

9月20日面談の補足資料：樹脂製の袋内圧評価に係る各種パラメータについて

1. α 線分解によるエポキシ樹脂からのガス発生量計算について

エポキシ樹脂中に分散している粉末粒子からの α 線分解で生じるガス発生量の計算式は以下の通り。

$$21\text{年間に発生する全ガス量 } V_{\text{gas,Total}} \text{ (L)}^{*1} = N_{\alpha} \cdot F_{\alpha} \cdot G \cdot E_{\alpha} \cdot 10^6 / N_A \cdot 22.4$$

N_{α} : 21年間の全 α 崩壊数・・・Am除去の有無により**可変**

F_{α} : 粒子内で発生する α 崩壊のエネルギーのうち、粒子外(樹脂)に付与される割合・・・粉末粒子径に大きく依存(**可変**)

G: ガス発生G値(エネルギー付与100eVあたり発生するガス分子の個数)・・・0.22で**固定**(検証試験結果より)

E_{α} : α 崩壊のエネルギー・・・平均5.29 MeVで**固定**

N_A : アボガドロ数

*1 体積は標準状態への換算値(0°C、1気圧)

粉末粒子内で発生する α 線エネルギーのうち、粒子外に付与されるエネルギーの割合(F_{α}) (PHITSコードによる評価)

Am除去の有無による貯蔵容器内核燃料物質全量の α 崩壊数(N_{α})の比較 (梱包更新から破裂時までの21年間)

Am除去なし	■ 個
Am除去あり*1	■ 個
(除去あり/除去なし)の比	0.854

*1 昭和58年にAm全量を除去したと仮定

Amを除去した場合、ガス発生量は減少するが、その効果は比較的小さい

核物質防護上の観点から■を非開示としています。

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

粒子径が大きいほど、粒子内で α 線エネルギーが減衰するため、樹脂に付与されるエネルギーの割合が減る。
10 μm から30 μm にかけての変化が顕著に大きい(粒子内の α 線飛程は約10 μm のため)

梱包更新後21年間のガス発生量の計算結果

同位体組成条件	粒子直径 (μm)	ガス発生量(L)*1
混在状態の 推定平均組成 (Am除去なし)	10	79.5
	20	48.2
	35	26.2
同(Am除去あり)	35	22.4

*1 標準状態(0°C、1気圧)への換算値

前項の粒子外に付与されるエネルギーの割合(F_{α})により、ガス発生量には粉末の平均直径が大きく影響する。

粒子径を10~35 μmの間で評価した根拠

- X線回折試料作製の技術資料には試料を325メッシュ以下(約45 μm以下)に粉碎するとの記載あり。粒子径が粗すぎるとX線回折データに支障が出る(良好なデータが得られない)。
- 樹脂固化物2個について断面をSEM観察し、体積基準での平均粒子径を評価した結果、22 μmと36 μmの結果が得られている。
- 高温焼結により作製したペレット状の試料をグローブボックス中で乳鉢により粉碎する際、平均粒子径を10 μm以下の微粉にするのは困難
- 以上の理由により、現実的な範囲として粒子径を10~35 μmとした。

