

燃料研究棟汚染事故における 樹脂製の袋の破裂原因調査報告

－有機物の放射線分解によるガス発生と内圧上昇について－

Investigative Report on the PVC Bag Burst in the Contamination Incident
at Plutonium Fuel Research Facility

－ Radiolysis of Organic Materials and Raising of Internal Pressure –

燃料研究棟汚染事故に関する原因究明チーム

Cause Investigation Team for the PFRF Contamination Incident

March 2018

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2018

燃料研究棟汚染事故における樹脂製の袋の破裂原因調査報告
－有機物の放射線分解によるガス発生と内圧上昇について－

日本原子力研究開発機構
燃料研究棟汚染事故に関する原因究明チーム⁺

(2017年12月21日 受理)

2017年6月6日に日本原子力研究開発機構大洗研究開発センター燃料研究棟で発生したプルトニウムによる汚染・内部被ばく事故では、核燃料物質を収納した貯蔵容器の蓋をフード内で開封した際に内部の樹脂製の袋（PVC バッグ）が破裂したため、ウランとプルトニウムの一部が実験室内に飛散するとともに作業員の内部被ばくに至った。事故発生後に組織された原因究明チームは、貯蔵容器内部のPVC バッグ内圧が上昇して破裂に至った原因を現象論的に明らかにするため、当該貯蔵容器内の核燃料物質に関する情報を、記録・帳票類の調査、聞き取り調査、内容物の観察・分析によって収集した。さらに、有機物の放射線分解によるガス発生やPVC バッグの放射線劣化と破裂現象に関する各種検証試験を行い、必要なデータを取得した。これらをもとにフォルトツリー解析を行い、可能性のある各種要因を定量的に評価した結果、内圧上昇の主原因がエポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生であることを特定した。また、事象進展シナリオにしたがって貯蔵期間中のPVC バッグの内圧上昇推移を評価した結果、貯蔵容器の蓋開封時に破裂する圧力であることを確認した。本調査報告で述べるガス発生量や内圧上昇推移の評価手法は、他施設での核燃料物質の貯蔵に際しても大いに参考となるものであり、活用されることを期待する。

⁺燃料研究棟汚染事故に関する原因究明チーム

原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター、物質科学研究センター

原子力科学研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方 2-4

バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 プルトニウム燃料技術開発センター

核燃料サイクル工学研究所：〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

**Investigative Report on the PVC Bag Burst in the Contamination Incident
at Plutonium Fuel Research Facility
—Radiolysis of Organic Materials and Raising of Internal Pressure—**

Cause Investigation Team for the PFRF Contamination Incident[†]

Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received December 21, 2017)

The contamination incident occurred at Plutonium Fuel Research Facility in Japan Atomic Energy Agency (JAEA) Oarai Research and Development Center on June 6, 2017. The PVC bag packaging in a fuel storage container burst when a worker opened the lid, and a part of contents (uranium and plutonium) was spattered over the room. In order to clarify the phenomenological cause of the burst, the Cause Investigation Team organized in JAEA after the incident collected information concerning characteristics of the contents from any past records, monthly reports, and interview. And then we observed and analyzed the contents after transferring the container into a glove box. We also performed experiments on alpha and gamma radiolysis of organic materials, degradation of PVC bag by gamma radiation, and PVC bag burst. Based on fault tree analysis, finally we concluded that the main gas generation source was alpha radiolysis of the epoxy resin mixed with the fuel powder. Evaluation of the inner pressure transition during the storage period showed that the pressure reached enough high to breach the PVC bag. We hope that the evaluation procedures for the gas generation and the inner pressure transition described in this report can be useful reference for management of fuel storage in other facilities.

Keywords: Plutonium, Alpha Decay, Radiolysis, Organic Materials, Epoxy Resin, Polyethylene, PVC Bag, Gas Generation, Internal Pressure

[†]Nuclear Science and Engineering Center, Materials Sciences Research Center, Plutonium Fuel Development Center

目 次

1.	はじめに	1
2.	事故の概要と破裂に至った主原因	2
2.1	事故の概要と破裂時の状況	2
2.2	貯蔵容器内容物の調査	3
2.2.1	帳票・記録類及び聞き取りによる調査	3
2.2.2	貯蔵容器内容物の観察	5
2.2.3	貯蔵容器内容物の分析	7
2.3	破裂に至った原因の特定	9
2.3.1	フォルトツリー図の構築	9
2.3.2	基本事象の影響度評価と原因の特定	10
2.3.3	事象進展シナリオ	11
3.	放射線分解によるガス発生	13
3.1	エポキシ樹脂の α 線分解	13
3.1.1	He イオン照射によるガス発生の G 値の評価	13
3.1.2	Cm 含有粉末を用いたガス発生の G 値の評価	14
3.1.3	G 値を用いたガス発生量の評価	16
3.2	ポリエチレン容器の α 線分解	17
3.2.1	ガス発生の G 値の評価	17
3.2.2	G 値を用いたガス発生量の評価	17
3.3	その他のガス発生要因	18
3.3.1	α 崩壊に伴う He ガスの生成	18
3.3.2	水分の α 線分解	18
3.3.3	化学反応による可燃性ガスと熱の発生	19
4.	ポリエチレン容器と PVC バッグの放射線劣化	21
4.1	γ 線吸収線量の評価	21
4.2	ポリエチレン容器の γ 線劣化	21
4.3	PVC バッグの γ 線劣化	21
5.	内圧上昇による PVC バッグの破裂挙動	23
5.1	未照射の一重 PVC バッグの破裂挙動	23
5.1.1	試験方法	23
5.1.2	試験結果	24
5.1.3	評価・考察	25
5.2	γ 線照射した二重 PVC バッグの破裂挙動	27
5.2.1	試験方法	27
5.2.2	試験結果	28
5.2.3	評価・考察	29
6.	ガス発生による内圧上昇推移の計算	31
6.1	計算手順	31

6.2	計算条件	32
6.2.1	ガス発生量計算条件	32
6.2.2	圧力計算条件	33
6.2.3	ガス透過量計算条件	33
6.3	内圧上昇推移計算結果	33
7.	プルトニウム貯蔵に関する国外の管理基準の例	34
8.	おわりに	36
	謝辞	37
	参考文献	38

Contents

1.	Introduction	1
2.	Outline of the Incident and the Main Cause of PVC Bag Burst	2
2.1	Outline of the Incident and the Situation of Burst	2
2.2	Contents of the Storage Container	3
2.2.1	Data Collection from Past Records and Interview	3
2.2.2	Observation of the Contents	5
2.2.3	Analyses of the Contents	7
2.3	Analysis of the Main Cause	9
2.3.1	Fault Tree Diagram	9
2.3.2	Quantitative Analyses of the Basic Events	10
2.3.3	Scenario of the Event Progress	11
3.	Gas Generation by Radiolysis	13
3.1	α Radiolysis of Epoxy Resin	13
3.1.1	Evaluation of G Value by He Ion Irradiation	13
3.1.2	Evaluation of G Value by using Cm Powder	14
3.1.3	Evaluation of Gas Generation by using G Value	16
3.2	α Radiolysis of Polyethylene Container	17
3.2.1	Evaluation of G Value	17
3.2.2	Evaluation of Gas Generation by using G Value	17
3.3	Other Factors for Gas Generation	18
3.3.1	He Gas Generation by Alpha Decay	18
3.3.2	Alpha Radiolysis of Moisture/Water	18
3.3.3	Flammable Gas and Heat Generation by Chemical Reactions	19
4.	Radiation Degradation of Polyethylene Container and PVC Bag	21
4.1	Accumulated Irradiation Dose during Storage Period	21
4.2	Radiation Degradation of Polyethylene Container	21
4.3	Radiation Degradation of PVC Bag	21
5.	Burst Behavior of PVC Bag by Internal Pressure Increase	23
5.1	Single Packaging with Unirradiated Bag	23
5.1.1	Experimental Procedures	23
5.1.2	Results	24
5.1.3	Analysis and Discussion	25
5.2	Double Packaging with Irradiated Bag	27
5.2.1	Experimental Procedures	27
5.2.2	Results	28
5.2.3	Analysis and Discussion	29
6.	Calculation of Internal Pressure Transition	31
6.1	Calculation Method	31

6.2	Calculation Parameters	32
6.2.1	Cumulative Gas	32
6.2.2	Pressure	33
6.2.3	Gas Permeation	33
6.3	Results of Internal Pressure Transition	33
7.	Foreign Standards of Plutonium Storage	34
8.	Concluding Remarks	36
	Acknowledgements	37
	References	38

執筆者リスト

原子力科学研究部門

原子力基礎工学研究センター

高野公秀（燃料・材料工学ディビジョン） 編集責任者

加治芳行（同上）

逢坂正彦（軽水炉基盤技術開発ディビジョン）

三輪周平（同上）

川西智弘（同上）

物質科学研究センター

酒井卓郎（中性子材料解析研究ディビジョン）

バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所

プルトニウム燃料技術開発センター

森本恭一（燃料技術部）

表リスト

Table 2-1	貯蔵容器内の全核燃料物質による α 崩壊数の計算結果	39
Table 2-2	PVC バッグの破裂に係る基本事象の影響度評価	40
Table 3-1	γ 線照射によるエポキシ樹脂の水素ガス発生量測定結果	42
Table 3-2	Cm 含有粉末とエポキシ樹脂の混合組成	42
Table 3-3	粒子内で発生する α 線エネルギーのうち粒子外に 付与されるエネルギーの割合	42
Table 3-4	貯蔵容器内の樹脂固化物からのガス発生量の評価結果	43
Table 4-1	PVC バッグの未照射及び照射後引張試験結果	43
Table 5-1	未照射 PVC バッグ破裂試験条件と結果①	44
Table 5-2	未照射 PVC バッグ破裂試験条件と結果②	45
Table 5-3	未照射 PVC バッグを用いた破裂試験条件と 配管内圧の最大・最小値のまとめ	45
Table 5-4	照射済 PVC バッグ破裂試験①の結果	46
Table 5-5	照射済 PVC バッグ破裂試験②の結果	46
Table 5-6	照射済 PVC バッグ破裂試験③の結果	46
Table 6-1	ガス発生量の計算条件と計算結果	47
Table 6-2	圧力計算条件	48
Table 6-3	透過量計算条件	49
Table 6-4	貯蔵容器開封時（梱包更新後 21 年）における PVC バッグの内圧計算結果	49

図リスト

Fig. 2-1	事故直後の貯蔵容器の外観とフード手前の飛散物の様子	50
Fig. 2-2	燃料研究棟における X 線回折測定試料の作製方法	51
Fig. 2-3	貯蔵容器内面の外観写真	52
Fig. 2-4	破損した PVC バッグの外観写真	53
Fig. 2-5	ポリ容器（内容器）の外観	54
Fig. 2-6	ポリ容器内容物の外観写真	55
Fig. 2-7	フード手前床及びフード内養生シート上から回収した飛散物の外観写真	56
Fig. 2-8	梱包更新時の貯蔵容器内収納状態想定図	57
Fig. 2-9	粉末成分の観察像	58
Fig. 2-10	粉末成分の EDS による X 線スペクトルの例	58
Fig. 2-11	粉末成分の X 線回折プロファイルとデータベースとの比較	59
Fig. 2-12	線量当量率で選別したエポキシ樹脂固化物 3 個の断面観察像	60
Fig. 2-13	樹脂固化物断面観察像からの粉末平均粒子径の評価	61
Fig. 2-14	PVC バッグ破裂に係るフォルトツリー図	62
Fig. 2-15	PVC バッグ破裂に至る事象進展シナリオ	63

Fig. 3-1	大気照射セルの外観	64
Fig. 3-2	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	64
Fig. 3-3	エポキシ樹脂に対する He イオン照射時の水素ガス発生量	65
Fig. 3-4	エポキシ樹脂の γ 線照射量と水素ガス発生量の関係	65
Fig. 3-5	Cm 含有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 (右)	66
Fig. 3-6	Cm 含有粉末と混合したエポキシ樹脂の重量減少と密閉状態の内圧変化	66
Fig. 3-7	16 日目に密閉容器から取り出した試料 C (右端) と 解放状態にあった試料 A、B の比較	67
Fig. 3-8	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	67
Fig. 3-9	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	68
Fig. 4-1	γ 線吸収線量の計算に用いた貯蔵容器内の体系図	68
Fig. 4-2	経過年数に対する吸収線量率の変化	69
Fig. 4-3	未照射 (左) と照射後 (右) のポリ容器の外観写真	69
Fig. 4-4	ASTM D1822 L タイプの引張試験片の寸法図	70
Fig. 4-5	未照射と照射後の引張試験片の外観写真	70
Fig. 4-6	PVC バッグの引張強度及び破断伸びの照射線量依存性	71
Fig. 5-1	試験体系図 (左: 拘束なし、右: ステンレス缶による拘束・蓋なし)	72
Fig. 5-2	試験体系図 (ステンレス缶及び蓋による拘束)	72
Fig. 5-3	PVC バッグの構造図	73
Fig. 5-4	PVC バッグ破損箇所の概略図	73
Fig. 5-5	未照射 PVC バッグの破損状態の例	74
Fig. 5-6	PVC バッグ破損箇所の概略図	75
Fig. 5-7	未照射 PVC バッグの膨張の様子と破損状態の例	75
Fig. 5-8	二重梱包状態の破裂試験に用いた γ 線照射済 PVC バッグの概略図	77
Fig. 5-9	二重梱包状態の概略図	77
Fig. 5-10	二重梱包状態の破裂試験方法 3 種類の概略図と試験時の外観写真の例	78
Fig. 5-11	照射済 PVC バッグの破裂前後の外観写真 (二重梱包、蓋なし)	79
Fig. 5-12	照射済 PVC バッグの破裂前後の外観写真 (二重梱包、チェーンで蓋を拘束)	80
Fig. 5-13	破裂試験後の照射済 PVC バッグと事故後の PVC バッグの破損状態の比較	81
Fig. 6-1	PVC バッグ及び貯蔵容器の内圧計算モデル	82
Fig. 6-2	PVC バッグ及び貯蔵容器の内圧計算手順	82
Fig. 6-3	梱包更新後 21 年間の PVC バッグ内圧経時変化の計算結果	83

This is a blank page.

1. はじめに

2017年6月6日、日本原子力研究開発機構（以下「原子力機構」という。）大洗研究開発センター燃料研究棟において、核燃料物質を収納した貯蔵容器の内部を点検するためフード内で蓋を開封する作業を行っていた際に、内容物を二重に梱包していた樹脂製の袋（厚さ0.3mmのポリ塩化ビニル製、以下「PVC バッグ」という。）が破裂し、ウラン（U）とプルトニウム（Pu）の一部がフード外へ飛散して実験室内が汚染するとともに、室内にいた作業員5名が内部被ばくする事故が発生した。

事故後に原子力機構内に組織された燃料研究棟汚染事故に関する原因究明チーム（以下「原因究明チーム」という。）は、PVC バッグが破裂に至った原因を現象論的に明らかにすることを目的とし、作業員への事故時の状況聞き取り、当該貯蔵容器内容物の調査、及びこれらの情報を元に種々の検証試験を行った。破裂時の状況から、貯蔵期間中にPVC バッグの内圧が上昇していたことが明らかであり、その主原因は、Puを含む核燃料物質の粉末がエポキシ樹脂と混合・固化されたまま収納されており、エポキシ樹脂の α 線分解により水素を主とした多量のガスが発生したためと特定した。

本報告書は、2017年9月29日に原子力機構が原子力規制委員会へ提出した法令報告¹⁾のうち、原因究明に関する内容を取捨選択して再構成するとともに、Puの貯蔵に関する国外の基準情報を付加して取りまとめたものである。その目的は、今後他施設で同様の汚染・被ばく事故を起こさぬよう、Puを含む核燃料物質を貯蔵する際の技術的な検討のための参考資料として幅広く活用してもらおうことである。

本報告書の構成と内容は以下の通りである。2章では、事故の概要と破裂時の状況、貯蔵容器内容物の調査結果、及びこれらからPVC バッグの破裂に至った主原因特定のプロセスについて説明する。3章では、有機物の放射線分解に関して、今回の事故の主原因となったエポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生量の評価手法と、他施設の貯蔵状態においても可能性のあるケースとして、ポリエチレン容器の α 線分解及びその他のガス発生要因について述べる。4章では、ガス発生要因ではないが、貯蔵容器内部の梱包の強度劣化に関わる要因として、ポリエチレン容器とPVC バッグの γ 線照射劣化に関する検証試験結果を述べる。5章では、内圧上昇によるPVC バッグの破裂現象について、どの程度の内圧でどのように破損するかの観点から、今回の事故を模擬した体系で行なった破裂試験の結果を述べる。6章では、ガス発生量の評価結果を元に、貯蔵容器からのガス漏えいも考慮し、貯蔵期間中のPVC バッグ内圧上昇推移の計算手法と結果について述べる。7章では、国外におけるPu貯蔵に関する管理基準の例として、米国エネルギー省（以下「DOE」という。）の基準の要点を紹介する。8章では、原因究明の結果から得た、Puを含む核燃料物質貯蔵時のガス発生防止対策を提言して本報告書の結びとする。

2. 事故の概要と破裂に至った主原因

2.1 事故の概要と破裂時の状況

大洗研究開発センター燃料研究棟は、高速炉用新型燃料の研究開発を主目的とした核燃料物質使用施設であり、1974年に竣工し、1977年からPuを用いた試験が開始された。酸化物燃料のほか、炭化物、窒化物、金属燃料を対象とした様々な基礎研究に加えて、照射試験用燃料ピンの製作や熔融塩電解による乾式再処理研究も行われてきた。2013年に施設廃止の方針が出され、試験に使用した核燃料物質の安定化処理の準備作業や廃止措置計画の検討を進めていた。

2017年2月に、原子力規制庁からグローブボックス内での核燃料物質の保管等に関する改善を求められたこと（平成29年2月15日「使用施設等における核燃料物質のグローブボックス等を用いた長期保管に係る保安検査における確認について」）を受けて、グローブボックス内に長期間置かれていた核燃料物質を貯蔵室に保管する必要性が生じた。そのため、貯蔵室にある80個の貯蔵容器（Puを貯蔵できるもの70個、濃縮U用10個）を1個ずつ実験室のフードに移動し、蓋を開けて内部の空き状況を点検する作業を断続的に行なっていた。燃料研究棟の貯蔵容器は核燃料物質使用許可証で仕様が定められており、1個ずつ連番が付されている。容器本体と蓋はステンレス鋼製でO-リングにより気密保持されており、蓋は6本のボルトで本体に固定する構造である。

事故が発生したのは2017年6月6日11時15分頃で、当日5個目の貯蔵容器の蓋を開封する作業中であった。内部の二重のPVCバッグが破裂し、核燃料物質の一部がフード外に飛散して実験室内を広範囲に汚染した。破裂後に作業員が撮影した貯蔵容器の状態と、後日実験室内の状況確認のため入室した際に撮影したフード手前の状況の写真をFig. 2-1(a)及び(b)にそれぞれ示す。写真(a)では、PVCバッグが容器上端より上側に大きくはみ出しており、その内部には核燃料物質が収納された内容器（ポリエチレン製、以下「ポリ容器」という。）の蓋が上下逆さまになった状態にある。PVCバッグは側面に沿って縦に裂けており、開口部は作業員側（フードの外側）を向いている。写真(b)では、フード手前の床養生シート上に、黒いかげら状の飛散物が分散して落ちている様子がわかる。

事故発生時に実験室内にいた作業員は5名で、そのうちフードで開封作業をしていた主作業員を含む3名から破裂時の状況を聞き取りした概要は以下のとおりである。

- ・ フードのガラス扉は半開状態で作業を行なっていた。
- ・ 蓋の6本のボルトを、抜けない程度のところまでレンチで順に均等に緩めていった。その際、蓋が浮き上がってきており、容器本体との間に数mmくらいの隙間ができていた。
- ・ 緩めたボルトを1本ずつ指で抜いて行く過程で、4本のボルトを抜き、残り2本のボルトを指で緩める際に「シュ」と内圧が抜ける音がした。
- ・ 蓋と本体の隙間のスミヤを採取したところ、汚染がなかったため開封作業を続けた。
- ・ 片手で蓋の取手を持ちながら、残り2本のボルトを指で緩め、（結果として）ボルトのネジ山が容器に掛かっていない状態まで緩めた瞬間に破裂したことになる。
- ・ 破裂音は「パン」と1回で、大きな音だった。
- ・ フードで作業していた主作業員は、左腹部に風圧を感じた。主作業員の右後方にいた別の作業員は、両太腿上部に風圧を感じた。両者とも飛散物が体に当たった感覚は無く、視界でも飛散物を捉えていない。
- ・ 破裂時に、ごく短い間だけ「モヤモヤした煙のようなもの」が見えた。粉末という感じでは

なかった。

- ・ 破裂時には蓋やボルトが飛んだりしていない。蓋は数 cm も上がっていないと思った。
- ・ 破裂後に蓋をフード内に置いたと思うが、そのことは覚えていない。
- ・ フード前の床養生シート上に散らばった黒い塊状の飛散物を見て、何かで固めてあるものと思った。
- ・ Fig. 2-1(a)の写真を撮影するまで、状況保存のため貯蔵容器には触れていない。
- ・ 応急処置として、容器上端からはみ出た部分を掌で慎重に押し込み、容器の上に蓋を置いた。ボルトを締めようと思ったが、容器本体にボルトが届かない状態だった。

上記の破裂時の状況から、①PVC バッグの内圧が上昇して膨れていたものの、貯蔵期間中は貯蔵容器と蓋に拘束されて破裂に至らなかったこと、②蓋のボルトを外したことで拘束力を失い、PVC バッグが急激に膨張して破裂に至った状況が考えられる。

事故発生後の貯蔵容器に関する経緯として、2017年7月6日にフード内の貯蔵容器の蓋を固定するとともに、フード手前の養生シートと飛散物は別の実験室のグローブボックス内に搬入した。また、7月20日に貯蔵容器を同じグローブボックス内に搬入し、その後内容物の観察と分析を行った。

2.2 貯蔵容器内容物の調査

原因究明チームは、貯蔵容器内の核燃料物質に関して、まず帳票・記録類及び（退職者を含む）関係者への聞き取り調査により、内容物の性状や貯蔵開始時及びそれ以降の状況に関する情報を収集・整理した（2.2.1 項）。その後、当該貯蔵容器がグローブボックス内に搬入されてから内容物を取り出し、詳細な観察（2.2.2 項）と分析（2.2.3 項）を行い、得られた情報を PVC バッグの破裂原因検討・特定に用いた。

2.2.1 帳票・記録類及び聞き取りによる調査

計量管理の帳票類、燃料研究棟の月報、その他作業・点検記録類を調査した結果、当該貯蔵容器内の核燃料物質に関して得られた情報の要点は以下のとおりである。

- ①核燃料物質は天然 U と Pu であり、Pu は同位体組成の異なる 5 種類が混在している。
- ②1980 年代に作製した X 線回折測定済の試料を集めたものであり、計量管理上の性状区分は「スクラップ」である。
- ③燃料研究棟の X 線回折測定用試料の特徴として、核燃料物質の粉末化合物をエポキシ樹脂系の接着剤（2 液混合型）と混合し、アルミニウム製の試料ホルダーに固定する方法を用いていた（Fig. 2-2 参照）。この樹脂固化物部分の寸法は、約 20×20 mm 又は約 20×18 mm、厚さ 1.5 mm 強の平らな形状である。試料作製方法の技術レポート²⁾では、1 試料あたり粉末 0.2 g 程度使用するとされており、エポキシ樹脂使用量は 1 g 前後である。
- ④化合物の種類として、酸化物、炭化物、窒化物がある。これらの化合物は、U のみからなるもの、Pu のみからなるもの、U と Pu の混合化合物が混在している。
- ⑤X 線回折測定済の試料は空気雰囲気中のグローブボックス中に集約し、密閉性の低い容器に収納されていた。1989 年 10 月に、当時置かれていた全量のうち約 78 %に相当する量をほかの

空気雰囲気グローブボックスに移動した。

- ⑥この移動先のグローブボックスには、アルミニウム製の試料ホルダーから樹脂固化物を打ち抜く治具と酸化加熱処理用の加熱炉が設置されており、移動した核燃料物質はここに 2 年間置かれた後、1991 年 10 月に当該貯蔵容器に収納された。
- ⑦貯蔵容器へ収納する際の内容器として、燃料研究棟にあった比較的容積の大きい筒状のポリ容器を用いた。
- ⑧貯蔵容器への収納に際しては、グローブボックス内で核燃料物質をポリ容器に入れてから、PVC バッグ（一重目）へのバッグアウト操作によって搬出し、これを更に PVC バッグ（二重目）に封入した。
- ⑨1991 年 10 月に当該貯蔵容器の貯蔵を開始した後、1996 年 7 月に貯蔵容器の蓋を開封し、内部の状態を点検した際の記録の存在を 2017 年 7 月 14 日に確認した。記録には、ポリ容器の底部が変色、破損していること、PVC バッグが膨張していることの記載があるほか、梱包を更新した後に異常なしとの記載がある。

上記の情報に関する補足事項及び状況として考えられることを以下に述べる。

①の Pu 同位体組成 5 種類に関して、計量管理帳簿に記載の供給当事国別重量明細と、全 Pu 重量に対する核分裂性 Pu の重量比の数値から、貯蔵容器内の平均同位体組成を推定した。また、少なくとも 1980 年代半ばまでは Pu 中に生成する Am-241 の分離・除去が行われていた記録があることから、当該貯蔵容器内の Pu についても Am-241 が除去されたものと除去されていないものが混在していると推測される。貯蔵容器内の X 線回折測定済試料の多くは 1983 年までに作製されたものであることから、同位体組成については 1983 年に一度全ての Am が除去された場合と、一度も除去されていない場合の 2 ケースを想定した。貯蔵期間中の貯蔵容器内の全核燃料物質による α 崩壊数を ORIGEN 2 コード³⁾ と JENDL 4.0⁴⁾ ライブラリで計算した結果を Table 2-1 に示す。Am を一度除去したとしても、その後も Pu-241 から生成するので、Am 除去の有無による α 崩壊数への影響は顕著ではない。なお、貯蔵容器内の核燃料物質重量と詳細な同位体組成は、核物質防護の観点から本報告書では記載しないこととする。

④～⑥に関して、移動先のグローブボックスには、酸化還元炉と呼ばれる加熱炉が設置されていた。当時の燃料研究棟在籍者による技術論文⁵⁾には、有機物中の Pu を加熱処理して回収する方法が記載されていることから、酸化加熱処理した核燃料物質をスクラップとして貯蔵し、将来再利用することを想定していたと考えられる。X 線回折測定済試料のうち、炭化物と窒化物については化学的に活性であるとの認識があり、炭化物については試料ホルダーから樹脂固化物を取り外し（打ち抜き）、酸化加熱処理が行われていたことが 1985 年の作業月報に記載されている。この処理過程でエポキシ樹脂も分解・除去され、U と Pu の酸化物粉末となる。しかし、当該貯蔵容器内の核燃料物質が上記グローブボックス内に置かれている 1989 年から 1991 年の間に、樹脂固化物を酸化加熱処理したとの記載は作業月報に見られなかった。酸化物粉末の樹脂固化物についても、化学的に安定との認識から、加熱によるエポキシ樹脂の除去を行わないまま貯蔵容器に収納されたと考えられる。

⑦に関して、退職者を含む燃料研究棟関係者への聞き取りでは、貯蔵容器へ収納する際の内容器は、当時においても金属容器を使用するのが一般的な考え方であった。

⑨に関して、具体的な措置作業の記録は見つかっていないが、貯蔵容器内の収納物をグロー

ブボックスに搬入し、核燃料物質を新しいポリ容器に詰め替えた後、再度バッグアウト操作により PVC バッグに封入して貯蔵容器に収納したと推測される。これ以降の当該貯蔵容器内部の状態に関する点検記録類は見つからなかったことから、1996 年 7 月の梱包更新から 2017 年 6 月の開封・破裂までの 21 年間、当該貯蔵容器の蓋は開封されたことがなかったと推測される。

2.2.2 貯蔵容器内容物の観察

グローブボックスに搬入した貯蔵容器から内容物を取り出し、容器内面と内容物に関して詳細な観察を行なった。観察項目は以下のとおりである。

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

(1) 貯蔵容器内面の状態 (Fig. 2-3 参照)

貯蔵容器の蓋内面及び本体内面ともに、PVC バッグを損傷するような鋭利な突起物はなかった。また、貯蔵容器内に異物（ボルト、工具等）の混入はなかった。蓋の O-リングには周方向に沿って長い亀裂が生じていることを確認した。

