

JAERI-M  
8323

ポリエチレンー使用済粒状イオン  
交換樹脂固化体の耐放射線性

1979年7月

土尻 滋・早瀬 雄司・森山 昇

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

ポリエチレン-使用済粒状イオン交換樹脂固化体の耐放射線性

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

土尻 滋・早瀬 雄司・森山 昇

(1979年6月13日受理)

原子力発電所から発生する使用済粒状イオン交換樹脂を対象としたポリエチレン固化体の耐放射線性を検討した。実際の使用済イオン交換樹脂を含有するポリエチレン固化体の吸収線量は、およそ $10^6$  rad から  $10^8$  rad であると推定される。ポリエチレン固化体は2軸スクルー型押出機を用いて製作し、また放射線照射は $^{60}\text{Co}$ 、 $\gamma$ 線による外部照射により $10^9$  rad まで行った。

固化体の機械的性質は、 $10^8$  rad 以上の線量で、粘り強い性質から比較的硬くて脆い性質に変化するが、 $10^9$  rad までの線量を受けても圧縮強度の顕著な低下は認められなかった。また、固化体の体積膨張も $10^9$  rad まで生じなかった。固化体から生ずる放射線分解ガスは主に水素(81~97%)であり、その発生率は約 $2.5 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g} \cdot \text{Mrad}$ である。得られた水素発生率から、固化体を貯蔵した場合の爆発の可能性について検討した。

Irradiation stability of polyethylene products  
incorporating spent granular ion-exchange resins

Shigeru DOJIRI, Yuji HAYASE  
and Noboru MORIYAMA

Division of Environmental Safety Research,  
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received June 13, 1979)

Experiments were made on the irradiation stability of polyethylene products incorporating spent ion-exchange resins (granular) from LWR nuclear power plants. The absorbed doses of the products incorporating actual spent resins were estimated to be about  $10^6$  to  $10^8$  rad by calculation. The polyethylene - ion-exchange resin products were prepared with a twin screw extruder and irradiated with an external  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ -ray source up to  $10^9$  rad.

Although the products turned hard and brittle at doses above  $10^8$  rad losing their toughness, no significant decrease in the compressive strength was observed up to  $10^9$  rad. Swelling of the products was not observed up to  $10^9$  rad. Radiolysis gas generated in the products was mostly hydrogen (81-97%) which evolved at a generation rate of about  $2.5 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g.Mrad}$ . For this generation rate, the possibility of hydrogen explosion in storing the polyethylene products in enclosures is discussed.

Keywords : Irradiation stability, Spent ion-exchange resins, Polyethylene products, Radiation doses, Gamma radiation, Compressive strength, Swelling, Radiolysis gases, Hydrogen explosion

## 目 次

|                                   |    |
|-----------------------------------|----|
| 1. 緒 言                            | 1  |
| 2. 使用済粒状イオン交換樹脂-ポリエチレン固化体の吸収線量の推定 | 1  |
| 3. 実 験                            | 3  |
| 3.1 固化体の製作                        | 3  |
| 3.1.1 使用した材料                      | 3  |
| 3.1.2 製 作 法                       | 3  |
| 3.2 放射線照射                         | 3  |
| 3.3 放射線照射による形状変化                  | 3  |
| 3.4 機械的強度                         | 4  |
| 3.5 放射線分解ガス量                      | 4  |
| 4. 結果および考察                        | 5  |
| 4.1 放射線照射による形状変化                  | 5  |
| 4.2 機械的強度                         | 6  |
| 4.3 放射線分解ガス量                      | 8  |
| 5. 結 言                            | 12 |
| 文 献                               | 13 |

## Contents

|       |  |    |
|-------|--|----|
| 1.    | Introduction.....  | 1  |
| 2.    | Estimation of absorbed doses of polyethylene-<br>spent resins products ..... | 1  |
| 3.    | Experimental.....  | 3  |
| 3.1   | Preparation of polyethylene products .....                                   | 3  |
| 3.1.1 | Materials .....  | 3  |
| 3.1.2 | Procedure .....  | 3  |
| 3.2   | Irradiation .....  | 3  |
| 3.3   | Shape stability .....  | 3  |
| 3.4   | Mechanical strength.....   | 4  |
| 3.5   | Radiation decomposition .....  | 4  |
| 4.    | Results and discussion.....  | 5  |
| 4.1   | Shape stability .....  | 5  |
| 4.2   | Mechanical strength .....  | 6  |
| 4.3   | Radiation decomposition .....  | 8  |
| 5.    | Conclusions .....  | 12 |
|       | References .....   | 13 |

# 1. 緒 言

原子力発電所から生ずる放射性廃棄物のうち、使用済粒状イオン交換樹脂はタンクに貯蔵されたままになっており、その適切な処理法の開発が望まれている。このため、熱可塑性プラスチックであるポリエチレンによる固化法の開発を行い、実験室規模ではあるが優れた固化体を得る方法を確立した。<sup>1)</sup> さらにこのプラスチック固化法を実用化するために、2軸スクルー押出機を用いた連続固化装置を設計製作し、この装置を用いて製作した固化体の諸特性を検討し、良好な結果を得ている。<sup>2)</sup>

使用済イオン交換樹脂をポリエチレン固化する場合には、その放射能濃度が比較的高いため、ポリエチレンマトリックスの放射線分解が予想されることから、固化体の耐放射線性について検討を行う必要がある。特に、固化体を長期間保管する場合の安全性を評価する際には、重要な項目であると考えられる。

本報では、先ず実際の使用済イオン交換樹脂を固化した場合に固化体がうける吸収線量を推定し、つづいて連続固化装置を用いて製作した固化体について、放射線照射による機械的特性の変化、放射線分解ガス発生量および形状安定性を検討する。

## 2. 使用済粒状イオン交換樹脂—ポリエチレン 固化体の吸収線量の推定

実際に軽水炉型原子力発電所から排出される使用済粒状イオン交換樹脂（以下「使用済樹脂」という）の放射能濃度は、最大で  $312 \mu\text{Ci}/\text{ml}$  (PWR, 浄化系)<sup>3)</sup> である。

