

## マイクロ波検出技術を用いた高分子材料への熱・放射線照射による 経年劣化測定技術に関する研究（II）

砂川 武義\*, 佐伯 昭紀\*\*, 関 修平\*\*

## Non-contact Quantitative Microwave Detection of Radiation Induced Degradation of Polymers (II)

Takeyoshi Sunagawa, Akinori Saeki, and Shu Seki

In 2011, there are 54 commercial nuclear power plants in Japan. There are 20 nuclear power plants which are working for 30 years or more. It is very important to measure the aged deterioration of the cable used in those nuclear power plants. Generally, degradation of a cable was measured by the tensile test. It was difficult to measure an electrical property quickly and nondestructively. We developed the nondestructive measurement technology of cable degradation which used microwave technology.

### 1. 緒言

原子力プラントで使用されているケーブルは全長約 1000~2000km に及ぶ。これらのケーブルは通常運転時の熱・放射線環境において酸化等により徐々に経年変化が進行すると共に原子炉格納容器内のケーブルは、設計想定事故時の高温水蒸気と高放射線量の過酷な環境により急激な性能低下が引き起こすことが知られている。平成 22 年度末には運転開始後 30 年を超えるプラントが 20 基あり、安全性、信頼性を維持していくためには、ケーブルの劣化を高精度で尚且つ非破壊的で容易に測定する手法の開発が求められている。<sup>1)</sup>

本研究は、BWR で主に使用されているケーブルの主要な高分子材料であるポリエチレン、PWR で使用されている EP (エチレンプロピレン) ゴムを対象に、マイクロ波誘電吸収法<sup>2)</sup> を適用することにより、原子力プラントで使用されているケーブルの絶縁部に対して容易に尚且つ高精度に劣化の度合いを測定する非破壊的手法の確立を目的とする。

### 2. 測定原理

ケーブルの劣化とはケーブルの分子構造の変化を意味する。分子構造が変化するとさまざまな物理的性質の変化があるが、その中に電気的性質である誘電率の変化がある。誘電率の変化は本来とても小さいが、マイクロ波空洞共振器を用いることで精度良く測定することができるので誘電率の変化を調べるのが良い。物質のマイクロ波に対する誘電率  $\epsilon$  は、 $\epsilon = \epsilon' - ie''$  のように複素数であらわされる。

ここで、 $\epsilon'$  は誘電率の実数部、 $\epsilon''$  は誘電率の虚数部、 $i^2 = -1$  である。

---

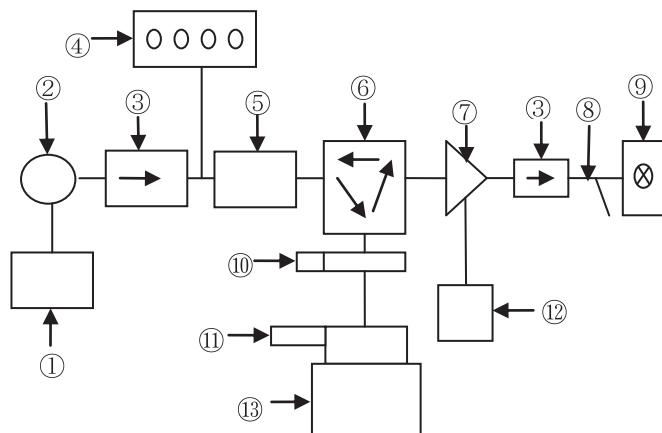
\*原子力技術応用工学科 \*\*大阪大学大学院工学研究科

$\varepsilon'$ の変化はマイクロ波空洞共振器の共振周波数の変化に、 $\varepsilon''$ の変化は $\Delta(1/Q)$ に比例する。ここで、 $Q$ はマイクロ波空洞共振器の $Q$ 値である。ピンホール空洞共振器を使用した測定において共振周波数の変化に比べ、 $\Delta(1/Q)$ が高感度に測定できるため、 $\Delta(1/Q)$ の測定を行った。尚、 $\Delta(1/Q) \propto 1/(マイクロ波電力変化)$ の関係よりマイクロ波測定装置の検波ダイオードを通して得られる出力電圧を出力電圧 $V^{-2}$ に変換し、 $\Delta(1/Q)$ とした。

