

JAERI-Tech

98-014



ウラン濃縮研究棟火災事故技術調査報告  
—試料分析と外容器加圧試験・解析—

1998年5月

火災事故技術調査ワーキンググループ

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1998

編集兼発行 日本原子力研究所

ウラン濃縮研究棟火災事故技術調査報告  
－試料分析と外容器加圧試験・解析－

日本原子力研究所東海研究所  
火災事故技術調査ワーキンググループ\*

(1998年4月1日受理)

平成9年11月20日に東海研究所ウラン濃縮研究棟で発生した火災事故の原因を究明するため、火災事故現場からウラン屑と飛散物を採取、分析した。また、抜け飛んだ外容器の蓋の詳細な観察を行うとともに、外容器の加圧試験及び外容器蓋の変形解析を行った。これらの分析、解析から、1) ウラン屑は、組成は粒度に依存したが、主に金属ウラン、ウラン炭化物及び酸化物から構成されていること、2) ウラン屑は、加水分解反応により、可燃性ガスであるメタン及び水素を発生すること、並びに3) ウラン屑を収納していた外容器の蓋は、可燃性ガスの爆発的な燃焼による内圧上昇により抜け飛んだ可能性が高いこと、などを明らかにした。

\*(編)赤堀光雄(融体・燃料プロセス研究室)・湊和生(燃料照射研究室)・渡部和男(分析センター)

Investigation of the Fire at the Uranium Enrichment Laboratory  
-Analysis of Samples and Pressurization Experiment/Analysis of Container-

Technical Working Group for Investigation of the Fire\*

Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received April 1, 1998)

To investigate the cause of the fire at the Uranium Enrichment Laboratory of the Tokai Research Establishment on November 20, 1997, samples of uranium metal waste and scattered residues were analyzed. At the same time the container lid that had been blown off was closely inspected, and the pressurization effects of the container were tested and analyzed. It was found that 1) the uranium metal waste mainly consisted of uranium metal, carbides and oxides, whose relative amounts were dependent on the particle size, 2) the uranium metal waste hydrolyzed to produce combustible gases such as methane and hydrogen, and 3) the lid of the outer container could be blown off by an explosive rise of the inner pressure caused by combustion of inflammable gas mixture.

Keywords : Uranium Metal, Uranium Carbide, Uranium Oxide, Hydrolysis, Fire, Hydrogen,  
Methane

---

\*(Eds.)Mitsuo AKABORI(Fuels and Molten Salts Processing Laboratory), Kazuo MINATO(Fuel Irradiation and Analysis Laboratory) and Kazuo WATANABE(Analytical Chemistry Laboratory)

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 試料採取 .....	2
2.1 第1及び2回採取 .....	2
2.2 第3回採取 .....	3
3. 試料分析 .....	7
3.1 ウラン屑の分級及び粒度分布 .....	7
3.2 ウラン屑の化学分析 .....	9
3.3 ウラン屑の炭素・酸素分析 .....	12
3.4 ウラン屑の研磨断面の観察・分析 .....	14
3.5 ウラン屑のX線回析 .....	35
3.6 ウラン屑の示差熱重量分析 .....	42
3.7 ウラン屑の水分分析 .....	49
3.8 飛散試料分析 .....	52
3.9 燃焼残留物分析 .....	54
3.10 金属缶シリコンゴムパッキンの加熱試験 .....	56
3.11 内蔵ガス分析 .....	61
3.12 加水分解生成ガスと発熱観察 .....	63
4. No.11缶の検査 .....	67
4.1 外観 .....	67
4.2 寸法変化 .....	68
5. 外容器加圧試験 .....	74
5.1 機器構成及び試験方法 .....	74
5.2 試験結果 .....	75
5.3 結言 .....	78
6. 外容器蓋変形解析 .....	89
6.1 蓋の変形 .....	89
6.2 試験結果 .....	89
6.3 シミュレーション方法 .....	89
6.4 解析結果 .....	90
6.5 結言 .....	90
7. おわりに .....	106
謝辞 .....	106

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Sampling .....	2
2.1 First and Second Sampling .....	2
2.2 Third Sampling .....	3
3. Analysis of Samples .....	7
3.1 Sieving of Uranium Metal Waste .....	7
3.2 Chemical Analysis .....	9
3.3 Carbon and Oxygen Analyses .....	12
3.4 Metallographic Examination .....	14
3.5 X-ray Diffraction Analysis.....	35
3.6 Differential Thermal Analysis/Thermogravimetry .....	42
3.7 Moisture Analysis .....	49
3.8 Analysis of Scattered Residues .....	52
3.9 Analysis of Residues of Burnt Waste Cartons .....	54
3.10 Heating Experiment of Silicon Rubber Packing for Container Lid .....	56
3.11 Analysis of Gas in Metal Container .....	61
3.12 Gas Evolution and Temperature Rise during Hydrolysis of Uranium Metal Waste	63
4. Inspection of No.11 Container .....	67
4.1 Visual Inspection .....	67
4.2 Dimensional Change .....	68
5. Pressurization Experiment of Container .....	74
5.1 Test Conditions .....	74
5.2 Results .....	75
5.3 Conclusion .....	78
6. Deformation Analysis of Container Lid .....	89
6.1 Deformation of Container Lid .....	89
6.2 Experimental Observation .....	89
6.3 Simulation Method .....	89
6.4 Results .....	90
6.5 Conclusion .....	90
7. Concluding Remarks .....	106
Acknowledgements .....	106

## 1. はじめに

平成9年11月20日、東海研究所ウラン濃縮研究棟原子蒸気実験室で火災が発生した。この火災では、レーザー原子法ウラン濃縮実験に用いた多目的長尺セルから取り出したウラン屑を収納した金属缶 11 缶のうち一つの外容器の蓋が抜け飛ぶとともに、缶のそばに置かれていたカートンボックス約 20 個が燃焼した。

直ちに、「ウラン濃縮研究棟火災事故調査委員会」が設置され、(1) 事故原因調査、(2) 連絡通報体制・機能の検証、(3) 事故の再発防止対策などに関して、検討が進められた。

事故原因調査のための技術調査ワーキンググループは、数度にわたって火災事故現場に立ち入り、火災後の状況を調査するとともに、火災発生原因の推定のために金属缶の内容物、No.11 金属缶及び抜け飛んだ外容器蓋、周辺の飛散物等を採取し、それらの分析と評価を行った。また、外容器の加圧試験及び外容器蓋の変形解析を行った。これらの調査検討結果及び導き出された「火災発生原因と事故経過の推定」に関しては、既に、平成 10 年1月5日の事故調査委員会の最終報告書 (JAERI-Review 98-011 に転載) に記載されている。

本ワーキンググループは、下記の作業従事者より構成された。

### 燃料研究部

融体・燃料プロセス研究室	赤堀光雄、小林紀昭、伊藤昭憲、岡本芳浩、 小川 徹
分析センター	渡部和男、大内 操、樋田行雄、鈴木大輔
燃料照射研究室	湊 和生、芹澤弘幸、菊地啓修、高野公秀
同位体分離研究室	若井田育夫、大場弘則

### 材料研究部

高温材料強度研究室	菊地賢司
中性子科学研究センター	日野竜太郎、麻生智一、粉川広行、石倉修一、 須々木 晃、寺田敦彦、金丸修久
ターゲット開発室	

### 原子炉安全工学部

熱水力安全研究室	柴本泰照
安全試験技術室	園部久夫
関西研究所 光量子科学センター (東海駐在)	
光量子源システム研究グループ	丸山庸一郎、鈴木庸氏

## 2. 試料採取

分析センター  
融体・燃料プロセス研究室

渡部和男、大内 操、鈴木大輔  
小林紀昭、伊藤昭憲、赤堀光雄、  
小川 徹

### 2.1 第1及び2回採取（平成9年12月3日及び11日）

火災事故の原因を解明するために、外容器蓋が抜け飛び、さらに内容器蓋が開いてウラン屑が燃えていたNo.11缶内の残存物、火災の影響が軽微であった健全缶（No.1、No.2及びNo.8）内のウラン屑及び雰囲気ガス、事故現場の飛散物等の採取を行った。

平成9年12月3日及び12月11日の作業で採取した試料は以下のものであった。

- ① No.11缶内の残存物
- ② 健全缶No.1、No.2及びNo.8のウラン屑
- ③ 健全缶No.1及びNo.8内の雰囲気ガス
- ④ 各種飛散物

#### 2.1.1 採取方法

上記採取試料のうち、健全缶内のウラン屑及び雰囲気ガスの採取においては、容器開封時の大気による試料酸化等を避けるために、金属缶の開封作業を含めたすべての作業を不活性雰囲気内で行う必要があった。そのため、ポリエチレン製グローブバッグ（概寸750×500×350mm）を用いて、Arガス雰囲気において作業を実施した（図2.1-1）。

③の健全缶内雰囲気ガスの採取には、予め真空引きしておいた真空コック付きガラス製容器（内容積約40cc）を用いた。

#### 2.1.2 採取結果

以下、試料採取の主な内容を記述する。

##### (1) No.11缶の残存物

内容器内及び内容器と外容器の間に残存していた黒色粉末を採取した（図2.1-2）。酸化したと思われるウラン屑粉末が内容器内には1/3～1/2程度が、外容器底部には数mm程度が残存していた。

##### (2) 健全缶No.1、No.2及びNo.8のウラン屑

内容器内のポリエチレン袋を開封し、No.1及びNo.8缶からは1試料、No.2缶からは2試料（No.2-1及びNo.2-2）、各々約40～80gのウラン屑を採取した。No.1、No.2及びNo.8缶は外容器と内容器とともに健全であったが、No.8缶の内容器の中のポリエチレン袋には一部溶けた形跡が認められた。

##### (3) 健全缶No.1及びNo.8内の雰囲気ガス（試料採取操作の詳細については、3.11.1を参

照のこと)

No. 1 缶については、外容器と内容器の空間、内容器内及びウラン屑入りポリエチレン袋内の3種の雰囲気ガスを、No. 8 缶では、ポリエチレン袋内の雰囲気ガスのみを採取した。なお、ウラン屑を入れていたポリエチレン袋は2重であったが、2枚一緒に開いた後、ガス採取を行った。

#### (4) 各種飛散物

事故現場の飛散物として、次の4種の採取を行った。

- ・試験装置上の黒色粉末
- ・排気装置上の焦げウェス
- ・20 l ポリ瓶蓋上の薄片
- ・No. 8 缶外容器蓋上の板状破片

上記4種の飛散物については、放射能測定又はEPMAによる元素分析を行った(3.8節参照)。

### 2.2 第3回採取(平成9年12月15日)

平成9年12月15日、現場にある燃え残りのカートンボックス燃焼残留物を詳細に調査するとともに、炭化した燃焼残留物等を採取した。

#### 2.2.1 調査内容

カートンボックス燃焼残留物は、①既に燃焼しきって炭化している部分と、②燃焼途中で消火砂をかぶった部分とが存在した。

①の部分は、カートンボックスの底部が燃え残り、床面にこびりついた状態であった。これらは燃焼したNo. 11 金属缶に比較的近いところにあり、消火砂をかぶっていなかった。炭化が進行していたため、飛散したウラン屑が存在したとしても見分けるのは困難であった。

②の部分については、砂を取り除きながら調査した。この部分には、未燃焼の折り畳まれたウェスが残っており、若干湿った状態であった。また、ポリエチレン袋、ゴム手等が熱のために溶け一つの固まりとなったものも多く認められた。これらについて丹念に調査したが、粒状のウラン屑の存在は、確認できなかった。

#### 2.2.2 採取試料

以下の試料を採取した。採取場所を図2.2-1に示す。

##### ①炭化の進んだカートンボックス

砂をかぶっていないカートンボックス燃焼残留物のうち、No. 11 缶近くのもの3試料(図中a, b, d)、約1.2 mの位置にあるもの1試料(f)、さらに、70cmの位置にあった砂をかぶったもの1試料(c)を採取した。このうち、a, b, d, 及びf試料は、底部と床面が付着していた。

②黒色を呈した濡れウエス

図eの位置にウラン屑付着の疑われるものを見出し、採取した。

③塊状となった燃焼残留物

ウエスと合成樹脂らしきものが燃焼し、約5cm大の塊状となったものを採取した。

④No. 11 缶隣の金属缶内容器蓋及びその上にあった黒色粉末

No. 11 金属缶のそばに置いてあった未使用の内容器の蓋Dには、酸化ウランと思われる黒色粉末が存在した。また、蓋にはその粉末がこびりついた状態にあった。

上記①～④の試料については、放射能測定を行いウラン量を推定した(3.9参照)。

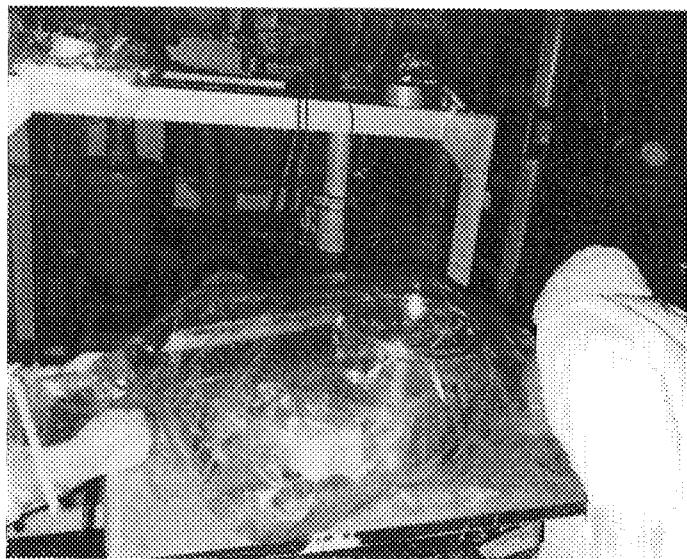


図 2.1-1 物理実験台上のグローブバック内に収納された No.1 缶及び工具類  
(グローブバック内は高純度 Ar ガスにより置換されている)

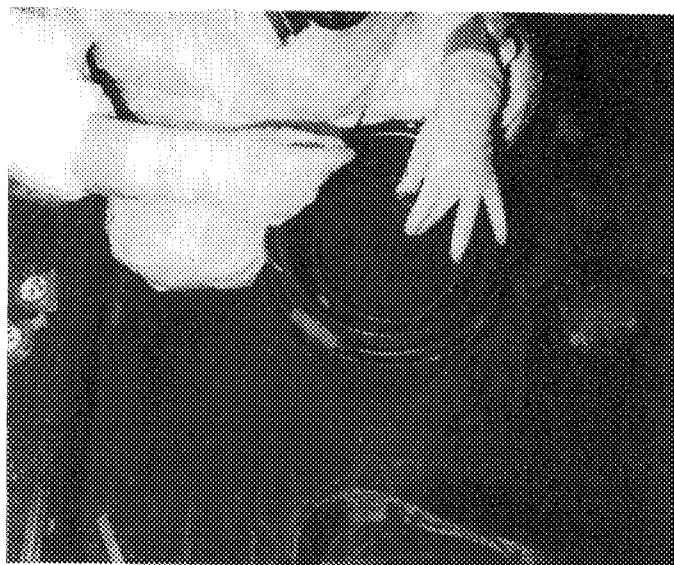


図 2.1-2 No.11 缶内容器内の残存ウラン屑採取

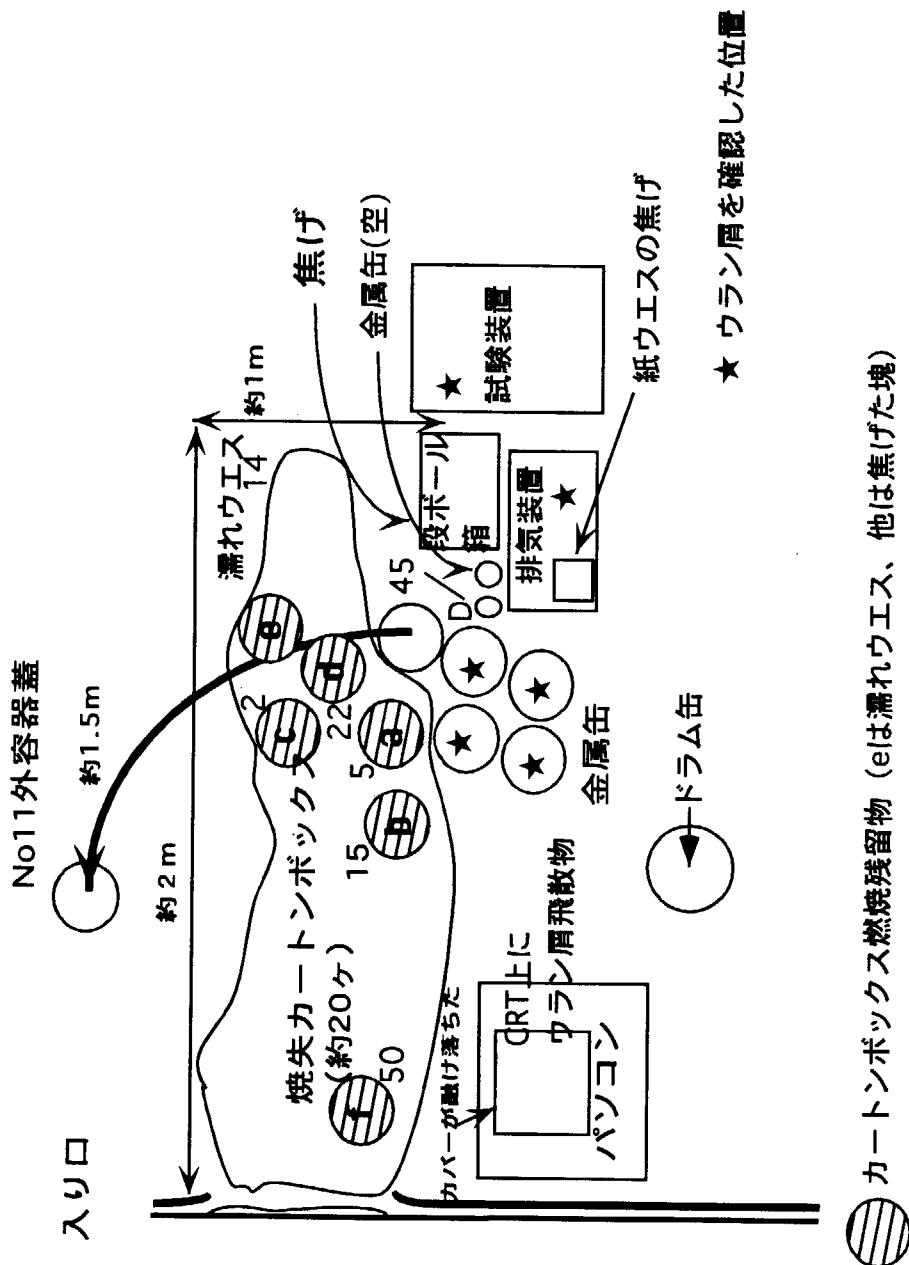


図 2.2.1 採取した燃焼残留物 (a~f及びD)

### 3. 試料分析

#### 3.1 ウラン屑の分級及び粒度分布

融体・燃料プロセス研究室  
燃料照射研究室

伊藤昭憲、赤堀光雄  
芹澤弘幸、菊地啓修、高野公秀、  
湊 和生

採取した健全缶内のウラン屑は、非常に微細な粉末から 10mm 以上の塊状のものまで、相当広い粒度分布を持つことから、その化学的性質は、ウラン屑の粒度に大きく影響されることが考えられた。そこで、ウラン屑の粒度分布を測定するとともに、粒度分けしたウラン屑試料を各種分析に供した。

##### 3.1.1 方法

採取したウラン屑の分級及び粒度分布測定は、ステンレス鋼製の標準篩を用い、Ar 雰囲気の不活性グローブボックス内（雰囲気中酸素・水分濃度：10ppm 未満）で行った。用いた篩の呼び寸法は、840、500、297、210、105 及び  $53\mu\text{m}$  の6種であった。

##### 3.1.2 結果

表 3.1-1 に各採取ウラン屑についての粒度別重量割合を示す。また、図 3.1-1 に採取ウラン屑の粒度分布を示す。どの容器のウラン屑も、粒度が  $840\mu\text{m}$  以上の粗い成分が最も多く、No. 2 及び No. 8 缶のウラン屑では 70～90% となっている。一方、No. 1 缶のウラン屑は比較的粗い成分が少なく（約 40%）、 $53\mu\text{m}$  以下の微細成分が多い（約 20%）ことが分かった。これは、No. 1 缶のウラン屑では微細なウラン酸化物粉末の割合が高く、金属等の粗い成分が少ないと考えられる。

表 3.1-1 採取ウラン屑の分級後の重量割合

粒 度	No.1	No.2 - 1	No.2 - 2	No.8
	重量割合 (%)	重量割合 (%)	重量割合 (%)	重量割合 (%)
1 840 $\mu\text{m}$ 以上	39.7	70.1	89.8	88.6
2 500~840 $\mu\text{m}$	9.2	5.0	2.0	3.5
3 297~500 $\mu\text{m}$	8.5	5.1	1.4	3.7
4 210~297 $\mu\text{m}$	4.5	4.9	0.7	0.9
5 105~210 $\mu\text{m}$	9.0	8.4	1.3	1.9
6 53~105 $\mu\text{m}$	7.3	3.7	1.1	0.6
7 53 $\mu\text{m}$ 以下	21.8	2.8	3.7	0.8
試料重量 (g)	15.023	77.723	76.264	62.140

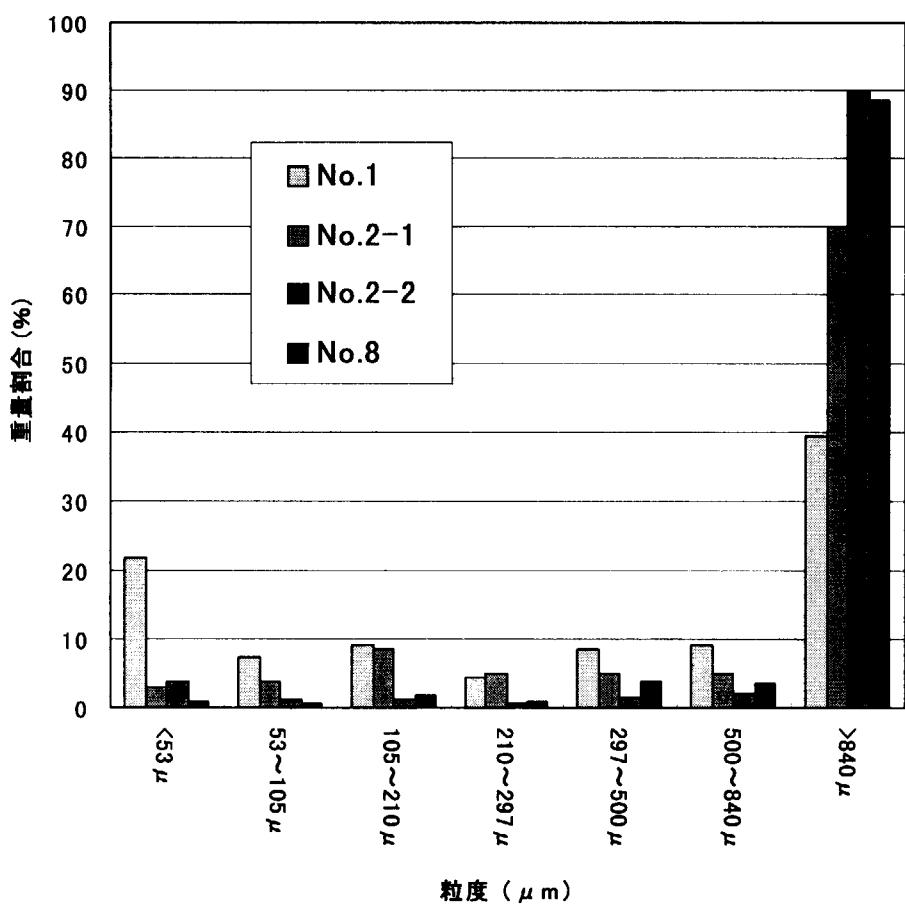


図 3.1-1 採取ウラン屑の粒度分布

### 3.2 ウラン屑の化学分析

分析センター

樋田行雄、鈴木大輔、渡部和男

回収されたウラン屑には、長尺セル構造材料及びこれまでの実験履歴から推察して各種の金属元素が含まれると考えられた。そこで、試料を湿式酸化分解して溶液とした後、ICP発光分析法により金属元素を定量した。

#### 3.2.1 方法

ウラン屑試料 0.1g を硝酸及び塩酸あるいは硝酸及び硫酸にフッ化水素酸を加えて分解した後、不溶性残さをろ紙でろ過して取り除いた。溶液を 1 M 硝酸で希釈定容とした後、ICP 発光分析法（島津製作所 ICP 発光分析装置 ICPS-2000 型を使用）によりウラン及び金属元素を測定した。測定波長としては、ウランの発光スペクトルによる干渉の影響が小さいスペクトル線を選んだ。No. 11 金属缶残存物については、不溶性残さ中のケイ素含有量をろ紙ごと灰化した後、アルカリ融解-吸光光度法により定量した。

#### 3.2.2 結果

##### (1) No. 11 金属缶中の燃焼残存物の組成

燃焼した No. 11 金属缶中の燃焼残存物の元素組成分析結果を表 3.2-1 に示す。ウランの分析値は、ばらついているが、これは、試料分解時に、不溶性残さが無視できない程度存在するためと考えられる。No. 11-5 試料に関しては、不溶性残さの重量が測定でき、31mg であった。表中にはこれを除いて計算した組成を示すが、八酸化三ウラン( $U_3O_8$ )組成とほぼ一致しており、X線回折測定結果と良く整合している。なお、表中の No. 11-5 試料の不溶性残さは、ウラン濃縮実験に用いた金属タンゲステンであり、本分析に用いた混酸では、一部しか溶解しないことが判明した。

##### (2) ウラン屑の組成

No. 1、2 及び 8 金属缶中の元素組成分析結果を表 3.2-2 に示す。No. 1 金属缶中の屑に関しては、分級前のもので、試料の粉末の部分を量り取った。いずれの試料も、使用した酸では分解困難な黒色の残さが多く認められた。この残さについてろ過後、EPMA 測定を行ったが、金属元素等の存在は確認されなかった。これらの残さは、長尺セルの耐熱構造材として使用された黒鉛であると推察する。ウラン組成結果は、残さの重量補正をしていないので、若干のばらつきが認められる。しかし、分級した試料では、粒度が小さくなるほど酸化が進んでいる傾向が認められる。このことは、X線回折等による測定結果と良く一致するものである。

表 3.2-1 No.11 缶中のウラン屑燃焼残留物の元素組成

分析番号	元素 (測定波長, nm)						ケイ素*3
	ウラン 367.1	鉄 238.3	ニッケル 352.5	クロム 205.6	銅 224.8	タンクスチレン 207.9	
No.11-1	81	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0.1	<0.1
No.11-2	81	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0.1	<0.1
No.11-3	87	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0.1	n.d.
No.11-4	81	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0.1	0.1
No.11-5*1	87	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0.7	n.d.
No.11-6 *2	83	<0.1	<0.1	<0.1	0.1	0.7	n.d.

\*1不溶性残さの重量を組成の計算から除外

\*2 硝酸-硫酸-フッ化水素酸を用いて分解

\*3 吸光光度法

n.d. 定量せず

表 3.2-2 健全缶中のウラン屑の金属元素組成

試 料	分析番号	元素 (測定波長, nm)						(%)
		ウラン 367.1	鉄 238.3	ニッケル 352.5	クロム 205.6	鋼 224.8	チタン 336.1	
No.1 缶 ウラン屑 分級なし	No.1-1	84	0.4	<0.1	0.2	0.5	n.d.	
	No.1-2	81	0.2	<0.1	0.1	0.1	n.d.	
No.2 缶 297-500 μm	No.2-1	92	0.9	0.2	0.2	0.1	<0.1	
	No.2-2	92	1	0.2	0.2	<0.1	<0.1	
<53	No.2-3	86	0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	
	No.2-4	87	0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	
No.8 缶 105-210 μm	No.8-1	89	1	0.1	<0.1	<0.1	<0.1	
	No.8-2	91	1	0.2	<0.1	<0.1	<0.1	
n.d. 定量せず								

### 3.3 ウラン屑の炭素・酸素分析

融体・燃料プロセス研究室

伊藤昭憲、赤堀光雄

火災事故の原因を解明するためには、健全容器内のウラン屑の性状、特に組成を知る必要がある。そこで、採取ウラン屑に含有する炭素・酸素量を測定し、ウラン炭化物及び酸化物の組成割合を評価した。

#### 3.3.1 方法

分級された採取ウラン屑の炭素・酸素分析を、炭素については酸素気流中燃焼（1250°C）により発生する CO<sub>2</sub> ガスの赤外線吸収法（堀場製作所製 EMIA-110）により、酸素については黒鉛坩堝及び He 気流中高温加熱による不活性ガス溶融法で抽出された CO ガスの非分散赤外線吸収法（堀場製作所製 EMGA-550）により測定した。測定に供したウラン屑量は約 20～160mg で、Ar 霧囲気不活性グローブボックス内（霧囲気中酸素・水分濃度：数 ppm 以下）で Sn 製試料セルに密封したものを分析試料とした。炭素・酸素分析とともに粒度別に 3 回測定し、平均値を求めた。

#### 3.3.2 結果

表 3.3-1 に分級したウラン屑中の炭素及び酸素量を示す。炭素濃度は、ウラン屑の粒度にあまり依存せず約 2～6wt% の範囲にあり、さらに粒度毎の重量割合で平均した炭素量は No. 1、No. 2(-1) 及び No. 8 缶のウラン屑で各々約 3.9、2.6 及び 4.3wt% であった。一方、酸素濃度は、ウラン屑の粒度に大きく依存し、微細な粒度ほど高くなることが明らかである。粒度毎の重量割合で平均した酸素量は、No. 1、No. 2(-1) 及び No. 8 缶で各々約 3.6、7.8 及び 1.9wt% であり、ウラン屑により大きく異なることが分かった。

次に、得られたウラン屑中の炭素及び酸素濃度からウラン屑中の酸化物、炭化物及び金属の組成割合をおおよそ推定した。組成推定においては、ウラン屑中のウラン量、遊離炭素量、水分量、酸化物及び炭化物組成等を仮定した。ウラン量は、3.2 節の化学分析で得られたウラン量から、遊離炭素量については、粒度が 105～210 μm 及び 53 μm 以下の微細成分にのみ約 1wt% が、水分量については、3.7 節に示される水分量が同じ微細成分にのみ含まれるとした。また、ウラン屑中には、炭化物が UC 及び UC<sub>2</sub>、酸化物が UO<sub>2</sub> 及び U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>、各々等量存在すると仮定した。表 3.3-2 に採取ウラン屑の推定組成を示す。表 3.3-1 の炭素・酸素濃度及び 3.1 節の採取ウラン屑の粒度別重量割合から、No. 1 缶ウラン屑で約 50% の炭化物、20～30% の酸化物及び金属成分から成っていると評価された。組成割合はウラン屑の粒度に大きく依存し、酸化物成分は微細なほど、金属成分は粗いほど高くなっている。一方、炭化物成分は中間の粒度で多く、微細及び粗い粒度で少ない傾向があった。

表 3.3-1 採取ウラン屑の炭素・酸素濃度

ウラン屑容器 No.	粒度	炭素濃度 (wt%)	酸素濃度 (wt%)
No.1	1 >840 $\mu\text{m}$	3.5	0.3
	3 297~500 $\mu\text{m}$	4.6	2.4
	5 105~210 $\mu\text{m}$	6.2	4.3
	7 <53 $\mu\text{m}$	3.4	9.9
No.2-1	2 500~840 $\mu\text{m}$	3.3	1.5
	5 105~210 $\mu\text{m}$	2.3	10.4
	7 <53 $\mu\text{m}$	2.0	11.5
No.8	2 500~840 $\mu\text{m}$	4.0	0.6
	5 105~210 $\mu\text{m}$	4.9	2.8
	7 <53 $\mu\text{m}$	4.1	5.4

表 3.3-2 採取ウラン屑の推定組成

缶 No.	粒度 <sup>*1</sup>	U (wt%)	遊離炭素 (wt%)	水分 (wt%)	酸化物 (wt%)	炭化物 (wt%)	金属 (wt%)
No.1	1	84	0	0	<5	40~50	50~60
	3	84	0	0	10~20	50~60	20~30
	5	84	1	0.2	25~35	60~70	<5
	7	80	1	0.2	60~70	25~35	<5
No.2-1	2	92	0	0	5~15	40~50	35~45
	5	86	1	0.13	70~80	15~25	5~15
	7	86	1	0.13	75~85	10~20	<5
No.8	2	90	0	0	0~10	50~60	30~40
	5	90	1	0.05	20~30	50~60	20~30
	7	90	1	0.05	40~50	40~50	10~20

\*1 粒度 1:>840  $\mu\text{m}$ 、2:500~840  $\mu\text{m}$ 、3:297~500  $\mu\text{m}$ 、5:105~210  $\mu\text{m}$ 、7:<53  $\mu\text{m}$

### 3.4 ウラン屑の研磨断面の観察・分析

融体・燃料プロセス研究室

伊藤昭憲、赤堀光雄

金属缶に収納されているウラン屑の組成、形状及びおよその存在比を把握する目的で、採取ウラン屑を樹脂に埋め込み、研磨後投影機及び光学顕微鏡により形状等を観察した後、波長分散型EPMA（電子線マイクロアナライザ）を用いて、構成元素の分析を行った。

#### 3.4.1 方法

分級後のウラン屑試料をアルゴンガス置換した簡易グローボックス中でエポキシ樹脂に埋め込んだ。No.1 缶の試料からは粒度  $840 \mu\text{m}$  以上（粒度1）、 $297\sim500 \mu\text{m}$ （粒度3）、 $105\sim210 \mu\text{m}$ （粒度5）及び  $53 \mu\text{m}$  以下（粒度7）の4種を、No.2 缶からは粒度1、3及び5の3種を、またNo.8 缶からは粒度3の1種を試料として選んだ。No.2 及び No.8 缶試料の埋め込みは、No.1 缶試料の観察・分析結果がほぼ判明した後に行い、缶ごとの差異を調べることを目的に、一部の粒度の試料に限定した。粒度1の  $840 \mu\text{m}$  以上の粗いウラン屑試料の場合は、埋め込み用型に試料を入れた後に樹脂を注入し、他の粒度のものは型に樹脂を約半分注入したのちに試料を入れ、よく混合した後樹脂を追加した。なお、粒度7の  $53 \mu\text{m}$  以下の非常に細かいウラン屑試料の場合、一部の細かい粉末は固化するまで（数時間）に型の底面まで到達しなかった。

粗研磨は、#400、800、1200 のSiC研磨紙に水を注いで順次行い、仕上げ研磨には  $3 \mu\text{m}$  のダイヤモンドペーストとアルコール系伸展液を用いた。研磨の各段階で水を使用して洗浄を行った。

研磨断面の観察を投影機及び光学顕微鏡を用いて行った後、試料面にAuを蒸着し、EPMAにより個々のウラン屑粒子の組成を調べた。分析の結果、ウラン炭化物が多く含まれていることが判明した。ウラン炭化物は特徴あるエッチング組織を示すことが知られており、No.1 缶試料についてはAu蒸着を除去した後にエッチングを行い、その組織を観察した。エッチングは、濃硝酸、酢酸、水（1:1:1）の混合溶液を用いて、室温で約40～120秒間行った。

#### 4.4.2 観察及び分析結果

##### （1）No.1 缶ウラン屑

4種に分級したウラン屑の研磨断面観察写真を図3.4-1 及び3.4-2に示す。ウラン屑粒子の形状としては、塊状、破片、粉末のほか直径約  $20 \mu\text{m}\sim1\text{mm}$  の球状のものが含まれている（通常、研磨は球状粒子の赤道面の少し手前に留めているので、球の直径は観察面の直径よりは大きい）。図には、主なウラン屑粒子について、次に述べるEPMAによる分析から判明した構成元素を付記した。

EPMAの反射電子線像（以下BS像と略す）の観察から、組成が異なると推定され

る数粒子について、波長を走査して元素の定性分析を行った。その結果、検出されたのは、U、W、Fe、O 及び C の 5 元素である。多くの粒子について、5 元素の有無を調べた結果、ウラン屑試料の構成元素は以下の 8 種類に分類される。

①U-C	(ウラン炭化物)	破片状及び球状
②U-W-C	(W を含むウラン炭化物、W : 3~35wt% 但し、6wt%以下が殆ど)	塊状、破片状 及び球状
③U-Fe-C	(Fe を含むウラン炭化物、Fe : 約 1wt% )	破片状
④U+U-C	(金属ウランの表面または内部が一部炭化物)	破片状
⑤U	(金属ウラン)	破片状及び球状
⑥U-O	(ウラン酸化物、金属ウラン及び炭化物の表面 または、単独にみられる)	破片状及び粉末
⑦U-W	(ウラン合金)	破片状及び球状
⑧U-Fe	(ウラン合金)	破片状及び球状

以上 8 分類のうち、③、⑦、⑧のウラン屑粒子の割合はごく僅かである。

各分類の主なウラン屑試料の観察・分析写真を粒度の順に図 3.4-3~7 に示す。図 3.4-3 は粒度 1 ( $840 \mu\text{m}$  以上) の試料で、a) は表面に炭化物を形成した金属ウラン、b) は U-Fe-C 試片で、表面に一部酸化物がみられる。図 3.4-4 は塊状の U-W-C 試料の分析写真で、c) に示す W-L $\alpha$  線像のように、大きいウラン屑では部分的にタングステン濃度の高い領域がみられる。図 3.4-5 は粒度 3 ( $297\sim500 \mu\text{m}$ ) の試料で、a) ~ c) には、球状の  $\text{UC}_2$ 、U-W-C、U-W 合金及び破片状の UC、U-O、U-Fe 合金を、d) には U-Fe 合金の拡大した組織を示す（各試料には前述の分類にしたがって構成元素を付記した。但し、後で述べる EPMA による定量分析または炭化物のエッティング組織から組成を同定した試片については、化学形を表記した）。図 3.4-6 には粒度 5 ( $105\sim210 \mu\text{m}$ ) の試料を示す。a) は U+U-C 破片及び U-W-C 球、b) は  $\text{UO}_2$ 、U-C 破片及び  $\text{UC}_2$  球である。図 3.4-7 は粒度 7 ( $53 \mu\text{m}$  以下) で、a) ~ c) にウラン酸化物及び  $\text{UC}_2$ 、U-W-C 球を示す。

EPMA による分析の場合、酸素、炭素などの軽元素は重元素に比べて S/N 比が低いため誤差は大きいが、主要成分であるウラン炭化物、ウラン酸化物及び金属ウラン試片について定量分析を行った。元素分析結果を表 3.4.1 に示す。U-C 粒子の炭素測定値は 3.5 ~ 10.9 ( $\pm 0.8\sim1.0$ ) wt% の範囲に分布しており、誤差を考慮すると C/U 比はほぼ 1 ~ 2 である。U-W-C 粒子は、タングステンの濃度が 3~6 wt% のものが多くを占め、それ以上の濃度のものは僅かであるので、別けて示した。前者の炭素濃度は 6.9 ~ 8.8 ( $\pm 0.8\sim0.9$ ) wt% で、C/M 比は約 1.4 ~ 1.9 に相当する。タングステン濃度の高い粒子の炭素濃度は低くなる傾向がある。酸化物粒子中の酸素濃度は、約 12 wt% 及び約 15 wt% 前後に分布しており、それぞれ  $\text{UO}_2$  及び  $\text{U}_3\text{O}_8$  と推定される。

ウラン炭化物 (U-C) 粒子のエッティング後の観察写真を図 3.4-8 に示す。組織の特徴から、a) は  $\text{UC}_2$  球、b) 及び d) は UC と  $\text{UC}_2$  の混在物 ( $\text{U}_2\text{C}_3$  相は認められない)、c) は、UC 球 (微量の  $\text{UC}_2$  を含む) と判断される。タングステンを含むウラン炭化物粒子のエッティング組織

を図 3.4-9 に示す。組織は純ウラン炭化物と類似しており、a) ~ c) は $(U, W)C$  と $(U, W)C_2$  の混在物、d) はほぼ単相の $(U, W)C$  球と推定される。図 3.4-10 は、球状の $UC_2$ 、 $U-W-C$  及び U 金属が存在する視野について、エッチング時間を変えて観察した写真で、適切なエッチング時間は、組成だけでなく粒子ごと異なることを示す。

No. 1 缶のウラン屑について、以上の観察・分析をもとに各粒度別的主要成分を表 3.4-2 にまとめた。同表には、次に述べる No. 2 缶及び No. 8 缶のウラン屑の結果も併記した。

## (2) No. 2 缶及び No. 8 缶ウラン屑

No. 2 缶のウラン屑試料の研磨断面写真を図 3.4-11 及び 3.4-12 に示す。No. 1 缶と同様に、EPMAにより調べた構成元素をウラン屑粒子ごとに付記した。No. 2 缶のウラン屑は、Fe が検出されないこと及び $840 \mu m$  以上の粗いものに金属ウランが最も多いことを除けば、No. 1 缶の結果とほぼ同じである。

主なウラン屑粒子の観察写真を粒度毎に図 3.4-13、-14 及び 15 に示す。図 3.4-13 a) には、一部に $U-C$  を含む金属ウラン、b) には約数～ $40 \mu m$  の $U-C$  粒子が分散した金属ウラン、c) には黒鉛が混入した金属ウランを示す。図 3.4-14 a) には、 $U-W-C$  及び $UC_2$ 、b) には表面に酸化物を持った $U-C$  片を示す。図 3.4-15 a) ~ d) には、金属ウラン、 $UC$  及び $U-C$ 、 $U-W-C$ 、 $U-O$ 、 $U-W$  合金を示す。

No. 8 缶ウラン屑は、粒度 3 の $297\sim500 \mu m$  の試料についてのみ観察した。研磨断面写真を図 3.4-16 に示したように、炭化物が多くを占めることが分かる。金属ウラン、 $U-W-C$ 、 $U-C$  及び $U-Fe$  合金粒子の観察写真を図 3.4-17 に示す。

No. 2 及び No. 8 缶のウラン屑の各粒度別的主要成分を、No. 1 缶の結果と併せて表 3.4-2 に示す。粒度の大きいウラン屑には炭化物及び金属が多く、細くなるにつれ、酸化物の割合が高くなることが明らかである。

表 3.4-1 EPMA による元素分析結果 (No.1 缶)