(2) PVC バッグの状態 (Fig. 2-4 参照)

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

一重目（内側）PVC バッグの観察結果は以下のとおり。

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

二重目（外側）PVC バッグの観察結果は以下のとおり。

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

(3) ポリ容器の状態 (Fig. 2-5 参照)

- ・ 外観上は、特に底部付近の変色が著しい。
- ・ ひび割れや欠け等の破損は認められなかったが、胴体部分を掴んだ際の感触から脆化が認められる。

- ・蓋の上面にはマジックペンで「X線打抜」と記載がある。
- ・蓋と容器本体は紙テープで固定してあったが、境目でテープが破断している。
- ・蓋、本体ともに内面には細かい粉末が付着している。

(4) ポリ容器内容物 (Fig. 2-6 参照)

外観上の観察結果は以下のとおり。

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

重量と線量当量率に関する観察結果は以下のとおり。

- ・ポリ容器内の樹脂固化物（かけらを含む）と粉末成分の重量をそれぞれ測定した結果、粉末成分は 9.89 g で、全体量のうちのごく一部である。
- ・ほぼ完全な形状のものと欠けのあるものも含めた樹脂固化物 51 個を任意抽出し、グローブ越しに電離箱式サーベイメータで線量当量率を測定（距離約 10 cm）した結果、最大で 160 $\mu\text{Sv/h}$ 、平均で 30 $\mu\text{Sv/h}$ である。
- ・上記 51 個の樹脂固化物の重量は、1 個当たり最小で 0.35 g（欠けあり）、最大で 1.79 g である。
- ・上記 51 個の樹脂固化物をそれぞれ撮影した写真から寸法を読み取り、51 個分の体積を評価し、合計重量から平均の密度を算出した。
- ・粉末成分の線量当量率をグローブ越しに測定した結果、約 180 $\mu\text{Sv/h}$ である。

(5) 飛散物 (Fig. 2-7 参照)

飛散物の外観から、X 線回折測定済試料（樹脂固化物）の割れたかけらと推測される。養生シート上から集約したものの中には、貯蔵容器の塗装片等の細かい混入物も見られた。フード前の養生シート上から回収した飛散物の総重量は 1.37 g、フード内の養生シート上から回収した飛散物の総重量は 0.18 g である。

以上の(1)～(5)の観察結果から以下のことが考えられる。

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

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

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

貯蔵容器蓋の O-リングには長い亀裂が発生していたが、貯蔵期間中に貯蔵容器内圧が高くなったことで変形の影響により生じたものか、経年劣化の影響で蓋開封作業時に生じたものかは断定できない。貯蔵期間中に亀裂が生じていた場合、O-リング部分からのガス漏洩速度が大きくなり、PVC バッグ内圧推移に大きく影響する。

PVC バッグの内圧上昇と破裂に至った事象進展を検討する基礎データとして、貯蔵容器の製作図面に記載の寸法と、内部の観察及び PVC バッグ等の採寸により、1996 年 7 月の梱包更新時の貯蔵容器内の収納状態想定図を作成した (Fig. 2-8 参照)。貯蔵容器の材質はステンレス鋼 (SUS304) であり、蓋には取手が付いている。貯蔵容器本体と蓋の間は O-リングで気密が保たれており、製作時に 3 気圧の加圧下で気密検査が行われている。これは、貯蔵容器内部の加圧を想定したものではなく、臨界管理上の観点から貯蔵容器内への水の浸入を防ぐための設計仕様である。貯蔵容器本体への蓋の固定は 6 本のボルト (M8、SUS304 製) で締め付ける構造である。

ポリ容器の内容積約 1.5 L に対して貯蔵容器の内容積は約 3.9 L であるが、入口径 120 mm に対してポリ容器外径は 94 mm であることから、二重の PVC バッグで封入したポリ容器がころうじて入れられる状態である。ポリ容器の蓋は本体に被せるのみの形式であり、紙テープが巻かれてあったが密閉性は低く、急激な圧力変化が起こらない限りはポリ容器内部と一重目の PVC バッグ内部は圧力平衡になると考えて良い。一重目のバッグが上下方向に長かったことから、ポリ容器上方で折りたたまれていたと推測される。

なお、1991 年 10 月の貯蔵開始時の収納状態については、使用したポリ容器が梱包更新時と全く同じ寸法のものかどうか、二重のバッグの溶着部位や寸法等が梱包更新時と同等であったかどうかを示す情報は得られなかった。

2.2.3 貯蔵容器内容物の分析

貯蔵容器内容物の観察後に、ふるい分けした粉末成分と樹脂固化物断面 (線量別に 4 個抽出) について、走査電子顕微鏡 (SEM) による観察とエネルギー分散型 X 線元素分析装置 (EDS) による元素分析を行なった。また、粉末成分について X 線回折測定を行い化学形の同定を試みた。その結果は以下のとおりである。

(1) 粉末成分

粉末成分の観察像を Fig. 2-9 に示す。観察像の背景の黒色部分は粉末の固定に用いたカーボンテープである。粉末粒子の大きさは、1 μm 程度の微細なものからふるいの目開きである 300 μm に近いものまで幅広く存在しているが、微細な成分は相対的に少なく、体積的には数十 μm 以上の成分が大部分を占めている。また、粗大な成分は角張った形状のものが多く見られる。

EDS による元素分析の X 線スペクトルの例を Fig. 2-10 に示す。(a) は平均的な組成を評価するために視野全体の面分析を行った例であり、金属元素を U と Pu で規格化して簡易定量分析 ($L\alpha$ 線のピーク高さの比で評価) した結果、U/(U+Pu) 比 (U 含有率) は 0.74 であった。個々の粒子表面で約 60 点の点分析を行った結果でも、大部分は U 含有率が 0.8 ± 0.1 の範囲内であ

った。一方、(b)は、局所的に見られた Pu 含有率の高い粒子の例で、Pu/(U+Pu)比 (Pu 含有率) は 0.87 であった。Pu-241 の娘核種である Am-241 に関しては、定量評価できるほどの有意な強度の Am のピークは検出されなかった。

粉末成分の X 線回折プロファイル(Cu 管球)を Fig. 2-11 に示す。蛍石型構造の二酸化物(UO₂、PuO₂、(U,Pu)O₂ 等)に由来する 2 相の回折ピークのほかに、岩塩型構造の炭化物(UC、PuC、(U,Pu)C 等)と角度がよく一致する鋭い回折ピークが確認された。炭化物は空気中の水分に活性で不安定な化合物であるにもかかわらず、貯蔵開始から約 26 年間に渡って炭化物のまま保持されたのは、エポキシ樹脂中に分散して空気との接触が防がれたためと推測される。ほかに、粉末試料を充填した白金製ホルダーに由来する回折ピークと、同定できなかった回折ピークがある。

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

(2) エポキシ樹脂固化物

線量当量率の高、中、低で選別した 3 個の樹脂固化物の断面の観察像を Fig. 2-12 に示す。試料の帯電防止のため、樹脂固化物のかけらをカーボンテープで包むように金属製試料台に固定した。左側の全体像では、固化時の方法に起因して、粉末とエポキシ樹脂を混合した層と後から樹脂のみを充填した層が明確に分かれている。右側の拡大像からは、数 μm の微細な成分から最大 50 μm 以上までの大きさの粉末粒子が樹脂中に分散していることが分かる。また、試料によって樹脂と粉末の混合比に個体差が見られ、粒子間の近接度合いが異なる。いずれの試料にも 50 μm 前後の気泡痕が見られ、樹脂の α 線分解で発生したガスが放出されずに蓄積されていた可能性もあるが、線量当量率の高低にかかわらず気泡痕があることと、樹脂のみの層にもあることから、試料作製時に巻き込んだ雰囲気ガス(空気又はアルゴン)が気泡として残ったまま固化されたと考えられる。

Fig. 2-12 に示した 3 個の試料と、さらにもう 1 個の試料について、それぞれ 20 点前後の点分析によって Pu/(U+Pu)比 (Pu 含有率) を評価し、線量当量率と比較した結果は以下のとおりである。

- ・ 線量当量率：高 (約 220 μSv/h)、Pu 含有率：0.17±0.06
- ・ 線量当量率：高 (約 153 μSv/h)、Pu 含有率：0.77±0.17
- ・ 線量当量率：中 (約 56 μSv/h)、Pu 含有率：0.15±0.04
- ・ 線量当量率：低 (約 14 μSv/h)、Pu 含有率：～0

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

フード手前の床養生シート上から回収したかけら状の飛散物 2 個についても観察した結果、

Fig. 2-12 と同様の断面組織を有しており、飛散物はエポキシ樹脂固化物の割れたかけらであることを確認した。なお、これら 2 つの飛散物中の核燃料物質は、それぞれ U のみからなる化合物と Pu のみからなる化合物であった。

(3) 樹脂固化物中の粉末粒子径の評価

エポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生量の評価において、粉末粒子内部で発生した α 粒子のエネルギーは、粉末粒子の外へ到達するまでに結晶粒内で減衰するため、粉末粒子径が重要な情報である。線量当量率の高い試料と中くらいの試料それぞれ 1 個について、観察画像上で個々の粒子径を読み取り整理した結果を Fig. 2-13 に示す。粉末粒子内で発生する α 粒子の数は粒子重量 (= 体積) に比例することから、粒子径の単純な算術平均ではなく、粉末粒子の全体積に対する個々の粒子体積の累積分布を求め、累積度数が 50% となる粒子径 (D_{50}) を平均の粒子径とした。 D_{50} 値として Fig. 2-13 の(a)のグラフからは約 22 μm 、(b)のグラフからは約 36 μm を得た。

以上の(1)~(3)の分析結果から明らかになった点は以下のとおりである。

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

2.3 破裂に至った原因の特定

PVC バッグの破裂要因を分析するために、まず、事故時の状況と帳票・記録類から得た貯蔵容器内容物の情報を元にフォルトツリー図を作成し、可能性のある要因を列挙した (2.3.1 項)。その後に行った各種検証試験の結果や貯蔵容器内容物の観察・分析結果から、各要因の影響度合いを定量的に評価し、PVC バッグ破裂に至った主要原因を特定 (2.3.2 項) するとともに、事象進展シナリオを定めた (2.3.3 項)。

2.3.1 フォルトツリー図の構築

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 PVC バッグの破裂」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 (Fig. 2-14 参照)。トップ事象である「二重目 PVC バッグの破裂」は、「二重目 PVC バッグの内圧上昇」及び「二重目 PVC バッグの破損条件到達 (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 PVC バッグの内圧上昇」については、内圧上昇による一重目 PVC バッグの破裂あるいは破損、又は一重目 PVC バッグの膨張により発生するとした。前者の「一重目 PVC バッグの破裂あるいは破損」は、「二重目 PVC バッグの破裂」と同様に、「一重目 PVC バッグの内圧上昇」及び「一重目 PVC バッグの破損条件到達（条件変化含む）」の 2 つの事象の重畳により生じる。

一重目 PVC バッグの破裂あるいは破損要因のうち、「一重目 PVC バッグの内圧上昇」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 等と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 Fig. 2-14 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、崩壊熱や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 Fig. 2-14 に示す⑤～⑩の 6 つの要因を考えた。

「一重目 PVC バッグの破損条件到達（条件変化を含む）」をもたらす事象としては、PVC バッグ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 Fig. 2-14 に示す⑪～⑳の計 11 の要因を考えた。

以上のとおり、トップ事象「二重目 PVC バッグの破裂」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。

2.3.2 基本事象の影響度評価と原因の特定

基本事象 21 個について、概略計算評価、文献調査、各種検証試験、及び 2.2 節に示した貯蔵容器内容物の調査結果に基づき、トップ事象である二重目 PVC バッグの破裂に与える影響度（重要度）を評価した。その際に、基本データとして以下の値を用いた。

- ・発生したガスが貯留できる実効的な体積は、貯蔵容器の容積 3.9 L から内容物としてポリ容器及び樹脂固化物の体積相当である 0.4 L を減じた 3.5 L とした。
- ・PVC バッグに対する γ 線の挙動を粒子・重イオン輸送計算コード PHITS⁶⁾によりシミュレーションした結果から、PVC バッグへの γ 線照射試験における 21 年間の貯蔵期間相当の照射量（吸収線量）を、一重目と二重目の PVC バッグに対してそれぞれ 227 kGy 及び 108 kGy とした（4.1 節参照）。
- ・貯蔵容器を模擬した金属容器及び蓋による外部からの拘束下において、未照射及び照射した PVC バッグを破裂又は破損するまで加圧する試験を行った結果（5 章参照）から、当該貯蔵容器開封時と同様な PVC バッグの破裂又は破損状況となる内圧を 2.5 気圧程度以上とした。

21 個の基本事象のうち、以下の項目についてはそれぞれ検証試験を行い、影響度評価に必要なデータを取得した。

②混入有機物（エポキシ樹脂）の α 線分解

エポキシ樹脂に He イオンを照射して発生するガス種と量を分析し、ガス発生の G 値を評価した（3.1.1 項参照）。また、 α 線源として Cm-244 を含有する酸化物粉末とエポキシ樹脂を混合して樹脂固化物試料を作製し、 α 線分解による固化物の重量減少と密閉状態での内圧上昇を観測する加速試験を行った（3.1.2 項参照）。

③ポリ容器の α 線分解

貯蔵容器内で使用されていたものと同型のポリ容器切断片に He イオンを照射して発生するガス種と量を分析し、ガス発生量の G 値を評価した（3.2 節参照）。

⑭PVC バッグの γ 線による劣化

PVC バッグ試験片の γ 線照射を行い、引張試験により引張強度と破断伸びの線量依存性を評価した（4.3 節参照）。

⑰ポリ容器の放射線劣化

貯蔵容器内で使用されていたものと同型のポリ容器に γ 線を照射し、劣化具合を目視と触感で調べた（4.2 節参照）。

「二重目 PVC バッグの破裂」に与える影響度評価結果の一覧を Table 2-2 に示す。PVC バッグ内圧上昇の直接要因となる「内部でのガス発生」のうち、有意な影響を与え得る基本事象は、②「混入有機物」、③「ポリ容器」及び④「混入水分」の 3 つの α 線分解であり、梱包更新後 21 年間の α 線分解によるガス発生量を、それぞれ 48 L、0.18 L 及び 0.09 L と評価した。このことから、PVC バッグが破裂に至った主な原因は、発生ガスの評価量がほかの 2 つより圧倒的に多い②「混入有機物（エポキシ樹脂）」の α 線分解であることを特定した。

なお、④「混入水分」によるガス発生量の評価については、吸着水分の全量が分解するなど過度に保守的な仮定をしていることから、実際にはその影響は無視できると考えられる。③「ポリ容器」の α 線分解については、今回の事例では粉末量が少なかったことから相対的な影響度は低いものの、Pu を含む大量の粉末をポリ容器に直接収納している状況下ではガス発生の大いなる要因となり得る。

内圧上昇のもう一つの直接要因となる温度上昇については、事故時の作業員の証言で「ゴム手袋越しであるが、手で触ってみて温度上昇はなかった」とあることや、崩壊熱による温度上昇もわずかであることから、影響は無視できる程度である。

PVC バッグの破裂に至る補助的要因となり得る、⑭「PVC バッグの γ 線による劣化」については、 γ 線照射後の引張試験で強度低下が認められたものの、6 章で述べる内圧推移の評価結果から得られた貯蔵容器開封時の内圧は、5 章で述べる破裂試験の結果から得られた γ 線照射の影響を受けていない PVC バッグの破損圧力を大きく超えており、今回の事故条件における PVC バッグの破裂又は破損への影響は相対的に小さかったと考える。

2.3.3 事象進展シナリオ

2.3.2 項に示した通り、フォルトツリー解析の結果、PVC バッグの破裂は主に②「混入有機物」（エポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生）の基本事象により発生したことを特定した。PVC バッグが破裂に至った原因を時系列で表した事象進展シナリオは以下のとおりである（Fig. 2-15 参照）。

- ・ 1991 年に U と Pu を含む X 線回折測定済試料（エポキシ樹脂固化物）をポリ容器に入れ、ポリ容器を PVC バッグに二重に封入し、貯蔵容器内に入れて貯蔵した。
- ・ 貯蔵期間中、主に Pu（Am 含む）からの α 線によりエポキシ樹脂が分解して水素やメタン等のガスが発生し、PVC バッグが徐々に膨張した。
- ・ 5 年後の 1996 年に貯蔵容器内容物の点検を行った。その結果、ポリ容器底部の変色と破損、PVC バッグの膨張等が確認されたため、梱包更新（ポリ容器の詰め替えと新しい PVC

バッグへの封入)を行った。

- その後 21 年間の貯蔵期間中、放射線の影響により PVC バッグが劣化するとともに、ガス発生による内圧が PVC バッグの破裂に至る内圧以上となった。しかしながら、PVC バッグは、貯蔵容器による拘束で破裂せずに留まっていた。
- 2017 年 6 月に貯蔵容器内部の空き状況を点検するためフード内で貯蔵容器の蓋を開封した。その結果、貯蔵容器による拘束を失って PVC バッグ内外の圧力均衡が崩れ、PVC バッグの容器や蓋等で拘束されていない部分が、放射線照射の影響による PVC バッグの引張強度や破断伸び低下もあり、一重目バッグは溶着部に沿って線状に裂ける形で破裂開口した。

以上のシナリオに基づき、発生ガス（水素及びメタン）の PVC バッグや貯蔵容器の O-リングを通した漏えいを考慮して、貯蔵期間中の PVC バッグの内圧上昇を計算した。計算の詳細は 6 章に示す。エポキシ樹脂に含まれる核燃料物質の平均粒径、Am 除去の有無及び O-リングからのガス透過割合には不確かさがある。このためこれらの不確かさを考慮して、エポキシ樹脂からのガス発生量及び O-リングを通したガスの漏えい量が異なる 3 つのケースについて 21 年間の内圧上昇を計算した。後述の 6 章 Fig. 6-3 に PVC バッグの内圧計算結果を示すとおり、計算結果には大きな幅があるが、いずれのケースも、梱包更新から 21 年後の貯蔵容器開封時においては、今回の事故における PVC バッグの破損状況となる内圧である 2.5 気圧以上となることを確認した。

3. 放射線分解によるガス発生

3.1 エポキシ樹脂の α 線分解

PVC バッグが破裂した主原因であるエポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生について、ガス発生 G 値（物質が放射線エネルギー100 eV 吸収した際に発生するガス分子の個数）は文献調査で得られなかった。そこで、燃料研究棟で使用されていたものと同類のエポキシ樹脂系接着剤を試験片として、 α 線を模擬した He イオン照射により発生するガス種と量を分析して G 値を評価した（3.1.1 項）。さらに、実際に α 線を放出する粉末とエポキシ樹脂を混合して樹脂固化物試料を作製し、 α 線分解による樹脂の重量減少と密閉容器に入れた際の内圧上昇を観測する加速試験を行った（3.1.2 項）。これらの結果から、貯蔵容器内のエポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生量を評価した（3.1.3 項）。

3.1.1 He イオン照射によるガス発生 G 値の評価

(1) 試験・評価方法

① He イオン照射による発生ガス分析方法

2 液混合型のエポキシ樹脂系接着剤の主剤及び硬化剤を 1 : 1 で混合し、直径 26 mm のステンレス鋼製円盤に塗布して厚さ数 100 μm に固化したものを試料として用いた。また、実環境と同じ大気中での α 線照射を模擬するため、ステンレス鋼製の大気照射セルを利用した。このセルのビーム入射部は、7.5 μm 厚のカプトン製フィルムで、大気中に取り出した He イオンを照射することが可能な構造となっている。Fig. 3-1 に大気照射セルの外観写真を示す。

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」という。）イオン照射研究施設（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 イオンを真空中で試料に照射し、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。

一方、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⁷⁾。

② γ 線照射及び発生水素量分析

量研 高崎研の食品照射棟第 2 セルにて、6 kGy/h で 60 時間の予備照射を行った。予備照射ありの試料と照射なしの試料をそれぞれガラス瓶に入れてゴム栓で密封し、0.76、1.6、2.8、3.6 kGy/h の 4 条件の γ 線照射線量率にてそれぞれ 3.5 時間、室温で照射した。試料数は予備照射あり、なしともに 1 個とした。

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

(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真空中照射し、その際に発生したガスの分圧を Q-Mass で測定した結果を Fig. 3-2 に示す。グラフの横軸は（質量

数/価数)であるが、以下単に質量数と呼ぶこととする。水素(質量数 1, 2)のほか、水とその分解物(質量数 17, 18)が多く発生していることが判る。前者に関しては、樹脂材料が分解した際に発生する水素であり、後者に関しては試料表面に吸着していた水と推察される。その他、放射線分解で発生する分子としては、一酸化炭素(質量数 28)、メタンとその分解物(質量数 14, 15, 16)、エチレンとその分解物(質量数 26, 27, 28)があるが、試料表面に吸着していた窒素(14, 28)、酸素(質量数 16, 32)の質量数と一部が同じであるため定量は難しい。また、二酸化炭素(質量数 44)の発生も確認した。表面吸着ガスの影響があるため、保守的な評価になるが、全圧から水(質量数 17, 18)と水素イオン(質量数 1)の分圧を除き、水素発生量の割合を評価すると 83%となる。

He イオン(照射クーロン数: 約 1.4 μC ~14 μC)照射後の大気照射セル内の気体をガスクロマトグラフで測定した結果を Fig. 3-3 に示す。イオン照射による吸収線量は、84 kGy~810 kGy で、水素ガス発生量としては、エポキシ樹脂に対して 1.9×10^{-8} mol/J が得られた。この値を G 値に換算すると 0.18 となる。水素発生量が全ガス発生量の 83%であることから、全ガス発生に対する G 値は、簡易的に $0.18 \times 100/83 \approx 0.22$ となる。

(3) 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 Table 3-1 及び Fig. 3-4 に示す。予備照射の有無の影響があることが分かる。Fig. 3-4 の線図の傾きから水素ガス発生量を求めた結果、予備照射ありでは 1.5×10^{-8} mol/J、なしでは、 1.2×10^{-8} mol/J が得られた。この結果得られた水素ガス発生量のうち高い値である予備照射ありでの値を用いると 200 kGy の γ 線照射で、約 2.9×10^3 mol/kg の水素が発生し、標準状態での体積に換算すると、エポキシ樹脂 1 kg 当たり 70 mL の水素が発生する。

3.1.2 Cm 含有粉末を用いたガス発生量の G 値の評価

(1) 試験方法

使用した Cm 含有粉末は、主に Cm-244(半減期 18.1 年)とその娘核種(Pu-240)からなる二酸化物粉末である。この粉末を乳鉢で粉碎し、2液混合型のエポキシ樹脂系接着剤と所定の比率で混合・固化した試料を 2 個作製した。混合組成は Table 3-2 のとおりであり、粉末の含有率は約 11 重量%である。

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に用いた。試料 C は、Fig. 3-5 に示す圧力計付きの密閉容器(有効内容積 194 mL)にグローブボックス中と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。Fig. 3-5 には、試料 A~C の作製時の外観写真も示す。

(2) ガス発生量と G 値の評価結果

試料 A、B の樹脂の重量変化と試料 C の密閉容器の内圧変化の測定結果を Fig. 3-6 に示す。試験開始後 16 日目に一度密閉容器を開封して試料 C を取り出し、重量を測定した。グラフ上 16 日目までは、試料 B のエポキシ樹脂重量変化と試料 C の密閉容器内圧変化は、経過時間に

ほぼ比例していることを確認した。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は 3.3 % (4.93 mg) と有意な値であり、 α 線による分解が起こっていたことを裏付けている。一方、試料 C の密閉容器内圧は 16 日間で 8.6 kPa 上昇した。この内圧上昇をガス発生量に換算すると、 6.75×10^{-4} mol となり、標準状態換算で 15.1 mL に相当する。密閉容器の開封直後に試料 C の重量を測定したところ、エポキシ樹脂の重量減少は 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 (Fig. 3-7) 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。

試料 C の重量測定後に再び密閉状態とし、内圧変化の測定を 116 日目まで継続した。その間、一時的にグローブボックスの雰囲気空気を空気としたため、開放系にあった試料 A と B は水分吸着により重量が一時的に増え、再びアルゴン雰囲気にした後も完全には元の重量に戻らなかった。平衡状態で試料 A には 0.5 % の水分が吸着していた。グラフ上、およそ 40 日目以降から試料 B の重量減少、試料 C の内圧上昇ともに、明らかに変化が鈍ってくる傾向を示した。内圧上昇により、発生したガスが樹脂の外へ放出されにくくなっていることに加え、開放系での重量減少も鈍っていることから、粉末粒子周辺の樹脂の分解が進んだことによりガスが発生しにくい状態へと次第に変化していると考えられる。長期間の変化では、いずれガス発生源がなくなり内圧は一定値に飽和するとの推測から、16 日目以降の内圧上昇に対して以下に示す指数関数を当てはめ、近似曲線を得た。

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

上式で ΔP は内圧上昇 (kPa)、 t は経過時間 (d)、 A と B はデータへのフィッティングで得られる定数であり、 A は内圧上昇の飽和値を、 B は飽和に至る時定数を意味している。 A 値として 37.7 (kPa)、 B 値として 1.7×10^{-2} (1/d) を得た。式中の 16.03 は、16.03 日時点で再密閉したことを意味する (時間原点の調整)。

Cm 含有粉末とエポキシ樹脂の混合物からのガス発生データから、貯蔵容器内の樹脂固化物からのガス発生量を評価するに当たり、粉末の粒子径が異なるため直接当てはめることはできない。2.2.3 項で示したとおり、樹脂固化物内の粉末の平均粒子径が 22 μm と 36 μm であったのに対し、Cm 含有粉末は酸溶液からの沈殿で生成されているので数 μm 程度の微細な粉末と推測される。そのため、Cm 含有粉末のデータから、貯蔵容器内の樹脂固化物の状況に見合ったガス発生量の G 値を以下のとおり評価した。

貯蔵容器内の樹脂固化物は、固化から貯蔵開始までに 8 年程度解放状態で保持されている。Cm 含有粉末の実効崩壊定数は、貯蔵容器内の Pu の推定同位体組成の実効崩壊定数の約 90 倍である。したがって、1991 年の貯蔵開始時、1996 年の梱包更新時、2017 年の開封時は、それぞれグラフ上の 32 日目、53 日目、138 日目の状態に概ね対応していると考えられる。

近似曲線からの外挿により、32 日目 (貯蔵開始) から 138 日目 (開封時) までの密閉容器内圧変化は、9.1 kPa から 33.1 kPa に相当し、この間の正味のガス分子発生数を 1.3×10^{21} 個と算出した。一方、この期間の Cm 含有粉末の α 崩壊数は 1.10×10^{17} 個である。同様に、53 日目

(梱包更新時) から 138 日目 (開封時) までの正味のガス分子発生数は 7.2×10^{20} 個で、 α 崩壊数は 8.82×10^{16} 個である。これらの数値から G 値を評価する際に、粉末粒子内で減衰する α 線エネルギーの効果を考慮する必要がある。Table 3-3 は、粒子内で発生する全 α 線エネルギーのうち、粒子外 (エポキシ樹脂) に付与される割合を、粒子径をパラメータとして PHITS コード⁶⁾で計算した結果である。この割合を α 崩壊数に乘じ、エポキシ樹脂に付与される実質的なエネルギーの補正を行なった結果、26 年間の全貯蔵期間に相当する平均の G 値として、Cm 含有粉末の粒子径 4 μm を仮定した場合に 0.20、10 μm を仮定した場合に 0.25 の値を得た。同様に、梱包更新時から開封までの 21 年間に相当する平均の G 値として、粒子径 4 μm を仮定した場合に 0.16、10 μm を仮定した場合に 0.20 の値を得た。計算に必要な α 崩壊のエネルギーは、その大部分を占める Cm-244 の値 (5.8 MeV) を用いた。

なお、試験終了後にステンレス鋼製の皿から Cm 含有粉末と樹脂の固化物を剥がして回収した。これを白金製のつぼに入れ、電気炉を用いて酸素気流中 650°C で 1 時間保持することによりエポキシ樹脂を分解・除去し、Cm 含有酸化粉末として回収した。加熱前後の重量収支から樹脂分が残存していないことを確認した。

3.1.3 G 値を用いたガス発生量の評価

エポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生量の G 値を用いて、貯蔵容器内のガス発生量を評価するのに次式を用いた。

$$\text{全ガス発生量 } V_{\text{gas,Total}} (\text{L})^{*1} = N_{\alpha} \times F_{\alpha} \times G \times E_{\alpha} \times 10^6 / 100 / N_A \times 22.4$$