### 3. 実験方法

#### 3.1 測定装置

Fig.1 にマイクロ波誘電吸収測定装置図を示す。Gunn 発振器より生じたマイクロ波を周波数カウンターとサーキュレーターに分岐させ、サーキュレーターによりマイクロ波空洞共振器(ピンホールキャビティ)に導き反射波をアンプで增幅し、ダイオードにより検波した。測定に使用したマイクロ波周波数は、X-band (9GHz)、K-band (23GHz)、Q-band (43GHz) である。



①Gunn 発振器用電源、②Gunn 発振器、③アイソレーター、④周波数カウンター、⑤可変抵抗減衰器、⑥サーキュレーター、⑦マイクロ波アンプ(20db)、⑧方向性結合器、⑨検波器、⑩マイクロ波シャッター、⑪ガス導入管、⑫アンプ用電源、⑬マイクロ波空洞共振器(ピンホールキャビティ)

Fig.1 Scheme of the microwave apparatus

#### 3.2 ピンホール型マイクロ波空洞共振器<sup>2)</sup>

ピンホール型マイクロ波空洞共振器は、測定穴から漏れたマイクロ波を利用し、測定試料を測定穴に密着させて測定するものである。

Fig.2 にピンホール型マイクロ波空洞共振器を示す。本研究において、3 種類の共振周波数の異なるマイクロ波空洞共振器を作製した。各マイクロ波空洞共振器の仕様は、X-band 空洞共振器 ( $TE_{102}, Q = 8000$ 、共振周波数  $f_0 = 9.490\text{GHz}$ )、K-band 空洞共振器 ( $TE_{111}, Q = 4000$ 、共振周波数  $f_0 = 23.765\text{ GHz}$ 、測定穴  $1\text{ mm} \times 3\text{ mm}$ )、Q-band 空洞共振器



Fig.2 Scheme of the microwave resonant cavity

(TE<sub>111</sub>、 $Q=4000$ 、共振周波数 $f_0=43.010\text{ GHz}$ 、測定穴 $0.7\text{ mm}\times 2.5\text{ mm}$ )である。

高精度測定を行うためにサンプルの中心と測定穴が重なるように設置し、空洞共振器をサンプルに押し当て測定を行った。

### 3.3 測定試料

#### 熱劣化低密度ポリエチレンシート(LDPE)

市販の低密度ポリエチレンシート厚さ $1\text{ mm}$ を使用した。試料の加熱は定温乾燥機内に $60\text{ mm}\times 250\text{ mm}$ に裁断したシートを吊るした状態で行った。加熱温度は $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ で加熱時間は $0\sim 1000$ 時間まで約100時間ごとに加熱した。

#### 熱・放射線劣化難燃EPゴムケーブル試料

JNES（独立行政法人原子力安全基盤機構）において製作された難燃EP（エチレンプロピレン）ゴムケーブル試料である。劣化条件は公表されていない。尚、破断時伸びのみ公表されている。

## 4. 結果と考察

### 4.1 热劣化低密度ポリエチレンシート(LDPE)の測定

熱劣化低密度ポリエチレンシート試料を対象にX-band(9GHz)、K-band(23GHz)、Q-band(43GHz)ピンホール型共振器を用いて測定を行った。測定結果をFig.3に示す。全ての結果において加熱時間の増大と共に出力電圧<sup>-2</sup>が減少する傾向が見られる。ここで、出力電圧<sup>-2</sup>の減少は測定試料中の双極子モーメントの増大を意味している。測定試料中の双極子モーメントの増大の原因は、酸素雰囲気（空気中）下において、酸化反応により生じたカルボン酸がポリエチレン内に蓄積したことによるものである。<sup>3)</sup>本測定装置により得られた結果は、ポリエチレン中のカルボン酸生成に相当する分子極性の変化を測定したものであると考える。