分析試料 (分析試料数)		元素存在比 w t %				推定組成
	U	W	Fe	O	C	
炭化物	U-C (10)	89~96	—	—	—	3.5~10.9 ±0.8~1.0
	U-W-C ① ( 5 )	87~88	3 ~ 6	—	—	6.9~8.8 ±0.8~0.9
	U-W-C ② ( 5 )	59~85	8 ~ 35	—	—	5.2~8.0 ±0.6~0.7
	U-Fe-C ( 2 )	95 , 97	—	1.0 , 0.9	—	4.2 , 2.0 ±0.8 , ±0.6
酸化物	U-O ① (12)	87~89	—	— (10粒子) 0.2, 0.4 (2粒子)	10.8~12.9 ±1.1~1.2	UO <sub>2</sub>
	U-O ② ( 6 )	84~86	—	—	13.9~15.8 ±1.2	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>
	金属 U ( 8 )	~100	—	—	—	U

- 1) 一印は検出限界以下を示す。検出限界 U, W : 0.2 wt%、Fe : 0.1 wt%、O : 0.4 wt%、C : 0.6 wt%
- 2) 測定誤差は、 $3\sigma$  (計数の統計誤差) を表記した。
- EPMAによる分析では、軽元素 (O, C) の S/N 比が重元素に比べて小さいため、検出限界及び誤差が大きい。
- また、U中のC分析の場合、C-K $\alpha$ 線の波長 (4.48 nm) 近傍に存在するUのマイナーコンティニア X線 (4.35 nm) の妨害がある。
- 3) 分析条件及び定量法
- 加速電圧 20 kV で、分析粒子当たり 2ヶ所測定の平均値と標準試料として用いたU, W, Fe金属、黒鉛及びUO<sub>2</sub> (約 95%T.D. 焼結体、酸化物の定量用) の測定値から ZAF補正計算を行い、合計を 100 wt% にノーマライズした。
- 原子番号補正: Philibert 法、蛍光補正: Duncumb-Reed 法、吸収補正: Reed 法
- 4) 分析試料は、酸化物を除いて意図的に選択したので、試料数は存在比を反映しない。また、酸化物粉末については、空間分解能及び試料の状態を考慮し、粒子の大きさが 10 μm 以上のものについてのみ定量を行った (X線発生領域のサイズは約 3 μm であるが、小さい粉末には割れ目が存在するため定量困難)。

表 3.4-2 ウラン屑の粒度別主要成分

粒度 缶 No.	1 >840 $\mu\text{m}$	3 297~500 $\mu\text{m}$	5 105~210 $\mu\text{m}$	7 <53 $\mu\text{m}$
1	ウラン炭化物 金属ウラン ウラン酸化物	ウラン炭化物 金属ウラン ウラン酸化物	ウラン炭化物 ウラン酸化物 金属ウラン	ウラン酸化物 ウラン炭化物 金属ウラン
2	金属ウラン ウラン炭化物	ウラン炭化物 金属ウラン ウラン酸化物	ウラン炭化物 ウラン酸化物 金属ウラン	—
8	—	ウラン炭化物 金属ウラン ウラン酸化物	—	—

存在比の多い順に列挙、 —— : 測定せず

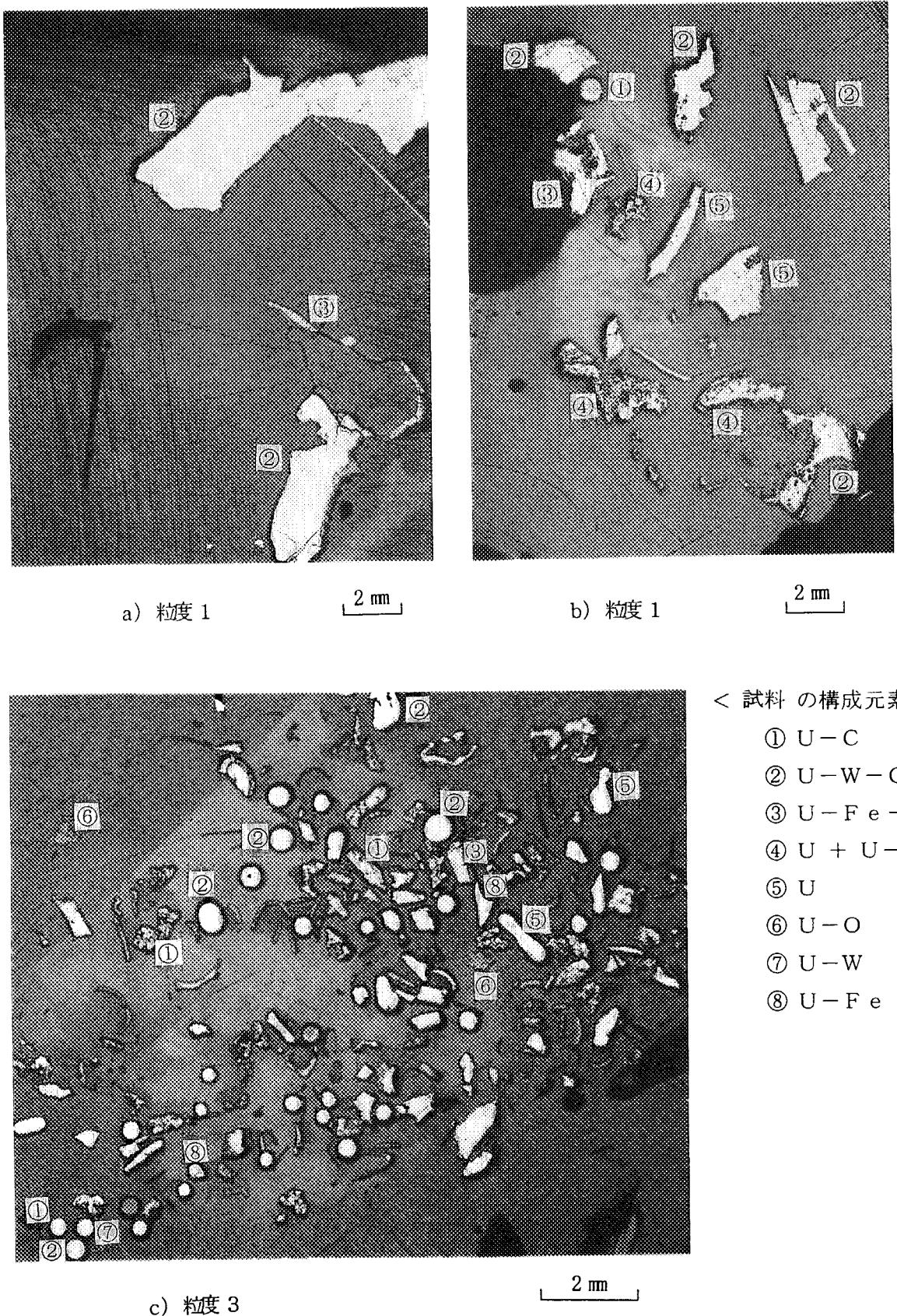
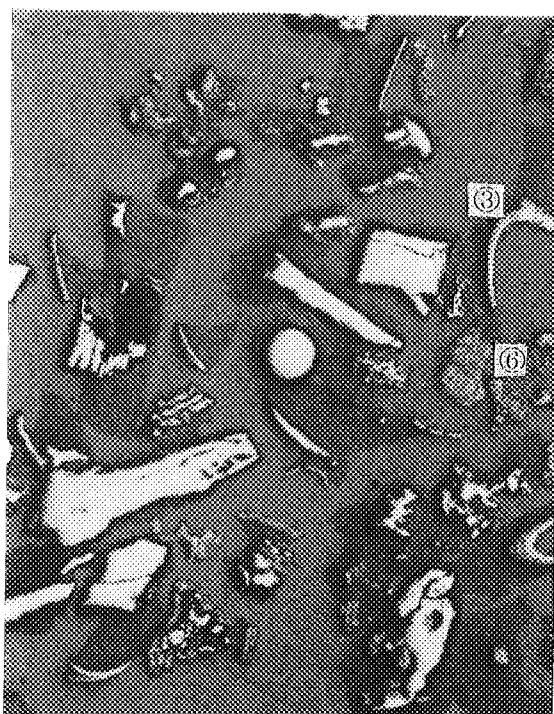
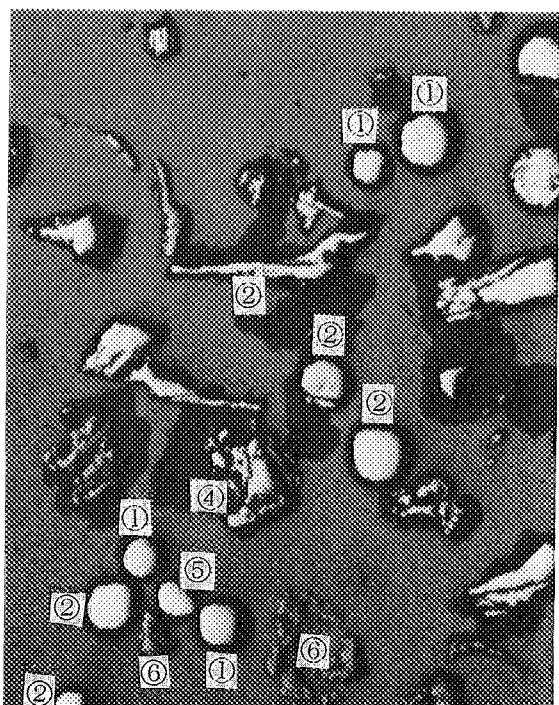


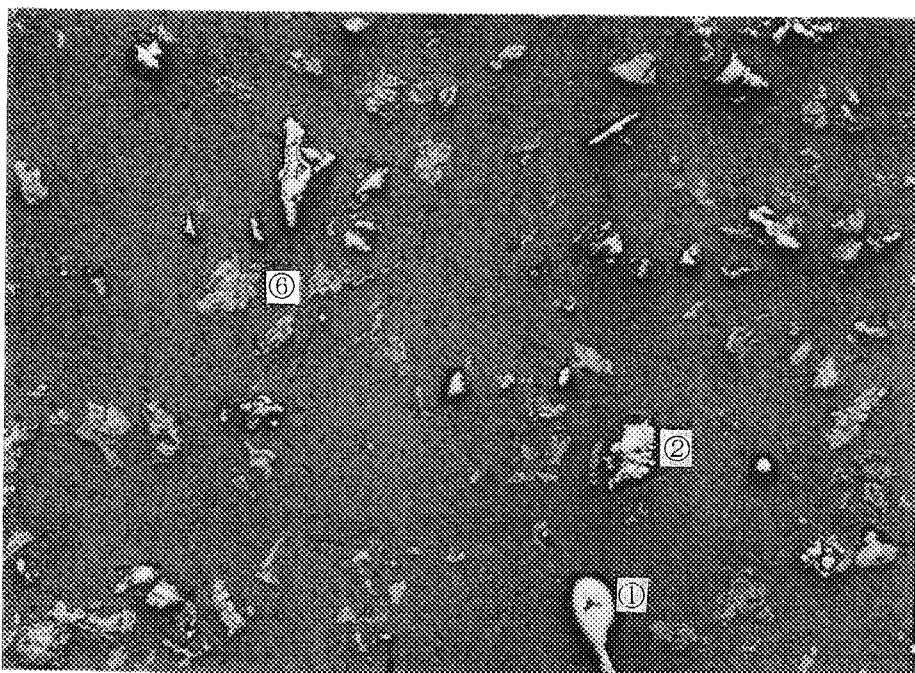
図 3.4-1 研磨断面写真 (No.1 缶)



a) 粒度 5

200  $\mu\text{m}$ 

b) 粒度 5

200  $\mu\text{m}$ 

c) 粒度 7

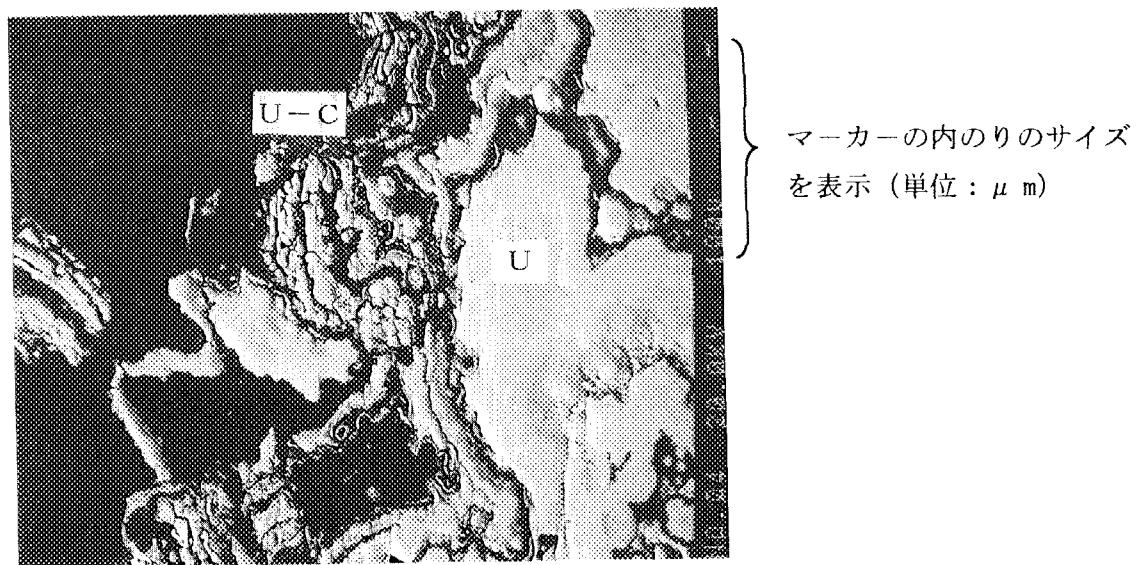
100  $\mu\text{m}$ 

## &lt; 試料の構成元素 &gt;

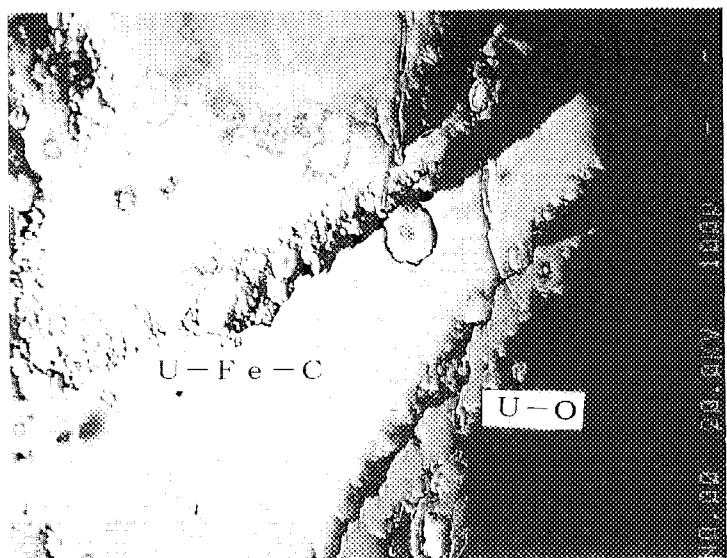
- ① U-C
- ② U-W-C
- ③ U-F e - C
- ④ U + U-C
- ⑤ U
- ⑥ U-O

図 3.4-2

研磨断面写真 (No.1 缶)

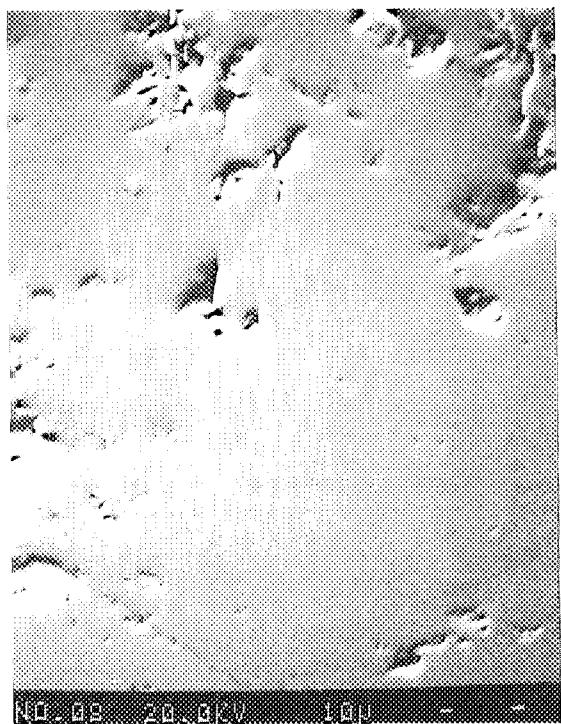


a) U (塊状) 及び U-C (破片)



b) U-Fe-C 及び U-O

図 3.4-3 試料の観察写真 (反射電子線像、No.1 缶)



a) BS像



b) U M $\alpha$ 線像

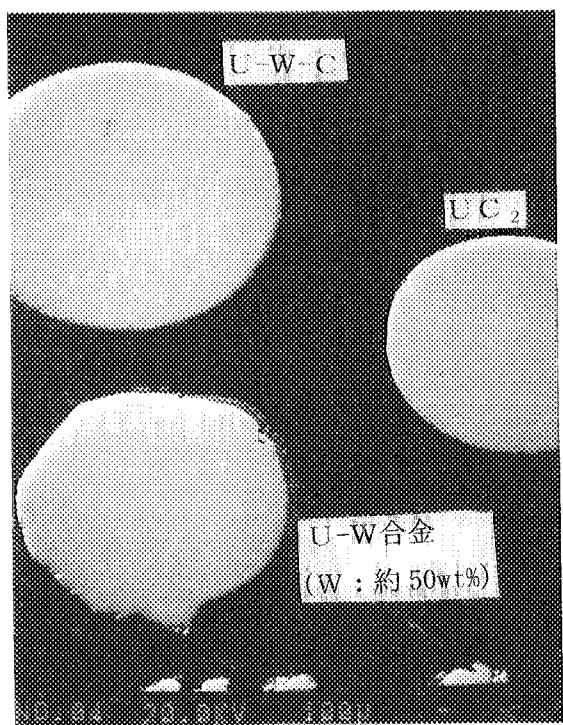


c) W L $\alpha$ 線像

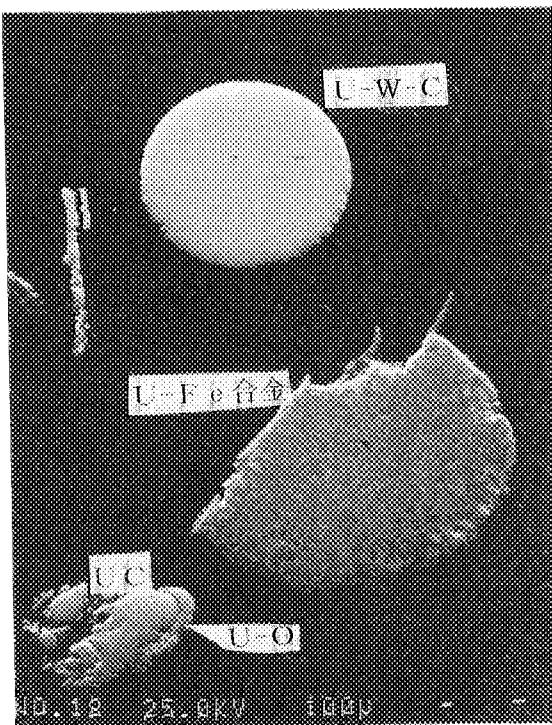
(Wは場所により濃度が異なる)

図 3.4-4

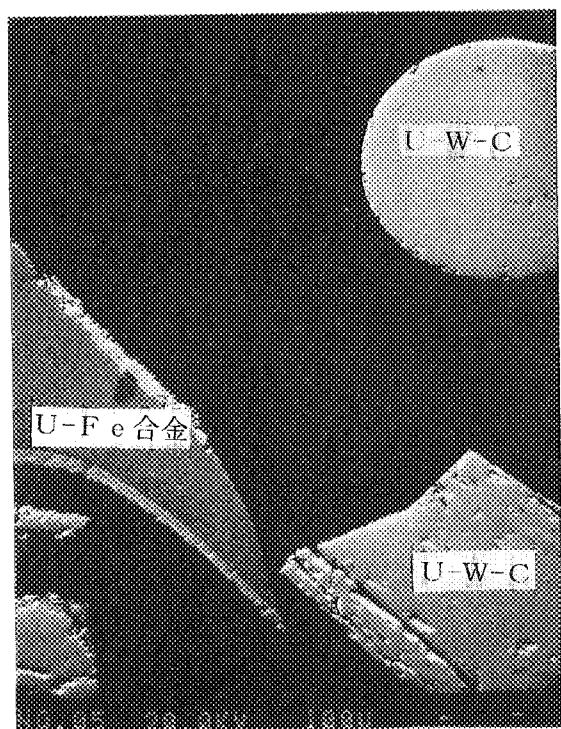
試料 (U-W-C) の分析写真 (No.1 缶)



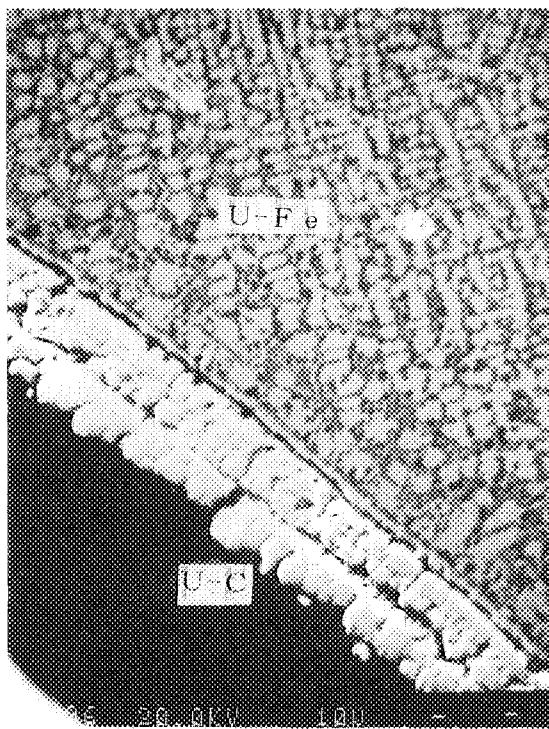
a)



b)



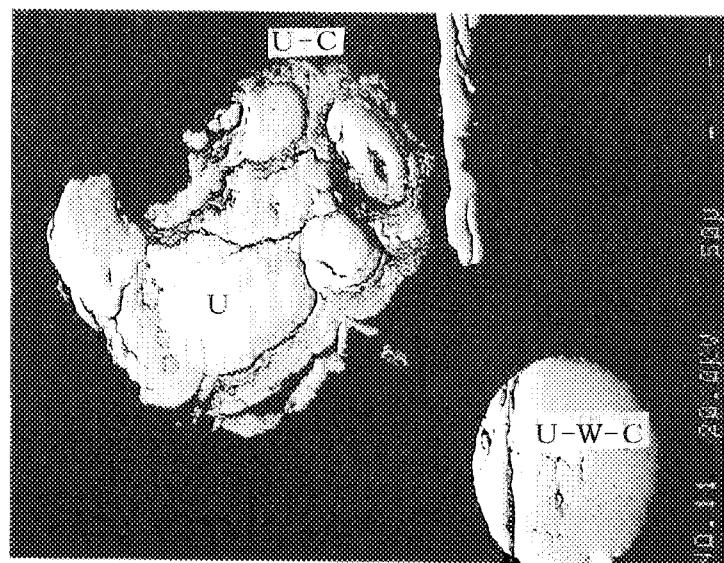
c)



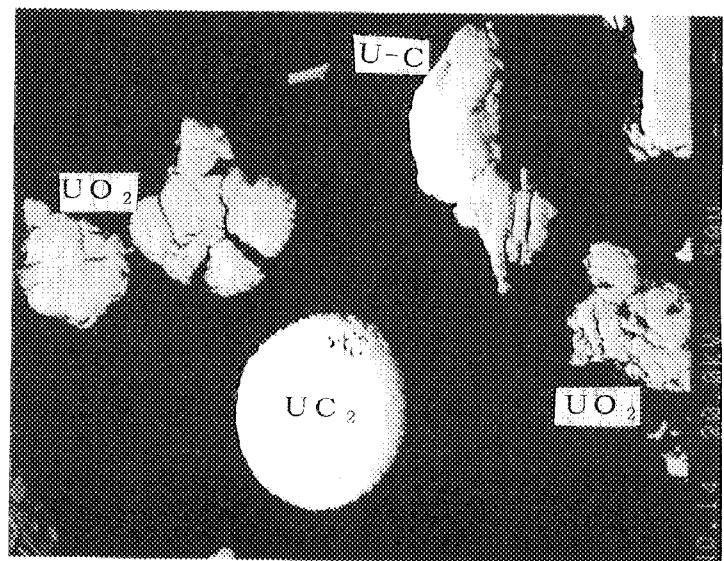
d) 左図U-F e合金を拡大

図 3.4-5

試料の観察写真 (BS 像、No.1 缶)

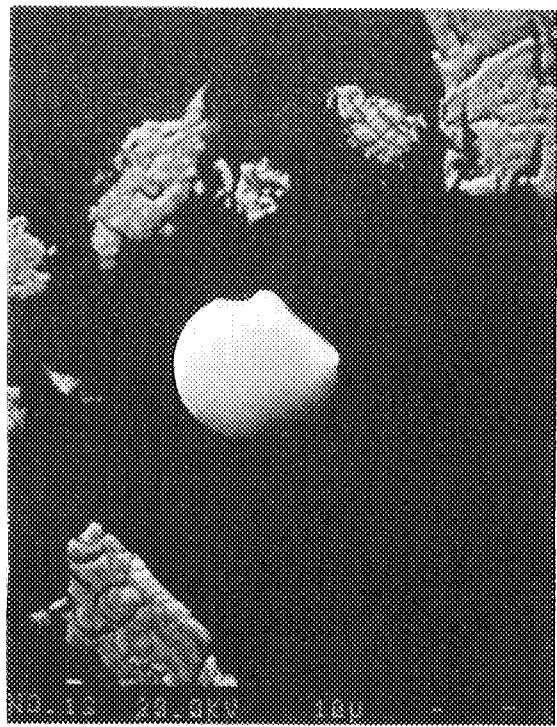


a )



b )

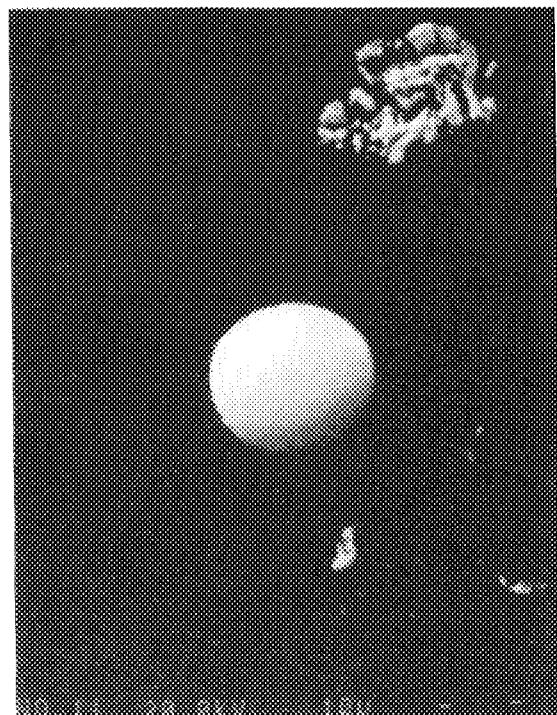
図 3.4-6 試料の観察写真 (BS 像、No.1 缶)



a) U-O粉末及びUC<sub>2</sub>球



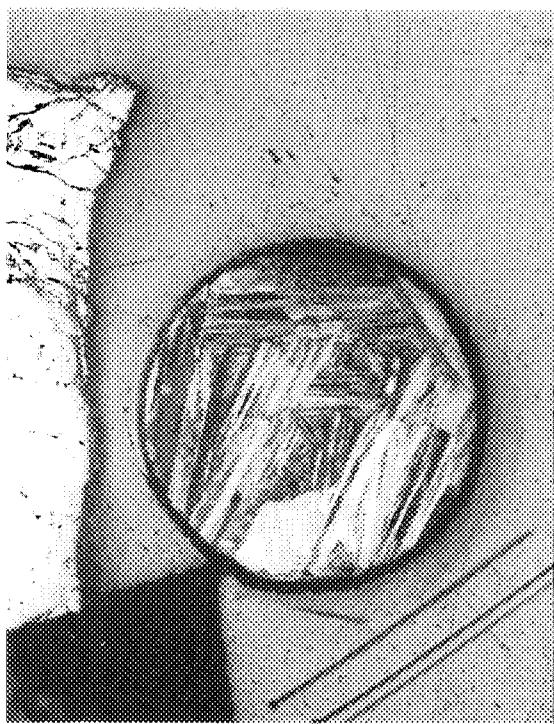
b) U-O粉末



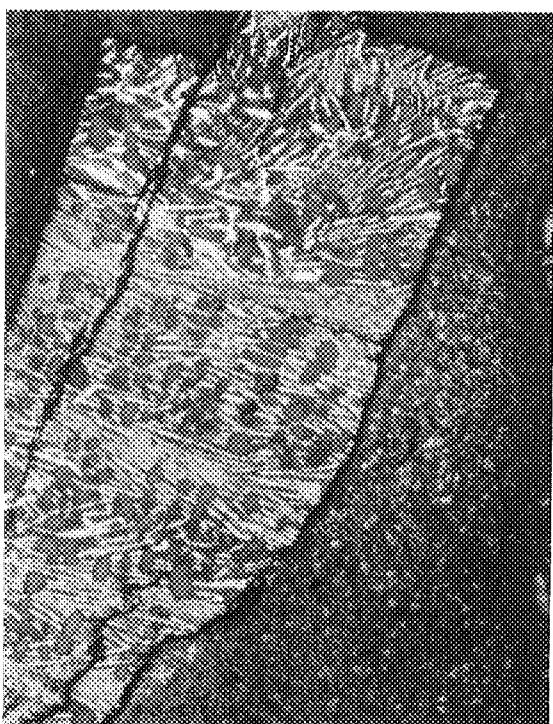
c) U-O粉末及びU-W-C球

観察した中で最も小さいものは  
約  $5 \mu\text{m}$ 。

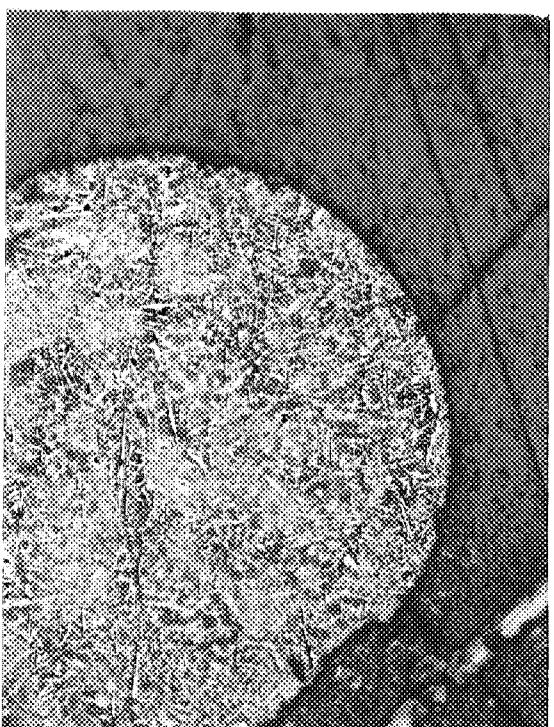
さらに小さい粉末は、埋込樹脂  
の底面とその上約  $10 \text{ mm}$  の間  
に分散しており、観察及び分析  
は行わなかった。



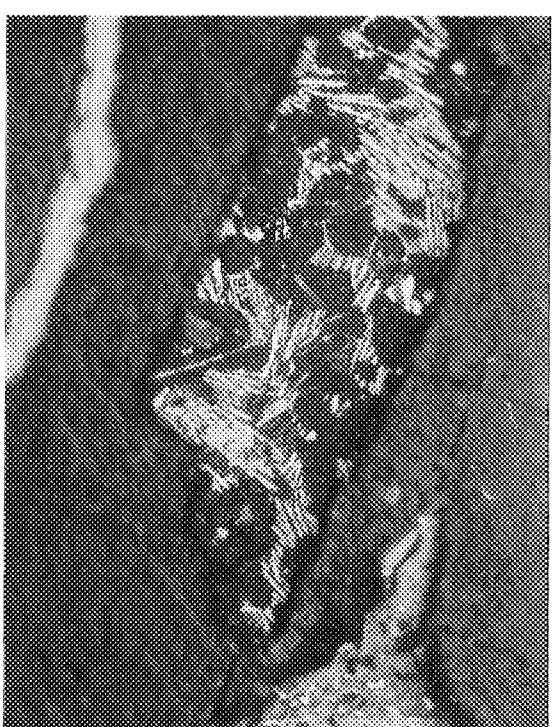
a) 粒度 1、 $\text{U C}_2$  (球状)  $200 \mu\text{m}$



b) 粒度 3、 $\text{U C} + \text{U C}_2$   $50 \mu\text{m}$   
丸い着色部が $\text{U C}$ 、縞状の部分が $\text{U C}_2$



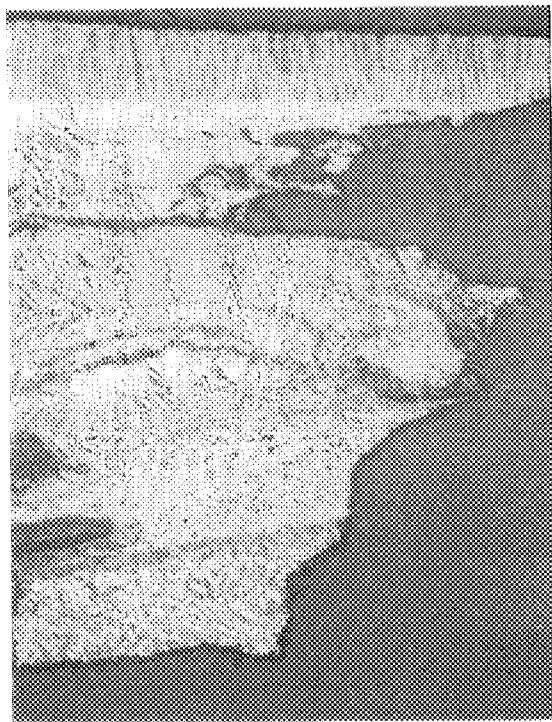
c) 粒度 3、 $\text{U C} + \text{U C}_2$  (微量)  $50 \mu\text{m}$



d) 粒度 5、 $\text{U C} + \text{U C}_2$   $25 \mu\text{m}$

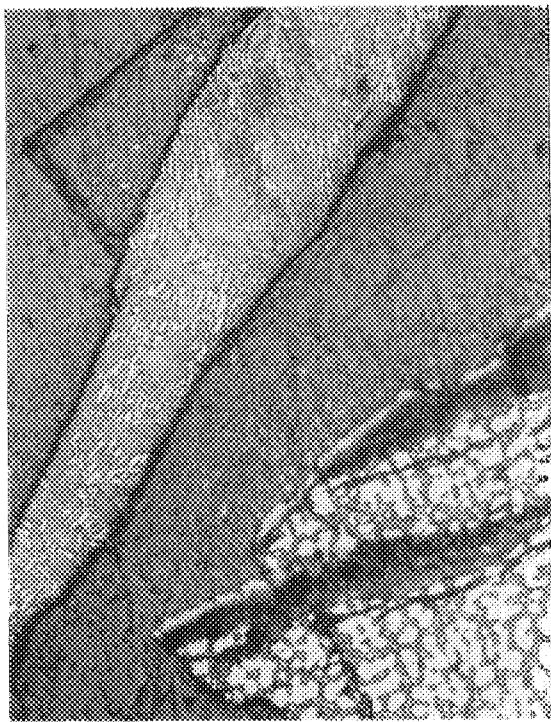
図 3.4-8

ウラン炭化物のエッチング組織 (No.1 缶)



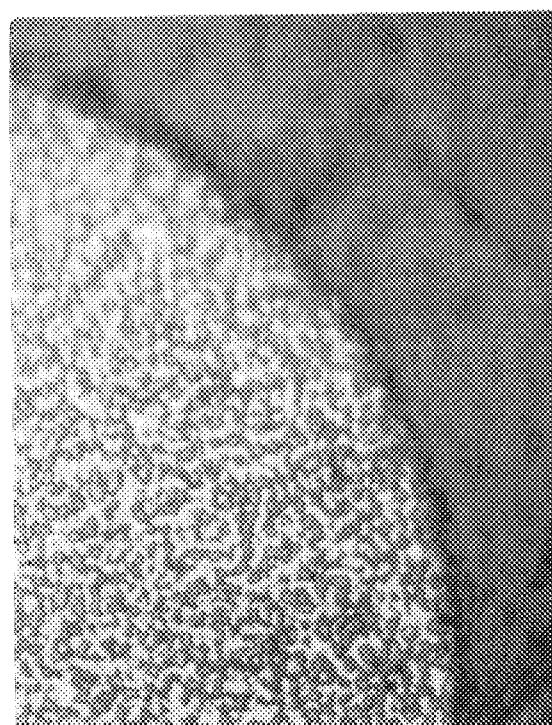
a) 粒度 1、 $(U, W)C + (U, W)C_2$   $200 \mu m$

上部の幅  $200 \mu m$  が  $(U, W)C_2$ 、  
下部の幅  $200 \mu m$  の着色部が  
 $(U, W)C$ 、白色部が  $(U, W)C_2$

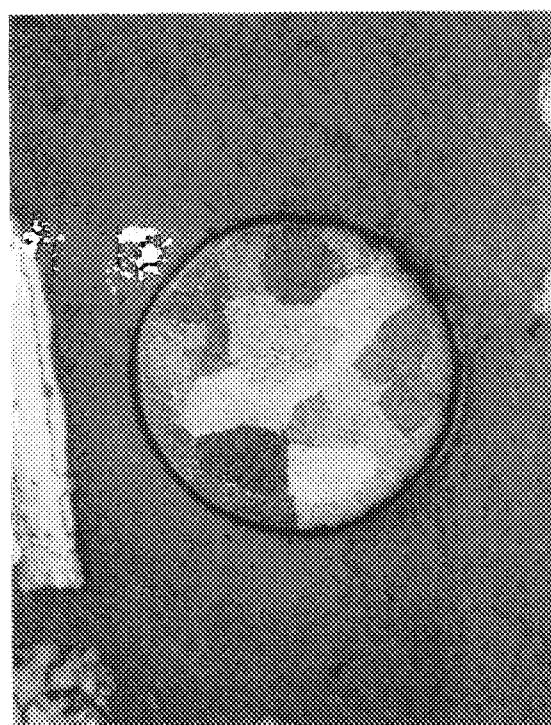


b) 粒度 3、 $(U, W)C + (U, W)C_2$   $50 \mu m$

下の試料の着色部が  $(U, W)C$ 、  
白色部が  $(U, W)C_2$   
上の試料は  $UC + UC_2$



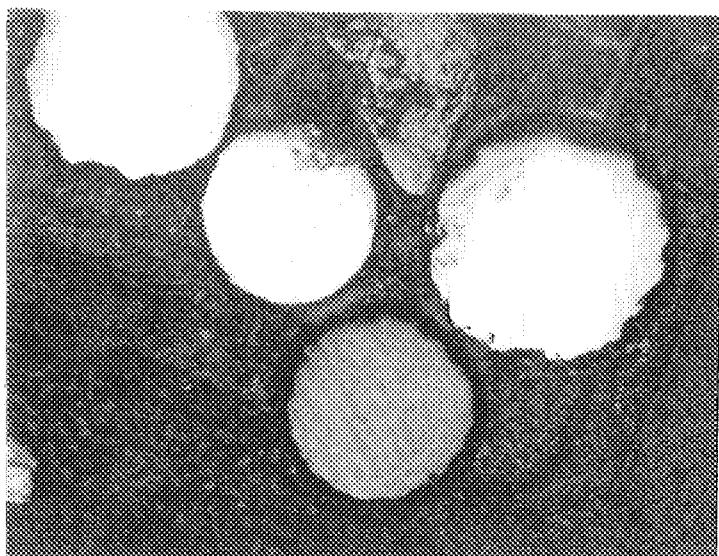
c) 粒度 3、 $(U, W)C + (U, W)C_2$   $25 \mu m$



d) 粒度 5、 $(U, W)C$  球  $50 \mu m$

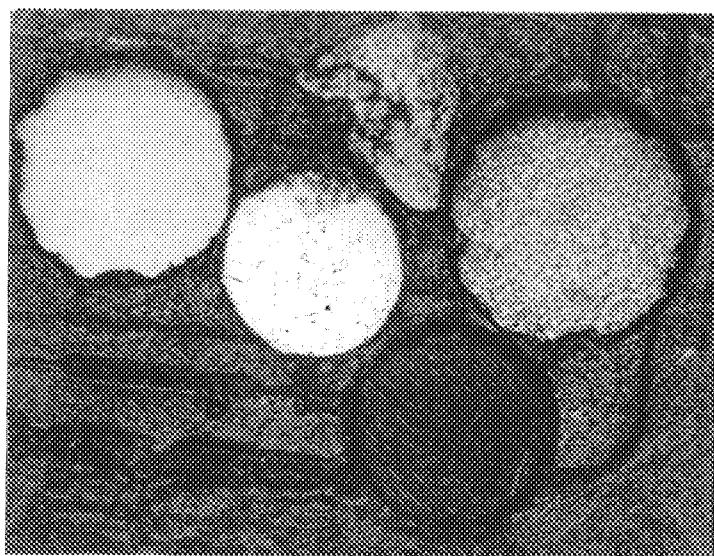
図 3.4-9

タングステンを含むウラン炭化物のエッティング組織 (No.1 缶)



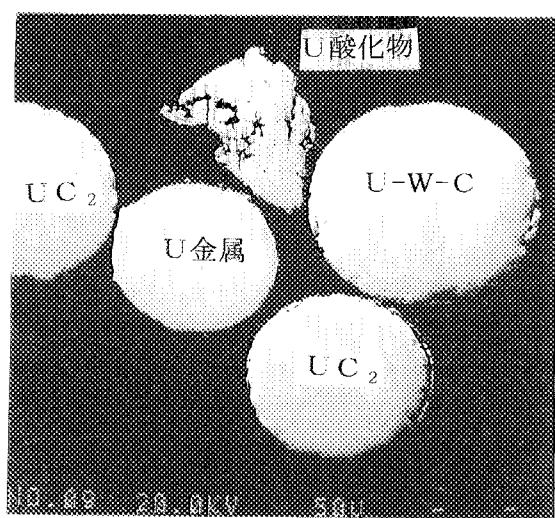
a)

エッチング時間 約 40 秒  
(硝酸 : 酢酸 : 水  
／1 : 1 : 1、室温)



b)