N_{α} : 対象期間中の全 α 崩壊数 (Table 2-2)

F_{α} : 粒子内で発生した α 線エネルギーのうち樹脂に付与される割合 (Table 3-3)

G : ガス発生量の G 値 (検証試験結果から)

E_{α} : α 崩壊の平均エネルギー (5.29 MeV、同位体組成と崩壊定数を考慮)

N_A : アボガドロ数 (6.022×10^{23})

*1 標準状態 (0 °C、1 気圧) での体積換算値

G 値については、Cm 含有粉末と混合したエポキシ樹脂の α 線分解の試験結果から評価した G 値 0.16~0.25 に対して、エポキシ樹脂に外部から He イオンを照射した場合のガス発生量の G 値は 0.22 であり、比較的良く一致している。貯蔵容器内の樹脂固化物からのガス発生量評価に際して、ここでは発生ガスの定量分析に基づいているとともに、粉末粒子径に依存しない結果である He イオン照射の結果 (G 値 0.22) を用いることとした。全 α 崩壊数 (Table 2-2 参照) については、貯蔵容器内の Pu の推定平均同位体組成に基づき、Am 除去あり/なしの両条件を考慮した。粉末平均粒子径は、2.2.3 項の分析結果を参考に、20 μm と 35 μm の 2 種類に加え、これらよりも小さい 10 μm の場合も想定した。貯蔵容器内の核燃料物質全量に対して、1991 年 10 月の貯蔵開始時から 1996 年 7 月の梱包更新時までと、梱包更新から 2017 年 6 月の蓋開封時までのガス発生量計算結果を Table 3-4 に示す。ガス発生量には粉末粒子径が大きく影響することが分かる。

評価上考慮していないが、実際にはガス発生量が上記計算値より少なくなる可能性のある要因として、以下 2 点が挙げられる。

- ・ 内圧上昇の効果 : Cm 含有粉末を用いた試験に比べて、実際の貯蔵容器内の内圧上昇は少

なくとも 10 倍以上あったと推測され、その際には発生したガスが放出されず樹脂内に保持される割合が高くなると推測される。

- ・ 粒子近接の効果：PHITS コードでの計算により、エポキシ樹脂内の α 粒子の最大飛程は 40 μm 程度である。粉末粒子表面間の距離がこれよりも近い場合は、粉末粒子から出た α 粒子がエネルギーを全て樹脂に付与する前に別の粉末粒子に衝突してエネルギーを失うため、実効的な G 値は低くなる。Fig. 2-12 及び Fig. 2-13 に示した観察像では、実際に粉末粒子がかなり近接した試料が見られる。

なお、 γ 線照射による分解生成ガスに関しては、エポキシ樹脂 1 kg 当たり 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 α 線照射に比べて無視できるほど小さい。

3.2 ポリエチレン容器の α 線分解

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

3.2.1 ガス発生 of G 値の評価

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たものと同じ製造ロットの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。

量研 高崎研において 5.5 MeV の He イオン（ビーム電流：約 5 e nA）をポリ容器試料片に照射し、その際に発生したガスの分圧を Q-Mass で測定した結果を Fig. 3-8 に示す。水素（質量数 1, 2）のほか、水とその分解物（質量数 17, 18）が多く発生していることが判る。前者に関しては、樹脂材料が分解した際に発生する水素であり、後者に関しては試料表面に吸着していた水と推察される。水の生成が多い理由としては、ポリ容器が長期間（少なくとも 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）の発生を確認したため、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 μC ～15 μC ）照射後の大気照射セル内の気体をガスクロマトグラフで測定した結果を Fig. 3-9 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。

3.2.2 G 値を用いたガス発生量の評価

貯蔵容器内部の観察の結果、ポリ容器の底部付近から約 10 g の粉末が回収された。2.2.3 項に示した元素分析の結果、この粉末中の U/Pu 比は、計量管理帳簿に記載の核燃料物質全量の U/Pu

比と整合している。そこで、Pu の推定平均同位体組成値を用い、天然 U との混合酸化物を仮定し、化合物組成を $U_{0.734}Pu_{0.266}O_2$ と定めた。保守的に Am の除去は行われていないと仮定し、1991 年の貯蔵開始から 1996 年の梱包更新時までと、梱包更新時から 2017 年の蓋開封時までについて、Table 2-2 の α 崩壊数を元にガス発生量を評価した。酸化物粉末の理論密度を上記同位体組成データから計算により求め、その 40 % の密度で粉末がポリ容器に充填されたと仮定し、粉末充填体とポリ容器内面の接触面積を算出した。粉末粒子内の α 粒子の飛程は約 10 μm であるから、単純な幾何学近似と α 線の発生方向から、ポリ容器内面から 5 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の半分がポリ容器に付与されると仮定した。3.2.1 項で評価したガス発生量の 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。

算出した粉末充填体の高さはわずか 0.3 mm であるので、ポリ容器と粉末の接触面として底面だけを考える。底面積に 5 μm の厚さを乗じた有効体積は $3.32 \times 10^{-2} \text{ cm}^3$ で、この中に含まれる核燃料物質の全体量に対する比を算出して貯蔵容器内の全 α 崩壊数 (Table 2-2) に乗じ、更に 1/2 を乗じると、ポリ容器に入射する α 粒子数が得られる。

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

3.3 その他のガス発生要因

ここでは、事故に至った貯蔵容器の内圧上昇への寄与は小さかったものの、一般的な貯蔵条件下でも起こりうるガス発生要因として、 α 崩壊に伴う He ガスの生成 (3.3.1 項)、粉末への吸着水分の α 線分解 (3.3.2 項、参考として水溶液系の場合の評価も含む)、水分に対して活性な化合物の加水分解 (化学反応) によるガス発生 (3.3.3 項) の評価について述べる。

3.3.1 α 崩壊に伴う He ガスの生成

α 粒子は He イオンであるので、 α 崩壊が起きた数だけ He 原子が生成することになる。酸化物セラミックス中での α 粒子の飛程は 10 μm 程度であるので、発生した α 粒子が全て He ガスになるわけではなく、一部は粉末粒子中に He 原子として溶け込んでいる。ガス化する割合は粉末粒子のサイズに大きく依存すると考えられ、燃料ペレットのような塊状の場合はガス化する割合は無視できる程度となる。また、 α 崩壊による He ガス生成量は、有機物の α 線分解で生じるガス量に比べてかなり少ない。事故に至った貯蔵容器中の全核燃料物質の α 崩壊で生じた He 量は、最も厳しい Pu 同位体組成を用い、かつ全量がガス化したとしても、梱包更新から開封までの 21 年間で 12.6 mL (標準状態) であり、内圧上昇への寄与は無視できる量であった。

貯蔵期間中の α 崩壊数の評価には、内容物の同位体組成が既知であることが前提条件であり、計算は ORIGEN のようなコードを用いるか、あるいは簡易的には同位体組成から実効崩壊定数を算出することで手計算でも可能である。

3.3.2 水分の α 線分解

大気中で取り扱い又は保管している粉末状の核燃料物質には、その粒径あるいは比表面積に

応じて少なからず水分が吸着しており、 α 線照射を受けることで以下のように分解して水素と酸素のガスが生じると考えられる。



生じたガスの一部は再結合により水に戻る可能性もあるが、貯蔵中のガス発生量評価の観点からは、保守的に吸着水分の全量がガス化すると考えるのが妥当である。二酸化物粉末への水分吸着量として、文献データ^{8,9)}では0.3~0.5重量%の例がある。例えば、100 gのU・Pu混合酸化物(MOX)粉末が大気中にあったとすると、水分吸着量は0.5 gとなり、これが全量分解してガス化した場合には標準状態で0.93 Lの体積となる。貯蔵容器内の空間が少ない場合は内圧上昇への寄与が大きくなる可能性がある。また、硝酸塩等の吸湿しやすい、あるいは水和物を形成する化合物の場合は含水率が上記文献値よりも高くなりやすいため、特に注意すべきである。

燃料研究棟の事故とは直接関連しないが、粉末への吸着水分に比べて、核燃料物質の水溶液の場合は、ガス発生源となる水分が格段に多くなることからガス発生量も多くなる。水溶液中のPu等のイオンから生じた α 崩壊のエネルギーは、粉末のような粒子内での減衰がないことから、ほぼ100%が水に付与されることになる。水の α 線分解に関する文献¹⁰⁾によると、種々のラジカル生成物に加えて、主要な分子状生成物は H_2O_2 と H_2 であり、5 MeV程度の α 線による H_2 分子発生G値は1.3が与えられている。 α 線分解による水溶液中の1秒あたりの H_2 分子発生量は、次式で計算することができる。

$$\text{水素分子発生量 } N_{\text{H}_2} \text{ (個/s)} = A_\alpha \times G \times E_\alpha \times 10^6 / 100$$

A_α : 水溶液中の α 崩壊核種の放射能 (Bq)

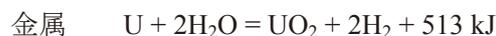
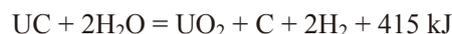
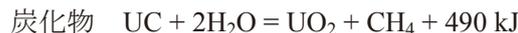
G : G値 (=1.3)

E_α : α 崩壊の平均エネルギー (MeV、同位体組成と崩壊定数から算出)

先の文献¹⁰⁾によると、生成した H_2 分子の一部はラジカルと反応して分解するが、保守的に評価する上では全量ガス化すると考えるべきである。Puのほか、 α 崩壊するNp、Am、Cm等の超ウラン元素の水溶液が小型のガラスアンプルに封入されているようなケースでは、内部の空間が小さいため、長期保管中の内圧上昇による破裂・破損に注意が必要と考える。

3.3.3 化学反応による可燃性ガスと熱の発生

α 線分解によるガス発生のほかに、貯蔵容器内部の物質間の化学反応による可燃性ガス発生に注意を要するケースとして、ここでは水分との反応を取り上げる。UやPuの炭化物、窒化物、金属は大気中の水分と反応して水素、メタン、アンモニア等のガスを生じる。Uを例とすると、その熱化学反応式はそれぞれ以下のとおりで、いずれも発熱反応である。



上記のいずれも反応の前後でガス全体のモル数増加はないので、ガス発生による内圧上昇はないと考えて良いが、発熱反応であることから温度上昇による内圧上昇と可燃性ガス生成が懸念の対象となる。特に炭化物は水分との反応性が高く、発熱量も大きいことから火災・爆発防

止の観点からも注意を要する。窒化物と金属の場合、ペレット状や塊状であれば反応が急峻に進むことはない。これらの性質は同位体組成や濃縮度によらず、UとPu全般に当てはまることである。貯蔵に際して、少なくとも炭化物と窒化物は、水分濃度の十分低い不活性雰囲気下で、密閉性が高く空気混入のおそれのない容器に封入してからの貯蔵が前提となる。

4. ポリエチレン容器と PVC バッグの放射線劣化

核燃料物質を収納していたポリ容器とその外側の PVC バッグは、貯蔵期間中常に γ 線照射を受けるので、これに伴う強度低下は破裂の直接的な原因ではないものの、補助的要因になり得る。その影響を検討するために、まず、貯蔵容器内の核燃料物質の同位体組成と量の情報から、ポリ容器と PVC バッグが貯蔵期間中に受けた吸収線量を計算コードにより評価した (4.1 節)。これを基にポリ容器 (4.2 節) と PVC バッグ (4.3 節) に γ 線照射を行い、強度低下について調べた結果を以下に述べる。

4.1 γ 線吸収線量の評価

ポリ容器、PVC バッグ (二重)、貯蔵容器の形状、寸法及び材質に基づき、Fig. 4-1 に示す計算体系を設定した。二重の PVC バッグは、内側はポリ容器の外面に、外側は貯蔵容器の内面に密着しているとした。

1991 年 10 月の貯蔵開始時に核燃料物質 (Pu 及びその崩壊により生成する U と Am を含む。) がポリ容器下部に充填されていたとし、その崩壊で放出される γ 線の挙動を粒子・重イオン輸送計算コード PHITS⁶⁾ を用いてシミュレーションし、PVC バッグの吸収線量を計算した。 γ 線のエネルギー分布は、核種組成に基づき DECDC2¹¹⁾ のデータを用いて求め、崩壊による核種組成の時間変化に伴う γ 線エネルギー分布の変化も考慮した。

Fig. 4-2 に、1991 年 10 月を起点とし、内側と外側の PVC バッグ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に近い内側の PVC バッグが、外側に比べて高い吸収線量率になる。1996 年 7 月の梱包更新以降のデータに関して、内側と外側それぞれの PVC バッグ吸収線量率をフィッティングし、その積分から 2017 年 6 月開封時までの 21 年間の積算吸収線量を算出し、内側 (一重目) PVC バッグ : 227 kGy、外側 (二重目) PVC バッグ : 108 kGy との結果を得た。

4.2 ポリエチレン容器の γ 線劣化

貯蔵容器内に収納されていたものと同型のポリ容器胴部を高さ約 4 cm の輪切りに切断し、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、1991 年の貯蔵開始から 2017 年開封までの 26 年間の積算照射線量に相当する 360 kGy の照射を行った。照射終了後、外観観察と触感により劣化度合いを調べた。

照射終了後の試験片を未照射のものと比較した外観写真を Fig. 4-3 に示す。照射したものは若干の黄色化がみられたが、触感では柔軟性にほとんど変化はなく、もろくなるなどの劣化は認められなかった。

4.3 PVC バッグの γ 線劣化

未使用の PVC バッグ (長さ 3 m×直径約 30 cm、厚さ 0.3 mm) を長さ 20 cm に切断後、切断片から試験片打ち抜き治具を用いて引張試験用試験片を 20 枚作成した。また、追加試験用として、PVC バッグ (長さ 2.4 m×直径約 54 cm、厚さ 0.3 mm) を長さ 20cm に切断後、切断片から試験片打ち抜き治具を用いて引張試験用試験片 42 枚を打ち抜き、このうち 15 枚を試験に用いた。試験片は ASTM D1822 L タイプであり、寸法は Fig. 4-4 に示すものである。

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 時間照射することにより、PVC バッグの吸収線量評価結果に基づく全貯蔵期間 26 年の積算照射線量に相当する照射線量 360 kGy の照射を行った。また、追加試験として、引張試験片 10 枚を用い、6 kGy/h で 20 時間及び 40 時間照射することにより、梱包更新後 21 年間の PVC バッグへの積算照射線量に相当する照射線量 240 kGy（一重目に相当）及び 120 kGy（二重目に相当）の照射を引張試験片 5 枚ずつについてそれぞれ行った。両試験とも、試験片の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室温で照射した。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（東洋精機社製 STPOGRAGH VE50）を用い、未照射の試料と上記の照射済試料の引張試験を室温で行った。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。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。

Fig. 4-5 に未照射と照射後の引張試験片の外観観察結果を示す。照射した試験片は茶色く変色が見られ、高照射線量ほど変色の度合いが大きかったが、もろくなるなどの劣化は触感で認められなかった。

Table 4-1 に未照射及び照射後の引張試験結果を、引張試験前の PVC バッグの厚さ 0.3 mm、ゲージ部の幅 3.18 mm、標点間距離 10 mm から求めた引張強度（公称応力）と破断伸び（公称ひずみ）に換算して示す。また、Fig. 4-6 に公称の引張強度及び公称の破断伸びの照射線量依存性を示す。PVC バッグの引張強度及び破断伸びは、照射線量が増加するにしたがってほぼ比例して低下している。360 kGy の γ 線照射により、PVC バッグの引張強度は公称応力値として 19.8 MPa から 13.1 MPa に約 34 %低下した。さらに、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。一方、120 kGy の γ 線照射により、PVC バッグの引張強度は未照射に比べて公称応力値として 23.8 MPa から 20.2 MPa に約 15 %低下し、240 kGy では 17.8 MPa に約 25 %低下した。また破断伸びは破断時の公称ひずみ値として、120 kGy では 340 %から 308 %に約 9 %低下し、240 kGy では 270 %となり、約 21 %低下した。

5. 内圧上昇による PVC バッグの破裂挙動

2.2.2 項で述べた貯蔵容器内容物の観察結果では、ポリ容器を梱包していた二重の PVC バッグのうち、一重目（内側）が二重目（外側）の頂部を突き破るように上方にはみ出し、一重目は側面の溶着部に沿って縦に開口する破損の仕方であった。5 章では、そもそも PVC バッグはどのくらいの内圧でどのような破損形態となるのか（5.1 節）、事故で破裂した二重の PVC バッグと同様の破損形態となる内圧はどのくらいか（5.2 節）を着眼点とし、PVC バッグ破裂に関する検証試験を行った結果を述べる。特に 5.2 節では試験体系を実際の事故時の状況になるべく近づけるため、γ線照射した PVC バッグを用い、二重梱包状態とし、あらかじめ内圧を上昇させておいた金属容器の蓋を開封する状況を再現した。これらの試験の結果、2.5 気圧付近の圧力を越えると、貯蔵容器開封時に破裂した PVC バッグと類似した破損形態となったことから、この圧力を事故発生時の PVC バッグ内圧の下限値と考えた。

5.1 未照射の一重 PVC バッグの破裂挙動

PVC バッグの内圧上昇時の破裂・破損に関する基礎的なデータ収集を目的として、未照射の PVC バッグを用いて種々の体系で破裂試験を行い、破損に至る内圧と破損の形態（部位・開口形状等）を調べた。

5.1.1 試験方法

(1) PVC バッグの耐圧性能試験

以下に示す要領で未照射の PVC バッグを用いて破裂試験を行い、耐圧評価を行った。

一つ目の試験として、シーラで溶着、密封した PVC バッグに、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 PVC バッグ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 PVC バッグを、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×h 220 mm 又は同内径が貯蔵容器内径サイズに近いφ133 mm×h 250 mm）に収納し、ステンレス缶底部の穴を通して PVC バッグ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 Fig. 5-1 に示す。

(2) 貯蔵容器蓋開封時の PVC バッグ膨張基礎試験

本試験では、ステンレス缶に蓋を追加し、上部の拘束も考慮した体系において、以下に示す要領で PVC バッグの破裂試験を行い、蓋開封時の膨張状況について評価した。

シーラで溶着した PVC バッグを、底にφ20 mm の穴をあけたステンレス缶（φ133 mm×h 250 mm）に収納した。ステンレス缶の底の穴を通して PVC バッグ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、PVC バッグの膨らみにより僅かに蓋が開くように、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 PVC バッグ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 Fig. 5-2 に示す。

5.1.2 試験結果

(1) PVC バッグの耐圧性能

試験結果と比較検証するために、PVC バッグの製造メーカから強度に関するデータを入手した。PVC バッグの構成素材である「PVC 梨地フィルム C32」に関して、最近の物性仕様 (JIS K 6732 準拠) は製造メーカにより次のように規定されている。

引張強度：14.7 MPa 以上

伸び：200 %以上

また、Fig. 5-3 に示す PVC バッグの構造において、重ね溶着部と底溶着部の強度物性値 (引張強度) が製造メーカにより測定されており、平均値は以下の通りである。

重ね溶着部：9.08 MPa

底溶着部：6.80 MPa

(試験片は JIS K 6251 に規定するダンベル状 2 号形)

PVC バッグにガス配管を直接接続した試験では、加える空気圧 ($1\sim 6 \text{ kgf/cm}^2$ 、ポンベの減圧弁の圧力計指示値) 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 PVC バッグの寸法 ($0\sim 200 \text{ mm}$) 及び内部に加える空気圧 ($1\sim 6 \text{ kgf/cm}^2$) 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 Table 5-1 に示す。また、表中の破裂箇所の詳細について Fig. 5-4 に示す。

PVC バッグにガス配管を直接接続した試験では、全ての試験において溶着部と生地部の境界付近に $2\sim 10 \text{ mm}$ 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 \sim 0.14 MPa (絶対圧 1.32 \sim 2.4 atm) であった。

ステンレス缶 (蓋なし) 内に装荷した PVC バッグにガスを送入すると、ステンレス缶内面に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 \sim 0.16 MPa (絶対圧 1.21 \sim 2.6 atm) であった。

Table 5-1 の破損箇所の 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。破損状態の例として、No. 9 (放射状)、No. 10 (直線)、No. 11 (穴) の写真を Fig. 5-5 (a) \sim (c) に示す。

破損 (破裂) 箇所とその形状について、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、条件によっては破損部の形状が穴開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. 11)。この場合は小さな穴が開いてガス漏れする緩やかな破損挙動であった。また、形状が穴開きや直線となるケースは破損までの時間が長い (100 s 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。

Table 5-1 の破裂時配管内圧力について、送入ガス圧力を高くして PVC バッグ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/cm^2 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 \sim 0.16 MPa (絶対圧 2.4 \sim 2.6 atm) 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 s 以上、No.10・No.11・No.21～23）では、破裂時の内圧は大気圧+0.021～0.035 MPa（絶対圧 1.21～1.35 atm、平均 1.29 atm）となった。

(2) 蓋開封時における PVC バッグの膨張状況

PVC バッグ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+0.1～0.3 MPa（絶対圧 2.0～4.0 atm）であった。試験パラメータは送入ガス圧力（2～6 kgf/cm²）、ステンレス缶と蓋の隙間（20～70 mm）である。試験条件と結果の一覧を以下の Table 5-2 に示す。また、表中の破裂箇所の詳細について Fig. 5-6 に示す。

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。PVC バッグが膨張する様子と破損形状の例として、No. 3（放射状）、No. 4（穴）、No. 5（直線）の写真を Fig. 5-7 (a)～(c)に示す。Table 5-1 及び Fig. 5-5 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、PVC バッグ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が比較的高くなった。

5.1.3 評価・考察

(1) PVC バッグの耐圧性能

製造メーカーから入手した PVC バッグの引張強度データは、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 PVC バッグの内圧が上昇し、仮に理想的な球状に膨らんだとすると、PVC バッグの接線方向にかかる張力は全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 PVC バッグ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 PVC バッグ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 PVC バッグ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、PVC バッグ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 で示す PVC バッグ上部の中央付近（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 PVC バッグ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 PVC バッグ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開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 s 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。

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 PVC バッグ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+0.021～0.035 MPa（絶対圧 1.21

～1.35 atm)であった。これより標準の PVC バッグは約 1.2 気圧以上の内圧で破損する可能性がある。

以上から、PVC バッグ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。

(2) 蓋開封時における PVC バッグの膨張状況

事故発生時の作業員の聞き取り調査では、蓋を僅かに上げた段階で内部の PVC バッグが破裂したことを示す証言が得られていることから、PVC バッグの膨張も僅かであったと考えられる。

検証試験において、PVC バッグ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。これは事象が発生した貯蔵容器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 PVC バッグ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 20～70 mm と作業員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 PVC バッグ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 : 35～70 mm、6 kgf/cm² : 20～40 mm)。一方、送入ガス圧力を高くして PVC バッグ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を確認した。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 atm 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 atm 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 (PVC バッグ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) 方が内圧 (PVC バッグに対して垂直の力) 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。

破裂事象が起こったステンレス缶及び PVC バッグにおいては、O-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。したがって、試験条件よりも更に隙間が小さく、このような小さい隙間から PVC バッグがはみ出して破裂したとは考えにくい。Table 5-2 の No.12～No.14 は PVC バッグを短くして、蓋の隙間を 20～30 mm と小さくした試験である。このときの PVC バッグ内圧は 2.0～2.3 atm と見積もった。

今回の破裂事象に対して原因究明のために実施した PVC バッグ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 Table 5-3 にまとめた。送入ガス圧力が低い場合は PVC バッグ内と配管内の間の圧力差が小さく、配管内圧力はバッグ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 PVC バッグ内と配管内圧力の圧力差が大きく、配管内圧力は PVC バッグ内の圧力よりも高い指示値を示していると考えられる。

Table 5-3 中での最小値 (1.2 atm) は未照射 PVC バッグ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 PVC バッグ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 atm）は未照射 PVC バッグ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、PVC バッグの内圧よりも高い圧力を指示していると考えられる。

5.2 γ 線照射した二重 PVC バッグの破裂挙動

事故後に貯蔵容器をグローブボックスに搬入して内容物の観察によって得た当該 PVC バッグの寸法等の情報を基に試験体系を設定して、より現物に近い系での破裂試験を実施した。PVC バッグは二重梱包状態にするとともに、21 年間照射された分に相当する γ 線照射を量研 高崎研で行ったものを用い、放射線劣化の影響を模擬した。これにより、事故時の PVC バッグと同様な破損形態となる内圧範囲を推定することを目的とした。

5.2.1 試験方法

(1) 試験用 PVC バッグの準備

準備した試験用のステンレス缶の寸法（ ϕ 133 mm \times h 250 mm）が実際の貯蔵容器の寸法（入口径 ϕ 120 mm \times h 302 mm）と若干異なることから、試験に用いた PVC バッグの縮尺（溶着部の内寸）はこれらの寸法の比と破裂を生じた PVC バッグの寸法を比較して以下のとおりとした（Fig. 5-8）。ここで破裂を生じた PVC バッグの寸法は本試験開始時期の関係から初期の調査において推定された寸法（溶着部の内寸、一重目：縦 450 mm \times 横 160 mm、二重目：縦 370 mm \times 横 205 mm）を参照したため、のちに確認した値とは若干異なる。また、試験時に二重梱包のバッグをステンレス缶に装荷する際はバッグを Fig. 5-9 のようにした。

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

本試験で使用した照射済の PVC バッグは、上記の寸法で作製したバッグを量研 高崎研の食品照射棟第 2 セルにて照射した。4.1 節の評価結果に基づき、一重目及び二重目のバッグについてそれぞれ 6 kGy/h で 40 時間及び 20 時間の照射とし、一重目は 240 kGy、二重目は 120 kGy とした（それぞれの 21 年間分の照射量に相当）。

(2) 破裂試験の方法

ステンレス缶の底部から内部の二重梱包状態の一重目の PVC バッグ内にガスを送入し、以下の 3 種類の体系で破裂試験を行った。

① 二重梱包・蓋なし

試験①では二重梱包とした照射済 PVC バッグをステンレス缶に収納し、蓋がない体系でガスを送入して破裂試験を実施した（Fig. 5-10 ①）。

② 二重梱包・蓋あり（チェーンで蓋を拘束）

試験②では二重梱包とした照射済 PVC バッグをステンレス缶に収納し、蓋をチェーンで拘

束し、ガスを送入して PVC バッグが膨らむことより蓋が僅かに開く体系での破裂試験を実施した (Fig. 5-10 ②)。

③ 二重梱包・蓋あり (クランプリングで蓋を拘束・加圧後解放)

試験③では二重梱包とした照射済 PVC バッグをステンレス缶に収納し、蓋をクランプリングで拘束した。あらかじめガスを設定圧力まで送入して PVC バッグを加圧状態とするが、バッグの膨らみでは蓋は開かない。その後クランプリング固定用の蝶ねじに取り付けたワイヤーを引っ張ることで、クランプリングが外れ、PVC バッグが急激に膨らむことにより蓋が外れる体系での破裂試験とした (Fig. 5-10 ③)。

5.2.2 試験結果

(1) 試験① (蓋なし)

試験結果を Table 5-4 に示す。本条件では蓋がない上部から PVC バッグが大きくはみ出して膨らみ、二重目が破裂、その後、一重目が破裂した (Fig. 5-11 (a))。二重目、一重目ともに上部の中央部で破裂し、破裂箇所の形状は直線状であった。また、一重目と二重目の破裂により大きな破裂音が 2 回聞こえた。試験 No. 2 の破裂後の写真を Fig. 5-11 (b) に示す。蓋の拘束が無い条件では二重目、一重目がそれぞれ大気圧+0.08 MPa (1.8 atm)、大気圧+0.04~0.05 MPa (1.4~1.5 atm) で破裂する結果を得た。

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

(2) 試験② (チェーンで蓋を拘束)

試験結果を Table 5-5 に示す。本条件では、二重目が破裂し、その後一重目が破裂するか、同時に破裂する結果となった (Fig. 5-12(a))。試験 No.1 の破裂後の写真を Fig. 5-12(b) に示す。本試験では二重目、一重目ともにステンレス缶の蓋の隙間で膨らみが大きくなり、頂部の生地部分で破裂した。破裂箇所の形状は直線状になり、破裂時は一重目、二重目ともに大きな破裂音が聞こえた。二重目の破裂穴と一重目の破裂穴はほぼ重なっており、二重目の破裂穴から一重目が僅かに外に出ていた。本試験での破裂時の圧力は 2.6 atm (ゲージ圧 0.16 MPa) から 4.2 atm (ゲージ圧 0.32 MPa) と比較的高い圧力が必要であること、破裂時の容器と蓋の隙間が小さいと破裂時のゲージ圧は大きくなる傾向があること、破裂時の圧力に大きな幅があることが分かった。

