

JAERI-M

6751

高分子絶縁材料の耐放射線性

1976年10月

栗山 将・早川直宏・中瀬吉昭

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.

高分子絶縁材料の耐放射線性

日本原子力研究所 高崎研究所 開発試験場

栗山 将・早川直宏・中瀬吉昭

(1976年9月25日受理)

電線用高分子絶縁材料の耐放射線性の評価は、照射劣化に伴う引張り特性の低下から材料の使用限界線量をきめることによって行われてきた。軽水型原子力発電所が実用期に入った今日では、電力及び制御ケーブル材の耐放射線性に加えて、炉の安全性を確保する立場から、LOCA、地震及び火災などの災害事故を考慮した劣悪環境下においてもケーブル機能を十分発揮することが要求される。第1編では電線用絶縁材料の耐放射線性の評価の推移を述べるとともに安全性を考慮した評価の意義と実施例を解説した。第2編ではIEEE(米国電気学会)323及び383規格に準じたLOCA模擬試験や燃焼試験を行ない、BWR原子力発電所用ケーブルには架橋性ポリマが絶縁・シースケーブル材が有利であることを示した。

Radiation Resistance of Insulating Polymer Materials

Isamu KURIYAMA, Naohiro HAYAKAWA and Yoshiaki NAKASE
Pilot Scale Research Station, Takasaki, JAERI

(Received September 25, 1976)

Radiation resistance of insulating polymer materials for nuclear cables has been studied by way of the decrease of tensile elongation to determine the threshold of radiation damage. LWR nuclear power plants are now practical, and so the power and control cables must be designed to be safe and reliable during their service life under extreme complexity of situations such as Loss-Of-Coolant -Accident (LOCA), seismic accident and fire.

In part I, the advance of research on radiation resistance of the insulating polymer materials is reviewed, and also evaluation test of the cables.

In part II, the results of LOCA simulation and flame tests in IEEE Standards No.323 and 383, 1974-4 are described. In conclusion, the cables with crosslinked polymers are usable satisfactorily in BWR power plant.

目 次

第1編 高分子絶縁材料の耐放射線性について	1
1. まえがき	1
2. 原子炉近傍における放射線環境	3
3. 放射線損傷機構	4
4. 高分子絶縁材料の耐放射線性	5
4.1 薄層被覆ケーブルの γ 線照射	5
4.1.1 機械的性質の変化	5
4.1.2 熱老化性の変化	5
4.1.3 電氣的性質の変化	7
4.1.4 難燃性に及ぼす影響	7
4.1.5 被覆ケーブルの使用限界線量の評価	7
4.2 高速炉計装用ケーブルの耐放射線性	11
4.2.1 化学架橋ポリエチレン	11
a) γ 線照射試験	11
b) 線量率効果	15
c) 電子線照射試験	18
4.2.2 ゴム材料	18
a) エチレン・プロピレンゴム (EP)	18
b) シリコンゴム	22
4.2.3 評 価	23
4.3 L O C A 模擬試験による原子力発電所用ケーブルの耐放射線性	24
4.3.1 試料内容	24
4.3.2 正常運転およびL O C A 模擬試験前後のテスト	25
4.3.3 試験結果および考察	26
(1) 熱老化および耐放射線性試験から寿命の予想	26
(2) 冷却材喪失中および冷却材喪失後の試験	26
(3) 電氣的および物理的性質	26
(4) 難燃性試験	30
4.3.4 結 論	30
5. 文 献	32
第2編 原子力発電所用電線絶縁材料の耐放射線性	33
ま え が き	33
1. 緒 言	33
2. 絶縁材料の耐放射線性	34
3. 原子力発電所用電線材料に対する要求条件	38

4. 熱-放射線-水蒸気(シリーズ)組合わせ模擬条件による劣化	39
4.1 ビニール・シースの検討	39
4.2 架橋ポリマー材料の検討	39
4.3 配合処方による改善	41
5. むすび	43
参考文献	43

第1編 高分子絶縁材料の耐放射線性について

1 ま え が き

高分子材料は、高い誘電性、電気絶縁性や優れた加工性、機械的性質から電気および電子材料としての注目を浴び、電気工業面で積極的に利用されてきた。高分子電気絶縁材料と原子力とのかわりには、古く原子炉の開発とともに生じて以来、放射線下における高分子材料の構造物性の変化、すなわち照射効果に関して多くの知見を得、材料の使用場所の多様性に応ずるとともに、放射線を利用して高分子材料の機械的性、耐熱性を改善し、用途の拡大をはかりつつある。

最近の石油問題に端を発した電力エネルギーの供給不足の危機に際しては、原子力発電によるエネルギー確保の重要性が再認識され、従来の火力、および水力発電に代ってその開発促進の要請が一層高まってきた。1970年に我が国で始めて軽水炉型原子炉発電所が稼働を開始し、原子力エネルギーの利用が我々の社会生活と密接な関連をもつに至った。その後、急速に原子力発電所の建設が進み現在の設備容量は大凡1,800万kWに達し、1985年頃には、長期電力需給案によると約4,900万kW（全電力量のほぼ25%に相当）に到達するものと、総合エネルギー調査会が答申している。さらに建設されつつある軽水型発電炉（効率34%）に代って、核燃料の有効利用の立場から熱効率のよい高速増殖炉（40%）や高温ガス炉（44%）などが次の時代の主役を荷うことが期待されている。このように電力事業における原子炉利用のエネルギー需要の急激な増加は、発電所の設計寿命に関連して耐放射線性のすぐれた制御、電力及び計装用ケーブルの開発の必要性を増し、また安全性の確保からもそれらの耐久性能の向上が重要な課題となってくる。これらケーブル絶縁材料の耐放射線性ないしは耐久性の評価は、それらの使用される複雑な環境、すなわち放射線のエネルギーレベルに応じて異なることはもちろんで、火災、地震などで起きる二次災害事故に対しても十分な安全性を考慮する必要がある。たとえば、原子力発電所の主力を占める軽水型原子炉の安全審査には、冷却材喪失事故（Loss-Of-Coolant-Accident, LOCA）などを想定事故として災害解析を行なっている。この解析では、炉の一次系冷却ループの瞬時破断にともなって、高温、高湿度の雰囲気および放射線場（放射線ヨウ素の放出）などの事故状態を派生すると考えている。従って、ケーブル材もこのような状態下においては当然放射線損傷などの複合環境による劣化を起こすが、一部のケーブルは事故発生時のみその機能を発揮すればよいもの、または事故発生後12ヶ月経過しても十分な性能をもつことなど高度の環境耐久性の保持が要請されてくる。

既に電気学会絶縁材料照射専門委員会では、高分子電気絶縁材料の耐放射線性の評価の工学的重要性に着眼し、放射線と高分子物質との相互作用で生ずる構造変化（分子量、結晶構造変化、ゲル化、橋かけと崩壊など）に関する基礎的諸問題や、照射にともなって生ずる化学変化

第1部の筆者は栗山将（日本原子力研究所高崎研究所開発試験場）である。

注）本内容は、1974年11月14～16日の第9回電気絶縁材料展（東京）の“新しい電気絶縁材料”の招待講演会にて発表した内容に若干加筆訂正をした。

に基因する高分子材料の機械的，熱的および電氣的諸性質の変化を，絶縁材料照射専門委員会報告の「基礎編」（電気技術報告1部74号，1966）にまとめ，また高分子絶縁材料の放射線照射による改質や放射線場における材料の劣化からその使用限界線量を評価した内容を「応用編」（同上，76号，1967）に詳しく述べている。また，最近絶縁材料の耐放射線性の基礎的問題をIEC（International Electrotechnical Commission）の第15技術検討委員会で討議された「絶縁材料の耐久性試験における高分子材料の照射に関するドラフト」も公表されている。

ここでは，最近米国で報告された原子力発電所の制御および電力ケーブルの耐放射線性の評価や，先に動燃事業団のナトリウム冷却高速炉の開発に当って当研究所で行なった高速炉の計装ケーブル用高分子電気絶縁材料の耐放射線性の評価や米国で行われたPWR，BWRなどの軽水型原子炉で使用する制御および電力ケーブルのLOCA環境下の劣化試験で検討された耐放射線性の成果などを紹介し，電源用高分子絶縁材料の耐放射線性の評価の推移を明らかにしたい。

2 原子炉近傍における放射線環境

原子炉内の圧力容器を囲む一次遮蔽内の炉心近傍域では線量率 10^{12} rad/h の下にさらされるので、ポリマを基材とする電気絶縁体やシース類は構成ポリマの主鎖の共有結合がエネルギーの高い γ 線や中性子束によって容易に切断するので利用することができず、この区域内では無機材絶縁体のみが有効である。同様に、高速増殖炉の格納容器内では、正常運転で 10^9 rad/h のエネルギーレベルに達するので、こゝでもやはり無材絶縁体が用いられる。つぎに、一次遮蔽の外側と格納容器の内側の区域内では γ 線の線量率が $0.5 \sim 160$ rad/h に分布しており、正常運転では 70°C に保たれている。しかし、核燃料破損とか、あるいは一次系冷却材喪失などの事故の結果、生ずるエネルギーの異常増加 (Abnormal burst of energy) で生ずる放射線レベルは 10^6 rad/h まで増大し、 50 psig に増圧したスチームによってこの区域内の温度は 150°C まで急上昇することが解析結果から明らかにされている。

発電用原子炉に対しては 40 年間の耐用寿命を保証することが要請されているので、原子炉格納容器内にあるケーブルが吸収する全線量は、この間全くエネルギーの異常増加がないとすると 5×10^7 rad 近くになる。上述の事故が発生して数時間内に正常運転状態に戻ると、この間のエネルギー増加はほぼ 0.4×10^7 rad になる。また、格納容器の外側の熱交換機のような補助機関用のケーブルのうける照射量は 2 桁程度低く軽減される。しかし、区域内のケーブルはエネルギーの異常上昇があっても、一次系冷却水を送るポンプ、ファンや他の安全監視装置に電力を供給して出力エネルギーの異常上昇を妨げる必要がある。

3 放射線損傷機構

1 MeVのオーダの γ 光量子，速中性子の放射線エネルギーをうけるとき，ポリマ基質からなる絶縁体やシース類に生ずる放射線損傷は， γ 線光量子と高分子物質内の電子との相互作用（弾性衝突），すなわち光電吸収，コンプトン吸収散乱などの各吸収プロセスを経て，エネルギーの大部分は高速電子（線）に転換されて，分子，原子を励起し，電離させる。（また，中性子は電荷をもたないので直接的に物質を電離することはないが，高速で物質内を通過するときに原子核と衝突する。この衝突で生じた反跳核，非弾性散乱で励起した核から発生した γ 線，核反応で生じた放射性原子核からの放射線が物質を電離する。）

一方，高分子鎖の結合エネルギー（C—C又はC—H結合で4 eV）と分子電離ポテンシャル（10 eV）は，高エネルギー放射線との相互作用で生じたエネルギーよりも 10^8 の大きさだけ低いので，ポリマ基質の絶縁体が照射されると過渡的及び永久的変化を生ずる。

a) 過渡的变化

放射的照射によって生ずる過渡的变化では，熱ルミネッセンス，直流導電性の増大および分解ガスの放出が起きる。熱ルミネッセンスは，ケーブル照射には関係が少なく，直流導電性もdrasticな増加を生じない限り問題はない。ガス発生は換気が正しく行われている限りはトラブルはないが，密閉した室内では問題がある。

b) 永久的変化

大ていのゴム状ポリマは長時間照射で最終的には脆化する。この脆化は，硬質ゴムやフェノール樹脂にみられるように，照射でポリマー分子鎖間に橋かけが形成されて三次元構造をとるために生ずるが，ブチル系ラバーでは架橋よりもポリマ主鎖結合の切断を起こして崩壊し，柔らかいタール状物質に似た低分子量のchain fragmentを形成する。構成元素や分子構造などは，放射線場においては重要な因子となる。また，線量率や放射線の種類も重要な因子となる。一般にポリマに生ずる放射線損傷は放射線の種類（ α ， β ， γ 及び中性子線など）に依存せず，全吸収線量，すなわち吸収エネルギー量に依存して変化する。

4 高分子絶縁材料の耐放射線性

発電用原子炉の格納容器内の高線量率下、あるいは格納容器外の低線量率下でのポリマー基質からなる絶縁体やシース類が十分にその性能を発揮できるか否かを評価するために、実際に γ 線照射試験を行なってポリマー電気絶縁材料の耐放射線性を検討した二・三の結果を以下に述べる。

4.1 薄層被覆ケーブルの γ 線照射

主としてNo.14 AWG* (7心)銅線を厚さ0.75~1.1mm程度にポリマー被覆した絶縁用またはシース用ケーブルをCo- γ 線源(1.17~1.332MeV)を用いて、線量率 5×10^5 R/h, 温度30~40°C, 空气中で照射した。照射線量を 5×10^5 , 5×10^6 , 5×10^7 および 1×10^8 Rとし、照射後の機械的性質, 熱老化性, 電気的性質, 難燃性の変化を調べ、放射線下で使用される高分子ケーブル材の耐放射線性の評価を行なった。

供試したポリマー材料は、HDPE(絶縁体)-PVC(シース用), SBR-Neoprene, CB-CLPE, CF-EPDM-Neoprene, Butyl-Neoprene, Oil Base-CSPE, NF-CLPE, CFEPDM-CLPE, Silicone-Glass, CSPE, CLPEなど約12種を用いた。

