

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 (V) *

砂川 武義^{*1}, 佐伯 昭紀^{*2}, 関 修平^{*2}, 工藤 久明^{*3}, 泉 佳伸^{*4}

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

Takeyoshi SUNAGAWA¹, Akinori SAEKI^{*2}, Shu SEKI^{*2}, Hisaaki KUDO^{*3}, and Yoshinobu IZUMI^{*4}

^{*1} Department of Applied Nuclear Technology

It is very important to measure the degree of deterioration for the cable used in long-term operated nuclear power plants. We developed the nondestructive measurement technology utilizing microwave technology to assess cable degradation. In the present study, microwave frequency of the Q-band (43GHz) was used for the dielectric absorption measurement. Presented were resonant frequency for microwave resonator measured in the temperature range from 16.9 to 24.6°C and the humidity range from 24.1 to 35.1%. In different measurement conditions, the data were discussed.

Key Words : Microwave Dielectric Absorption, Polymer Degradation, Nuclear Power Plant

1. 緒 言

原子力プラント施設に敷設されているケーブルの約90%は低圧ケーブルであり、その総延長は約1000～2000 kmにも及ぶ。敷設されている低圧ケーブルは、電力供給、情報伝達、制御等の低圧ケーブルに使用されており、原子力プラントを安全に動かすために、健全性の評価が求められている。現在、40年以上経つ高経年化プラントにおいても、国が行ったケーブル経年変化評価技術調査研究に基づき、問題無く使用可能であると評価されている。¹⁾ 一般的に、原子力発電プラントに使用される低圧ケーブルは、沸騰水型(BWR)原子力発電プラントにおいて、ポリエチレンケーブル(PE ケーブル)が、加圧水型(PWR)原子力発電プラントにおいては、エチレンプロピレンゴムやシリコンゴムケーブルが使用されている。これらのケーブルの絶縁部の劣化は、プラントの通常運転においては特に大きな問題にはならないが、事故発生時の温度や放射線レベル等の環境条件の悪化に対する健全性余裕の低下が懸念される。特に、東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所事故において損傷した原子力プラントの廃炉において、廃炉プラント内に敷設されているケーブルの健全性の評価が必要となっている。このような状況の下で、健全性評価の精度を向上させ、安全に対する信頼性を向上させるため、健全性評価の基礎になる実機でのケーブル劣化の現状確認やデータ蓄積のための劣化測定手法の確立が求められている¹⁾。

本研究室は、原子力プラント内に敷設されている低圧ケーブルの絶縁部の経年劣化についてマイクロ波技術を用いて非破壊的に診断する手法の開発を行っている²⁾。

本研究は、実機適用試験に向けて本手法の測定精度の向上のために、測定環境(温度、湿度など)の違いが本手法にどのような影響を与えるかを明らかにすることを目的とした。

* 原稿受付 2015年2月27日

^{*1} 原子力技術応用工学科

^{*2} 大阪大学大学院工学研究科応用化学専攻 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1)

^{*3} 東京大学院工学系研究科原子力専攻 (〒319-1188 茨城県 那珂郡 東海村 白方白根 2-22)

^{*4} 福井大学附属国際原子力工学研究所 (〒914-0055 福井県敦賀市鉄輪町1丁目4-42)

E-mail: sunagawa@fukui-ut.ac.jp

2. 原 理

2.1 マイクロ波誘電吸収法について

1960年代 篠野嘉彦（東京工業大学名誉教授）³⁾が、ジェミネート再結合反応における、短寿命活性種の挙動の観測に対する新しい測定法として、マイクロ波誘電吸収法の基礎となるアイデアを創出した。本測定法の原理は岡小天「誘電体論」(1954)⁴⁾を基に構築されている。