Fig. 5-12(c) に試験②-No.2 の破裂時に観測された白い煙状のものの写真を示す (写真の右上部)。破裂時にこのような“煙”が観察されており、試験時の PVC バッグの内圧が高い場合には比較的明確に観察され、内圧が低い場合は観察しにくい傾向にあった。また、この煙は約 1 秒以内で拡散し見えなくなった。これは PVC バッグ内の空気中に含まれる水蒸気が破裂する際の断熱膨張により急激に冷却されて水滴になり、その後、周囲の温度により再度水蒸気に戻り消えるためと考えられる。

“煙”状のものの発生については、2.1 節に示した事故発生時の状況に関する作業員の聞き取り調査でも「破裂時に、ごく短い間だけ『モヤモヤした煙のようなもの』が見えた。粉末という感じではなかった。」と証言がある。

(3) 試験③ (クランプリングで蓋を拘束・加圧後解放)

試験結果を Table 5-6 に示す。本試験ではクランプリング解除後、開放部で PVC バッグ全体が大きくはみ出して膨らみ、二重目は上部中央付近で破損した。試験 No.4 及び No.5 では一重目が二重目とほぼ同時に破裂し、破裂音は 1 回であった。また、一重目の PVC バッグが縦方向の溶着部で大きく裂け、破裂事象発生時の状況と類似したバッグの破損状態となったことを確認した。この際の圧力は 4 atm (ゲージ圧 0.3 MPa) であった。破裂状況の例として試験 No.4 の試験後の PVC バッグの写真を Fig. 5-13(a)に、事象発生時の当該 PVC バッグの観察写真を Fig. 5-13(b)に示す。試験 No.1 では 2.5 atm (ゲージ圧 0.15 MPa) で一重目が溶着部から 2 cm 程度の幅で破損し、試験 No.2 及び No.3 では 2.6、2.8 気圧でも破裂しないという結果になった。

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

5.2.3 評価・考察

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

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

「試験③：クランプリングで蓋を拘束・加圧後解放」では、クランプリング解除後、開放部で PVC バッグ全体が大きくはみ出して膨らみ、二重目は上部中央付近で破裂した。ゲージ圧が比較的高かった試験 (絶対圧 4 atm、ゲージ圧 0.3 MPa) では一重目が二重目とほぼ同時に破裂し、破裂音は一回であった。また、一重目の PVC バッグが縦方向の溶着部で大きく裂け、破裂事象発生時の状況と類似したバッグの破損状態となったことを確認した。同様な試験結果は絶対圧 2.5 atm (ゲージ圧 0.15 MPa) でも観察されたが、一重目が溶着部から 2 cm 程度の幅で破損しており、事故時に一重目 PVC バッグが破損した際の破損部の大きさに比べて小さい。また、

これよりもゲージ圧が若干高い試験（絶対圧 2.6、2.8 atm）では一重目の PVC バッグが膨らむだけで破裂しないという結果になった。これらより、2.5 気圧付近の圧力を超えると破裂事象発生時の状況と類似した事象が発生し始めると推測され、4 気圧付近では事象発生時に当該 PVC バッグが破損した状態を再現するような状態を確認できた。

6. ガス発生による内圧上昇推移の計算

2章に示したPVCバッグ内圧上昇の主原因と事象進展シナリオ、及び3章に示した貯蔵期間中のエポキシ樹脂やポリ容器の α 線分解で発生するガス量の評価結果に基づき、貯蔵容器からのガス漏洩も考慮した内圧上昇推移を定量的に評価した。計算手順(6.1節)、使用したパラメータ(6.2節)と評価結果(6.3節)を以下に述べる。

6.1 計算手順

2.3.3項に記載の推定シナリオに沿って、PVCバッグ及び貯蔵容器のOリングを通した発生ガスの漏えいを考慮して、PVCバッグの内圧経時変化を計算した。計算モデル及び手順をそれぞれFig. 6-1及びFig. 6-2に示す。エポキシ樹脂等からのガス発生(①)、発生ガスによるPVCバッグの内圧上昇とPVCバッグを通した貯蔵容器内部への漏えい(②)、貯蔵容器内部の内圧上昇と貯蔵容器Oリングを通した貯蔵容器外へのガスの漏えい(③)、その結果生じるPVCバッグの内圧変化と容積(発生気体滞留可能体積)変化、及びPVCバッグー貯蔵容器間領域の内圧変化と容積(発生気体滞留可能体積)変化(④)を1日間の時間幅で行い、1996年7月の梱包更新から2017年6月の貯蔵容器開封までの21年間分の計算を繰り返した。

なお、ここで行った1日間の時間幅による計算の妥当性は、ガス発生とPVCバッグの透過を考慮した解析解との比較により確認している。以下に①～④の各手順における計算の詳細を示す。

- ① α 線によるエポキシ樹脂及びポリ容器の分解ガス発生量を(1)式により計算した。

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

s_i : 1日当たりのガス発生量 (cm³)

$V_{gas,i}$: ガス種*i*の梱包更新(1996年7月)から貯蔵容器開封(2017年6月)までの全発生ガス量 (cm³)

t_{tot} : 貯蔵開始から貯蔵容器開封までの期間 (21年間)

- ② PVCバッグ内部におけるガス種*i*の貯蔵開始からの経過日数*t*におけるガス分圧 $P_{pvc,i,t}$ を(2)式により計算した。(2)式の右辺第一項は*t*-1日におけるガス分圧、第二項は*t*-1日におけるガス量増分に対する分圧を示す。なお、十分にゆっくりとした圧力変化の場合、ポリ容器の気密性はないと考えて良いため、本計算においてポリ容器は考慮していない。

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

t : 貯蔵開始からの経過日数 (d)

$P_{pvc,i,t}$: PVCバッグ内部におけるガス種*i*の*t*日における分圧 (atm)

$V_{pvc,t}$: PVCバッグ内部における*t*日における発生気体滞留可能体積 (cm³)

$GTR_{pvc,i}$: PVCバッグに対するガス種*i*の1日当たりの透過係数 (cm³/atm)

$P_{cont,i,t}$: PVC バッグ-貯蔵容器間における t 日におけるガス種 i の分圧 (atm)
 P^0 : 大気圧 (atm)

- ③ PVC バッグ-貯蔵容器間におけるガス種 i の t 日におけるガス分圧 $P_{cont,i,t}$ を(3)式により計算した。(3)式の右辺第一項は $t-1$ 日におけるガス分圧、第二項は $t-1$ 日におけるガス量増分に対する分圧を示す。

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

$V_{cont,t}$: PVC バッグ-貯蔵容器間における t 日における発生気体滞留可能体積 (cm^3)
 $GTR_{Oring,i}$: 貯蔵容器 O-リングに対するガス種 i の 1 日当たりの透過係数 (cm^3/atm)

- ④ ②及び③のガス量変化 (内圧変化) に応じた PVC バッグの容積 (発生気体滞留可能体積) 変化を(4)式に、PVC バッグ-貯蔵容器間の容積 (発生気体滞留可能体積) の変化を(5)式により計算した。

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

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

V^0 : 貯蔵容器内の発生気体滞留可能体積の最大値 (cm^3)

- ⑤ ①～④の計算を 21 年間分繰り返す、貯蔵容器開封時における PVC バッグの内圧を(6)式により計算した。

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

P_{pvc} : 貯蔵容器開封時における PVC バッグの内圧 (atm)

6.2 計算条件

6.2.1 ガス発生量計算条件

(1)式で用いるガス発生量の計算条件を Table 6-1 に示す。ガスの発生量は、内圧上昇への影響度が大きいエポキシ樹脂の α 線分解によるガス発生量 (Table 3-4 参照) とポリ容器の α 線分解によるガス発生量 (3.2.2 項参照) を 25°C 、1 気圧に換算して用いた。Pu 粒子径及び Am 除去の有無をガス発生量計算におけるパラメータとし、内圧が最大となるケース A (21 年間で 87.0 L)、標準となるケース B (21 年間で 52.8 L)、内圧が最小となるケース C (21 年間で 24.6 L) の 3 つのケースについて計算を行った。

6.2.2 圧力計算条件

(2)～(5)式において圧力計算に用いる発生気体滞留可能体積を Table 6-2 に示す。Fig. 6-1 に示すように、発生したガスにより PVC バッグはほぼ貯蔵容器内容積一杯 (3386 cm³) まで膨張するものとした。

なお、PVC バッグの縦寸法は一重目の方が二重目よりも長いこと、二重目 PVC バッグ頂部を一重目 PVC バッグが突き破っていたことが分かっているが、二重目 PVC バッグが破裂した時期については断定できないため、計算においては、一重目と二重目の PVC バッグは容積が同一として一緒に膨張・伸長するものとした。

6.2.3 ガス透過量計算条件

(2)、(3)式で用いる透過量計算条件を Table 6-3 に示す。PVC バッグ及び貯蔵容器 O-リングを通したガスの透過量は、水素ガス及びメタンガスの透過係数¹²⁾⁻¹⁵⁾をそれぞれ用いて計算した。ケース A においては、O-リングが高い圧力により貯蔵容器蓋-容器間の隙間 (1 mm 幅) にはみ出した場合を想定し、漏えい面積を小さく設定した。ケース C においては、O-リングの透過係数が最大となる文献値を使用した。

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

6.3 内圧上昇推移計算結果

Fig. 6-3 及び Table 6-4 にそれぞれ貯蔵期間中における PVC バッグの内圧経時変化 (絶対圧) を計算した結果及び貯蔵容器開封時における内圧計算結果を示す。貯蔵容器開封時における内圧は、最大となるケース A で 24.6 atm、最小となるケース C で 4.6 atm となった。この内圧は 5.2 節に示す当該貯蔵容器開封時と同様な PVC バッグの破裂又は破損状況となる内圧である 2.5 気圧以上である。

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

計算条件に応じて評価値には大きな幅があるものの、エポキシ樹脂及びポリ容器の α 線分解により発生したガスにより内圧は上昇し、貯蔵容器開封時において、当該貯蔵容器開封時と同様な PVC バッグの破裂又は破損状況となる内圧である 2.5 気圧以上となった。

7. プルトニウム貯蔵に関する国外の管理基準の例

2017年12月現在、原子力機構では今後同様の事故を起こさぬよう、Puの貯蔵に関する詳細な管理基準を設けるところである。Puを取り扱う国外の施設においても、類似の汚染事故は過去に少なからず発生しており、その経験をもとに貯蔵の際の前処理や貯蔵容器・梱包等に関する基準が設けられている。例として、DOEの2012年版の基準「Pu含有物の安定化・梱包・貯蔵」¹⁶⁾や、国際原子力機関（IAEA）の1998年版「Puの安全な取り扱いと貯蔵」¹⁷⁾があり、前者について以下に要点を紹介する。

DOEの基準では、まず貯蔵しようとするPu含有物の性状に関して以下の要件を定めている。

（金属及び合金）

- ・粒子（塊）の比表面積が $1\text{ cm}^2/\text{g}$ 以下であること、 10 g 以下の細かい塊は貯蔵しないこと。
- ・梱包の際、外観上表面に腐食や酸化による生成物がないこと、樹脂や油等の有機物、液体がないこと。
- ・箔やワイヤ状のものは、圧縮成型してあったとしても貯蔵しないこと。

（酸化物粉末）

- ・酸化雰囲気下 950°C 以上で2時間以上加熱して安定化処理すること。
- ・安定化処理後に吸着水分を熱重量分析（TGA）等で測定し、梱包時に含水率が0.5重量%以下であること。
- ・塩化物を含んでいる可能性のあるものは、安定化処理後に相対湿度15%以上の雰囲気に曝さないこと。

（燃料ペレット、燃料ピン等に加工済みのもの）

- ・被覆管に封じたMOX燃料や、被覆管から取り出した直後のペレットは、特に安定化処理を要しない。
- ・ペレットであっても含水率0.5重量%を超えるものは加熱による安定化処理を行い、梱包前に再度含水率を測定して確認すること。

次に、Pu含有物を長期間（最長50年間）収納する貯蔵容器（DOE 3013型容器）については以下の基準が設けられている。

- ・材質はステンレス鋼（304L又は316L相当）とし、それぞれが溶接で密閉機能を担保した内容器と外容器の二重とする。
- ・外容器は外部との圧力保持境界で、内容器は汚染閉じ込めと内圧指示の役割を負う。
- ・内容器に酸化物粉末を直接入れる場合は、内圧が 790 kPa （7.8気圧）以上に上昇した際に検出できること。
- ・外容器の耐圧は 4920 kPa （48.6気圧）以上であること。
- ・外容器、内容器ともに内容物の非破壊測定（放射線測定）やX線透過撮影による検査に対応できること。
- ・外容器は内径 127 mm 以下、深さ 255 mm 以下であること。
- ・エッチングや彫刻により、恒久的に個体識別可能な刻印ができること。

貯蔵容器への収納に際しては以下の基準がある。

- ・外容器の表面汚染は、除染可能な汚染密度の基準値を超えないこと。
- ・Pu 含有物を収納した内容物を外容器に入れる際には、内容物の表面汚染密度は 2000 dpm/100 cm² 以下であること。
- ・収納する Pu 及び核分裂性物質の量は 4.40 kg を超えないこと、かつ 50 年の貯蔵期間中に発熱（崩壊熱）が 19 W を超えない量とすること。
- ・さらに必要があれば、貯蔵期間中のガス発生量を評価し、内圧が外容器の設計耐圧性能を超えない量に制限すること、あるいは簡易的には、酸化物粉末 1 kg に対して 0.25 L 以上のガス貯留空間を確保すること。
- ・性状の異なる内容物を混在させないこと。

このほかに、貯蔵中の容器の点検に関する基準も設けられているが、ここでは割愛する。上記の基準を見て感じることは、酸化物粉末中の有機物は当然として、特に吸着水分に対して配慮している点であり、水分の α 線分解で発生したガスに起因する容器の破損・汚染事故を過去に複数経験しているものと推測される。金属・合金に対しては、有機物との接触に加えて化学的に活性（酸素・水分との反応性）な点に着目し、試料表面積に厳しい制限を加えている。

容器に関して、従来は缶詰型の金属容器に酸化物粉末を直接収納していたようであるが、長期間の貯蔵用に上記の 3013 型容器採用に至る歴史的経緯と容器外観写真は、ロスアラモス国立研究所（LANL）のウェブサイト¹⁸⁾で閲覧可能である。また、貯蔵中の酸化物粉末からのガス発生の評価や 3013 型容器仕様に関しては、同研究所のレポート¹⁹⁾で詳細情報が入手可能である。

8. おわりに

燃料研究棟の汚染事故における PVC バッグ破裂の主原因は、核燃料物質（U 及び Pu）の粉末をエポキシ樹脂と混合した固化物から α 線分解により多量のガスが発生し、貯蔵期間中に内圧が上昇したためと特定した。今回のケースではエポキシ樹脂の分解によるガス発生が圧倒的に多かったものの、貯蔵容器内の核燃料物質の物理的・化学的性状によっては、国外において対策の要点となっている粉末への吸着水分の α 線分解や、樹脂製の容器に直接粉末を収納している場合には容器内面の α 線分解によるガス発生が内圧上昇の主要因になり得る。そこで、原因究明チームでは、Pu を含む α 比放射能の高い核燃料物質を貯蔵する際に最低限行うべき措置として、現象への直接的な対策の観点から、以下の 3 点を提言する。

- ①有機物が混入していることが明らかなもの、あるいは混入の疑いがあるものについては、酸化雰囲気中で加熱処理を行い、有機物を分解・除去すること。
- ②ホットセルやグローブボックスから核燃料物質を搬出する際には、通常は PVC バッグを用いたバッグアウト操作によるが、その内部の核燃料物質を収納する容器は金属製で堅牢かつ密閉性を有し、内部の核燃料物質が容易に外部に漏洩しない物を用いること。
- ③貯蔵容器内容物の性状に関する詳細な記録の保持と定期的な点検を確実に実施すること。

①に関して、燃料研究棟のエポキシ樹脂固化物は他施設には見られない稀なケースと思われるが、他施設でも有機物混入の可能性のあるケースとして、例えばペレット成型用に有機系潤滑剤を添加した粉末等が挙げられる。また、酸溶液から核燃料物質を沈殿させて酸化物に煅焼する際に、シュウ酸塩や酢酸塩等の有機物が残存する可能性がある。加熱処理を行うことで有機物を分解・除去する際に、同時に吸着水分も除去できる。

②に関して、事故に至った貯蔵容器内では密閉性の低いポリ容器に核燃料物質が収納されていたことから、PVC バッグ破裂時にポリ容器の蓋が上方に飛び出して開放になったことで、内部の核燃料物質が実験室内に飛散した。堅牢性が高く容易に蓋が外れない金属容器を内容器として用いていれば、内部のガスが漏れたとしても核燃料物質が直接広範に飛散することは防げたはずである。また、金属容器であれば Pu と接触しても α 線分解によるガス発生を防ぐことができる。溶液系の試料で直接金属製容器に入れられないようなケースでは、溶液を入れたガラス瓶等を金属製容器に収納した上でバッグアウトすることで対処可能と思われる。

③に関しては、例え内部でガスが発生して加圧状態になったとしても、適切な点検周期を設定して早期に異常を検知することで事故を未然に防ぐことができる。また、計量管理帳簿上に現れない混入物の有無や具体的な容器の材質、密閉性に関する情報を貯蔵容器ごとに確実に保持して引き継ぐことで、貯蔵開始時には知見のなかった潜在的危険性が後に分かったとしても、不用意に開封して汚染事故に至ることを防ぐことが可能となる。

以上のガス発生と汚染事故の未然の防止に関する提言をもって、本調査報告の結びとする。

謝 辞

原因究明の活動を進める上で、帳票・記録類の調査、退職者を含めた関係者への聞き取り調査、貯蔵容器内容物の観察・分析作業、計算等による評価、各種検証試験の実施とデータの取りまとめ、助言・提言等、原子力機構内外の様々な分野の専門家の方々に協力いただいたことに対し、本報告書の執筆者一同深く感謝する。特に量研 高崎研の方々には、試料の照射と分析にマシンタイムを優先的に割いて協力いただいたことで、ごく限られた活動期間に最大限のデータ収集が可能となった。協力いただいた方々の一覧を以下に示す。

○日本原子力研究開発機構

原子力科学研究部門

原子力科学研究所

湊和生

原子力基礎工学研究センター

佐藤匠、中島邦久、菊地啓修、荒井康夫、山下真一郎、石島暖大、佐藤智徳、上野文義、熊谷友多、堀口直樹、小川達彦、佐藤達彦、安部晋一郎、宝徳忍、北辻章浩、遠藤章、岡嶋成晃

物質科学研究センター

武田全康

バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所

プルトニウム燃料技術開発センター

中道晋哉、赤司雅俊、廣岡瞬、松本卓、土持亮太、青野茂典

環境技術開発センター

渡部創

高速炉研究開発部門 次世代高速炉サイクル研究開発センター

平田勝、皆藤威二

○量子科学技術研究開発機構 量子ビーム科学研究部門 高崎量子応用研究所

田口光正、伊藤久義、田中淳、横田渉、斉藤勇一、山本春也、杉本雅樹、木村敦、石井保行、佐藤隆博、奈良孝幸、千葉敦也、横山彰人、山田圭介、平野貴美、花屋博秋

○東北大学 多元物質科学研究所

佐藤修彰

(役職・敬称略)

参考文献

- 1) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 大洗研究開発センター燃料研究棟における汚染事故について(第3報)別添, 平成29年9月29日,
<http://www2.nsr.go.jp/data/000205231.pdf> (参照: 2017年12月20日) .
- 2) 福島奨, U-プルトニウム混合炭化物のX線回折用試料の作成法, JAERI-M8718, 1980年3月.
- 3) Bell, M. J., ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code, ORNL-4628, 1973.
- 4) 奥村啓介他, 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, 148p.
- 5) Yahata, T., Abe, J., Kato, M., Kurihara, M., Incineration Method for Plutonium Recovery from Alpha Contaminated Organic Compounds, J. Nucl. Sci. Chem., vol. 22, 1985, pp. 669-677.
- 6) Sato, T., Niita, T., Matsuda, N. et al., Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS, Version 2.52, J. Nucl. Sci. Technol. vol. 50, no. 9, 2013, pp. 913-923.
- 7) Chang, Z., Laverne, Jay A., 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, vol. 38, no. 9, 2000, pp. 1656-1661.
- 8) 高橋俊也他, 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.
- 9) 北川修他, 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年秋の大会, G32, 2004.
- 10) 勝村庸介, 放射線化学事始め 2. X線と α 線照射による水の分解: 線質効果の発見, Isotope News, 2016年8月号, No. 746, pp. 48-49.
- 11) Endo, A., Yamaguchi, Y., Eckerman, K.F., Nuclear Decay Data for Dosimetry Calculation, Revised Data of ICRP Publication 38, JAERI-1347, 2005, 114p.
- 12) 住友化学株式会社, 各種樹脂のガス透過率,
http://www.sumitomo-chem.co.jp/acryl/03tech/b3_gas.html (参照: 2017年9月11日) .
- 13) Stark, T.D., et al., Influence of plasticizer molecular weight on plasticizer retention in PVC geomembranes, Geosynthetics International, vol. 12, no. 2, 2005, pp. 99-110.
- 14) 桜シール株式会社, ガス透過量データ, <http://www.sakura-seal.co.jp/category/1981184.html> (参照: 2017年9月11日) .
- 15) 株式会社パッキンランド, 各種ゴムの気体透過率比較,
<https://www.packing.co.jp/GOMU/kitaitoukasei1.htm> (参照: 2017年9月11日) .
- 16) U.S. Department of Energy, DOE STANDARD: STABILIZATION, PACKAGING, AND STORAGE OF PLUTONIUM-BEARING MATERIALS, DOE-STD-3013-2012, 2012.
- 17) International Atomic Energy Agency, Safety Reports Series No. 9: SAFE HANDLING AND STORAGE OF PLUTONIUM, 1998.
- 18) Los Alamos National Laboratory, Designing a container for safe, long-term storage,
<http://www.lanl.gov/orgs/nmt/nmtdo/AQarchive/04fall/primer.html> (参照: 2017年12月8日) .
- 19) Bailey, G., Bluhm, E., Lyman, J., et al., Gas Generation from Actinide Oxide Materials, Los Alamos National Laboratory, LA-13781-MS, 2000.

Table 2-1 貯蔵容器内の全核燃料物質による α 崩壊数の計算結果

	1991年10月～1996年7月 (貯蔵開始から梱包更新まで)	1996年7月～2017年6月 (梱包更新から開封まで)
Am 除去なし	5.45×10^{19} 個	2.63×10^{20} 個
Am 除去あり ^{*1}	4.55×10^{19} 個	2.24×10^{20} 個
除去あり/除去なしの比	0.835	0.854

^{*1} 1983年6月にPu全量からAmを除去したと仮定

Table 2-2 PVCバッグの破裂に係る基本事象の影響度評価 (1/2)

基本事象 No.	基本事象名	影響度 (*1)	確認・調査事項	作業員等への聞き取り調査 (*2)	帳票類、作業記録等確認 (*2)	現地調査 (*2)	概略評価・文献情報 (*2)	検証試験 (*2)	各種調査の実施内容、調査・評価結果等
①	崩壊によるHeガス	×	5種Pu同位体組成の中で、最も厳しい条件でHe発生量を評価	—	—	—	●	—	貯蔵容器内にあるPuの中で、α崩壊が最大となるPu同位体組成を用いて、21年間のHe発生量を計算した。その結果、発生量は12.6 mL (標準状態換算) であり、影響は小さい。
②	混入有機物	○	聞き取り調査等により混入有機物の種類及び量を推定	●	●	●	—	—	主たる混入有機物は、X線回折測定試料作製時に使用されエポキシ樹脂である。エポキシ樹脂固化物と粉末状試料の全体重量を貯蔵容器内容物の種別・分析にて測定した。 エポキシ樹脂のα線分解によるガス発生 Cm-244のα線照射による圧力上昇試験や量研 高崎研におけるエポキシ樹脂へのHeイオン照射試験の結果から、ガス発生率は積算照射量とともに低下することが分かった。これらを考慮して、t値を0.22と見積もった。その結果、21年間のガス発生量は、Pu粉末粒径を20μmとした場合、48 L (標準状態換算) である。
③	ポリ容器	△	ポリ容器の放射線分解による発生ガス量、内容物形状 (塊、分布等) 及びポリ容器への接触状況を確認	—	—	●	●	●	ポリエチレンのα線分解によるガス発生 ポリ容器内の粉末状試料を全てUとPuの混合酸化化合物粉末と仮定し、ポリ容器底部に存在するとして評価を行った結果、21年間のガス発生量は0.18 L (標準状態換算) であり、②「混入有機物」に比べて寄与は小さい。
④	混入水分	×	混入水分の量 (移物質の物理形態を確認した上で評価)	—	●	—	●	—	粉末状試料全量を核燃料物質粉末と仮定し、文献調査結果を基に吸着水分量を0.5 wt%として計算を行った。 上記吸着水分量を基に評価した放射線分解によるガス発生量は0.09 L (標準状態換算) である。吸着水分の全量が分解するなど、過度に保守的な仮定をしていることから、実際にはその影響は無視できると考えられる。
⑤	容器内物質間の化学反応 (ガス及び熱)	×	化学反応による熱及び発生ガスの種類及び量の推定	●	●	—	●	—	炭化物及び窒化物が加水分解を起こした場合、それぞれメタン及びアミンの生成が考えられる。 樹脂固化物の分析結果から、炭化物がエポキシ樹脂に含まれていることが分かった。特に炭化物については水分との反応性が高く水分と接触した場合に加水分解を生じることから、この結果は貯蔵期間中に炭化物の加水分解がほとんど起こらなかったことを示している。これより、本事象の影響は小さいと考えられる。
⑥	爆発性物質の爆発 (ガス及び熱)	×	爆発性物質生成の有無 (量、爆発可能性など)、衝撃・影響等の有無の調査	●	—	—	●	—	作業員への確認の結果、破裂時の爆発による異臭等無し。 平常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、爆発性物質の生成並びにその爆発によるガス及び熱発生の可能性は低い。
⑦	可燃性ガスの燃焼・爆発 (ガス及び熱)	×	水素等の燃焼範囲への到達可能性、爆発発生等の有無	●	—	—	●	—	作業員への確認の結果、樹脂製の袋破裂時の爆発による異臭や火災等無し。 量研 高崎研におけるエポキシ樹脂へのHe照射試験においては、発生ガスの大半は水素であった。前電気等により着火危険が発生して爆発したとしても、二重目PVCバッグは健全であったことを考えると、想定しがたい。
⑧	臨界発生 (ガス及び熱)	×	臨界可能性	—	●	—	—	—	Puの最小臨界量は220 g (湿式条件で二重包装を考慮して安全係数を見込んだ値) であり、実際はこれより大幅に少ない核分裂性物質質量であったことから、臨界発生可能性はない。
⑨	崩壊熱	×	崩壊熱量と熱バランス	●	●	—	●	—	崩壊熱はα崩壊による寄与が大きいことから、貯蔵容器内にあるPuの同位体組成を用いた計算を行った結果、崩壊熱は最大で0.5 Wである。これによる容器内温度上昇は2℃以下であり、内圧上昇 (*3) は0.01気圧以下である。このことから、崩壊熱による内部温度上昇への影響は小さい。また、作業員証言「ゴム手袋感してあるが、貯蔵容器側面を手で触ってみて、温度上昇はなかった。」からも、発熱は小さい。

*1 ○：影響大、△：影響あり、×：小 (無視できる。)

*2 ●：実施済み、—：実施しない。

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

Table 2-2 PVCバッグの破裂に係る基本事象の影響度評価 (2/2)