4.1.1 機械的性質の変化

Table 1に示すように、PE, EPDM, Oil, SBR, PVC, Neoprene, Chlorosulfonated PE(CSPE)及びChlorinated PE(CLPE)をベースにした被覆ケーブルの引張り強さ(23°Cにおける)は、 $5 \times 10^5 \sim 1 \times 10^8$ R間の照射線量ではその実用寿命に影響を及ぼすほどの著しい効果はない。こゝで用いたシリコンは、 $10^7 \sim 10^8$ Rで脆化し、ブチルゴムは 5×10^7 Rでタール状に崩壊する。200%ひずみの応力(弾性率)も同様の傾向を示す。ブチル及びシリコンを除いた他の材料は照射による橋かけ結合生成のために切断伸びは減少する傾向にある。

4.1.2 熱老化性の変化

照射した各ケーブルから切り出した短冊状細片に強制空気循環式オープンを用いて、温度75°~175°Cの範囲で熱老化試験を行なった。絶縁材料に対しては、その切断伸びの40%、シース材に対しては80%保持する時間を熱老化温度(ケルビン単位)の逆数に対してArrheniusプロットし、各材料の熱酸化反応における見かけの活性化エネルギーを求めた。さらにそのプロットを70°Cまで外挿して求めた時間で耐老化性を評価した*(Table 2)。

一般にシース材は絶縁材よりも酸化抵抗は小さい。照射した高密度ポリエチレン(HDPE)の熱老化性は化学架橋した無充てん剤ポリエチレン(CB)の特性に似ている。活性化エネルギーの値が大きいほど老化機構の温度依存性は顕著になる。しかし老化機構が異っても同じ活性化エネルギーを示すことがある。例えば、未照射PVCで47.5Kcal/mol, シリコンゴ

* American Wire Gauge

* Arrheniusプロットからケーブルの耐用寿命を定めるにはケーブルの環境条件(温度, 圧力, 照射線量など)を考慮して, ケーブル材料毎に行う必要がある。

Table 1 機械的性質に及ぼすγ線照射の影響

	PVC	HDPE	SBR	CB	CF	CF	90°C Oil	NF	CF	Silicone	PVC	Neoprene	CSPE	CPE
	2114	2213	1520	2045	1455	798	804	2272	872	1191	2601	2544	2113	2170
原試料 (psi)	2260	2000	588	1767	1033	520	335	1260	730	850	2415	930	884	626
照射後の引張り強さ残率 (%)	94	95	106	125	100	103	121	96	116	75	81	107	116	108
5 × 10 ⁵	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†
5 × 10 ⁶	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†
5 × 10 ⁷	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†
1 × 10 ⁸	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†
原試料 (psi)	260	640	460	270	470	450	870	480	300	200	250	550	560	670
照射後の伸び残率 (%)	115	103	93	104	111	93	97	90	96	107	100	96	89	90
5 × 10 ⁵	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†
5 × 10 ⁶	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†
5 × 10 ⁷	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†
1 × 10 ⁸	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†	†

引張り強さ

200%モジュラス

伸び率

* 切断, + 脆い, † < 200%以下の伸び

ムで 45.5 Kcal/mol とほぼ同じ値を示すが、PVCの寿命が 136°C で 200 h を示すのに対して、シリコンゴムでは、 1440 h 後でもなお元の試料の約 65% 以上の伸びを保持する。この結果は、PVCでは熱老化中に可塑剤が急激に散逸するが、シリコンでは通常の酸化プロセスで進むと考えれば理解できる。

4.1.3 電気的性質の変化

誘電定数、誘電体損失および導電性の照射劣化による変化は相対的に小さく、実用性能を失うほどの影響はない。

水中およびスチーム中における誘電特性の変化では、絶縁ケーブルは $1 \times 10^8 \text{ R}$ 照射しても著しい変化はない。PVCは $5 \times 10^7 \text{ R}$ 照射で絶縁破壊値の 73% を保つが、 $1 \times 10^8 \text{ R}$ では 41% を保持するに過ぎない。ブチルゴムは $5 \times 10^6 \text{ R}$ まで変化しないが、 $5 \times 10^7 \text{ R}$ で非常に軟かくなり元の値の 80% 近くまで低下する。シース材の絶縁特性に関しては、ネオプレンで $1/2$ 、クロロスルホン化及び塩素化ポリエチレンでは約 $1/2$ になる。同様の効果は、原子炉運転中に起きるエネルギーの異常増加によって格納容器内で起きるだろうと予測される高圧水蒸気状態を再現する環境条件に照射試料をおいたときにも見出せる、すなわち照射試料を 40 psig (142°C) の水蒸気のオートクレーブ中に最高 32 日間放置し一定時間毎にオートクレーブ中から取り出して、 90°C の温水中に 2 hr 浸漬したのち直ちに 40 および 80 Volt/mil (3.15 KV/mm) の負荷状態で絶縁破壊強さを求める実験を試みた。その結果は Table 3 に示される。カーボン充てん剤入り及び無充てんの化学架橋ポリエチレン、クレイ入りのEPDMとEPMゴム、 90°C Oil-Baseおよびシリコンなどの材料は、 80 Volt/mil (3.15 KV/mm) の負荷のもとでは $5 \times 10^7 \text{ R}$ の照射をうけても余り変化しない。SBRは γ 線照射によって線量とは無関係に電気的安定性を失い、ブチルゴムでは $5 \times 10^6 \text{ R}$ で不安定になる。シリコンはスチームに対する抵抗性は小さく、未照射の場合でも加水分解のために精々 4 日間しか耐えられない。PVC電線は $5 \times 10^6 \text{ R}$ 照射したものを 90°C 温水中で 2 h 浸漬した場合でも 80 Volt/mil (3.15 KV/mm) の負荷で不安定となり破壊に至る。

4.1.4 難燃性に及ぼす影響

垂直燃焼試験機 (Vertical Flame Tester, Underwriter 社製) を用いて薄層絶縁体の難燃性を検討した (Table 4)。

HDPE-PVCを除いて難燃性は 10^8 R まで変わらない。これは高密度ポリエチレンが照射橋かけを形成して、融解流動化を阻害する結果である。PVC, Silicone/Glass-braid, 90°C -Oil Base/CSPE, EPDM/Neoprene および EPM/CLPE の複合ケーブルは、火炎の広がりに対する安定性が高い。

4.1.5 被覆ケーブルの使用限界線量の評価

上に述べてきた機械的および電気的性質の測定結果から各材料およびケーブルの使用限界線量を評価すると、Table 5, 6 および 7 のようになる。また各材料別の評価では、

- a) ジメチル系シリコンをベースとした絶縁体は、低い放射線環境下で最高 130°C まで使用できる。ただし高温水蒸気に対しては抵抗性が小さい。(O1, A1, B1)
- b) カーボン充てん剤入り化学架橋ポリエチレンとクレイ入りEPM, またはEPDMゴムの絶縁体は Class 3 の放射線レベルで 105°C まで使用できる。ただし、ガラス編組加工で

Table 2. ケーブル被覆の熱老化性に及ぼすγ線照射の影響

未照射 (年) 比: 照射物/未照射	40-Percent Loss Elongation				80-Percent Loss Elongation								
	PVC	SBR	CLPE	EPDM	Butyl	Base	CLPE	EPM	Silicone	PVC	Neoprene	CSPE	CPE
> 115	0.36	> 115	> 115	> 115	25*	64	> 115	> 115	> 115	115	1.9	62	115
5×10^5 (rad)	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
5×10^6	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	10 ⁻⁴	1.00	1.00	1.00	1.00
5×10^7	5×10^{-4}	1.00	1.00	1.00	+	1.00	3×10^{-3}	1.00	10 ⁻⁶	10 ⁻⁸	0.50	1.00	10 ⁻¹
未照射 (Kcal/mole) 比: 照射物/未照射	47.5	18.0	35.0	33.0	32.0*	25.4	34.3	34.3	45.5	40.2	20.5	38.3	40.2
5×10^5 (rad)	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	0.90	1.00	1.00
5×10^6	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	0.40	1.00	0.90	1.00	1.00
5×10^7	0.34	1.00	1.00	1.00	+	1.00	0.40	1.00	0.23	0.28	0.90	1.00	0.89

* 引張り強度の減少から推定, + 切断

Table 3. 被覆ケーブルの絶縁特性に及ぼすγ線照射の影響

Dose (rad)	SBR/Neoprene		CB/CLPE		EPDM/Neoprene		Butyl/Neoprene		90C Oil Base CSPE		NF CLPE		CF EPM/CPE		Silicone/Glass		HDPE/PVC		Weeks in 90C water to failure at 80V/mil
	CF	EPDM	Neoprene	CLPE	Neoprene	CSPE	Oil Base	CSPE	NF	CLPE	CF	EPM/CPE	Silicone/Glass	HDPE/PVC					
None	11	> 32	> 32	> 32	11	32	> 32	18	4	> 9	> 9	> 9	> 9						
5×10^5	4	> 32	> 32	> 32	11	32	4	18	3	> 9	> 9	> 9	> 9						
5×10^6	4	> 32	> 32	> 32	11	32	> 32	18	4	> 9	> 9	> 9	2						
5×10^7	4	> 32	25	> 32	1	25	> 32	18	3	> 9	> 9	> 9	1						

Days in steam 40psig(142C) to failure at 80V/mil at 90C

Table 4. UL規格の燃焼試験による薄層ケーブルの難燃性及び及びγ線照射の影響

	PVC	HDPE		SBR		CB		CF		90C		CF		CF		
		PVC	PVC	Neoprene	Neoprene	CLPE	CLPE	EPDM	EPDM	Oil Base	Oil Base	CLPB	CLPB	EPDM	EPDM	
Dose (rad)	0	10 ⁸	0	10 ⁸	0	10 ⁸	0	10 ⁸	0	10 ⁸	0	10 ⁸	0	10 ⁸	0	10 ⁸
Results	P	P	F	F	F	F	F	F	F	F	F	F	F	F	F	P
Percent flag destroyed	0	100	0	100	100	100	0	0	100	20	0	0	100	100	0	0
After burn (sec)	0	180	0	52	60	180	100	0	0	50	80	0	180	180	0	0

P = 合格, F = 本合格

Table 5. ポリマー基質からなる絶縁ケーブルのγ線照射使用限界線量

	PVC	HDPE	SBR	CB		CF		Butyl	90C		CF		PVC
				CLPE	CLPE	EPDM	EPDM		Base	Base	CLPE	CLPE	
引張り強さ	10 ⁸	10 ⁸	5×10 ⁷	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸	5×10 ⁶	10 ⁸	10 ⁸	5×10 ⁷	10 ⁸	5×10 ⁷
切断伸び	5×10 ⁷	5×10 ⁶	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁶	10 ⁸	10 ⁸	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁷
熱老化性	5×10 ⁶		5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁶	5×10 ⁶	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁶	5×10 ⁶
誘電体損失	5×10 ⁷	5×10 ⁵	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸	5×10 ⁶	5×10 ⁶	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸	5×10 ⁷
絶縁破壊	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁷	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸	5×10 ⁶	5×10 ⁶	10 ⁸	10 ⁸	5×10 ⁶	5×10 ⁶	5×10 ⁷
総合判定	5×10 ⁵	5×10 ⁶	5×10 ⁵	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁶	5×10 ⁶	5×10 ⁷	5×10 ⁷	5×10 ⁶	5×10 ⁶	5×10 ⁵
使用限界線量	5×10 ⁵	5×10 ⁷	5×10 ⁷	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸	5×10 ⁶	5×10 ⁶	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸	10 ⁸	5×10 ⁵

Table 6. ポリマー基質からなるシースの γ 線照射使用限界線量

	Neoprene	CSPE	CPE
引張り強さ	5×10^7	5×10^7	5×10^7
伸び率	5×10^7	5×10^7	5×10^6
熱老化性	5×10^6	5×10^7	5×10^6
総合判定	5×10^6	5×10^7	5×10^6
使用限界線量	5×10^7	5×10^7	5×10^7

Table 7. エラストマー基質からなる絶縁ケーブルの放射線環境に対する使用限界区分 (IEEE Std. から)

Radiation Class	Temperature		
	Class O (90°C)	Class A (105°C)	Class B (130°C)
1 (0.9×10^5 Rad)	Silicone	Silicone	Silicone
2 ($2 \sim 9 \times 10^5$ Rad)	Butyl		None
3 (8.8×10^9 Rad)	EPDM EPM Oil base NF CLPE CB CLPE	EPDM CB CLPE EPM	None
4 (8.8×10^9 Rad)	None	None	None
5 ($> 10^{10}$ Rad)	None	None	None

難燃化および耐水処理したアスベスト・テープなどで保護する (O1, O2, O3 および A1, A2, A3)。

c) ブチルおよび高密度ポリエチレンは Class 2 の放射線レベルで、90°C までシース材としてのみ使用できる (O1, O2)。

d) 無充てん剤ポリエチレンと Oil-Base 絶縁体はシースにのみ使用することができ、Class 3 の放射線レベルで 90°C まで使用できる (O1, O2, O3)。

e) SBR および PVC をベースとしたシースは、低温でかつ低放射線レベルで使用できる。

f) Neoprene, CSPE および CLPE のシースは、 10^7 R までの放射線レベルで 70°C まで使用できる。使用限界線量は酸化反応に基因し、難燃性は照射量によって影響されない。