1969年日米放射線化学セミナーがCatalina 島 (Long Beach, California) で開催された。篠野は本セミナーにおいて Carnegie Mellon 大学 R. W. Fessenden 教授にマイクロ波誘電吸収法のアイデアを話した。日米セミナーにおいて、篠野は R. H. Schuler, R. W. Fessenden にマイクロ波誘電吸収法のアイデアを説明した。また、篠野は東京工業大学において、誘電率測定装置（安藤電気株式会社製）を用いて、⁶⁰Co を使用し、 γ 線照射したシクロヘキサン、アルコール等を対象に測定を行った。その後、Notre Dame 大学 (R. H. Schuler, R. W. Fessenden のもとで) でも、同様に測定を行った。1979年に R. W. Fessenden と篠野の弟子である故 嶋森 洋（元福井工業大学 教授）により、マイクロ波誘電吸収法による研究成果が報告された⁵⁾。また、篠野のアイデアを基に J. M. Warman が Delft 工科大学において、R. W. Fessenden, 嶋森とは異なるマイクロ波誘電吸収測定装置を構築し、1982年より研究成果が報告された⁶⁾。その後、1980年に福井工業大学に赴任した嶋森により1989年から研究成果が報告された。^{7,8)}1998年 嶋森 死去後 砂川より現在に至る。尚、現在、Notre Dame 大学においてマイクロ波誘電吸収法による研究は行われていない。

2.2 誘電率変化の測定

物質の電磁波に対する誘電特性は式 (1) で表されるように、複素数で表される⁴⁾。

$$\varepsilon = \varepsilon' - i\varepsilon'' \quad (1)$$

ここで、 ε' 誘電率の実数部、 ε'' は誘電率の虚数部、 $i^2=-1$ である。対象とする高分子材料の、分子構造の変化が起こると ε' や ε'' が変化する。

本測定では式 (2) もしくは Fig. 1 に示すように、 ε' の変化量を比例するマイクロ波空洞共振器の共振周波数変化量 ΔB を測定することにより高分子材料内の分子構造変化の情報を得ることを可能としている。

$$\Delta B = \frac{f - f'}{f} \propto \varepsilon' \quad (2)$$

ここで、 f は空気で満たされた時のマイクロ波共振周波数、 f' は試料を挿入した時のマイクロ波共振周波数、 ΔB は共振周波数の変化量である。マイクロ波空洞共振器内の ε' が増大したときマイクロ波空洞共振器内の共振周波数 f' は、 f に比べて低周波数側へシフトすることを意味している。

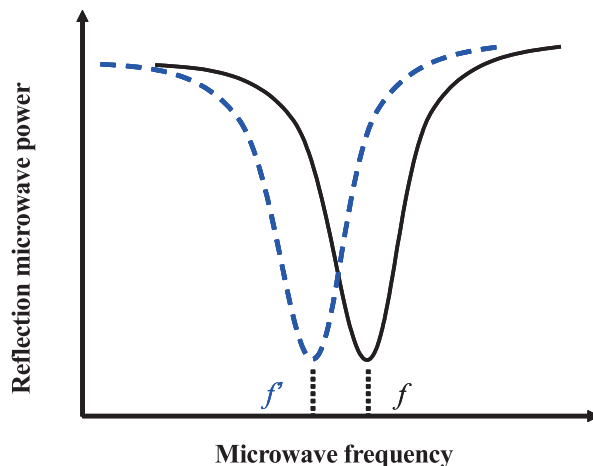


Fig.1 Relation of reflection microwave power and frequency in microwave resonator