基本事象 No.	基本事象名	影響度 (*1)	確認・調査事項	作業員等への聞き取り調査 (*2)	帳票類、作業記録等確認 (*2)	現地調査 (*2)	概略評価・文献情報 (*2)	検証試験 (*2)	各種調査の実施内容、調査・評価結果等
⑩	夏期の高温	×	夏期の室内温度	●	-	-	-	-	作業記録の調査結果等によると、封入は夏に実施された。このため夏期の温度上昇ほとんど無く、内圧上昇へ及ぼす影響は小さいと考えられる。
⑪	不適切な溶着	×	現物の破損箇所 (溶着性)	-	-	●	-	-	貯蔵容器内容物の観察結果からは、溶着部の不良箇所は観察されなかった。このため、本事象の影響は小さいと考えられる。
⑫	封入時の傷等	×	現物確認による傷等の有無	-	-	●	-	-	貯蔵容器内容物の観察結果からは、傷等は観察されなかった。このため、本事象の影響は小さいと考えられる。
⑬	PVCバッグのα線による劣化	×	PVCバッグの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の有無 (PVCバッグが直接α線源に接していたか) を確認	-	-	●	-	-	PVCバッグにα線による劣化をもたらすためには、ポリ容器の破損により内部の核燃料物質が放出してPVCバッグに接触することが必要であるため、ポリ容器の観察を行った。その結果、ポリ容器の破損は認められなかった。また、PVCバッグの劣化も認められなかったことから、本事象の影響は小さいと考えられる。
⑭	PVCバッグのγ線による劣化	△	PVCバッグのγ線照射による劣化度合い	●	-	●	●	●	PVCバッグのγ線照射試験 (重研 高崎研) により劣化度合いを評価。PVCバッグのγ線照射試験後、引張試験を実施した結果、照射に伴い引張強度及び破断伸びは線形的に低下し、240 kg (21年間の貯蔵期間相当) では、未照射のものに比べてそれぞれ約25%及び約21%低下することが分かった。
⑮	PVCバッグのβ線による劣化	×	PVCバッグのβ線照射による劣化度合い	-	-	-	●	-	Pu-241のβ線に伴い放出されるβ線エネルギーは0.0208 MeVとα線のものに比べて大幅に小さいことから、⑬「PVCバッグのα線による劣化」における評価に包含される。
⑯	PVCバッグの熱劣化	×	PVCバッグの熱による劣化度合い	●	-	-	●	-	文献による高温でのPVCバッグの伸びデータからの外挿を正しすると、室温付近においてPVCバッグ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、作業員への聞き取り調査や内部温度上昇に係る評価の結果、貯蔵容器の温度上昇は小さいことが分かったことから、本事象がPVCバッグの破損条件変化に影響する度合いは小さいと考えられる。
⑰	PVCバッグの経年劣化	×	PVCバッグの熱分解結果と過去の基準値との比較	-	-	-	●	-	温度上昇として考えられる事象 (⑤~⑩) のいずれも貯蔵期間中に有意な劣化をもたらすほどの温度ではない。文献調査の結果、貯蔵期間中にPVCバッグの破断に至る強度や伸びの低下はほとんど生じないことが分かった。PVCバッグ製造メーカーへの聞き取り調査の結果、経年劣化は主に紫外線の影響によるが、放射線の影響の方が大きい。そのため、本項目は放射線による劣化 (⑬及び⑭) に包含される。
⑱	当時のPVCバッグの品質	×	数十年前のPVCバッグの品質調査 (強度等)	-	-	-	●	-	PVCバッグ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。
⑲	ポリ容器放射線劣化	×	ポリ容器現品の放射線による劣化度合い	-	-	●	-	●	ポリ容器のγ線照射試験による劣化度合い評価を実施した結果、360 kGy (26年間の貯蔵期間相当) まで照射してもやや変色する程度で、柔軟性もほとんど変化なく、劣化は認められなかった。また、貯蔵容器内のポリ容器を実際に触れてみた感触からは、α線によると思われるポリ容器脆化の傾向が認められたが、破損は無かった。このことから、本事象の影響は小さいと考えられる。
⑳	ポリ容器内突起物混入による損傷	×	突起物等混入有無	-	-	●	-	-	貯蔵容器内容物の観察結果、突起物等の混入は認められなかったことから本事象の影響は小さいと考えられる。
㉑	貯蔵容器開封時の傷等	×	現物確認による開封時の傷の有無	●	-	●	-	-	作業員への聞き取りの結果、開封時に傷を確認し、また、貯蔵容器内容物の観察の結果、傷等は認められなかった。これらの結果から、本事象の影響は小さいと考えられる。

*1 ○：影響大、△：影響あり、×：小 (無視できる。)

*2 ●：実施、-：実施しない。

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

Table 3-1 γ 線照射によるエポキシ樹脂の水素ガス発生量測定結果

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

Table 3-2 Cm含有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

Table 3-3 粒子内で発生する α 線エネルギーのうち粒子外に付与されるエネルギーの割合^{*1}

粒子直径 (μm)	粒子外に付与されるエネルギーの割合 F_α
4	0.889
10	0.701
20	0.425
30	0.293
35	0.231 ^{*2}

^{*1} 物質 (密度) は PuO_2 を想定

^{*2} 4~30 μm の計算結果の外挿値

Table 3-4 貯蔵容器内の樹脂固化物からのガス発生量の評価結果^{*1}

同位体組成条件	粉末粒子径 (μm)	1991年10月～ 1996年7月の ガス発生量 (L)	1996年7月～ 2017年6月の ガス発生量 (L)
推定平均組成 (Am 除去なし)	10	16.5	79.5
	20	10.0	48.2
	35	5.44	26.2
同 (Am 除去あり)	35	4.54	22.4

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

Table 4-1 PVC バッグの未照射及び照射後引張試験結果

(a) 360 kGy 照射の場合

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

(b) 120 kGy 及び 240 kGy 照射の場合

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

Table 5-1 未照射 PVC バッグ破裂試験条件と結果①
 (一重、No. 1~6 は拘束なし、No. 7~31 はステンレス缶で拘束・蓋なし)

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*1 [kgf/cm ²]	破損箇所 ※No.7~31 におい ては Fig. 5-4 の A~E	破損箇所 の形状	破裂時 配管内 絶対圧 (atm)*2	破損部の 大きさ [mm]	破損まで の時間 [s]
1	なし	-	1.5	溶着部	穴	1.4	5	28
2	なし	-	3	溶着部	穴	1.8	5	10
3	なし	-	6	溶着部	穴	2.4	10	6
4	なし	-	1	溶着部	穴	1.4	2	34
5	なし	-	1	溶着部	穴	1.3	4	21
6	なし	-	1	溶着部	穴	1.3	3	44
7	120×220	20	1	A (生地部)	放射状	1.6	50	19
8	120×220	40	1	C (生地部)	放射状	1.6	50	25
9	120×220	50	1	C (生地部)	放射状	1.4	90	65
10	120×220	100	1	C (生地部)	直線	1.3	130	600
11	120×220	200	1	E (溶着部)	穴	1.2	1	540
12	120×220	50	3	C (生地部)	放射状	1.8	50	4
13	120×220	100	3	C (生地部)	放射状	1.6	70	10
14	120×220	100	3	C (生地部)	放射状	1.7	70	10
15	120×220	100	3	C (生地部)	放射状	1.7	100	11
16	120×220	50	6	C (生地部)	放射状	2.6	40	3
17	120×220	100	6	C (生地部)	放射状	2.6	90	5
18	120×220	100	6	C (生地部)	直線	2.4	100	4
19	120×220	100	6	C (生地部)	放射状	2.3	80	5
20	133×250	0	1	A (生地部)	放射状	1.5	60	75
21	133×250	100	1	C (生地部)	直線	1.4	130	680
22	133×250	100	1	C (生地部)	放射状	1.3	130	540
23	133×250	100	1	C (生地部)	直線	1.3	140	510
24	133×250	100	3	C (生地部)	放射状	1.6	100	16
25	133×250	100	3	C (生地部)	放射状	1.7	60	10
26	133×250	100	3	C (生地部)	放射状	1.7	110	16
27	133×250	0	3	A (生地部)	放射状	2.0	40	4
28	133×250	0	6	A (生地部)	放射状	2.4	40	4
29	133×250	100	6	C (生地部)	放射状	2.4	70	6
30	133×250	100	6	C (生地部)	放射状	2.5	110	7
31	133×250	100	6	C (生地部)	放射状	2.4	90	7

*1 ガスボンベ減圧弁の二次圧の指示値

*2 測定した圧力は大気圧との差（ゲージ圧）であり、ゲージ圧 (MPa)=(絶対圧 - 1 atm)/10 である。

Table 5-2 未照射 PVC バッグ破裂試験条件と結果②
(一重、ステンレス缶及び蓋で拘束)

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*1 [kgf/cm ²]	蓋の 隙間 [mm]	破裂箇所 ※Fig. 5-6 の A, B, C	破裂箇所 の形状	破裂時 配管内 絶対圧 (atm)*2	破損部の 大きさ [mm]	破損まで の時間 [s]
1	133×250	100	2	70	A (生地部)	放射状	2.0	50	190
2	133×250	100	2	40	A (生地部)	放射状	2.4	30	230
3	133×250	100	2	35	B (生地部)	放射状	2.4	30	190
4	133×250	100	3	40	C (溶着部)	穴	2.4	10, 2	6
5	133×250	100	3	50	A~B (生地部)	直線	2.7	80	6
6	133×250	100	6	20	B (生地部)	放射状	4.0	20	5
7	133×250	100	6	40	B (生地部)	放射状	4.2	20	3
8	133×250	100	6	40	B (生地部)	放射状	4.2	25	4
9	133×250	100	6	40	A (生地部)	直線	4.4	55	5
10	133×250	100	6	35	B (生地部)	直線	4.5	45	6
11	133×250	100	6	35	A~B (生地部)	直線	4.5	70	6
12	133×250	-45	2	25	A (生地部)	直線	2.0	50	175
13	133×250	-50	2	30	A (生地部)	直線	2.2	50	230
14	133×250	-60	2	25	A (生地部)	直線	2.3	50	195

*1 ガスボンベ減圧弁の二次圧の指示値

*2 測定した圧力は大気圧との差（ゲージ圧）であり、ゲージ圧 (MPa)=(絶対圧 - 1 atm)/10 である。

Table 5-3 未照射 PVC バッグを用いた破裂試験条件と配管内圧の最大・最小値のまとめ

ステンレス缶 有無	蓋の 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 絶対圧 [atm]	備考
なし	-	1	溶着部	穴	0.03	1.3	内圧最小値
なし	-	6	溶着部	穴	0.14	2.4	内圧最大値
あり	なし	1	溶着部	穴	0.02	1.2	内圧最小値
あり	なし	6	生地部	放射	0.16	2.6	内圧最大値
あり	あり	2	生地部	直線	0.10	2.0	内圧最小値
あり	あり	6	生地部	放射	0.30	4.0	内圧最大値

Table 5-4 照射済 PVC バッグ破裂試験①の結果
(二重梱包、蓋なし)

試験 No.	試験結果* ¹										破損位置	
	破裂までの時間 (s)		破裂時配管内絶対圧 (atm)* ²		破裂箇所		破裂箇所の形状		破裂箇所の大きさ (mm)		樹脂製の袋	ステンレス缶
1	510	290	1.4	1.8	A	A	直線	直線	110	100		
2	300	260	1.5	1.8	A	A	直線	直線	90	120		

*¹ 破線の左は一重目 (内側)、右は二重目 (外側) の結果

*² 測定した圧力は大気圧との差 (ゲージ圧) であり、ゲージ圧 (MPa)=(絶対圧 - 1 atm)/10 である。

Table 5-5 照射済 PVC バッグ破裂試験②の結果
(二重梱包、蓋をチェーンで拘束)

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

*¹ 破線の左は一重目、右は二重目の結果

*² 測定した圧力は大気圧との差 (ゲージ圧) であり、ゲージ圧 (MPa)=(絶対圧 - 1 atm)/10 である。

Table 5-6 照射済 PVC バッグ破裂試験③の結果
(二重梱包、蓋をクラムプリングで拘束・加圧後解放)

試験 No.	試験結果* ¹										破損位置	
	破裂までの時間 (s)		破裂時配管内絶対圧 (atm)* ²		破裂箇所		破裂箇所の形状		破裂箇所の大きさ (mm)		樹脂製の袋	ステンレス缶
1	1	0	2.5	2.5	B	A	直線	直線	20	110		
2	無	0	無	2.6	無	A	無	放射	無	90		
3	無	0	無	2.8	無	A	無	放射	無	80		
4	0	0	4.0	4.0	B	A	直線	放射	200	90		
5	0	0	4.0	4.0	B	A	直線	放射	180	80		

*¹ 破線の左は一重目、右は二重目の結果

*² 測定した圧力は大気圧との差 (ゲージ圧) であり、ゲージ圧 (MPa)=(絶対圧 - 1 atm)/10 である。

Table 6-1 ガス発生量の計算条件と計算結果

ケース		A	B	C
エポキシ樹脂のα線分解によるガス発生 (Table 3-4)	Pu 同位体組成	平均同位体組成		
	α線によるガス発生 の G 値	0.22		
	ガス組成 ^{*1}	水素 83%、メタン 17%		
	平均粒子径	10 μm	20 μm	35 μm
	Am-241 除去	無	無	有
	21 年間のガス発生量 ^{*2}	86.8 L (79.5 L)	52.6 L (48.2 L)	24.4 L (22.4 L)
ポリ容器のα線分解によるガス発生 (3.2.2 項)	21 年間のガス発生量 ^{*2}	0.20 L (0.18 L)		
21 年間のガス発生量合計		87.0 L	52.8 L	24.6 L

*1 水素以外のガスとしては、検証試験（3.1.1 及び 3.2.1 項参照）の結果から得られたガス種のうち、O-リングの透過係数の低いメタンを設定

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

Table 6-2 圧力計算条件

ケース		A	B	C
PVC バッグ	貯蔵開始時の発生気体 滞留可能体積 (初期値) *1	1156 cm ³		
	最大の発生気体滞留 可能体積*2	3386 cm ³		
PVC バッグー貯蔵容器間	貯蔵開始時の発生気体 滞留可能体積*3 (初期値)	2332 cm ³		
貯蔵容器	発生気体滞留可能体積	3486 cm ³		

*1 一重目 PVC バッグがポリ容器に密着しているとして、ポリ容器の内容積からエポキシ樹脂の体積を差し引いた値

*2 貯蔵容器内における発生気体滞留可能体積に対して PVC バッグー貯蔵容器間に 100 cm³ の空間領域が残ると設定

*3 貯蔵容器内容積からポリ容器外容積を差し引いた体積

Table 6-3 透過量計算条件

ケース		A	B	C
PVC バッグ	ガス透過係数 ^{*1}	2.7×10^{-10} (水素) ¹²⁾ 3.0×10^{-12} (メタン) ¹³⁾		
	漏えい面積 ^{*2}	1620 cm ²		
	厚さ ^{*3}	0.6 mm		
貯蔵容器 (O-リング)	ガス透過係数 ^{*4}	1.4×10^{-9} (水素) ¹⁴⁾ 3.3×10^{-10} (メタン) ¹⁴⁾	3.9×10^{-9} (水素) ¹⁵⁾ 3.3×10^{-10} (メタン) ¹⁴⁾	
	漏えい面積 ^{*5}	3.8 cm ² (1 mm 幅)	18.9 cm ² (5 mm 幅)	
	厚さ ^{*6}	5.1 mm		

*1 単位は cc cm/cm² s 10mmHg

*2 一重目 PVC バッグの表面積を設定

*3 一重目と二重目の PVC バッグは膨張して一体となるため、PVC バッグの厚さに対して 2 倍の値を設定

*4 単位は cc cm/cm² s 10mmHg

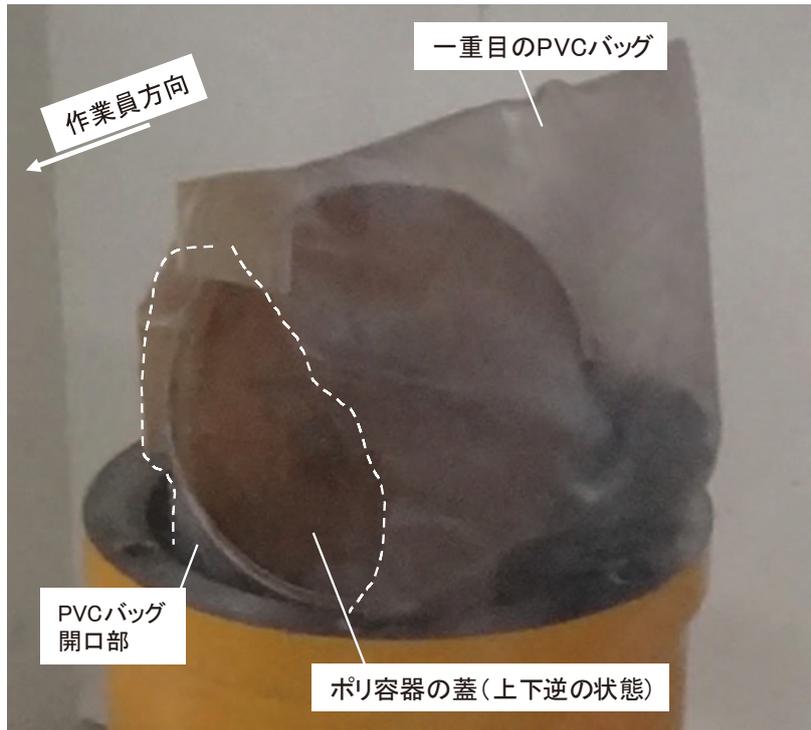
*5 貯蔵容器の寸法から O-リング装着時の幅を設定。最大ケースにおいては、高圧により蓋-容器間の溝 (1mm 幅) に O-リングが喰い込んだ場合を想定

*6 O-リングが幅 5 mm の溝内に圧縮された場合において、O-リング (φ 5.7 mm) 断面積と等価になるような厚みを設定 ($(5.7/2)^2 \times \pi \div 5$)

Table 6-4 貯蔵容器開封時 (梱包更新後 21 年) における PVC バッグの内圧計算結果

ケース	内圧：絶対圧 (atm)	PVC バッグの状態 ^{*1}
A	24.6	破裂
B	12.4	破裂
C	4.6	破裂

*1 検証試験において得られた当該貯蔵容器開封時と同様な PVC バッグの破裂又は破損状況となる内圧は 2.5 気圧以上



(a) PVC バッグの破裂後に作業員が撮影した貯蔵容器上部の写真
(2017年6月6日撮影)



(b) フード手前床養生シート上の飛散物（点線枠内の黒いかげら状のもの）
(2017年7月4日飛散物回収時に撮影)

Fig. 2-1 事故直後の貯蔵容器の外観とフード手前の飛散物の様子

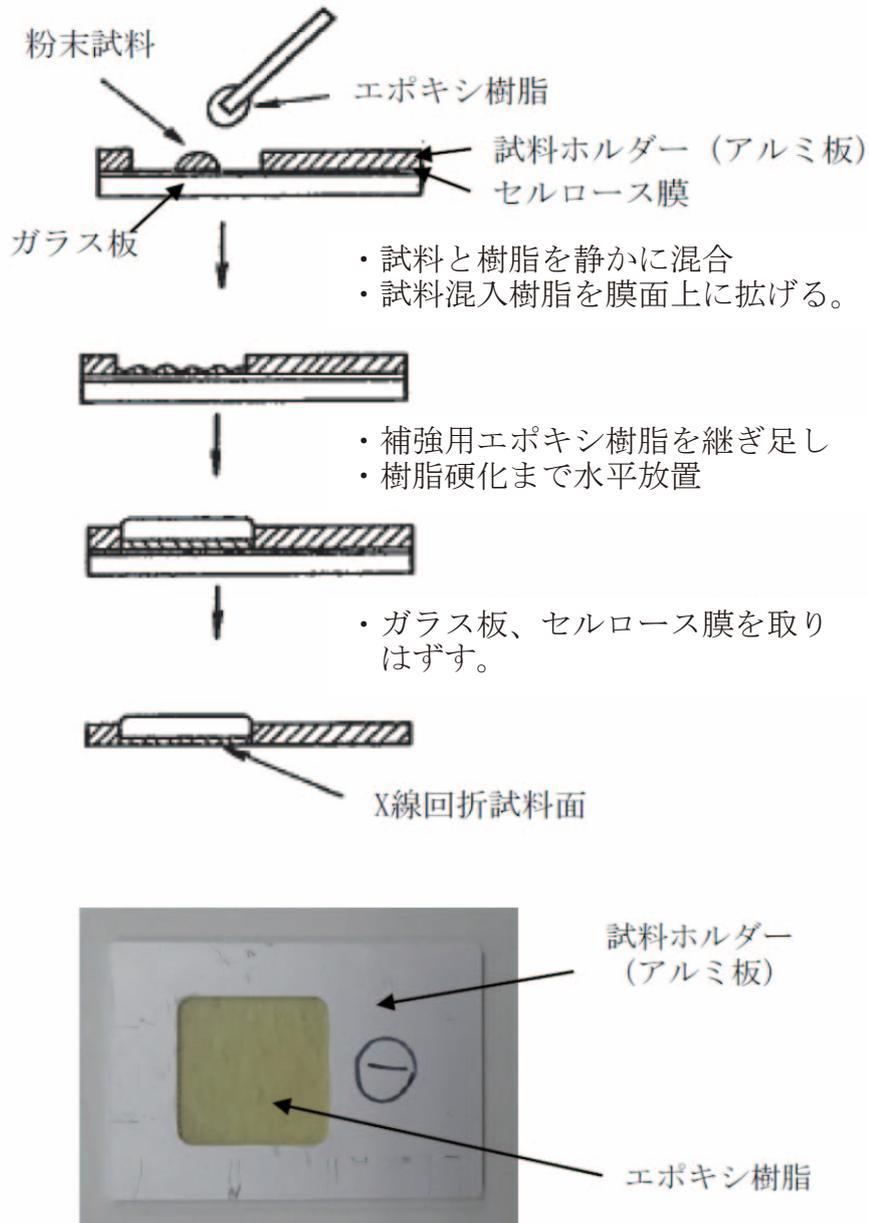
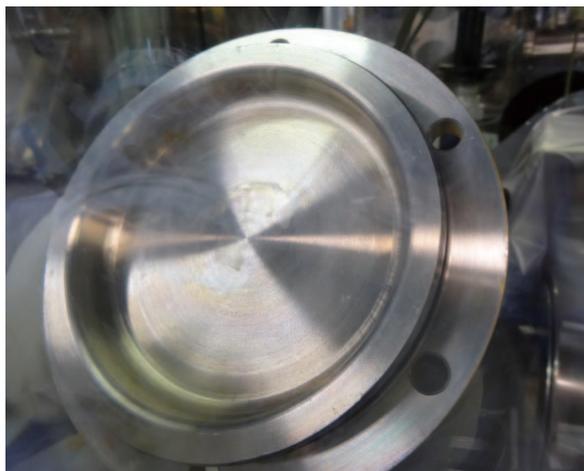


Fig. 2-2 燃料研究棟における X 線回折測定試料の作製方法



蓋の内面 (2017年7月20日 撮影)



蓋のO-リングの状態 (2017年7月20日 撮影)

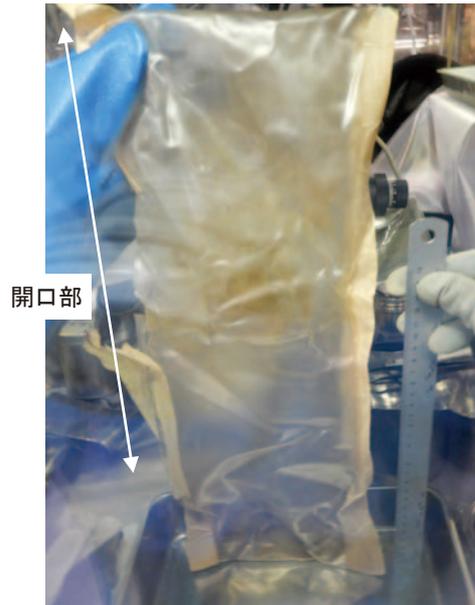


貯蔵容器本体の内面 (2017年7月20日 撮影)

Fig. 2-3 貯蔵容器内面の外観写真



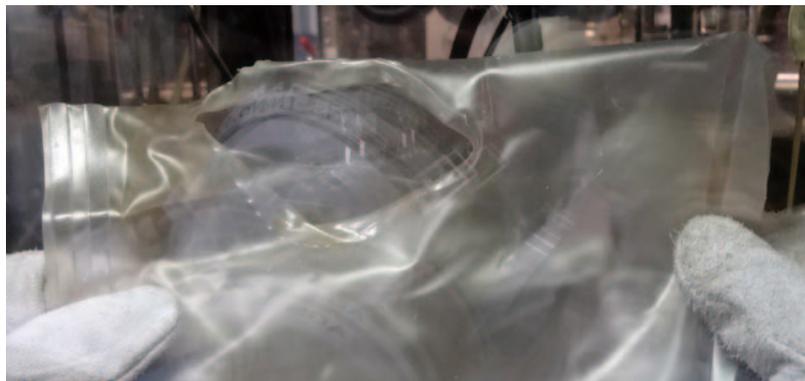
貯蔵容器から取り出した収納物の全体像 (2017年8月2日撮影)



一重目 (内側) PVCバッグの全体像 (2017年8月3日撮影)



二重目 (外側) PVCバッグの全体像 (2017年8月2日撮影)



二重目 (外側) PVCバッグの開口部分 (2017年8月2日撮影)

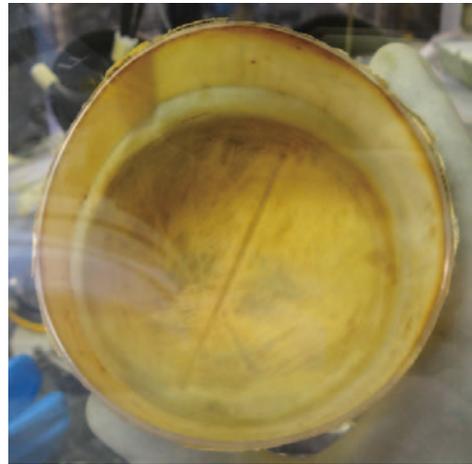
Fig. 2-4 破損した PVC バッグの外観写真



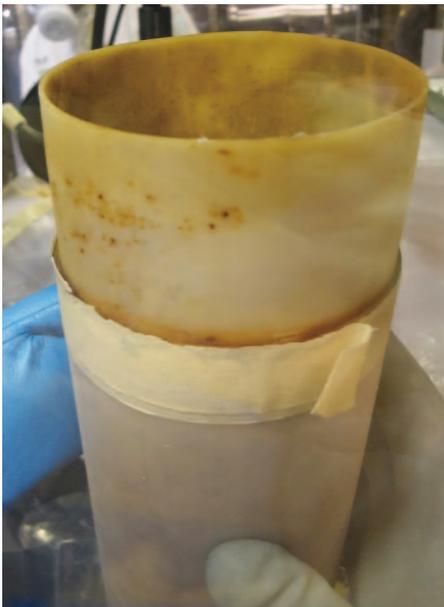
底面側外観 (2017年8月3日撮影)



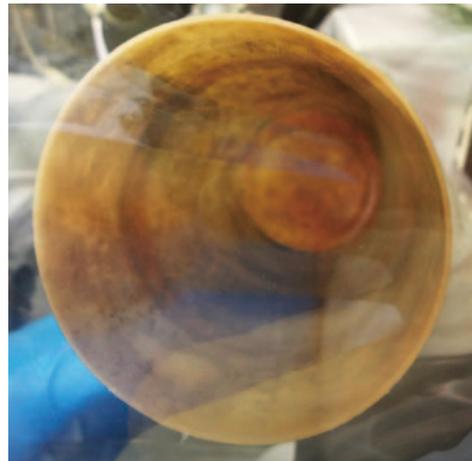
蓋を被せた状態 (2017年8月3日撮影)



蓋の内面の状態 (2017年8月3日撮影)



蓋を外した状態 (2017年8月3日撮影)

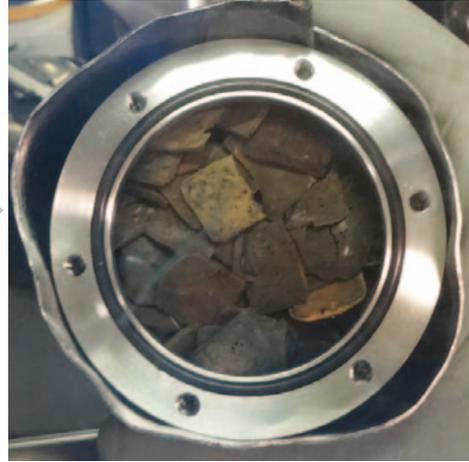


内容物回収後の容器内面の状態
(2017年8月3日撮影)

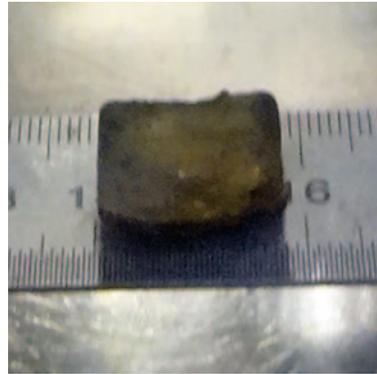
Fig. 2-5 ポリ容器 (内容器) の外観



ポリ容器から回収する前の収納状態
(2017年8月2日撮影)



