の中で、最 一 ● − 1た。その結果、発生量は13.6mL(標準状態換算)であり、内圧上昇割合(*3)は0.5k程度であり、影響 価 価 価 低 低	開き取り調査等により混入有 ● ● O - Izたる有機混入物はエボキン構脂と推定する。エボキン樹脂は、X線回折用試料作成時に使用され、Pu <u>機物の種類及び遺を推定する ● ● O - Isに対してエポキン樹脂最大10</u> gである。今後現物確認によりエポキン樹脂量の適正な評価が必要。	約 (△) 混入有機物の放射線分解によ – – – – ● ● Cun-244のα線限射によるガス発生。 Cun-244のα線限射による正力上昇試験の結果から、Pu 1gかたりの21年間のガス発生量は3.96L (標準 るガス発生量、 ・ ・ ● ● 15.0株鉄菓、つためり、内圧上昇割合(43)は173となる。今後、現物確認によるエポキン樹脂量の見積 15.05株実などを基に、内圧上昇割合(43)は173となる。今後、現物確認によるエポキン樹脂量の見積	ボリ容器の放射線分解による 発生ガス量、内容物形状 O ● 所蔵容器内のPuがすべて粉体であり、それらがポリ容器に接するとした評価を行った結果、ガス発生 への接触状況を確認	「混入水分の量(核物質の物理 - ● - ● - ● - ● - ● - 極 - 核物質を量が粉末とした場合に、吸着水分量が最大となる。文献調査結果を基に、吸着水分量を >	□ 混入水分の放射線分解による □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □	炭化物の加水分解によるメタンガスの生成、蜜化物の加水分解によるアンモニアの生成が考えられる	9質問の化 が、 × ス種・量の推定 ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・	となる。 作業者開き取り調査等の結果、封入当時においても炭化物及び蜜化物は熟処理を行っていることか ら、実際には本反応によるガス生成及び熱の落生は殆ど無いと考えられる。	o質の爆発 ・ (量、爆発性物質生成の検索、有無 ・	(スの膝 ミ(ガス、 × 水素等の燃焼範囲への到達可 ● ● 「 鼻研・歯崎研におけるエポキン補脂へのhe肥射試験においては、発生ガスの大半は水素であった。静 こ(ガス、 × 能性、爆発発生等の有無 ● - ● 「 も ● 」 も ● 「 も ● 」 も ● 「 もの研じおけるエポキン補脂へのhe肥射試験においては、発生ガスの大半は水素であった。静 ト ポピーパキング	ミ (ガス、 × 臨界可能性 - ● <u>泉小臨界量は2008(</u> 想式条件で二重装荷を考慮して安全係数を見込んだ値)であり、実態はこれより 大幅に小さい核分裂性物質重量(■■■2)であったことから、臨界務生可能性は無い。	 協康熱はの街球による街与が大きいことから、貯蔵容器内にあるPuの中でα崩壊が最大となるPu向位
-	影 翻 (1*)	×		(ବ୍ର 	(\(\neq)	<	1		×		×	×	×	×
	条 基本事象 名) α崩壊によるHeガ ス		0 混入有機物) ポリ容器				容器内物質間の化) 学反応(ガス、 撚)) 爆発性物質の爆発 (ガス、熱)	 可燃性ガスの燃) 焼・爆発(ガス、 熱)) 臨界発生(ガス、 熱)	「協議教
L	基筆化	9		0	8	(7	9		÷		9	C D	e	9

核物質防護の観点から■の箇所は非開示としています。

5

<u>*</u> * * *

〇:影響大、△:影響あり、×:小(無視できる)、(△)/(×):影響あり/寄与は小(無視できる)と評価できるが引き続き調査中〇:実施予定、▲:一部実施済み、●:実施がみ、一:実施しない 〇:実施予定、▲:一部実施済み、●:実施済み、一:実施しない 一重目の樹脂製の設の容積3.9に対して、内容物1.61を成じた値として、2.31を考慮し、これに対する内圧上昇を計算。

ſ

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(2/2)

