

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) *

砂川 武義^{*1}, 治部 仁之^{*1}, 佐伯 昭紀^{*2}, 関 修平^{*2}, 工藤 久明^{*3}

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

Takeyoshi SUNAGAWA¹, Hitoshi JIBU^{*1}, Akinori SAEKI^{*2}, Shu SEKI^{*2}, and Hisaaki KUDO^{*3}

^{*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. The material used for dielectric absorption measurement was the radiation/thermal aged cable which was produced by JNES. The data for dielectric absorption measurement showed a correlation with the master curve for tensile elongation. The dielectric absorption measurement has proved to be an effective non-destructive diagnosis technology to assess the degradation and residual life for electrical cables of the EP rubber cable type tested at radiation/thermal aging condition in the test.

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

1. 緒 言

原子力施設において、非常に多くの高分子材料が、主に電力供給、情報伝達、制御などすべてが有線の絶縁材料(被覆材)として用いられている。この高分子の劣化は、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。しかし、その進展状況によっては、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。原子力発電所で使用される安全系ケーブルについては、60年間の供用を想定した絶縁劣化に関する健全性評価が、電気学会推奨案に基づき実施されている。このような状況の下で、さらに健全性評価精度を向上させ、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⁾。

本研究は、絶縁部の劣化に伴う誘電率変化に着目し、高感度に誘電率変化量を測定することが可能なマイクロ波誘電吸収法^{(2),(3)}をケーブル劣化診断に適用することにより、非破壊的に電気的特性の変化の測定法を確立し、従来の経年劣化測定技術を補う評価手法の開発を行うことを目的とする。

2. 原 理

ケーブルの絶縁部の熱、放射線劣化は、絶縁体の母材であるポリエチレンやエチレンプロピレンゴムのカルボン酸生成を伴う酸化反応であることが知られており⁽⁴⁾、酸化反応により絶縁部の機械的強度が低下すると考えら

* 原稿受付 2014年2月28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)

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

れている．本研究は，絶縁部の酸化反応に伴う誘電率変化に着目し，マイクロ波空洞共振器を用いることにより，高感度に誘電率変化量を測定することが可能としている．物質の電磁波に対する誘電率 ε は式(1)で表されるように，複素数で表される．

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

ここで， ε' は誘電率の実数部， 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に変化が起ると ε' や ε'' が変化する． ε' の変化はマイクロ波空洞共振器の共振周波数の変化に， ε'' の変化は $\Delta(1/Q)$ に比例する⁽²⁾．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マイクロ波空洞共振器の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．なお，実際の測定は， $\Delta(1/Q) \propto 1/(\text{共振周波数におけるマイクロ波電力変化})$ の関係より，マイクロ波電力計を用いて共振周波数におけるマイクロ波電力変化を測定した．

3. 実験方法

平成22年度，Q-band マイクロ波誘電吸収測定装置を実機プラントである JAEA 原子炉廃止措置研究センター(ふげん発電所)内の原子炉格納容器内及び制御室に敷設されているケーブルを測定することにより，実機環境下での作動確認，実機適用性の検証を実施した．その結果，測定装置の小型化，装置の安定化，自動化等の改善案が得られた⁽⁵⁾．本研究において，改善案を基に以下に記す実機適用性を高めた測定装置の改良を実施した．

3.1 マイクロ波誘電吸収測定装置の小型化

Fig.1 にマイクロ波誘電吸収測定回路を示す．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，マイクロ波電力計で測定を行った．ここで，測定に使用した機器は，マイクロ波誘電吸収装置(マイク電子社製)，アナログ信号発生器(Rohde & Schwarz 社製 SMR50)，マイクロ波電力計(Rohde & Schwarz 社製 NRP-Z50)，マイクロ波空洞共振器(マイクロ電子社製 共振モード TE_{111} ， Q 値 ≥ 2000 ，共振周波数 43.065 GHz，測定穴 1.0 mm×2.5 mm) である．実際の測定において，測定試料は，空洞共振器に設置したデルリン製の固定台を用いて固定した．測定は2回実施し，1回目測定後 180°試料を回転させ2回目を測定し，出力電力の平均値を求めた⁽⁶⁾．