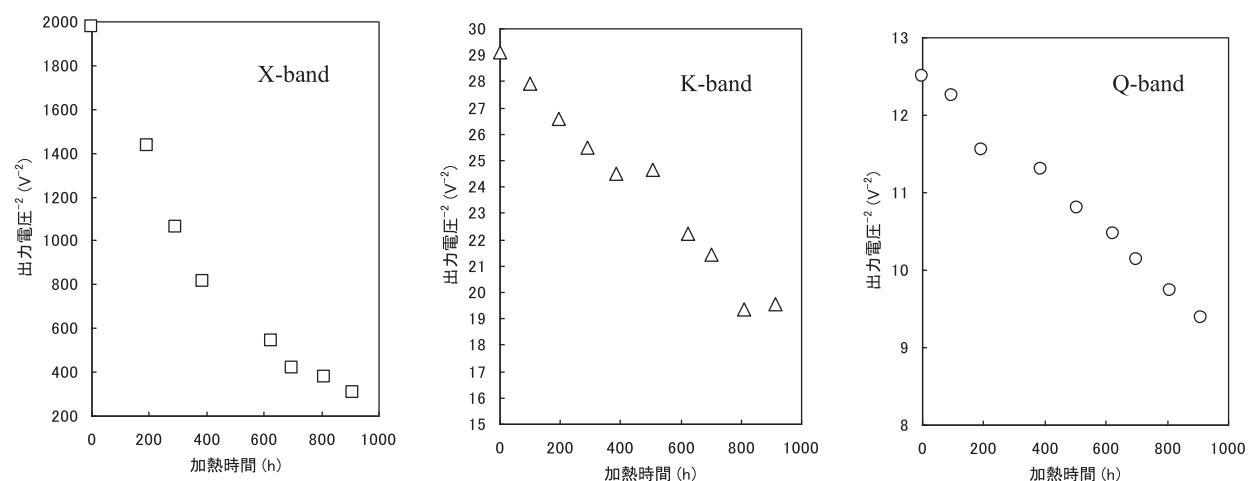


Fig.3 Output voltage<sup>-2</sup> to LDPE as a function of aging time.

#### 4.2 K-band、Q-band 装置による EP ゴムケーブルの測定

絶縁体へのマイクロ波の侵入深さはマイクロ波周波数に反比例する。ケーブルは導体の周りを絶縁体がコーティングしている構造の為、導体の影響を受けず、絶縁部のみを測定する為には周波数を選ぶ必要がある。そこで、K-band と Q-band マイクロ波測定装置を用いて、導体の有るケーブルと無いケーブルの比較を行った。測定試料は劣化していない EP ゴムケーブルを用いて測定を行った。

測定する EP ゴムケーブル試料は、Fig.4 に示すように測定台の上に固定され、EP ゴムケーブル試料に回転用のキャップを取り付け  $90^\circ$  ごとに回転させ出力電圧の測定を行った。このときピンホール型空洞共振器の電場分布の強い位置に測定試料を置くようとした配置した。

K-band、Q-band 測定装置を用いて導体の有るケーブルと無いケーブルの測定を行い、それぞれの結果を比較した。

K-band、Q-band 測定装置の結果を Fig.5、Fig.6 に示す。ここで、横軸に回転角( $^\circ$ )、縦軸に出力電圧(mV)を示す。

K-band 測定装置を用いた結果において、導体有り、導体無しそれぞれの出力電圧の平均値は 300mV と 50mV であり、導体有りの方が無しに比べ、約 6 倍大きいことが確認できた。さらに導体有りの結果は振幅に周期性がみられた。このことは、K-band 測定装置を用いた測定において、ケーブル内の導体の吸収の影響が無視できないほど大きいことを示唆している。

Q-band 測定装置の結果は K-band 測定装置の結果に比べ、導体の有無に関わらず出力電圧の差が大きく生じないことが確認された。このことより、Q-band

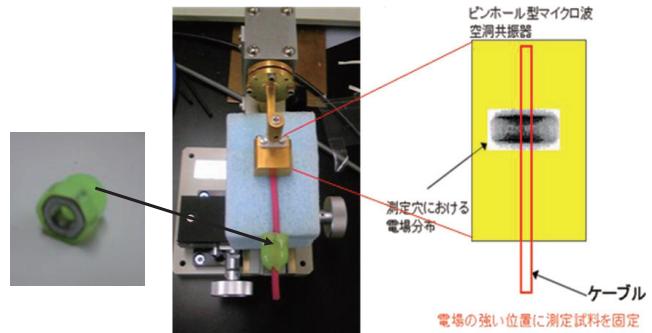


Fig.4 Measurement of the sample using a microwave cavity .