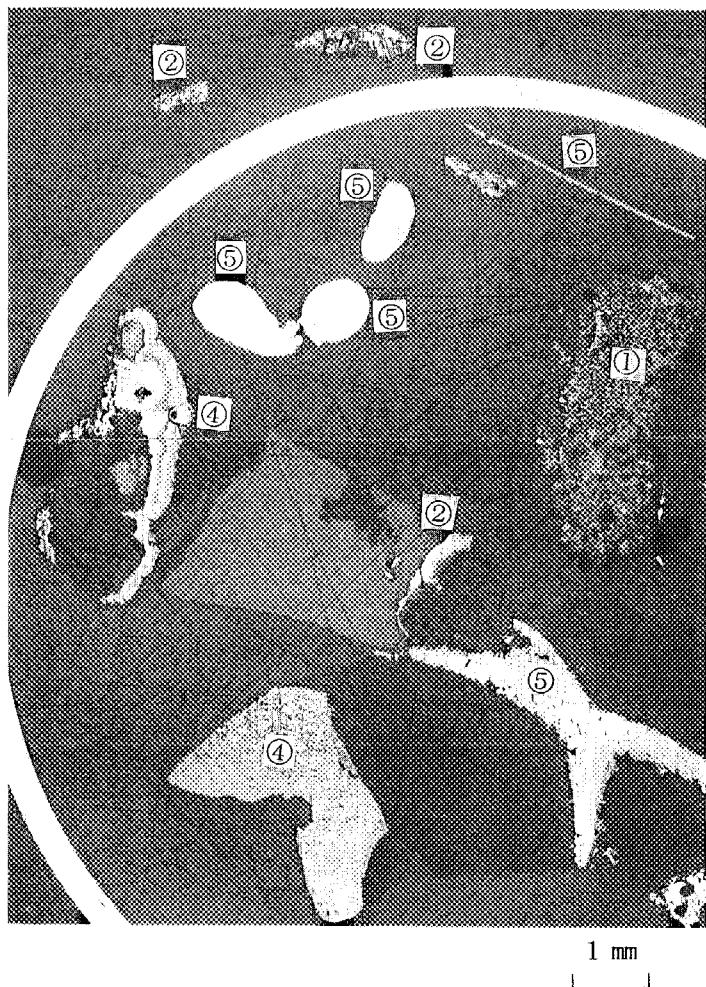
エッチング時間 約 120 秒



c) B S 像

図 3.4-10

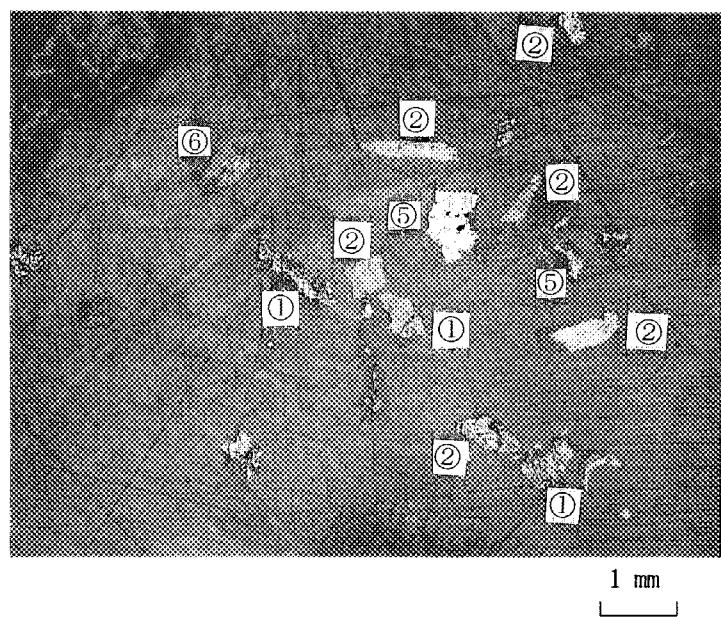
UC<sub>2</sub> U-W-C のエッチング条件 (No.1 缶)



a) 粒度 1

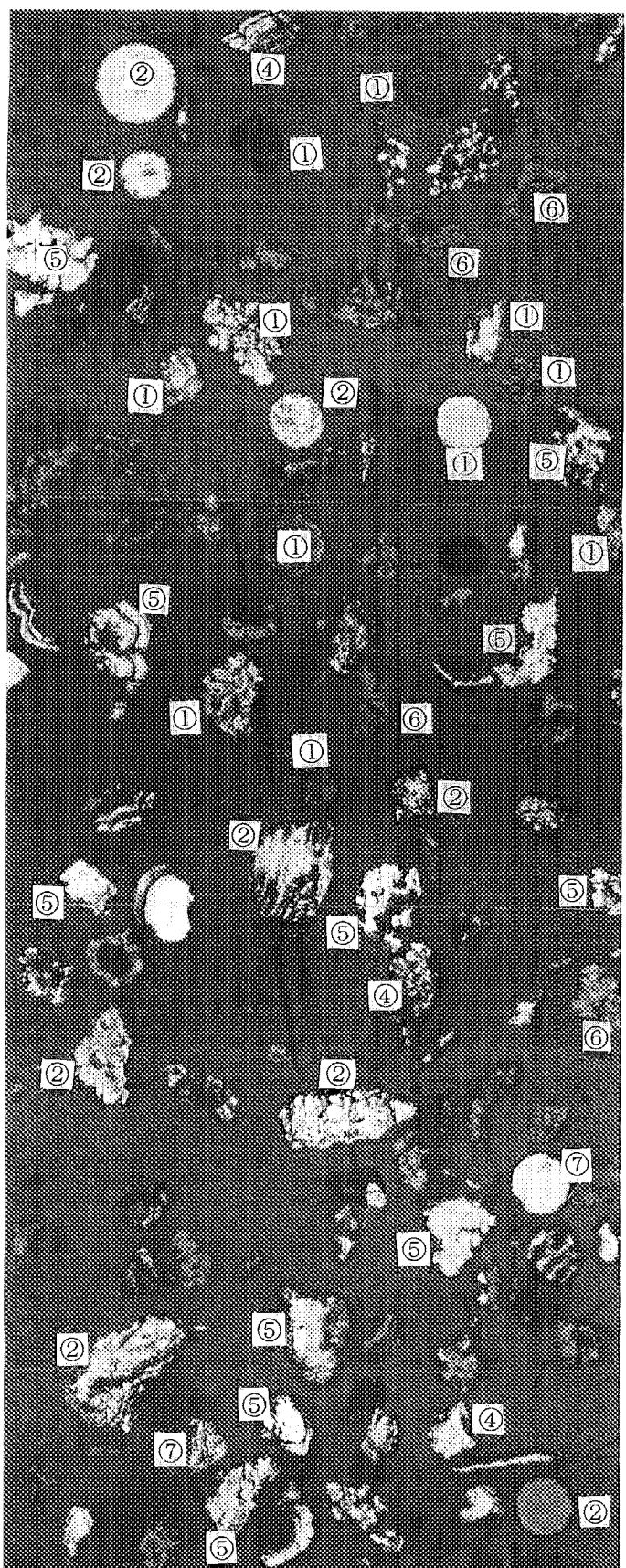
< 試料 の構成元素 >

- ① U-C
- ② U-W-C
- ④ U + U-C
- ⑤ U
- ⑥ U-O

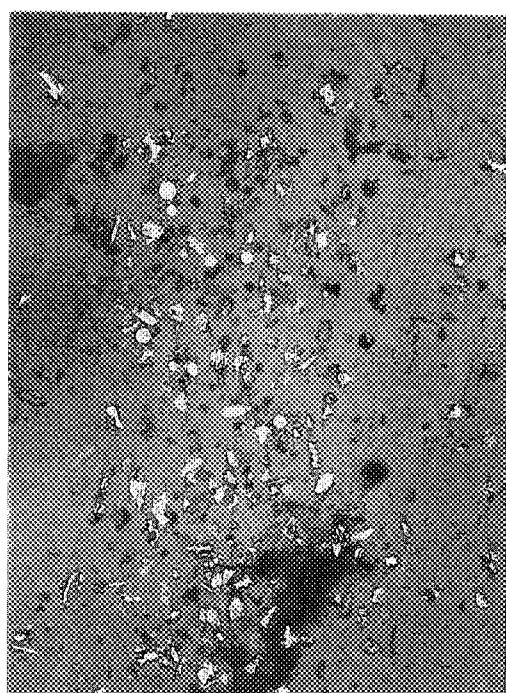


b) 粒度 3

図 3.4-11 研磨断面写真 (No.2 缶)

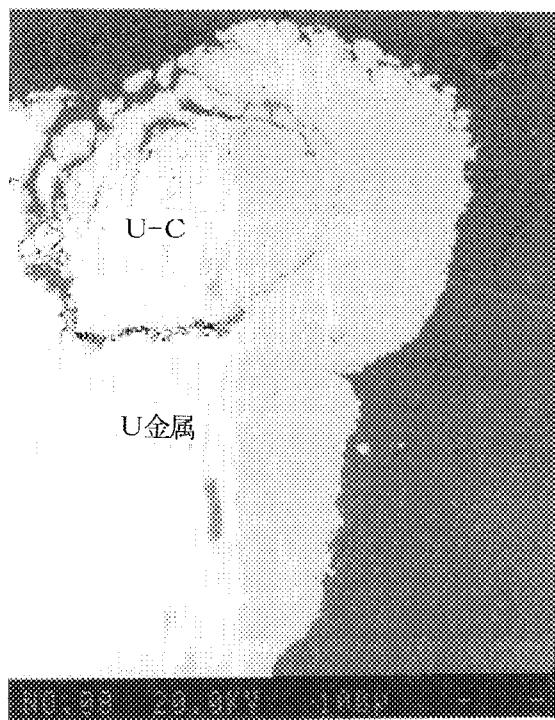


右図中央部を拡大

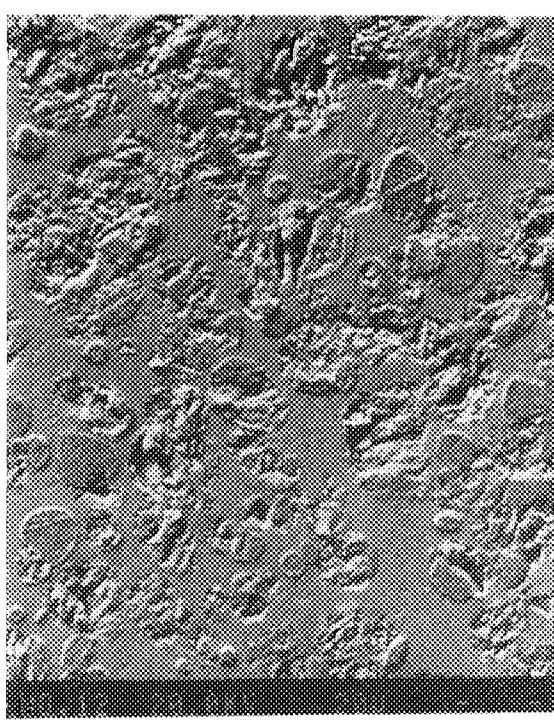
1 mm  
[ ]

## &lt; 試料 の構成元素 &gt;

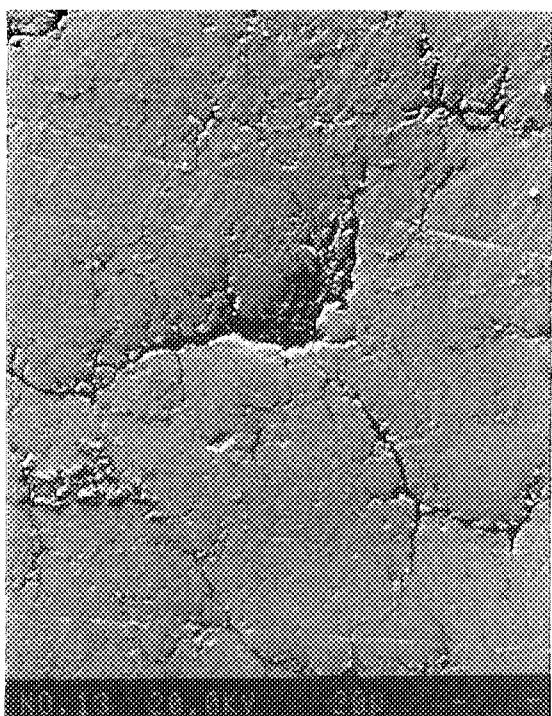
- ① U - C
- ② U - W - C
- ④ U + U - C
- ⑤ U
- ⑥ U - O
- ⑦ U - W



a) U及びU-C

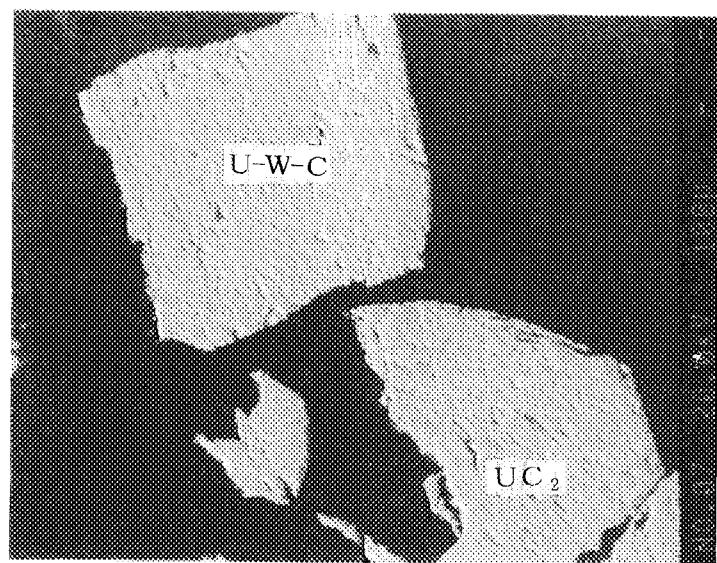


b) U-C粒子が分散したU金属

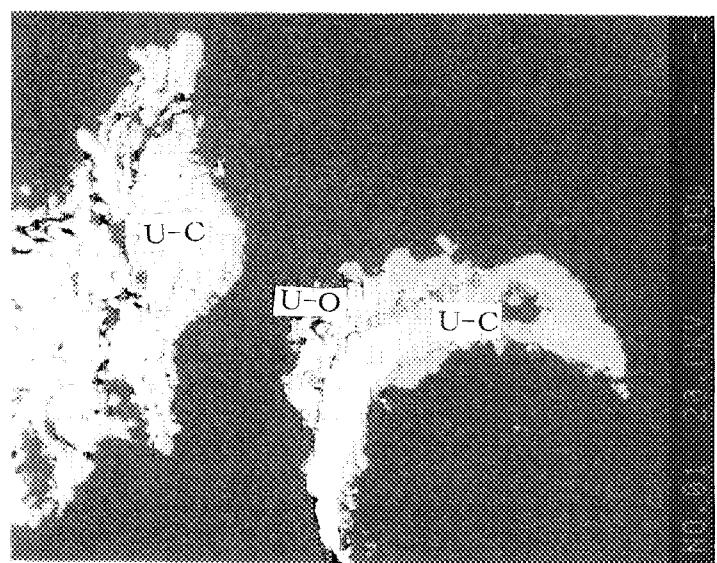


c) 黒鉛が混入したU金属

図 3.4-13 試料の観察写真 (BS 像、No.2 缶)

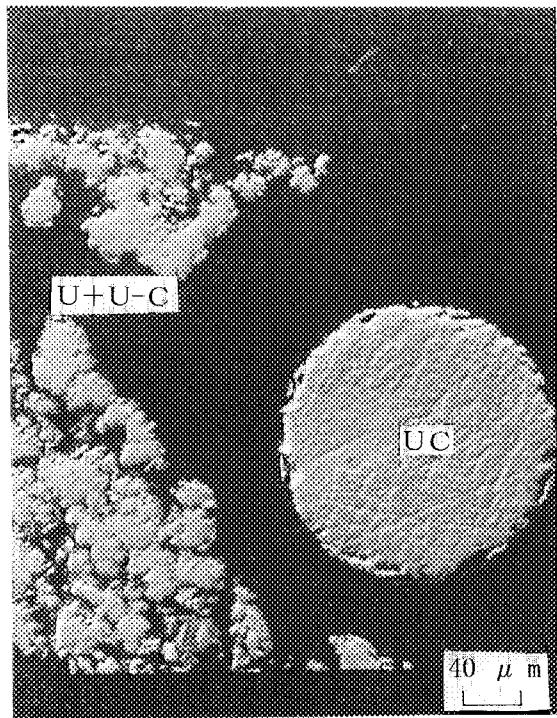


a)

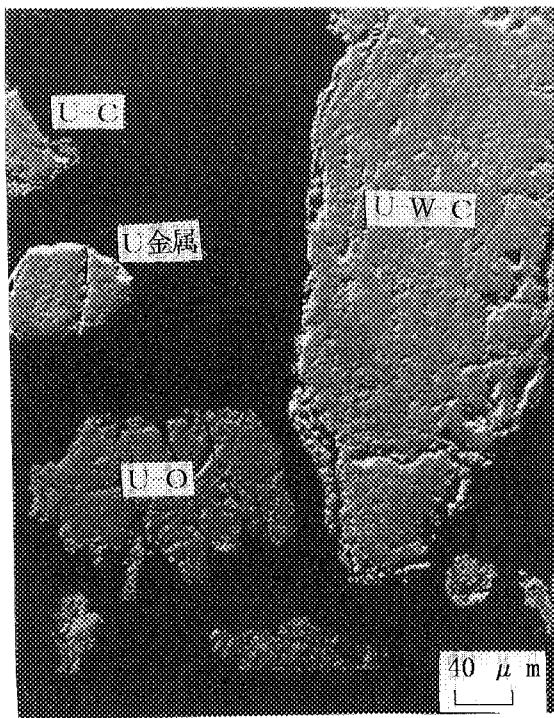


b)

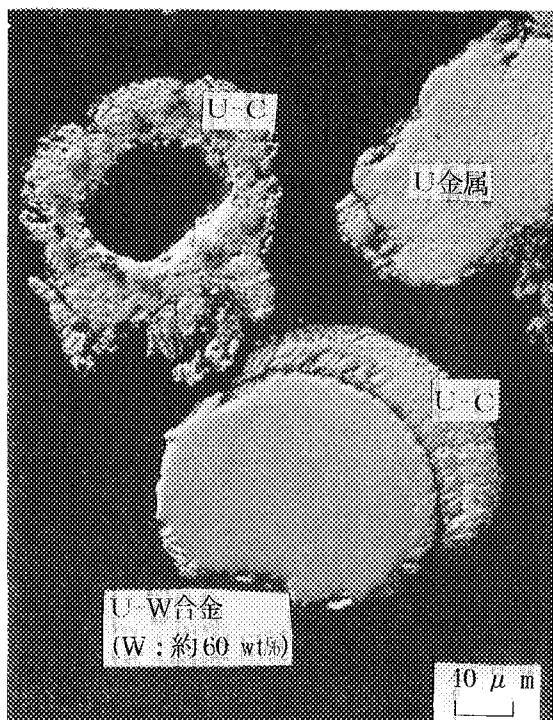
図 3.4-14 試料の観察写真 (BS 像、No.2 缶)



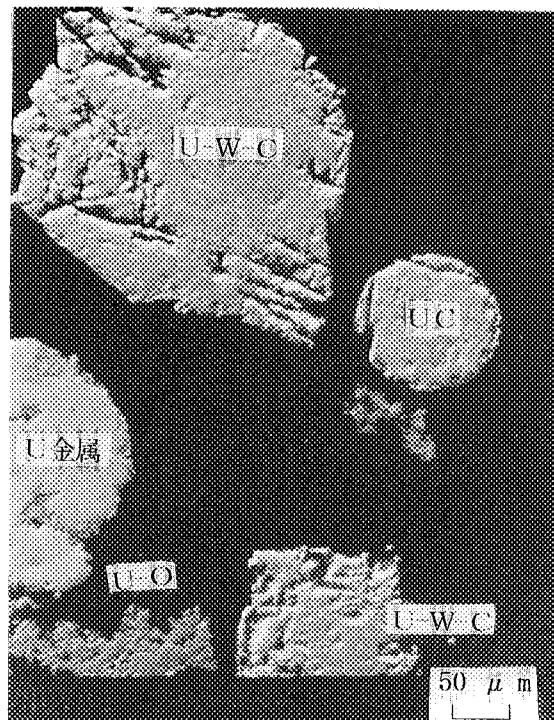
a)



b)



c)



d)

図 3.4-15 試料の観察写真 (BS 像、No.2 缶)

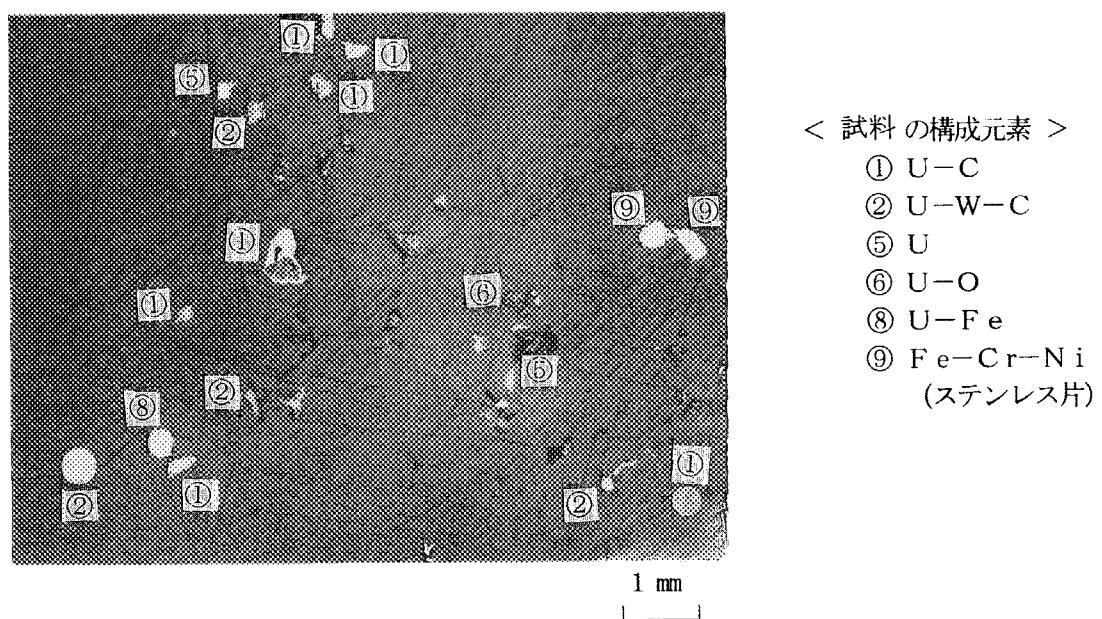


図 3.4-16 研磨断面写真 (No.8 缶)

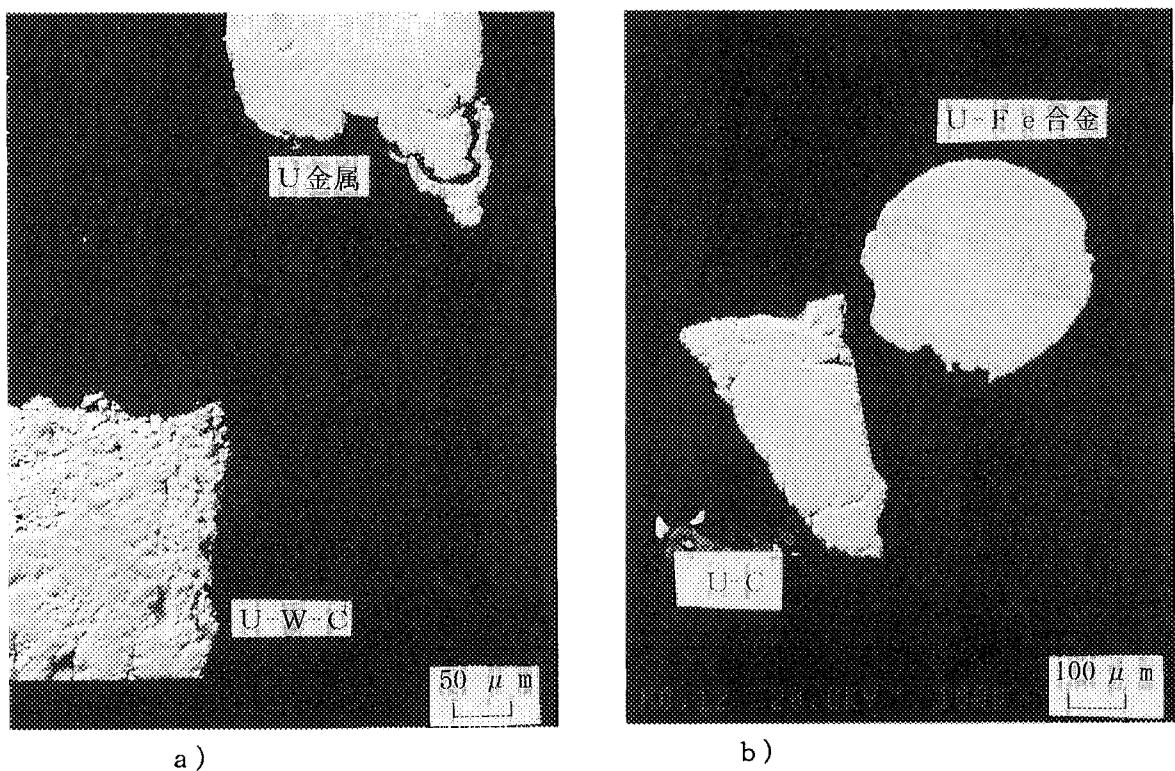


図 3.4-17 試料の観察写真 (BS 像、No.8 缶)

### 3.5 ウラン屑のX線回折

燃料照射研究室

芹澤弘幸、菊地啓修、高野公秀、  
湊 和生

健全缶内のウラン屑試料及びNo. 11缶の残存物試料の化学形をX線回折により同定した。

#### 3.5.1 方法

##### (1) 試験試料

本試験の測定対象とした試料は、No. 1、No. 2 及び No. 8 健全缶のウラン屑、並びに No. 11 缶の残存物である。No. 1、No. 2 及び No. 8 缶の試料については、粒度分級を行った後、表 3.5-1 に示すように、そのうちのいくつかの粒度の試料について測定した。これらの試料のうち、No. 2 及び No. 8 缶の粒度分級後の試料については、測定試料を作製する際、それぞれのうの乳鉢を用いて粉碎した。粉末試料は、樹脂（アラルダイド）に混ぜ込み、アルミニウム製試料ホルダーに流し込んで固化して、X 線回折用試料を作製した。なお、これらの試料調製は、アルゴン不活性雰囲気内で行った。

##### (2) 測定方法

測定には、理学電機製の回転対陰極強力 X 線発生装置（ローターフレックス）に、横型広角ゴニオメーター及びモノクロメーターを取り付けた X 線回折装置を使用した。X 線発生装置のターゲットは Cu とし、Cu の  $K\alpha$  線により、測定を行った。測定データは、同社製の JCPDS データに基づく定性分析ソフトを用いて解析し、試料中に含まれる化合物を同定した。

#### 3.5.2 結果及び考察

##### (1) No. 1 缶の試料

No. 1 缶試料の測定データを図 3.5-1 に示す。それぞの X 線回折チャートの回折ピークには、同定結果を記載した。低角度側に、アラルダイドによるハローとみられるバックグラウンドの上昇がある。これは、測定試料の粉末が粗いこと、及び試料量が少ないことから、埋め込んだ樹脂の影響が大きくてたためである。また、これらの理由から、X 線回折ピークは、一様に小さい。

粒度 297~500  $\mu\text{m}$  の試料では、 $\text{U}_3\text{O}_8$ 、 $\text{UO}_2$  の酸化物及び UC、 $\text{UC}_2$  の炭化物の回折ピークが認められる。粒度 105~210  $\mu\text{m}$  の試料では、これらの酸化物及び炭化物に加えて、 $\text{WO}_3$  によると思われる小さな回折ピークが観測された。粒度 53  $\mu\text{m}$  以下の試料では、前記 2 試料と比較して粒度が細かいため、各回折ピークが鋭くなっている。本試料では、前試料で見られた UC 及び  $\text{UC}_2$  の回折ピークは認められなかった。

### (2) No. 2 缶の試料

図 3.5-2 に示す No. 2 缶の試料の回折チャートには、主として  $U_3O_8$ 、 $UO_2$  の酸化物及び  $UC$  の炭化物からの回折ピークが認められる。粒度 297~500  $\mu m$  の試料では、これに加えて金属 U 及び  $UC_2$  からのごく小さい回折ピークが、粒度 105~210  $\mu m$  の試料では、 $UC_2$  からのごく小さい回折ピークが、それぞれ見られる。また、粒度 53  $\mu m$  以下の試料(図 3.5-2(d))では、金属 U からの回折ピークが認められる。

### (3) No. 8 缶の試料

No. 8 缶から採取した試料の X 線回折チャートを図 3.5-3 に示す。主として、酸化物  $UO_2$  及び炭化物  $UC$ 、 $UC_2$  の回折ピークが認められる。また、酸化物  $U_3O_8$  及び金属 U からの回折ピークが、わずかではあるが見られる。

### (4) No. 11 缶の試料

No. 11 缶内の別々の部位から採取した 2 種類の試料の X 線回折チャートを図 3.5-4 に示す。この試料では、ウラン酸化物からの回折ピークのみが見られ、ウラン炭化物の回折ピークは見られない。 $UO_2$  からの回折ピークもわずかながら認められるが、酸化物はほとんどが  $U_3O_8$  になっていることわかる。また、図 3.5-4(a) では  $WO_3$  によると思われる小さな回折ピークが、図 3.5-4(b) では  $Fe_2O_3$  からと思われる小さな回折ピークが、それぞれ見られる。

### (5) まとめ

X 線回折装置を用いて行った本試験の結果を表 3.5-2 にまとめて示す。No. 11 缶の試料を除いて、測定した試料すべてにウラン炭化物が存在することが確認された。

X 線回折装置を用いて混合物中のそれぞれの物質の存在比を定量することは、原理的には可能である。しかし、ここで対象にしたウラン屑では、それぞれの物質の異なった粒度の影響のため、存在比を定量することはできなかった。すなわち、試料中のウラン酸化物はもともと粒度が細かく、めのう乳鉢により粉碎され易いが、金属ウラン及びウラン炭化物はもともと粒度が粗く、めのう乳鉢によっても粉碎され難かった。そのため、平面状に仕上げた X 線回折試料面では、粒度の細かいウラン酸化物の面積比が大きくなり、回折チャートには、見かけ上、実際の存在比以上にウラン酸化物の強度が強く現れた。また、金属ウラン及びウラン炭化物の表面の酸化被膜の存在も、ウラン酸化物の強度が強く現れた原因と考えられる。

No. 8 缶の試料は、 $U_3O_8$  の生成量が、他の金属缶内の試料の測定結果と比較して明らかに少なく、炭化物  $UC$  及び  $UC_2$  の存在を示す回折ピークが顕著に現れている。これは、この金属缶内の試料の酸化反応が、他の試料と比較して、進んでいないことを示唆している。

表 3.5-1 X 線回折用測定試料一覧

試料採取缶	粒度 ( $\mu\text{m}$ )		
	<53	105~210	297~500
No.1缶	○	○	○
No.2缶	○*	○	○
No.8缶			○
No.11缶	分級なし*		

\* 2試料を作製・測定

表 3.5-2 X 線回折による試料同定結果一覧

缶No.	試料粒度 ( $\mu\text{m}$ )	同定結果
1	297-500	$\text{UO}_2$ , $\text{U}_3\text{O}_8$ , UC, ( $\text{UC}_2$ )
	105-210	$\text{UO}_2$ , $\text{U}_3\text{O}_8$ , UC, ( $\text{UC}_2$ ), $\text{WO}_3$
	<53	$\text{UO}_2$ , $\text{U}_3\text{O}_8$
2	297-500	$\text{UO}_2$ , $\text{U}_3\text{O}_8$ , UC, (U, $\text{UC}_2$ )
	105-210	$\text{UO}_2$ , $\text{U}_3\text{O}_8$ , UC, ( $\text{UC}_2$ )
	<53	$\text{UO}_2$ , $\text{U}_3\text{O}_8$ , UC, (U)
8	297-500	$\text{UO}_2$ , $\text{U}_3\text{O}_8$ , UC, $\text{UC}_2$ , (U)
11	分級なし	( $\text{UO}_2$ ), $\text{U}_3\text{O}_8$ , ( $\text{WO}_3$ , $\text{Fe}_2\text{O}_3$ )

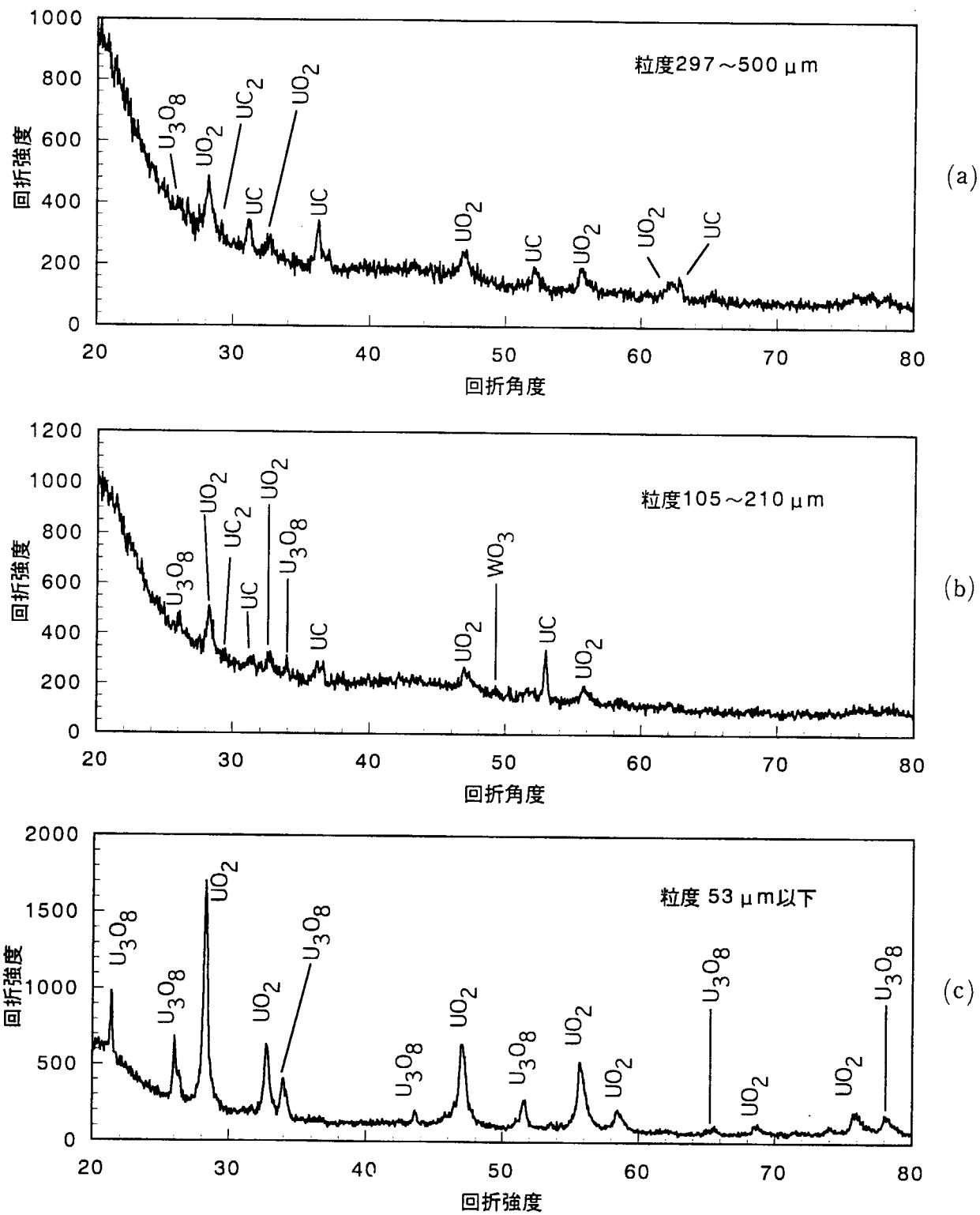


図 3.5-1 No.1 缶から回収した試料のX線回折チャート

(a) 粒度 297~500  $\mu\text{m}$  の試料、(b) 粒度 105~210  $\mu\text{m}$  の試料、  
(c) 粒度 53  $\mu\text{m}$  以下の試料

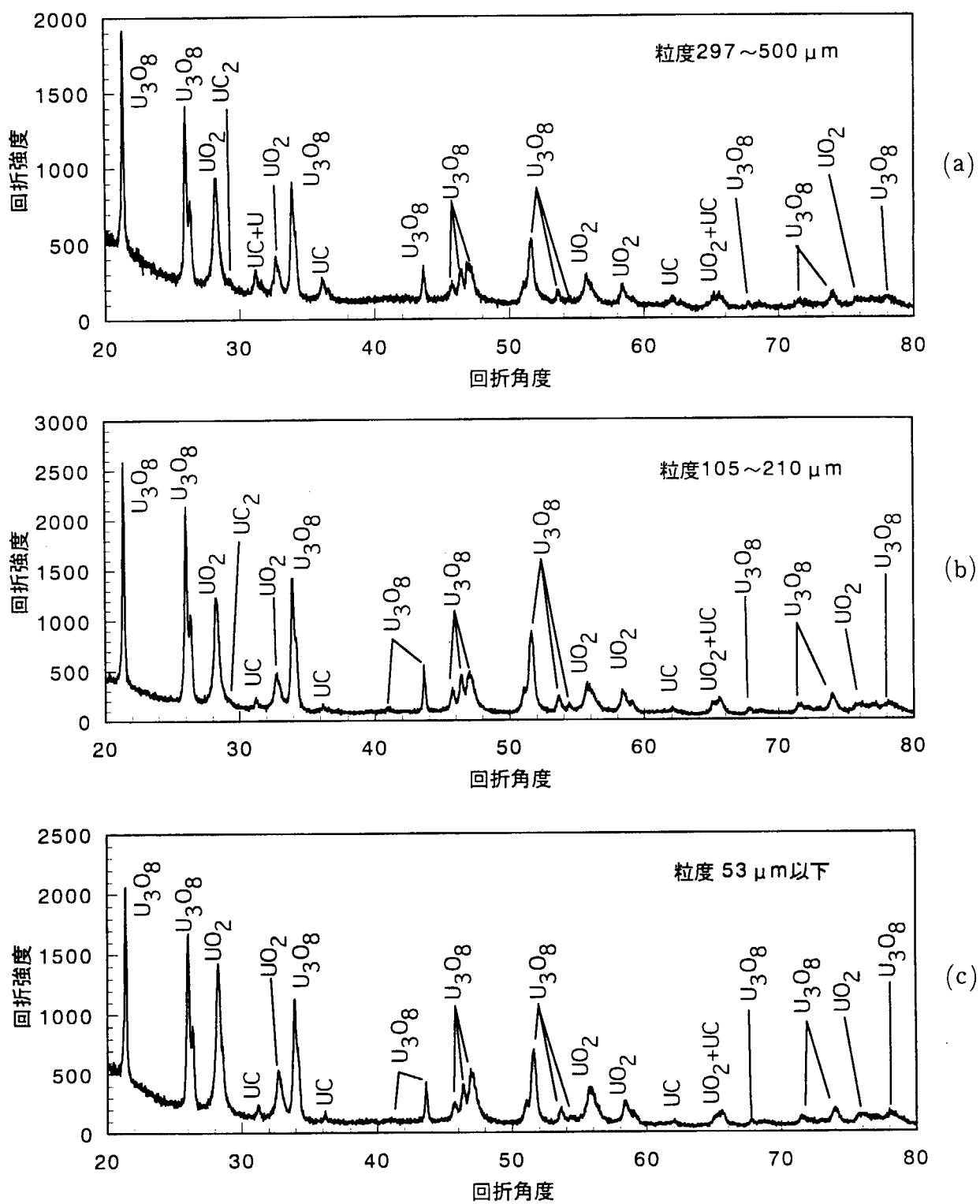


図 3.5-2 No.2 缶から回収した試料の X 線回折チャート

(a) 粒度 297~500 μm の試料、(b) 粒度 105~210 μm の試料、  
(c) 粒度 53 μm 以下の試料-1、(d) 粒度 53 μm 以下の試料-2

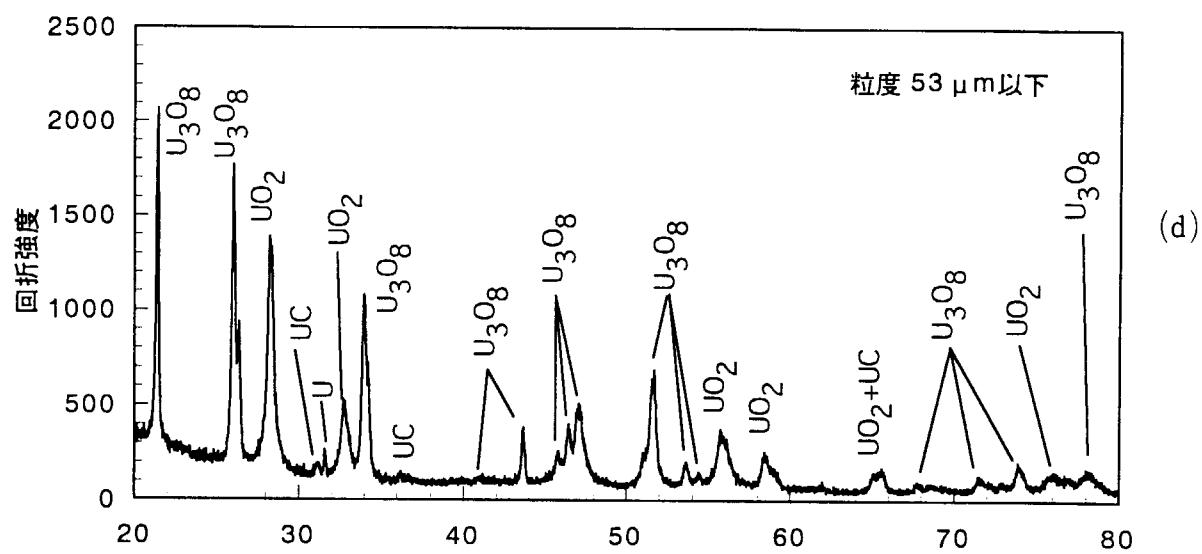


図 3.5-2 No.2 缶から回収した試料の X 線回折チャート(続き)