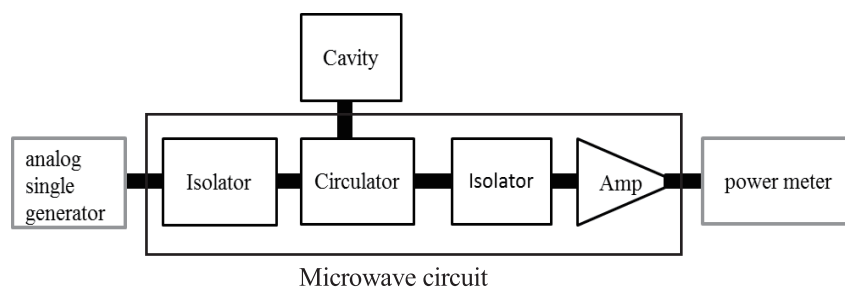


Fig.1 Scheme of the microwave apparatus

Fig.2 にマイクロ波測定装置を示す．Fig.2 の左側は，平成22年度作製した測定装置⁽⁶⁾であり，右側は本研究で作製した小型化した測定装置である．右側の測定装置は，マイクロ波回路部収納ボックス (130mm×185mm×100mm) に Fig.1 のマイクロ波回路部を立体的に収納したものである．

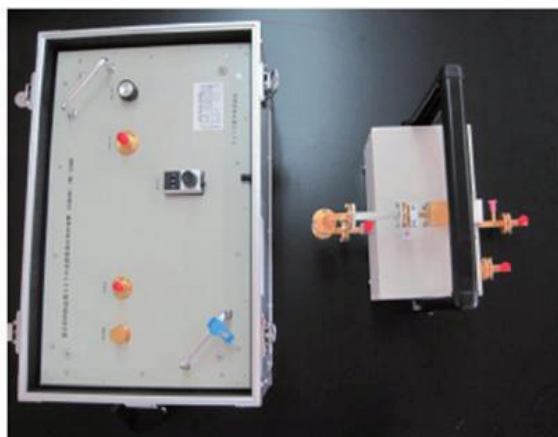


Fig.2 Microwave measurement system

3.2 装置の安定化

平成 22 年度に作製した測定装置はフレキシブルケーブルを用いてマイクロ波測定装置とマイクロ波空洞共振器に接続し、空洞共振器を手を持ち、原子力プラント内の敷設の測定を実施した。しかし、フレキシブルケーブルのたわむと、測定信号が安定しなかった為、Fig.3 に示すようにマイクロ波回路を立体的に組み、箱の中に入れ、箱の上部にマイクロ波空洞共振器を固定し、測定装置を導波管で直接接続した。この結果、測定時の安定性が高まった。

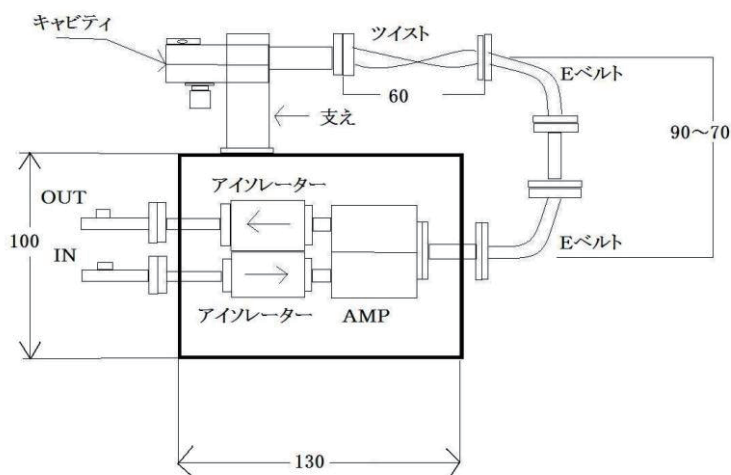


Fig.3 Scheme of microwave circuit components

3.3 装置の自動化

従来、マイクロ波空洞共振器の共振周波数の変化および Q 値の変化を測定するために、手動でマイクロ波発生器を調整し、出力電圧を測定していた。しかし、手動での操作は、測定手順が複雑となり、エラーを起こす可能性が高い。そのため、コンピュータを用いた測定機器の自動化を実施した。機器のコンピュータ制御は GP-IB (General Purpose Interface Bus) インターフェイスを使用した。

本研究で使用した制御機器は、コンピュータ(lenovo 社製 CPU Atom N2600 1.6GHz, メモリ 1GB, OS windows 7) , プログラミング用のソフトウェア (Microsoft 社製 Visual Basic 6.0) , GP-IB インターフェイス(National Instrument 社製 GPIB-USB-HS) , インターフェイス制御用ソフトウェア(National Instrument 社製 Measurement & Automation Explorer)である。

Fig.4 に、実際に作製したプログラムのレイアウトを示す。ボタンや入力窓は、数を極力減らし視覚的及び直観的に使用可能なように配置した。フェイルセーフをプログラミングに取り入れ、誤作動による、マイクロ波発振が起こらないようにした。