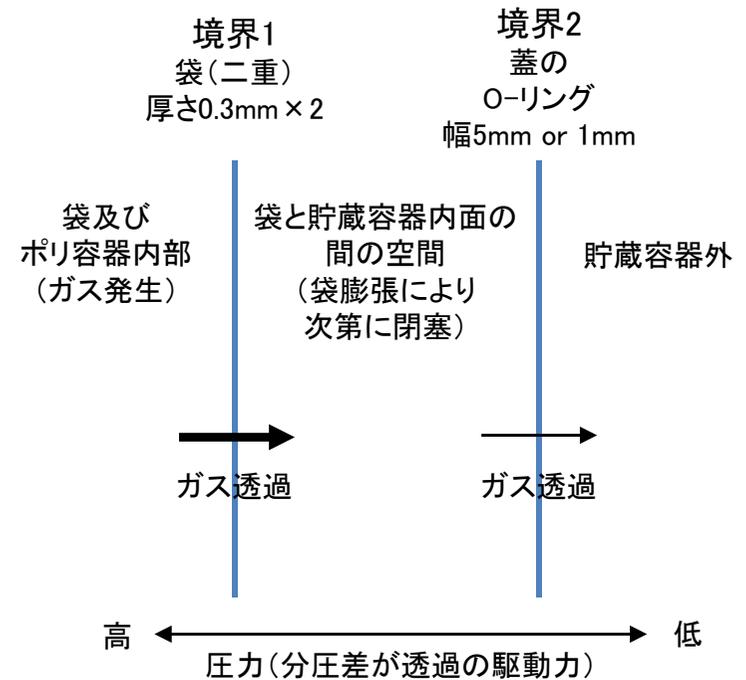


2. 樹脂製の袋内圧上昇推移の計算について

詳細な計算式については添付7.1.4参照。

パラメータは以下のとおり。

- Pu同位体組成・・・Am除去なし/ありの2条件(除去なしを基本)
- 粉末粒子径・・・10、20、35 μmの3条件(ガス発生量が大きく異なる)
- ガス種:水素83%、メタン17%(検証試験結果を簡略化)・・・固定
- 樹脂製の袋(ポリ塩化ビニル)のガス透過係数・・・水素、メタンともに固定
- O-リング(ネオプレン)の水素の透過係数・・・文献値2条件(小さい方を基本)
- O-リングのメタンの透過係数・・・固定
- O-リングのガス透過の有効幅・・・5mm(基本位置)、1mm(隙間に食い込んだ場合)



発生したガスの透過境界は袋(二重)とO-リング

内圧推移計算のケースA～Cの主要パラメータ一覧

ケース	A(高圧側)	B(標準的)	C(低圧側)
粉末粒子径 (μm)	10	20	35
α線エネルギーの樹脂に付与される割合, F_{α} *1	0.701	0.425	0.231
Am除去の有無 21年間の全α崩壊量, N_{α} (個)*2	なし		あり
α線によるガス発生のG値*3	0.22(ヘリウムイオン照射によるガス分析結果から)		
発生ガス種	水素(83%)+メタン(17%)を仮定(検証試験結果を簡略化)		
21年間の全ガス発生量, $V_{gas, Total}$ (L)*4	79.5	48.2	22.4
袋の水素の透過係数*5,6	2.7×10^{-10}		
袋のメタンの透過係数*5,6	3.0×10^{-12}		
O-リングの水素の透過係数*5,6	1.4×10^{-9}		3.9×10^{-9}
O-リングのメタンの透過係数*5,6	3.3×10^{-10}		
O-リングの透過幅 (mm)*5	1	5	
平成29年6月の内圧(気圧)	24.6	12.4	4.6