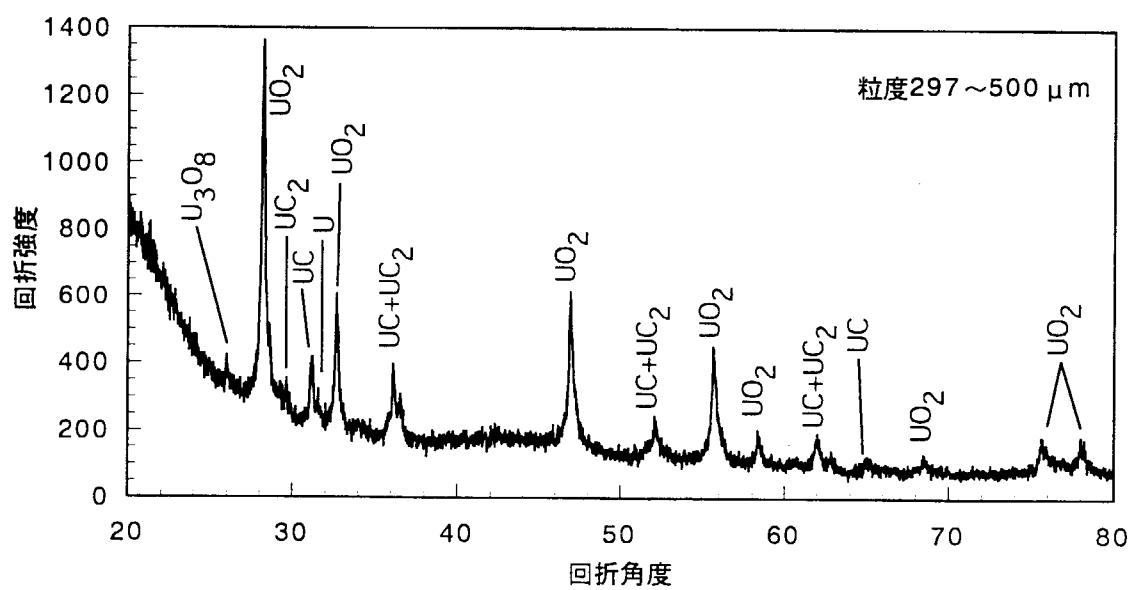


図 3.5-3 No.8 缶から回収した試料の X 線回折チャート

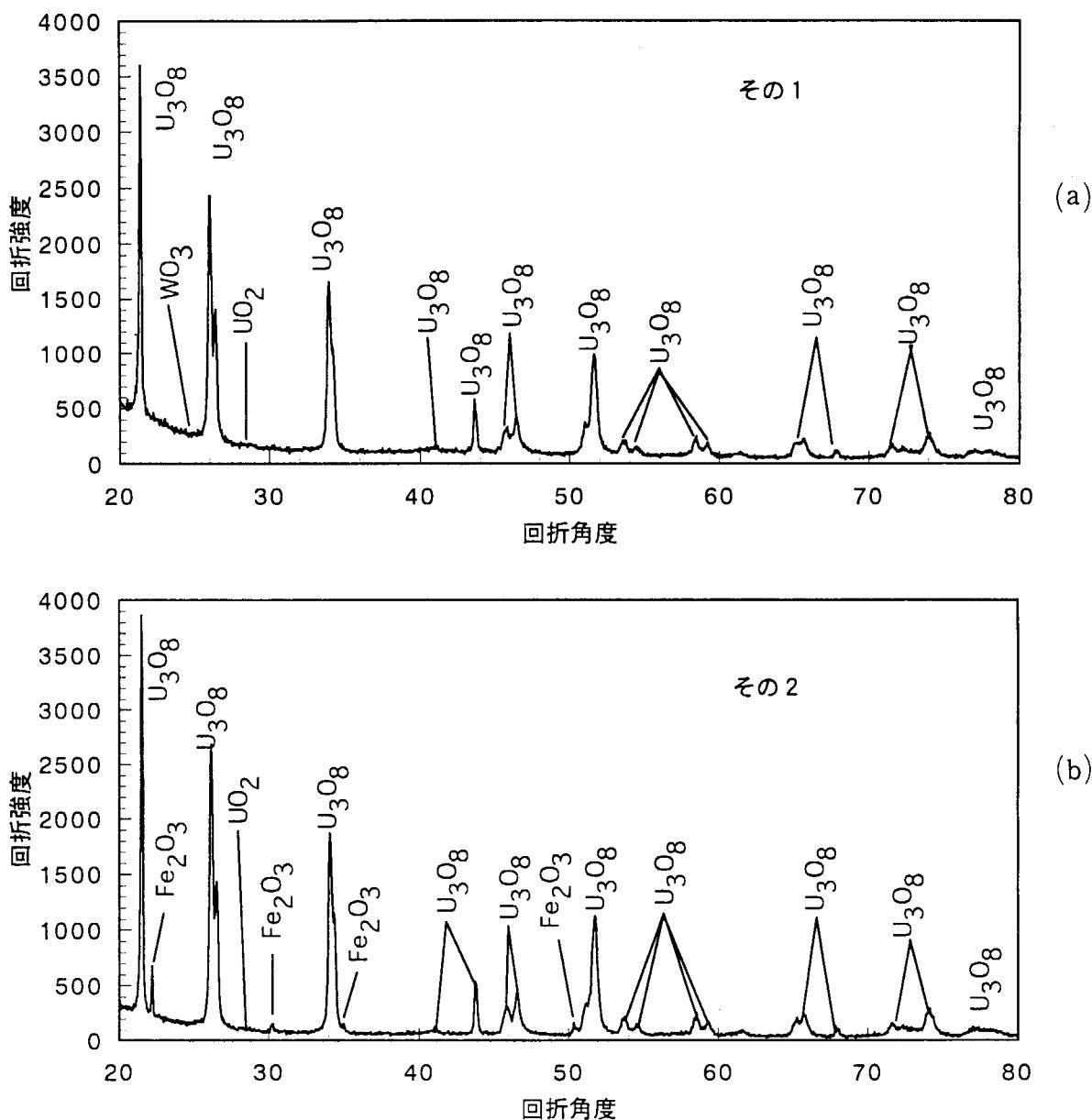


図 3.5-4 No.11 缶から回収した試料の X 線回折チャート  
(a) 試料-1、(b) 試料-2

### 3.6 ウラン屑の示差熱重量分析

燃料照射研究室

高野公秀、菊地啓修、湊 和生

ウラン屑の空气中における酸化挙動を明らかにするとともに、不活性ガス（アルゴン）中におけるウラン屑の化学的安定性を確認した。また、ウラン屑を収納していたポリエチレン袋の空气中における融解・燃焼挙動を明らかにした。

#### 3.6.1 試料及び試験方法

示差熱重量分析装置 (TA Instruments 社製、SDT2960) を用いて、大別して、4種類の試験を行った。それらは、(1) ウラン屑の空气中加熱試験、(2) ウラン屑のアルゴン中加熱試験、(3) No. 11 缶の残存物の空气中加熱試験、及び (4) ポリエチレン袋の空气中加熱試験である。

ウラン屑の空气中加熱試験では、No. 1 缶及び No. 2 缶から採取したウラン屑を粒度により分級した後の試料を用いた。No. 1 缶試料では、粒度が、 $>840\text{ }\mu\text{m}$ 、 $297\text{--}500\text{ }\mu\text{m}$ 、 $105\text{--}210\text{ }\mu\text{m}$ 、及び $<53\text{ }\mu\text{m}$ の試料を、No. 2 缶では、粒度が $>840\text{ }\mu\text{m}$ の試料を対象にした。1回の測定には、約 9mg~約 84mg の試料を用いた。昇温速度は  $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$  とし、ポンベからの空気の供給速度は  $120\text{ml}/\text{min}$  とした。

ウラン屑のアルゴン中加熱試験では、No. 1 缶試料の 2種類の粒度 ( $>840\text{ }\mu\text{m}$  及び  $297\text{--}500\text{ }\mu\text{m}$ ) の試料を対象にした。測定には、約 43 及び約 33mg の試料を用いた。昇温速度は  $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$  とし、アルゴンガスの供給速度は  $150\text{ml}/\text{min}$  とした。

No. 11 缶の残存物の空气中加熱試験では、分級していない採取した試料を対象にした。測定には、約 144mg の試料を用いた。昇温速度は  $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$  とし、ポンベからの空気の供給速度は  $120\text{ml}/\text{min}$  とした。

ポリエチレン袋の空气中加熱試験では、新品のポリエチレン袋から試験片を切り出した。測定には、約 18mg の試料を用いた。昇温速度は  $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$  とし、ポンベからの空気の供給速度は  $120\text{ml}/\text{min}$  とした。

#### 3.6.2 結果及び考察

##### (1) ウラン屑の空气中加熱試験

No. 1 缶及び No. 2 缶試料を用いて、空気気流中の示差熱重量分析を 8 回行った。それらの結果の概要を表 3.6-1 に示す。ここで特徴的なことは、試料粒度が粗いものほど酸化による重量増加率が大きいことである。これは、粒度が粗い試料の方が、ウラン炭化物及び金属ウランの含有量が多いためであると考えられる。

粒度の粗い試料 ( $>840\text{ }\mu\text{m}$ ) の示差熱重量分析の結果の一例 (実験番号 1) を図 3.6-1 に示す。この実験では、 $350^{\circ}\text{C}$ を超えたところから急激に大きな発熱が始まり、試料重量の急激な増加が認められた。この現象は、金属ウランが発火したものと考えられる。ただし、それにともない試料が試料容器から溢れ出たために、昇温の途中であったが、測定を

中止した。

この現象を再現させるために、No. 1 缶及びNo. 2 缶試料の同粒度 ( $>840 \mu\text{m}$ ) の試料で4回の追加実験（実験番号2、3、7及び8）を行った。その4回のうち3回は、図3.6-2に実験番号3の結果を示すように、実験番号1の場合とは異なり、大きな発熱ピークは認められず、試料の酸化は比較的穏やかに進行した。しかし、残りの1回の実験（実験番号7）では、図3.6-3に示すように、約400°Cに鋭い発熱ピークが認められた。実験により異なった結果が得られたのは、ウラン屑の試験片ごとに組成が異なること、及び1回の測定に用いる試料の量が少ないことが原因であると考えられる。なお、比較のために行った、金属ウラン塊（約12mg）の空気気流中の示差熱重量分析結果を図3.6-4に示す。金属ウランの発火温度は、固有なものではなく、試料の寸法、形状、比表面積などに依存することが知られている。

粒度のより細かい試料（297-500、105-210、及び $<53 \mu\text{m}$ ）では、鋭い発熱ピークは認められず、試料の酸化は穏やかに進行した。代表例として、No. 1 缶試料の粒度が105-210  $\mu\text{m}$ の試料の示差熱重量分析の結果を図3.6-5に示す。

#### (2) ウラン屑のアルゴン中加熱試験

No. 1 缶試料の粒度の粗い試料 ( $>840 \mu\text{m}$ ) のアルゴンガス気流中の示差熱重量分析の結果を図3.6-6に示す。ウラン炭化物及び金属ウランの含有量が多い粒度の粗い試料 ( $>840 \mu\text{m}$ ) では、900°Cまでの示差熱分析において、発熱ピークは認められなかった。ただし、671°Cと777°Cに2本の吸熱ピークが認められた。これら2本の吸熱ピークは、金属ウランの2つの相変態、 $\alpha \rightarrow \beta$  (668°C) 及び $\beta \rightarrow \gamma$  (776°C)、にそれぞれ対応していると考えられる。ウラン炭化物は、室温から900°Cの間に相変態は存在しない。試料重量については、900°Cまでの加熱において、約1%の増加が認められたが、これは、加熱雰囲気中の不純物酸素による試料の酸化の影響と考えられる。

粒度のより細かい試料（297-500  $\mu\text{m}$ ）では、900°Cまでの示差熱分析において、上記試料と同様に、ごく小さい2本の吸熱ピークが認められたが、発熱ピークは認められなかった。吸熱ピークが小さいのは、測定試料中の金属ウランの含有量が少ないと考えられる。

#### (3) No. 11 缶の残存物の空气中加熱試験

No. 11 缶試料の空気気流中の示差熱重量分析の結果を図3.6-7に示す。示差熱分析では、ベースラインの緩慢なドリフトが見られるものの、吸熱及び発熱のピークは認められなかった。また、試料重量については、800°Cまでの加熱において、変化は認められなかった。No. 11 缶試料は、試料採取時点において、ほぼ酸化の終点である  $\text{U}_3\text{O}_8$  まで到達していたと考えられる。

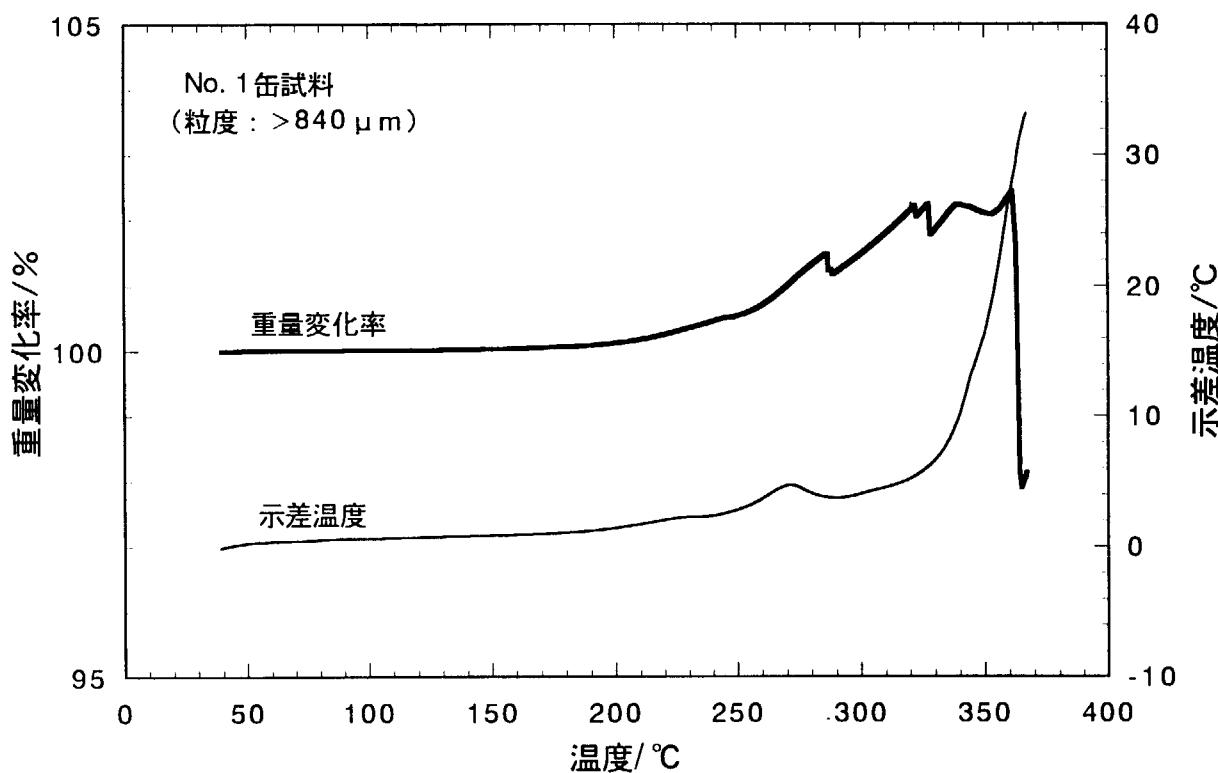
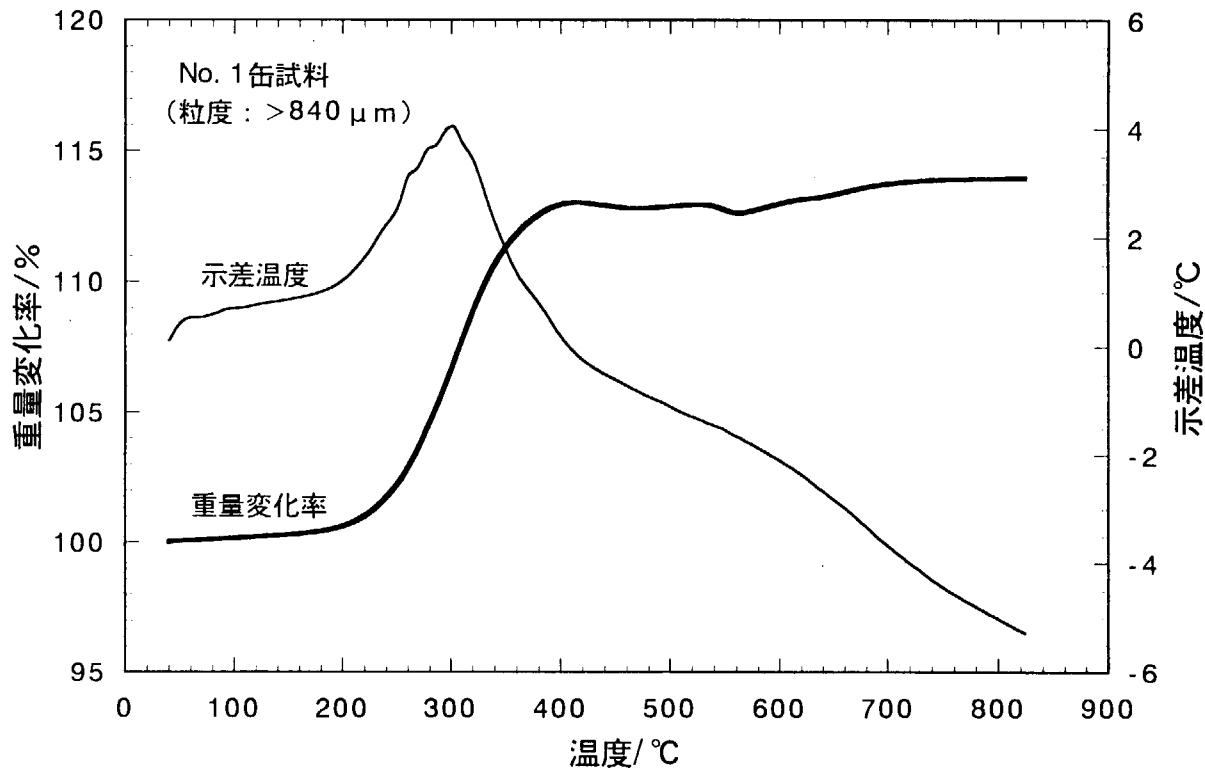
#### (4) ポリエチレン袋の空气中加熱試験

ポリエチレン袋の空気気流中の示差熱重量分析の結果を図3.6-8に示す。示差熱分析で

は、約 120°Cに吸熱ピークが、約 250°Cに発熱ピークが、それぞれ認められた。重量は、約 250°Cまでほとんど一定であったが、それ以上の温度では急激に減少した。約 120°Cの吸熱ピークは、ポリエチレンの融解を示し、約 250°Cの重量減少をともなう発熱は、融解したポリエチレンの燃焼（酸化）を示していると考えられる。

表 3.6-1 ウラン屑の空気中加熱試験結果の概要

実験番号	試料缶名	試料粒度 ( $\mu\text{m}$ )	重量増加率 (%)	発熱挙動
1	No. 1 缶	>840	-	大きな発熱ピーク
2			13.2	緩慢な発熱
3			14.0	緩慢な発熱
4		297-500	10.0	緩慢な発熱
5		105-210	6.7	緩慢な発熱
6		<53	2.4	緩慢な発熱
7	No. 2 缶	>840	13.2	大きな発熱ピーク
8			19.9	緩慢な発熱

図 3.6-1 No.1 缶の試料(>840  $\mu\text{m}$ )の空気中の示差熱重量分析結果（実験番号 1）図 3.6-2 No.1 缶の試料(>840  $\mu\text{m}$ )の空気中の示差熱重量分析結果（実験番号 3）

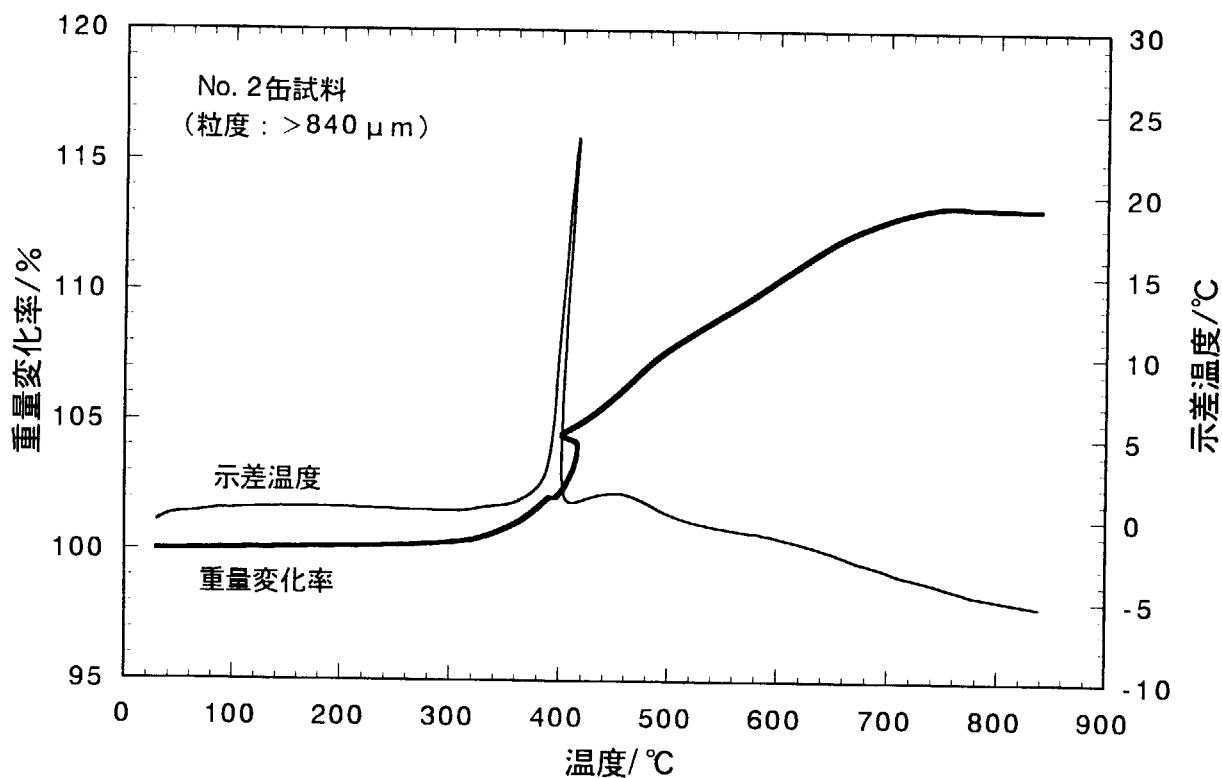
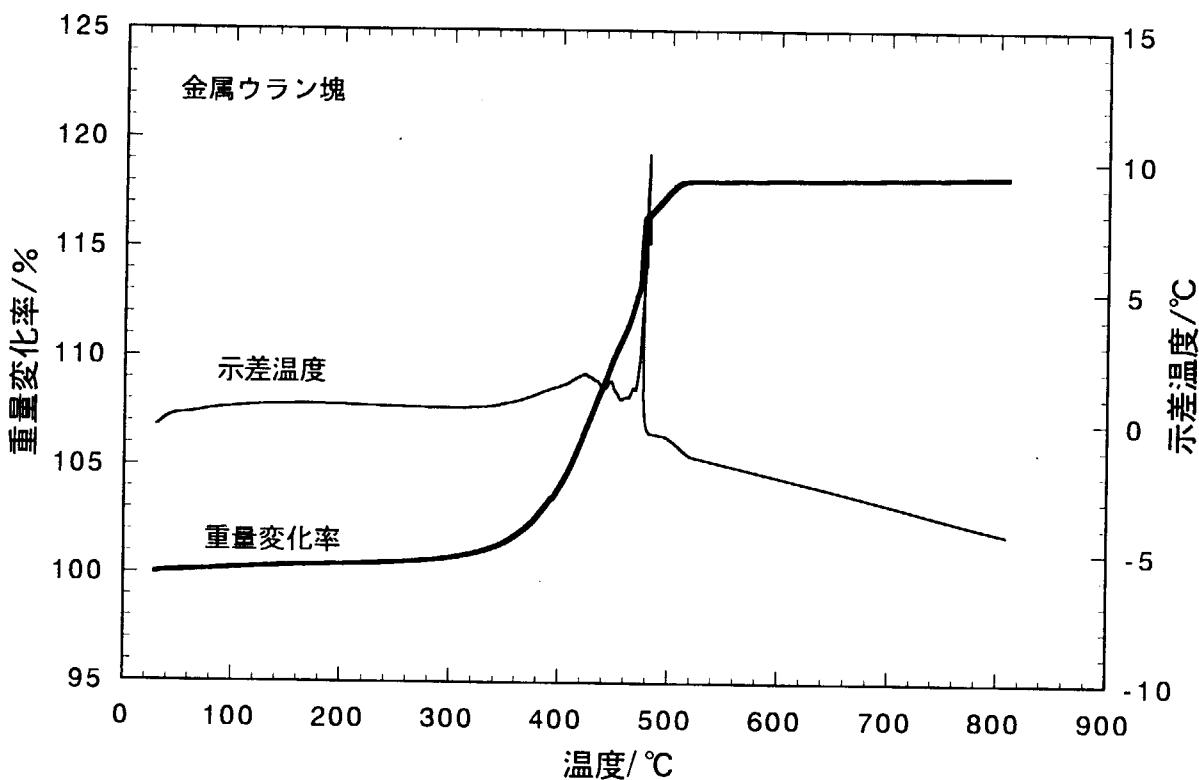
図 3.6-3 No.2 缶の試料(>840  $\mu\text{m}$ )の空気中の示差熱重量分析結果 (実験番号 7)

図 3.6-4 金属ウラン塊の空気中の示差熱重量分析結果

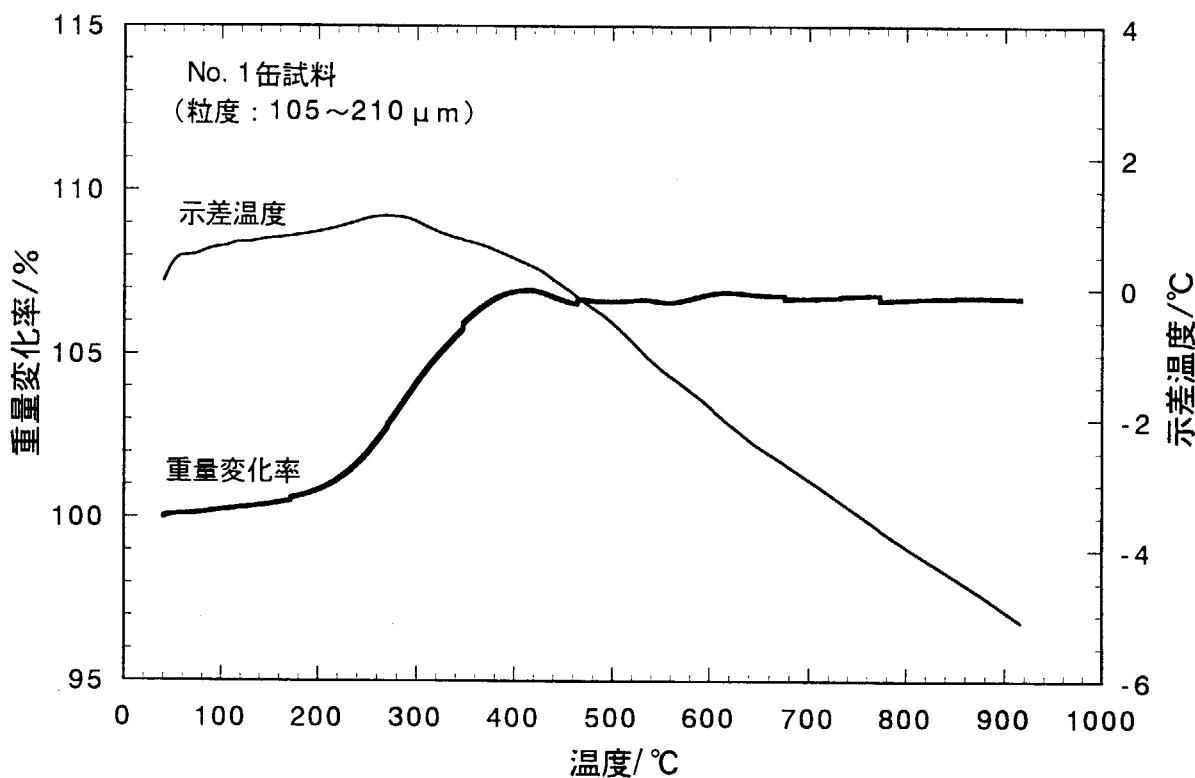


図 3.6-5 No.1 缶の試料(105–210  $\mu\text{m}$ )の空気中の示差熱重量分析結果  
(実験番号 5)

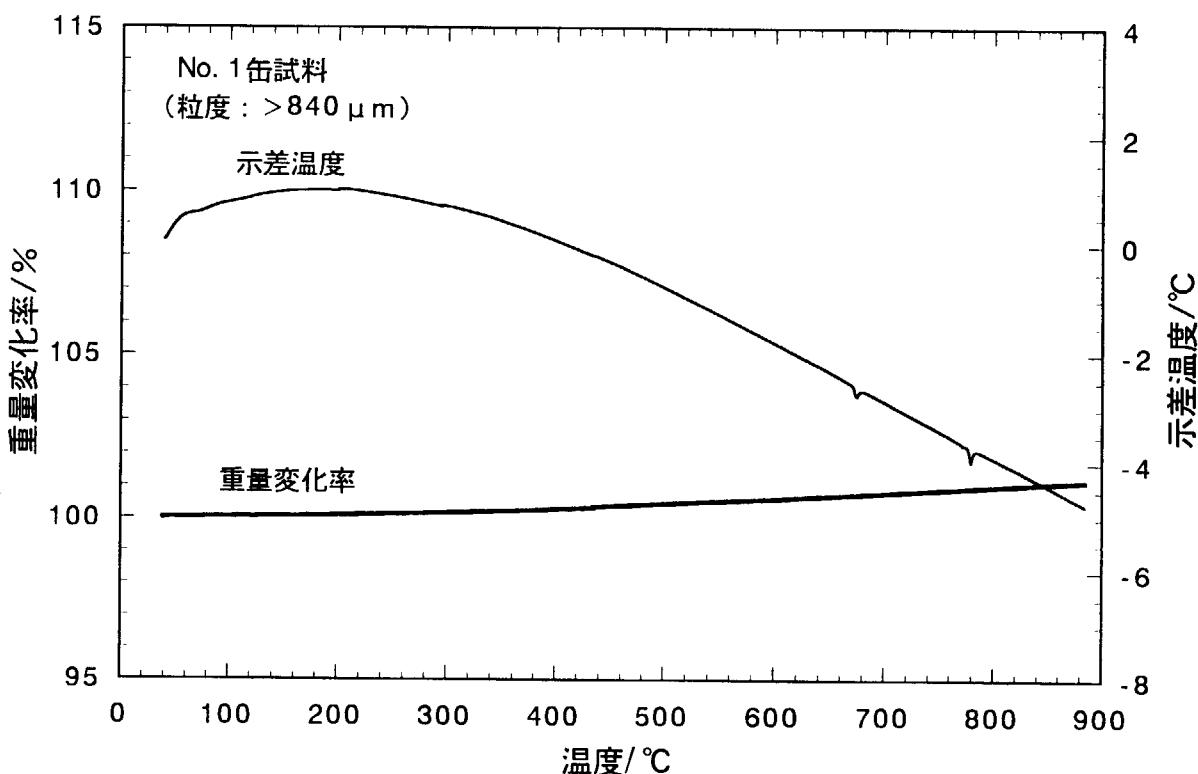


図 3.6-6 No.1 缶の試料(>840  $\mu\text{m}$ )のアルゴンガス中の示差熱重量分析結果

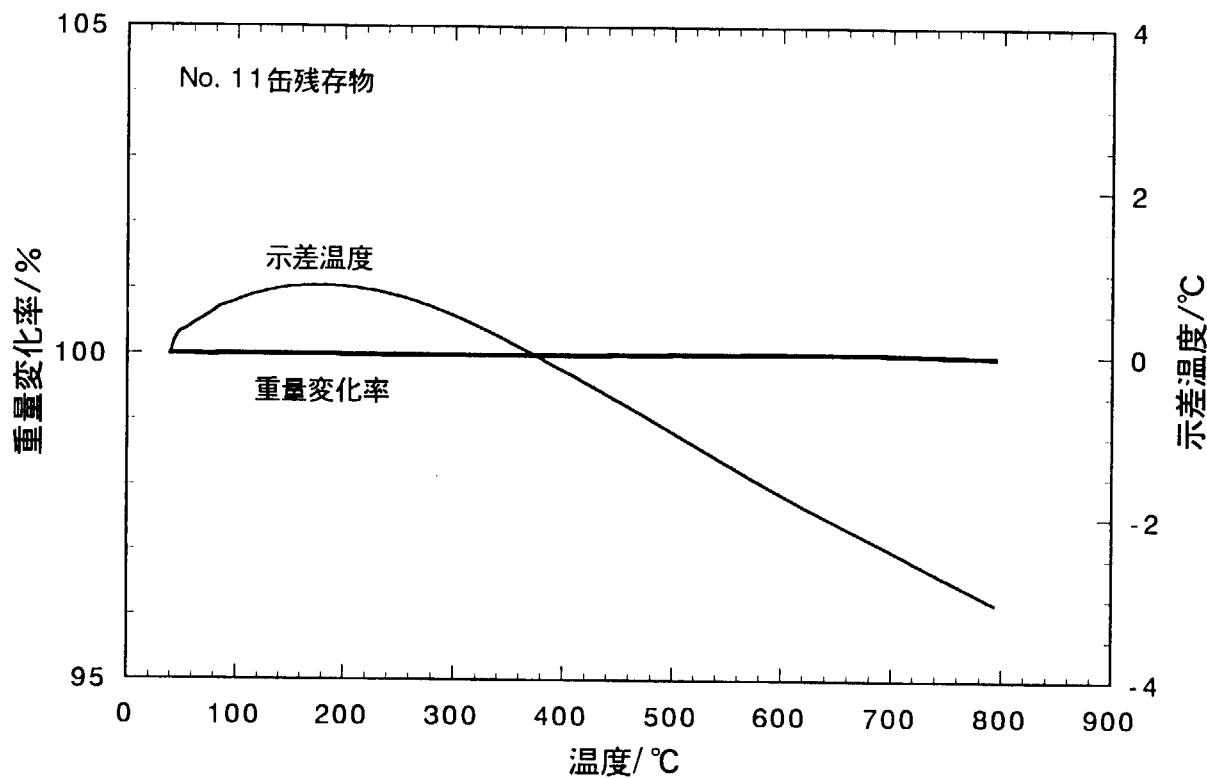


図 3.6-7 No.11 缶の残存物の空気中の示差熱重量分析結果

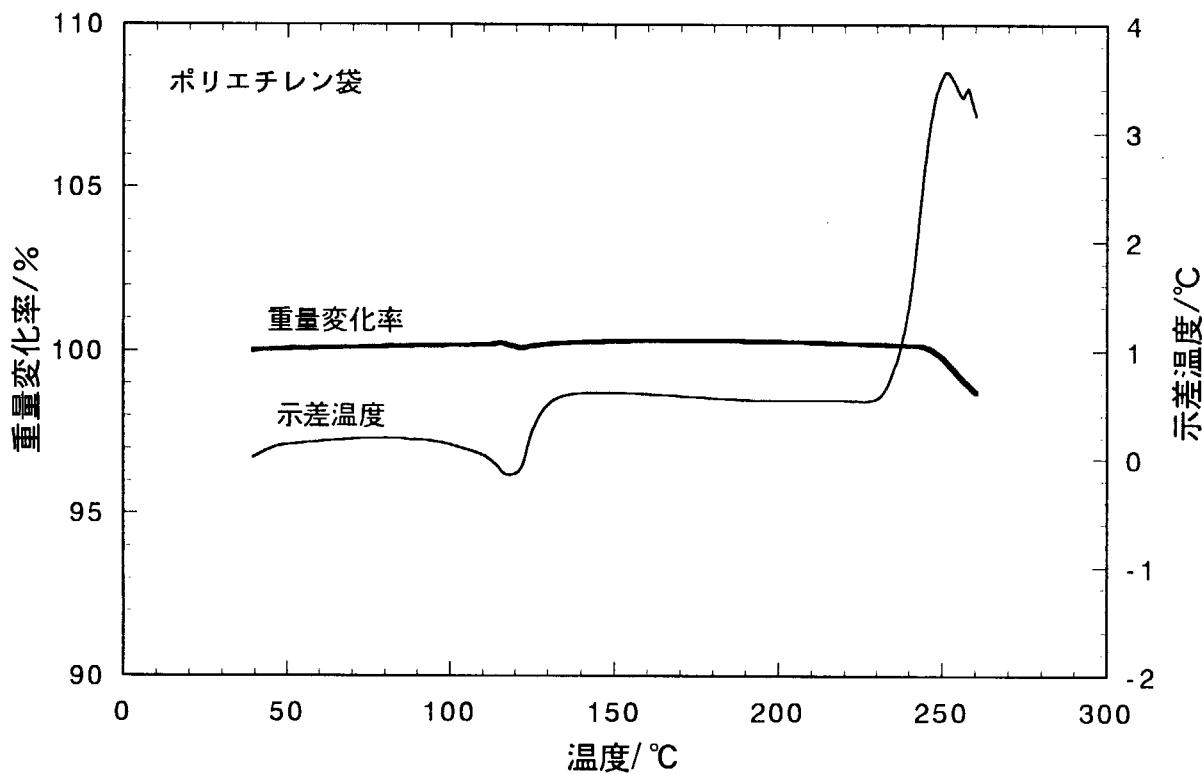


図 3.6-8 ポリエチレン袋の空気中の示差熱重量分析結果

### 3.7 ウラン屑の水分分析

融体・燃料プロセス研究室 小林紀昭、赤堀光雄

今回の火災事故において、爆発及びウラン屑の飛散が起こったとされる No. 11 缶に保管されていたウラン屑には相当量の水分が混入していたことが明らかとなり、爆発原因として含有水分とウラン屑との反応が考えられた。そこで、健全であった金属缶中のウラン屑に含有する水分量を推定するために真空加熱による重量変化の測定を行った。

#### 3.7.1 方法

測定したウラン屑は、第1回及び2回の作業（2章参照）で採取した健全缶No.1、No.2及びNo.8と、残りの健全缶ウラン屑の不活性ガス置換作業（平成9年12月17日及び18日に実施）時に採取した7種（No.3～No.7、No.9及びNo.10缶）である。

ウラン屑中に含有する水分量を評価するために、加温真空乾燥法による重量変化を測定した。ウラン屑試料は、分級前のウラン屑を不活性雰囲気グローブボックス内で分取したものを用いた。真空乾燥はガラス製の容器を用いて、室温、100、200及び300°Cで各々約10時間、高真空中に保持することにより行い、記録計によりモニターした真空度がほぼ一定値（約 $10^{-6}$  torr以下）を示した時点で乾燥を停止した。ここで、健全缶7種のウラン屑の水分測定については、加温条件を300°Cのみで行った。重量変化は、試料容器ごと不活性雰囲気グローブボックス内で測定した。

#### 3.7.2 結果

##### (1) 健全缶 No. 1、No. 2 及び No. 8

表 3.7-1 及び図 3.7-1 に加温真空処理後の各容器から採取したウラン屑の積算した重量変化を示した。どの容器から採取したウラン屑においても、室温から 0.1wt%弱の重量減少が観測され、さらに処理温度を上げるとともに積算の重量減少は増大している。300°Cまでの加温真空処理後の重量減少は、No. 8 缶のウラン屑で最も少なく約 0.05wt%、No. 2 缶の約 0.13wt%、No. 1 缶で最も大きく約 0.2wt%であった。結果として、健全缶中のウラン屑に含有されている水分量は、約 0.2wt%以下であると推定された。

これらの重量減少は、ウラン屑、主として微細な粉末屑に吸着している水分の真空処理による脱離によるものと考えられ、ウラン屑の特性、特に粒度に大きく依存することが予想される。従って、No. 1 缶では微細な粉末成分が多く、逆に No. 8 缶では微細成分が少ないと考えられる。

##### (2) その他の健全缶 (No. 3～No. 7、No. 9 及び No. 10)

表 3.7-2 に 300°C 加温真空処理後の重量変化を示す。重量減少が 0.55wt%と比較的高い No. 4 缶のウラン屑を除けば、他は 0.1wt%以下がほとんどであった。

表 3.7-1 加温真空処理後のウラン屑の重量変化

缶 No.	重量 (g)	重量変化(%)			
		室温	100°C	200°C	300°C
No.1	6.1493	-0.073	-0.128	-0.174	-0.197
No.2-1	4.5323	-0.088	-0.095	-0.115	-0.128
No.2-2	3.7515	-0.091	-0.104	-0.117	-0.131
No.8	10.5785	-0.029	-0.040	-0.049	-0.054

表 3.7-2 300°C加温真空処理後のウラン屑 (No.3~No.7、No.9 及び No.10 缶) の重量変化

缶 No.	重量(g)	重量変化(%)
No.3	3.4384	-0.055
No.4	5.4307	-0.550
No.5	4.1766	-0.050
No.6	2.0053	-0.145
No.7	2.7454	-0.055
No.9	3.3877	-0.053
No.10	8.8910	-0.017

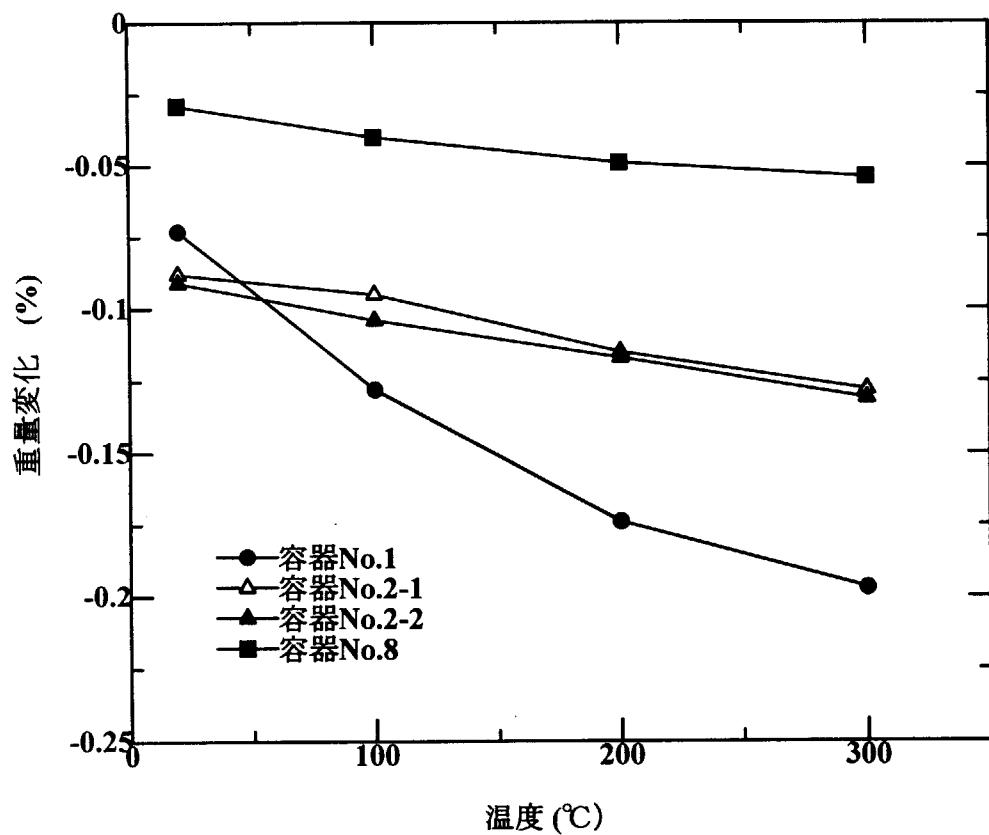


図 3.7-1 加温真空処理後のウラン屑の重量変化

### 3.8 飛散試料分析

融体・燃料プロセス研究室 伊藤昭憲、赤堀光雄

火災事故原因の解明のためには、事故現場に飛散している種々の物質について、ウランが含まれているかどうか、さらにそれらがどのようなウラン化合物であるかを明らかにする必要があった。そこで、採取された種々の飛散物について放射能測定及び EPMA による元素分析を実施した。