この使用済樹脂を 50 % 含有した  $200 \ell$  のポリエチレン固化体の放射能濃度は、 $4.5 \times 10^{-1} \text{ Ci}/\text{kg}$  となり、この固化体が無限時間にうける吸収線量は、次式により計算される。

$$D_{\beta} = \sum_p \int_0^{\infty} E_{\beta} S_v e^{-\lambda t} dt$$

$$D_{\gamma} = \sum_p \int_0^{\infty} \mu_a E_{\gamma} \phi_{\gamma} e^{-\lambda t} dt$$

ここで、 $D_{\beta}$ 、 $D_{\gamma}$  ;  $\beta$  および  $\gamma$  線の吸収線量 ( $\text{eVcm}^3$ )

$p$  ; 1 崩壊あたりの  $\beta$  または  $\gamma$  線の放出割合

$E_{\beta}$ 、 $E_{\gamma}$  ;  $\beta$  および  $\gamma$  線のエネルギー ( $\text{eV}$ )

$S_v$  ; 放射能濃度 ( $\text{cm}^{-3} \text{ sec}^{-1}$ )

$\mu_a$  ; エネルギー吸収係数 ( $\text{cm}^{-1}$ )

$\phi_{\gamma}$  ;  $\gamma$  線束 ( $\text{cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ )

$\lambda$  ; 壊変定数 ( $\text{sec}^{-1}$ )

# 1. 緒 言

原子力発電所から生ずる放射性廃棄物のうち、使用済粒状イオン交換樹脂はタンクに貯蔵されたままになっており、その適切な処理法の開発が望まれている。このため、熱可塑性プラスチックであるポリエチレンによる固化法の開発を行い、実験室規模ではあるが優れた固化体を得る方法を確立した。<sup>1)</sup> さらにこのプラスチック固化法を実用化するために、2軸スクルー押出機を用いた連続固化装置を設計製作し、この装置を用いて製作した固化体の諸特性を検討し、良好な結果を得ている。<sup>2)</sup>

使用済イオン交換樹脂をポリエチレン固化する場合には、その放射能濃度が比較的高いため、ポリエチレンマトリックスの放射線分解が予想されることから、固化体の耐放射線性について検討を行う必要がある。特に、固化体を長期間保管する場合の安全性を評価する際には、重要な項目であると考えられる。

本報では、先ず実際の使用済イオン交換樹脂を固化した場合に固化体がうける吸収線量を推定し、つづいて連続固化装置を用いて製作した固化体について、放射線照射による機械的特性の変化、放射線分解ガス発生量および形状安定性を検討する。

## 2. 使用済粒状イオン交換樹脂—ポリエチレン 固化体の吸収線量の推定

実際に軽水炉型原子力発電所から排出される使用済粒状イオン交換樹脂（以下「使用済樹脂」という）の放射能濃度は、最大で  $312 \mu\text{Ci/ml}$  (PWR, 浄化系)<sup>3)</sup> である。

この使用済樹脂を 50 % 含有した 200ℓ のポリエチレン固化体の放射能濃度は、 $4.5 \times 10^{-1} \text{ Ci/kg}$  となり、この固化体が無限時間にうける吸収線量は、次式により計算される。

$$D_{\beta} = \sum_p \int_0^{\infty} E_{\beta} S_v e^{-\lambda t} dt$$

$$D_{\gamma} = \sum_p \int_0^{\infty} \mu_a E_{\gamma} \phi_{\gamma} e^{-\lambda t} dt$$

ここで、 $D_{\beta}$ 、 $D_{\gamma}$  ;  $\beta$  および  $\gamma$  線の吸収線量 ( $\text{eVcm}^3$ )

$p$  ; 1崩壊あたりの  $\beta$  または  $\gamma$  線の放出割合

$E_{\beta}$ 、 $E_{\gamma}$  ;  $\beta$  および  $\gamma$  線のエネルギー ( $\text{eV}$ )

$S_v$  ; 放射能濃度 ( $\text{cm}^{-3} \text{ sec}^{-1}$ )

$\mu_a$  ; エネルギー吸収係数 ( $\text{cm}^{-1}$ )

$\phi_{\gamma}$  ;  $\gamma$  線束 ( $\text{cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ )

$\lambda$  ; 壊変定数 ( $\text{sec}^{-1}$ )



$t$  ; 時間 (sec)

ポリエチレン固化体の中心における  $\gamma$  線束は、次式で求められる。<sup>11)</sup>

$$\phi_r = \frac{BS_v}{\mu_s} [G(\mu_s h, \mu_s R_0)]$$

ここで、 $B$  ; 再生係数

$\mu_s$  ; 吸収係数 ( $\text{cm}^{-1}$ )

$h$  ; 固化体の高さの  $\frac{1}{2}$  (cm)

$R_0$  ; 固化体の半径 (cm)

上式において、固化体に含まれる放射性核種は、使用済樹脂に吸着している核種<sup>3)</sup>のうち、最も半減期の長い  $^{137}\text{Cs}$  と仮定した。また、 $\beta$  線は全部吸収され、 $\gamma$  線束は固化体の端と中心とであまり変わらないと仮定した。

これらの仮定のもとで計算すると、このポリエチレン固化体がうける吸収線量は、永年で、 $4 \times 10^8$  rad である。すなわち、使用済樹脂-ポリエチレン固化体がうける吸収線量は、最大でこの値を越えることはないと考えられる。