ガス発生に関する部分

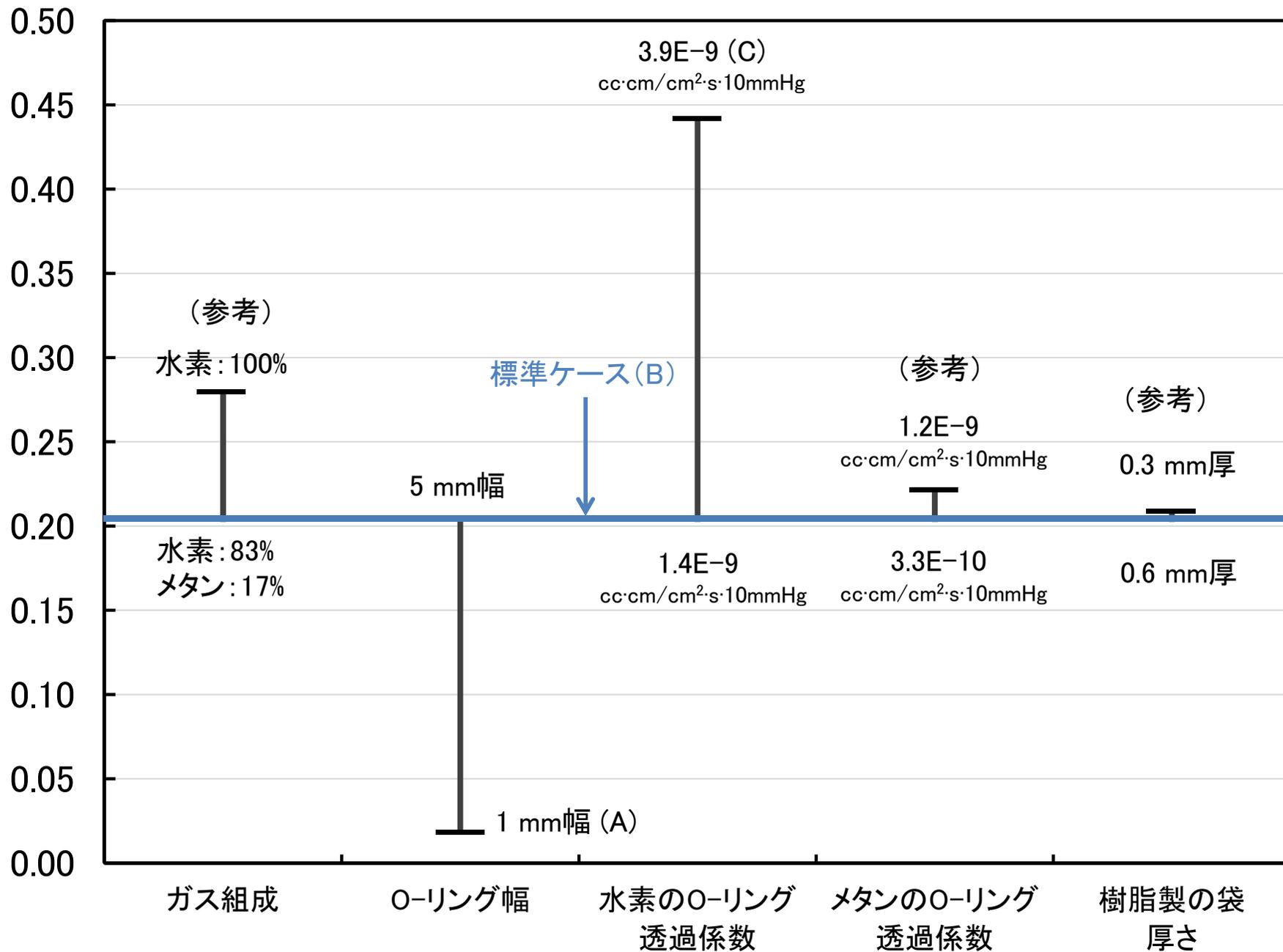
ガス漏えい(透過)に関する部分

*1 添付7.1.1②の表②-2参照 *2 添付6.4.4の表6.4.4-3参照 *3 添付7.1.1②の4. 参照 *4 標準状態(0°C, 1気圧)の値、添付7.1.1②の表②-4参照、内圧計算時には25°C, 1気圧に換算するとともにポリ容器のα線分解で発生するガス0.20 Lを追加(添付7.1.4の表7.1.4-1参照)

*5 添付7.1.4の表7.1.4-3参照 *6 透過係数の単位 cc・cm/(cm²・s・10mmHg)