#### 3.8.1 方法

第1及び2回の採取試料(2.1節参照)である飛散物3種(黒色粉末、焦げウェス及び薄片)の放射能測定は、適当量試料を直径5cm深さ5mmのステンレス製試料皿に採り、 $\alpha$ 線及び $\beta \cdot \gamma$ 線サーベイメータで直接測定した。測定は3回行い、平均の計数率を求めた。

また、No.8缶外容器の蓋上から採取した板状破片(大きい破片1個(11.1g)及び小片3個)については、大きい破片の一部と小片3個をエポキシ樹脂に埋め込み、3.4.1に述べた手順・方法と同様に、研磨、観察、分析を行った。

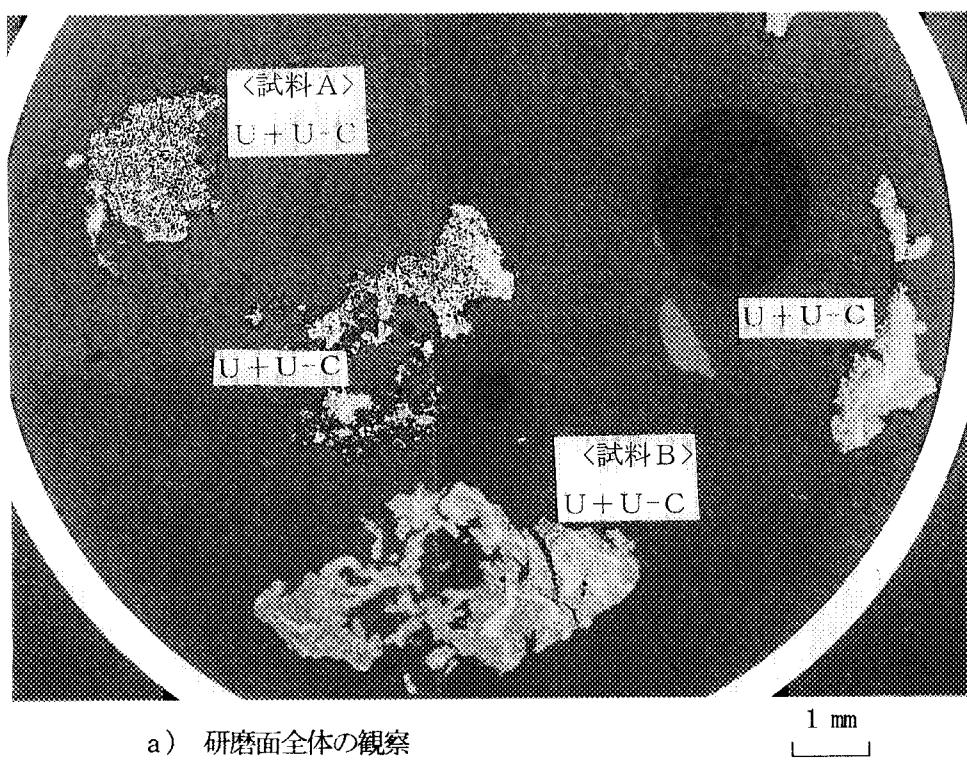
#### 3.8.2 結果

表3.8-1に飛散物3種の放射能計数率を示す。黒色粉末は放射能強度が著しく高くウラン酸化物であり、また、薄片は汚染程度の放射能強度であることから、紙等の焦げたものであると考えられる。焦げウェスは $\alpha$ 及び $\beta \cdot \gamma$ とともにバックグラウンドレベルであり、ウランの付着等はないと推定される。

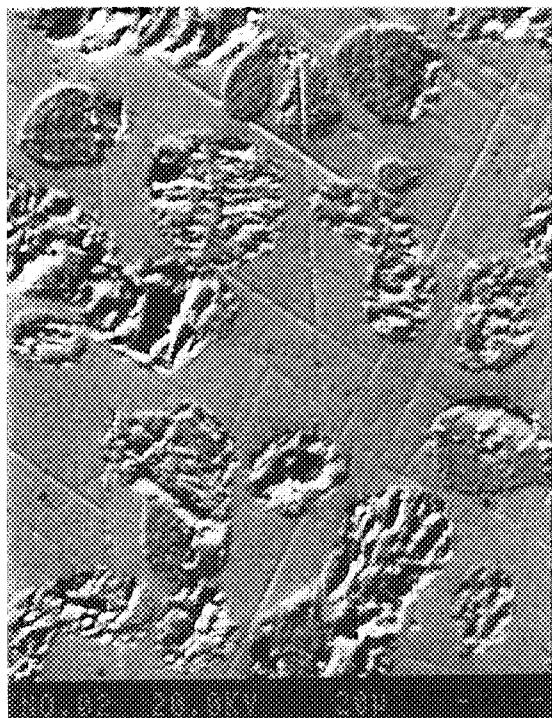
No.8缶蓋上から採取した試料全体の断面の様子を図3.8-1a)に示す。EPMAによる分析の結果、同図b)及びc)に示すように、約数~40 $\mu\text{m}$ のU-C粒子が分散した金属ウランであることが分かった。粒子の大きさ及び占める割合は異なるが、4個とも同じものである(同種の試料は、3.4節で述べたように、No.2缶より採取した試料にも含まれている)。定量の結果、10 $\mu\text{m}$ 以上の粒子はほぼUCに近い組成である。

表3.8-1 飛散試料の $\alpha$ 及び $\beta \cdot \gamma$ 線計数率

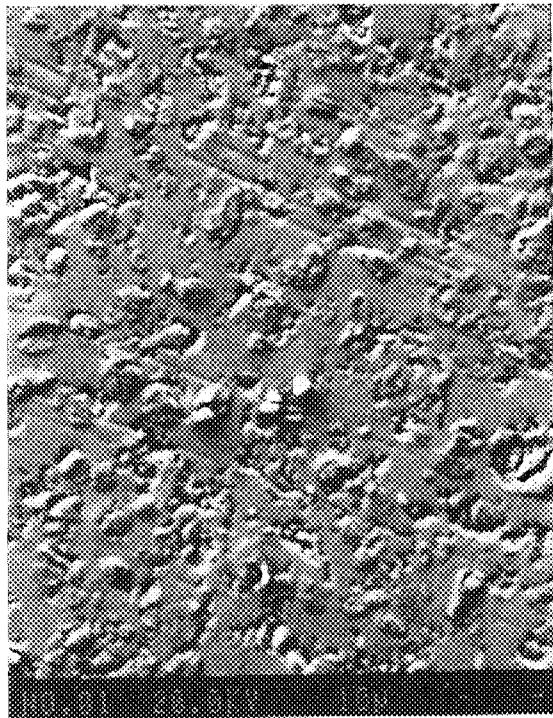
試料	$\alpha$ (cpm)	$\beta \cdot \gamma$ (cpm)
黒色粉末	200	11600
薄片	8	170
焦げウェス	3	59
バックグラウンド	2	73



a) 研磨面全体の観察



b) 試料Aの拡大 (BS像)  
U-C粒子が分散したU金属



c) 試料Bの拡大 (BS像)  
小さいU-C粒子が分散したU金属

図 3.8-1

No.8 缶蓋上の飛散物の断面観察写真

### 3.9 燃焼残留物分析

融体・燃料プロセス研究室	小林紀昭、伊藤昭憲
同位体分離研究室	鈴木庸氏
分析センター	渡部和男

火災現場の燃焼した固体廃棄物の入ったカートンボックス等の残留物を採取し、放射能測定法によるウラン量の推定を行った。

#### 3.9.1 方 法

##### (1) 試料及び測定器

採取した試料については、2.2節第3回採取の図2.2-1を参照のこと。

校正用の重量既知のウラン試料は、天然二酸化ウラン粉末 10 g をポリエチレン製の袋に入れ、カートンボックスの底部全面に分散させた。

測定器には、 $\beta \gamma$  放射能測定器 TCS-136、計数効率  $4.7 \times 10^{-2}$  を用いた。

##### (2) 測 定

燃焼残留物試料を可燃性固体廃棄物用のカートンボックスに入れ、 $\beta \gamma$  放射能測定器を用いて、底部側面約 90 度の対角線上で 4 カ所及び底部下面中央 1 カ所の合計 5 カ所で放射能を測定した。

測定値は、校正用のウランを用いて試料と同様に測定して得られた計数値で補正し、試料のウラン量を計算した。

#### 3.9.2 結 果

計数値の処理を測定点の計数値の最大値からウラン量を推定した場合及び測定点（5点）の計数値を合計した場合と 2 つのケースに分けて行った。なお、既知量のウラン粉末を測定して得られた計数値は、カートンボックス側面からの値が 20、16、18 及び 16 kcpm であり、底部中央から測定した値が 62 kcpm であった。表3.9-1 及び 3.9-2 に残留試料のウラン推定値を示す。両者の推定値はほぼ一致している。なお、表中のD試料のウランは、No. 11 金属缶から飛散したウランであると推測できる。しかし、他の試料のウランに関しては、カートンボックス内の廃棄物中に存在していたウランと No. 11 缶から飛散したウランの含量となっており、区別は不可能である。

表 3.9-1 燃焼残留物中のウラン量の推定値—測定点の最大値から計算した場合

試 料	測定値 (k cpm)	ウラン量 (g)
a (カートンボックス ; 11 缶わき)	5	1
b (カートンボックス ; 11 缶わき)	15	2
c (カートンボックス ; 11 缶より 70 cm)	2	0
d (カートンボックス ; 11 缶わき)	22	3
D (から内容器ふた上の粉末)	45	6
f (カートンボックス ; 11 缶より 1.2m)	50	7
D1 (から内容器のふた)	2	0
e (濡れウエス)	14	2
焦げた塊	0.2	0
校正用ウラン試料 (二酸化ウラン粉末、10 g)	62	8.8

表 3.9-2 燃焼残留物中のウラン量の推定値—全測定点（5 点）の計数値を合計した場合

試 料	測定値 (k cpm)	ウラン量 (g)
a (カートンボックス ; 11 缶わき)	16	1
b (カートンボックス ; 11 缶わき)	24	2
c (カートンボックス ; 11 缶より 70 cm)	5	0
d (カートンボックス ; 11 缶わき)	61	4
D (から内容器ふた上の粉末)	75	5
f (カートンボックス ; 11 缶より 1.2m)	115	8
D1 (から内容器のふた)	8	1
e (濡れウエス)	26	2
焦げた塊	1	0
校正用ウラン試料 (二酸化ウラン粉末、10 g)	132	8.8

### 3.10 金属缶シリコンゴムパッキンの加熱試験

燃料照射研究室

菊地啓修、芹澤弘幸、高野公秀、  
湊 和生

ウラン屑を収納していたステンレス製外容器の蓋部分のシリコンゴムパッキンの加熱に伴う劣化について調べるために、新品のシリコンゴムパッキンの加熱試験を行い、外容器蓋が抜け飛んだ No. 11 缶の回収されたシリコンゴムパッキンの劣化の度合いと比較した。

#### 3.10.1 試験方法

##### (1) 示差熱重量分析

シリコンゴムパッキンの一部を切り出し、DTG (TA Instrument 社製 : Simultaneous TGA-DTA, SDT2960) を用いて、示差熱重量分析を行った。測定は、同種のステンレス製容器の密封に用いられる 2 種類のシリコンゴムを対象とし、アルミナ製試料容器を用いて、空気気流中で 10°C/min の昇温速度で行った。

##### (2) 等温加熱試験

実際に使用されていたものと同一規格のシリコンゴムパッキンの一部を切り出し、マッシュフル炉を用いて、空気雰囲気で等温加熱試験を行った。試験温度は、150°C、200°C、250°C 及び 300°C とした。試験片は、試験温度ごとに 2 枚ずつ用意した。電気炉の温度が一定になったことを確認した後、これらの試料を、ムライト製試料ボートに乗せて電気炉内にセットし、1 時間後及び 2 時間後に 1 枚ずつ取り出して、変色等の異常について観察を行った。また、事故現場から回収したシリコンゴムパッキンを洗净し、外観観察を行うとともに、表面の変色を加熱試験に供した試料と比較した。

#### 3.10.2 試験結果

##### (1) 示差熱重量分析

示差熱重量分析の結果を図 3.10-1 及び図 3.10-2 に示す。図 3.10-1 の試料は、事故後緊急に入手した同種のシリコンゴムパッキンであり、実際に用いられていたパッキンとは異なるものである。図 3.10-2 の試料は、実際に使用されていたシリコンゴムパッキンと同一規格のものである。両図中の DTA 曲線は、いずれもほぼ同じ傾向を示している。図 3.10-1 では、約 70°C 及び 130°C にブロードな吸熱ピークが見られるが、これは、試料表面に付着している水分の脱離によるものであると考えられる。試料重量は 100°C から 150°C 近辺で徐々に減少し始め、350°C 近傍から急激な減少が見られた。約 350°C には、急激な発熱ピークと考えられる DTA 曲線の変化が認められた。この試料の重量減少及び発熱は、シリコンゴムの熱分解反応によると推定される。

図 3.10-3 に示差熱重量分析前後の試料の写真を示す。加熱後の試料は、全体的に茶褐色に変色し、加熱前のシリコンゴムと比較して、透明感があった。これは、シリコンゴム

内で気泡が生じた結果、密度が下がったためであると考えられる。本測定の結果、350°C付近から、急激なシリコンゴムの劣化がおこる可能性が示唆された。

## (2) 等温加熱試験

等温加熱試験後の試料片及び事故現場から回収されたシリコンゴムパッキンの写真を図3.10-4 及び図3.10-5に示す。シリコンゴムの加熱による変色は、200°C以上で顕著になり、300°Cまで加熱すると、黄土色になった。図3.10-4と図3.10-5とを比較すると、変色の度合いは、加熱時間が1時間と2時間ではそれほど差がないこともわかる。また、回収されたシリコンゴムパッキンと、加熱試験片の変色を比較すると、回収されたシリコンゴムパッキンには、300°Cで加熱した試料ほどの変色は生じていない。すなわち、回収されたシリコンゴムパッキンは、示差熱重量分析により示された、急激な熱劣化が生じる350°C以上の温度環境にはさらされていないと考えられる。

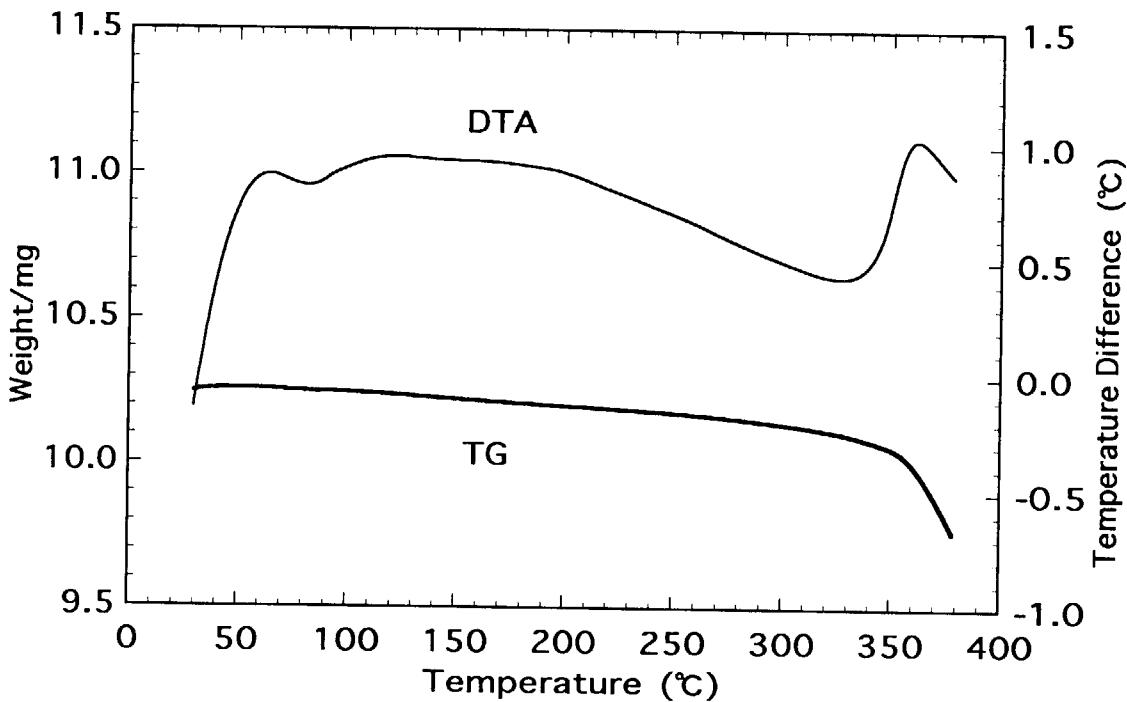


図 3.10-1 シリコンゴムの示差熱重量分析結果-1  
(事故直後に入手したパッキンであり、実際に使用されていたものとは  
形状が異なる)

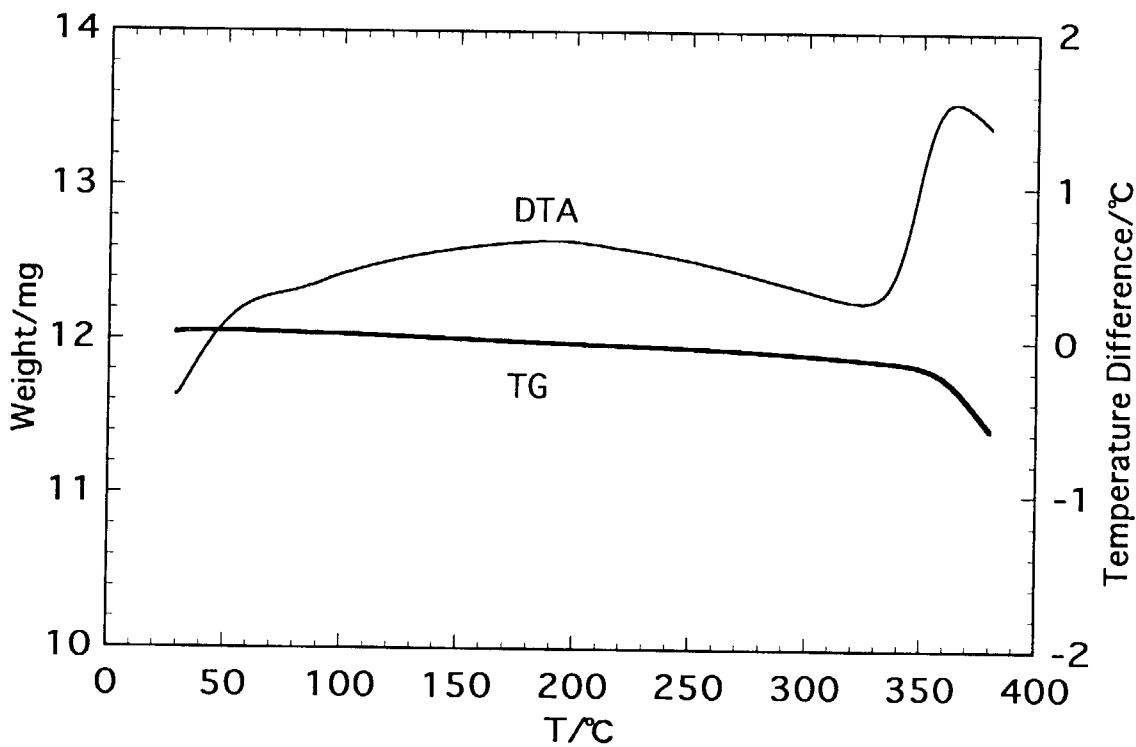


図 3.10-2 シリコンゴムの示差熱重量分析結果-2  
(事故時に使用されていたパッキンと同一規格のもの)

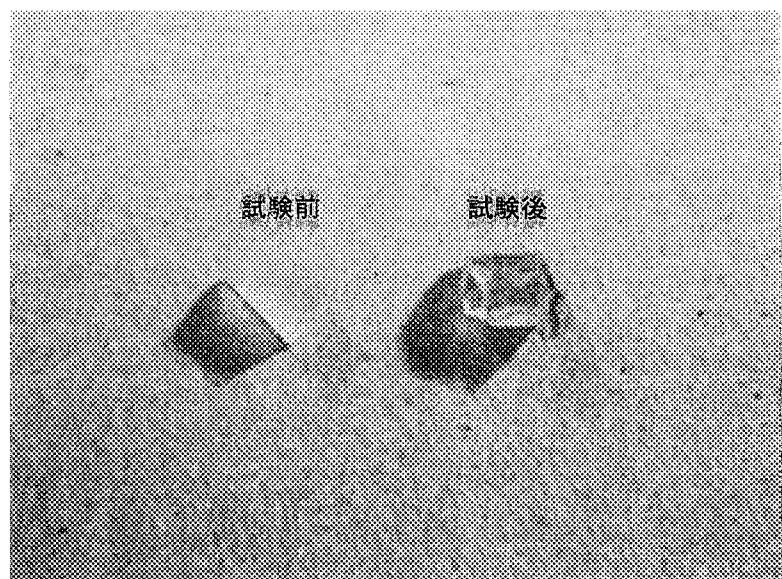


図 3.10-3 示差熱重量分析前後のシリコンゴム

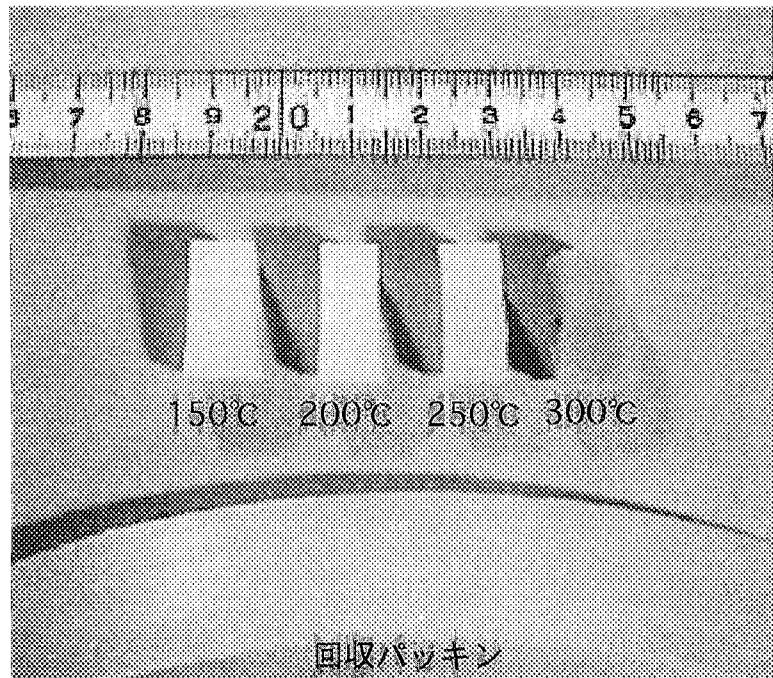


図 3.10-4 1 時間の等温加熱後のシリコンゴム試料及び回収されたシリコンゴム  
パッキン

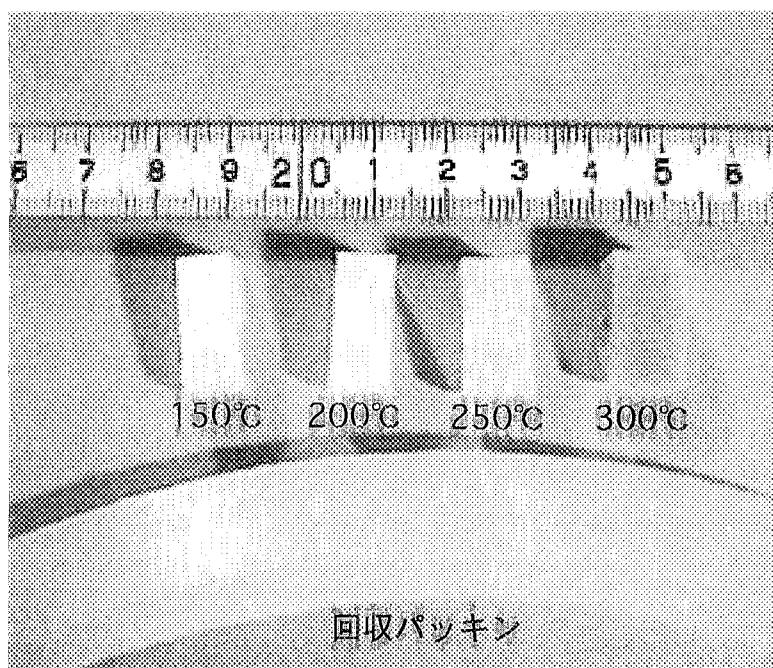


図 3.10-5 2 時間の等温加熱後のシリコンゴム試料及び回収されたシリコンゴム  
パッキン

### 3.11 内蔵ガス分析

分析センター

大内 操、渡部和男

ウラン屑の保管してある金属缶内のガス組成を分析することにより、保管中のウラン屑と空気あるいは水との反応の有無を推定することができる。火災現場にて内蔵ガス試料をガラス製試料瓶に採取し(2.1 節参照)、気体用質量分析計でその組成を測定した。

#### 3.11.1 ガス試料採取操作

##### (1) No. 1 金属缶内ガス採取

金属缶をポリエチレン製グローブバックに入れ、テープで密封した後、アルゴンガスを通気し、バック内の空気を追い出した。アルゴン通気下で、外容器の蓋を開けると同時に、予め真空引きしたガラス製試料瓶のコックを開け、外容器内蔵ガスを採取した。

内容器を取り出し、バック内に残留するガスをアルゴンで置換した後、外容器の蓋を閉じた。内容器の蓋を開けると同時に内容器内のガスを採取した。

続いて同様な操作により、内容器中のウラン屑の入ったポリエチレン袋内(ポリエチレン袋は2重であったが、2枚一緒に開いた)のガスを採取した。

##### (2) No. 8 金属缶内ガス採取

この缶に関しては、No. 1 金属缶と同様に、アルゴンガス置換した後、ポリエチレン袋内(ポリエチレン袋は2重)のガスのみを採取した。

##### (3) 多目的長尺セル内ガス採取

セル胴部のメクラフランジ部にポリエチレングローブバックを取り付け密封し、内部をアルゴンで置換した後フランジを開けた。予め真空にした試料瓶の先に付けた細いビニールチューブを装置内部に挿入し、ガスを採取した。なお、この作業は、平成10年1月12日に実施した。

#### 3.11.2 ガス組成分析

採取したガスの組成分析には、気体用質量分析計(Varian Mat 社 CH7型)を使用した。ガス成分の測定は、質量電荷数(m/e)範囲2~150を走査して行い、それぞれのガス成分に相当する親イオンピーク高さと個々のガス成分の感度から組成を算出した。なお、質量分析計によるガス成分測定の検出下限は、ガスによって異なるが約10 ppmである。

#### 3.11.3 結 果

表3.11-1にNo.1及びNo.8金属缶並びに多目的長尺セルの内蔵ガス組成分析結果を示す。金属缶の場合、試料ガス組成の大半が置換に用いたアルゴン(76~98%)であったが、表中の値は、主成分アルゴンを除いて計算したものである。これらの組成は、空気組成と比較して、酸素の割合が若干低い。また、No.1缶の内容器中のガス組成とポリエチレン袋内のそれは、ほぼ一致している。水との反応生成物である水素、炭化水素等に起因する

イオンピークは観測されなかった。

また、多目的長尺セルについては、試料採取時に、セル内部にチューブを挿入したため、アルゴンガスの混入は、4%に留まった。セル内ガスには、メタンが約0.1%検出されたが、水素及び他の炭化水素は検出されなかった(10 ppm未満)。

表 3.11-1 ウラン保管金属缶及び長尺セル内臓ガス組成

試 料		(%)		
		窒素	酸素	炭化水素等
缶No.1	外容器中	80	20	<0.1
	内容器中	85	15	<0.1
	ポリ袋中(一重目)* <sup>1</sup>	86	14	<0.1
	ポリ袋中(二重目)* <sup>1</sup>	83	16	<0.1
缶 No.8	内容器+ポリ袋中	79	20	<0.1
長尺セル		81	19	0.1(メタン)
参考:空気組成		78	21	<0.01

\*<sup>1</sup>ウラン屑は、ポリエチレン袋を二重にして保管

### 3.12 加水分解生成ガスと発熱観察

分析センター

大内 操、渡部和男

ウラン屑と水との反応時に発生するガス及び熱を調べることにより、ウラン屑が燃焼するに至った事象の推定が可能である。ここでは、ウラン屑と水を密閉した容器中で反応させ生成するガスを分析すると共に、その反応の際に熱の発生が有るかどうかを調べた。

#### 3.12.1 生成ガス組成分析

##### (1) 実験方法

一端を共通テーパー摺合わせ接头（中型オス）にしたガラス製反応管にウラン屑を量り取り、ドライアイスーエタノール温度で凍結した後、水を添加した。凍結したままで真空コックを付け、真空装置に取り付け、真空度約  $10^{-6}$  mmHg に達するまで真空排気した。真空コックを閉じ、装置から取り外し、室温あるいは所定の温度に設定した恒温水槽に浸せきして放置した。

一定時間経過後、反応管を真空装置に取り付け、水銀マノメーターにより生成したガスの圧力を測定した。圧力と容積から発生したガス量を算出した。水銀テプラーポンプを用い生成ガスを試料瓶に移し、質量分析用試料とした。

生成ガス組成は、3.11 節と同様に質量分析計で測定した。

##### (2) 結果

ウラン屑の加水分解により生成したガスの組成分析結果を表 3.12-1 に示す。いずれのウラン屑についても、反応生成ガスは、メタン及び水素が大部分を占め、アセチレンが 1 ~ 8% である。他に炭素数が 3 以上の炭化水素もわずかでは有るが検出された。室温で反応させた場合、ガスの発生量は、24 時間経過しても非常にわずかであり、加水分解反応が非常に緩慢であることを示唆している。反応温度が 70°C では、ガス発生量が増加する。ただし、生成物ガス組成は、室温と高温で反応させた場合の間に大きな差は認められない。なお、No. 1 缶の試料に関しては、分級前のものを反応に使用しており、ウラン屑粒子もまちまちで粗い粒子も含んでいた。

No. 2 及び No. 8 金属缶から採取したウラン屑の場合、分級したうち粒度が  $105 \sim 210 \mu\text{m}$  及び  $297 \sim 500 \mu\text{m}$  の 2 種類を用いたが、両者の生成ガス組成間には顕著な差は認められない。なお、水素及びメタン組成割合の低い試料については、真空下、長時間かけた加水分解反応中に空気が若干混入したものと考えられる。この場合窒素のイオンピークに比べ酸素に起因するイオンピークが低くなっている。なお、70°C で反応させた場合、放置中に試料瓶がリークする場合が多い試料に関しては、改めて 60°C で反応を行わせた。

#### 3.12.2 発熱の確認

##### (1) 実験方法

No. 1 金属缶中のウラン屑 8.2 g を試験管(15×150mm, 内径 13mm) に量り取り、水

1m lを添加した後、試験管を肉厚ガラス製外管(35×150mm)に挿入、両管の隙間に石英ウールをゆるく詰めた。温度は、CA熱電対(石英製細管に挿入)を用い試験管中の試料の中央部で測定した。この反応管を室温に15時間保持した後、恒温水槽に浸せきして水槽温度を段階的に上昇させ、それぞれの温度で保持して発熱の有無を観測した。装置の概略を図3.12-1に示す。

## (2) 結 果

室温(16°C)に15時間保持したが、試料温度の上昇は観測されなかった。更に、25°C及び35°Cにそれぞれ1時間保持しても温度変化は認められなかった。45°Cでは、2時間後に2°Cの温度上昇を観測した。水槽温度が55°Cに達してから緩やかな温度上昇が観測された。試料の温度変化を図3.12-2に示す。75°Cに達してから急速に95°Cまで上昇し(約14°C/分)、その温度で約5分間留まった後、徐々に低下した。

ウラン屑には、約1cm大の塊状物質も含まれており、実験終了後に、硝酸を添加すると激しく反応して分解した。加水分解中のウラン屑の温度が95°Cに留まったのは、内径が小さい試験管中に試料が存在しているため、空気との接触が断たれ、酸素による酸化反応が進まなかつたことと、加水分解の反応熱が水の蒸発に消費されたことによると推察できる。

表 3.12-1 ウラン屑の加水分解生成ガス組成

金属缶	粒度 $\mu\text{m}$	試料量 g	水 ml	温度 °C	時間 hr	生成量 ml/g	ガス成分		
							水素	メタン	アセチレン
No.1	分級なし	1	0.2	70	7	5	32	55	2
"	"	1	0.2	70	5	1	42	48	1
"	"	1	0.2	20	7	0.2	17	54	1
"	"	1	0.2	20	24	1	32	55	2
No.2	L1-3	0.5	0.1	60	4	2	17	75	1
	L1-5	0.5	0.1	60	4	0.4	12	63	8
	L1-3	1	0.2	20	24	<0.2	18	65	2
	L1-5	1	0.2	20	24	<0.2	17	36	1
No.8	L4-3	0.5	0.1	60	4	2	15	76	1
	L4-3	0.6	0.1	20	24	2	17	68	2

L1-3, L4-3: 粒度297~500  $\mu\text{m}$ L1-5: 粒度210~105  $\mu\text{m}$

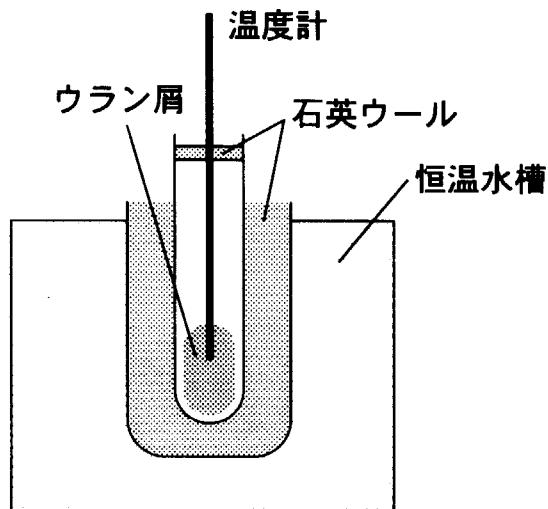


図 3.12-1 ウラン酸加水分解時の発熱測定の概念図

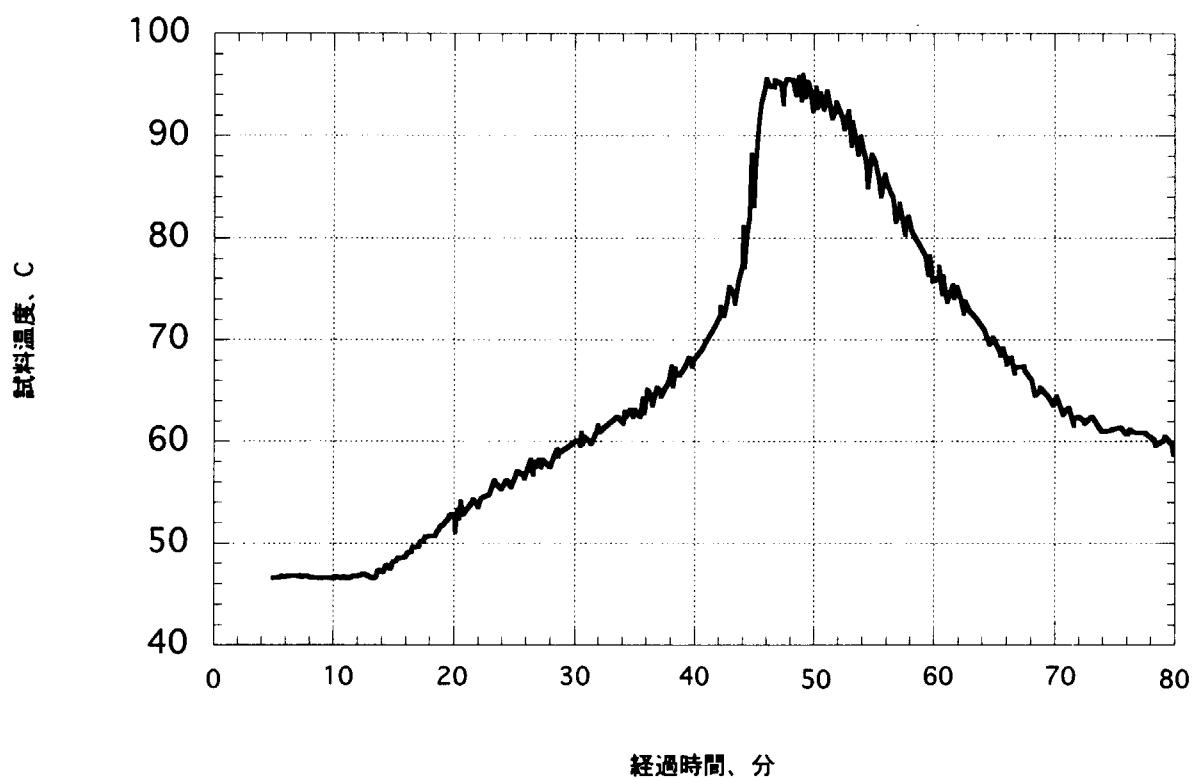


図 3.12-2 加水分解反応時のウラン酸の温度変化

経過時間：恒温水槽温度を55℃にセットしてからの時間  
恒温水槽温度は、55℃を維持

## 4. No. 11 缶の検査

融体・燃料プロセス研究室  
高温材料強度研究室

小林紀昭、赤堀光雄、岡本芳浩  
菊地賢司

事故原因調査の一環として、No. 11 缶の外観調査及び寸法測定を実施した。まず、ウラン濃縮研究棟において外観調査を実施し、容器内のウラン屑の回収及び除染を待って寸法測定を実施した。

### 4.1 外観

外観調査及び寸法測定作業は、抜け飛んでいた No. 11 缶の外容器の蓋を調べることから開始した。しかし、外容器の胴体部及び内容器については、他分析作業との調整、残ったウラン屑の処理や早期の除染が困難であったことから、まずウラン濃縮研究棟に入り目視による観察及びノギスを使用したおおまかな寸法測定を実施した（図 4.1-1）。

#### (1) 外容器蓋

図 4.1-2 に蓋の様子を示す。熱による顕著な変色は認められなかつたが、中央部を中心とした外側への膨らみ、周辺部の変形などが観察された。

#### (2) 外容器胴体

内径及び外径測定から、胴体外周部に顕著な膨れは観察されなかつた。深さ測定から、胴体底部に外側への膨れを観察した。

#### (3) 外容器金属製タガ

蓋と胴体を密着させる金属製のタガについては、若干の変形及び火災により焼けただれた跡はあるものの、大きな外観の変化は無かつた。変形の発生は、フックが健全缶のそれと比べて著しく装着しにくくなっていることからも感じることができる。また、焼けただれた部位が、一部サイドに偏っているのが特徴であった。

#### (4) 内容器蓋

除染後の様子を図 4.1-3 に示す。蓋平面部に外側への膨らみを確認した。周辺部 3 カ所に浅いくぼみが見られたが、これは上蓋を支えるための胴体部のクランプとの作用によるものと考えられる。一方、蓋凹み部の外周に直径約 1mm の穴を確認したが、この穴は健全缶では銀ロウにより塞がれているものである。

#### (5) 内容器胴体

図 4.1-4 に示すように、胴体部分で青黒く焼けた痕跡を片方の側（図では左側）に確認した。しかし、ノギスによる内径及び外径の測定では顕著な膨れ等は観察されなかつた。深さ測定では、底部に外側への膨らみを確認した。

#### (6) 内容器クランプ

内容器胴部に溶接してあるクランプは、3 つすべてが蓋に押し上げられたように外側に

大きく変形していた。図 4.1-5 にその変形の様子を示す。

#### (7) 実験室の天井及び壁などの目視調査

目視による外容器蓋の衝突による痕跡などは、その存在を確認できなかつた。実験室天井は床面から約 6 mあり、目視による傷などの痕跡確認は困難であつた。

### 4.2 寸法変化

事故現場での放射線防護服を着用したノギスの測定では精度が劣るために、容器を回収・除染した後に詳細な寸法測定を実施した。寸法測定は、3 次元寸法測定機 ((株)ミツヨ製 GEOBOX) により、直交座標XYZを点測定モードにより行った。

#### (1) 外容器蓋

測定は、90 度方向の異なる X 及び Y 軸方向の 2 通りのスキャンを行つた。全体的な変形があるため基準の設定が困難であった。3 次元測定結果を健全缶のデータと重ね合わせたものを図 4.2-1 にそれぞれ示す。測定の結果、蓋中央部を中心に膨れ上がる形で変形していることが判明した。変形は最大約 7 mmに達している。Y 軸方向のマイナス端の形状が変形しているのは、金属製タガのフックとの作用によるものと考えられる。

#### (2) 外容器胴体部

外容器胴体部の測定結果を図 4.2-2 に示す。外観調査でも明らかだったように、側面の変形はほとんど無く、底部の膨らみが大きいことが分かる。底面の膨らみは最大で約 6 mm に達している。

#### (3) 外容器金属製タガ

外観調査において、焼けただれた部分と汚れ等が認められなかつた部分があつたので、測定はその 2 つについて行つた。その断面測定の結果を図 4.2-3 に示す。健全缶のタガと比較して、双方ともに変化が見られたが、焼けた部分の方の変化が大きい。

#### (4) 内容器蓋

外容器と同じように、90 度異なる X 及び Y 軸方向へのスキャンを実施した。その結果を図 4.2-4 にそれぞれに示す。やはり外容器蓋と同様に、中央部を中心に膨れ上がっており、変形は 5 ~ 6 mmに達している。