各種調査の実施内容、調査・評価結果等	f業記録の調査結果等によると、封入は秋に実施された。その時の気温を10℃として、夏期の温度上 ā+20℃を見込んだとしても、内圧上昇割合(*3)は7%である。この結果から、夏期の温度上昇が内圧 上昇へ及ぼす影響は小さい。	見場写真からは、溶着部の不良個所はわからない。今後現物観察予定。	見物観察を実施予定。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。	謝脂製の袋に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	で樹脂製の袋に接触することが必要である。このため、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、α線照射による樹脂製の袋劣化の可能性を確認予定。	捕脂製の袋のヶ線照射試験(量研「高崎研)により劣化度合いを評価。樹脂製の袋のヶ線照射試験後、 川長試験を実施した結果、360kGy(貯蔵期間中の積算線量を考慮)までの照射により約30%の引張特 生の低下が認められた。また、本ッ線照射試験による樹脂製の袋を劣化模擬材として用いた破裂試験 を実施したところ、破裂をもたらす内圧は、未照射のものに比べて低下した。また、破裂開口部の形 犬が非照射材と異なり、線状となることがわかった。	u-541の身薬変に伴い放出される身線エネルギーは0.0208 MeVとα線のものに比べて大幅に小さいことから、©「樹脂製の袋のα線による劣化」における評価に包含される。	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、作業者への開取り調査や内部 晶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。	晶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。	文献調査の結果、貯蔵期間中に樹脂製の袋の破断時強度や伸びの低下はほとんど生じないことがわ いった。樹脂製の袋製造メーカーへの開き取り調査の結果、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ため、本項目は放射線による劣化(⑮及び⑭)に包含される。	謝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	ポリ容器のッ線照射試験による劣化度合い評価を実施した結果、360kGyまで照射してもやや変色する 星度で柔軟性もほとんど変化なく劣化は認められない。1996年の貯蔵容器点検記録との整合性を評価 するため、現物確認(目視による変色、触れてみて確認)を実施予定。	目視による有無確認を実施予定。	作業者間取りの結果、傷付与に係る証言なし。貯蔵容器蓋が外れた瞬間に樹脂製の袋が破裂したこと いら、本事象の影響度合いは小さいと考えられる 見物確認により傷が見つかったら、破裂試験による耐圧性能評価実施を検討。
検 (*2)			-	-		•	- -					•	I	
戦伊 ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ●	I	I	I	Ι		●	•	•	•	•	•	I	I	1
思調 (*2) 世間	I	◄	0	0	0	0	Ι	I	Ι	I	I	0	0	0
憲 憲 御 御 御 御 御 御 御 御 御 御 憲 憲 第 (*2) (*2)			I	I			Ι	l	Ι	-	Ι	I	Ι	I
作等闘の 業へき調。 者の取植(2*)	•	_	I	I		•	Ι	•	I	•	I	I	I	•
確認・調査事項	夏期の室内温度	現物の破損個所(溶着性)	現物確認により傷等の有無	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	樹脂製の袋のッ線照射による 劣化度合い	樹脂製の袋のβ線照射による 劣化度合い	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	樹脂製の袋の経年による劣化 度合い	数十年前の樹脂製の袋の品質 調査(強度等)	ポリ容器現品の放射線による 劣化度合い	突起物等混入有無	現物調査による開封時の傷付 与の有無
影響度 (*1)	×	(▽)	(▽)		(▽)	(▽)	×	×	_	×	×	(♡)	(♡)	(×)
基本事象名	夏期の高温	不適切な溶着	封入時の傷等	素問題の売の。値	^{個加級} ジズジ ^ム が による劣化	棚脂製の袋のヶ線 による劣化	樹脂製の袋のβ線 による劣化	樹脂製の袋の熱劣 化		樹脂製の袋の経年 劣化	当時の樹脂製の袋 の品質	ポリ容器放射線劣 化	ポリ容器内突起物 混入による損傷	貯蔵容器開封時の 傷等
惠 No. No.	0		(I) (I)	+	en	(F)	(1) (1)			£	(8)	E E	8	8

*1 〇:影響大、△:影響あり、×:小(無視できる)、(△)/(×) :影響あり/寄与は小(無視できる)と評価できるが引き続き調査中 *2 〇:実施予定、▲:一部実施済み、●:実施方み、-:実施しない *3 一重目の樹脂製の袋の容積3.9Lに対して、内容物1.6Lを滅じた値として、2.3Lを考慮し、これに対する内圧上昇を計算。

確認・調査事項

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

2. 確認調查方法·内容

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

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

3. 確認·調查結果

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

4. 評価結果

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

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



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



図 7.1.1-2 経過年数に対する吸収線量率の変化

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

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

核物質防護の観点から■の箇所は非開示としています。

- 1. 確認·調查事項
 - 1.1 樹脂製の袋の耐圧性能
 - 1.2 容器蓋開封時の樹脂製の袋の膨張状況
- 2. 確認調查方法·内容
 - 2.1 樹脂製の袋の耐圧性能
 - (1) [評価・文献]
 製造メーカから標準品の強度データを入手した。
 - (2) [検証試験]

以下に示す要領で標準の樹脂製の袋を用いて破裂試験を行い、耐圧評価を行った。

ーつ目の試験として、シーラーで溶着、密封した樹脂製の袋に、空気ガスのガスボンベを接続し、 ガス配管には圧力計を接続し、ガスを注入して樹脂製の袋を破裂させる試験を行った。二つ目の試 験として、当該破裂事象の写真を参考にその状況を模擬して、同様の樹脂製の袋を、底部に約φ20 mmの穴をあけたステンレス缶(ステンレス缶内径が貯蔵容器入口径サイズに近いφ120 mm×h220 mm又は同内径が貯蔵容器内径サイズに近いφ133 mm×h250 mm)に収納し、ステンレス缶底部の穴 を通して樹脂製の袋にガスを送り込む方法で破裂試験を行った。本試験はステンレス缶の蓋がない 状態での試験とした。試験体系図を図7.1.2-1 に示す。



図 7.1.2-1 試験体系図

- 2.2 容器蓋開封時の樹脂製の袋の膨張状況
 - (1) [聞き取り調査]

聞き取り調査の報告書から容器蓋開封時の状況について情報収集した。

(2) [検証試験]

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

領で樹脂製の袋の破裂試験を行い、蓋開封時の膨張状況について評価した。

シーラーで溶着した樹脂製の袋を、底に φ 20 mm の穴をあけたステンレス缶(φ133 mm×h250 mm) に収納した。ステンレス缶の底の穴を通して樹脂製の袋に空気ガスのガスボンベを接続し、ガス配 管に圧力計を接続した。聞き取り調査で得られた情報を考慮し、樹脂製の袋の膨らみにより僅かに 蓋が空くように、ステンレス缶に蓋を乗せてチェーンで軽く拘束した。ガスを注入して樹脂製の袋 が破裂するときの膨張の様子を記録し、破裂箇所の観察を行った。試験体系図を図 7.1.2-2 に示す。