以上の結果から、原子炉発電所で使用する最も魅力的複合体は無充てん及び充てん剤入りの塩素化ポリエチレン、90°C-Oil-Base, EPDM, あるいは EPM をベースとした絶縁体を CSPE あるいは CLPE でシースしたケーブルであろう。このような O3 級のケーブルは照射線量 5×10^7 R にさらされて少なくとも 40 年間は保証でき、 1×10^8 R まで照射しても実用性能はなお失われないであろう。

4.2 高速炉計装用ケーブルの耐放射線性**

動燃事業団のナトリウム冷却高速炉の開発にあたって高速炉の計装， α - γ ケーブルなどに用いられる電線の絶縁材料の耐放射線性を明らかにし，材料の使用可能範囲を決定する目的で，予備的検討にもとずいて広範囲に選んだ試料のなかから比較的有望と認められた化学架橋ポリエチレンとエチレン・プロピレンゴムなどを選定し，材料の配合，耐放射線性助剤などの種類と量の影響を重点的に調べた。また， 5×10^8 R の高線量域までの γ 線照射試験と電子加速器による電子線照射試験を行なった。さらに放射線劣化に及ぼす試料の厚さ，線量率効果を検討し耐放射線性を調べた。

4.2.1 化学架橋ポリエチレン

耐放射線性を向上させる手段として色々考えられる*が少量の耐放射線性助剤を添加することで改善できれば最も簡単で経済的である。試料 XE-1 は芳香族炭化水素系耐放射線性助剤を添加したもの，XE-2 は酸化防止剤型耐放射線性助剤を，XE-3 は両者を併用して充てん剤を加えたもの，XE-4 は酸化防止剤型耐放射線性助剤入りの可撓性ポリエチレン，XE-5 はこれに難燃剤を添加したもの，さらに XE-6 は実用配合による化学架橋ポリエチレンを用いた。

a) γ 線照射試験

各ポリエチレンのゲル分率，引張り特性，電気特性の γ 線照射による劣化にともなう変化を Fig. 1, 2 および 3 (a), (b) に示す。

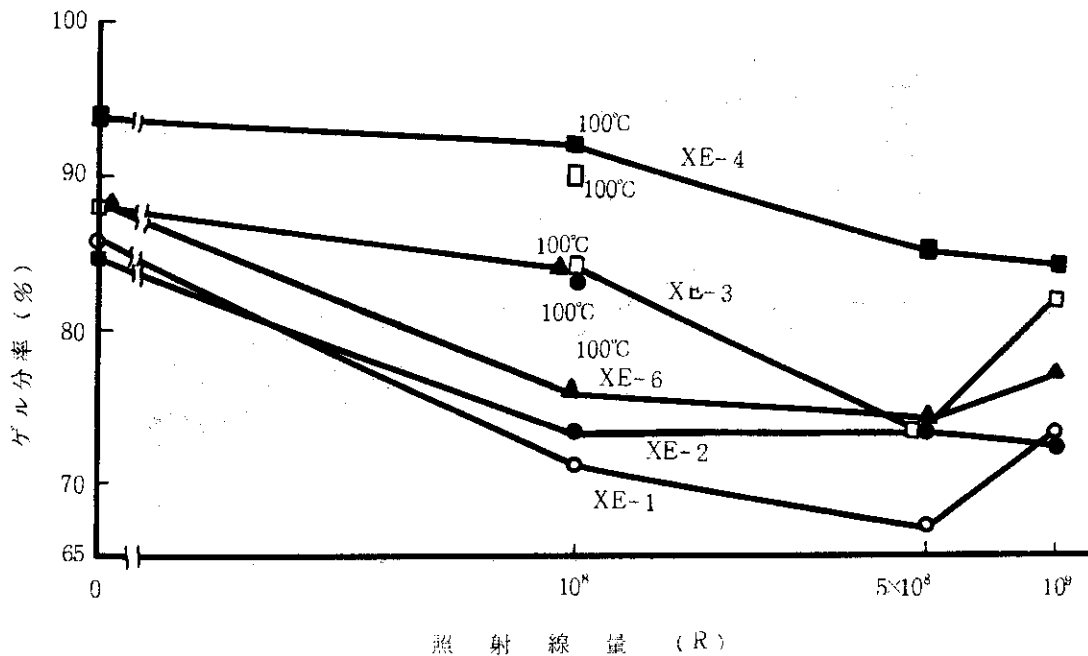


Fig. 1. 架橋ポリエチレンにおけるゲル分率の γ 線照射による変化

* 「耐放射線性高分子」の題目で，仲川が繊維工業 29, P137 (1973), 放射線化学 9, 18 (1974) が解説している。

** 動燃受託研究「電気絶縁材料等の耐放射線性の評価」の内容の一部の引用に関しては，動燃事業団の許可をうけた。

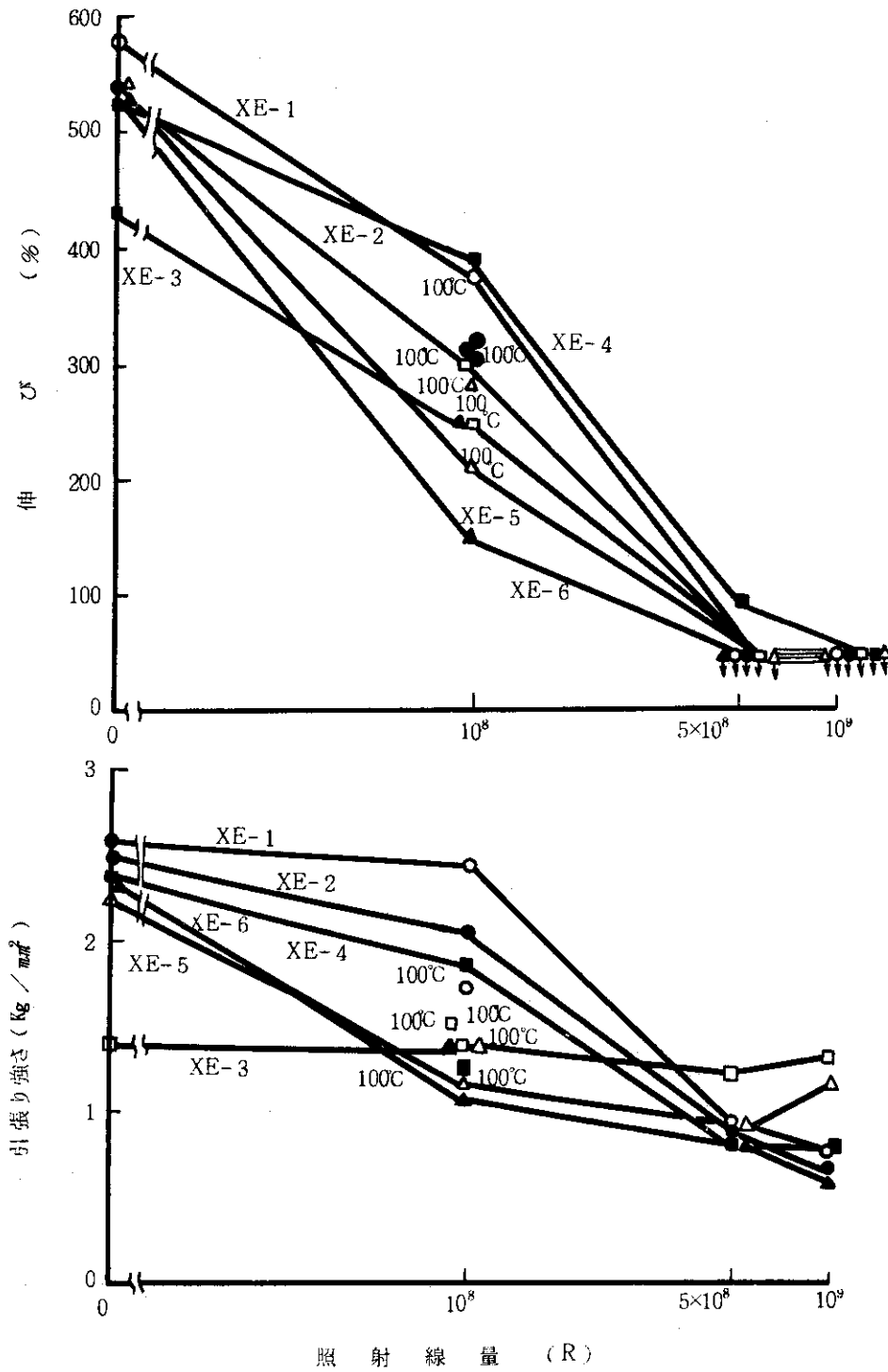


Fig. 2 架橋ポリエチレンの引張り特性のγ線照射劣化

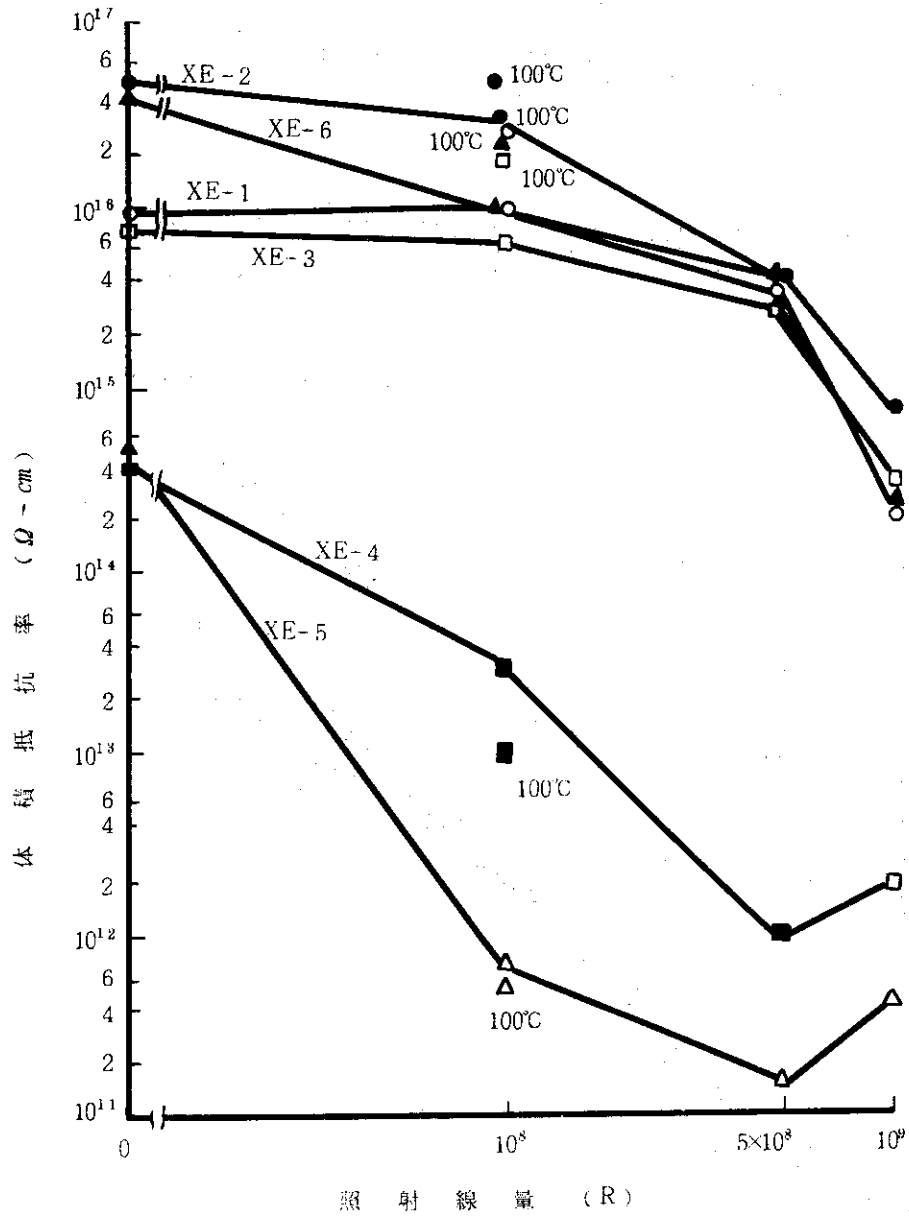


Fig. 3 (a) 架橋ポリエチレンにおける体積抵抗率のγ線照射劣化〔I〕(2.2℃)