#### (5) 内容器胴体

外観調査で、青黒く変色した部分が見られたので、その部分と変色の少ない部分の 2 つについて断面測定を実施した。その結果を図 4.2-5 にそれぞれ示す。全体的に外容器と同様に、側面の膨らみは小さく、底部の膨れ上がりが目立つ。変色の多い部分と少ない部分での違いはほとんど無く、変形が一様であることを示唆する結果が得られた。

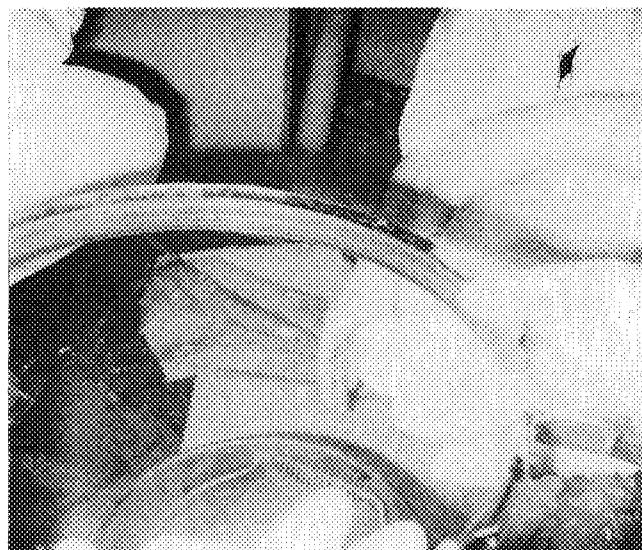
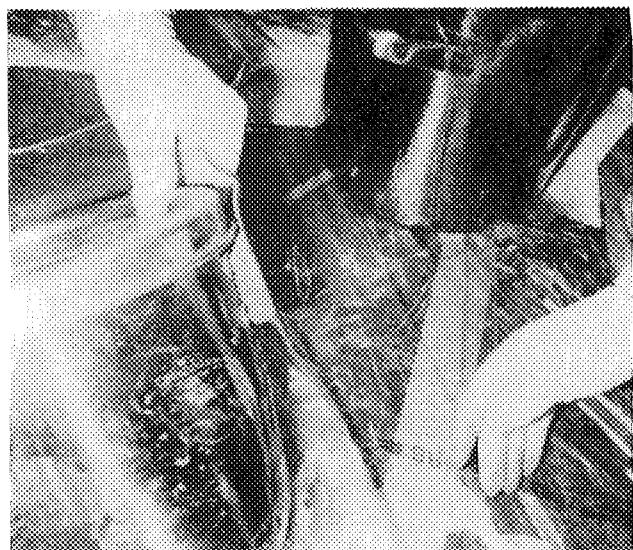


図 4.1-1

外観調査の様子

- (左上) ノギスを使った寸法測定
- (右上) 内側容器蓋の観察
- (左下) 容器胴体の観察
- (右下) 外容器金属製タガの観察



図 4.1-2 No.11 缶外側容器の蓋

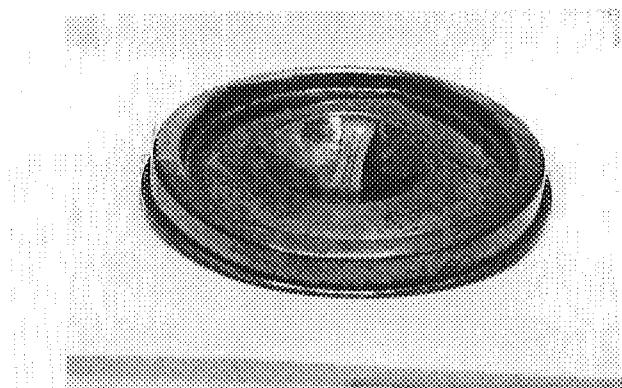


図 4.1-3 No.11 缶内側容器の蓋



図 4.1-4 No.11 缶内側容器の胴体部

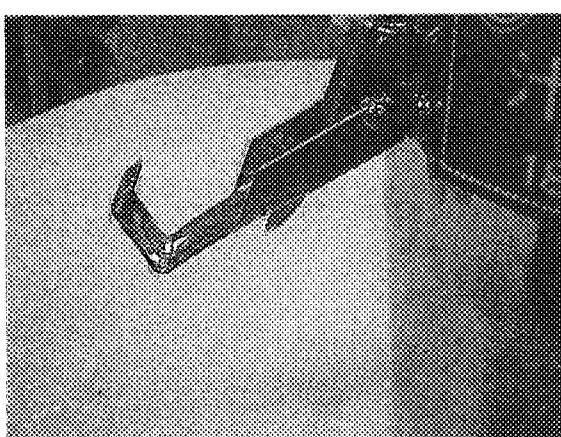


図 4.1-5 内側容器胴体のクランプ (左 : 健全缶、右 : No.11 缶)

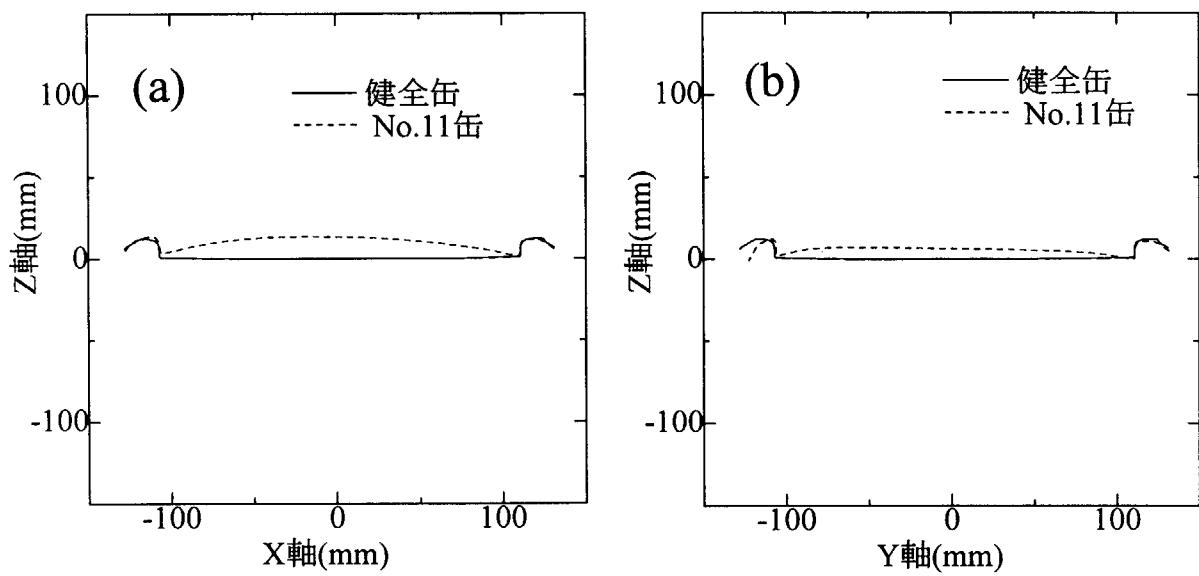


図 4.2-1 外側容器蓋の測定結果 (a) X 方向 (b) Y 方向

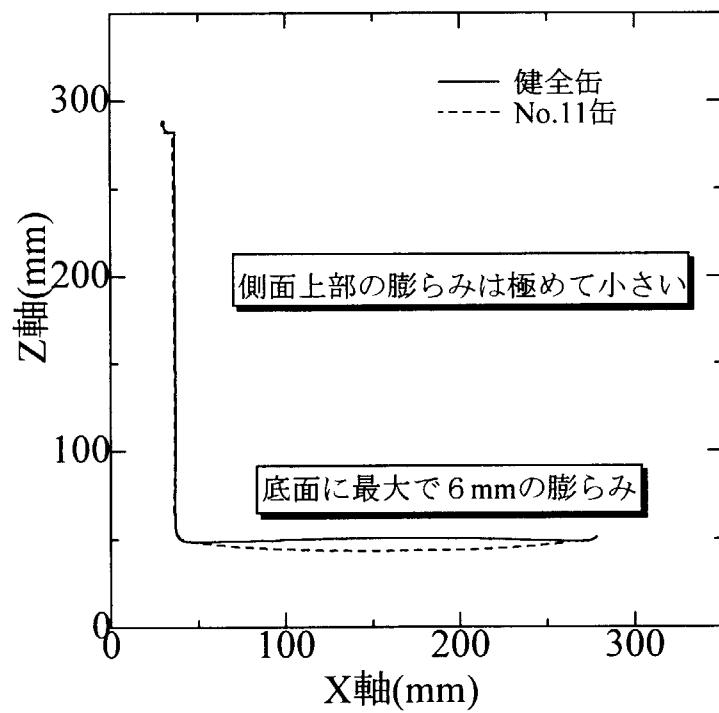


図 4.2-2 外側容器の断面測定結果

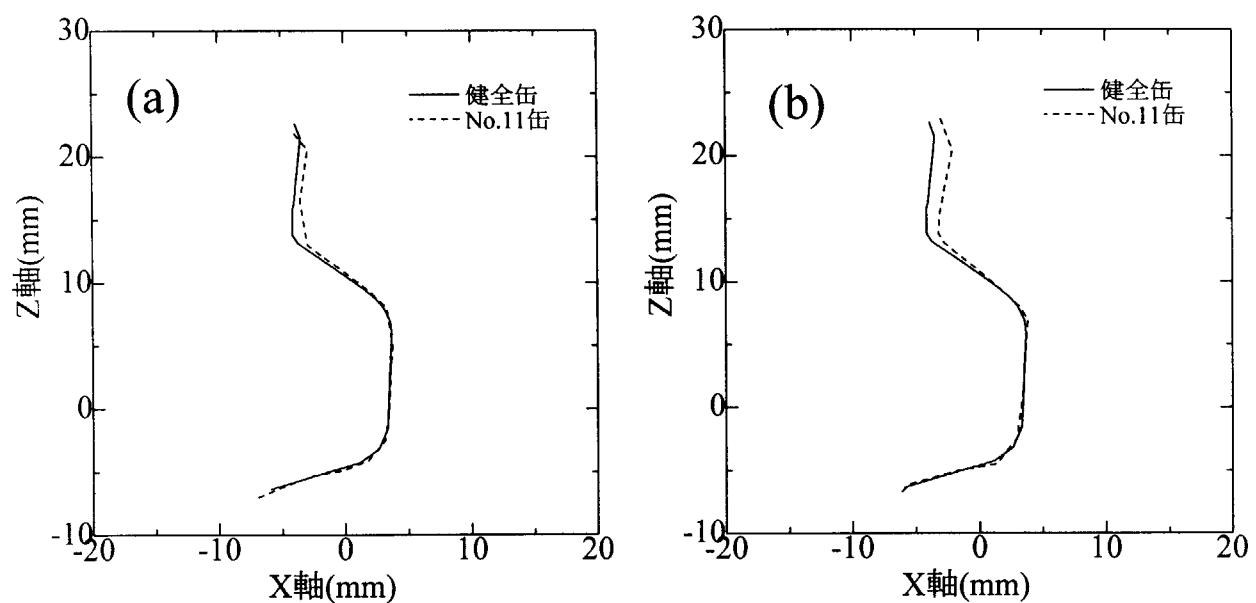


図 4.2-3 外側容器金属タガの断面測定結果  
(a) 汚れの少なかった部分 (b) 焼けただれた部分

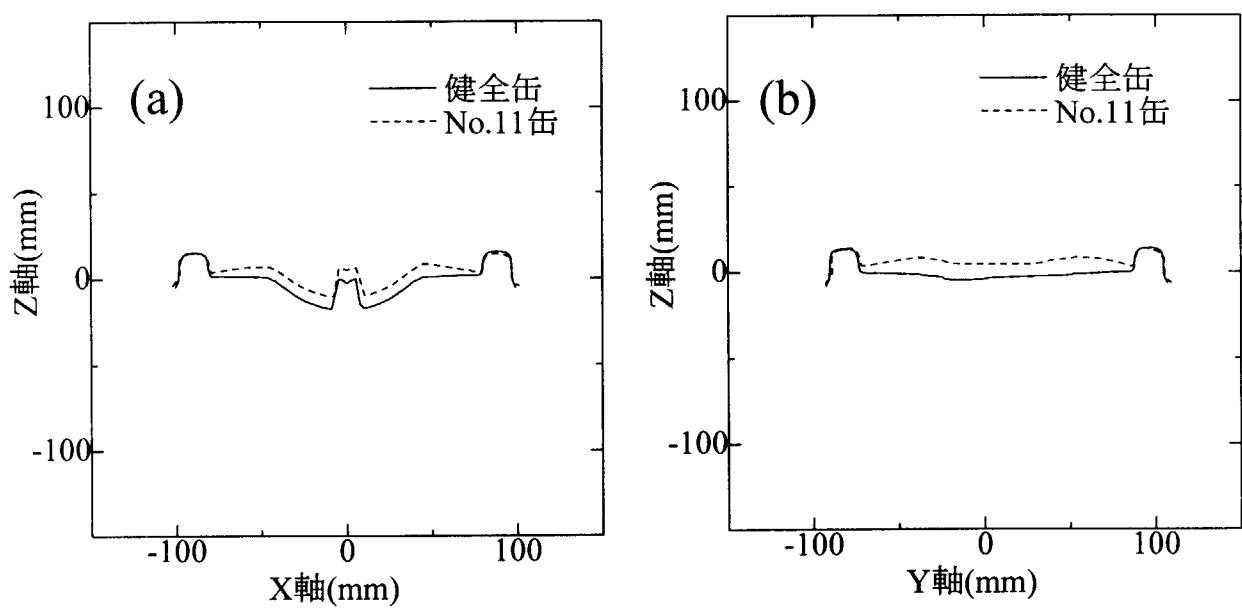


図 4.2-4 内側容器蓋の測定結果 (a) X 方向 (b) Y 方向

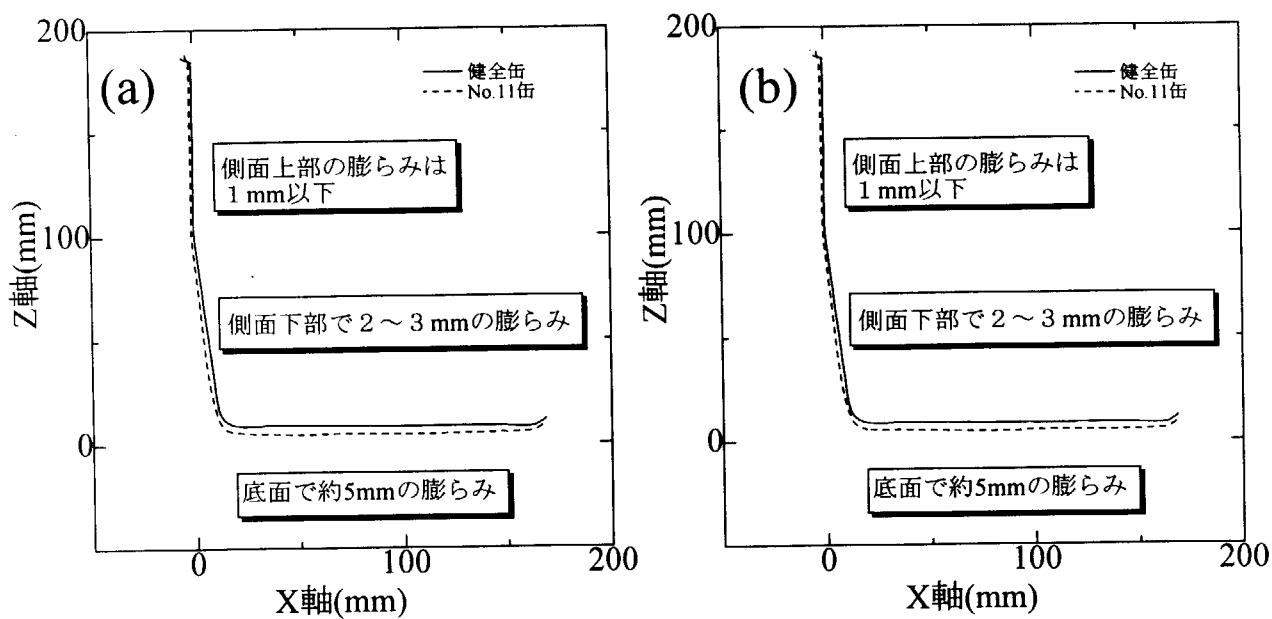


図 4.2-5

内側容器の断面測定結果

(a) 変色の少ない部分 (b) 変色の著しかった部分

## 5. 外容器加圧試験

ターゲット開発室	日野竜太郎、麻生智一、粉川広行、石倉修一、須々木 晃、寺田敦彦、金丸修久
熱水力安全研究室	柴本泰照
安全試験技術室	園部久夫
融体・燃料プロセス研究室	岡本芳浩
高温材料強度研究室	菊地賢司

本章では、No. 11金属缶の蓋が抜け飛んだ原因を調査するために、外容器をガスで急速加圧したときの実験結果について述べる。加圧試験は平成9年12月12日（金）と12月19日（金）の計2回実施した。これらの試験に先立って既存の圧力容器を用いて予備試験を行い、加圧操作、データ収録などに熟練した後、試験に臨んだ。以下に、試験方法、試験結果等について記す。

### 5.1 機器構成及び試験方法

#### 5.1.1 機器構成

外容器加圧試験の機器構成を図5-1に示す。使用した容器は事故を起こした容器と同型式のもので、直径24cm、高さ24cm、厚さ0.8mm、容量10Lの蓋付き密閉円筒容器（ステンレス製）である。蓋にはシリコンゴムパッキンが設置されており、容器上端でリング状のバンド（金属製タガ）で締め付ける構造になっている。実験のために、容器の下部に約20cmの長さの1/4インチ径ステンレスパイプを2本溶接し、このうち1本はガス導入パイプ、他は熱電対挿入口として使用した。容器の加圧は、図5-1に示す空操弁を瞬間的に開放してアルゴンガスボンベから1.2MPaのガスを容器に導入して行った。空操弁開放用のガス配管を含めて、加圧配管（1/4インチ径）には大気開放のために手動ボールバルブを設け、加圧試験時を除いて配管内に高圧ガスが充満するのを防止するようにした。

容器には歪みゲージ（全長2mm）を3箇所、圧力計（計測レンジ：10kg/cm<sup>2</sup>G）を1台、シース熱電対（K型、1mm径）を1本設置して応力、圧力、温度を計測し、歪みゲージ信号（3点）と圧力信号（1点）は波形記録装置（ウェーブメモリー）に記録した。歪みゲージは、

- ・蓋中央
- ・容器側壁（容器高さの中央部）
- ・バンド（フック部の180度反対側）

にそれぞれ1点づつ取り付けた。歪みゲージの取付け状況を図5-2に示す。圧力計は容器下部に溶接したガス導入用パイプに取付け、熱電対は溶接した挿入用パイプを通して容器内部に差し込んだ。

図5-3に試験の状況を示す。試験はHENDEL建家に隣接する鉄筋コンクリート製の高圧ボンベ保管小屋で行った。試験にあたっては、小屋近辺は関係者以外の立入を禁止するなど、安全の確保を最優先させた。試験中は以下のビデオカメラで容器の状況を記録した。

- ・ハイスピードビデオシステム
  - 500フレーム／秒 (1台)
  - 200フレーム／秒 (1台)
- ・VHSデジタルビデオカメラ及びSVHSビデオカメラ (各1台)

ビデオ撮影に当たり、ハイスピードビデオ用照明ランプ (2.5kW) を用いて照度を確保した。後述する試験結果にはVHSデジタルビデオの映像を紹介してある。

### 5.1.2 試験方法

試験は以下の手順で実施した。

- 1) 歪みゲージ初期値を測定 (バンドで蓋を締め付けないフリーの状態で測定)
- 2) 容器に蓋をしてマーキング
- 3) 図5-1に示すバルブ①②⑤を閉じ、バルブ③④を開放
- 4) 減圧弁1次側を開けて、2次側の急速加圧ラインを1.2MPa、空操弁作動ラインを0.7MPaにセット
- 5) ビデオ撮影を開始
- 6) 図5-1に示すバルブ③④を閉じ、バルブ①を開放
- 7) ウェーブメモリーの記録開始
- 8) ウェーブメモリーの記録を開始して3秒後に、バルブ②を開けて空操弁を開放 (試験開始)
- 9) 空操弁を開放して最高30秒経過した後、図5-1に示すバルブ②を閉じ、バルブ④を開放して空操弁を閉止し、ガスの供給を停止
- 10) ガスの供給を停止して3秒以上経過した後、ウェーブメモリーを停止し、フロッピーディスクにデータを記録
- 11) ビデオを停止

## 5.2 試験結果

### 5.2.1 第1回試験

#### (1) 試験実施

第1回試験の実施月日、参加者等は以下の通りである。

実施月日等： 平成9年12月12日 (金) 10時30分～11時40分

参加者 : 早田副所長

ターゲット開発室 日野、麻生、粉川、石倉、寺田、金丸、須々木

炉心損傷安全研究室 杉本室長、  
 热水力安全研究室 柴本  
 安全試験技術室 伊藤室長代理、園部  
 高温材料強度研究室 菊地  
 融体・燃料プロセス研究室 岡本  
 光量子源システム研究グループ 丸山

## (2) 試験結果

加圧試験は金属缶内部に何も充填しない空の状態で行った。試験では蓋の抜け飛びはなく、蓋自身にも変形等は見られなかった。ただし、蓋を締め付けるバンドの取付け方向が上下逆であったので、第1回試験は参考試験としての位置付けとした。以下に試験の状況等を記す。

### (a) 加圧開始前

バンドの締付け応力（周方向応力）：143MPa

### (b) 加圧直後

図5-4にVHSビデオで撮影した状況を示す。写真に見られるように加圧直前・直後で容器にほとんど変化はなく、とくに蓋には有為な変形は見られない。発泡液による漏洩検査では、バンド締め付け部であるフック部からガスが漏洩し、フック部を除く他のバンド締付け部での漏洩は観察されなかった。図5-5に漏洩部の詳細を示す。バンドと蓋はフック部を除いて密着した状態にあるが、フック部ではバンドと蓋との間に隙間がある。

### (c) 圧力・応力の推移—圧力は指示計の単位で記載

加圧開始後の状況を図5-6に示す。容器内圧力は、約0.11秒で1kg/cm<sup>2</sup>G、約0.14秒で1.38kg/cm<sup>2</sup>Gに到達し、応力は約0.33秒後に40MPaに到達している。約0.9秒後に圧力は約1.9kg/cm<sup>2</sup>G、応力は45MPaに到達したが、蓋の抜け飛びはなかった。加圧中はこの圧力・応力をほぼ維持した。

容器内圧力が1.9kg/cm<sup>2</sup>Gにおける容器応力の測定値は、図5-6に示すように、

- ・蓋中央：45MPa（引張り）
- ・容器側壁（容器高さの中央部）：0MPa
- ・バンド（フック部の180度反対側）：-6MPa（圧縮）

である。バンドの応力が圧縮になっていることから、フック部でバンドが開き、その反作用で測定部（フック部の180度反対側）に圧縮応力が作用しているものと考えられる。

### 5.2.2 第2回試験

#### (1) 試験実施

第2回試験の実施月日、参加者等は以下の通りである。

実施月日等：平成9年12月19日（金）10時30分～12時

参加者	ターゲット開発室	日野、麻生、粉川、石倉、須々木、寺田、金丸
	熱水力安全研究室	柴本
	安全試験技術室	園部
	融体・燃料プロセス研究室	岡本

#### (2) 試験内容

第2回試験は、蓋を締め付けるバンドの取付け方向を実機通りとして加圧試験を実施した。実施に当たっては、第1回試験と同じく 1) 内部充填物なしの場合と、より高速で加圧するために 2) 内部にアルミ製ブロックを充填した場合の2ケースを実施した。図5-7にアルミ製ブロックを充填したときの状況を示す。アルミ製ブロックは直径が105mmと50mmの2種類で、高さはいずれも227mmである。これらのブロックを各3本充填し、容器内部の空間容積を10Lから2.8Lに減少させた。

#### (3) 試験結果

今回は蓋を締め付けるバンドの取付け方向を実機通りとして加圧試験を実施したが、第1回同様に蓋の抜け飛びはなく、蓋自身にも変形等は見られなかった。以下に試験の状況等を記す。

##### (a) 加圧開始前

バンドの締付け応力（周方向応力）：155MPa

第1回試験同様に、バンドのフック部で蓋及び容器との間に隙間があった。

##### (b) 圧力・応力の推移—圧力は指示計の単位で記載

###### 1) 内部充填物なしの場合

加圧開始直後の状況を図5-8に示す。容器内圧力は、約0.06秒で $1\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ 、約0.14秒で $1.38\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ に到達し、約1.27秒後に $2.5\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ に到達したが、蓋の抜け飛びは第1回試験と同様になかった。容器蓋の応力は、約0.25秒で40MPaに到達し、約1.27秒後に応力は55MPaに到達した。加圧中はこの圧力・応力をほぼ維持した。

図5-9にVHSビデオで撮影した容器の状況を示す。第1回試験と同様に加圧直前・直後で容器にほとんど変化は見られず、とくに蓋には有為な変形は見られない。

容器内圧力が $2.5\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ における容器応力の測定値は、図5-8に示すように、

- ・蓋中央：55MPa（引張り）
- ・容器側壁（容器高さの中央部）：0MPa
- ・バンド（フック部の180度反対側）：7MPa（引張り）

である。第1回試験ではバンドの応力は圧縮を示していたが、今回は引張りに転じ

ている。また、蓋中央の応力も12MPa程度大きくなっていることから、バンドの締め付けが第1回試験よりも全周にわたってより均一であったと考えられる。

## 2) 内部にアルミ製ブロックを充填した場合

加圧開始直後の状況を図5-10に示す。容器内圧力は加圧開始後、約0.05秒で $1\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ まで上昇し、その後徐々に圧力が上昇して約1.2秒後に $2.5\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ に到達した。容器蓋の応力は約0.08秒で40MPaまで上昇し、約1.2秒後に応力は50MPaに到達した。加圧中はこの圧力・応力をほぼ維持した。応力の立ち上がりは充填しない場合に比べて約50%早くなっている。ただし、この条件においても蓋の抜け飛びはなかった。

加圧中の容器の状況はこれまでの結果と同様にほとんど変化は見られなかった。容器内圧力が $2.5\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ における容器応力の測定値は、図5-10に示すように、

- ・蓋中央 : 50MPa (引張り)
- ・容器側壁 (容器高さの中央部) : 0MPa
- ・バンド (フック部の180度反対側) : 10MPa (引張り)

であり、各部の応力は充填しない場合とほぼ同じ程度である。

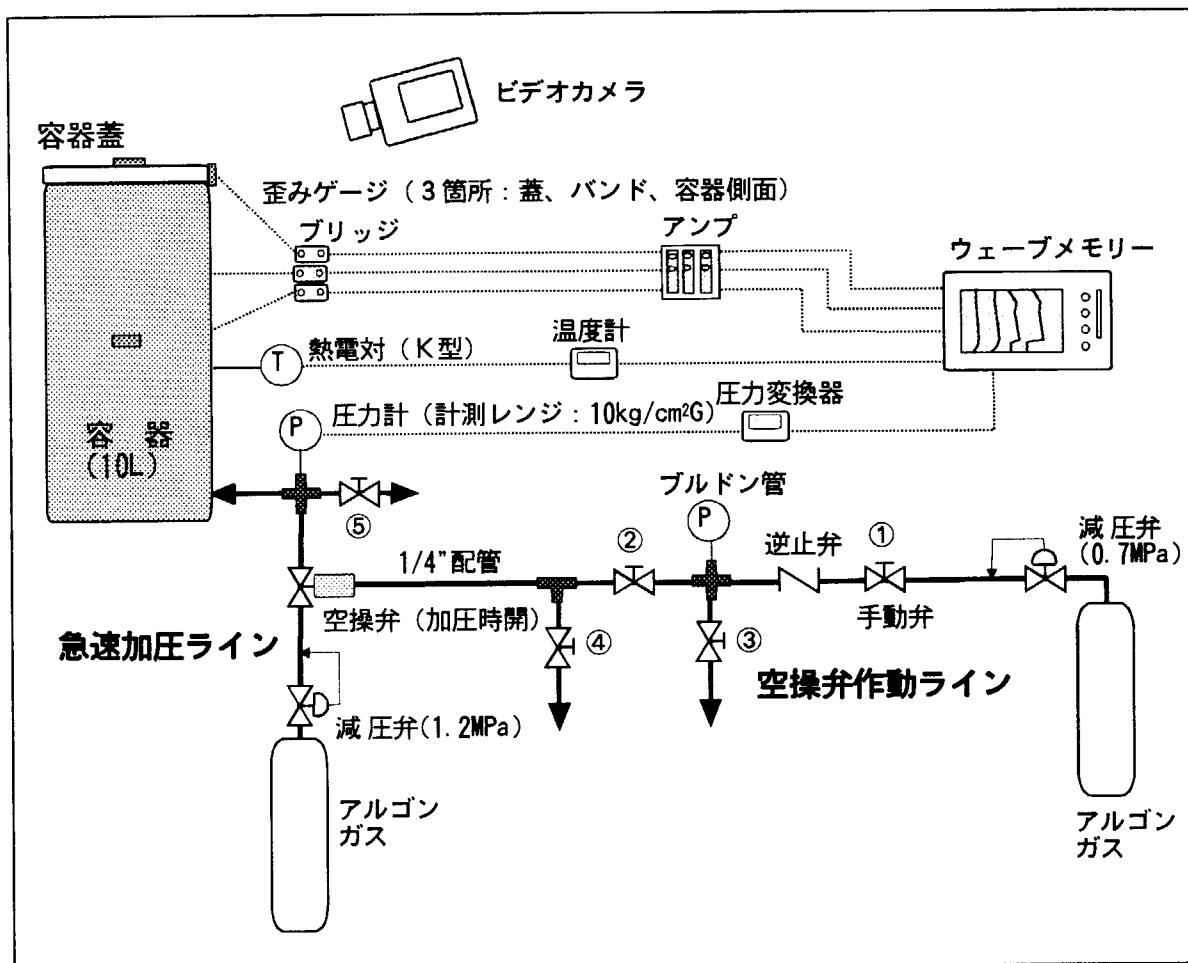
## 5.3 結 言

外容器蓋の抜け飛びの原因を調査するために、ガスで急速加圧したときの試験を実施した。本試験では、 $1\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ に到達するのに数10ms以上を要したが、このオーダーの加圧速度では容器蓋の抜け飛びではなく、容器はほとんど変形しないことを実験的に明らかにした。このことから、容器蓋の抜け飛びは、爆発的な燃焼のようにさらに急速な加圧条件下で生じたものと考えられる。本試験結果は解析コードの検証に用いられ、それを踏まえて行った蓋抜け飛びの数値解析結果については次章で述べる。

であり、各部の応力は充填しない場合とほぼ同じ程度である。

### 7.3 結 言

外容器の蓋飛び出しの原因を調査するために、ガスで急速加圧したときの試験を実施した。本試験では、 $1\text{kg/cm}^2\text{G}$ に到達するのに数十ms以上を要したが、このオーダーの加圧速度では容器蓋の飛び出しじゃなく、容器はほとんど変形しないことを実験的に明らかにした。このことから、容器蓋の飛び出しへは、急激な燃焼（爆発）のようにさらに急速な加圧条件下で生じたものと考えられる。本試験結果は解析コードの検証に用いられ、それを踏まえて行った蓋飛び出しの数値解析結果については次章で述べる。



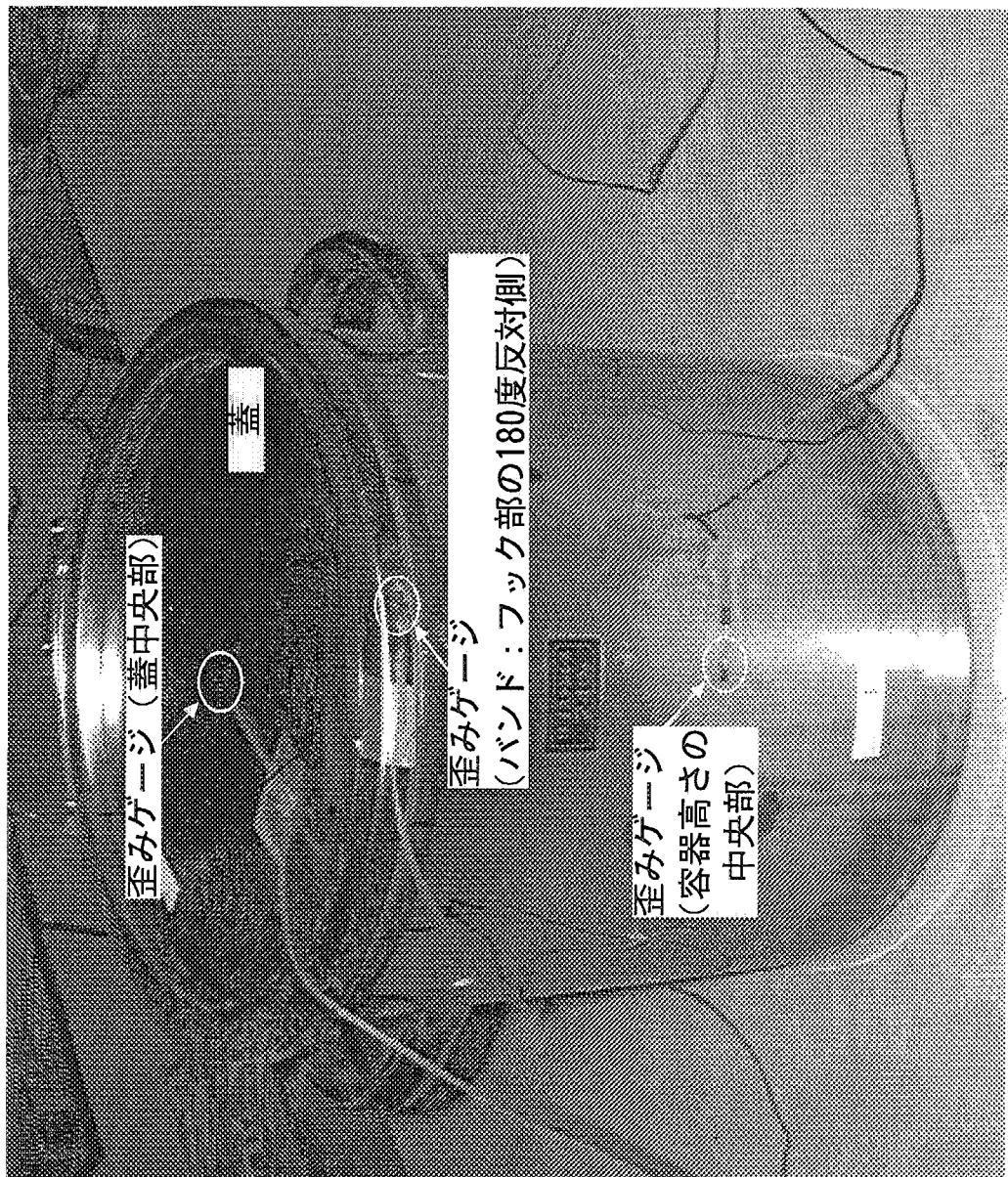


図 5-2 歪みゲージの取付け状況



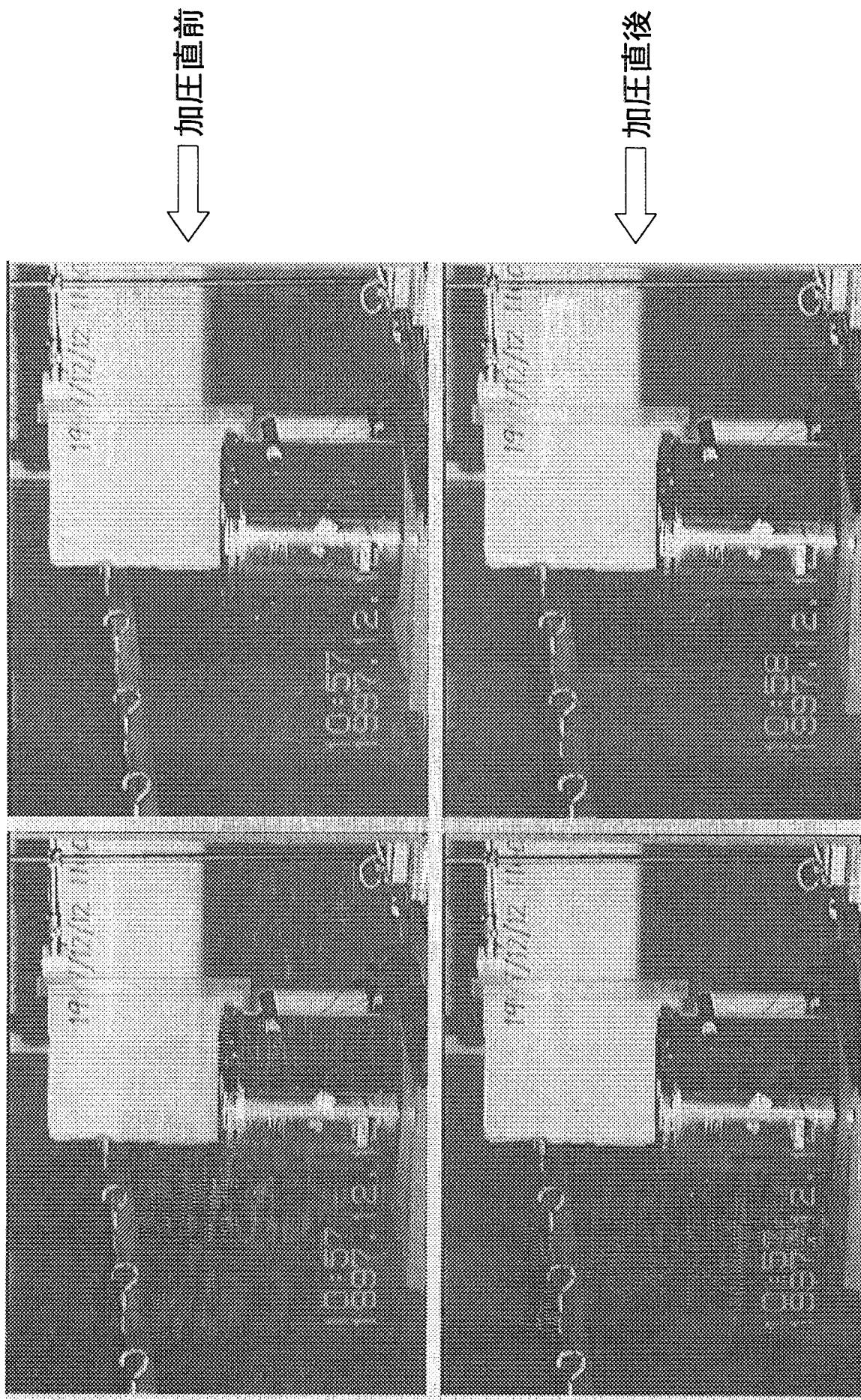
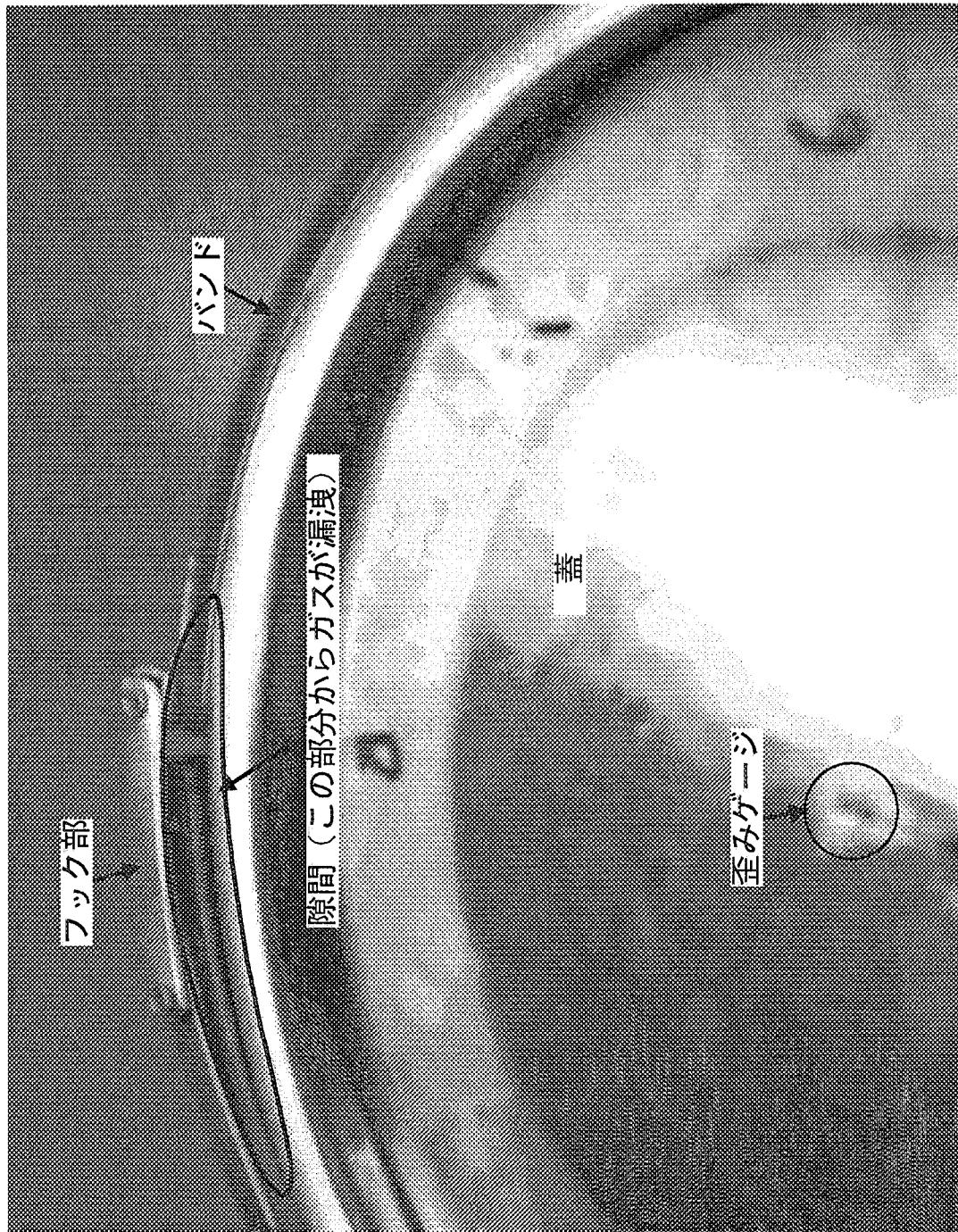