PWR から発生する使用済樹脂の約 80 % は放射能濃度が  $56 \mu\text{Ci/ml}$  以下であり、平均放射能濃度は  $92 \mu\text{Ci/ml}$  である。また、BWR から発生する使用済樹脂の放射能濃度は  $1.1 \mu\text{Ci/ml}$  である。<sup>3)</sup>したがって、大部分の使用済樹脂-ポリエチレン固化体がうける吸収線量は、この値よりはるかに小さい。PWR および BWR の平均放射能濃度をもつ使用済樹脂を固化した場合、固化体の吸収線量は、それぞれ、永年で  $1 \times 10^8$  rad および  $1 \times 10^6$  rad となる。また、使用済樹脂には、この計算で仮定した  $^{137}\text{Cs}$  の他に、これよりも半減期の短い  $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{59}\text{Fe}$ 、 $^{54}\text{Mn}$  など多く含まれているので、実際には、これらの値よりもさらに低いものと考えられる。Fig. 1 に、上述の仮定のもとに計算した、使用済樹脂の放射能濃度と吸収線量の関係を示す。含有核種を  $^{60}\text{Co}$  と仮定した場合についても同様に示す。

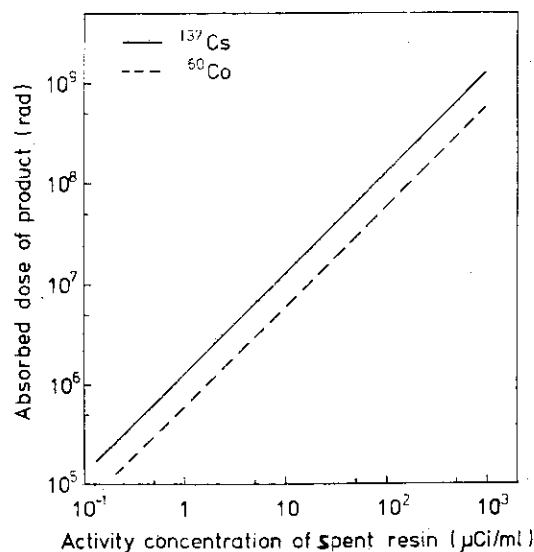


Fig. 1 Estimation of absorbed doses of 200 l polyethylene products containing 50 wt% of spent resins contaminated with Cs-137 or Co-60

## 3. 実 験

### 3.1 固化体の製作

#### 3.1.1 使用した材料

固化材として使用したポリエチレンは、住友化学製の高圧法ポリエチレンであるスミカセン G 806である。このポリエチレンは、メルトインデックスが $50(\text{g}/10 \text{ min})$ 、密度が $0.919$ でペレット状をしている。

模擬廃棄物として使用した粒状イオン交換樹脂（以下「樹脂」という）は、三菱化成製のダイヤイオンSK1B、H形（以下「カチオン樹脂」という）およびダイヤイオンSA10A、OH形（以下「アニオン樹脂」という）であり、未使用品で非放射性のものである。

#### 3.1.2 製 作 法

ポリエチレン固化体は、ベンチスケールのプラスチック連続熔融固化実験装置を使用して製作した。本装置は、2軸スクルー型押出機を主体とした処理能力 $2.5 \text{ kg/hr}$ の連続固化装置で、樹脂乾燥機、原材料供給装置、熔融混練装置、固化槽およびオフガス処理装置で構成されている。

樹脂を樹脂乾燥機において、温度 $160^\circ\text{C}$ で25時間乾燥させた後、熔融混練装置にフィードし、温度 $160^\circ\text{C}$ でポリエチレンと熔融混合した。この混合時の樹脂含水率は10%以下である。押出された熔融物を、ほぼ同温度に加熱した円筒形のステンレス製固化槽（ $5 \text{ cm}\phi \times 8 \text{ cm}$ ）に流しこみ、室温で放冷して固化体とした。

### 3.2 放射線照射

照射は東海研究所のCo照射室において、 $^{60}\text{Co}$ 、 $\gamma$ 線による外部照射で行った。照射条件は、空气中、室温、線量率 $1.1 \times 10^6 \text{ R/hr}$ であり、約 $10^7 \sim 10^9 \text{ rad}$ 照射した。ただし、放射線分解ガス量の測定の場合は、真空中で照射した。

### 3.3 放射線照射による形状変化

混床樹脂を50%含有するポリエチレン固化体を用いて、照射後の体積、重量および表面状態の変化を調べた。混床樹脂のカチオン樹脂とアニオン樹脂の混合比は、乾燥重量比で2:1である。

### 3.4 機械的強度

カチオン樹脂を50%含有するポリエチレン固化体を用いて、照射後、圧縮試験およびアイゾット衝撃試験を行った。試験法は、それぞれ、ASTM-D-695およびASTM-D-256の規格に従った。

### 3.5 放射線分解ガス量

カチオン樹脂およびアニオン樹脂を、それぞれ50%含有するポリエチレン固化体を用いた。これらの固化体の中心部を、一辺が約3mmの角柱体に切り出し、その約0.2~1.5gをガラスアンプルに入れて真空封入し、これを照射試料とした。比較として、ポリエチレン単独の固化体、および110°Cで24時間乾燥させたカチオン樹脂5~30gについても同様に行った。

これらの試料を $^{60}\text{Co}$ の $\gamma$ 線で照射し、照射により発生したガスを真空ライン(Photo.1)内に取り出し、テプラーポンプを用いてそのガス量を定量した。その際、テプラーポンプの前に液体窒素のトラップを設け、水素、メタン、窒素などのトラップされないガスとトラップされたガスを別々に定量した。定量にあたっては質量分析計(日立製RMS-4型)を併用した。