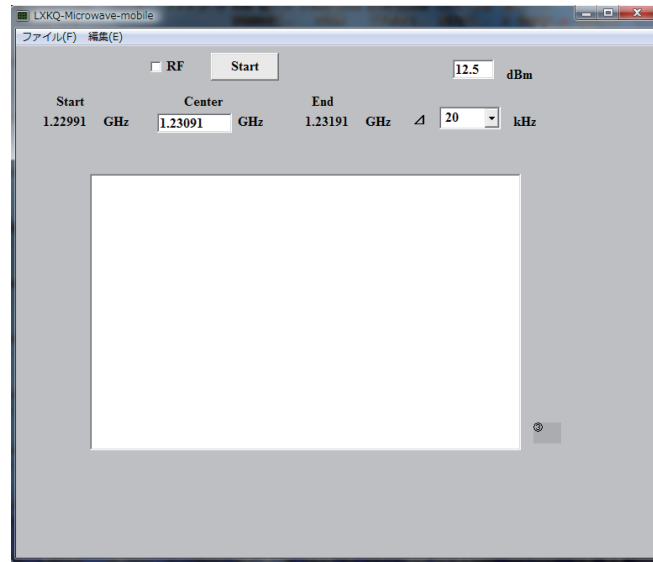


Fig.4 Layout of a measurement program

測定結果は、中央の窓にリアルタイム表示し、出力結果を Microsoft Excel のワークシートに、直接貼りつけることを可能とした。測定データ数は、測定時間を短縮するために 100 ポイントとした。データ間隔は、2MHz～10kHz まで変更可能とした。共振周波数における出力電力の高精度測定において、データ間隔を段階的に減少させ、最終的に 10kHz 間隔で測定を行い、最小値に相当する共振周波数にける出力電力を記録した。

3.4 測定試料

独立行政法人原子力安全基盤機構(JNES)が、平成 14 年度から平成 20 年度にかけて実施した国のプロジェクト研究である「原子力プラントのケーブル経年変化評価技術調査研究」において作製した C 社製難燃 EP ゴム（白芯・赤芯）熱・放射線劣化試供体を借りて測定を行った。試供体の劣化条件は、熱劣化条件は、80℃, 90℃, 100℃である。放射線劣化条件は、全ての温度条件で 3Gy/h である。劣化時間は、最長期間 48 ヶ月である⁽¹⁾。なお、試供体は JNES において引張試験後の物であるため、ケーブルの導体は取り除かれている。

4. 結果と考察

原子力プラントの高経年化技術評価の対象となる経年劣化事象である電気・計装品の絶縁低下における低圧ケーブルの絶縁部の劣化は、絶縁抵抗や破壊電圧等の電気的特性が経年劣化指標として捉えがたいパラメータであり、絶縁部の劣化に伴い電気的特性と共に機械的強度が低下すると考えられている。現在、日本の原子力発電プラントに敷設されている低圧ケーブルの劣化指標は、JNES が作製した熱・放射線劣化試供体を用いた引張試験の破断時伸び⁽¹⁾を基準としている。最初に、Q-band マイクロ波誘電吸収法で得られた測定結果と破断時伸びとの比較を行った。さらに、相異なる加速劣化条件による測定結果を直接比較するために、合成グラフ法を用いて等価時間を求め、破断時伸びとの比較を行った。

4.1 劣化試料の測定

Fig.5 に赤芯、白芯の難燃 EP ゴム試供体のマイクロ波電力の逆数と破断時伸びとの関係を示す。赤芯と白芯ともに相関係数は 0.72 であった。この結果から赤芯、白芯に関して、機械的特性と電気的特性との間に非常に高い相関性が見られた。

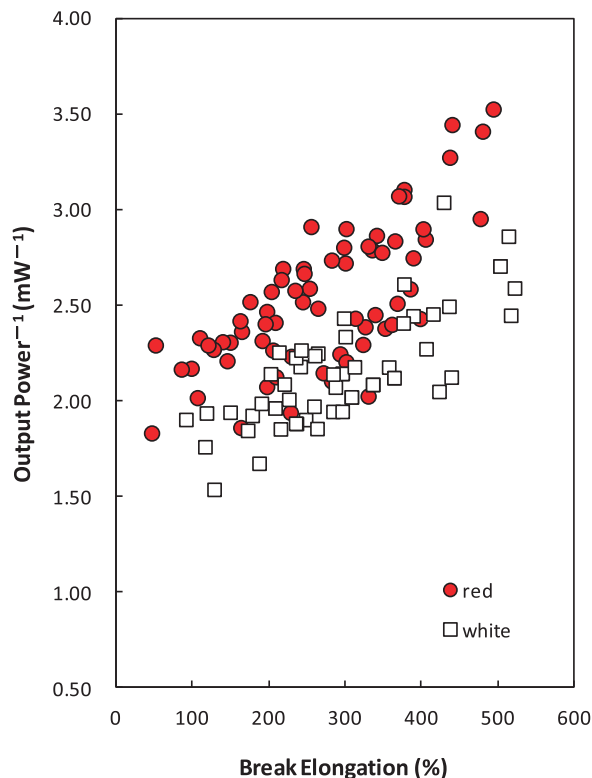


Fig.5 the output power⁻¹ and break elongation for thermally and radiation aged EP rubber.