図 7.1.2-2 試験体系図

- 3. 確認·調査結果
 - 3.1 樹脂製の袋の耐圧性能
 - (1) [評価・文献]

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

引張強度 [MPa]	14.7 以上
伸び [%]	200 以上

表 7.1.2-1 「PVC 梨地フィルム C32」の物性仕様*1

*1 JIS K 6732 準拠

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

	測定結果(平均)	[MPa]
重ね溶着部	9.08	
底溶着部	6.80	

表 7.1.2-2 PVC の引張強度*2

*² 試験片は JIS K 6251 に規定するダンベル状 2 号形



図 7.1.2-3 PVC バッグ(樹脂製の袋) 概略図

(2) [検証試験]

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

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

表 7.1.2-3 破裂試験条件と結果

*3 ガスボンベのレギュレータの2次圧、*4 配管に接続した圧力計の指示値



図 7.1.2-4 破裂箇所の概略図

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

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

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

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

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



図 7.1.2-5 破裂状態の例 No. 9(放射状)



図 7.1.2-6 破裂状態の例 No. 10 (直線)



図 7.1.2-7 破裂状態の例 No. 11 (穴)

- 3.2 容器蓋開封時の樹脂製の袋の膨張状況
 - (1) [聞き取り調査]

6本のボルトを緩めた際に蓋が押し上げられた。6本中4本を外し、残り2本のボルトを交互に 少しずつ緩め、完全にボルトを抜き去る前に蓋が浮き上がり、破裂した。0-リングが容器本体の上 端よりは上がった時点で「パン」と鳴った。蓋が容器本体から大きく離れてから「パン」と鳴った わけではない。破裂音が聞こえ、蓋をフード内に置いた時点で、容器からバッグの一部がはみ出て いた。個人の感覚によるが破裂音は「耳が痛くなるほど大きな音」であったと、作業員の1人から 証言された。

(2) [検証試験]

樹脂製の袋にガスを送入すると、ステンレス缶内面及び蓋で拘束された部分は膨らむことができないため、蓋が浮いてできた隙間から膨らみ、破裂する結果となった。この際の破裂直前の配管内の圧力は大気圧+0.1~0.3MPa (2.0~4.0 気圧)であった。試験パラメータは送入ガス圧力(1~6kgf/cm²)、ステンレス缶と蓋の隙間(20~70mm)である。試験条件と結果の一覧を以下の表 7.1.2-4 に示す。また、表中の破裂箇所の詳細について図 7.1.2-8 に示す。

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

表 7.1.2-4 破裂試験条件と結果

*5 ガスボンベのレギュレータの2次圧、*6 配管に接続した圧力計の指示値



上方向を蓋に拘束されて膨らむ場合

図 7.1.2-8 破裂箇所の概略図

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



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



図 7.1.2-10 樹脂製の袋の膨張の様子と破損状態 No. 4 (穴)



図 7.1.2-11 樹脂製の袋の膨張の様子と破損状態 No. 5(直線)

- 4. 評価結果
 - 4.1 樹脂製の袋の耐圧性能

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

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

検証試験における破裂箇所と形状に関して、樹脂製の袋がステンレス缶から大きくはみ出すケース及 びはみ出さないケースのいずれも破裂箇所はAもしくはCの樹脂製の袋の上部の中央付近(生地部)が 多かった。これは、ステンレス缶の側面及び底面によって樹脂製の袋の膨張が制限されたため、ステン レス缶上部の開放部に膨張が進み、最も拘束部分から遠い樹脂製の袋上部の中央付近が膨張しやすかっ たことに起因すると考えられる。また、大きくはみ出すケースの場合は条件によって破損形状が穴空き や直線となるケースがあり、これは破損までの時間が長い(100 秒以上)、すなわち比較的緩やかに膨 張した試験において観測された挙動であった。事故時の樹脂製の袋の写真において破裂箇所に放射状の 破損形状が見られないことから、事故時の樹脂製の袋は比較的緩やかに膨張して破裂し、穴空きや直線 形状等の破損に至った可能性が考えられる。

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

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

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

4.2 容器蓋開封時の樹脂製の袋の膨張状況

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

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

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

当時の破裂事象が起こったステンレス缶及び樹脂製の袋においては、0-リングが容器本体の上端より は上がった時点で「パン」と鳴ったとの証言が得られている。従って、試験条件よりもさらに隙間が小 さく、このような小さい隙間から樹脂製の袋がはみ出して破裂したとは考えにくい。本試験の No. 12~ No. 14 は樹脂製の袋を短くして、蓋の隙間を 20mm~30mm と小さくした試験である。このときの樹脂製 の袋内圧は 2.0 気圧~2.3 気圧と見積もられた。劣化した樹脂製の袋については標準品よりも強度や伸 びが低下するため、当時の破裂事象時の樹脂製の袋の場合はわずかに蓋を押し上げた後、放射線や加圧 による脆化により大きく伸びずに破裂したと推測される。現地調査によってステンレス缶の容積と樹脂 製の袋の寸法を比較し、これらの比率を合わせたうえで破裂試験を行い、破裂過程を確認することが必 要と考える。