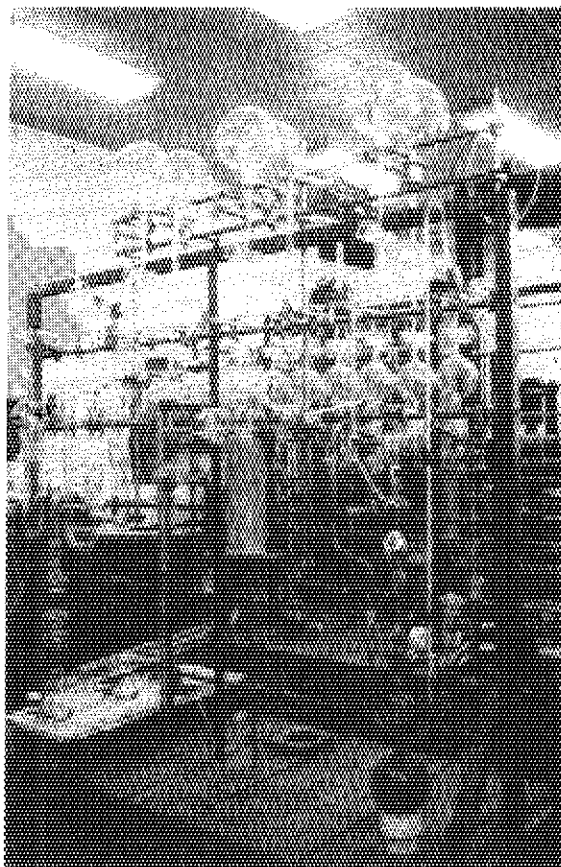


Photo. 1 Vacuum apparatus used for the determination of amount of radiolysis gases

## 4. 結果および考察

### 4.1 放射線照射による形状変化

Photo. 2に、照射後の固化体の写真を示す。 $10^7 \sim 10^9$  radの吸収線量においては、固化体の体積変化は認められなかった。重量は、いずれの固化体も0.3～0.4%増加した。この重量増加は、照射中に、固化体表面に存在する樹脂が空気中の水分を吸収したために起きたものと考えられる。また、照射後の固化体表面を目視で観察した結果、色が茶色から暗褐色に変化しているだけであり、表面状態の変化は認められなかった。

形状安定性についてアスファルト固化体と比較してみると、Segawa<sup>11)</sup>らは、硝酸ナトリウムを50%含有しているストレート60/80およびブローン20/30アスファルト固化体について、それぞれ、 $10^7$  Rの照射で5%および2%、 $10^8$  Rで43%および13%の体積膨脹が起こると報告している。このことは、放射能濃度の高いアスファルト固化体の場合には、固化体の崩壊やそれに伴う放射性核種の飛散、あるいは、表面積の増大に伴う浸出率の増加などの危険性があることを意味している。ポリエチレン固化体にこのような体積膨脹が起こらないというのは、1つの大きな利点であると考えられる。

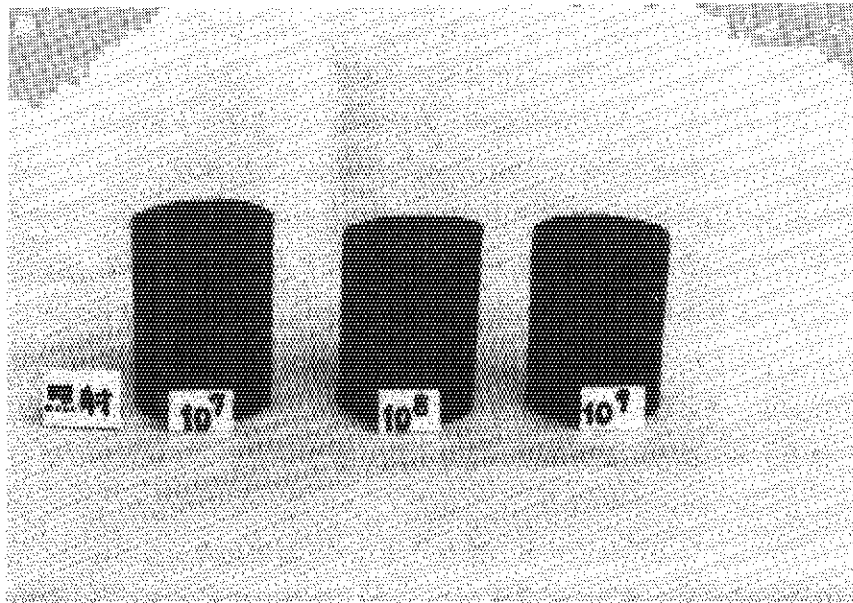


Photo. 2 Polyethylene products containing 50 wt% of resin after irradiation with external  $\gamma$ -ray to absorbed doses of  $10^7$ ,  $10^8$  and  $10^9$  rad

## 4.2 機械的強度

Fig. 2 に、樹脂混入率 50% の固化体の、吸収線量と圧縮強度および弾性率の関係を示す。圧縮強度は  $10^7$  rad の吸収線量で未照射固化体の強度 ( $230\text{kg}/\text{cm}^2$ ) よりもやや大きくなるが、 $10^8$  rad では  $190\text{kg}/\text{cm}^2$  に低下し、 $10^9$  rad で再び未照射の固化体と同程度の強度となる。

照射固化体の弾性率は、未照射の固化体よりも大きい。 $10^7\sim 10^8$  rad の範囲における弾性率は約  $34\text{kg}/\text{mm}^2$  であり、ほとんど変わらないが、 $10^9$  rad では約  $40\text{kg}/\text{mm}^2$  に増大する。照射によって弾性率が大きくなるのは、マトリックスの分子間に架橋ができるためである。<sup>4)</sup> ポリエチレンの場合、架橋の数は吸収線量にほぼ比例すると考えられている。<sup>4)</sup> これらの結果は、固化体が放射線照射を受けると、未照射の場合よりも変形しにくくなり、またその程度は線量の増大に伴い大きくなることを示している。

Fig. 3 は、樹脂混入率 50% の固化体の応力-ひずみ曲線である。この曲線の下面積は、固化体を破壊するのに必要なエネルギーに比例し、固化体の粘り強さをあらわしている。<sup>5)</sup> この面積は、 $10^7$  rad 照射した固化体が最も大きく、未照射の固化体よりも大きい。 $10^8$  rad ではこの面積は急激に小さくなり、 $10^9$  rad ではさらに小さくなる。これらの結果は、 $10^7$  rad の照射を受けた固化体は、未照射の固化体よりも粘り強い性質を示すが、 $10^8$  rad 以上の線量では、未照射および  $10^7$  rad 照射固化体に比べ、かなり脆い固化体に変化することを示している。