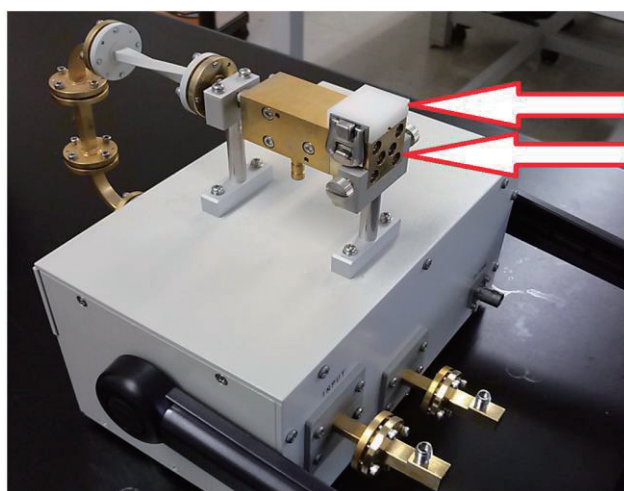
2.3 Q-band マイクロ波空洞共振器

Fig.2 に 本研究で使用するピンホール空洞共振器の原型となったマイクロ波空洞共振器 ($Q=800$, 共振周波数 約 9GHz) を示す. ピンホール型空洞共振器は, いわゆるスロットアンテナであり 1-2 mm 程度マイクロ波が染み出している. 言い換えると, ケーブル絶縁部から中心の導線までの距離が 1-2 mm 以上あれば, 導線にマイクロ波は届かず, 絶縁部のみの誘電特性変化を検出することができる. このマイクロ波染み出し距離は, マイクロ波周波数及びピンホールの大きさに依存している. 本研究において, 周波数が高いほどマイクロ波が染み出す距離が短く, 測定穴を小さくでき, さらに測定感度が高いことから, Q-band (43GHz) のピンホール型マイクロ波空洞共振器を作製した.



Fig.2 Prototype of pin-hole type cavity

Fig.3 に 本研究に使用している Q-band マイクロ波空洞共振器及びマイクロ波誘電吸収測定装置を示す. 測定試料はマイクロ波空洞共振器に設置したデルリン製の測定台を用いて, マイクロ波空洞共振器表面に空いている測定穴に密接させるために, 挟んで固定した.



Measurement stand (Delrin®)
Microwave resonator

Fig.3 Microwave measurement system

Fig.4 に本研究に使用したピンホール型マイクロ波空洞共振器の概略図を示す. マイクロ波空洞共振器は, 真鍮製, 共振モード: TE_{111} , 内径 5.2 mm, 奥行き 5.6 mm, $Q \geq 2000$, $f = 43.065$ GHz (at 21°C), 測定穴 1.0 mm \times 2.5 mm である.

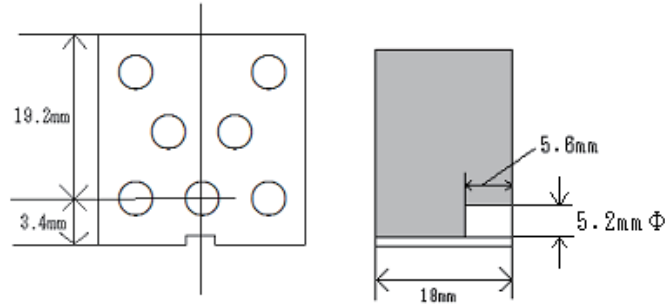


Fig.4 Scheme of the microwave cavity

TE_{mns} モードの空洞共振器における，温度変動量 ΔT での共振周波数変化量は Δf は以下の式 (3)～(5) で表される⁹⁾．

$$\Delta f = f_1 - \frac{c \cdot \sqrt{\left(\frac{\chi_{mn}}{\pi}\right)^2 + \left(\frac{s\Delta D}{2\Delta L}\right)^2}}{\Delta D} \quad (3)$$

$$\Delta D = \varphi D + \varphi D \eta_c \cdot \Delta T \quad (4)$$

$$\Delta L = L + L \eta_c \cdot \Delta T \quad (5)$$

ここで， f_1 ：温度変化前の共振周波数， χ_{mn} ：ベッセル関数 $J'_m(x) = 0$ の n 番目の根， c ：光速， s ：軸方向共振次数， φD ：空洞共振器の径， L ：空洞共振器の共振器軸長， η_c ：空洞共振器の線膨張係数である．