今回の破裂事象に対して原因究明のために実施した樹脂製の袋の種々の破裂試験における配管内圧 力の最大値、最小値について表7.1.2-5にまとめた。照射した樹脂製の袋のデータについては添付7.1.3 ④「樹脂製の袋のγ線照射による劣化」から引用した。送入ガス圧力が低い場合は樹脂製の袋内と配管 内の間の圧力差が小さく、配管内圧力は袋内圧力とほぼ同等と考えられるが、送入ガス圧力が高い場合 は圧力と流量の関係から樹脂製の袋内と配管内圧力の圧力差が大きく、配管内圧力は袋内の圧力よりも 高い指示値を示していると考えられる。

表 7.1.2-5 中での最小値(1.21 気圧)は未照射樹脂製袋を用いた蓋なしステンレス缶で実施したも のであり、溶着部に小さな穴が開いてガスが抜ける挙動を示した。一方で作業員の聞き取り調査記録で は、作業員が破裂音を聞き、風圧を感じていることから袋が破裂していると考えられ、状況から小さな 穴が開いたとは考えにくいことに注意する必要がある。また、最大値(4.0 気圧)は未照射樹脂製袋を 用いた蓋ありステンレス缶で実施したものであり、生地部が膨れて放射状に破裂する挙動を示した。こ の試験の送入ガス圧は高く、袋の内圧よりも高い圧力を指示していると考えられる。

照射有無	ステンレス缶 有無	蓋有無	送入ガス 圧力 [kgf/cm ²]	破裂箇所	破裂箇所 の形状	配管内 ゲージ 圧 [MPa]	配管内圧力 [atm]	
未照射	なし	-	1	溶着部	穴	0.032	1.32	内圧最小値
未照射	なし	-	6	溶着部	穴	0.14	2.4	内圧最大値
未照射	あり	なし	1	溶着部	穴	0.021	1.21	内圧最小値
未照射	あり	なし	6	生地部	放射	0.16	2.6	内圧最大値
未照射	あり	あり	2	生地部	直線	0.10	2.0	内圧最小値
未照射	あり	あり	6	生地部	放射	0.30	4.0	内圧最大値
照射	あり	なし	1	生地部	直線	0.042	1.42	_
照射	あり	あり	1	生地部	直線	0.09	1.9	内圧最小値
照射	あり	あり	1	生地部	直線	0.11	2.1	内圧最大値

表 7.1.2-5 各破裂試験条件と配管内圧の最大・最小値

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

確認・調査事項

貯蔵期間中に、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. 確認調查方法·内容

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

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、 開封点検時まで、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、その差分から資料の貯蔵容 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月の健全性確認検査において開封検査の 対象となった可能性があり、内部確認検査時に開封され発生したHeが環境放出されたケースと、開封さ れなかったケースでの貯蔵容器内のHe存在量は次のとおりとなった。

○内部確認検査時に開封されたケース

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

○内部確認検査時に開封されなかったケース

- •He 重量: 2.70×10⁻³g
- ・Heの標準状態での体積:15.1mL
- 4. 評価結果

貯蔵期間中にアクチノイドの α 崩壊により生成/放出される He ガス発生量は、内部確認検査時に開封 されたケースでは 12.6mL、開封されなかったケースでは 15.1mL 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 2.3L^{*2}に比して 1%以下(0.5%=0.0126/2.3×100, 0.7%=0.0151/2.3×100)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 0-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.

	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			
P11	(1)	(2)	(3)	(3)-(1)		.) (3)-(2)	
組成	[g]	[g]	[g]	[g]	[m1]	[g]	[m1]
A 組成	9. 36×10^{-4}	1.39×10^{-3}	3.64×10^{-3}	2.70×10 ⁻³	15.1	2. 25×10^{-3}	12.6
B組成	7.60 $\times 10^{-4}$	9.69 $\times 10^{-4}$	1.91×10^{-3}	1.15×10^{-3}	6.4	9. 43×10^{-4}	5.3
C 組成	1.20×10^{-3}	1.55×10^{-3}	3.19×10^{-3}	1.98×10^{-3}	11.1	1.64×10^{-3}	9.2
D 組成	1.41×10^{-3}	1.87×10^{-3}	4.08×10^{-3}	2.68 $\times 10^{-3}$	15.0	2.22×10^{-3}	12.4
E組成	6.86×10^{-4}	8.89×10^{-4}	1.81×10^{-3}	1.12×10^{-3}	6.3	9.20×10^{-4}	5.2

表①-1 貯蔵容器内の核燃料からのヘリウム発生計算結果

1. 確認·調查事項

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(5MeV~)のほとんどを固体に付与することから、γ線によるエネルギー付与に比べて格段に大きい。

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

2. 確認調查方法·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 100eV あたり発生するガス分子数)を評価した上で、核燃料物質の粉末 とエポキシ樹脂の混合物から発生するガス量を算出する方法の2種類を用いた。なお、確認のため、(3) エポキシ樹脂へのγ線照射によるガス発生のG値も試験により評価し、α線による寄与と比較検討した。

(1) Cm 粉末を用いたエポキシ樹脂のα線分解試験の方法

使用した Cm 粉末は、Cm-244(半減期 18.1年)とその娘核種(Pu-240)からなる二酸化物粉末である。 この粉末を乳鉢で粉砕し、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。

封約 夕	エボ	キシ樹脂重量	(mg)	Cm 粉末重量	Cm 粉末	
武仲省	主剤	硬化剤	樹脂合計	(mg)	含有率(%)	
А	56.35	60.07	116.42	-	-	
В	75.75	75.76	151.51	19.36	11.33	
С	116.77	114.20	230.97	28.63	11.03	

表2-1 Cm 粉末とエポキシ樹脂の混合組成

アルゴン雰囲気(水分濃度2ppm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194m1)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。