核物質防護上の観点から■を非開示としています。

21年間ににおける樹脂製の袋からの
ガスの漏えい割合



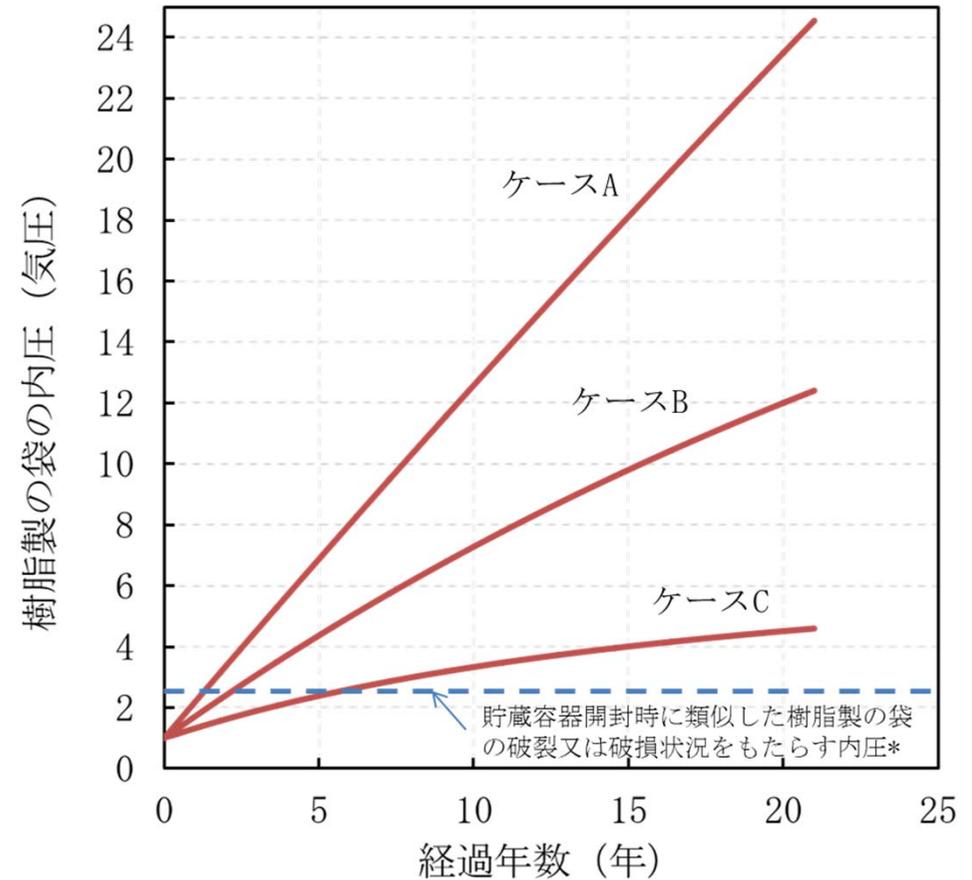
発生したガスの漏えい割合への各パラメータの感度

ケースA、B、Cの詳細な条件の組み合わせは本資料3ページと添付7.1.4参照。

各ケースの位置付けは、

- A: 上限を想定したケース(粒子径10mm、Am除去なし、O-リング幅1mm)
- B: 最も標準的なケース(粒子径20 μ m、Am除去なし、O-リング幅5mm)
- C: 下限を想定したケース(粒子径35 μ m、Am除去あり、O-リング幅5mm、O-リングの水素透過係数大)

- 前項のパラメータ感度のグラフにおいて、標準ケースはBであり、発生した全ガス量の20%強が漏えいすることを意味している。
- 樹脂製の袋はO-リングに比べて透過厚さが薄いこと、漏えいの有効面積が格段に大きいことから、結局はO-リングの透過による漏えいが袋の内圧推移をほぼ支配している(O-リングから漏えいしないと袋からも漏えいできない)。袋が一重でも二重でも漏えい割合にはほとんど影響しない。
- 参考までに、発生ガスを100%水素とした場合、漏えい割合は若干増えるが影響は大きくない。
- O-リングの幅、水素透過率ともにガスの漏えい割合に大きく影響する。
- ケースAのようにガス発生量が大きく、貯蔵容器内がかなりの高圧になり、O-リングが押されて蓋と容器本体の隙間(1mm)に食い込むような状況になると、ガスの漏えい割合は標準ケースの1/10程度に減少する。
- ケースCは、O-リングの水素の透過率を大きい文献値とした場合で、ガスの漏えい割合は2倍強となる。
- より現実的には、実際の内圧はケースBとCの間くらいだったと考えている。その理由として、内圧計算に反映していないが、O-リングに亀裂が確認された(漏れが大きくなる)ことと、樹脂内の粉末粒子がかなり近接した状況がSEMで観察されており、粒子外に出た α 線が樹脂にエネルギーを全て付与する前に再度別の粒子に衝突してエネルギーを失うことが挙げられる(実質的なガス発生量が減る)。