以上に述べた圧縮強度、弾性率および応力-ひずみ曲線から、固化体は、 $10^9$  rad までの放射線照射を受けても圧縮強度の著しい低下は認められず、また変形しにくくなる傾向を示すが、 $10^8$  rad 以上の線量では、比較的脆い固化体に変化することが明らかとなった。

Fig. 4 に、樹脂混入率 50% の固化体の、吸収線量とアイゾット衝撃強度の関係を示す。固化体の衝撃強度は、未照射の場合、 $5\text{kg}\cdot\text{cm}/\text{cm}$  であるが、照射されると、約  $10^8$  rad までは強度が上昇し  $7\text{kg}\cdot\text{cm}/\text{cm}$  の値を示すが、それ以上の線量では、逆に強度が低下する。 $10^9$  rad では  $2\text{kg}\cdot\text{cm}/\text{cm}$  となり、未照射固化体の強度の  $1/2$  以下となる。

衝撃強度は高速の衝撃条件のもとでの固化体の粘り強さ、すなわち破壊に対する抵抗を表わすものである。<sup>5)</sup> したがって、これらの結果は、 $10^8$  rad までは未照射固化体よりもむしろ粘り強い傾向を示すが、それ以上の高線量域では、脆い固化体に変化することを示している。ここでいう粘り強さとは、高速の衝撃条件の下での粘り強さであり、圧縮試験の場合とは必ずしも一致しない。

ポリエチレンの照射による機械的性質の変化に関して、衝撃強度および伸び(ひずみ)は約  $10^8$  rad から急激に低下し、逆に弾性率は  $10^9$  rad から急激に増加するという報告がある。<sup>6)</sup> 樹脂-ポリエチレン固化体の場合もほぼ同様な傾向を示していることから、固化体の特性は、ポリエチレンマトリックスの特性に支配されていることがわかる。

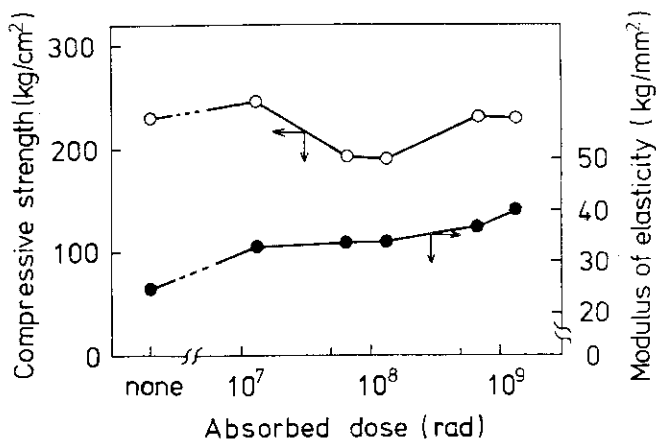


Fig. 2 Effects of irradiation on compressive strength and modulus of elasticity of polyethylene products containing 50 wt% of resin

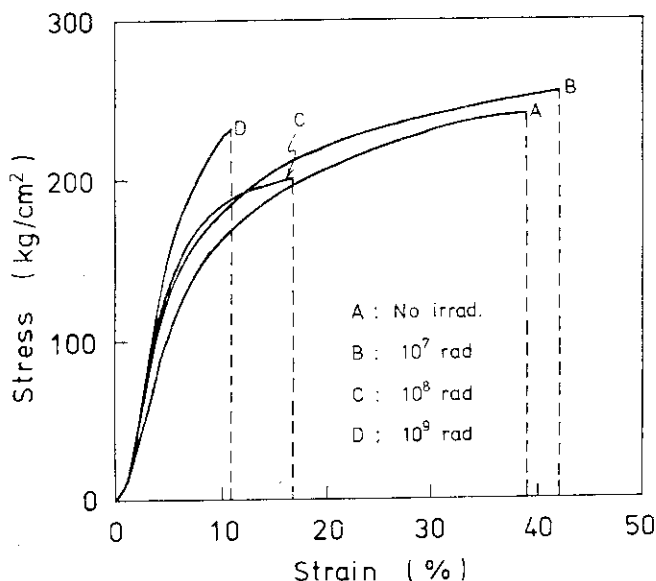


Fig. 3 Effects of irradiation on stress-strain curve of polyethylene products containing 50 wt% of resin

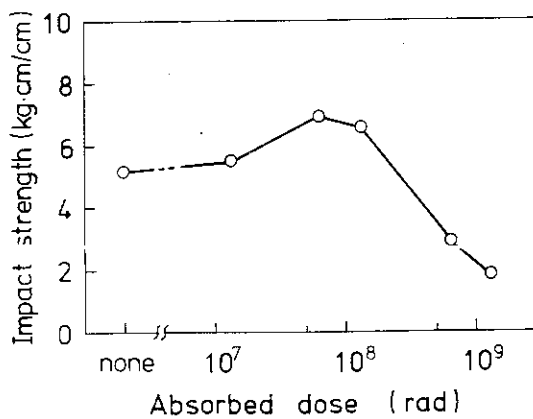


Fig. 4 Effects of irradiation on Izod impact strength of polyethylene products containing 50 wt% of resin

### 4.3 放射線分解ガス量

Fig. 5に、樹脂を50%含有したポリエチレン固化体の吸収線量と発生ガス量の関係を示す。発生ガス量は、吸収線量の増加と共にほぼ直線的に増加する。 $7 \times 10^8$  radにおける全発生ガス量および水素発生量は、それぞれ $17 \text{ cm}^3/\text{g}$ および $14 \text{ cm}^3/\text{g}$ である。また、 $10^7 \sim 7 \times 10^8$  radの範囲におけるガス発生率は、それぞれ $(31 \pm 0.7) \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g} \cdot \text{Mrad}$ および $(2.5 \pm 0.5) \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g} \cdot \text{Mrad}$ である。