(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を直径26 mmのステンレス鋼製円盤に塗 布して厚さ数100µmに固化したものを試料として用いた。また、実環境と同じ大気中でのα線照射を模 擬するため、ステンレス鋼製の大気照射セルを利用した。このセルのビーム入射部は、7.5 µm 厚のカ プトン製フィルム製で、大気中に取り出したHeイオンを照射する事が可能な構造となっている。図② -2に大気照射セルの写真を示す。

(b) He イオン照射及び発生水素量分析

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エポキシ樹脂をポリプロピレン製クリアファイルに塗布して厚さ約 1 mm の板状に固めた後、剥がして、約1 cm 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

量子科学技術研究開発機構高崎量子応用研究所の食品照射棟第2セルにて、6kGy/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、3.6kGy/hの4条件のy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·調查結果

(1) Cm 粉末を用いたエポキシ樹脂の α 線分解試験の結果

試料 A、Bの樹脂の重量変化率と試料 C の密閉容器の内圧変化の測定結果を図②-3 に示す。試料 B のエ ポキシ樹脂重量変化と試料 C の密閉容器内圧変化は、経過時間に対してほぼ比例していることが確認され た。グラフの経過時間(16日間)において、試料 A (エポキシ樹脂のみ)の重量減少は 0.03%未満で無視 できる値であるのに対し、開放系に保持した試料 B のエポキシ樹脂の重量減少率は 3.3%(4.93 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。16 日経過時点で密閉容器を開封し、その直後に試料 C の重量を測定したとこ ろ、エポキシ樹脂の重量減少率は 0.68% (1.58 mg) であり、同じ経過時間の試料 B に比べて約 1/5 と小 さい値であった。試料 B の外観と比べて、密閉されていた試料 C は樹脂が全体的に膨張していた(図②-4) ことから、密閉の加圧下では、樹脂内で発生したガス分子が外部に放出されにくく、樹脂内でミクロな気 泡を形成していることが示唆される。試料 C のガス発生量と重量減少から、ガス種を水素とメタンの 2 種混合と仮定して組成を概算評価し、97%が水素、3%がメタンとの結果を得た。



図2-3 Cm 粉末と混合したエポキシ樹脂の重量変化率と密閉状態の内圧変化



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

上記の試験結果を貯蔵容器内の Pu に換算し、エポキシ樹脂中に分散した Pu 1g あたりから発生するガス量を評価した。Cm 含有粉末の実効崩壊定数は 1.90 × 10⁻¹⁰ s⁻¹であり、16 日間で発生した α 粒子の数は 1.66 × 10¹⁶ 個であるので、 α 粒子 1 個あたりから発生したガス分子の数は 2.45×10⁴ 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 1 g あたりから、エポキシ樹脂と混合されていた場合に 発生するガス量は以下のとおりである。まず、平成 3 年 10 月の貯蔵開始から平成 8 年 7 月の点検時まで (4.75 年間)に、Pu 1g あたりから発生する α 粒子の数は 9.63×10¹⁷ 個である。代表組成 A の α 線の平 均エネルギー(5.28MeV)と Cm-244 の α 線のエネルギー(5.8MeV)の比を考慮して、エポキシ樹脂中の Pu1g 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、2.15×10²² 個(0.0356 mol)となり、 標準状態換算で 0.80 Lのガスが発生することになる。同様に、平成 8 年 7 月(再梱包)から樹脂製の袋 が破裂した平成 29 年 6 月までの 20.92 年間では、Pu 1g あたりのα粒子の発生数は 4.78×10¹⁸ 個、ガス 分子の発生量は 1.07×10²³ 個(0.177mol)で、標準状態換算で 3.96 Lのガスが発生することになる。

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

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

(2) He イオン照射による水素ガス発生の 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 μ C~ 14 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 mo1/J が得られた。

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



図2-5 エポキシ樹脂に対する He イオン照射時の発生ガス質量スペクトル



図2-6 エポキシ樹脂に対するヘリウムイオン照射時の水素ガス発生量

(3) エポキシ樹脂の γ線照射による G 値(ガス発生量)の評価結果

 γ 線照射量と水素発生量の測定結果を表②-2及び図②-7に示す。予備照射の有無の影響があることが 分かる。図②-7の線図の傾きより水素ガス発生量を求めた結果、予備照射ありでは 1.5×10^{-8} mol/J、な しでは、 1.2×10^{-8} mol/J が得られた。この結果得られた水素ガス発生量のうち高い値である予備照射あ りでの値を用いると 200 kGy の γ 線照射で、約 2.9×10^{-3} mol/kg の水素が発生し、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。

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	2.07x10 ⁻⁰⁷
	5.59	5.0773	4.55x10 ⁻⁰⁷
	7.28	5.0725	5.59x10 ⁻⁰⁷
	12.64	5.0904	9.05x10 ⁻⁰⁷
なし	2.68	5.0185	1.39x10 ⁻⁰⁷
	5.59	5.0259	3.29x10 ⁻⁰⁷
	7.28	5.0015	4.25x10 ⁻⁰⁷
	12.64	5.0091	8.19x10 ⁻⁰⁷

表②-2 エポキシ樹脂の水素発生量測定結果



図2-7 エポキシ樹脂のy線照射量と水素発生量の関係

4. 評価結果

Cm 粉末と混合したエポキシ樹脂の a 線分解の試験結果から評価されたガス発生の 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 あたりのガス発生量は、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 1g あたり最大 3.96 L で、内圧上昇への 寄与は+172%である。 なお、γ線照射による分解生成ガスに関しては、エポキシ樹脂1 kg あたり 70 mL の水素発生量である ので、内圧上昇に対する寄与は小さい。