3. 実験方法

Fig.5 に Q-band 実機適用型マイクロ波誘電吸収測定装置の回路図を示す．アナログ信号発生器よりマイクロ波を発振させ，サーキュレーターによりマイクロ波空洞共振器(Cavity)へ導き，マイクロ波空洞共振器からの反射波をアンプにより増幅させ，検波器で電圧に変換しオシロスコープおよびパワーメーターで測定を行った．

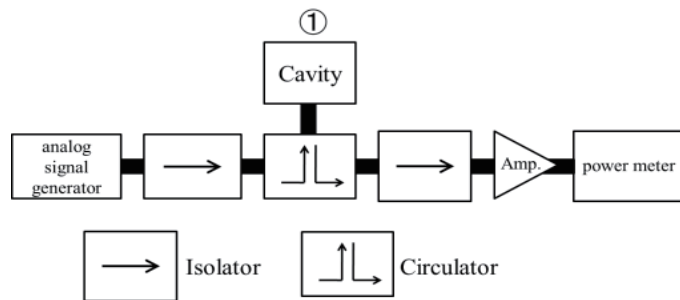


Fig.5 Scheme of the microwave apparatus

アナログ信号発生器，オシロスコープおよびパワーメーターの制御は GP-IB で行った²⁾． Fig.4 に示したマイクロ波空洞共振器付近の①位置に，株式会社佐藤計量器製作所製の温湿度計を設置し，マイクロ波空洞共振器付近の温度と湿度をした．本測定環境は，研究室内の外気に接する環境下で実施した．研究室内は常に，温度及び湿度が共に変化する環境である．

4. 結果と考察

本測定環境は、室温が約 8℃上昇するに伴い、湿度が約 10%減少する条件下で測定を行った。Fig.6, Fig.7 に室温及び湿度の変化とマイクロ波空洞共振器の共振周波数の変化を示す。

Fig. 6 において、室温が 7.7℃の温度上昇に対し、共振周波数が低周波数側に 6.1 MHz 減少する傾向が見られる。

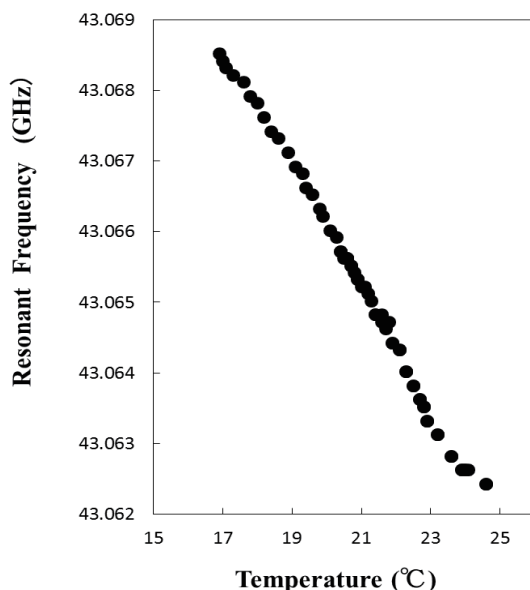


Fig.6 Resonant frequency as a function of temperature

温度変化によるマイクロ波空洞共振器の共振周波数の変化量 Δf は、式(3)-(4) で与えられている。本研究で利用したマイクロ波空洞共振器のデータを基に Δf を計算した。ここで、使用したデータは、共振モード TE_{111} , $\phi D = 5.2\text{mm}$, $L = 5.6\text{mm}$, $\chi_{11} = 1.841$, $s = 1$, η_c (黄銅) $= 1.90\text{E-}05$ 1/K, $f_1 = 43.06852\text{GHz}$ (at 16.9℃)である。 ΔT が 7.7 °C 変化すると、 Δf は 6.3 MHz 低周波数側へシフトする計算値が得られた。

本測定結果と計算値は、良い一致を示しており、温度の上昇に伴い、空洞共振器の膨張しそれに伴い、共振周波数が減少したこと考える。

次に、Fig. 7 において、湿度が 11%の増大に対して、共振周波数が高周波数側へ 5.9 MHz 増大する傾向が見られる。水の誘電率は 25℃において 78.54 である¹⁰⁾。