全発生ガス量のうち水素が占める割合は81~97%であり、発生ガスの大部分は水素であることが明らかとなった。また、この水素の占める割合は、アニオン樹脂を含有している固化体の方がカチオン樹脂の固化体よりもわずかに大きい。発生ガスのうち、残りの部分は、主に水と窒素である。発生ガス量は、アニオン樹脂を含有した固化体の方がわずかに多い傾向が認められた。

Fig. 6に、カチオン樹脂を50%含有した固化体、ポリエチレン単独固化体およびカチオン樹脂(乾燥)の、吸収線量と水素発生量の関係をおのおの示す。水素発生量は吸収線量の増加と共にほぼ直線的に増加し、また、その増加する割合は、グラフの傾きから3者ともほぼ同じであることがわかる。

$7 \times 10^8$  radにおける水素発生量は、樹脂含有固化体が $14 \text{ cm}^3/\text{g}$ 、ポリエチレン単独固化体が $26 \text{ cm}^3/\text{g}$ 、カチオン樹脂が $0.22 \text{ cm}^3/\text{g}$ である。この吸収線量における水素の生成G値は、それぞれ、0.86, 1.6, 0.014である。

これらの結果からわかるように、樹脂を50%含有している固化体の水素発生量は、ポリエチレン単独固化体の発生量の約 $1/2$ であり、樹脂のみの場合は約 $1/100$ である。このことは、樹脂含有固化体の水素発生量は、ほぼポリエチレンの含有量に支配され、混入されている樹脂からの寄与はきわめて小さいことを示している。樹脂が放射線に対して比較的安定であるのは、樹脂の高分子基体がスチレンとジビニルベンゼン(D.V.B)の重合体であり、その化学構造の一部であるフェニル基の保護作用<sup>4)</sup>があるためである。

これらの結果をアスファルト固化体の場合と比較してみる。アスファルト固化体の水素発生量については、Hild<sup>7)</sup>は $8 \times 10^7$  radで $0.3 \text{ cm}^3/\text{g}$ (イオン交換樹脂40%, 残留水分10%), Bähr<sup>8)</sup>は $10^8$  radで $0.4 \sim 0.5 \text{ cm}^3/\text{g}$ (塩50%), また、著者ら<sup>9)</sup>は $10^8$  Rで $0.5 \text{ cm}^3/\text{g}$ (スラッジ43%)と報告している。これらの値をポリエチレン固化体(樹脂50%)と比較すると、 $8 \times 10^7$  rad および $10^8$  radの水素発生量は、それぞれ $1.8 \text{ cm}^3/\text{g}$ および $2.4 \text{ cm}^3/\text{g}$ であり、アスファルト固化体に比べ5~6倍水素発生量が多いことがわかる。このことから、耐放射線性のうち、放射線分解ガスの発生という点に関しては、アスファルト固化体の方が優れていることが明らかとなった。このように、ポリエチレン固化体の放射線分解ガス発生量がアスファルト固化体よりも多いにもかかわらず、4.1項で述べたように、アスファルト固化体においてみられるような体積変化が生じないということは、ポリエチレンマトリックスが比較的ガスを拡散しやすいマトリックスであるということを示している。また、著者ら<sup>9)</sup>は、アスファルト固化体の水素発生量はアスファルト量だけに支配され、全発生ガス量のうち水素が占める割合は75~95%であると報告しており、これらの点については、ポリエチレン固化体はアスファルト固化体と同様な傾向を示している。

以上に述べた結果から、ポリエチレン固化体の発生ガスの大部分が水素であり、その発生量は比較的多いことが明らかとなった。水素は可燃性のガスであり、爆発下限は $4\%$ である。したがって、水素発生量は、固化体を貯蔵する場合や、あるいは西独のAsse 岩塩鉱のような場所に永久処分する場合の安全評価には重要な因子となる。そこで、得られた結果をもとに200 ℓのポリエチレン固化体から発生する水素量を推定してみた。

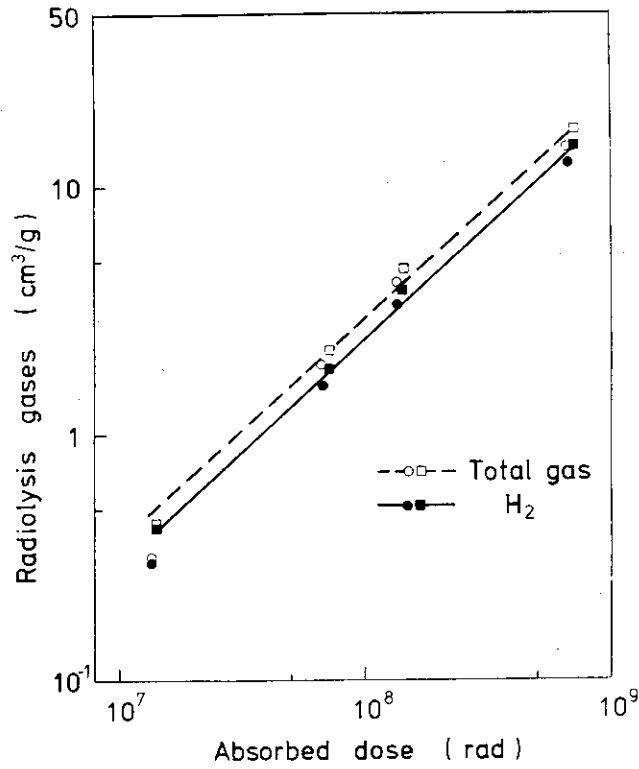


Fig. 5 Radiolysis gases from polyethylene products containing 50 wt% of resins  
 ○ ● : Cation-exchange resin  
 □ ■ : Anion-exchange resin