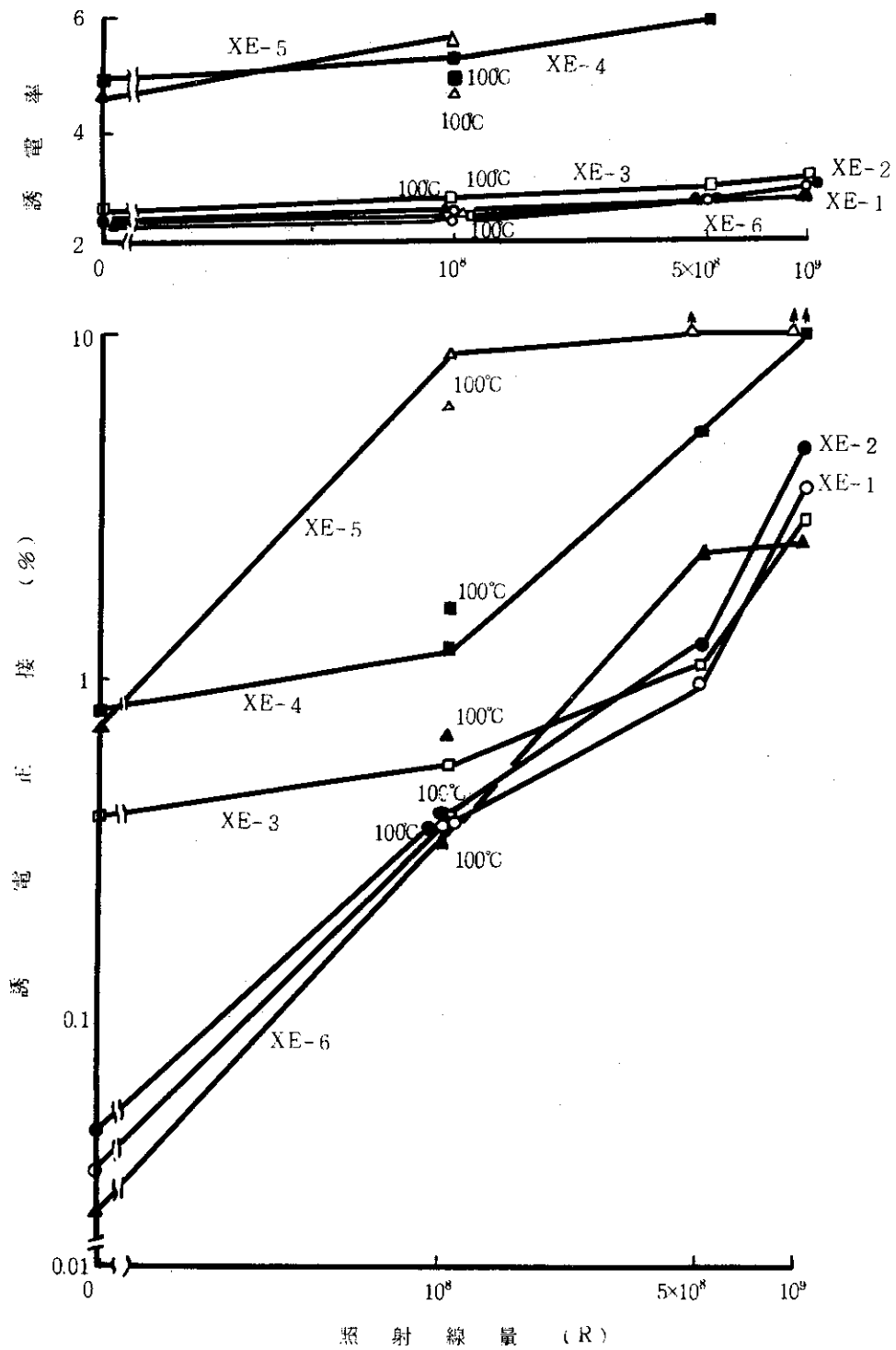


Fig. 3(b) 架橋ポリエチレンにおける誘電特性の γ 線照射劣化 [1] (22°C)

照射劣化の傾向は照射量が増すとともに引張り強さと伸びが低下し、加熱変形率が改善されている。このような傾向は分解と橋かけ反応が競合しながら進行することによる。ゲル分率及びゲル膨潤比の低下も見られるが、前者では分解反応の進行を、後者では橋かけ反応の進行を示す。また比重の増加は主として酸化によるものであり、その結果イオンまたは双極子の増加によって電気特性の低下を導く。XE-1では耐放射線性助剤の添加で若干劣化が抑制されているが顕著ではない。酸化防止剤型助剤の添加、あるいは両者を併用して充てん剤を入れた場合も同じ傾向である。しかしポリマー基質が共重合型のXE-4は、 5×10^8 Rの高線量下でもかなりの伸びを保持し、 1×10^9 Rにおける曲げ試験で簡単に割れ、電気特性の低下も著しい。同じ共重合物でも塩素含有難燃剤を含む場合には、耐放射線性の著しい向上は期待できない。

b) 線量率効果

ポリマー材料の放射線劣化は、単に照射線量のみでなく試料の厚さや照射線量率の影響を受ける、すなわち同一線量を照射したときでも、薄い試料ほど、また線量率の低いほどその劣化が著しい。これは材料内への酸素の拡散が放射線劣化に影響するためと考えられる。実際に電線が使用される高速炉周辺の γ 線レベルは $10^3 \sim 10^4$ R/hであるので、こゝでの劣化試験を短時間に終らせるために $2 \times 10^5 \sim 2 \times 10^6$ R/hの高線量率で行なった照射結果から材料の耐用寿命を評価するには多少問題がある。ここでは化学架橋ポリエチレンを選び、試料の厚さを1, 3および5 mmと変えて線量率効果を調べた。試料は添加物を入れない純ポリエチレン、化学架橋ポリエチレン(XE-6)と酸化防止型耐放射線性助剤を添加した(XE-2)を用い、線量率は $5 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$ R/hで、照射線量 1×10^8 Rまで室温にて照射を行なった。その測定結果をTable 8に物理特性を、Table 9に電気特性を夫々示した。

1) 純ポリエチレン

線量率効果が最も顕著に表われている、すなわち線量率の小さいほど、また厚さの薄いほど比重は増加し、伸びとゲル分率のいずれも低下し厚さ効果は線量率が低いほど著しい。真空中照射では 1×10^8 Rでも比重の値がほとんど変化しないことから、その増加は酸化に起因し、また伸びの低下、ゲル分率の小さいことも同様に酸化にともなう分子鎖の切断の増加によると解釈できる。電気特性も亦線量率の小さいほど劣化が大きく酸化の傾向と一致する。引張り強さも線量率が低いほど低下が著しいが、その低下率への厚さの影響は余り現われていない。

2) 化学架橋ポリエチレン(XE-6)

線量率効果は純ポリエチレンと類似しており、伸び、ゲル分率、誘電正接の変化にみられるように線量率効果は、純ポリエチレンよりもやや劇しく現われる。

3) 耐放射線性助剤入り化学架橋ポリエチレン(XE-2)

この試料では伸び、ゲル分率、誘電正接などの変化にみられるように、線量率効果は上記二種のポリエチレンに比べて小さくなるが、同様の傾向が明らかに現われる。比重増加の傾向は無添加試料と同様に著しい。添加した耐放射線性助剤が酸化防止型であることを考えると、この助剤はポリマー鎖の酸化切断を抑制する役割を演じていることは

Table 8. 線量率の影響 (1) 物理的特性

試料名	試料		厚さ (mm)	外観	比重	硬さ (シヨAD)	引張り 強さ (Kg/mm ²)	伸び (%)	100% モジュラス (Kg/mm ²)	加熱変 形率(%) 120℃	ゲル分率 (%)	容積 膨潤化
	線量率 (R/h)	全線量 (R)										
E	0	0	1	灰白	0.920	56	1.87	780	1.18	100	0	—
			3	灰白	0.920	57	1.74	760	1.18	100	0	—
			5	灰白	0.920	58	1.41	710	1.10	100	0	—
	5×10 ⁴	1×10 ⁸	1	灰白	0.935	60	1.31	50>	—	24	55	5.5
			3	灰白	0.929	61	1.21	70	—	12	77	4.0
			5	灰白	0.927	61	1.17	80	—	6	82	4.0
	1×10 ⁵	1×10 ⁸	1	灰白	0.934	60	1.28	60	—	20	57	4.8
			3	灰白	0.928	61	1.22	90	—	10	78	4.0
			5	灰白	0.926	60	1.19	100	—	6	84	4.0
	1×10 ⁶	1×10 ⁸	1	灰白	0.930	57	1.35	130	—	19	73	4.3
			3	灰白	0.927	59	1.34	140	—	9	84	4.0
			5	灰白	0.925	58	1.33	150	—	6	87	3.7
XE-2	0	0	1	うす茶	0.921	56	2.58	550	1.09	10	88	6.7
			3	茶色	0.921	57	2.37	540	1.06	8	92	6.5
			5	茶色	0.921	58	1.95	530	0.99	5	93	6.5
	5×10 ⁴	1×10 ⁸	1	うす茶	0.938	57	1.94	240	1.15	18	56	12.0
			3	茶色	0.930	58	1.69	240	1.10	7	83	5.2
			5	茶色	0.926	59	1.66	270	1.10	5	88	4.4
	1×10 ⁵	1×10 ⁸	1	うす茶	0.935	59	1.90	250	1.14	10	68	9.0
			3	茶色	0.927	59	1.87	260	1.10	6	83	5.2
			5	茶色	0.924	60	1.75	280	1.08	4	88	4.4
	1×10 ⁶	1×10 ⁸	1	うす茶	0.928	57	2.16	260	1.17	9	84	5.0
			3	茶色	0.922	58	1.86	280	1.14	5	90	4.0
			5	茶色	0.921	58	1.81	290	1.12	4	92	3.8
XE-6	0	0	1	うす黄	0.920	52	2.63	500	1.08	17	90	6.1
			3	うす黄	0.920	53	2.15	500	1.03	8	94	6.2
			5	うす黄	0.920	55	2.04	500	0.97	5	95	6.2
	5×10 ⁴	1×10 ⁸	1	うす黄	0.938	60	1.25	70	—	22	49	6.2
			3	うす黄	0.927	61	1.13	90	—	11	75	4.7
			5	うす黄	0.924	61	0.98	120	—	5	81	4.2
	1×10 ⁵	1×10 ⁸	1	うす黄	0.934	59	1.26	110	—	15	55	5.6
			3	うす黄	0.926	60	1.15	160	—	8	78	4.4
			5	うす黄	0.923	60	1.04	200	—	5	83	4.0
	1×10 ⁶	1×10 ⁸	1	うす黄	0.927	60	1.41	220	1.13	15	73	4.9
			3	うす黄	0.925	60	1.37	220	1.11	8	86	4.2
			5	うす黄	0.922	59	1.34	220	1.04	4	88	3.9

Table 9. 線量率の影響 (2) 電気特性

試料			体積抵抗率 ($\Omega\text{-cm}$)			誘電率 *			誘電正接(率) *			
試料名	線量率 (R/h)	全線量 (R)	厚さ (mm)	20°C	70°C	90°C	20°C	70°C	90°C	20°C	70°C	90°C
E	0	0	1	3.0×10^{16}	2.6×10^{16}	1.0×10^{16}	2.26	2.13	2.07	0.01	0.01	0.04
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	$1.0 \times 10^{16} <$	9.5×10^{15}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	$1.0 \times 10^{16} <$	6.2×10^{15}	—	—	—	—	—	—
	5×10^4	1×10^8	1	2.5×10^{16}	5.0×10^{12}	6.2×10^{11}	2.39	2.37	—	0.48	4.73	$10 <$
			3	7.6×10^{15}	3.9×10^{12}	1.4×10^{12}	—	—	—	—	—	—
			5	3.2×10^{15}	3.9×10^{12}	1.3×10^{12}	—	—	—	—	—	—
	1×10^5	1×10^8	1	3.0×10^{16}	5.2×10^{12}	1.0×10^{12}	2.38	2.32	2.35	0.38	3.43	9.94
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	5.2×10^{12}	1.5×10^{12}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	5.2×10^{12}	2.0×10^{12}	—	—	—	—	—	—
	1×10^6	1×10^8	1	2.4×10^{16}	7.7×10^{12}	1.4×10^{12}	2.33	2.24	2.17	0.30	1.40	3.83
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	1.0×10^{13}	2.0×10^{12}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	1.3×10^{13}	2.6×10^{12}	—	—	—	—	—	—
XE-2	0	0	1	4.0×10^{16}	2.0×10^{16}	5.8×10^{12}	2.24	2.10	2.06	0.04	0.03	0.03
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	4.9×10^{15}	1.9×10^{14}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	3.2×10^{15}	1.3×10^{14}	—	—	—	—	—	—
	5×10^4	1×10^8	1	3.6×10^{16}	1.2×10^{13}	6.1×10^{12}	2.38	2.32	2.21	0.68	0.46	1.14
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	4.7×10^{13}	2.9×10^{13}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	6.1×10^{13}	1.8×10^{14}	—	—	—	—	—	—
	1×10^5	1×10^8	1	4.0×10^{16}	2.7×10^{13}	6.8×10^{12}	2.37	2.30	2.24	0.52	0.26	0.67
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	4.0×10^{13}	3.5×10^{13}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	2.4×10^{14}	6.1×10^{14}	—	—	—	—	—	—
	1×10^6	1×10^8	1	2.0×10^{16}	5.3×10^{14}	1.3×10^{14}	2.33	2.23	2.14	0.30	0.11	0.23
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	7.9×10^{14}	4.0×10^{14}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	9.8×10^{14}	2.0×10^{15}	—	—	—	—	—	—
XE-6	0	0	1	2.0×10^{16}	2.0×10^{16}	1.0×10^{16}	2.27	2.15	2.09	0.03	0.02	0.01
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	$1.0 \times 10^{16} <$	9.8×10^{15}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	$1.0 \times 10^{16} <$	1.4×10^{15}	—	—	—	—	—	—
	5×10^4	1×10^8	1	2.5×10^{16}	5.5×10^{12}	2.2×10^{12}	2.50	2.46	2.45	0.73	4.65	9.94
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	4.9×10^{13}	3.9×10^{12}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	5.3×10^{13}	9.9×10^{12}	—	—	—	—	—	—
	1×10^5	1×10^8	1	3.0×10^{16}	8.3×10^{12}	2.8×10^{12}	2.44	2.39	2.35	0.54	2.53	6.63
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	5.9×10^{13}	1.5×10^{13}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	6.2×10^{13}	6.2×10^{13}	—	—	—	—	—	—
	1×10^6	1×10^8	1	3.5×10^{16}	2.5×10^{13}	1.3×10^{13}	2.35	2.24	2.19	0.36	0.56	1.40
			3	$1.0 \times 10^{16} <$	7.0×10^{13}	3.0×10^{13}	—	—	—	—	—	—
			5	$1.0 \times 10^{16} <$	6.5×10^{13}	6.6×10^{13}	—	—	—	—	—	—