5. 参考文献

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

1. 確認·調查事項

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

2. 確認調查方法·内容

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

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

3. 確認·調查結果

(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

5.5MeVのHeイオン(ビーム電流:約5enA)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

(a) 核燃料物質の全量が Uと Pu の混合酸化物粉末の場合

表 6.4.1 の組成 A を Pu の代表組成として、天然 U との混合二酸化物を仮定すると、理論密度は 11.095 g/cm³となる。この %の密度で粉末が充填されていると仮定すると、充填体の体積は and cm³で、ポ リ容器(内径 92 mm)の底面積 66.5 cm²に対して粉末充填高さは cm となる。これらから、粉末充填 体がポリ容器内面と接触している面積(底面と周面)に厚さ μm 分を掛け合わせた有効体積は cm³であり、その内部に含まれる二酸化物粉末は mol である。ここから生じる α 粒子の mol 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 個別の通知 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 のかを用いると、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 (のののの) 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 (のののの) 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 **(1999年の)** 個であるから、発生するガス分子の数は **(1999年の)** 個(**1999年の)** 個(**1999年の)** 個(**1999年の)** 個(**1999年の)** 個(**1999年の**) となり、標準状態換算で0.35 L である。

核物質防護の観点から■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に酸化物粉末としてポリ 容器に充填されている場合を想定した。同位体組成 A を代表組成として PuO₂の理論密度を 11.478 g/cm³ と算出した。この 6%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 60% cm である。 ポリ容器との接触面積に厚さ m を掛け合わせた有効体積は 60% cm³であり、ここから生じる α 粒 子の 6% 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末までの4.75年間で、ポリ容器に入射したα粒子の数は7.21×10¹⁶個 と算出される。発生するガス分子の数は**国際の開始**個(**国際の開始**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3.58×10¹⁷ 個と算出される。発生するガス分子の数は**(1999年)**個(**1999年)**mol)で、標準状態換算で1.03L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70mL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0.35L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。

核物質防護の観点から■の箇所は非開示としています。

④「混入水分」

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。基本的な化学式は次のとおりである。

 \cdot H₂0 \rightarrow H₂ + 1/2 \cdot O₂

容器中には **m**g の天然 U 試料及び mm 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全て放射性分解され たと仮定する。

3. 確認・調査結果

当該貯蔵容器については、平成8年7月の内部確認検査において開封されていると考えられるので、放 射線分解により発生したH2及び02は開封時に放出されるが、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、開封検査後(再梱包後)に吸着した水分を放射線分解するため、開封検査前と同量 のH2及び02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。

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、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は最大で1.65Lないしは2.75Lとなる。

4. 評価結果

貯蔵期間中に試料に吸着した水分が全て放射線分解された場合の H₂及び 0₂ガス発生量は、水分吸着量 を■wt%とした場合には 1.65L、水分吸着量を■wt%とした場合には 2.75L であり、貯蔵容器内の発生 気体滞留可能体積 2.3L 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. 確認調查方法·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

作業者への聞き取り調査、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。



*: 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(**国際** mol)が H₂0 と反応した場合、**国際** mol の CH₄が発生し、その体積は標準状態で 1.52L となる。

【PuC について】

核物質防護の観点から■の箇所は非開示としています。

【PuN について】

PuN の全量が H₂0 と反応した場合、 mol の NH₃ と mol の H₂ が発生する。すな わち、合計すると mol のガスが発生し、その体積は標準状態で 0.0305L となる。

以上より、貯蔵容器内に存在する UC、PuC、及び PuN と H₂0 とが反応することにより生成されるガスは 1.63L 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1gに対し、約10g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**の**の、に対しては約**の**、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うえ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 1g 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。

の炭化物及び窒化物がすべて水と反応するには 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 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35.4kJである。単位時間当たりの発熱量は0.226W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 g と窒化物の約 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 0.226W の発熱は、炭化物及び窒化物の H₂0 との反応が 継続する封入後 43 時間のみの発熱である。

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。

核物質防護の観点から■の箇所は非開示としています。

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

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. 確認調查方法·内容

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

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

3. 確認·調查結果

エポキシ樹脂はアミノ基(-NH₂)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(-NO₂)やアジド 基(-N₃)の構成元素であるN、Oが含まれる。一般的にアミノ基からニトロ基に変化するためには、強力 な酸化剤である濃硝酸が必要とされている。貯蔵容器内等で強力な酸化剤は存在し得ないためアミノ基 がニトロ基に変化することは無いと考えられるが、高温・高圧条件下やα線やγ線等の放射線照射下であ ったことが想定されるため、これらの条件における生成可能性を検討した。

先ず、高温・高圧条件下の検討において、化学平衡計算によりN、H、0を含む系でエポキシ樹脂の保管 時における想定を超えた条件(温度 23℃~223℃、圧力 latm~100atm)で安定相を評価した結果、N₂、0₂、 H₂0 が生成するのみで硝酸アンモニウム(NH₄NO₃)の生成は無かった。これより熱力学的平衡条件におい ては硝酸アンモニウム等の爆発性物質が生成する可能性は無いことが分かった。