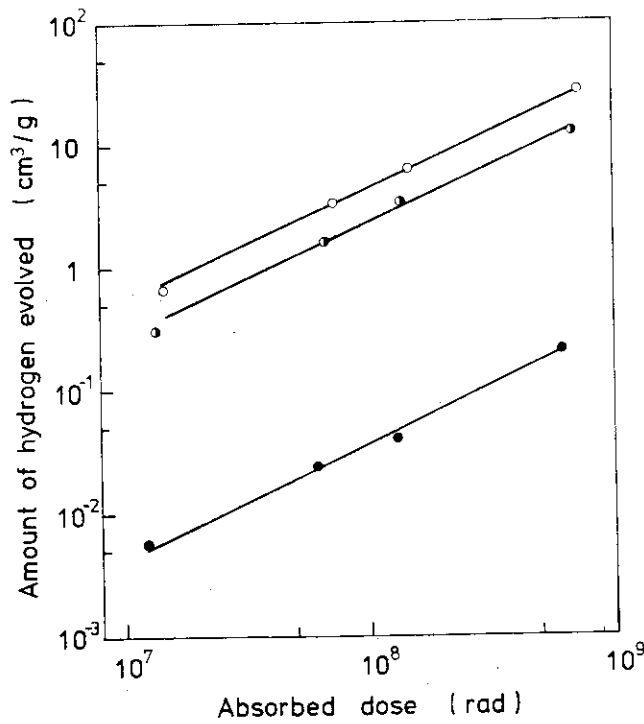


Fig. 6 Amount of hydrogen evolving from polyethylene, cation-exchange resin and polyethylene product containing 50 wt% of cation-exchange resin



Fig. 7は、樹脂を50%含有している200ℓの固化体について、固化体および混入する使用済樹脂の放射能濃度と、1個あたりの水素発生量の関係を示したものである。計算の方法および仮定は2章と同じである。このグラフから、固化体1個あたり、永年で発生する水素量は、最も放射能濃度が高いPWR浄化系の使用済樹脂(312μCi/ml)を含む固化体(4.5×10<sup>-1</sup>Ci/kg)の場合は1.7m<sup>3</sup>、また、BWRの使用済樹脂(1.1μCi/ml)を含む固化体(1.6×10<sup>-3</sup>Ci/kg)の場合は10ℓであることがわかる。

Körner<sup>10)</sup>は、固化体のある密閉された空間に貯蔵した場合の爆発下限に達する時間を求める式を次のように報告している。

$$t = -\frac{2303}{\lambda} \log \left( 1 - \frac{1.95 \times 10^{-8} \text{ Ex}_u \lambda \left( \frac{V}{V_s} - 1 \right)}{\frac{v\text{H}_2}{mD} dk \frac{A_0}{m} E} \right)$$

ここで、 $t$  ; 爆発下限に達する時間 (day)

$\text{Ex}_u$  ; 爆発下限

$\lambda$  ; 壊変定数 (day<sup>-1</sup>)

$V$  ; 貯蔵空間の容積 (cm<sup>3</sup>)

$V_s$  ; 固化体の容積 (cm<sup>3</sup>)

$v\text{H}_2/mD$  ; 水素発生率 (cm<sup>3</sup> g<sup>-1</sup> rad<sup>-1</sup>)

$d$  ; 固化体の密度 (g cm<sup>-3</sup>)

$k$  ; 固化体のエネルギー吸収の補正係数

$A_0/m$  ; 放射能濃度 (Ci g<sup>-1</sup>)

$E$  ; 1崩壊あたりの放出エネルギー

( $E = \bar{E}_\beta + E_\gamma$ ) (MeV)

$1.96 \times 10^{-8}$  ; Ci g<sup>-1</sup> MeV を rad day<sup>-1</sup> に変換する係数

この式を用いて、前述のPWR浄化系およびBWR系使用済樹脂を含有するポリエチレン固化体について、爆発下限に達する時間を求めてみると、固化体の占める容積を貯蔵空間の60%と仮定した場合、それぞれ58日および無限大となる。また、この式から、永遠に爆発下限に達することがない固化体の放射能濃度を求めると、上述の計算で仮定した<sup>137</sup>Csの場合は1.7×10<sup>-3</sup>Ci/kg、また<sup>60</sup>Coの場合は4.5×10<sup>-3</sup>Ci/kgとなり、これらは、それぞれ放射能濃度1.2μCi/mlおよび3.1μCi/mlの使用済樹脂を固化した場合に相当する。

以上のことは、放射能濃度がこれらの値以下の場合、たとえ密閉した状態で固化体を貯蔵しても爆発火災の可能性は考えられないが、放射能濃度がこれらの値以上の場合、例えば前述のPWR浄化系使用済樹脂を含む固化体の場合(4.5×10<sup>-1</sup>Ci/kg)は、換気その他、貯蔵施設の管理には十分注意を払う必要があることを示している。