図 5-4 加圧直前・直後の映像（第 1 回試験）



ガス漏洩箇所

図 5-5

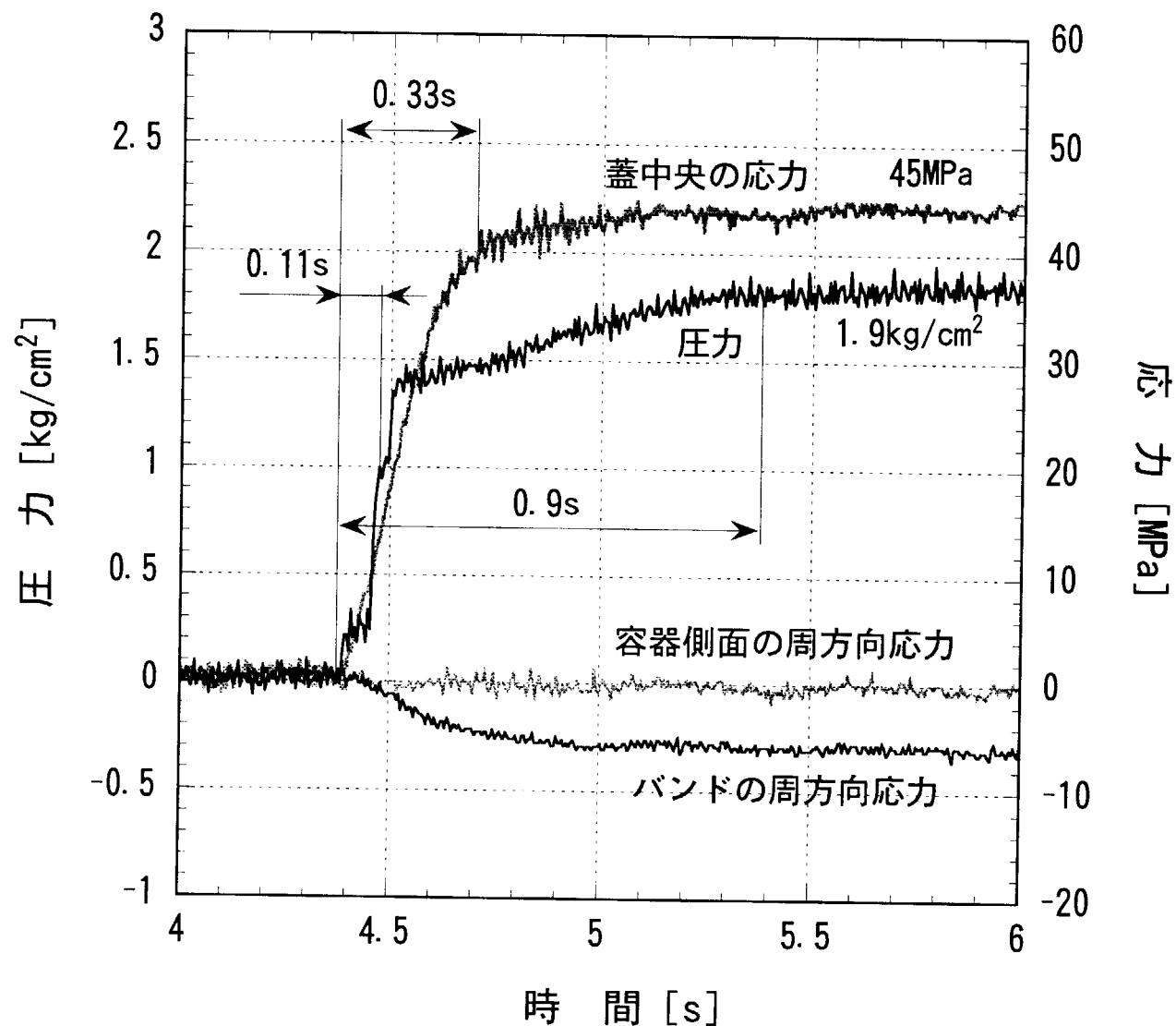


図 5-6 加圧開始直後の圧力・応力の推移（第 1 回試験）

アルミ製ブロック  
直径50mm、全長227mm

アルミ製ブロック  
直径105mm、全長227mm

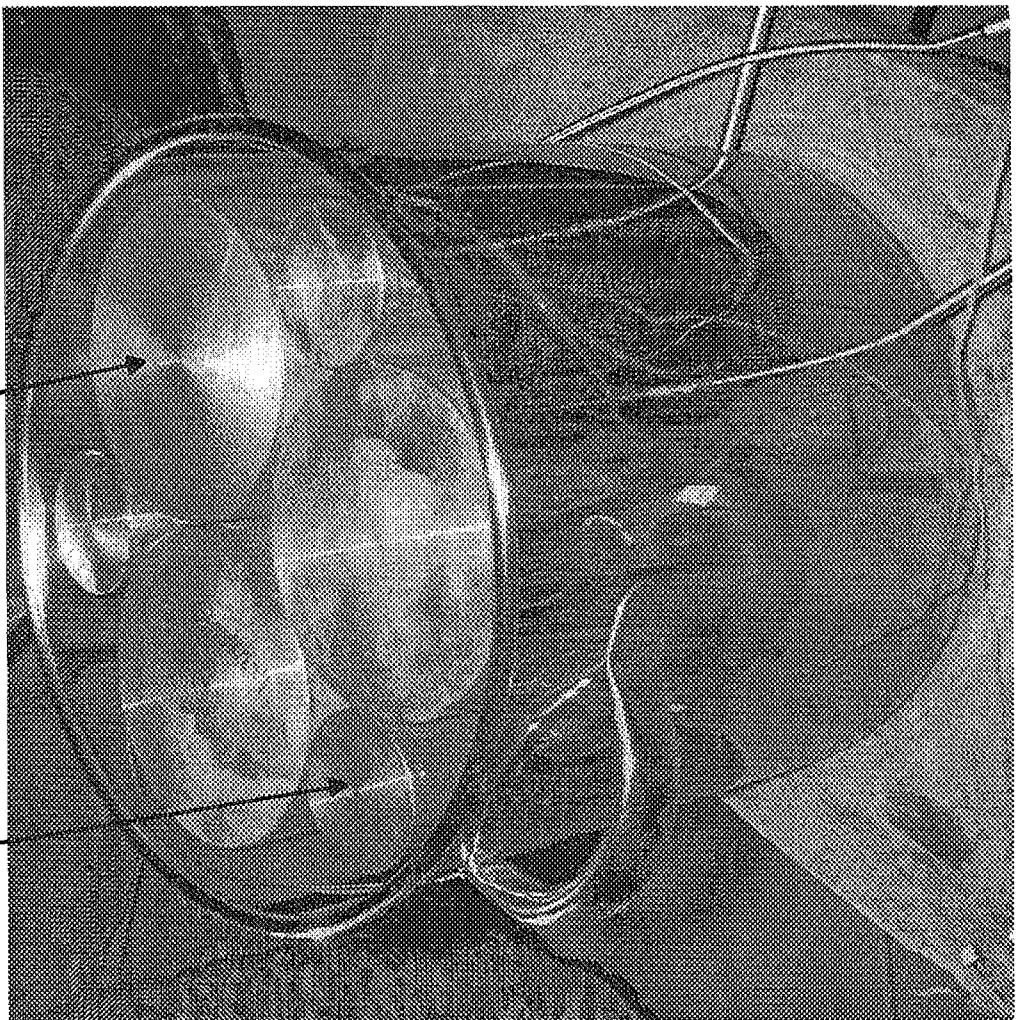


図 5-7 アルミ製ブロックを充填した状態

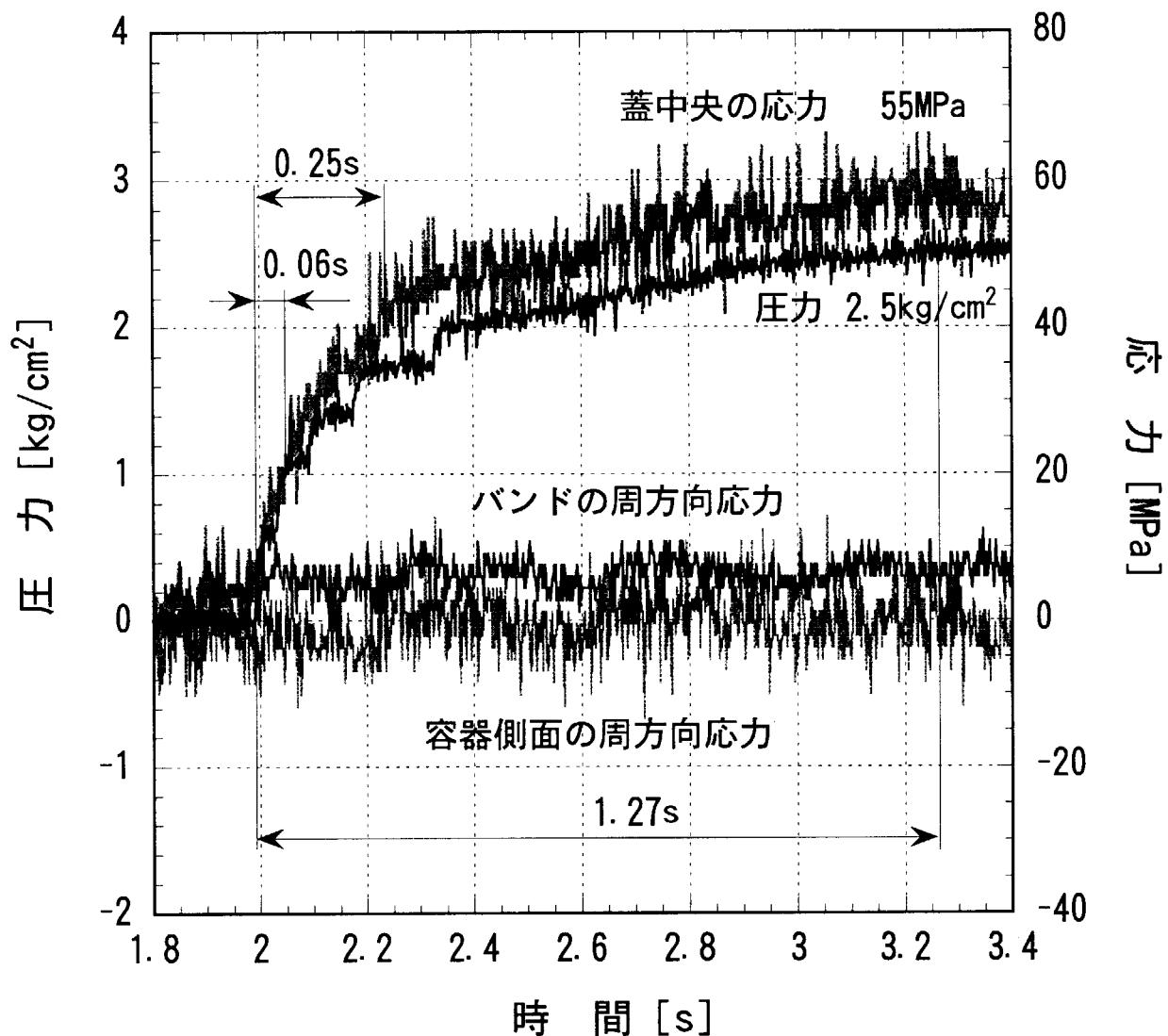


図 5-8 加圧開始直後の圧力・応力の推移（第2回試験）

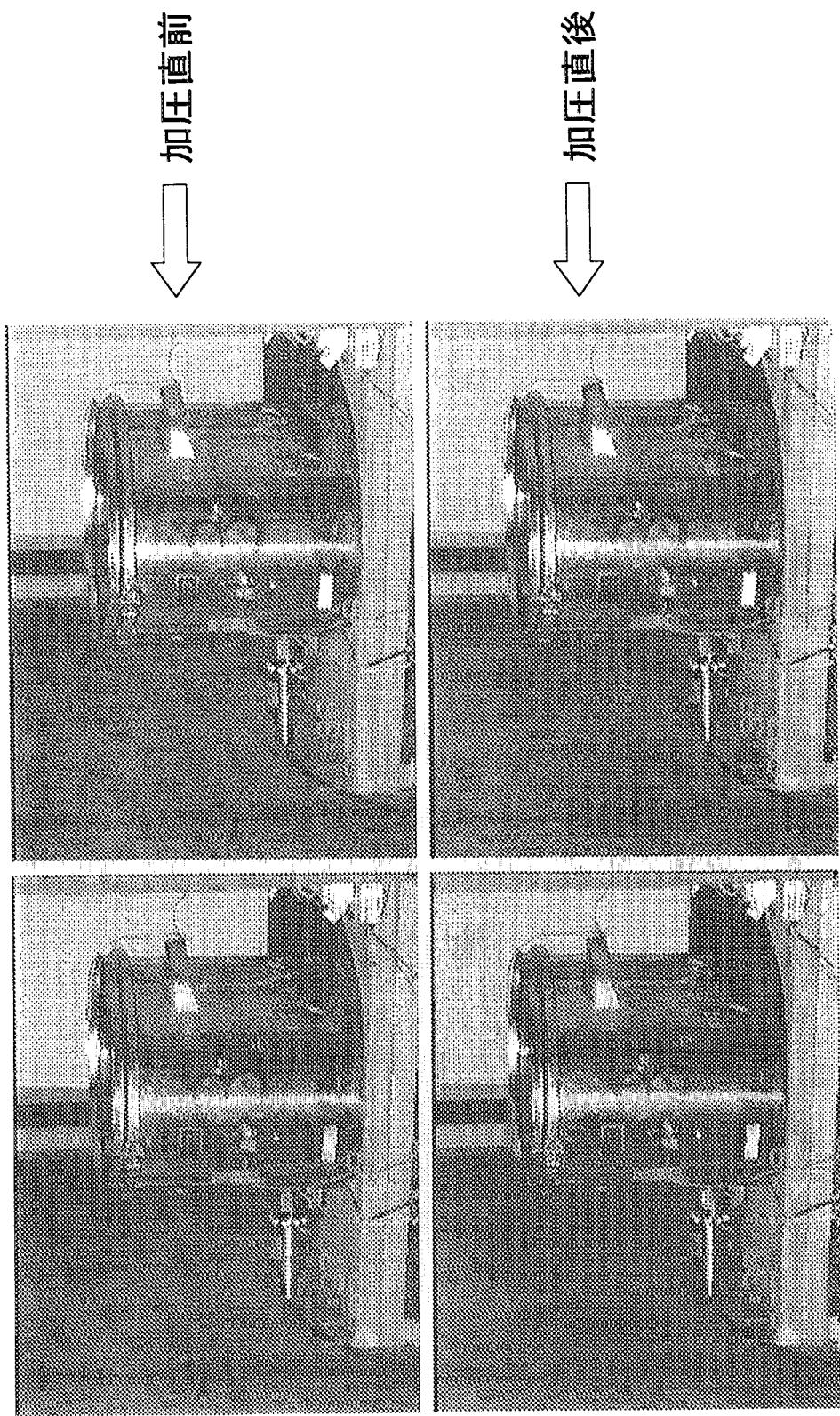
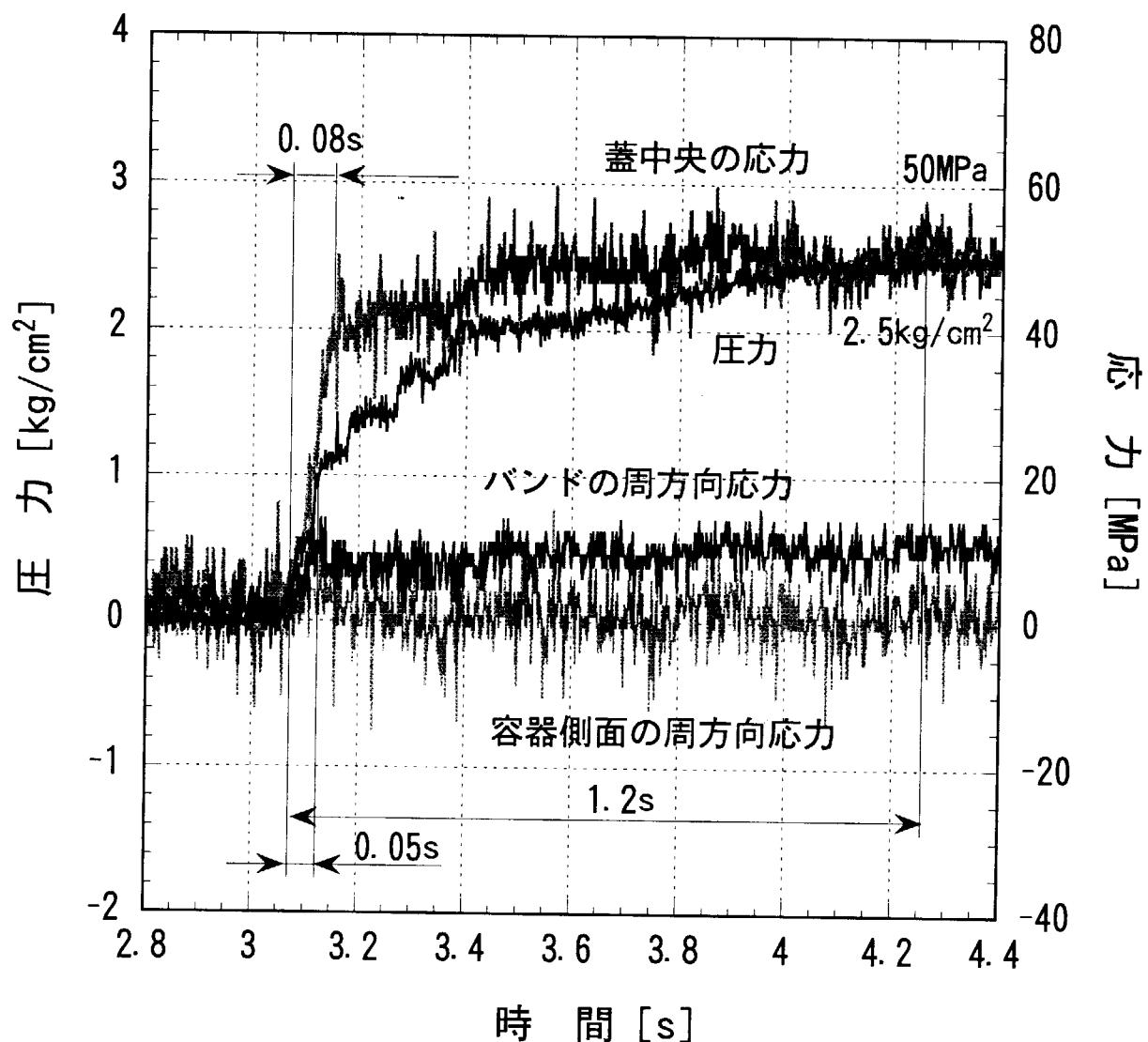


図 5-9 加圧直前・直後の映像（第 2 回試験）



## 6. 外容器蓋変形解析

高温材料強度研究室

菊地賢司

本章では外容器から抜け飛んで見つかった蓋の変形を手掛かりに、5章で実施した外容器加圧試験結果を考慮し、計算機シミュレーションにより外容器蓋変形のシナリオを考察した。

### 6.1 蓋の変形

図6-1に回収された外容器蓋の変形と、火災事故とは無関係な容器の蓋の形状測定結果を示す。蓋の変形は直径方向に2カ所測定し、測定1と測定2とした。測定結果から、次の特徴がわかる。

- ・蓋は直径方向に5 mm縮み、高さ方向に11 mm膨れた(図6-1(a))。
- ・変形は中心部が膨れただけでなく、端部においても見られる(図6-1(b), (c))。

### 6.2 試験結果

5章で実施した外容器加圧試験結果を以下にまとめる。

第1回試験である図5-6の圧力変化において、

- ・加圧開始後約0.14秒間、容器は急激に加圧されて0.14MPaに到達した。その後は加圧速度が緩慢になり、約0.9秒後に0.19MPaに到達した。しかし、蓋は抜け飛ばなかった。
- ・容器内圧力0.14MPaにおける歪みの測定値は応力に換算して27MPaであった。
- ・減圧後、蓋に顕著な変形は認められなかった。

第2回試験では、内容積を第1回試験のおよそ半分に減らし、加圧速度能力を高めた。その結果、図5-8からわかるように、

- ・約1.27秒後に0.25MPaまで加圧できたが、蓋の抜け飛び及び顕著な変形は認められなかった。
- ・この場合、初期の0.05秒で0.1MPaまで加圧できたが、その後、加圧速度が緩慢になつた。これは、注入したガスがリング状バンドのすき間から漏れたためと考えられる。

まとめると、0.05秒で0.1MPaの急激な圧力上昇以上の速度で外容器が加圧されないと、容器と蓋のすき間からガスが漏れ、蓋は抜け飛ばないと結論付けられた。

### 6.3 シミュレーション方法

軸対称な蓋の半分を力学モデル化し、0.14秒で容器内圧力を0.14MPaまで一定加圧速度で加圧し、変形の様子を調べた。計算には、有限要素法構造解析コードABAQUS/Explicit Version 5.6を使用した。用いた要素分割図を図6-2に、節点番号図を図6-3に示す。蓋を軸対称2節点シェル要素SAX1、蓋を止めるリング状バンドを軸対称2節点剛体要素RAX2によりモデル化した。蓋の物性値は、ヤング率193GPa、ポアソン比0.3、密度8g/ccと

した。図 6-4 に応力一歪み線図を示す。

図 6-5 に変形の計算結果を示す。時間の推移とともに、蓋中心部が膨らみ、全体的にせり上がってきた（図 6-5(a)～(d)）。0.14 秒後、内圧を除くと弾性変形分がもとに戻り、顕著な変形は弾性回復により消失した（図 6-5(e)）。0.14 秒後の蓋中心部の歪みは  $100 \times 10^{-6}$ （図 6-6）、この時の応力は 27MPa となり（図 6-7）、前節の第 1 回加圧試験の結果と一致する結果を得た。結論として、計算機シミュレーションは実験結果をよく表すと判断される。

## 6.4 解析結果

### 6.4.1 瞬時加圧の場合

瞬時に 1.0MPa（10 気圧）及び 0.5MPa（5 気圧）に加圧したときの変形図を図 6-8 及び図 6-9 にそれぞれ示す。1.0MPa に加圧したときには端部も大きく変形し平らになる。0.5MPa に加圧した場合にも端部の変形が大きく、図 6-1 の回収された外容器蓋の変形測定結果とは異なる。瞬時に 0.3MPa（3 気圧）に加圧した場合の変形図を図 6-10 に示す。端部は元の形を保っているように見えるが、蓋の膨らみは図 6-1 の測定結果に比べて大きすぎる。

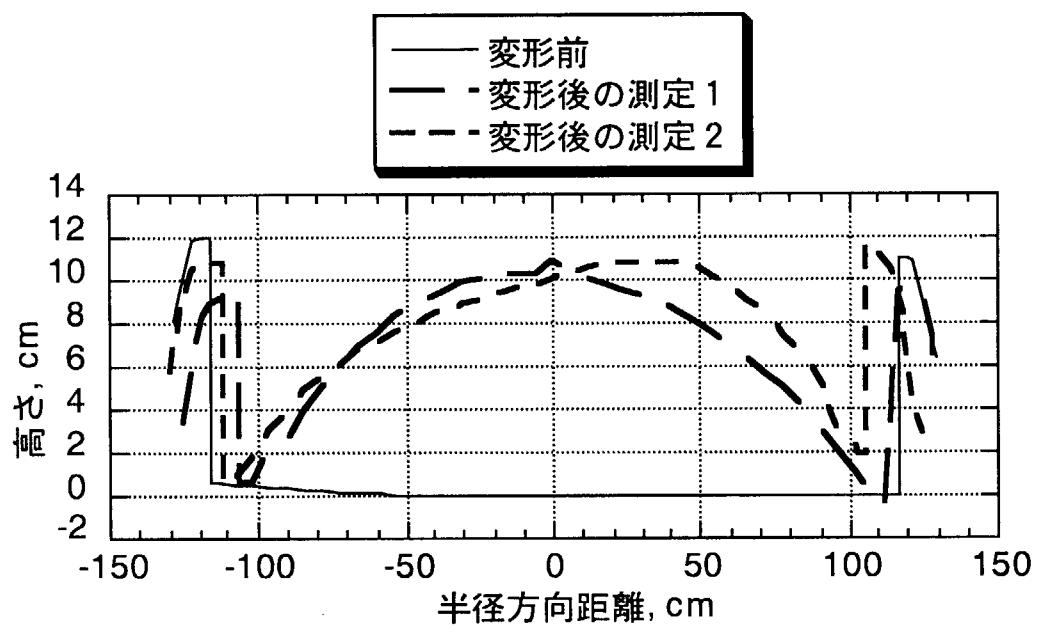
### 6.4.2 外容器蓋の逆解析

弾性回復後の蓋中心部の膨らみが図 6-1 の測定結果に一致する条件を逆解析する。図 6-11 の変形前の蓋において、点 A と点 B の変位の差が 10 数 mm になる圧力と加圧速度を求めた。

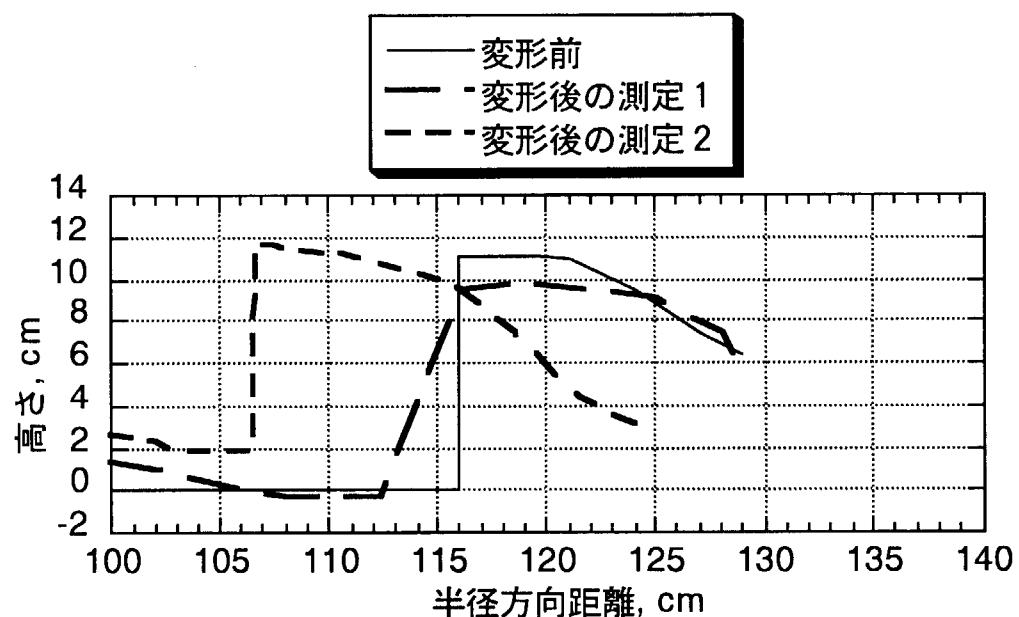
0.05 秒で 0.25MPa に一定加圧速度で加圧した場合の変形図を図 6-12 に示す。0.05 秒後も加圧を続けると、0.055 秒で蓋がバンドから抜け飛んだ（図 6-12(h)）。0.05 秒後、圧力を除去し、弾性回復させた後（図 6-12(g)）の蓋中央部の高さ方向の変形量は 10 数 mm となることが、図 6-13 よりわかる。蓋中心部と蓋端部の一番低い点の変位量の差は図 6-1 の変位差にほぼ一致する。この変形に対応する水平方向の変位量を図 6-14 に示す。蓋の最端点 E では直径が 5 mm 縮む。この変形量も図 6-1 で示した蓋の水平方向の縮み量と一致する。歪みの分布を図 6-15 に示す。変形の途中では、大きな歪みは角部の点 B と C に集中し、蓋中心部では大きな歪みは生じていない。応力分布を図 6-16 に示す。弾性回復に伴う応力の再配分により中心部には負の残留応力が生じる。

## 6.5 結 言

火災事故現場に残された外容器蓋の変形と 5 章で実施した同型容器の加圧試験結果を手掛かりに、計算機シミュレーションにより、瞬時に圧力が負荷される場合、圧力が時間に比例して増加する場合の解析結果を示した。その結果、極めて短時間に数気圧まで圧力が上昇すれば、蓋は容易にリング状バンドから抜け飛ぶことが裏付けられた。



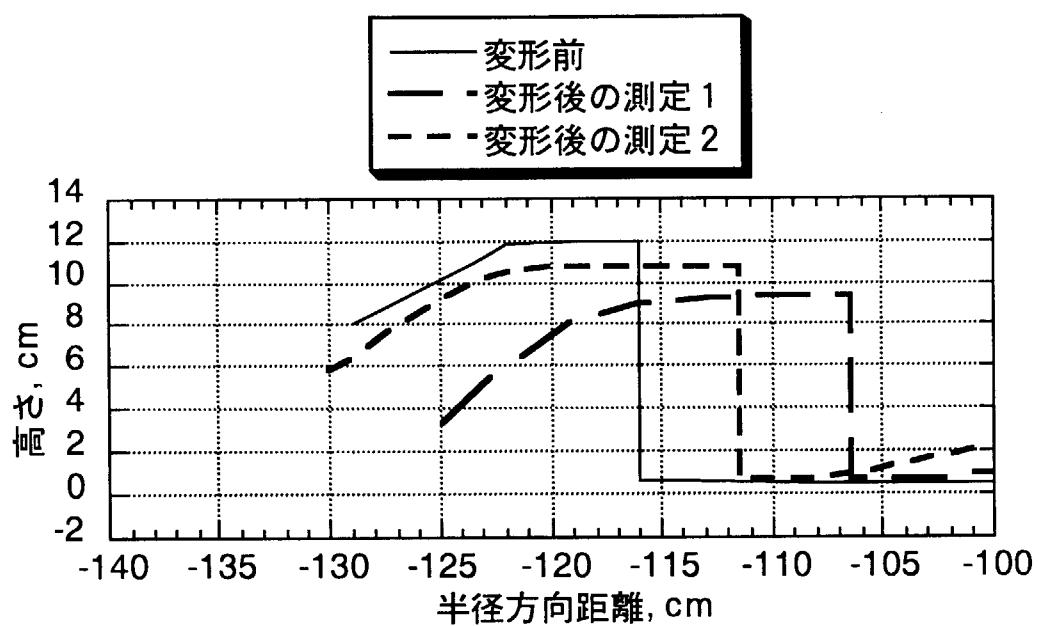
(a) 変形測定全体図



(b) 右端部拡大変形図

図 6-1

回収された外容器蓋の変形



(c) 左端部拡大変形図

図 6-1 回収された外容器蓋の変形(続き)

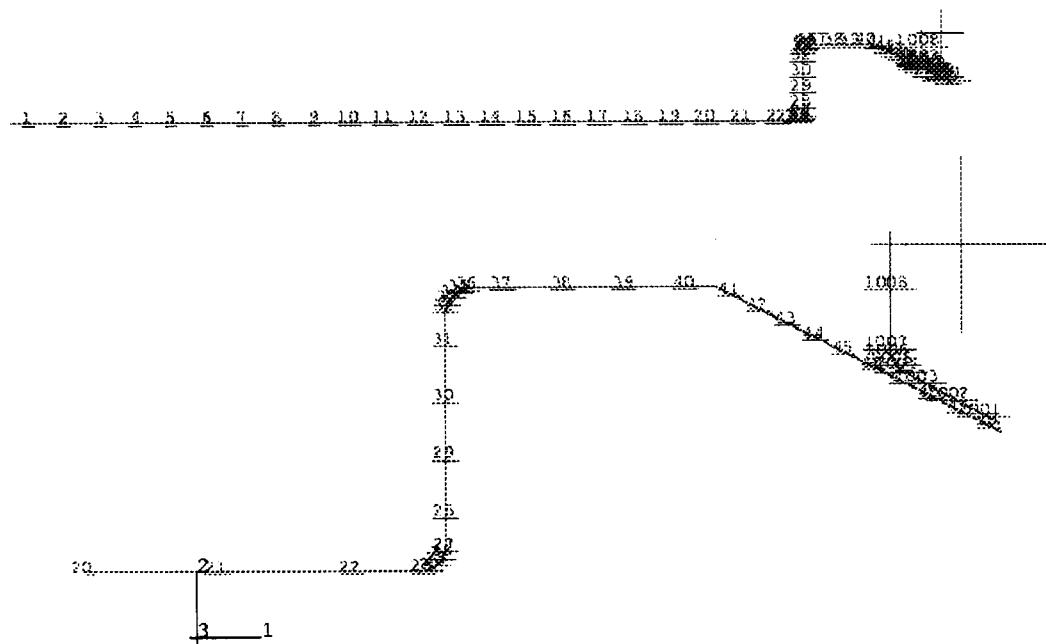


図 6-2 要素番号図 (下図は上図右端の拡大図)

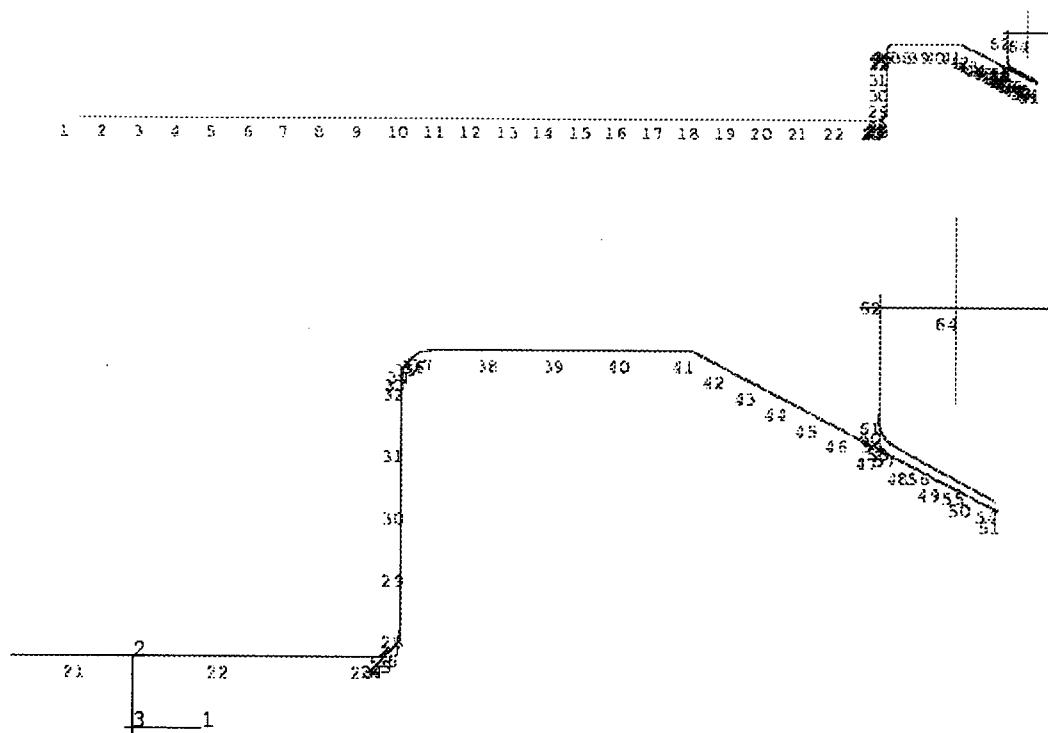


図 6-3 節点番号図 (下図は上図右端の拡大図)