別の金属容器へ収納した状態
(2017年8月3日撮影)



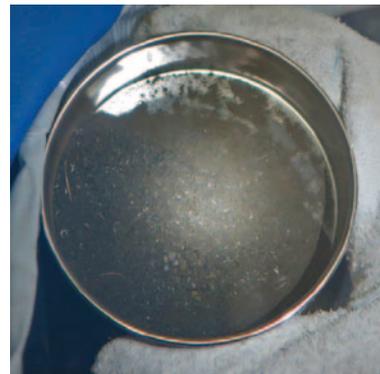
樹脂固化物の外観観察時の写真 (2017年8月3日撮影)



ポリ容器底部の細かい
かけらと粉末
(2017年8月2日撮影)



ふるい分けした後の
かけら成分
(2017年8月4日撮影)

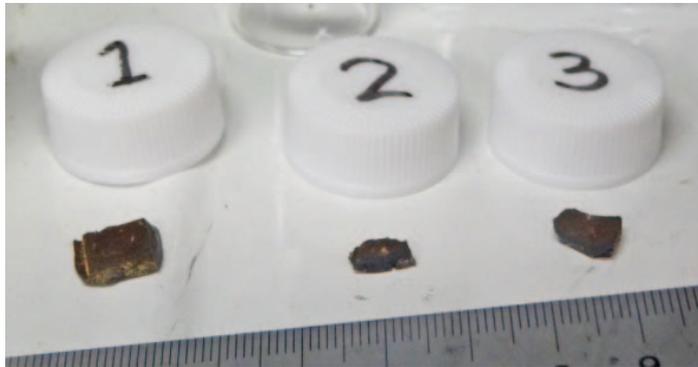


ふるい分けした後の
粉末成分
(2017年8月2日撮影)

Fig. 2-6 ポリ容器内容物の外観写真



↓ フード前養生シート上の飛散物 (2017年7月4日撮影)



フード前養生シート上から回収した
飛散物の外観 (2017年7月20日撮影)

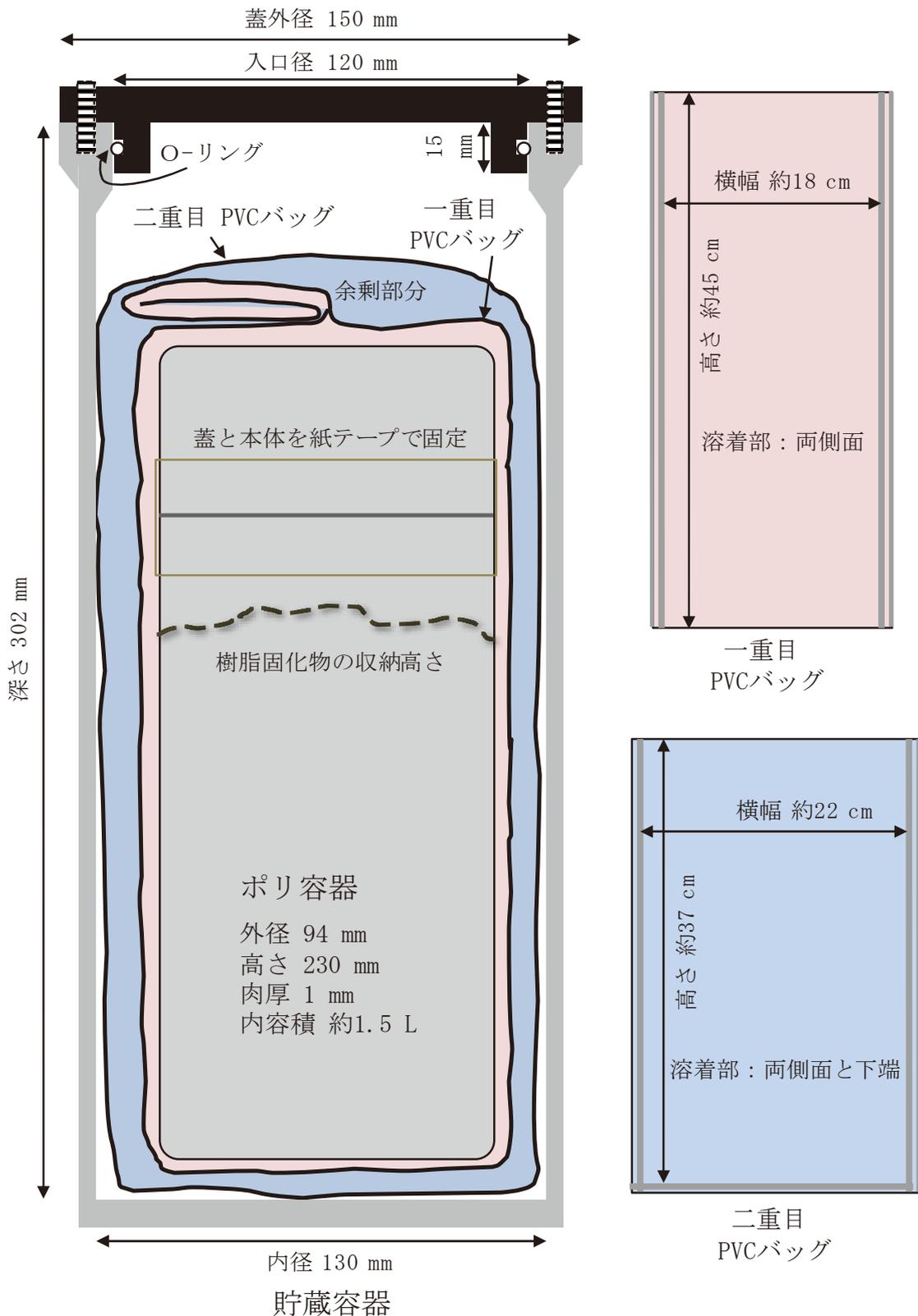


フード前養生シート上から
回収・集約した飛散物
(2017年8月2日撮影)



フード内養生シート上から回収・集約した飛散物
(2017年8月3日撮影)

Fig. 2-7 フード手前床及びフード内養生シート上から回収した飛散物の外観写真



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

Fig. 2-8 梱包更新時の貯蔵容器内収納状態想定図

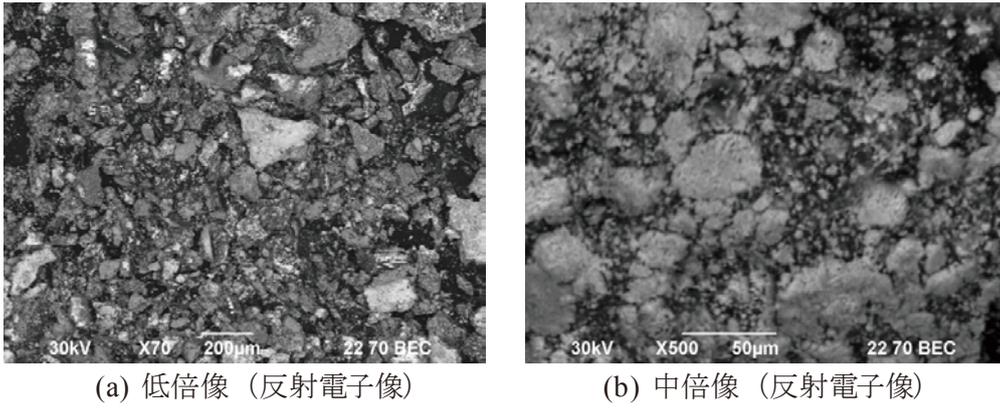


Fig. 2-9 粉末成分の観察像

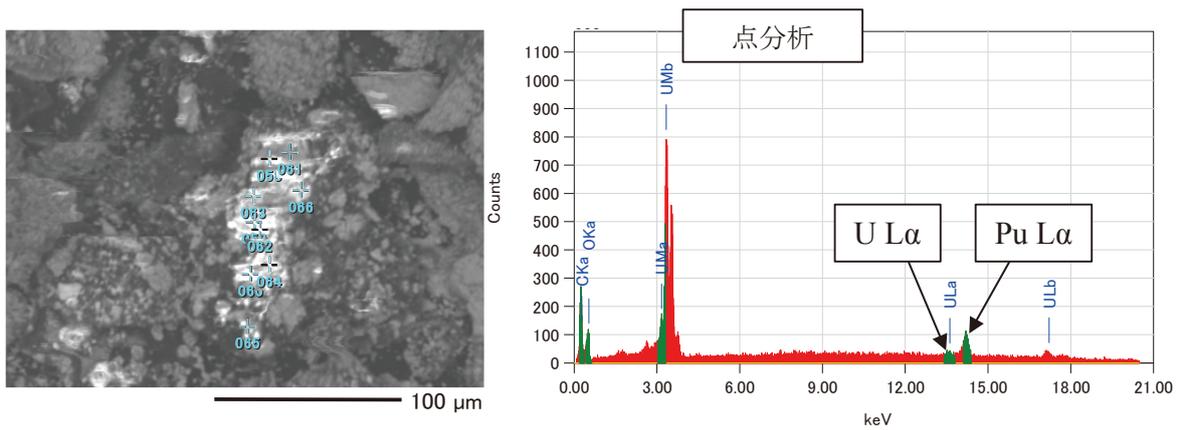
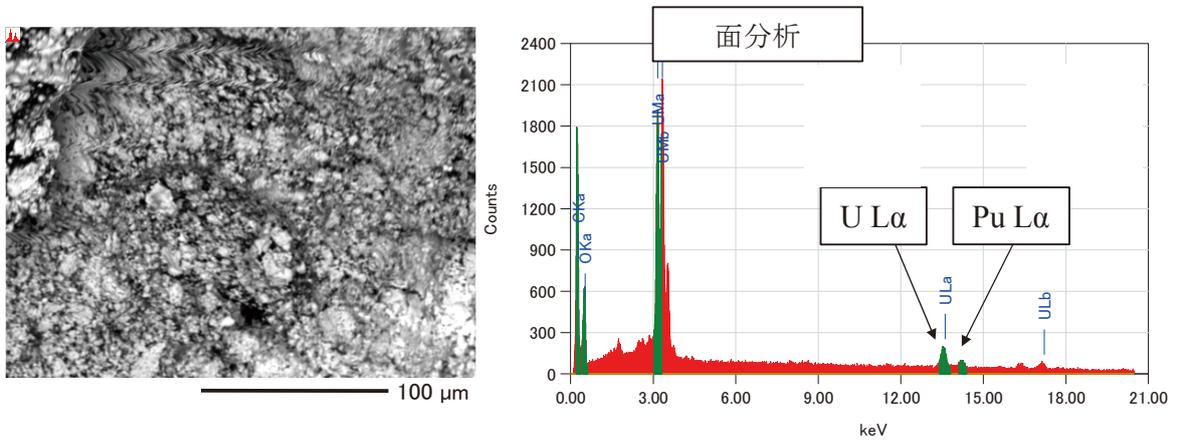


Fig. 2-10 粉末成分のEDSによるX線スペクトルの例

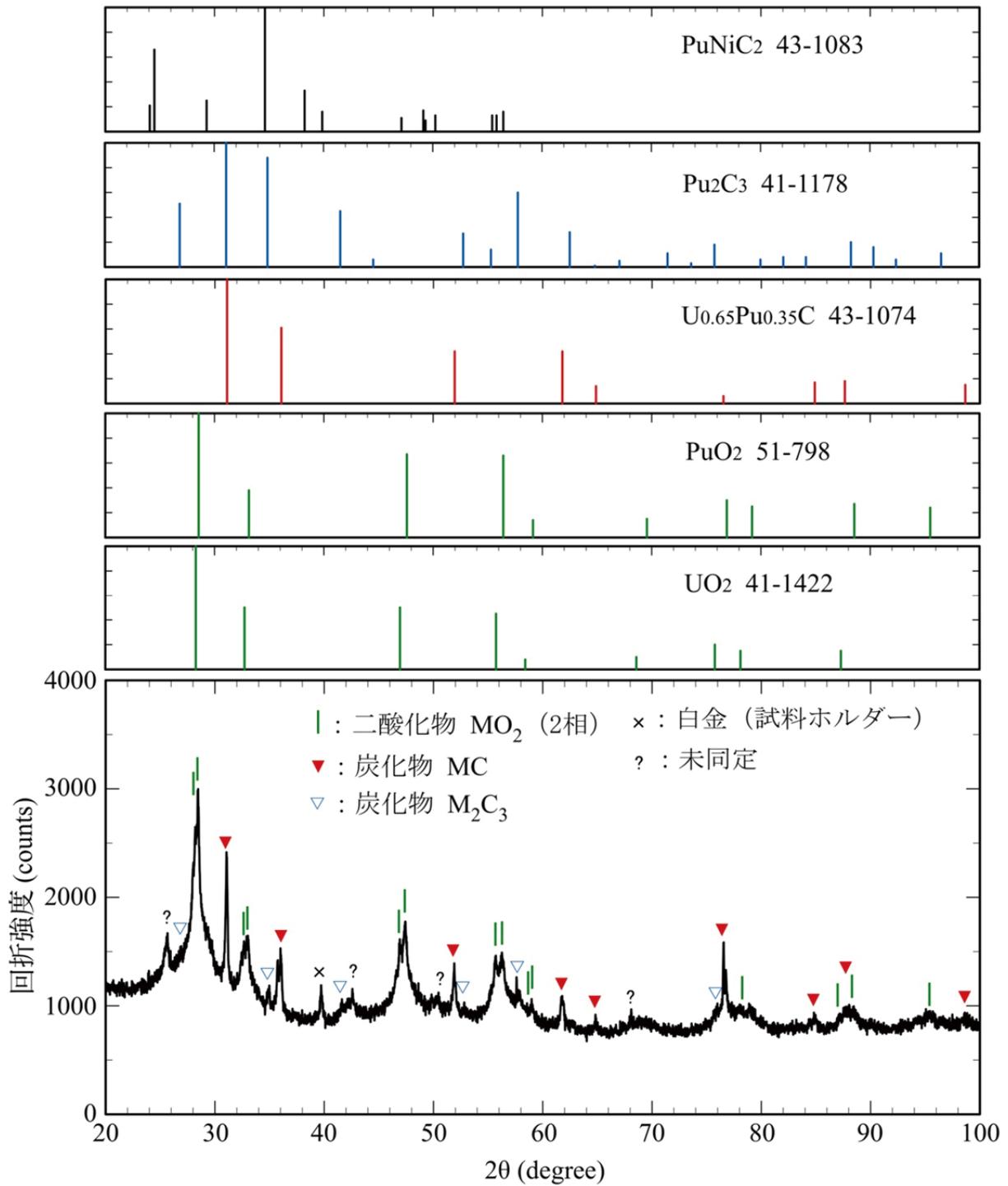
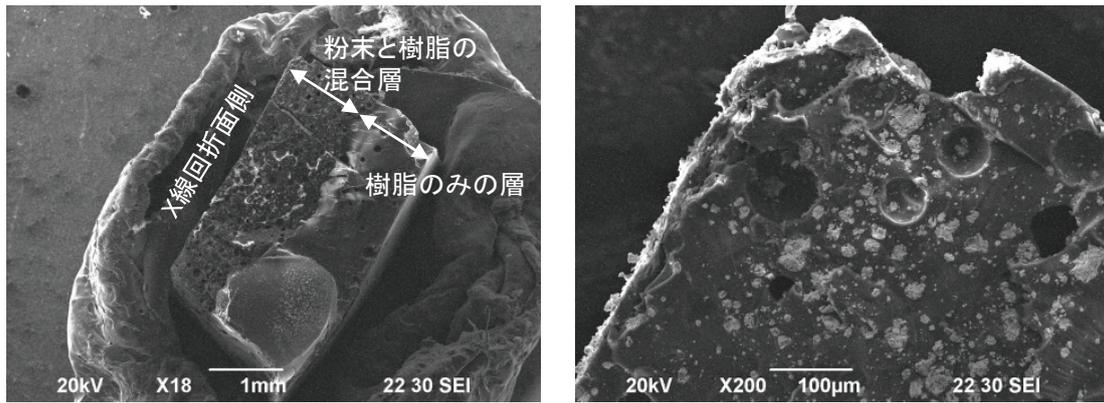
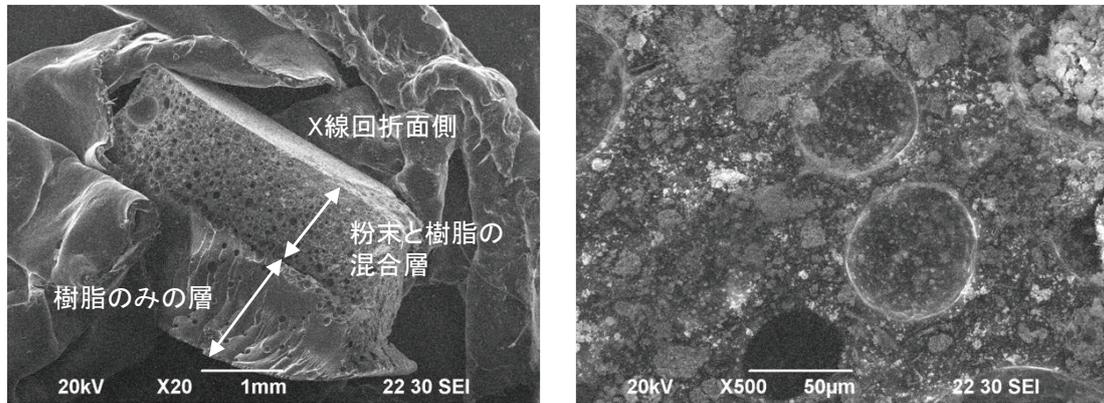


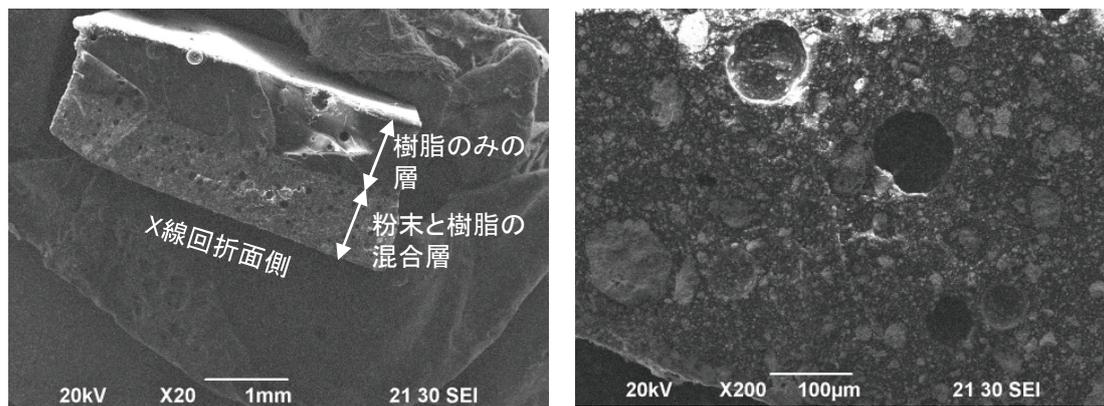
Fig. 2-11 粉末成分の X 線回折プロファイルとデータベース*との比較
 (*ICDD : The International Center for Diffraction Data, 縦軸は相対強度)



(a) 線量当量率：高（約220 μ Sv/h、二次電子像）

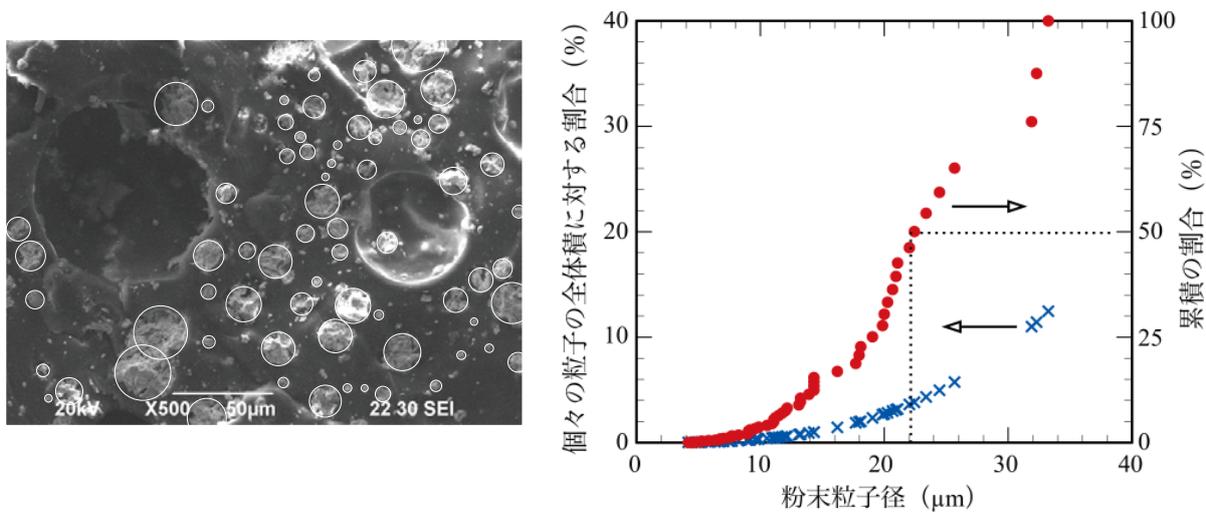


(b) 線量当量率：中（約56 μ Sv/h、二次電子像）

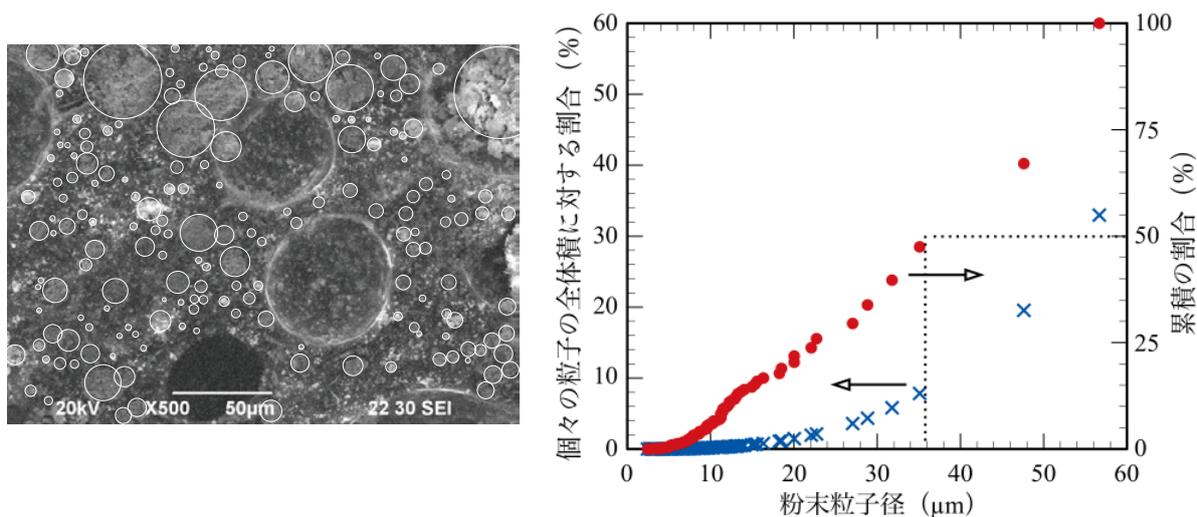


(c) 線量当量率：低（約14 μ Sv/h、二次電子像）

Fig. 2-12 線量当量率で選別したエポキシ樹脂固化物 3 個の断面観察像
（左：全体像、右：拡大像）



(a) 線量当量率：高 (約220 μSv/h)



(b) 線量当量率：中 (約56 μSv/h)

Fig. 2-13 樹脂固化物断面観察像からの粉末平均粒子径の評価
(左：観察像上で粒子径の読み取り、右：体積基準による粒度分布)