Table 1に、10<sup>-3</sup>~1Ci/kgの放射能濃度をもつ固化体の爆発下限に達する時間を示した。

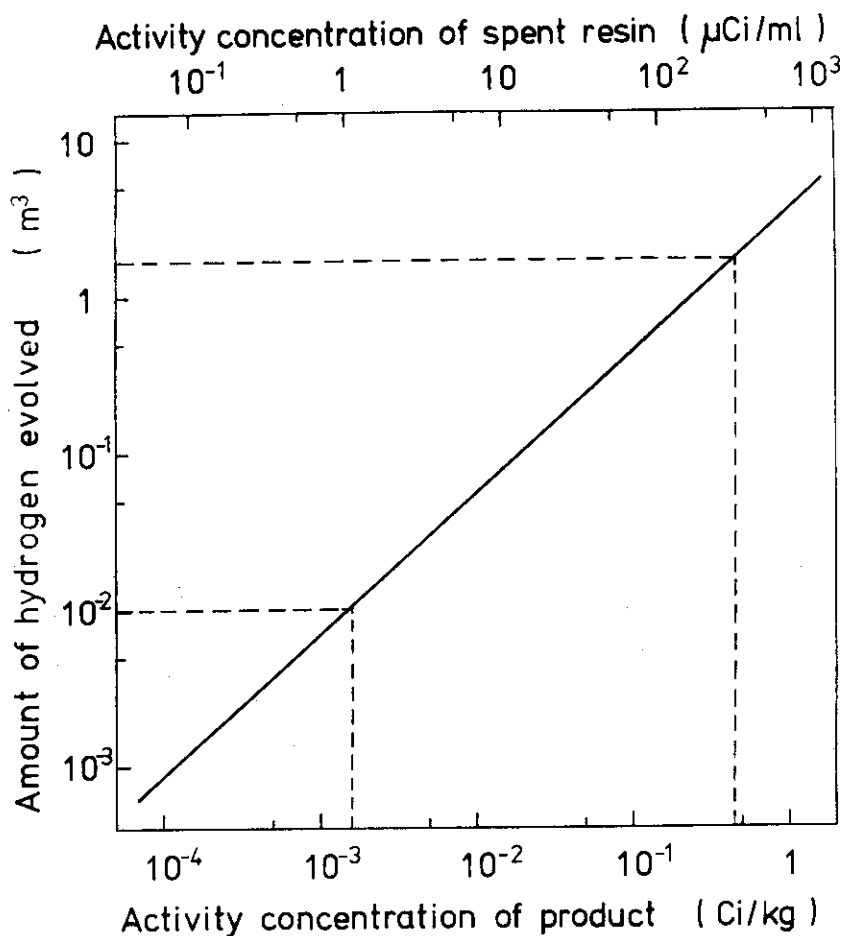


Fig. 7 Amount of hydrogen expected to evolve from 200 l of polyethylene products containing 50 wt% of spent resins in infinite time

Table 1 Estimation of time for reaching the lower explosion limit of hydrogen in enclosures

| Activity concentration |                      | Time   |
|------------------------|----------------------|--------|
| Product* (Ci/kg)       | Spent resin (μCi/ml) | (days) |
| 10 <sup>-3</sup>       | 0.69                 | ∞      |
| 10 <sup>-2</sup>       | 6.9                  | 3000   |
| 10 <sup>-1</sup>       | 69                   | 270    |
| 1                      | 690                  | 27     |

\* Polyethylene product containing 50 wt% of spent resin contaminated with Cs-137

## 5. 結 言

使用済樹脂-ポリエチレン固化体が永年で受ける吸収線量は $10^6 \sim 10^8$  radであり、最大でも $4 \times 10^8$  radをこえることはないと推定される。

ポリエチレン固化体の圧縮強度は約 $230 \text{ kg/cm}^2$ であるが、 $10^9$  radまでの線量を受けても顕著な強度低下は認められない。しかし、 $10^8$  rad以上の線量で、固化体の性質が、粘り強い性質から比較的硬くて脆い性質に変化する。

ポリエチレン固化体は、水素を主成分(81~97%)とする放射線分解ガスを発生する。分解ガス発生量は吸収線量にはほぼ比例し、また水素の発生率は約 $2.5 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g} \cdot \text{Mrad}$ である。200ℓ固化体の発生水素量は、推定した最大吸収線量において、1個あたり永年で $1.7 \text{ m}^3$ となり、この固化体を密閉した状態で貯蔵したと仮定すると58日で水素の爆発下限に達する。したがって、このような放射能濃度の高い固化体( $4.5 \times 10^{-1} \text{ Ci/kg}$ ,  $312 \mu\text{Ci/ml}$ の使用済樹脂を50%含む)を貯蔵する場合には、換気その他貯蔵施設の管理に十分注意を払う必要がある。また、密閉した状態で貯蔵した場合でも爆発下限に達することがない固化体の放射能濃度は、約 $2 \sim 5 \times 10^{-3} \text{ Ci/kg}$ であり、これは約 $1 \sim 3 \mu\text{Ci/ml}$ の使用済樹脂を固化した場合に相当する。

ポリエチレン固化体は、このように $\gamma$ 線照射により分解ガスを発生するが、体積膨張は生じない。これは、 $10^7$  R以上の照射で体積膨張が生ずるアスファルト固化体と比較すると、1つの大きな利点である。

## 謝 辞

本報告書を作成するにあたり、種々の御指導を賜った天野 恕環境安全研究部長、和達嘉樹低レベル廃棄物処理処分研究室長に感謝いたします。

## 文 献

- 1) Moriyama N., Dojiri S., Emura S., Sugo T., Machi S. : J. Nucl. Sci. Technol., 12[6], 362~369 (1975)
- 2) 保健物理と安全管理・No 18 (ポリエチレンによる使用済イオン交換樹脂の連続溶融固化)  
JAERI-M 6696, 213~215 (1976)
- 3) 放射性固体廃棄物処理処分検討会：“放射性固体廃棄物処理処分の検討会報告書(上)”,  
実業公報社, 129~138 (1972)
- 4) 篠原健一, 柏原久二：“放射線と高分子”, 新物理学進歩シリーズ10, 槇書店, 4章および6章(1968)
- 5) Nielsen E.L. : “Mechanical Properties of Polymers”, Reinhold Publishing Corp. (1962)  
小野木重治訳：“高分子の力学的性質”, 化学同人, 5~6章(1965)
- 6) Sisman O. Bopp D.C. : ORNL 928 (1951)
- 7) Hild W., John E.H., Kluger W., Kowa S. : KFK2380, 152 (1976)
- 8) Bähr W., Hild W., Drobnik S. : IAEA-SM-207/81 (1976)
- 9) Dojiri S., Matsuzuru H., Moriyama N. : J.Nucl. Sci. Technol., 14[2], 125~130 (1977)
- 10) Körner W., Dagen A. : Isotopenpraxis, 7, 296~302 (1971)
- 11) Segawa T., Yamamoto M., Miyao H., Mizuno R. : PNCT 831-73-01, 46~51 (1973)