* 3および5 mm シートスケールオーバーのため測定できなかった。

明らかである。

以上のように $5 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$ R/h の線量率範囲の試験で線量率の大きいほど、また厚さの厚さほど劣化し難いという傾向が明白に表われ、酸化劣化からこれらの現象を説明し得ることがわかった。したがって、後述の高分子絶縁材料の使用限界線量は $2 \times 10^5 \sim 2 \times 10^6$ R/h に対する値から評価しているので、実際の高速炉周辺レベルは $10^3 \sim 10^4$ R/h の範囲で使用されるので、この使用限界はかなり割引いて見積る必要がある。

c) 電子線照射試験

加速器よりの電子線は、線量率が大きいので γ 線照射に比べて短時間で大線量照射が可能となるが、高線量率のため照射中に試料自身の温度の上昇は避けられない欠点があるものの、酸化劣化をあまり起こさないという特長がある。化学架橋ポリエチレンの実験結果を Table 10 に示す。

架橋ポリエチレンの電子線照射劣化の傾向は γ 線照射劣化に比べて、酸化劣化よりも橋かけ反応が優先しているといえる。したがって、比重の増加や電気特性の劣化は少ないが、引張り特性、とくに伸びの低下は著しい。ゲル分率の上昇は明らかに架橋によるものであり、この傾向は容積膨潤比にもみられる。芳香族炭化水素型耐放射線助剤の効果 (XE-1) は期待したほどない。酸化防止剤型放射線助剤を加えた XE-2, あるいは充てん剤を加えた場合も特性はほぼ同じ傾向を示しているが、XE-3 の場合、特性の変化の傾向は他より小さい。

電子線照射の場合、線量率が極度に高いことを反映して酸化劣化よりも架橋劣化の影響が明白に表われている。これは上述の b) の γ 線線量率効果が極端に反映しているとみられる。酸化防止型耐放射線性助剤やカーボン充てん効果はなかったが、芳香族炭化水素型放射線性助剤の効果も著しくなく、現段階では耐放射線性助剤を確認できる段階ではない。

4.2.2 ゴム材料

a) エチレン・プロピレンゴム (EP)

EP-1 の γ 線照射劣化試験の結果は、ここで供試した EP 系ゴムの結果を総括した劣化傾向を示す (Fig. 4 および 5), すなわち照射線量の増加とともに 1×10^8 R 付近での引張り強さが低下しており、それを越すと再び硬化して増大する。EP-2 は加硫剤系、酸化防止剤系の耐熱性の秀れた助剤を入れたが耐放射線性は変わらない。さらに耐放射線性を向上させるために芳香族炭化水素助剤 (EP-3), あるいは基質ポリマーをエチレン・プロピレンコポリマーに変えても耐放射線性はあまり向上しない。充てん剤に MT カーボンと芳香族炭化水素を添加した EP-5 は curing が甘くなり、引張り強さの低くなる欠点があるが、 1×10^9 R でも脆化を起こさず、すぐれた耐放射線性を示す。これに充てん剤を入れた EP-6 もほぼこれに近い耐放射線性を示す。カーボン・ブラックのような充てん剤は、化学構造からみると芳香族環の集合体であり、その共鳴構造が安定化に有効であるから秀れた耐放射線性助剤として作用するであろう。

エチレン・プロピレンゴムの電子線照射では、ポリエチレンの場合と同様に酸化劣化が少ない。この傾向は添加物の種類を変えた系でも、ベースポリマーを EPM に置換しても同様である。

Table 10. 架橋ポリエチレンの電子線照射劣化—物理的特性

試料	照射線量 (10 ⁶ rad)	外観 の変化	比重	硬さ (シヤア)	引張り強さ		伸 び		100% モジュラス (Kg/mm ²)	加熱変形率 (%)		ゲル分率 (%)	容 積 膨潤比	180° 折り曲げ
					(Kg/mm ²)	残率 (%)	(%)	残率 (%)		120°C	140°C			
XE・1	0	黄 茶	0.921	45 ^(D)	2.57	580			1.01	12	15	86	6.4	○
	600	明るい茶	0.932	46	1.32	52	60	10	—	5	6	95	1.8	×
	1,200	暗い茶	0.936	48	0.84	33	※		—	3	4	97	1.3	×
XE・2	0	黄 茶	0.921	42 ^(D)	2.49	540			0.94	15	15	85	5.6	○
	600	茶	0.931	44	1.17	47	40	7.4	—	5	6	95	1.6	×
	1,200	暗い茶	0.932	43	0.49	20	※		—	3	5	97	1.3	×
XE・3	0	灰味黄茶	1.177	50 ^(D)	1.39	430			1.16	12	12	88	3.9	○
	600	黄 茶	1.181	54	2.03	146	60	14	—	4	5	97	1.8	×
	1,200	黄 茶	1.185	58	1.32	95	※		—	3	5	98	1.3	×
XE・4	0	黒	1.247	78 ^(A)	2.35	530			0.63	11	11	94	4.2	○
	600	黒	1.269	89	1.20	51	50	9.5	—	3	4	98	1.8	×
	1,200	黒	1.276	93	1.17	50	※		—	2	3	99	1.3	×
XE・6	0	黄味灰	0.920	42 ^(D)	2.30	530			0.97	14	16	88	8.6	○
	600	暗い黄	0.931	46	1.27	55	40	7.6	—	7	7	94	1.8	×
	1,200	黄 茶	0.935	41	0.82	35	※		—	0	3	97	1.3	×

(注) ※はチャック切れ。

電 気 特 性

試料	吸収線量 (10 ⁶ rad)	体積抵抗率 (Ω-cm)				誘電率				誘電正接 (%)			
		22°C	50°C	70°C	90°C	22°C	50°C	70°C	90°C	22°C	50°C	70°C	90°C
XE・1	0	9.5×10 ¹⁵	2.3×10 ¹⁶	6.1×10 ¹⁴	1.6×10 ¹⁴	2.39	2.32	2.27	2.16	0.04	0.02	0.02	0.01
	600	2.0×10 ¹⁵	5.6×10 ¹⁵	8.1×10 ¹³	2.7×10 ¹³	2.47	2.46	2.43	2.36	0.31	0.17	0.11	0.13
	1,200	9.3×10 ¹⁴	8.0×10 ¹⁴	7.9×10 ¹³	7.4×10 ¹³	2.51	2.48	2.46	2.37	0.32	0.21	0.26	0.39
XE・2	0	4.8×10 ¹⁶	3.8×10 ¹⁶	2.0×10 ¹⁶	3.8×10 ¹⁴	2.36	2.30	2.24	2.13	0.05	0.01	0.02	0.03
	600	4.8×10 ¹⁶	7.5×10 ¹⁵	1.5×10 ¹⁵	1.5×10 ¹⁴	2.51	2.46	2.38	2.29	0.35	0.16	0.12	0.19
	1,200	8.5×10 ¹⁵	3.7×10 ¹⁵	1.0×10 ¹⁵	8.9×10 ¹³	2.55	2.49	2.43	2.32	0.42	0.25	0.30	0.43
XE・3	0	8.2×10 ¹⁵	3.8×10 ¹⁵	7.9×10 ¹³	8.9×10 ¹⁴	2.64	2.60	2.55	2.41	0.41	0.57	0.80	0.71
	600	4.5×10 ¹⁵	2.4×10 ¹⁵	5.3×10 ¹³	6.1×10 ¹⁴	2.77	2.74	2.71	2.63	0.57	0.76	0.90	1.14
	1,200	3.6×10 ¹⁵	1.0×10 ¹⁵	5.4×10 ¹³	4.1×10 ¹⁴	2.79	2.78	2.76	2.66	0.69	1.06	1.54	1.66
XE・4	0	3.9×10 ¹⁴	2.8×10 ¹³	3.6×10 ¹²	4.2×10 ¹¹	4.90	4.66	4.45	4.36	0.81	0.82	1.79	6.74
	600	3.0×10 ¹⁴	9.8×10 ¹²	9.8×10 ¹¹	3.7×10 ¹¹	4.96	4.90	4.73	4.66	1.96	1.69	3.45	8.77
	1,200	6.9×10 ¹³	4.1×10 ¹²	5.1×10 ¹¹	—	5.17	5.00	4.98	—	3.15	3.17	6.75	—
XE・6	0	4.1×10 ¹⁶	3.6×10 ¹⁵	8.3×10 ¹⁵	5.8×10 ¹⁵	2.27	2.26	2.24	2.14	0.03	0.02	0.01	0.02
	600	7.9×10 ¹⁵	6.6×10 ¹⁴	8.0×10 ¹³	4.5×10 ¹²	2.44	2.41	2.38	2.19	0.13	0.18	0.24	0.37
	1,200	7.1×10 ¹⁵	3.6×10 ¹⁴	9.2×10 ¹³	6.0×10 ¹³	2.49	2.47	2.42	2.23	0.25	0.28	0.36	0.55