次に、α線、γ線照射条件下の検討において、文献調査(及びHe イオン照射の検証実験)により、エ ポキシ樹脂を対象としたγ線照射(10 MGy)でH₂やCH₃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、N-O が最も低いエネルギーで乖離することが分かった。以上のことから、照射に よりニトロ基は生成せず、仮にニトロ基が生成しても照射下では安定には存在しない可能性が考えられ、 α線、γ線照射条件下においてニトロ基を有する爆発性物質は生成する可能性は低いことが分かった。

以上の検討結果より、貯蔵容器内において硝酸アンモニウム等の爆発性物質が生成する可能性は想定 し難い。さらに、仮に爆発性物質が生成したとしても、例えば硝酸アンモニウムの場合、爆発には260℃ 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℃と小さいことが分かっており、260℃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。さらに作業者への聞き取り調査の結果、破裂 時における異臭等は無いことが分かっており、爆発性物質の生成及び爆発が生じなかったことを裏付け ている。

4. 評価結果

エポキシ樹脂において高温・高圧下での熱平衡条件やα線及びγ線照射条件では爆発性物質である硝酸アンモニウムは生成せず、また爆発温度である260℃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", 2d ed., Butterworth, London, 1958.
- [3] スティーブン・ジョセフ・バブら、"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·調查事項

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. 確認調查方法·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ト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、作業者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·調查結果

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 H₂ ガスの発生率として1日当たり最大 3.2×10^{-5} mol を想定した。貯蔵容器内(ポリ容器は充填されている と仮定: 2.3 L)の標準状態の空気中に含まれる空気量は約0.10 mol となる。樹脂製の袋からの H₂の漏 洩率は、2.7×10⁻¹⁰ cc/cm・cm²・s・10mmHg [1]、貯蔵容器の0リングからの H₂の漏洩率は、4.0×10⁻⁶ cc・ cm/cm²・s・atm [2]であり、樹脂製の袋は貯蔵容器内寸法(ϕ 130 mm×302 mm)で厚さ0.3 mm、貯蔵容器 の0リングは外径 ϕ 120 mm、幅2 mm として計算すると、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日の期間に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 は体に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、破裂時において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。仮に静電気等による着火源が発生して爆発したとしても、二重目の樹脂製の袋が健全であり、 破裂時における炎や異臭等は無かったことを考えると、水素爆発の発生は想定しがたい。従って、可燃性 ガスの燃焼・爆発により新たなガス生成及び熱発生の可能性は低い。

5. 参考文献

- [1] 住友化学科学株式会社ホームページ, http://www.sumitomo-chem.co.jp/acryl/03tech/ b3_gas.html
- [2] 桜シール株式会社ホームページ, http://www.sakura-seal.co.jp/category/1981184.html
- [3] 柳生昭三 他、水素の爆発危険性についての研究(第1報) 水素の爆発限界に及ぼす圧力の影響 — 、産業安全研究所研究報告 RIIS-RR-18-1、1969
- [4] 佐藤保和 他、安全に関わる水素の性質、安全工学、vol.44 No.6 (2005) 378

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。

ų,

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.

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を調査する。

2. 確認調查方法·内容

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

3. 確認·調査結果

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

崩壊熱を 0.5 Wと想定して、図⑨-1 に示した貯蔵容器内の構造を模擬(貯蔵容器内寸法: ϕ 130 mm× 302 mm、ポリ容器寸法: ϕ 94 mm×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・K))及びポリ容器(ポリエチレン: 0.34 W/(m・K))の熱伝導率を考慮した[1]。発熱源に関しては、実際は大半がエポキシ樹脂に固定されポリ容器内に分散しているものと想定されるが一つの発熱源を断熱性の高い条件(周りを空気で囲む)で貯蔵容器内に配置することとし、最も温度が高くなる保守的な寸法として ϕ 10 mm × 10 mm とした。数値解析は、r - z 軸における 1 mm × 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℃を設定した。

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

ここで半径:r[m]、単位体積当たりの発熱量:Sc[W/m³]、温度:T[℃],高さ:z[m],熱伝導率:λ[W/(m K)]である。

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

核物質防護の観点から■の箇所は非開示としています。

4. 評価結果

α線が最も多くなる Pu 組成を用いた条件で崩壊熱は約 0.5 W であった。これによる容器内温度上昇は 最大でも+2℃以下であり、崩壊熱による内部温度上昇への影響はほとんど無い。



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.

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. 確認調查方法·内容

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

3. 確認·調査結果

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

4. 評価結果

夏場の温度上昇が内圧上昇へ及ぼす影響は、「内部でのガス発生」における各事象での内圧上昇割合と 比べて十分に小さく、影響は小さい。 ⑪「不適切な溶着」

- 1. 確認·調查事項
 - 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

事故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。

- 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

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

13「樹脂製の袋の α 線による劣化」

確認・調査事項

1.1 樹脂製の袋のα線照射による劣化度合い

- 2. 確認調查方法·内容
 - 2.1 樹脂製の袋のα線照射による劣化度合い
 - (1) 現地調査

現物のポリ容器の健全性の確認未実施。

- 3. 確認·調査結果
 - 3.1 樹脂製の袋のα線照射による劣化度合い
 - (1) 現地調査

現地調査は未実施。

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

4. 評価結果

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

- 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) y線照射後の破裂試験による劣化度合い評価
- 2. 確認調查方法·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3m×直径約30 cm φ、厚さ0.3 mm)を長さ20 cm に切断後、切断片から試験片打ち抜き治具を用いて引張試験用試験片を20枚作成した。試験片はASTM D1822 L タイプであり、寸法は図 (4-1 に示すものである。