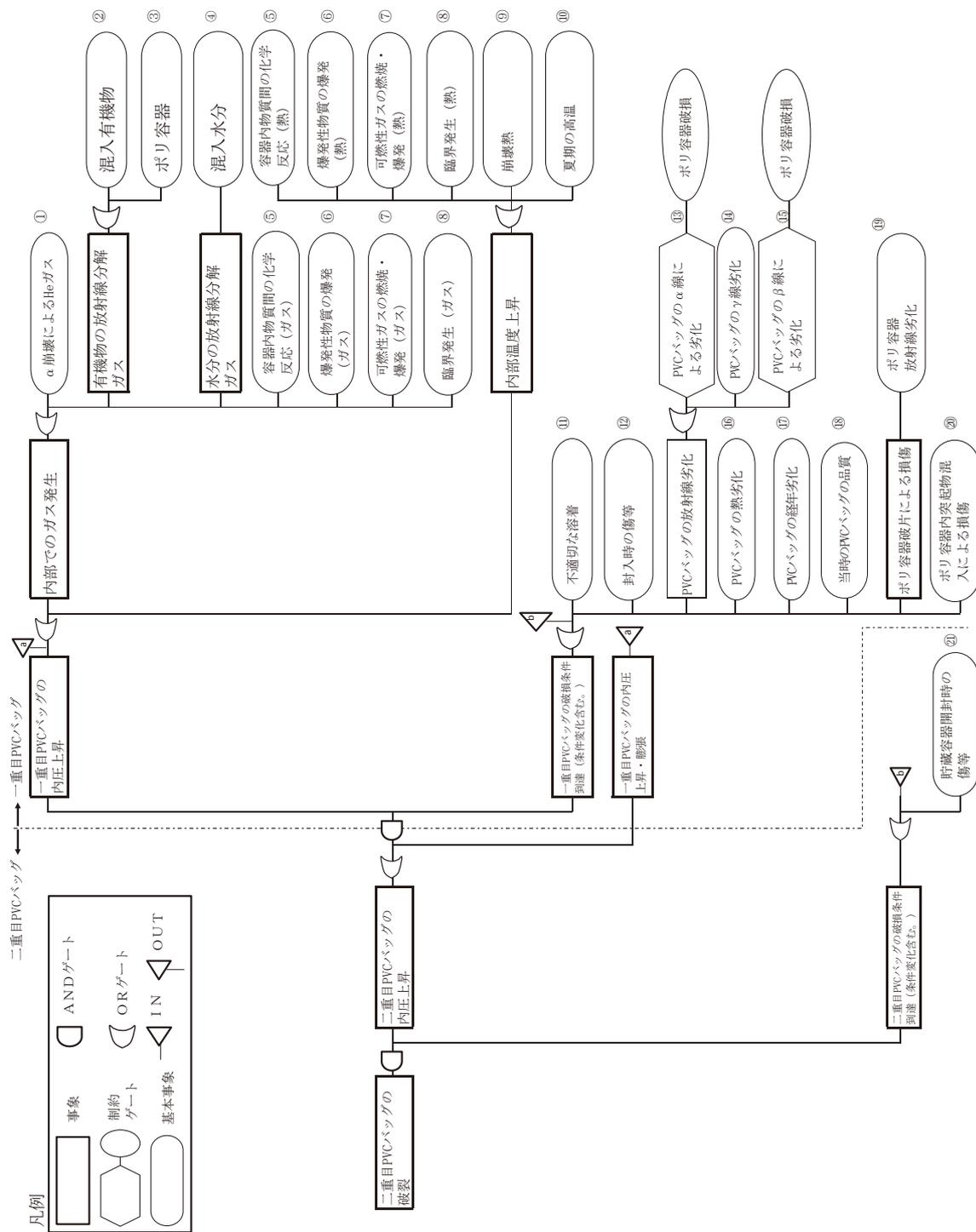


Fig. 2-14 PVCバッグ破裂に係るフォルトツリー図

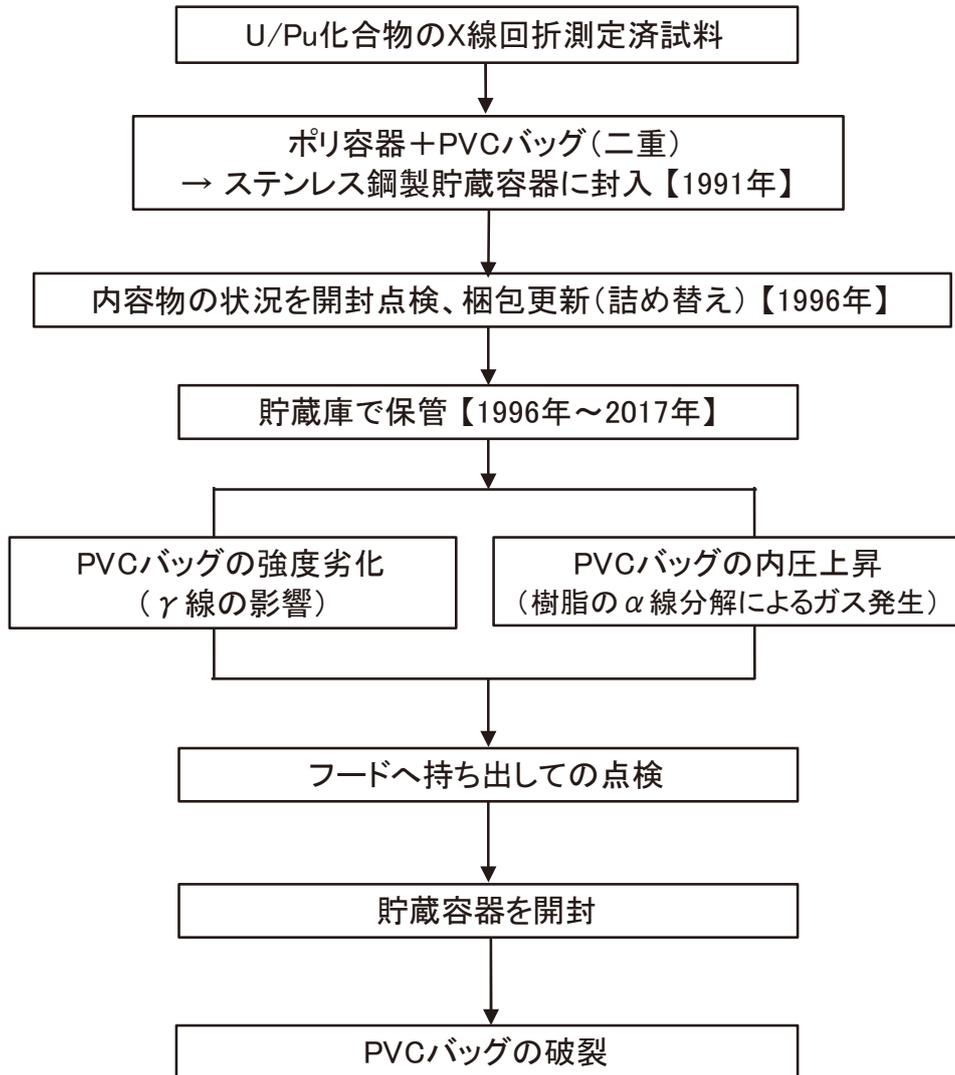


Fig. 2-15 PVC バッグ破裂に至る事象進展シナリオ

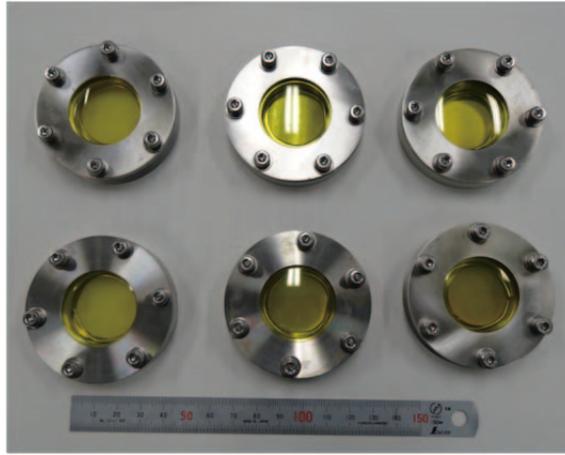


Fig. 3-1 大気照射セルの外観

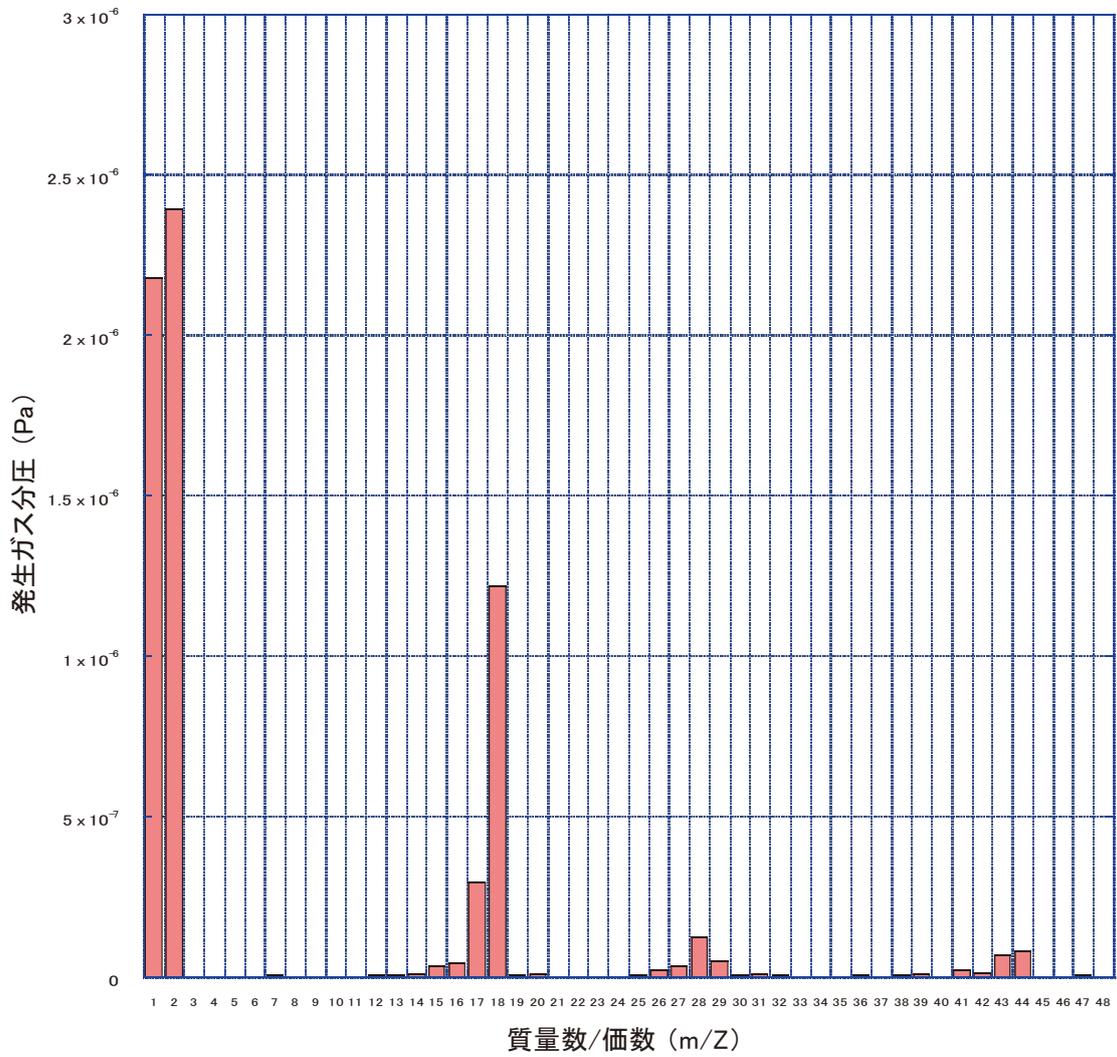


Fig. 3-2 エポキシ樹脂に対する He イオン照射時の発生ガス質量スペクトル

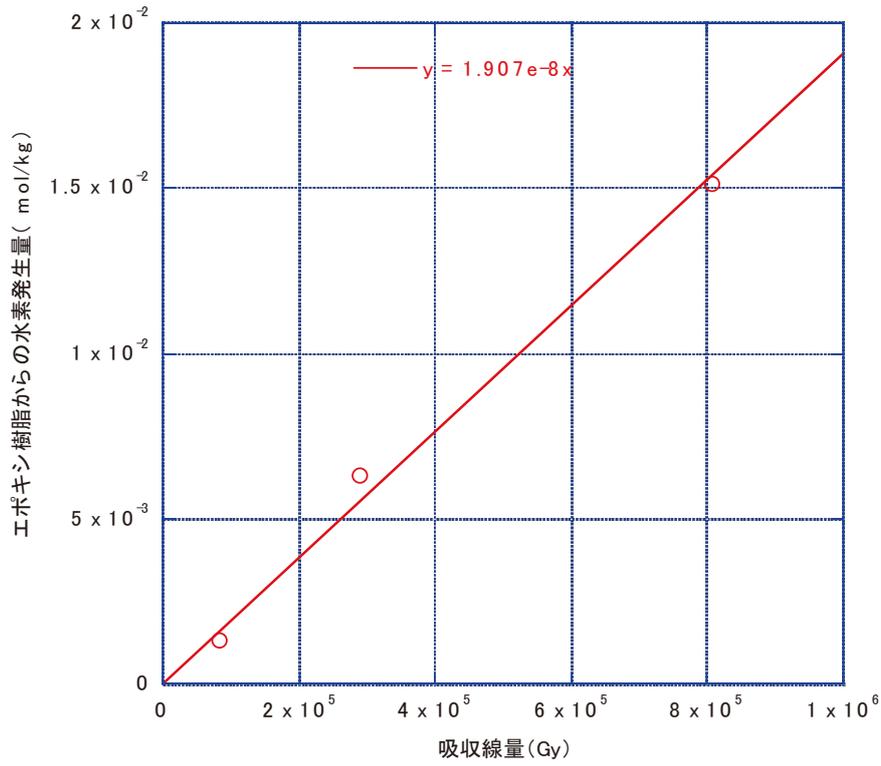


Fig. 3-3 エポキシ樹脂に対する He イオン照射時の水素ガス発生量

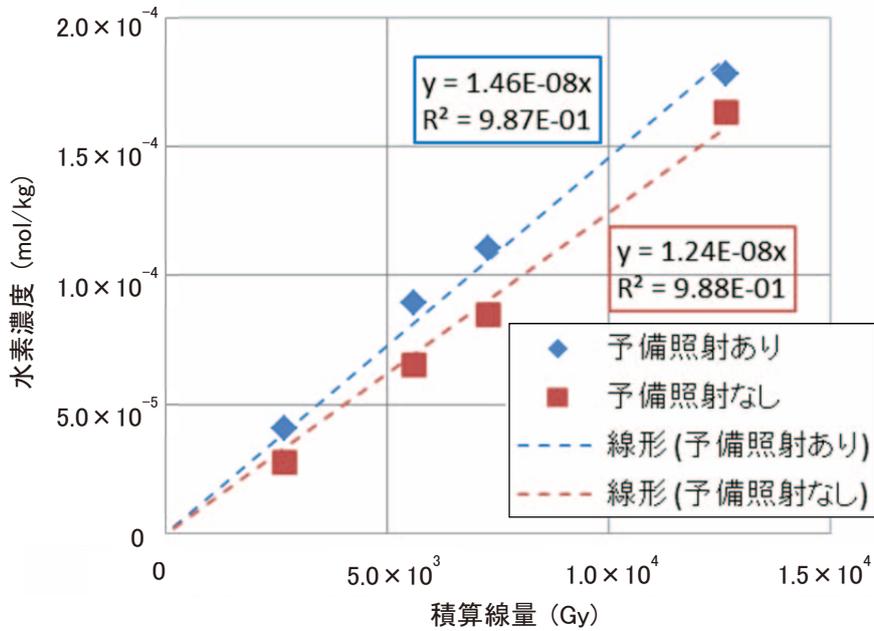


Fig. 3-4 エポキシ樹脂の γ 線照射量と水素ガス発生量の関係

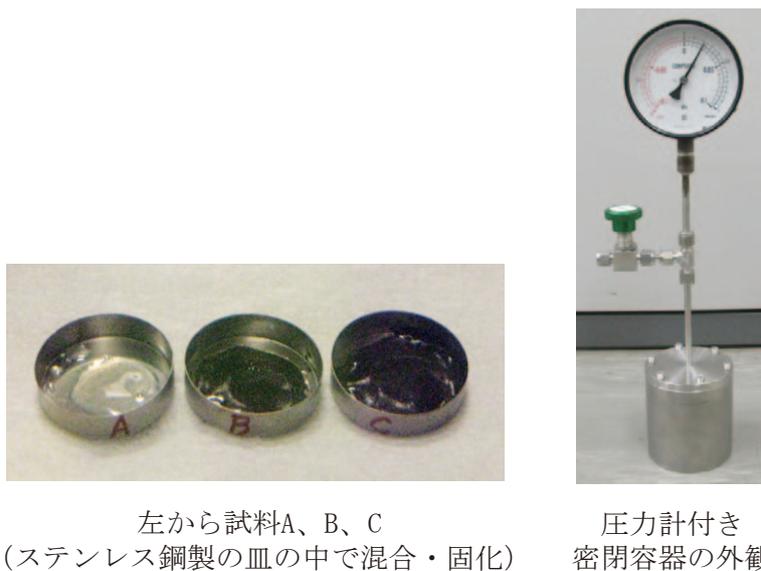


Fig. 3-5 Cm含有粉末とエポキシ樹脂の固化試料外観（左）と圧力計付き密閉容器（右）

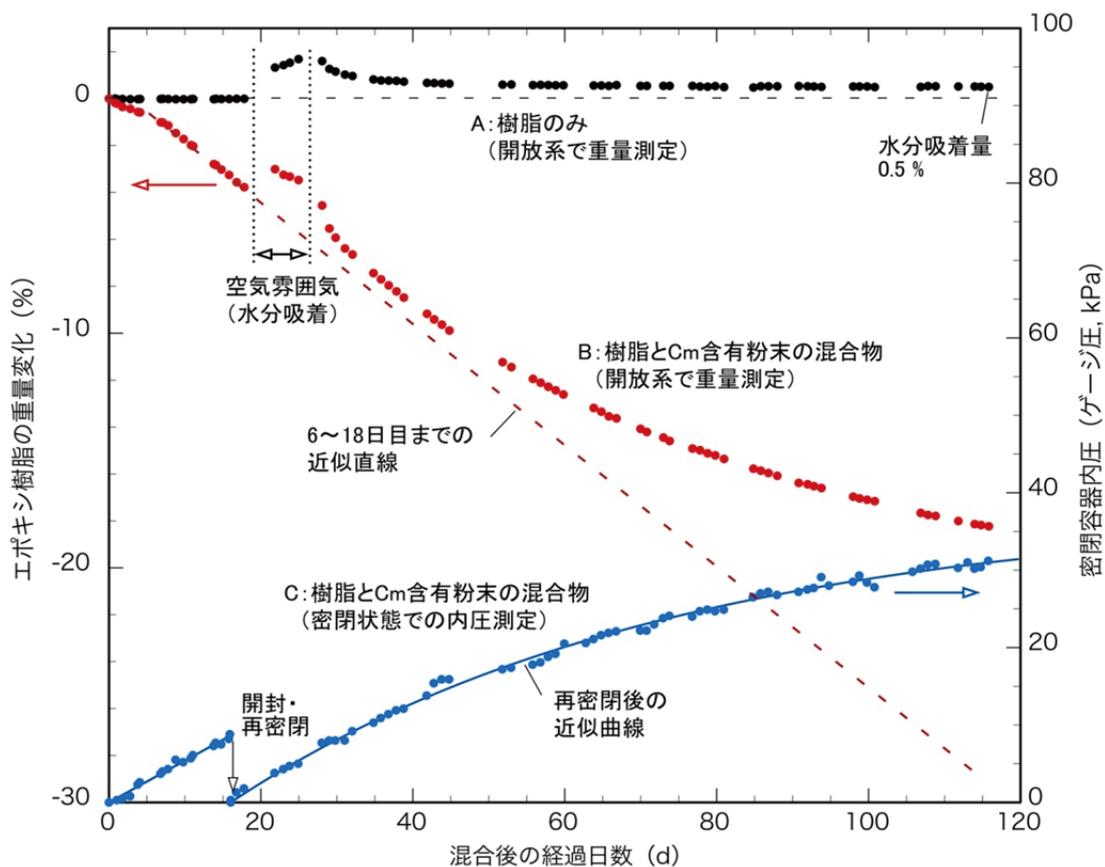


Fig. 3-6 Cm含有粉末と混合したエポキシ樹脂の重量減少と密閉状態の内圧変化

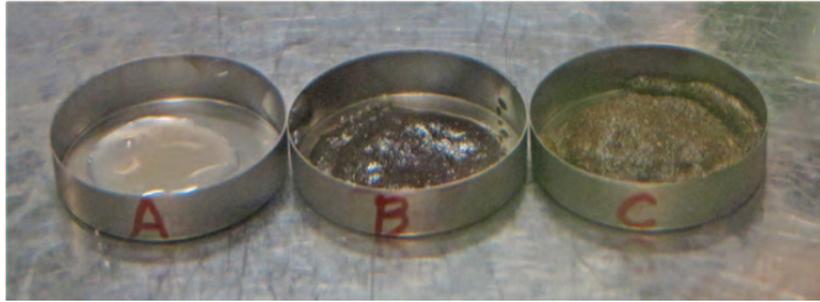


Fig. 3-7 16日目に密閉容器から取り出した試料 C（右端）と解放状態にあった試料 A、B の比較

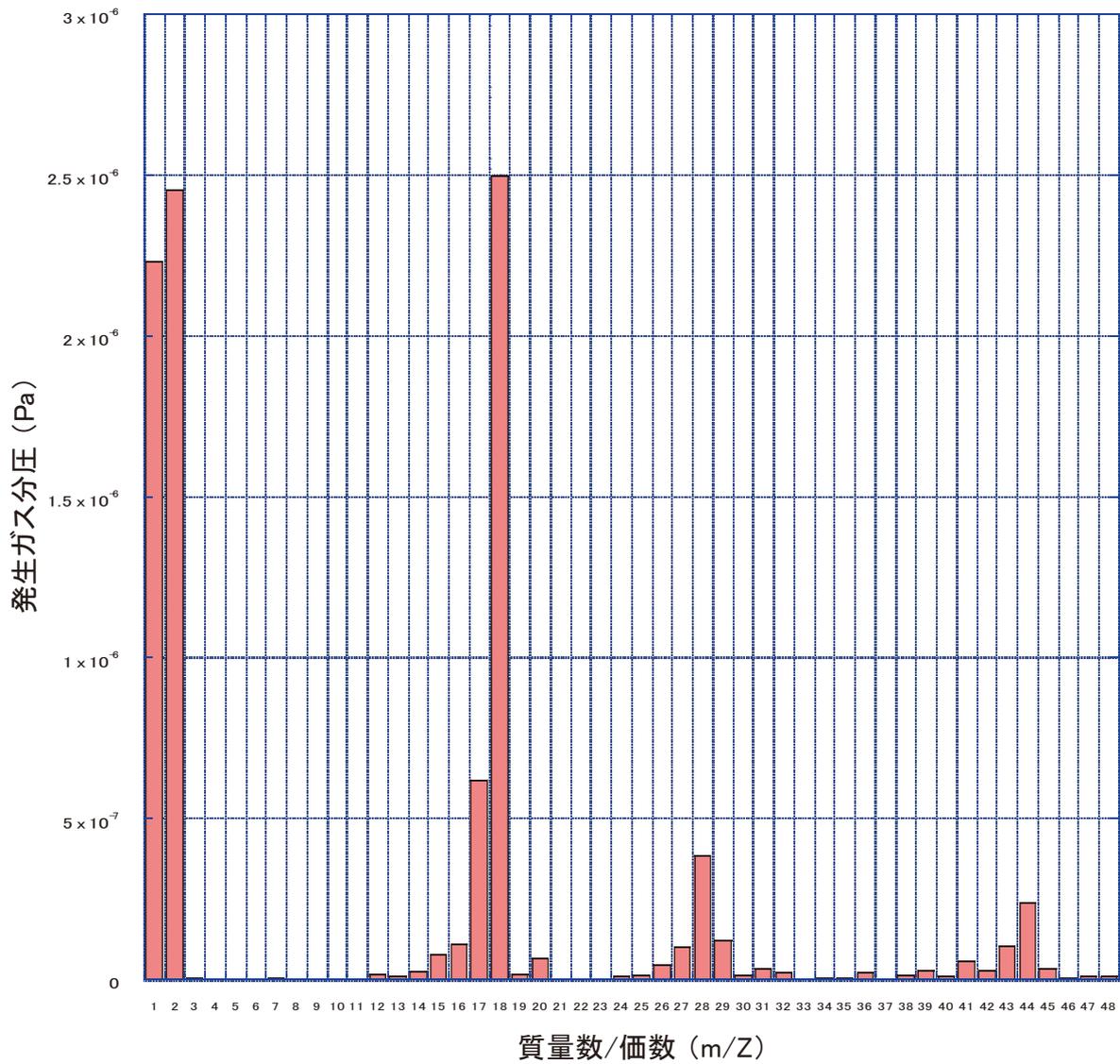


Fig. 3-8 ポリ容器試料片に対する He イオン照射時の発生ガス質量スペクトル

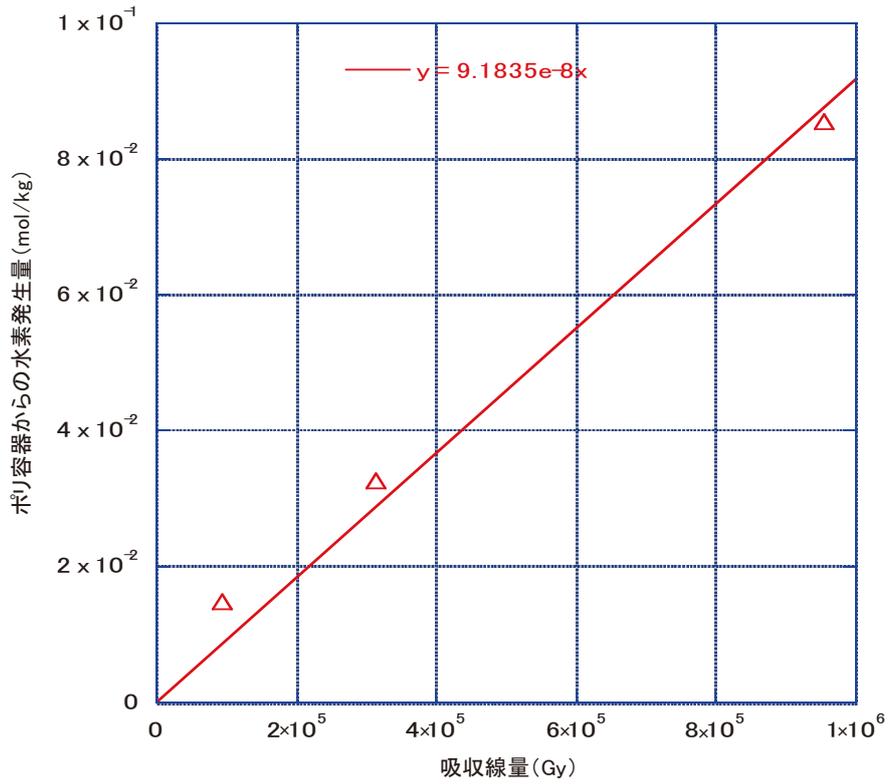


Fig. 3-9 ポリ容器試料に対する He イオン照射時の水素ガス発生量

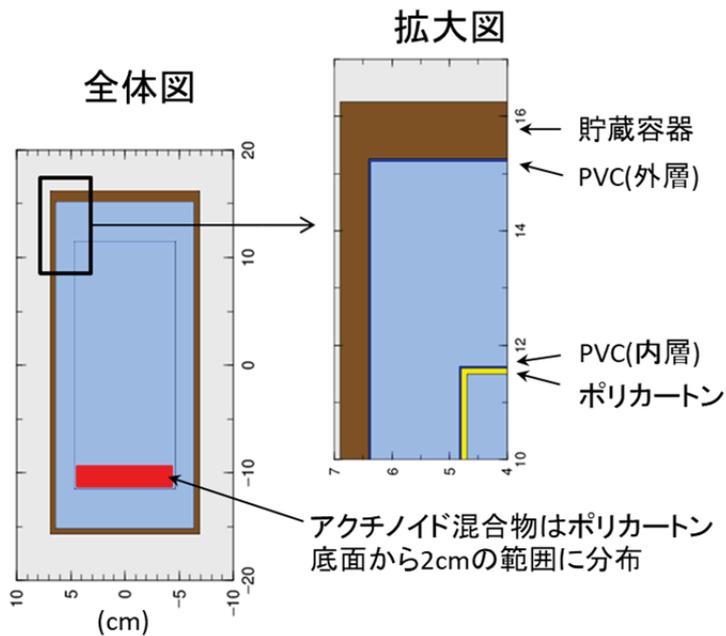


Fig. 4-1 γ 線吸収線量の計算に用いた貯蔵容器内の体系図

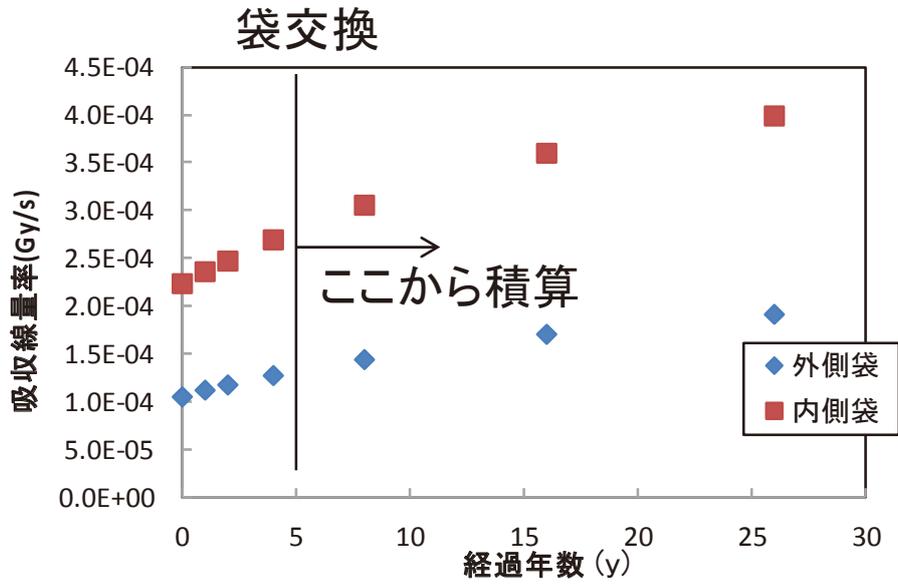


Fig. 4-2 経過年数に対する吸収線量率の変化
(図中の「袋交換」は梱包更新を意味する。)



Fig. 4-3 未照射 (左) と照射後 (右) のポリ容器の外観写真

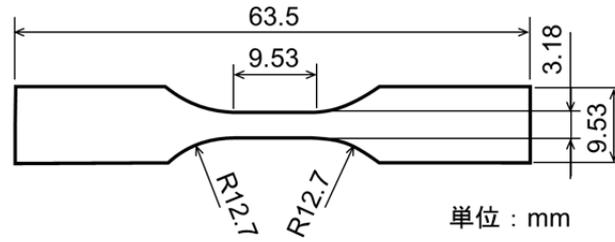
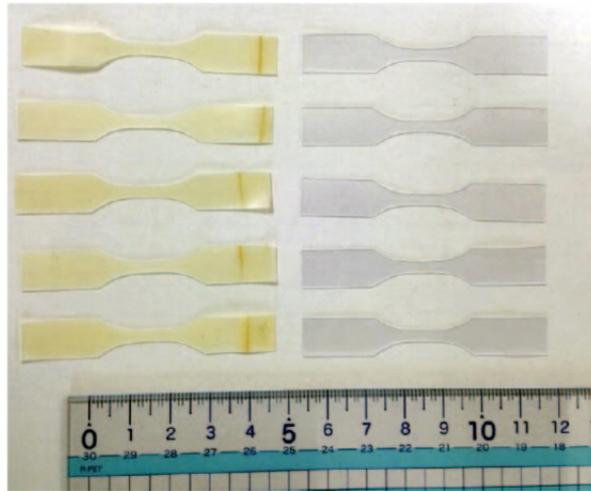
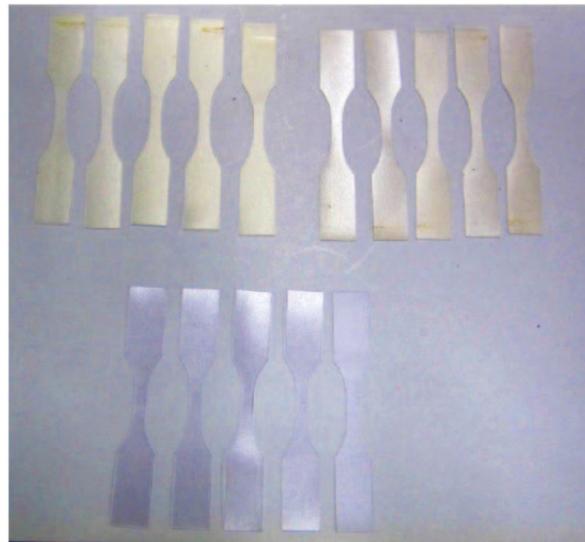