4.2 等価時間と合成劣化グラフ法

Fig.6 に合成グラフ法⁽¹⁾を用いて算出された等価時間を用いて、難燃 EP ゴム試供体（赤芯）の出力電力の逆数と等価時間の関係を示す。ここで、JNES が作成した経年劣化マスターカーブを、本データに規格化し、重ね合わせた。等価時間は、加速劣化条件である時間、温度及び照射線量率を式(2)へ代入し、求められた移動係数と劣化時間との積より得られる。活性化エネルギー、モデル定数は JNES で得られ⁽¹⁾を使用した。

$$A(T, D) = \exp \left\{ -\frac{E}{R} \left[\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}} \right] \right\} \left\{ 1 + k D^x \exp \left[\frac{E_x}{T} \cdot \frac{1}{T_{ref}} \right] \right\} \quad (2)$$

ここで、 $A(T, D)$: 移動係数, T : 試験温度 (K), T_{ref} : 基準温度 (K), E : 活性化エネルギー (cal/mol), R : 気体定数 (1.99 cal/mol), D : 照射線量率 (Gy/sec), k : モデル定数, x : モデル定数である。

本結果と経年劣化マスターカーブとの間には非常に良い一致が見られた。

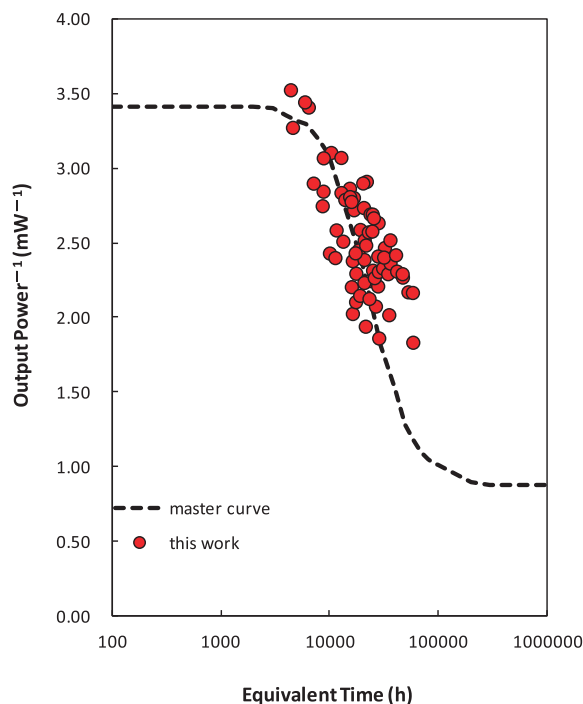


Fig.6 the output power⁻¹ and equivalent time for thermally and radiation aged EP rubber (red)

5. 結 言

JNES の協力により，熱・放射線劣化難燃 EP ゴム試供体に対して本測定法を適用し，マイクロ波誘電吸収法の有効性について検討した．本測定結果より，絶縁体の劣化において，劣化指標となる破断伸びと共振周波数におけるマイクロ波電力の間に高い相関性があることを明らかにした．このことにより，本手法が低圧ケーブルの劣化診断において，従来の経年劣化測定技術を補う手法に成り得ると考える．

謝 辞

本研究で使用したケーブル試供体は，JNES (独立行政法人原子力安全基盤機構)が，平成 14 年度～平成 20 年度「原子力プラントのケーブル経年変化評価技術調査研究」において作製したものである．本研究を実施するに当たり，JNES よりケーブル試供体をお貸しいただいたことに対し深く感謝いたします．

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) H.Shimamori, in J. F. Rabek, ed. “Photochemistry and Photophysics”. CRC Press, Boca Raton ,p.43 (1992).
- (3) 砂川 武義, 佐伯 昭紀, 関 修平, ” 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(Ⅰ)” 福井工業大学研究紀要 40 号, pp. 395-400, (2010).
- (4) T.Seguchi, K.Tamura,T.Ohshima, A.Shimada, H.Kudoh, Radiation Physics and Chemistry Vol.80, pp. 268–273 (2011).
- (5) 砂川 武義, 佐伯 昭紀, 関 修平, ” 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(Ⅲ)” 福井工業大学研究紀要 42 号, p p. 481-486 (2012).
- (6) 砂川 武義, 佐伯 昭紀, 関 修平, ” 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)” 福井工業大学研究紀要 43 号, pp. 403-408 (2011).

(平成 26 年 3 月 31 日受理)