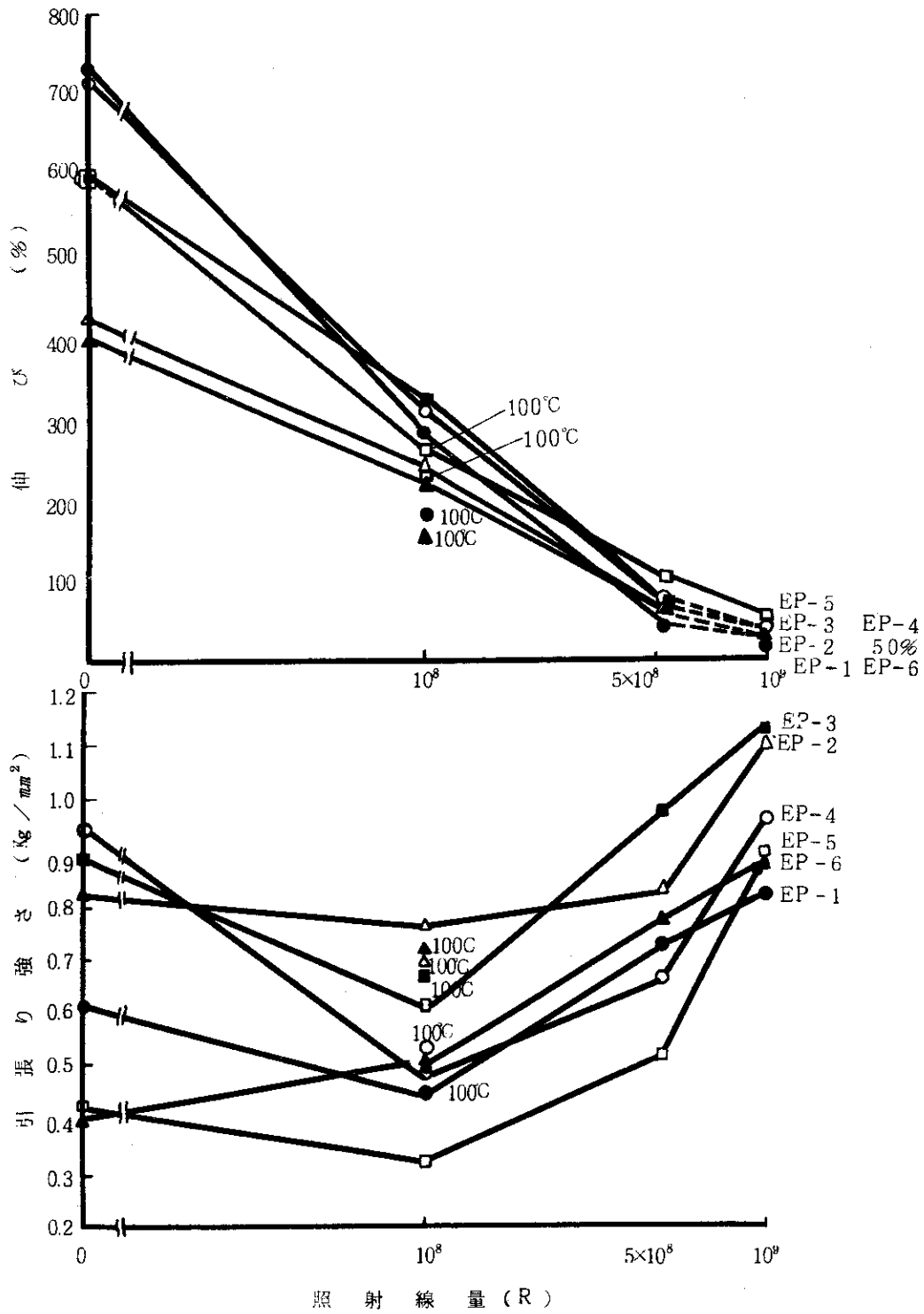


Fig. 4. ゴムにおける引張り特性のγ線照射劣化

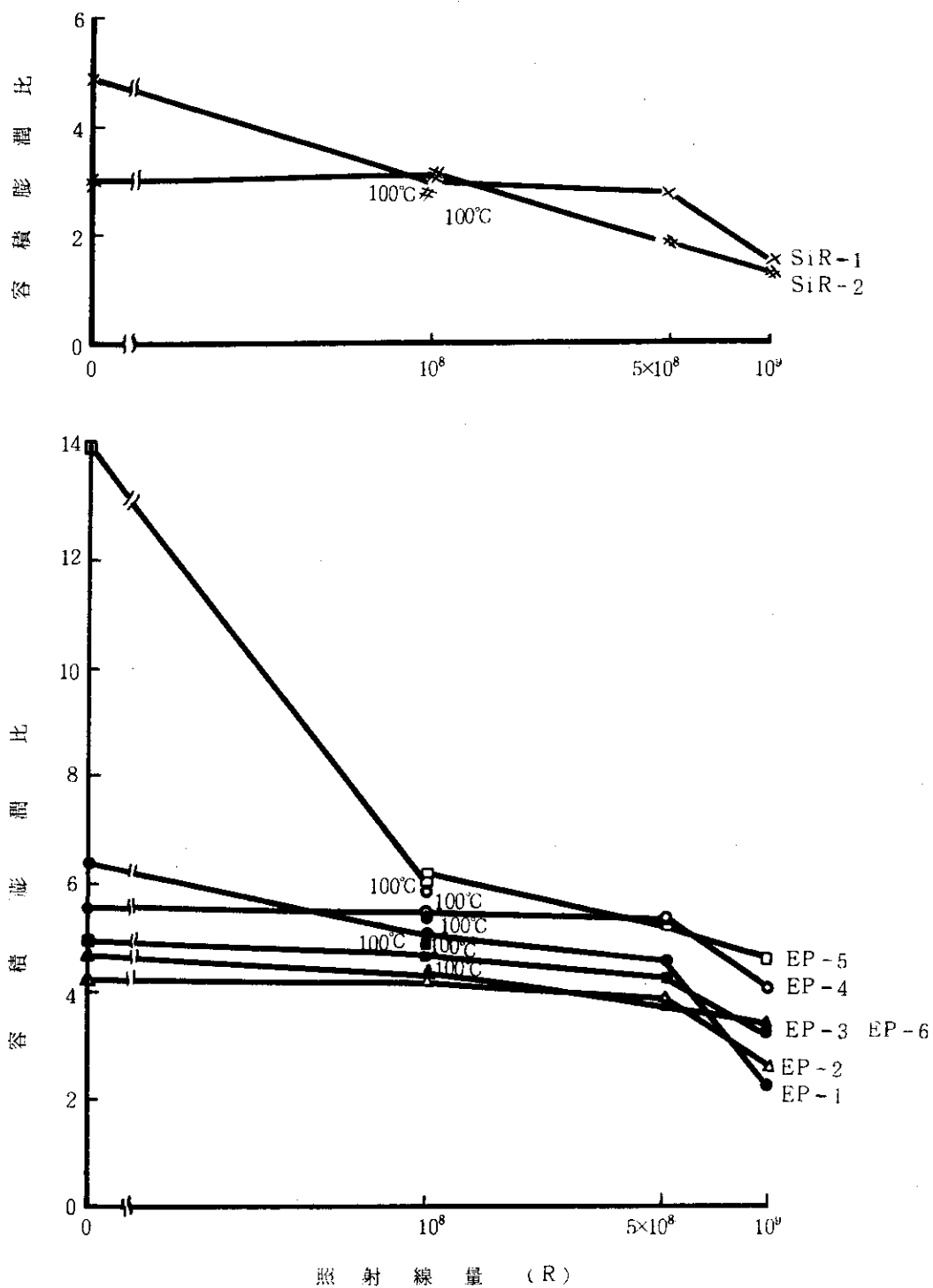


Fig. 5. ゴムにおける容積膨潤比の γ 線照射による変化

b) シリコンゴム

シリコンゴムの耐放射線性の向上には、フェニル基を多量に含む構造が有利である。シリコンゴムの γ 線照射劣化による引張り特性をFig.6に示す。高いフェニルシロキサンを含むSiR-1は耐放射線性がかなり改善されているものの、 2×10^8 R程度が使用限界線量で、化学架橋ポリエチレン、EPゴムに比べてやや劣る。しかし電気的特性はこの程度の γ 線照射しても低下しない。SiR-2は、SiR-1より低いフェニルシロキサン含有であるが、橋かけ様式をSiR-1に変えても耐放射線性は劣る。したがって、シリコンゴムでは高フェニル基ゴムを選ぶことが耐放射線性向上のため必要のようである。

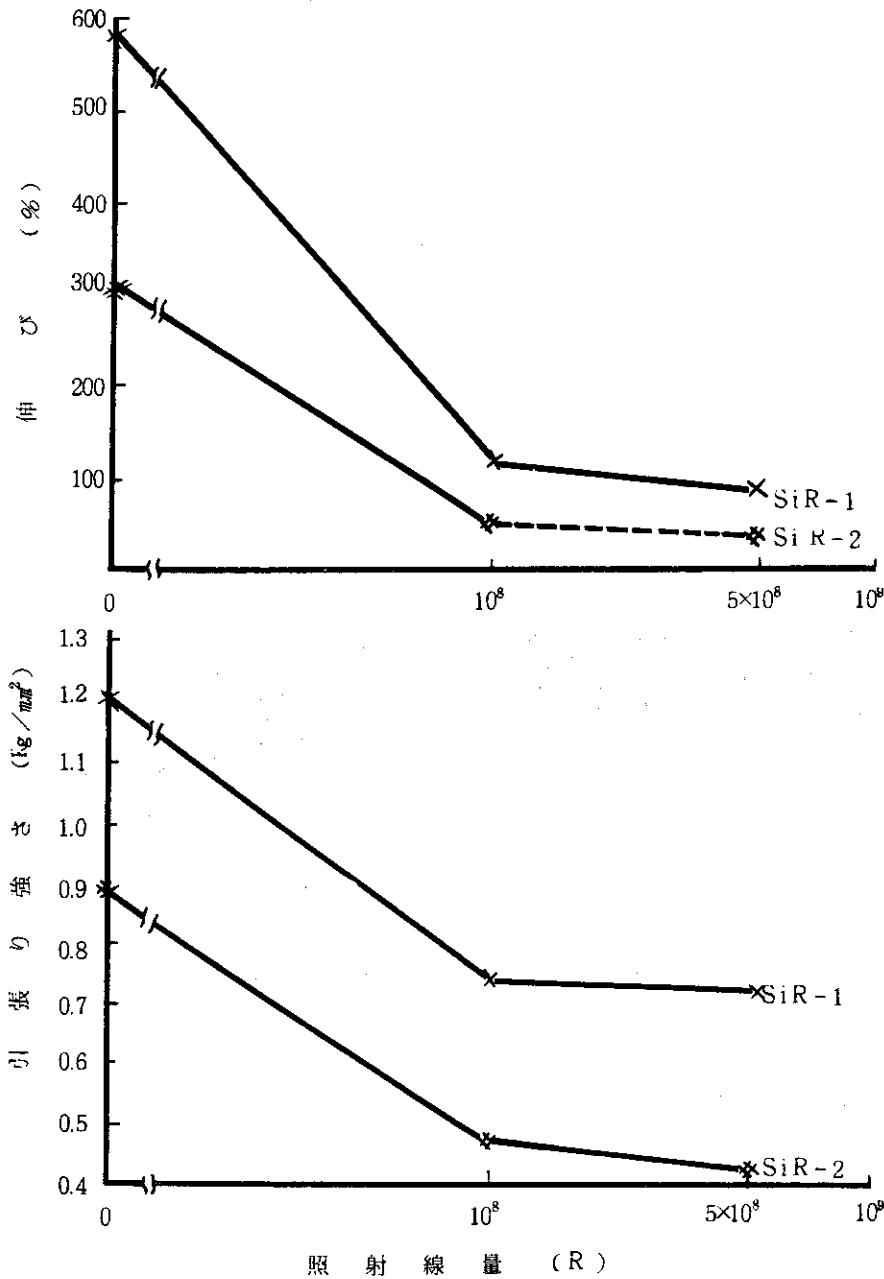


Fig. 6. ゴムにおける引張り特性の γ 線照射劣化

4.2.3 評 価

以上の各種材料の使用可能範囲を図示したのが Fig. 7 である。絶縁材料の放射線劣化では電気特性の低下よりも機械的特性の低下が著しく、伸び（切断伸長率）が使用可能な限界を示す尺度として重要であると考えられるので、伸びの変化を評価の基準として採用した。この図では各材料の伸びが100%に低下するまでを使用できる範囲とした。このように評価の基準を伸びの絶対値にとったため、もともと伸びの大きい材料には若干有利に、伸びの小さい材料には不利に評価した結果になっている可能性がある。

Fig. 7 からポリエチレン、EPゴムともに 10^8 Rを越えての使用が可能であり、配合比、添加剤などの選択により 5×10^8 R $\sim 1 \times 10^9$ Rまで使用範囲を広げることが可能である。

また、ここで図示したのは 2×10^5 R $\sim 2 \times 10^6$ Rの線量率範囲で照射した試料の実験結果をまとめたものであるが、上述のように材料の放射線劣化は単に照射線量のみでなく、試料の厚さ、照射線量率の影響をうける。同一線量を照射したときでも、試料の薄いほど、また線量率の低いほどその劣化の程度は大きい。このような傾向が認められているので、実際に使用する電線材料の選定および耐用寿命の見積りに関しては十分に慎重である必要がある。

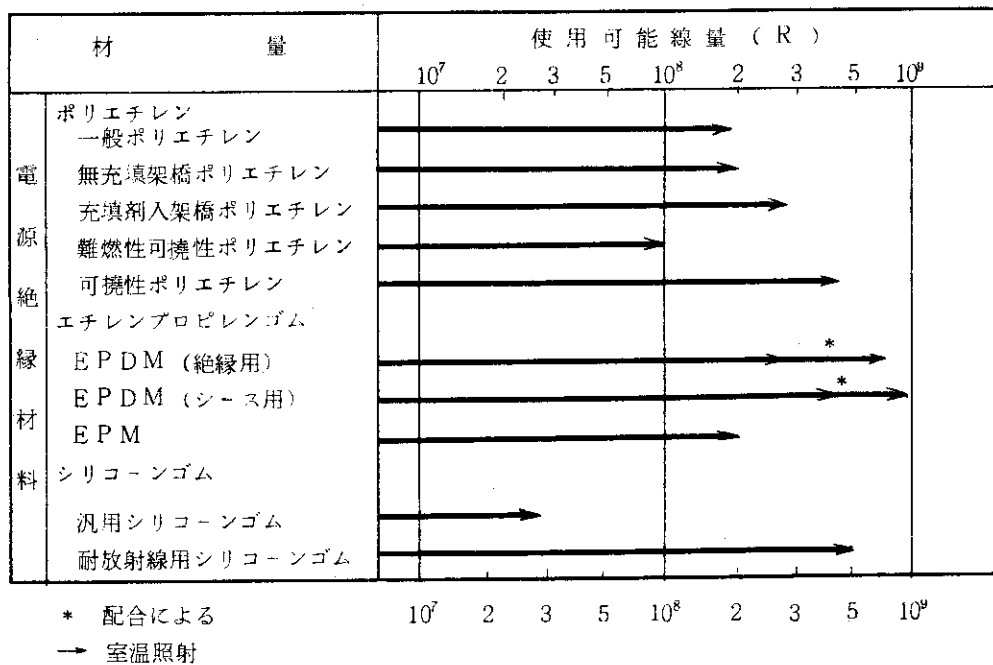


Fig. 7. 電気絶縁材料の耐放射線性評価

以上の結果は、照射期間、測定方法などの制約から大部分の実験は、試料厚さ1mm、線量率 $2 \times 10^5 \sim 2 \times 10^6$ R/h についてのみ行なっているに過ぎない。これらの材料が実際に使用

* IEC 15B Draft (Jan, 1976)では照射劣化にともなう機械的性質及び電気的性質の基準を定めており、ここで問題とする「伸び」に関して、剛性材料には2%、ゴム材料には100%の伸び残率をとることを勧告している。

される条件が上記の条件と著しく異なるときには、材料の形状、使用温度、雰囲気などを含めて酸素の拡散に有利な条件であるほど材料の劣化が著しくなることを考慮し、十分な安全率で以って材料を選定することが必要である。また、材料の劣化に及ぼす線量率の影響は各種材料について必ずしも一様でなく、それぞれの化学組成配合などによって異なる。しかし各材料についてどの程度の安全率を見積るのが妥当であるかは以上の研究のみから結論することは難しい。