樹脂製の袋の内圧推移の計算結果

袋の破裂圧力は、貯蔵期間(21年間)の γ 線照射による劣化を模擬した状態に相当

透過係数の文献値リスト

項目	参考文献情報	透過係数	
樹脂製の袋 透過係数 (ポリ塩化ビニル)	[1] 住友化学ホームページ, http://www.sumitomo-chem.co.jp/acryl/03tech/b3_gas.html	2.7E-10 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg)	
	[2] T.D. Stark, et al., Geosynthetics International, 2005, 12, No. 1 (Fig. 2)	2.0E-10 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg)	
	C. San Marchi et al., Technical Reference on Hydrogen Compatibility of Materials, Nonmetals: Polymers (code 8100), Sandia National Laboratories. (Table 2.1)	8.0E-10 mol-H ₂ /(m ² ・s・MPa)	
		2.7E-10 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg) (※3)	
	メタン	[2] T.D. Stark, et al., Geosynthetics International, 2005, 12, No. 1 (Fig. 2)	3.0E-12 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg) (※1)
		P. Tiemblo, et al., Macromolecules, 2002, 35, 420-424 (Table 2)	2.4E-12 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg)
M. Mohagheghian, et al., Korean J. Chem. Eng., 31(11), 2014, 2041-2050		5.0E-13 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg)	
O-リング 透過係数 (クロロプレングム =ネオプレン)	[3] 桜シールホームページ, http://www.sakura-seal.co.jp/category/1981184.html	1.0E-07 cc・cm/(cm ² ・s・atm)	
		1.4E-09 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg) (※3)	
	[4] パッキンランド, https://www.packing.co.jp/GOMU/kitaitoukasei1.htm (※2)	3.0E-07 cc・cm/(cm ² ・s・atm)	
		3.9E-09 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg) (※3)	
	C. San Marchi et al., Technical Reference on Hydrogen Compatibility of Materials, Nonmetals: Polymers (code 8100), Sandia National Laboratories. (Table 2.1)	4.6E-09 mol-H ₂ /(m ² ・s・MPa)	
		1.5E-09 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg) (※3)	
	メタン (※4)	[3] 桜シールホームページ, http://www.sakura-seal.co.jp/category/1981184.html	2.5E-08 cc・cm/(cm ² ・s・atm)
			3.3E-10 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg)
[4] パッキンランド, https://www.packing.co.jp/GOMU/kitaitoukasei1.htm (※2)		9.0E-08 cc・cm/(cm ² ・s・atm)	
		1.2E-09 cc・cm/(cm ² ・s・10mmHg) (※3,4)	

※1: 参考文献[2]は、水素ガスの透過係数も示しており、その値が参考文献[1]の値と大差ないことと、3つの文献値の中間的な値であることから、PVCのメタンの透過量計算に参考文献値[2]の値を使用。 ※2: 参考文献[4]では基準ガスの透過係数との比として値を示しており、異なるゴム種(シリコンゴム、ニトリルゴム)において二酸化炭素の透過係数比が参考文献[3]の値と同等であることから、二酸化炭素の透過係数比を基準に水素及びメタンの透過係数の値を算出。 ※3: 出典の単位は種々あるが、cc・cm/(cm²・s・10mmHg)に換算して比較。 ※4: メタンの透過係数は参考文献値[3]よりも高いが、漏洩率に与える影響は小さいため評価には含めていない。