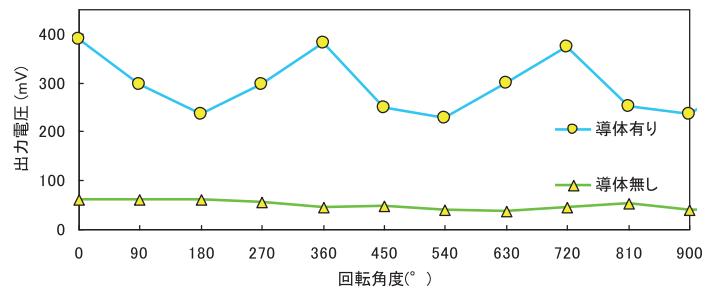


Fig.5 Measurement of EP rubber cable by K-band microwave cavity.

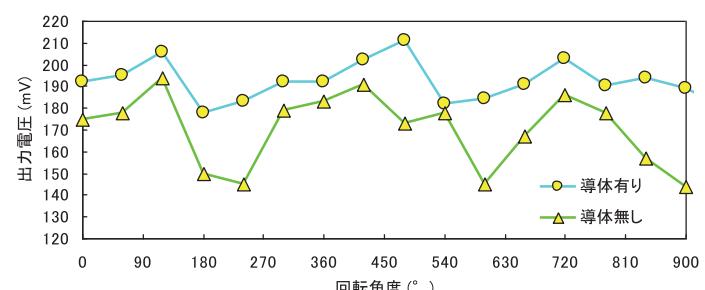


Fig.6 Measurement of EP rubber cable by Q-band microwave cavity .

マイクロ波測定装置ではマイクロ波が絶縁部のみで吸収され導体の影響を受けにくいことが確認できた。しかし、Fig.6 より出力電圧の周期性が確認された。この出力電圧の周期性は、Fig.7 に示すケーブル絶縁部の断面写真においてもわかるように、導体となる金属線が、6 本の細い金属線をねじって一本の束にしているため、その周りを絶縁体がコーティングされている絶縁部の肉厚の厚みは一定ではない。この厚みの違いにより出力電圧の差が生じたと考える。

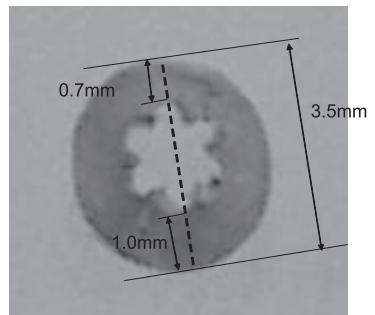


Fig.7 The cross sectional photograph of a cable insulation part .

#### 4.3 ケーブル絶縁部の厚みの違いによる出力電圧差に対する解決法

4.2においてQ-band測定装置を用いた場合、マイクロ波が導体の影響を受けにくいことが確認できた。また、絶縁部の厚みを変えた測定により、厚みと出力電圧差に比例関係があることが確認できた。これらの結果より、絶縁部の厚みにより、出力電圧を規格化すれば、出力電圧差の影響を無くす事ができると考え、規格化された値による劣化ケーブルの比較が重要であると考えた。そこで以下に記す手法を考案した。

出力電圧の最大値( $V_{max}$ )と最小値( $V_{min}$ )を示す。ここで、 $V_{max}$  と  $V_{min}$  はケーブルの絶縁部の一番厚い部分と一番薄い部分に相当する。ケーブルの断面及び導体の断面が Fig.8 に示すようなケーブル断面の模式図のように真円で有ると仮定した場合、測定される出力電圧の最大値( $V_{max}$ )と最小値( $V_{min}$ )はケーブルの絶縁部の一番厚い部分と一番薄い部分に相当する。絶縁部の一番厚い部分の厚みを  $a$ 、一番薄い部分の厚みを  $b$  とすると、式 4-1 に示すような関係が成り立つ。ここで、ケーブルの直径を  $L$ 、導体の直径を  $S$  とすると、式 4-2 が成り立つ。式 4-1 へ式 4-2 を代入すると、式 4-3 が得られる。 $V_{max}$  を厚み  $a$  で割ると、絶縁部の厚みに依存しない量である  $V_{max} / a$  が得られる。 $V_{max} / a$  の値の導出により絶縁部の厚みの影響を含まない劣化のみの効果の比較が可能となる。

$$\frac{V_{max}}{a} = \frac{V_{min}}{b} \quad (4-1)$$

$$b = L - S - a \quad (4-2)$$

$$a = \frac{L - S}{\frac{V_{min}}{V_{max}} + 1} \quad (4-3)$$

尚、 $V_{max}$  と  $V_{min}$  の測定位置はケーブルの裏と表の関係になる。

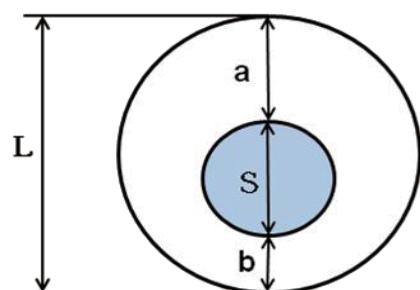


Fig.8 The pattern diagrams of a cable.