4.3 LOCA 模擬試験による原子力発電所用ケーブルの耐放射線性

原子力発電所で現在作動している各装置は、すべて発電所の運転が続くかぎり、安全にして信頼性のある機器性能を保持できるように設計されている。1E^{*}級ケーブルには、原子炉格納容器内の一次系冷却材喪失、あるいは発電所内の火災、地震などの災害事故にともなう行われる原子炉の緊急閉鎖、格納容器の封じ込め、ケミカル・スプレーによる炉心の冷却化、容器内の除熱に対して必要、また周囲環境への重大な放射性物質の放出を防止するのに必須の諸性能を明らかにしている。米国においては、数年来この問題に関連して種々の原子力発電所諸設備に対して有効かつ実用性のある型式試験 (Type Test) を検討してきた。

この節では、1E級の電力および制御ケーブルの性能認定試験を行なうために豊富なる運転実績と能率化の立場で種々検討を重ねて作られた最新の合理性のある性能認定試験プログラムの一例を紹介するとともに、実際にこのプログラムに従って行われたPWRおよびBWR型両原子力発電所用のケーブルの性能試験の結果について述べる。(このテストプログラムは、原子力発電所で使用する電気機器一般とその部品およびケーブル類・コネクタ類の型式試験のために、米国のFranklin Res. Inst. Lab. Phila. で1972年後半から採用している。)

4.3.1 試料内容

性能認定試験に用いたケーブルの構成は、

a) 制御ケーブル

7/C, #AWG, 7/W, 錫めっき銅導線, 絶縁体は厚さ30milのエチレン・プロピレンゴム, シースは厚さ15milのクロロスルホン化ポリエチレンをアスベストテープで巻きつけ, さらに厚さ60milのクロロスルホン化ポリエチレンで被覆した。

b) 低電圧電力ケーブル

i) No 12, AWG, 7/W, 錫めっき銅導線, 絶縁体は厚さ30milのエチレン・プロピレンゴム, シースは厚さ15milのクロロスルホン化ポリエチレン

ii) No 2, AWG, 7/W, 錫めっき銅導線, 絶縁体は厚さ45milのエチレン・プロピレンゴム, シースは厚さ15milのクロロスルホン化ポリエチレン

c) 中電圧電力ケーブル

No 2, AWG, 7/W, 銅導線, 半導体性燃り構造体を押し出しシールド, 絶縁体は厚さ90

* 1E級とは、IEEE-std. で、炉の緊急停止、格納容器の封じ込め、炉心冷却及び炉と格納容器の除熱、その他周辺環境へ放射性物の放出を防止するために必要な電気機器および系統の安全上の区分

milのエチレン・プロピレングム、シースは厚さ75milの塩素化ポリエチレン

有機化合物は、原子炉からの放射線や温度、化学薬剤などの劣悪環境による損傷に対して敏感で、上述の使用環境条件に関して最適の材料としてEPDM, CSPE, CLPEなどのゴム状ポリマーを選び、とくに原子力発電所用ケーブル材（魅力のある高分子複合体）として、絶縁用にはエチレン・プロピレングム、シース用にクロロスルホン化あるいは塩素化ポリチレンを選定した。

4.3.2 正常運転およびLOCA模擬試験前後のテスト

採用したテストプログラムは、以下の3状態に分類する（Fig.8）。

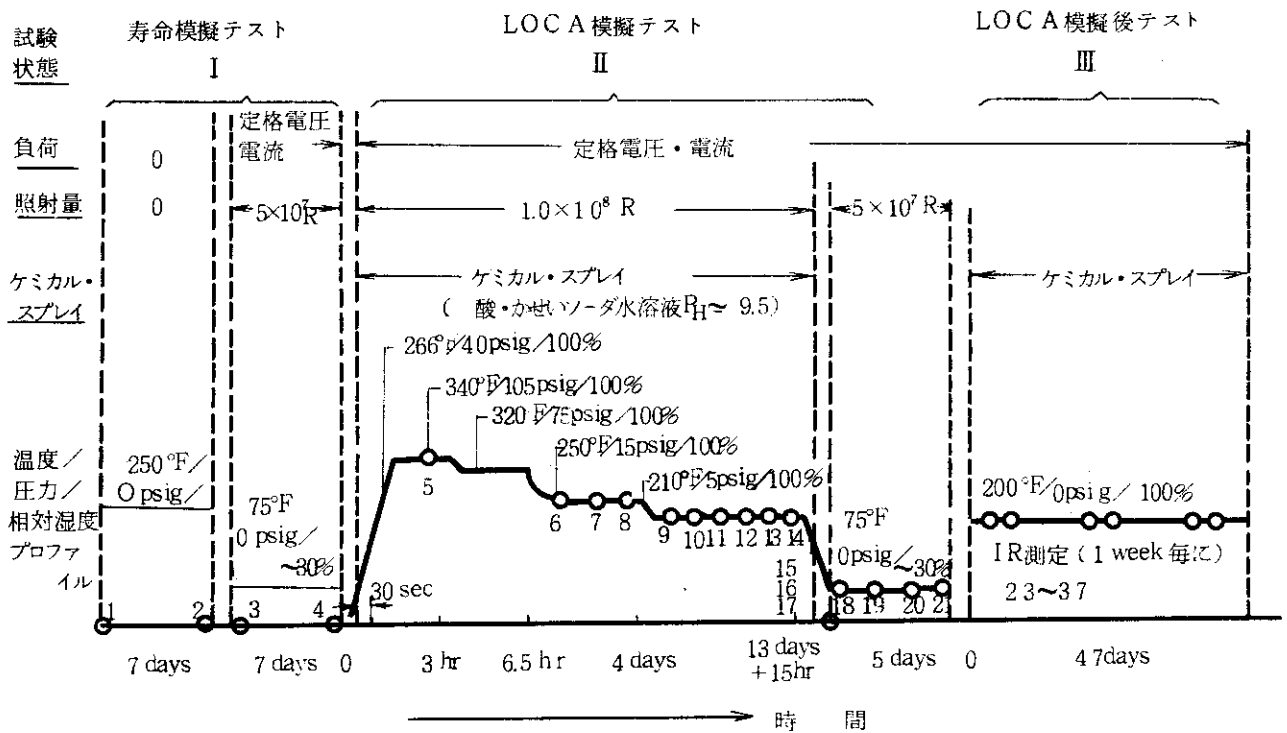


Fig. 8. テストプログラム

状態1. 正常運転シミュレーション

- i) 熱老化……ケーブルの熱老化を促進して、ケーブル被覆材料の長時間老化試験を模擬する。7日間、250°F、循環式空気オープン中で老化を行なう。
- ii) 照射……正常運転では耐用寿命を40年間保証することが要請されるので、線量率は $1 \times 10^8 \text{ R/h}$ 以下にして全線量は $5 \times 10^7 \text{ R}$ (BWR)

状態2. 一次冷却材喪失事故 (LOCA) のシミュレーション

- i) γ 線照射、高温、高圧で14日間スチームおよびケミカル・スプレイの環境条件下に曝露。この状態における全線量は $1 \times 10^8 \text{ R}$ となり、最終的には $1.5 \times 10^8 \text{ R}$ (PWR) の線量になる。
- ii) γ 線照射 $5 \times 10^7 \text{ R}$ が追加され、最終照射量は $2.0 \times 10^8 \text{ R}$ となる。

状態 3. LOCA 試験後の環境シミュレーション

LOCA にともなって生ずる炉心の除熱をはかるためにケミカル・スプレイを行なう。7 週間、200°F、100% R.H. (相対湿度) の環境下にケーブルをさらす。

状態 1 を除いては、テスト期間中のケーブルはすべて課通電状態におかれている。

4.3.3 試験結果および考察

1) 熱老化および耐放射線性試験から (実用) 寿命の予想

短時間の熱老化試験から長時間の耐用寿命を推定するのは仲々困難であるが、ここでは Whiteman らの絶縁体の使用温度における耐用寿命を評価するため示唆した Arrhenius プロット法を採用した。結果は Fig. 9 のようになる。一般にケーブルの寿命は試験時間を節約するために熱老化を使用温度よりかなり高温で行ない、原試料の切断伸びの 40%、または 80% の伸び残率に到達する時間を使用温度まで外推して求めている。ここでは正常運転で耐用寿命を全うした直後に LOCA が起きても、なおそのケーブル機能を保持することが好ましいという立場で 150 ± 50% 範囲の高い切断伸びの絶対値を基準にとっている。

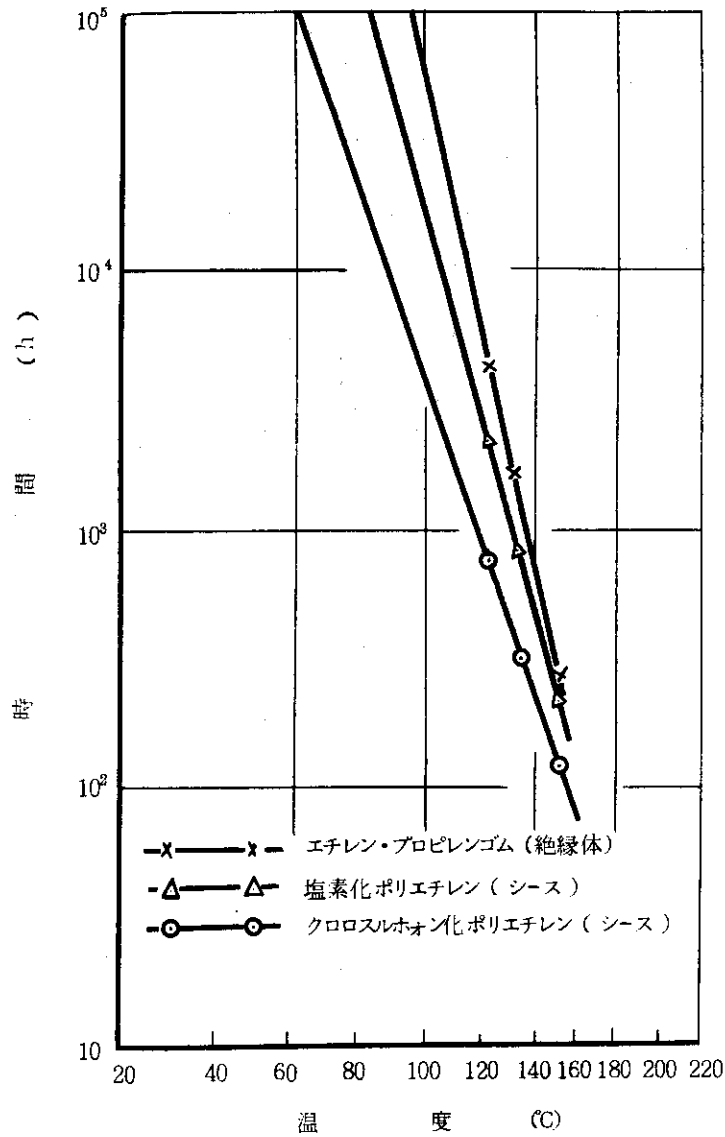
一般に EPゴム、CSPE、CLPE などの耐放射線性は、Fig. 10 にみるように切断伸びの劣化状況から判断すると他の材料に比べて秀れている。熱老化性と耐放射線性を複合した劣悪環境においてケーブルの耐用寿命の評価を行なった実験結果は数少ない。問題は Arrhenius プロット法が上述の組合せ環境下での寿命の推定にも適用できるか否かである。勿論このアプローチは理想的であるので、1E 級ケーブルの寿命を推定する前に広い温度域および線量域で真のケーブルの照射効果を検討する必要がある。

2) 冷却材喪失中、および冷却材喪失後の試験

上述したように、この性能認定試験は PWR と BWR の両方の運転状態を模擬するように設計されている。したがって LOCA 模擬の共通試験プログラムは夫々の発電所の運転条件よりもかなり厳しい。このような組合せ劣悪環境条件で行われるシミュレーション法は、一般のケーブルの性能認定試験に用いられている連続試験法に比してかなり厳しい環境条件におかれるので、ケーブルの耐用寿命を評価するのに最も適切である。Fig. 11 にケーブルの LOCA 模擬試験を行なう代表的な装置の概略図を示す。この試験装置は、同時に γ 線照射、高温スチームおよびケミカル・スプレイの各環境条件にケーブルをおくこともでき、かつケーブルの各劣化試験を課電状態で行ない得る。

3) 電気的および物理的性質

テストプログラムの種々の段階における各ケーブルの電気的性質は、正常運転、LOCA および除熱後の試料の履歴に従って誘電率、誘電損失および絶縁抵抗が変化する。最もよい性能を示した 5 kW 電力ケーブルの結果を Table 11 に示す。電気的性質の変化は単一導線ケーブル上に沈殿する苛性ソーダと硼酸の量や、厳しい環境下での構成ケーブルの材質の変化に影響される。Table 12 のデータは絶縁体およびシース材のフィルム試料の機械的特性を室温下で求めた結果を示す。劣化損傷の著しい環境条件は LOCA (1×10^8 R 照射下) で、最初の 5×10^7 R 照射でも切断伸びの低下は大きい。またフィルム試料と同様に一連の環境劣化試験を行なったケーブル材の機械的性質の変化は、



(絶対温度スケールの逆数)