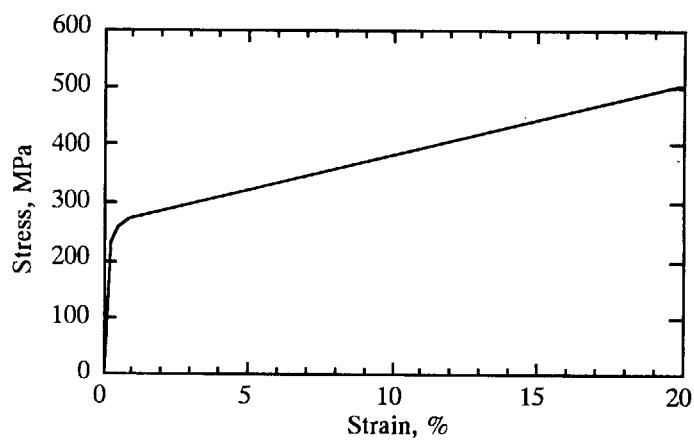


図 6-4 応力-歪み線図

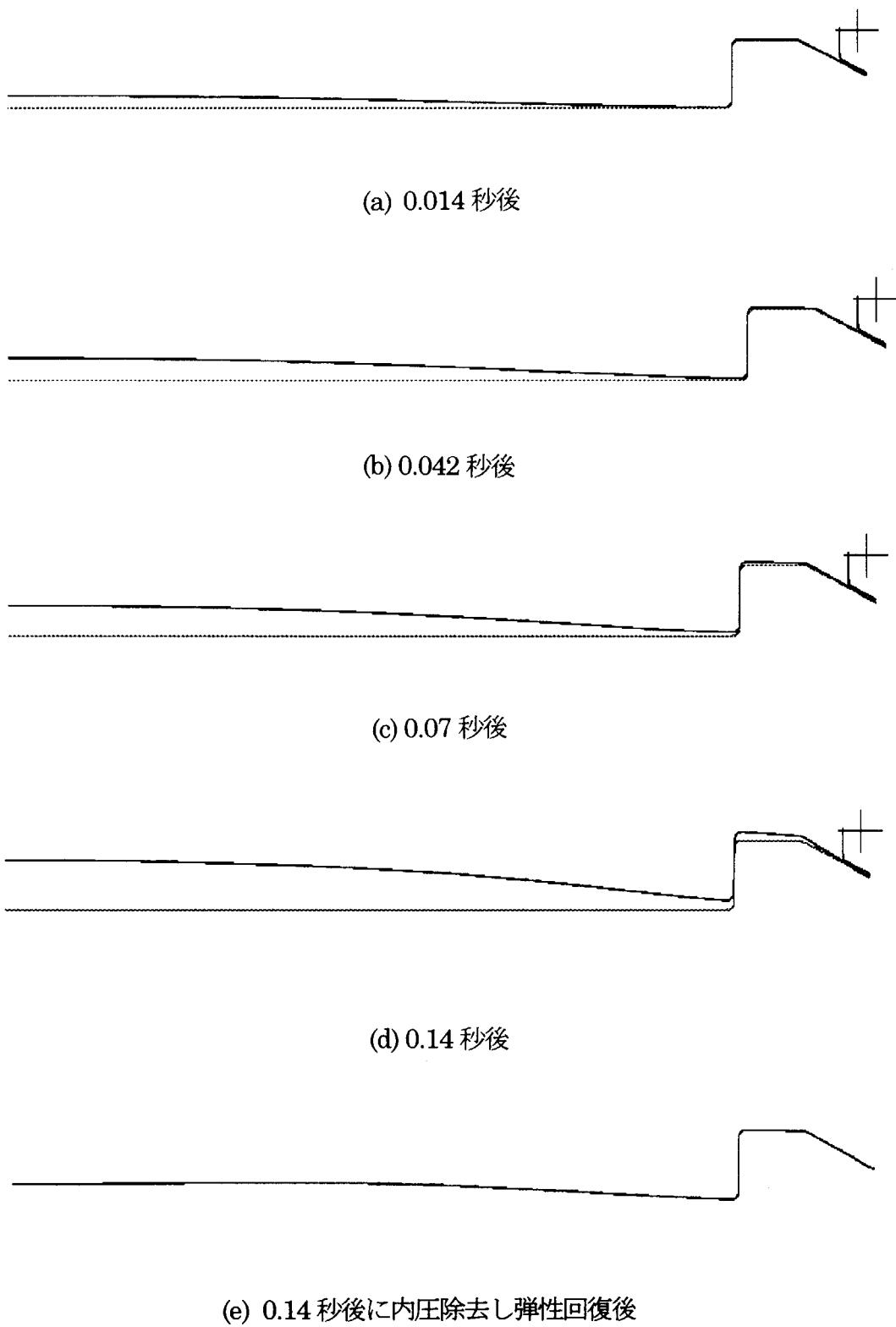


図 6-5 0.14 秒で 0.14MPa に加圧した場合の蓋の変形図

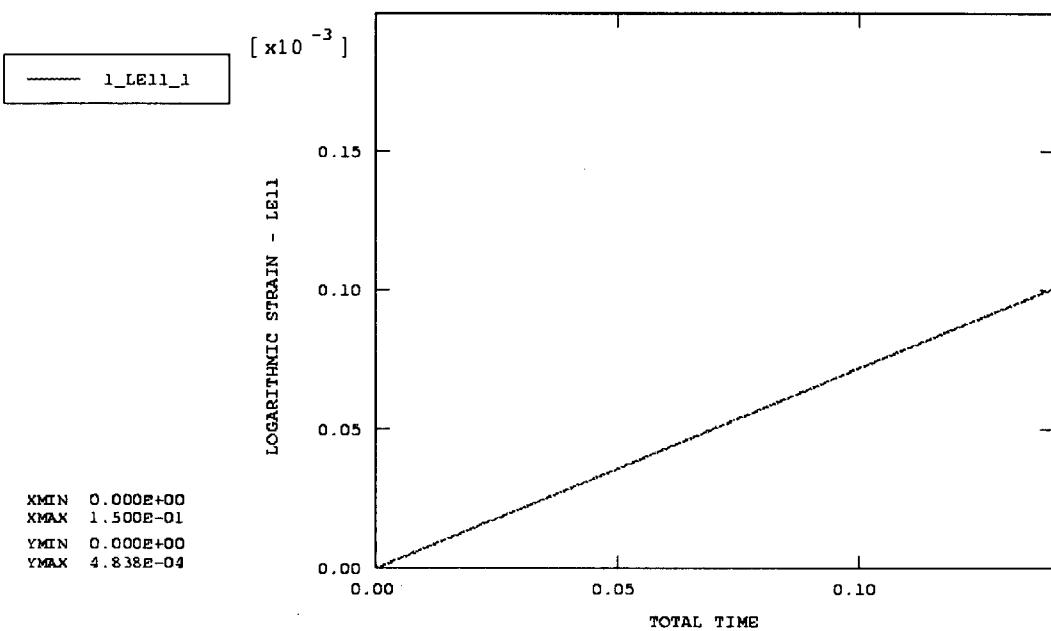


図 6-6 蓋中心部における子午線方向歪みの計算値

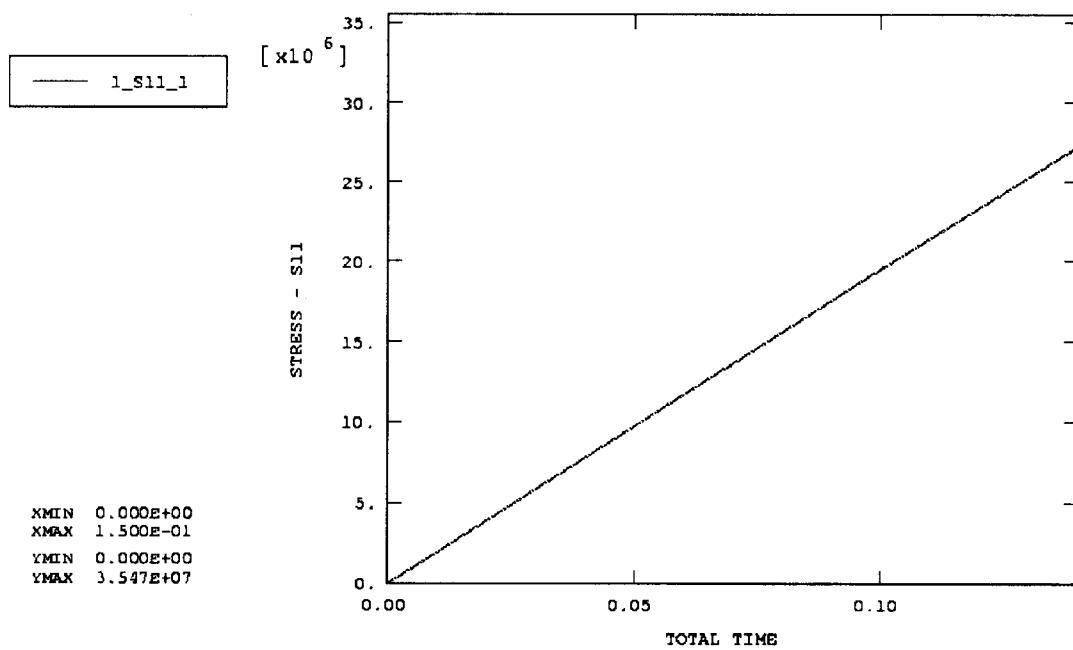


図 6-7 蓋中心部における子午線方向応力の計算値

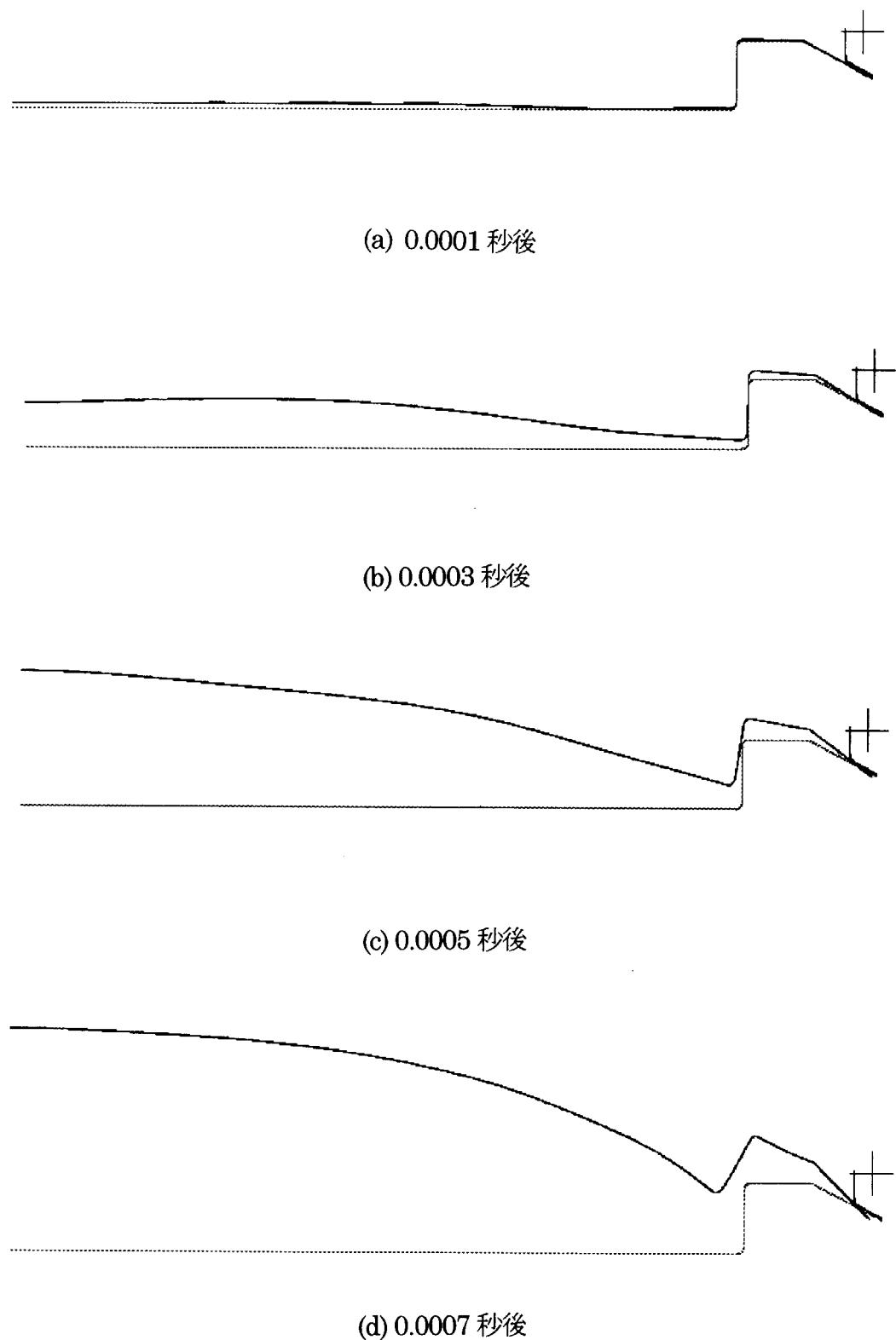
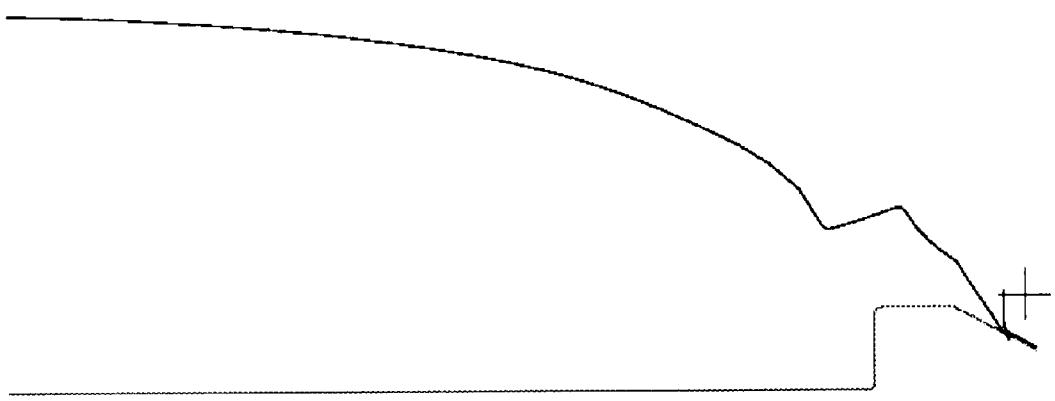
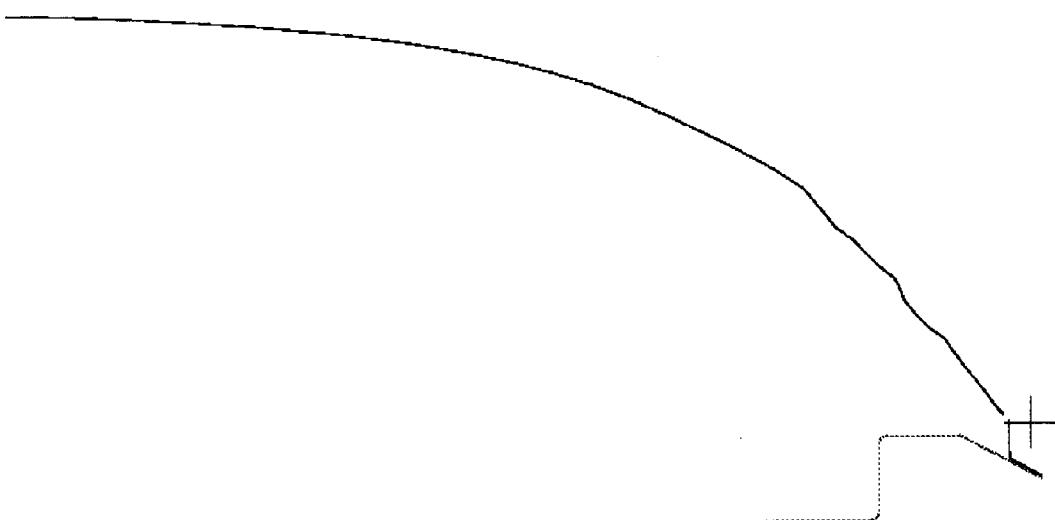


図 6-8 瞬時に 1.0MPa に加圧した場合の蓋の変形図



(e) 0.0009 秒後



(f) 0.0011 秒後

図 6-8

瞬時に 1.0MPa に加圧した場合の蓋の変形図(続き)

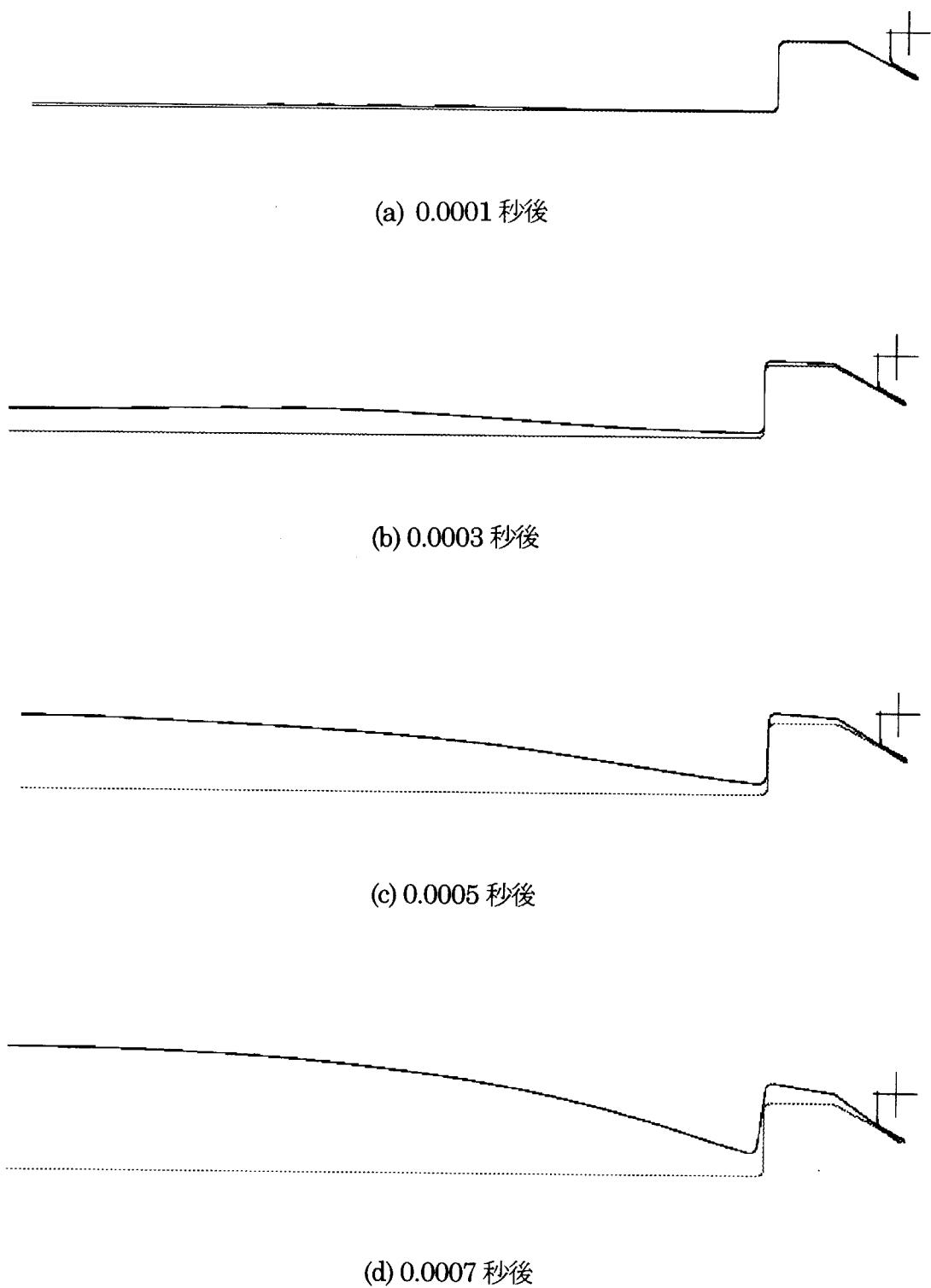
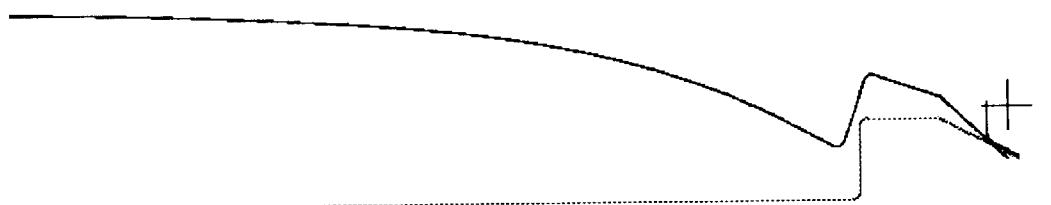
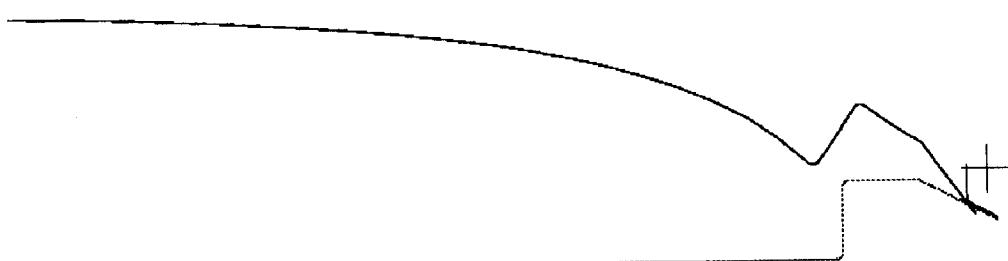


図 6-9

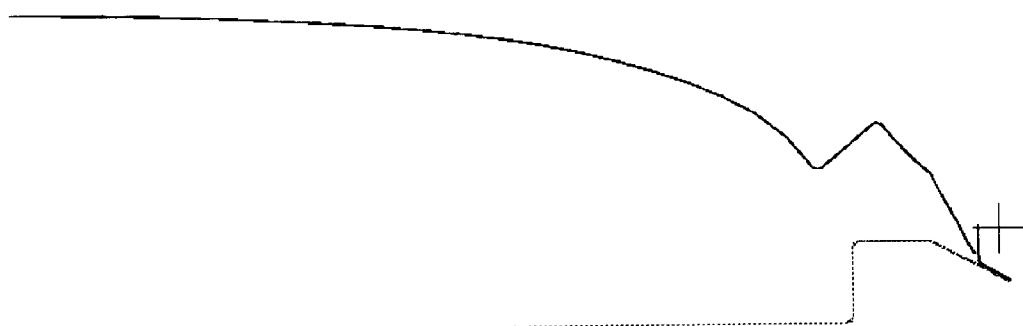
瞬時に 0.5MPa に加圧した場合の蓋の変形図



(e) 0.0009 秒後



(f) 0.0011 秒後



(g) 0.0013 秒後

図 6-9 瞬時に 0.5MPa に加圧した場合の蓋の変形図（続き）

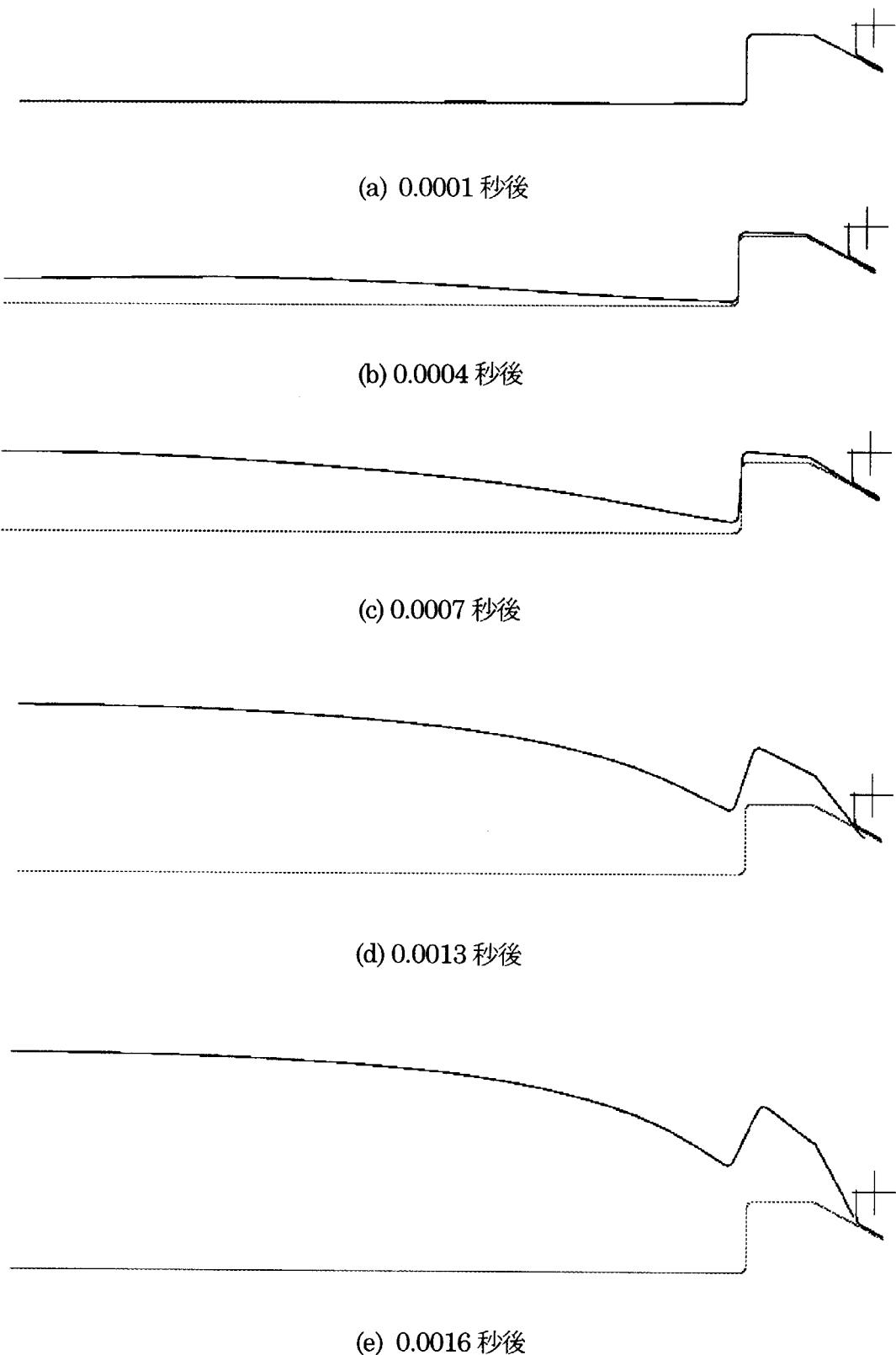


図 6-10

瞬時に 0.3MPa に加圧した場合の蓋の変形図

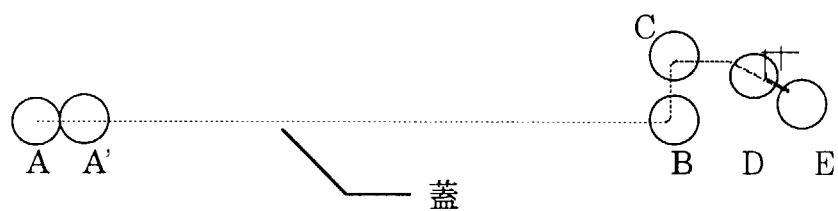


図 6-11 外容器蓋の変形評価点

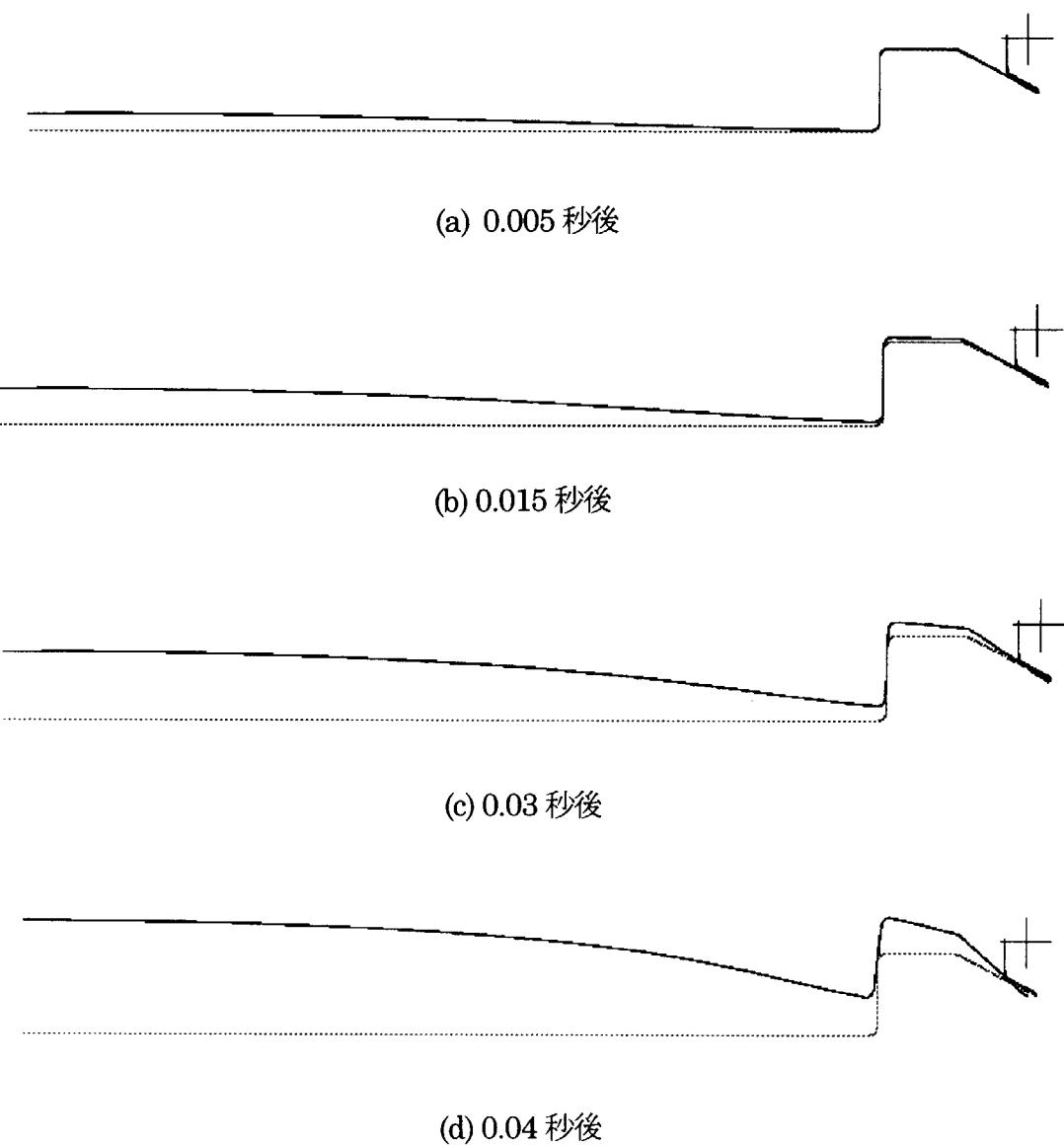


図 6-12 0.05 秒で 0.25MPa に加圧した場合の蓋の変形図

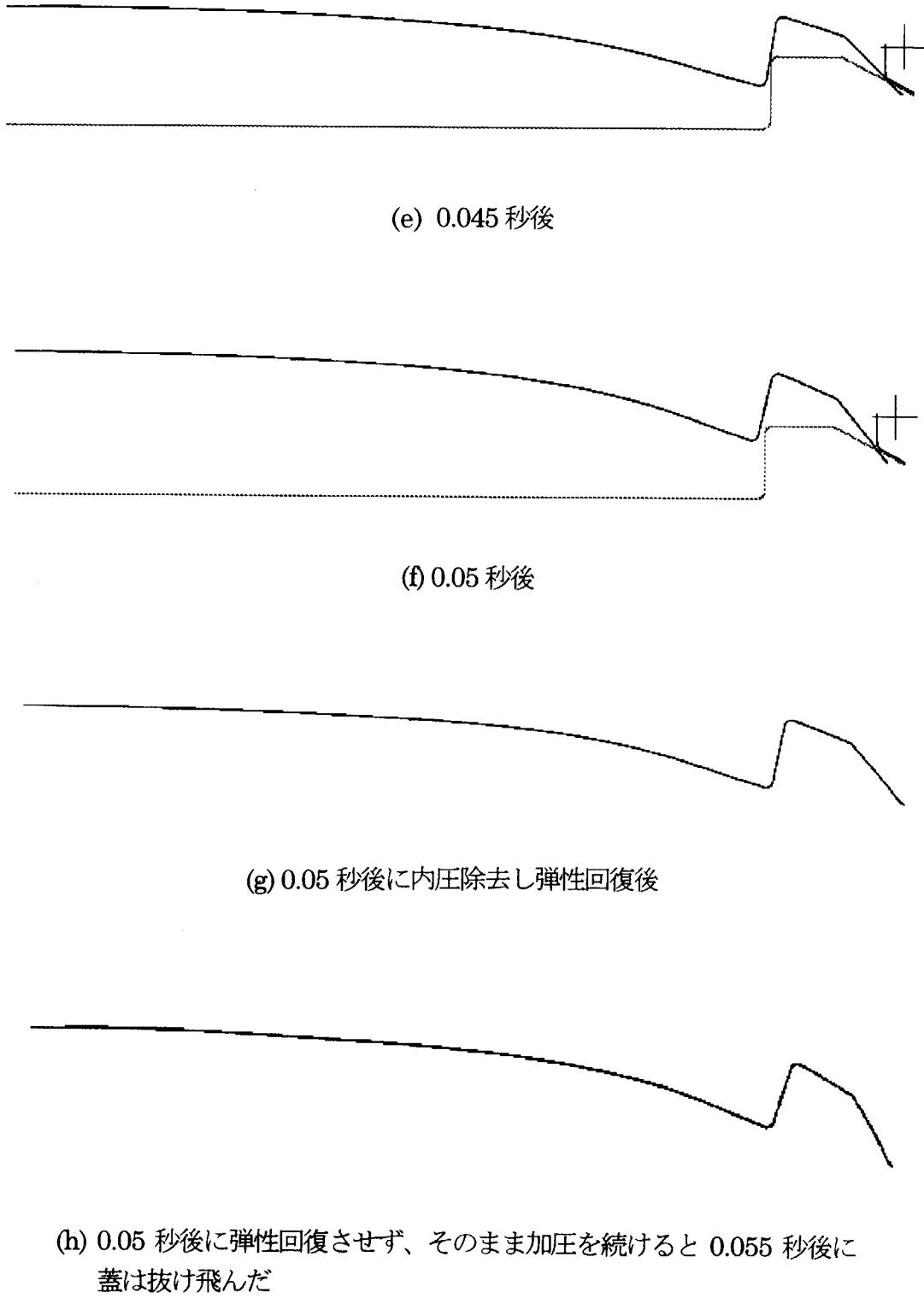


図 6-12 0.05秒で 0.25MPa に加圧した場合の蓋の変形図(続き)

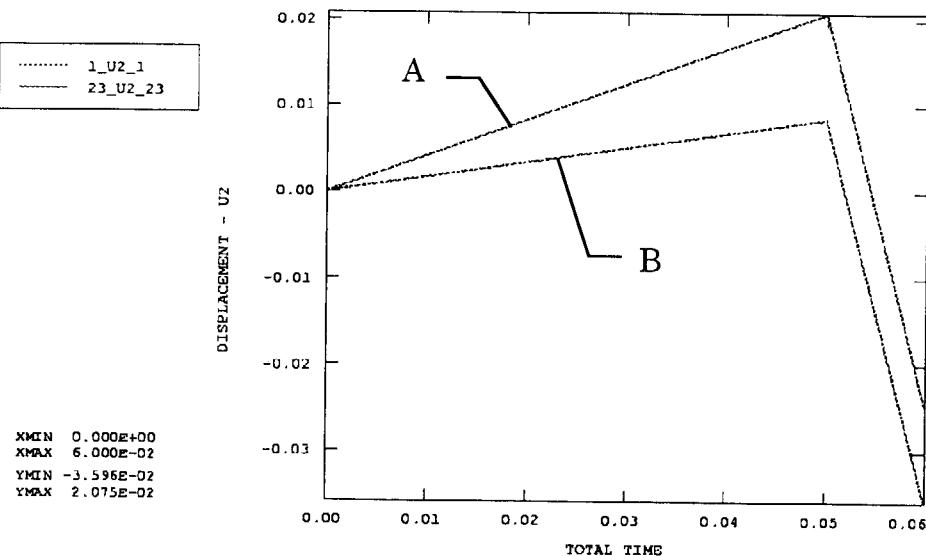


図 6-13 蓋中心部 (A) と端部最低点 (B) の高さ方向の変形

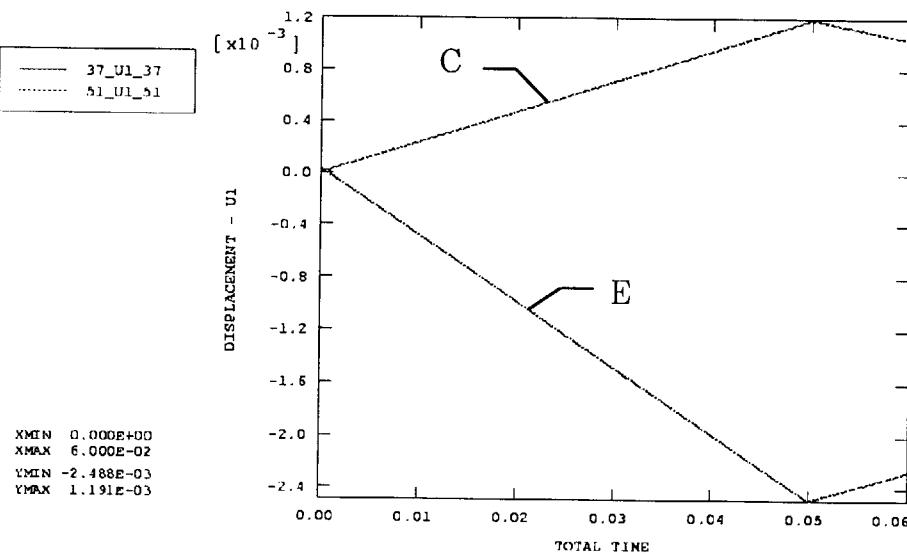
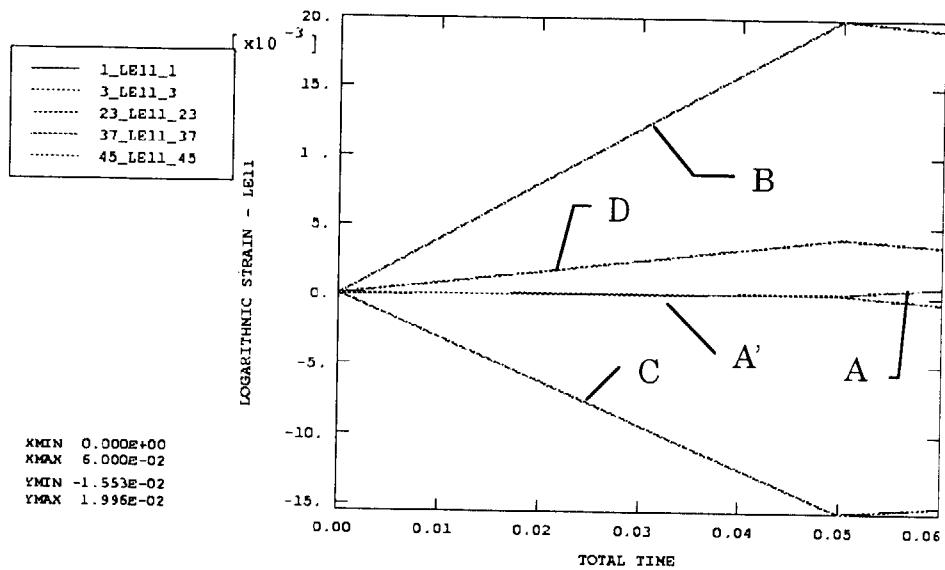
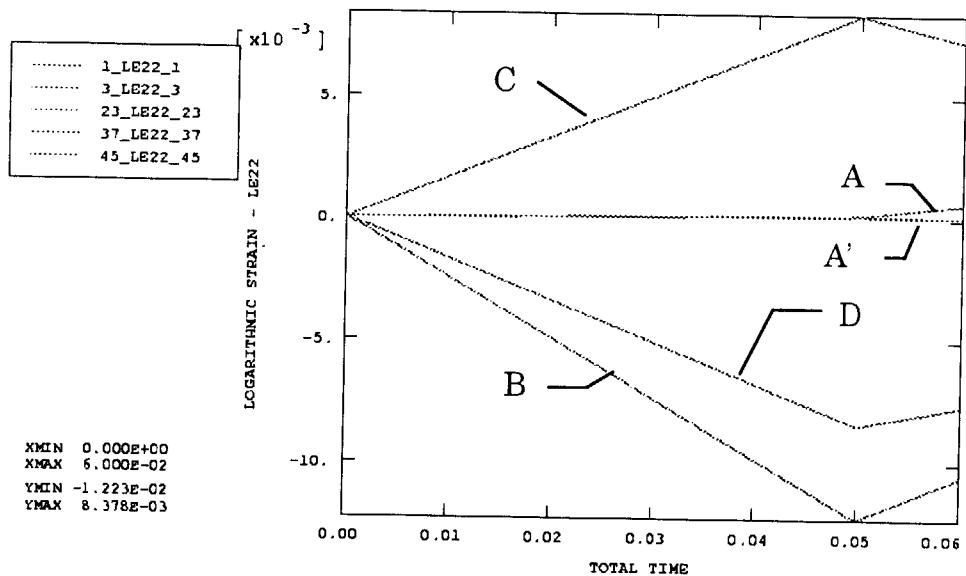


図 6-14 蓋端部最高点 (C) と蓋最端 (E) の水平方向の変形

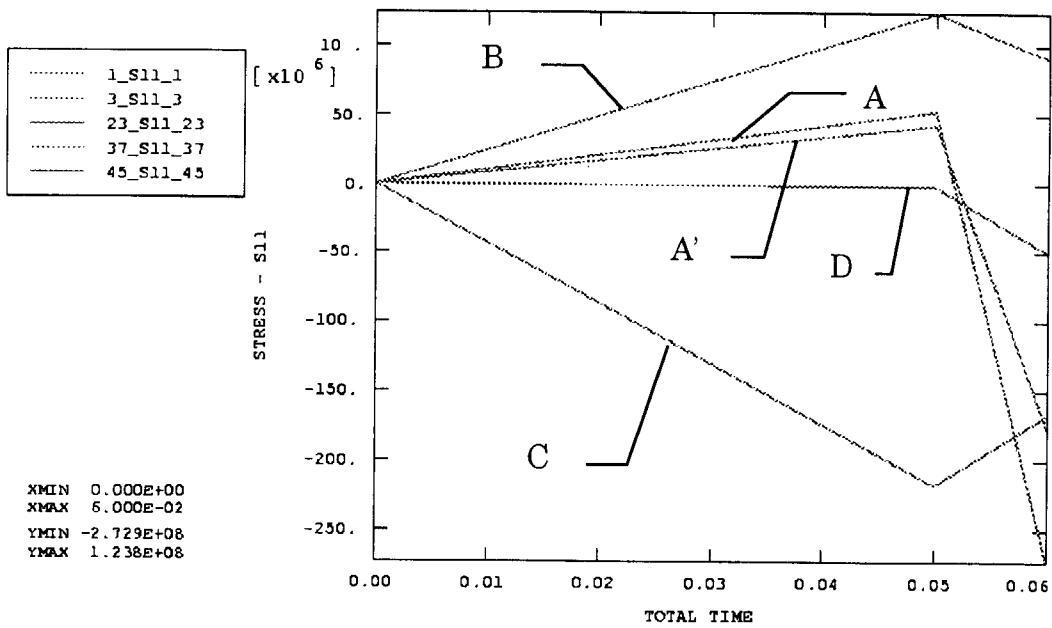


(a) 子午線方向歪み

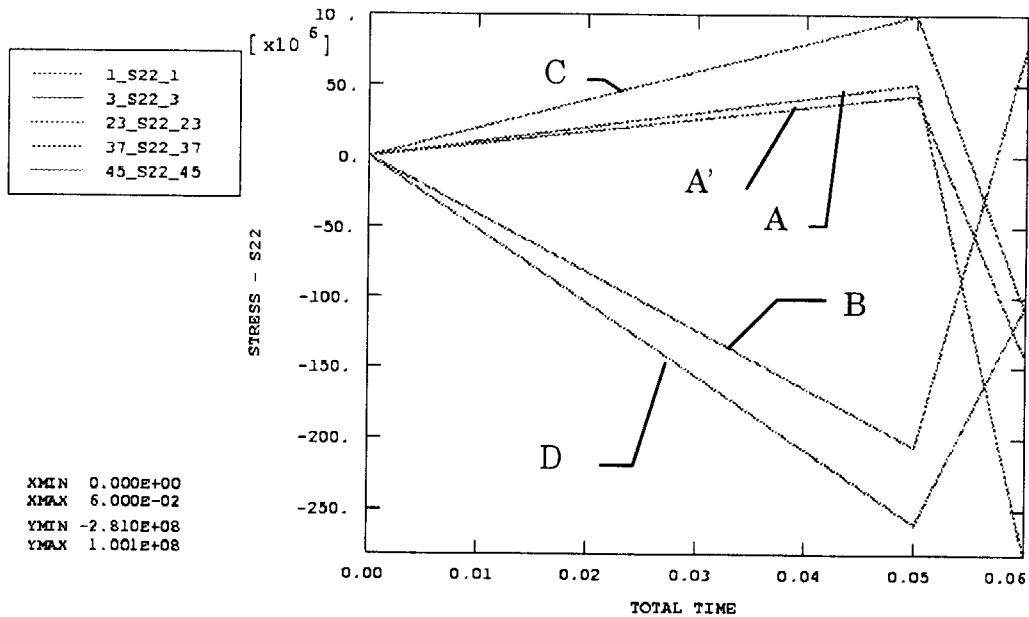


(b) 円周方向歪み

図 6-15 蓋の歪み分布



(a) 子午線方向応力分布



(b) 円周方向応力分布

図 6-16 蓋の応力分布

## 7. おわりに

平成9年11月20日に東海研究所ウラン濃縮研究棟で発生した火災事故の原因を究明するために、火災事故技術調査ワーキンググループが組織された。本ワーキンググループは、火災事故現場からウラン屑と飛散物を採取し、種々の方法によりそれらを分析するとともに、抜け飛んだ外容器蓋の詳細な観察、外容器の加圧試験及び外容器蓋の変形解析を行った。これらの分析、解析などにより、1) ウラン屑は、組成は粒度に依存したが、主に金属ウラン、ウラン炭化物及び酸化物から構成されていること、2) ウラン屑は、加水分解反応により、可燃性ガスであるメタン及び水素を発生すること、並びに3) ウラン屑を収納していた外容器の蓋は、爆発的な内圧上昇により抜け飛んだ可能性が高いこと、などを明らかにした。

ここに、ウラン濃縮研究棟火災事故技術調査報告書を公開し、類似の事故の再発防止に役立つことを切に願うものである。

## 謝 辞

本技術調査の遂行に際して、名古屋大学 内藤奎爾 名誉教授、東京大学大学院工学系研究科 平野敏右 教授、九州大学工学部応用原子核工学科 古屋廣高 教授、消防庁消防研究所消火第二研究室 斎藤 直 室長には貴重なコメントを頂きました。また、分析センターガラス工作係の小原和弘氏には反応容器等の製作をお願い致しました。さらに、澤畠 求課長をはじめ工作課の方々には実験装置の製作及び試験装置の使用に際して協力を頂きました。以上の方々に心より感謝致します。

## 国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	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
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束密度	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	アatto	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC関係理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

### 換算表

力	N(=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ポアズ)} (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa(=10 bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg(Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 <sup>3</sup>	145.038
0.0980665	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
0.101325	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
1.33322 × 10 <sup>-4</sup>	1.33322 × 10 <sup>-4</sup>	1.35951 × 10 <sup>-3</sup>	1.31579 × 10 <sup>-3</sup>	1	1.93368 × 10 <sup>-2</sup>
6.89476 × 10 <sup>-3</sup>	6.89476 × 10 <sup>-3</sup>	7.03070 × 10 <sup>-2</sup>	6.80460 × 10 <sup>-2</sup>	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV	1 cal = 4.18605 J(計量法)
1	0.101972	2.77778 × 10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813 × 10 <sup>-4</sup>	0.737562	6.24150 × 10 <sup>18</sup>	= 4.184 J(熱化学)	
9.80665	1	2.72407 × 10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487 × 10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082 × 10 <sup>19</sup>	= 4.1855 J(15 °C)	
3.6 × 10 <sup>6</sup>	3.67098 × 10 <sup>5</sup>	1	8.59999 × 10 <sup>5</sup>	3412.13	2.65522 × 10 <sup>6</sup>	2.24694 × 10 <sup>25</sup>	= 4.1868 J(国際蒸気表)	
4.18605	0.426858	1.16279 × 10 <sup>-6</sup>	1	3.96759 × 10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272 × 10 <sup>19</sup>	仕事率 1 PS(仏馬力)	
1055.06	107.586	2.93072 × 10 <sup>-4</sup>	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 <sup>21</sup>	= 75 kgf·m/s	
1.35582	0.138255	3.76616 × 10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506 × 10 <sup>-3</sup>	1	8.46233 × 10 <sup>18</sup>	= 735.499 W	
1.60218 × 10 <sup>-19</sup>	1.63377 × 10 <sup>-20</sup>	4.45050 × 10 <sup>-26</sup>	3.82743 × 10 <sup>-20</sup>	1.51857 × 10 <sup>-22</sup>	1.18171 × 10 <sup>-19</sup>	1		

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad	照射線量	C/kg	R
	1	2.70270 × 10 <sup>-11</sup>		1	100		1	3876
	3.7 × 10 <sup>10</sup>	1	0.01	1		2.58 × 10 <sup>-4</sup>	1	

線量当量	Sv	rem
1	100	
0.01	1	

ウラン濃縮研究棟火災事故技術調査報告—試料分析と外容器加圧試験・解析—