Fig. 4-4 ASTM D1822 L タイプの引張試験片の寸法図



(a) 360 kGy 照射した試料 (左側の 5 個) 及び未照射の試料 (右側の 5 個)



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

Fig. 4-5 未照射と照射後の引張試験片の外観写真

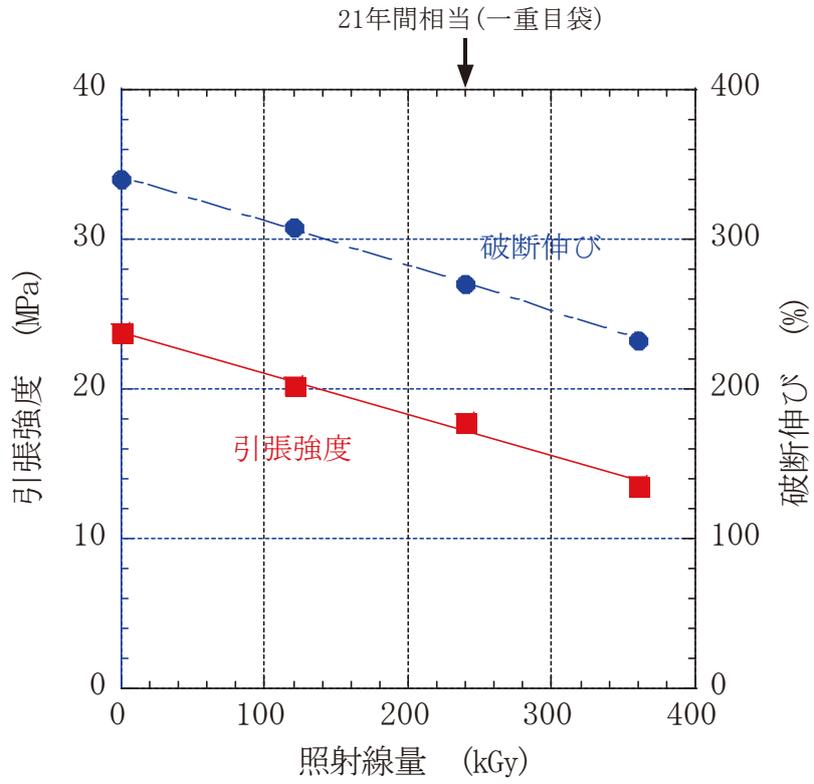


Fig. 4-6 PVC バッグの引張強度及び破断伸びの照射線量依存性

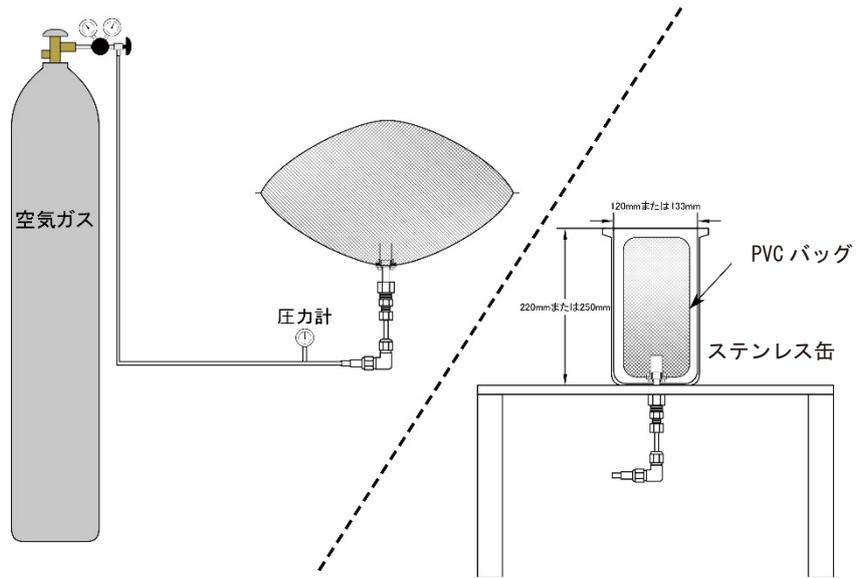


Fig. 5-1 試験体系図

(左：PVC バッグ拘束なし、右：ステンレス缶による拘束・蓋なし)

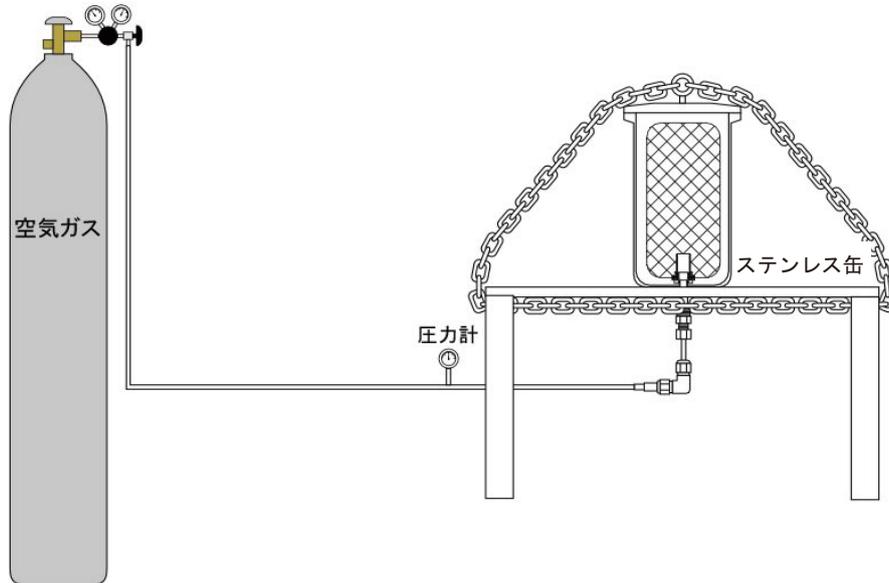


Fig. 5-2 試験体系図

(ステンレス缶及び蓋による拘束)

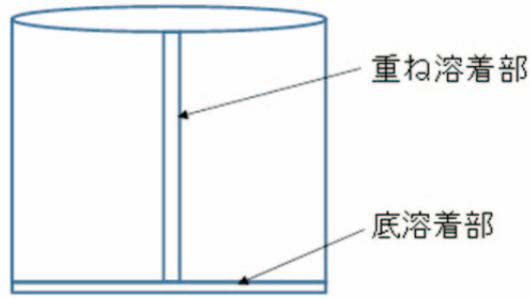


Fig. 5-3 PVC バッグの構造図

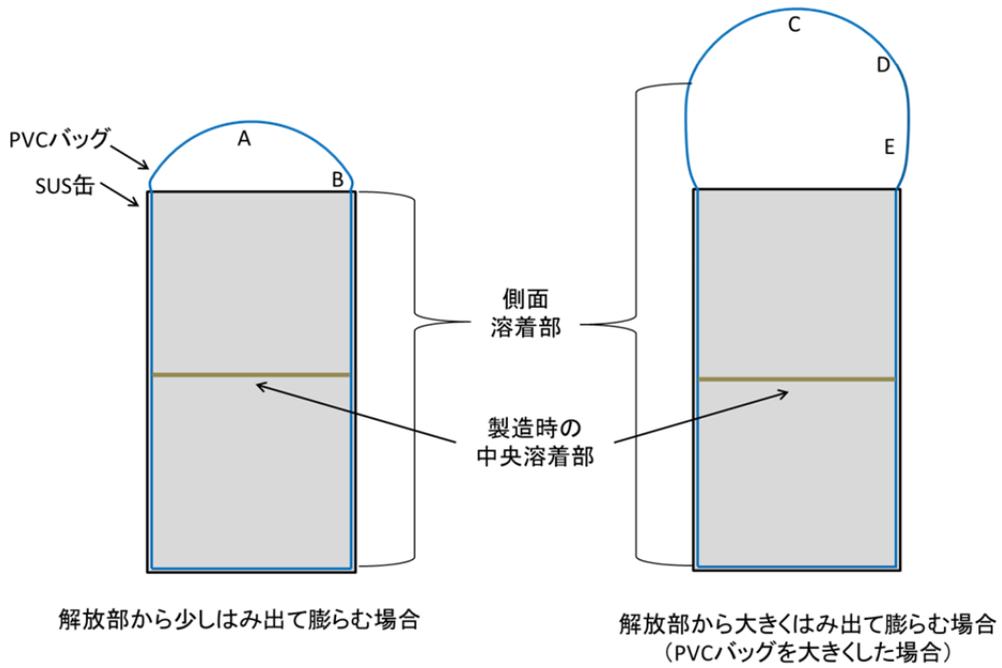


Fig. 5-4 PVC バッグ破損箇所の概略図
(記号 A~E は Table 5-1 に対応)



(a) No. 9 放射状に破損（破裂）した例

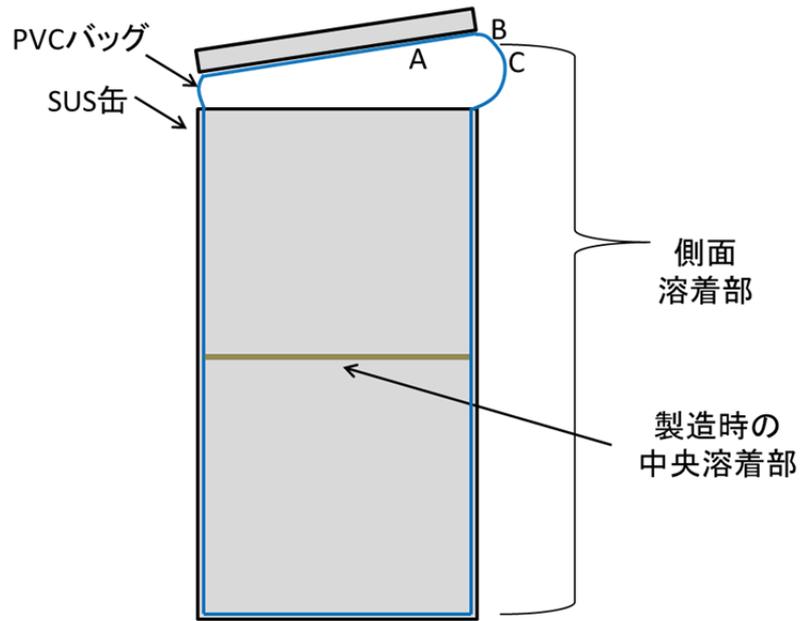


(b) No. 10 直線上に破損（破裂）した例



(c) No. 11 小穴が開いてガスが漏れた例

Fig. 5-5 未照射 PVC バッグの破損状態の例
(試験 No. は Table 5-1 に対応)



上方向を蓋に拘束されて膨らむ場合

Fig. 5-6 PVC バッグ破損箇所の概略図
(記号 A~C は Table 5-2 に対応)



(a) No. 3 小さく放射状に破損した例

Fig. 5-7 未照射 PVC バッグの膨張の様子と破損状態の例 (1/2)
(試験 No. は Table 5-2 に対応)



(b) No. 4 小さい穴が開いた例



(c) No. 5 直線上に小さく裂けた例

Fig. 5-7 未照射 PVC バッグの膨張の様子と破損状態の例 (2/2)
(試験 No. は Table 5-2 に対応)

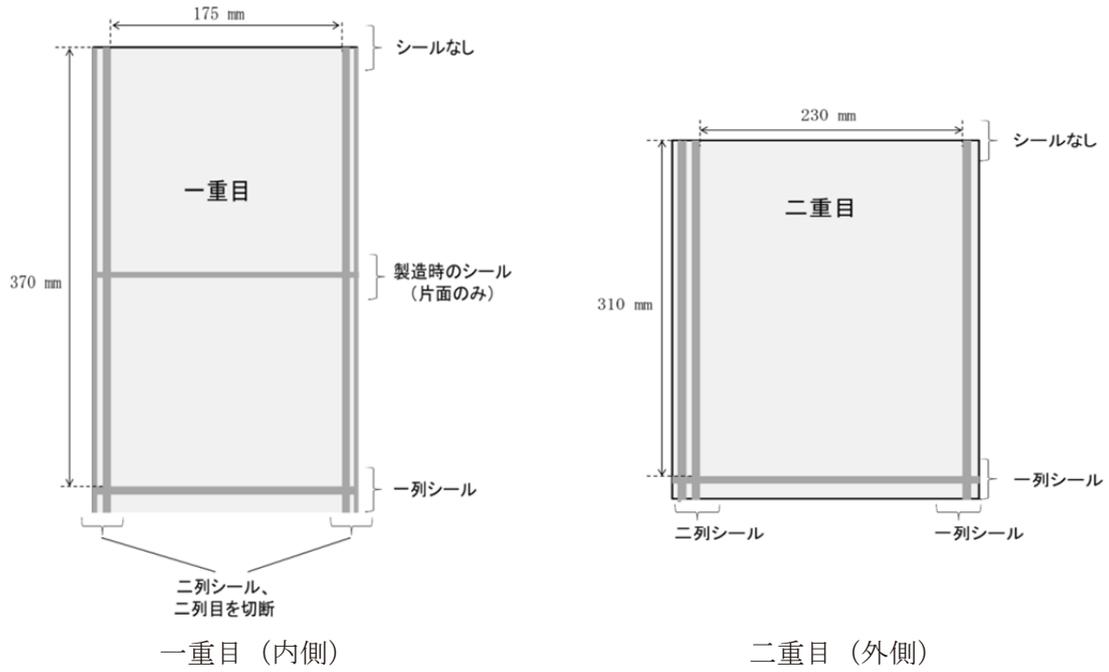


Fig. 5-8 二重梱包状態の破裂試験に用いたγ線照射済PVCバッグの概略図

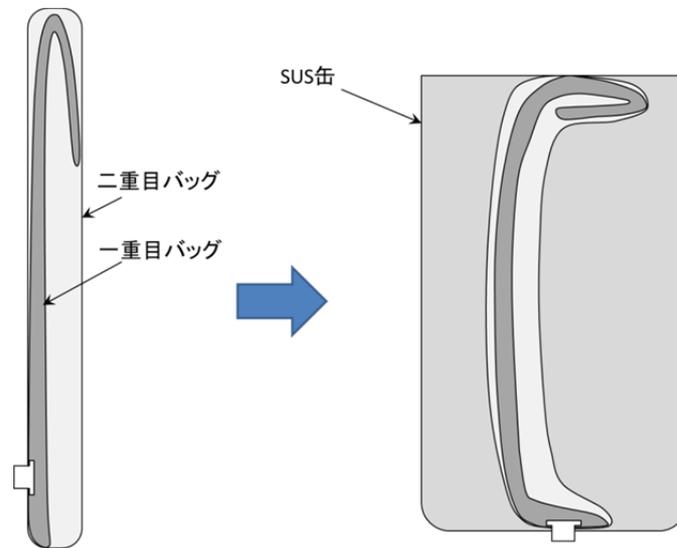
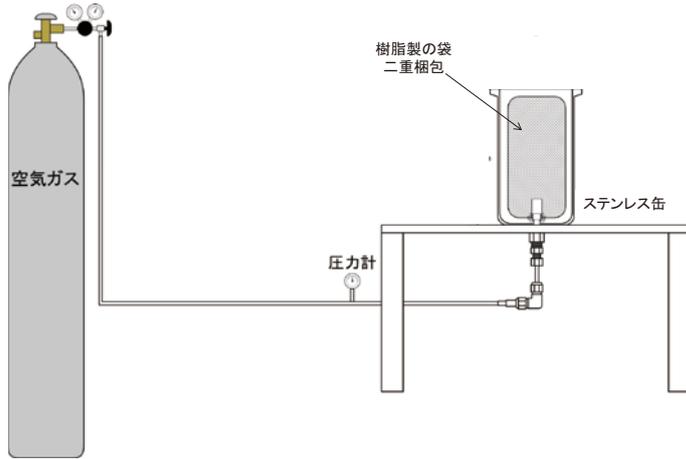
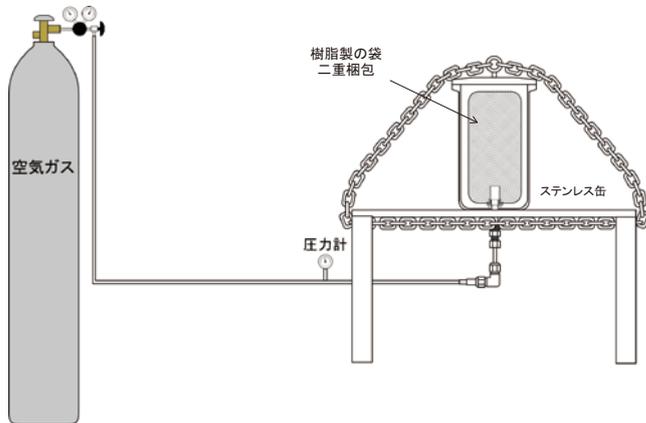


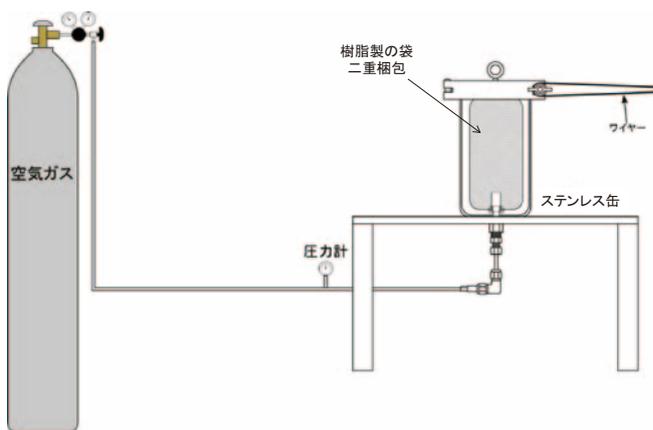
Fig. 5-9 二重梱包状態の概略図



① 二重梱包・蓋なし



② 二重梱包・蓋あり (チェーンで蓋を拘束)



③ 二重梱包・蓋あり (クランプリングで蓋を拘束・加圧後解放)

Fig. 5-10 二重梱包状態の破裂試験方法3種類の概略図と試験時の外観写真の例



(a) 破裂直前の様子



(b) 破裂後の破損部の状態

(左：二重目、右：一重目)

Fig. 5-11 照射済 PVC バッグの破裂前後の外観写真
(二重梱包、蓋なし、試験 No. 2、Table 5-4 参照)



(a) 破裂直前の外観 No. 3



(b) 破裂後の PVC バッグの破損状況 No. 1 (左：二重目、右：一重目)



(c) 破裂時に観測された煙状の凝集水分 No. 2

Fig. 5-12 照射済 PVC バッグの破裂前後の外観写真
(二重梱包、チェーンで蓋を拘束、試験 No. は Table 5-5 参照)



(a) 破裂試験後の PVC バッグの破損状態 No. 4 (左：二重目、右：一重目)



(b) 事故後の貯蔵容器内から取り出した PVC バッグの破損状態
(左：二重目、右：一重目)

Fig. 5-13 破裂試験後の照射済 PVC バッグと事故後の PVC バッグの破損状態の比較
(二重梱包、クランプリングで蓋を拘束・解放、試験 No. は Table 5-6 参照)

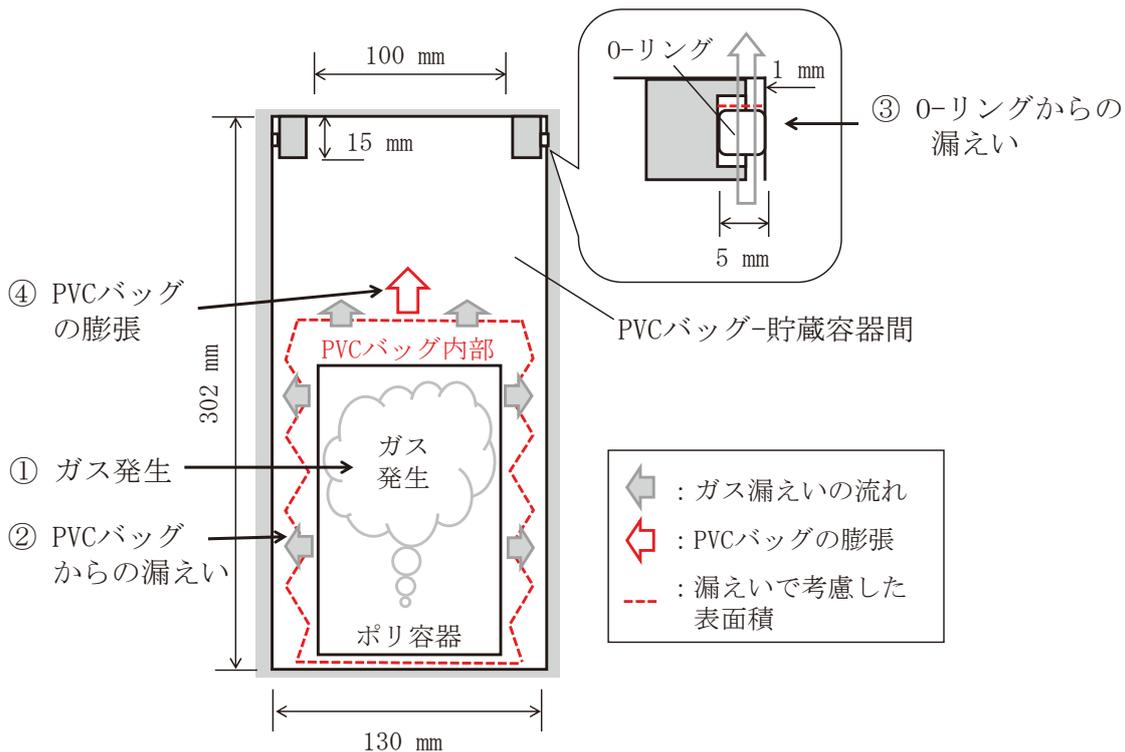


Fig. 6-1 PVC バッグ及び貯蔵容器の内圧計算モデル

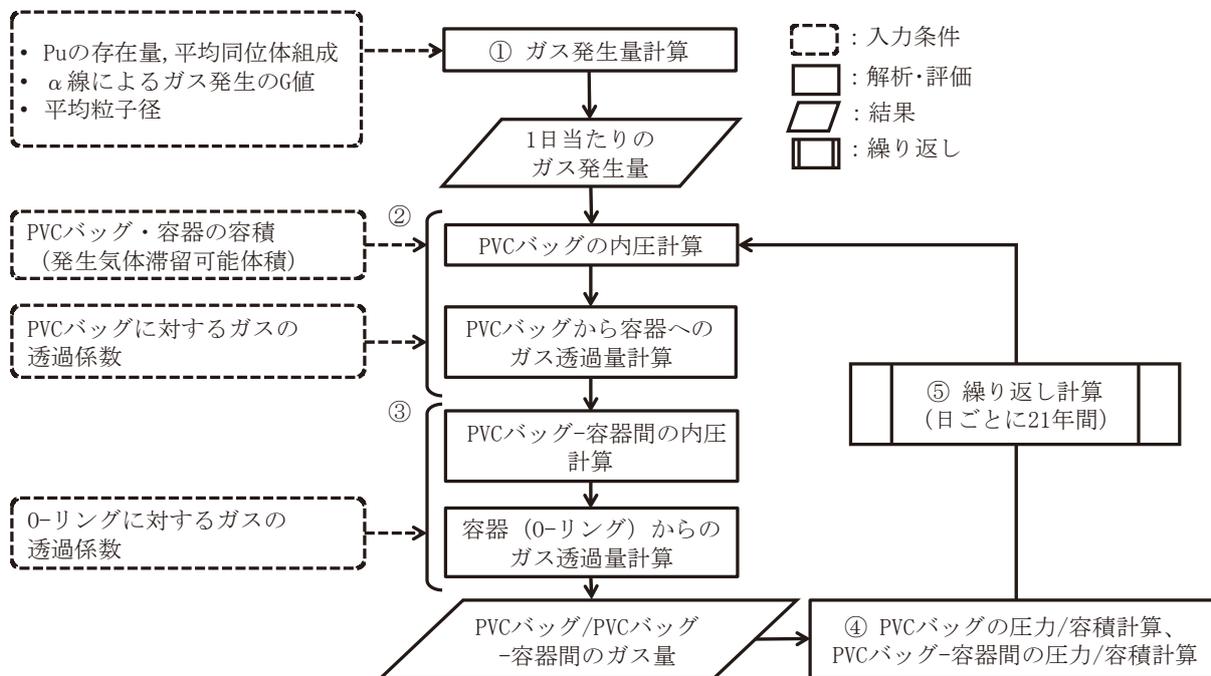


Fig. 6-2 PVC バッグ及び貯蔵容器の内圧計算手順

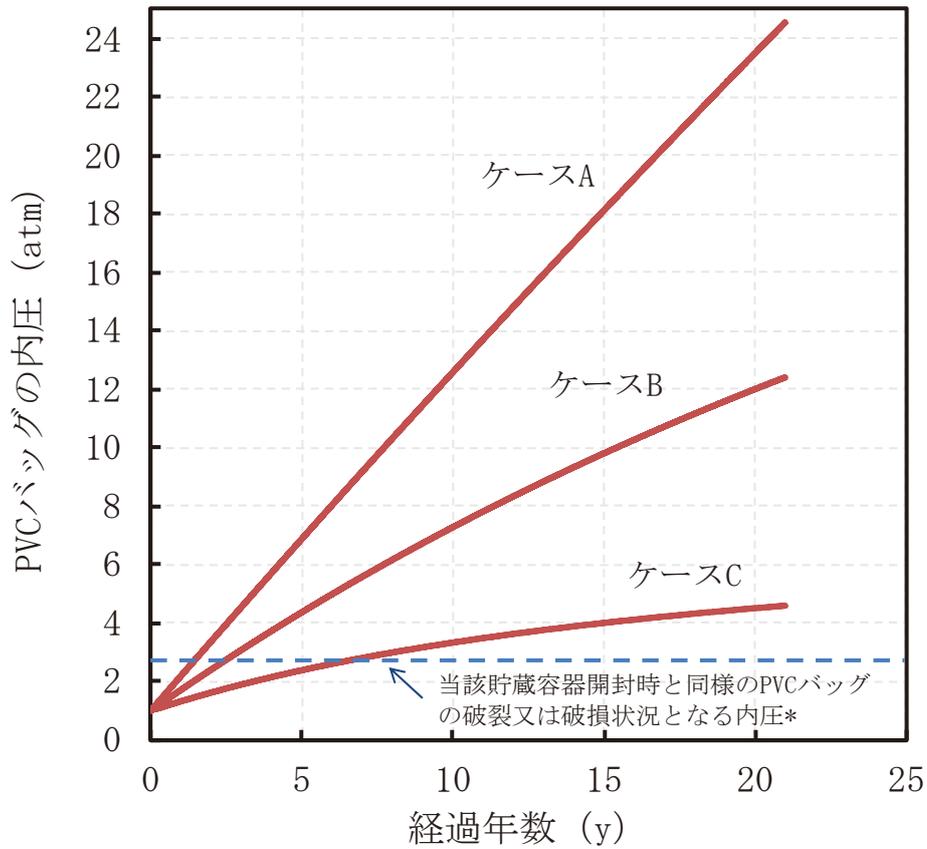


Fig. 6-3 梱包更新後 21 年間の PVC バッグ内圧経時変化の計算結果

* 破裂試験において、当該貯蔵容器開封時と同様な PVC バッグの破裂・破損状況となる内圧は、2.5 気圧程度以上であった。この破裂圧力は、梱包更新後 21 年間の貯蔵期間中の γ 線照射による袋の劣化を模擬した状態に相当する。

This is a blank page.

国際単位系 (SI)

表1. SI基本単位

基本量	SI基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光線	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
照射量	ルクス	lx	lm/m ²	m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の間には1:1の関係がある。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g) 単位シーベルト (PV, 2002, 70, 205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI組立単位		
	名称	記号	SI基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ = s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² = s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎立方メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電表面積	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ = m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ = kg s ⁻³
	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ³ s ⁻¹ mol

表5. SI接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ¹² cm) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
ストルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオト	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe _e =(10 ³ /4π)A m ⁻¹

(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858J (「15°C」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
マイクロ	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