図 (4-1 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、国立研究開発法人量子科学施術研究開発機構 高崎量子応用研究所 (以下「量研 高崎研」という。)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10mm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) y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1mに切断した後、量研 高崎研の食品照射棟第2セルにて、6kGy/hで60時間照射し、照射量360kGy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。シーラーで 溶着、密封した樹脂製の袋を、底に φ 20 mm の穴をあけたステンレス缶 (φ 133 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。



図组-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 (独-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 ④-1 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 ④-4 に公称の引張強度、図 ④-5 に破断伸びの結果を比較して示す。360 kGy のγ線照射により、樹脂製の袋の引張強さは公称応力値として 19.8 MPa から 13.1 MPa に約 34% 低下した。また、破断伸びは破断時の公称ひずみ値として 338%から 232%に約 31%低下した。

	引 (公称)	張強度 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		

表⑭-1 樹脂製の袋の非照射及び照射後引張試験結果



図⑭-4 樹脂製の袋の非照射及び照射後引張強度の比較結果



図⑭-5 樹脂製の袋の非照射及び照射後破断伸びの比較結果

(2) γ線照射後の破裂試験による劣化度合い評価

1) 外観観察結果

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

2) 破裂試験結果

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

で破裂する挙動を示した。非照射の樹脂製の袋のケースと異なり、破裂箇所の形状は90mm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90mm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(4-6 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1kgf/cm²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④-9)。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 4-8 蓋あり試験 破裂直前の樹脂製の袋の写真



図 4-9 蓋あり試験 破裂後の樹脂製の袋の写真



- 4. 評価結果
 - 4.1 樹脂製の袋のγ線照射試験による劣化度合い評価
 - (1) γ線照射後の引張試験による劣化度合い評価

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

(2) γ線照射後の破裂試験による劣化度合い評価

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

蓋ありの試験に関して、劣化した樹脂製の袋の膨らみにより蓋がゆっくりと僅かに空いて破裂に 至った過程及び樹脂製の袋の側面と上部を拘束点とした点は、当時の破裂事象を模擬している。一 方、本試験では蓋の開度を強制的に制限しており、同種の蓋あり開度の制限なしの試験条件におい て蓋が飛んでいる例もあることから、本試験における樹脂製の袋の内圧は蓋の開度を強制的に制限 したことにより蓋が載っている状態よりも高かったと推測される。また、本試験体系における劣化 した樹脂製の袋の内圧(1.9、2.1 気圧)はこの試験に近い条件の非照射の樹脂製の袋の試験での 値(例えば2.2 気圧)と比較して小さい傾向があることから劣化した樹脂製の袋は非照射の袋に対 して耐圧性や伸びの特性が低下していると考えられる。また、今回のγ線照射により劣化した樹脂 製の袋の破裂試験において、樹脂製の袋が耐えられた圧力の範囲は1.42~2.1 気圧であった。

- 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. 確認調查方法·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

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

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

- ・R = 0.542×Emax 0.133 ただし、0.8MeV < Emax
- ・R = 0.407×Emax^{1.38} ただし、0.15MeV < Emax < 0.8MeV

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

²⁴¹Pu の β 崩壊によって放出される β 線の Emax は 0. 0208MeV で、上記関係式の適用範囲外であるものの、前出の 0. 15MeV の β 線より最大飛程は短くなる。

ポリ容器の密度は 0.92~0.95g/cm³程度、上部/底部及び側面の肉厚は 0.1cm であり、0.15MeV の β 線における最大飛程から考えても、²⁴¹Pu 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月の内部確認検査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²⁴¹Pu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。 16「樹脂製の袋の熱劣化」

- 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. 確認調查方法·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。
- 確認・調査結果
 - 3.1 樹脂製の袋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

樹脂製の袋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。

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

表16-1 空気中での PVC の寿命

また、表⑯-1 に示す温度と PVC の寿命の関係から、室温付近の温度(30℃、25℃、20℃)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] PNC-ZN5410-88-003 ビニルバッグ検討委員会報告書 (1988)

①「樹脂製の袋の経年劣化」

- 1. 確認·調查事項
 - 1.1 樹脂製の袋の経年による劣化度合い
- 2. 確認調查方法·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。

- ・PVC 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)。
- ・PVC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、⁴ Q No. ⁴ ⑤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), 2013

- 1. 確認·調查事項
 - 1.1 数十年前の樹脂製の袋の品質調査(強度等)
- 2. 確認調查方法·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。 1. 確認·調查事項

ポリ容器の γ 線照射試験による劣化度合い評価

2. 確認調查方法·内容

ポリ容器の胴部を三等分の長さ約4 cm の輪切りに切断した後、国立研究開発法人量子科学施術研究開 発機構 高崎量子応用研究所(以下「量研 高崎研」という。)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 の照射を行った。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19-1 に非照射 と照射後の試料の外観観察結果を示す。



図19-1 非照射と照射後のポリ容器の外観観察結果

4. 評価結果

360 kGy の γ線照射により、ポリ容器は非照射に比べて変色は小さく、柔軟性もほとんど変化はなく、 脆くなるような劣化は認められなかった。したがって、ポリ容器が放射線劣化により破砕して、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。 1. 確認·調查事項

ポリ容器内への突起物混入有無

2. 確認調查方法·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、収納当時の作業者への聞き 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

収納当時の作業者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者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。また、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·調查事項
 - 1.1 現地調査による開封時の傷付与の有無
- 2. 確認調查方法·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·調查結果
 - 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。