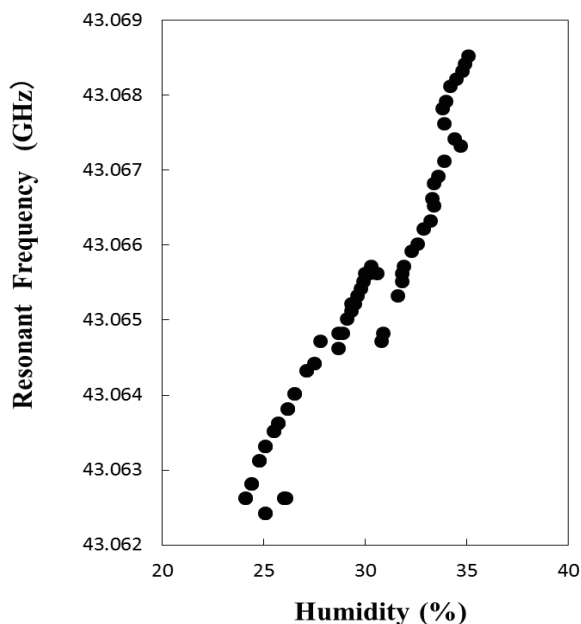


Fig.7 Resonant frequency as a function of Humidity

湿度の増加はマイクロ波空洞共振器内及びその周辺の誘電率の増大を意味しており、式(2) 及び空洞共振器摂動法¹¹⁾により、共振周波数は低周波数側へ減少すると予想される。しかし、Fig. 6 の結果はこの予想とは逆の傾向を示している。以上の結果より、共振周波数変化の原因は、空気中に含まれる水分量(湿度)の影響ではなく、温度変化によるマイクロ波空洞共振器の膨張による形状変化によるものであると考える。

5. 結 言

本研究により、測定環境(温度、湿度など)の違いが本手法にどのような影響を与えるかを明らかにした。本測定機器に与える影響として、温度の変化に伴う空洞共振器の膨張や収縮の影響が共振周波数のシフトを起こす原因であることを明らかにした。

文 献

- (1) 独立行政法人 原子力安全基盤機構 原子力システム安全部, “JNES-SS レポート 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最終報告書 JNES-SS-0903 “ (2009).
- (2) 砂川 武義, 佐伯 昭紀, 関 修平, 工藤 久明” 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(IV)” 福井工業大学研究紀要 44 号, pp. 272-277, (2014).
- (3) Y. Hatano and H. Shimamori, J. Phys. Chem. ,Vol.78 pp.954-8 (1974).
- (4) 岡 小天 “誘電体論” 現代工学社 (1954).
- (5) R.W.Fessenden, P.M.Carton, H. Paul, Henning, and H. Shimamori, J. Phys. Chem., Vol. 83, p p.1676-7 (1979)
- (6) J. M. Warman, NATO Advanced Study Institutes Series, Series C: Mathematical and Physical Sciences, 86(Study Fast Processes Transient Species Electron Pulse Radiolysis), p.129-61 (1982)
- (7) H. Shimamori, in J. F. Rabek, ed. “Progress in Photochemistry & Photophysics, Volume VI”, CRC Press, Boca Raton (1992).
- (8) H. Shimamori, K. Houdo, Kazushi, H. Uegaito, Y. Nakatani, and K. Uchida, Nippon Kagaku Kaishi 13 p.58-61 (1989)
- (9) 平間, 萩原, 貝田, 浅利, 杉山, “円形導波管狭帯域通過フィルターの温度補償技術” 島田理化技報 No.19 (2007) .
- (10) 日本化学会, “化学便覧 基礎編”, 改定 3 版.
- (11) 柴田, 橋本, 「摂動法を用いた TM010 モード円筒空洞共振器による複素誘電率測定における誤差検討」, 電学論 A, Vol.122-A pp.563-568 (2002).

(平成 27 年 3 月 31 日受理)