#### 4.4 Q-band ピンホール型空洞共振器による JNES 難燃 EP ゴム試料の測定

Table 1 に Q-band ピンホール型空洞共振器による JNES 難燃 EP ゴム（導体有り）の測定における、出力電圧の最大値( $V_{max}$ )と最小値( $V_{min}$ )及び式 (4-3)を用いた計算により得た  $a$ 、 $b$  の厚みを示す。出力電圧を厚みで割ることにより求めた値( $V_{max}/a$ )<sup>-2</sup> と JNES が測定した破断時伸びの結果を Fig.9 に示す。出力電圧<sup>-2</sup> (V<sup>-2</sup>) と破断時伸び(%)の間に相関性が見られる。

Table 1 Data of thermally and radiation aged EP rubber cable by Q-band microwave cavity .

$$L = 3.23 \text{ mm}, S = 1.67 \text{ mm}$$

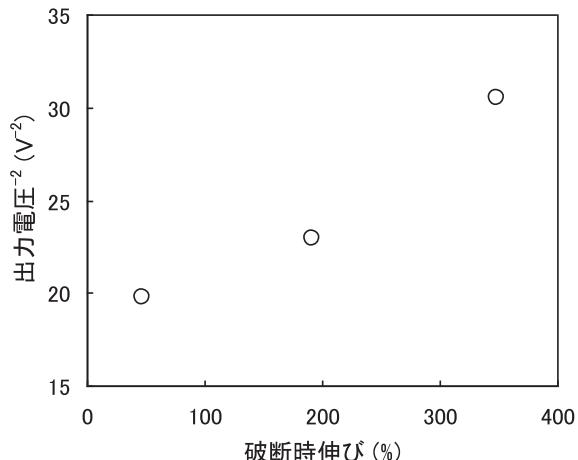
	$V_{max}$ (mV)	$V_{min}$ (mV)	$a$ (mm)	$b$ (mm)	$V_{max}/a$	$V_{min}/b$	$(V_{max}/a)^{-2}$
F-01	181	129	0.91	0.65	199	198	25.3
F-05	209	162	0.88	0.68	238	238	17.7
F-09	225	172	0.88	0.68	256	253	15.3

#### 5. 結言

本研究において、原子力プラントに敷設されているケーブルを非破壊的になおかつ、高精度手法を確立するために、X-band、K-band、Q-band と異なる周波数帯のマイクロ波測定装置及び接触診断形式の測定を可能とするピンホール型空洞共振器作製し、原子炉内で用いられる代表的な絶縁性被覆高分子材料であるポリエチレン、エチレンプロピレンゴムを対象として研究を進めた。JNES の協力のもと熱・放射線劣化された、導体を含むケーブル試料に適用し、絶縁部のみを測定可能な周波数を見出した。さらに、絶縁部の厚みによるデータのばらつきを補正する手法を提案し、出力電圧<sup>-2</sup> と破断時伸びの間に相関性が見られることを確認した。これらの結果より、実機に対するケーブル劣化測定手法の基礎が確立したと考える。

#### Reference:

- 1) 平成 19 年度高経年化対策関連技術調査(原子力プラントのケーブル経年変化評価技術調査研究)に関する報告書 独立行政法人 原子力安全基盤機構(2008)
- 2) 「ESR 顕微鏡」 シュプリンガー・フェアラーク東京 著者 池谷元伺、三木俊克 (1992)
- 3) 「低エネルギー電子線照射の技術と応用」 シーエムシー出版 鷺尾 方一 (2000)

Fig.9 Output voltage<sup>-2</sup> to thermally and radiation aged EP rubber cable as a function of break elongation.

(平成 23 年 3 月 31 日受理)