Fig. 9. 熱老化性の Arrhenius プロット

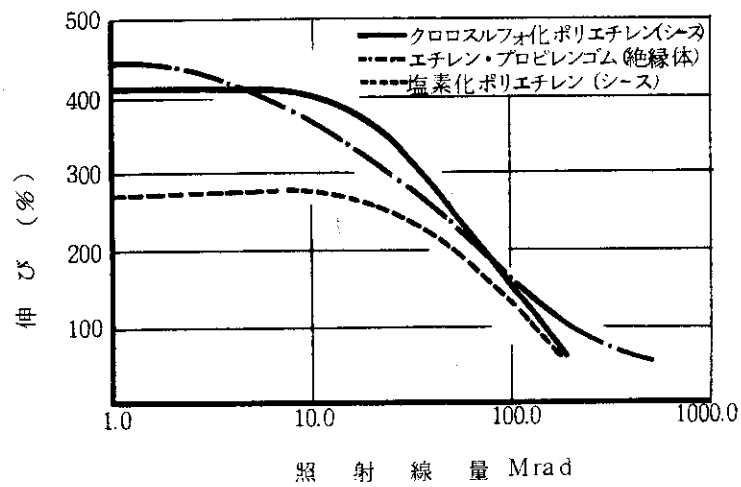


Fig. 10. 各種材料の切断伸びの γ 線照射による変化

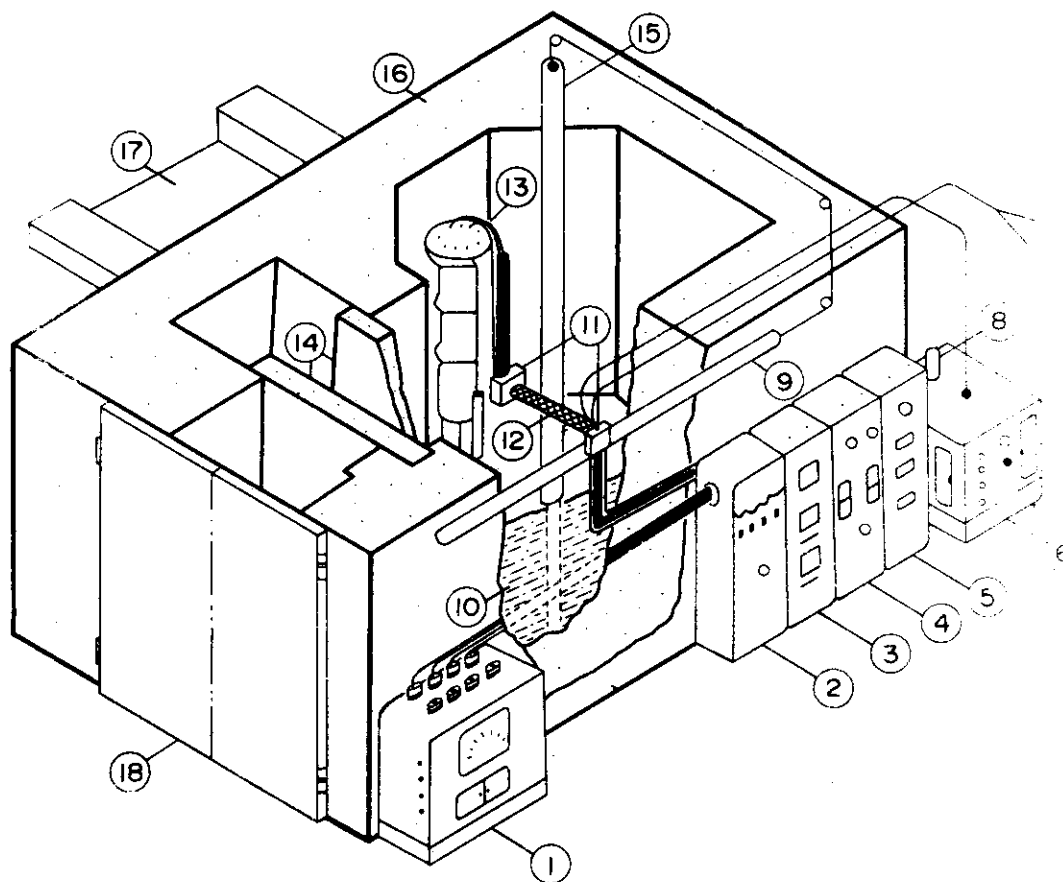


Fig. 11. 課電ケーブル用のLOCA模擬試室の概略

- ①変圧器, ②供給側電力(電流および電圧計), ③被試験ケーブルの端子, および運転スイッチ,
 ④電圧計(2900及び480Vの電圧用抵抗器), ⑤高圧釜容器(圧力計, 温度記録計, 熱電対用接点,
 バンドヒーター), ⑥蒸気発生機, ⑦ボロン酸水溶液のターボ式ポンプ(pH9.5になるようにNaOH
 でボロン酸を調製する。従ってケミカル・スプレイ溶液はボロン酸濃度が3,000ppmとなる)
 ⑧ボロン酸用流量計, ⑨線源で昇降するための空気式シリンダー, ⑩Co-60γ線源, ⑪孔保護用
 鉛ブロック, ⑫ケーブル, 配管, 熱電対各リード線はすべて5"φの孔を通る) ⑬スチーム/
 ケミカル・スプレイ用容器とケーブルの格納容器, ⑭厚さ8"のステール扉, ⑮線源昇降用扉,
 ⑯コンクリート/ステール複合体から成る遮蔽壁(コンクリート壁60"の厚さと等価), ⑰線源を収納
 する深さ19"の水プール, ⑱厚さ2"のステール扉

Table 11. ポリマー材料の特性

	エチレン-プロピレン ラバー (絶縁体)	クロロスルホン化 ポリエチレン (シース用)	塩素化ポリエチレン (シース用)
引張り強さ, Psi	1,120	2,300	1,550
伸び率 %	460	430	260
<u>熱老化性</u>			
(121°C, 168 hrs)			
引張り強さ (Psi)	110	108	110
伸び率 %	90	68	78
<u>電氣的性質 (室温)</u>			
SIC	3.3	6.5 *	...
PF	0.7	1.6 *	...
IRC	35,000	5,000 *	...
<u>オゾン抵抗性</u>			
(0.025-a 0.30% conc.)	亀裂を生じない	亀裂を生じない	亀裂を生じない
168 hr 曝露			
<u>75°Cにおける吸水率</u>			
○電気法より			
△誘電恒数			
24Kg 浸漬後	3.1	7.5 *	
1~14日間	0%	1.5% *	
7~14日間	0.3%	0.8% *	
△誘電損失			
24時間浸漬後	0.8	5.5 *	
14日間後 安定性	0.1	0.5 *	
○重量法より			
7日間浸漬			
Mg/in ²	2	5	15
<u>冷間曲げ</u>			
-40°C	合格	合格	合格

* - この値は #14 AWG の被覆銅導線から測った。

項目 試料	ケーブル		フィルム	
	引張り強さ (psig)	伸び (%)	引張り強さ (psig)	伸び (%)
EPゴム (絶縁用)	900	50	356	50
CSPE (シース用)	1,699	45	1,074	40
CLPE (シース用)	1,990	35	1,329	35

のようになり、フィルムとケーブルでは試料片の形態的特長や雰囲気などの環境条件による影響が両者で異なることがわかる、すなわち環境劣化期間中フィルム試料は電氣的応力をうけず、一方のケーブル絶縁体はシースで保護されるので直接空気、湿気およびケミカル・スプレイにさらされることはない。したがって、フィルムの引張り強さはケーブルより低下するが伸びはほとんど変わらない。

4) 難燃性試験

原子力発電所で起こるケーブルの火災事故は重大な結果をもたらすという見地からケーブルの難燃性の評価を試みた。

短い単導線の規格試験 (UL法) で行われている水平および垂直方向から、ケーブルの燃焼性を評価する方法は、データのバラツキが大きい。また某電灯会社の採用したケーブル集団の Vertical tray 法は、ケーブルの実情に即した試験法であるが、炎の形状が燃焼データに直接影響を及ぼし、データの再現性は難しい。これを改善するために常に一定の炎の形状を保つようにプロパンガスバーナーを用いたところ非常に良好な成績が得られた (Table 13)。ケーブルの燃焼試験に関連する別の問題は、この試験で塩素化合物の副生成物を生ずることである。熱分解および燃焼試験は 300~350°C の範囲で行なうとこれらポリマ組成物から HCL が発生し、これが大気中に逸散しないうちに一部の HCL は放射化する。この放射化は炎の温度に依存する。(因みに CSPE および CLPE の塩素含有率は重量分率で夫々 12.7 および 13.2% である)。燃焼試験では HCL 以外に水や CO₂ ガスを得る。

4.3.4 結論

- 1) こゝで用いた LOCA 模擬試験中あるいは試験後のケーブル試料の機械的性質や電氣的性質の測定結果から、絶縁体には EPゴム、シースには CLPE または CSPE を用いた絶縁ケーブルが原子力発電所で遭遇する正常運転および冷却材喪失事故後の温度、蒸気圧、湿度、ケミカル・スプレイ、高照射線量の各状態におかれても、十分満足する性能を発揮する。
- 2) こゝで検討した絶縁ケーブルは高度の難燃性をもつ。
- 3) 1E級ケーブル性能を認定するため採用した (劣悪環境条件を組合わせた) LOCA 模擬試験は逐次試験法よりも一層ケーブルの耐久性能を明らかにする。

* 1975. 3. 22 に米国アラバマ州の Tennessee Valley Authority's Browns Ferry Nuclear Plant で起きたケーブルの火災事故は、関係者一同に大きな教訓を与えた。(weekly energy report, vol.13, No.13-March 31, 1975 より)

- 4) Arrhenius プロット法を用いて、熱老化性と耐放射線性の組合わせた試験結果から正常使用寿命を評価することが正しいか否かは今後検討する必要がある。

Table 12. ポリマー材料の物理的諸性質 (フィルム材)

	エチレン-プロピレン ラバー (絶縁用)	クロロスルホン化 ポリエチレン (シース用)	塩素化ポリエチレン (シース用)
○引張り強さ, Psi	1 1 4 8	1 9 5 0	1 4 5 4
伸 び %	4 5 4	4 0 0	2 6 4
○121°C, 7日間熱老化後			
引張り強さ, Psi	1 1 8 0	1 9 7 4	1 5 1 8
伸 び %	4 2 0	3 1 2	2 3 0
○ 5×10^7 Rad, 照射後			
引張り強さ, Psi	9 2 5	2 1 0 6	2 8 6 2
伸 び %	2 2 6	2 0 2	9 6
○LOCA後 (1×10^8 Rad 照射を含む)			
引張り強さ, Psi	4 9 3	1 4 6 5	1 6 3 2
伸 び %	7 4	5 0	4 0
○ 5×10^7 Radの追加照 射後			
引張り強さ, Psi	7 9 1	1 2 0 8	1 3 3 6
伸 び %	1 0 0	5 0	3 5
○Post LOCA後			
引張り強さ, Psi	3 5 6	1 0 7 4	1 3 2 9
伸 び %	5 0	4 0	3 5

Table 13. ポリマー材の酸素指数 (ASTM法による)

	エチレン-プロピレン ラバー (絶縁用)	クロロスルホン化 ポリエチレン (シース用)	酸素化ポリエチレン (シース用)
原 試 料	2 3	3 1	3 0
121°C, 7日間老化後	2 3	3 1	2 9
5×10^7 Rad 後	2 3	3 1	3 0
LOCA後	2 6	3 5	3 2
5×10^7 Rad追加照射後	2 7	3 5	3 3
除熱後 (Post LOCA)	2 7	3 2	3 3

5 文 献

この論文を作成するにあたり、以下の文献を参考にしたことを記す。

1. Insulation & Jackets for Control and Power Cables in Thermal Reactor Nuclear Generating Station; IEEE, Trans. Power Apparatus & System, Vol. 88, 529 (1969) by R.B. Bodgett & R.G. Fischer
2. 電気絶縁材料等の耐放射線性の評価 (未発表) 1972, 田村, 大島, 景山, 阿部, 栗山, 中村
3. The Struggle with Nuclear Power Standards; IEEE Electrical Insulation Confer, 1973, by A.J. Simmons
4. Type Tests and Qualification of Class 1E in Cables for Nuclear Power Generating Station; IEEE Nuclear Power Eng. Comitt. C74, 61-4, (1974), by B.Gardner
5. Qualification of Power and Control Cables for Class 1E Applications; ibid, C74, 045-1 (1974), by T.H. Luig & W.F.Morrison
6. 放射線と高分子, (1961) 槇書店, 篠原, 柏原共著
7. IEEE Std.
 No 278(1971): USA and IEEE Guide for Classifying Electrical Insulating Materials Exposed to Neutron Gamma Radiations.
 No 308(1971): Criteria for Class 1E Electric Systems for Nuclear Generating Stations.
 No 323(1974): IEEE Stds. for Qualifying Class 1E Equipments for Nuclear Generating Stations.
 No 334(1974): IEEE Trials-Use Guide for Type Tests of Continuous-Duty Class 1. Motors Installed in Side the Containment of Nuclear Generating Stations.
 No 383(1974): IEEE Stds. for Type Test of Class 1E. Electric Cables, Field Splices and Connections for Nuclear Generating Stations.

第2編 原子力発電所用電線絶縁材料の耐放射線性

まえがき

この研究題目で去る5月27日(1975)に電気学会、絶縁材料研究会の資料(EIM-75-21)として発表した*)。その内容は、既に発表した「耐放射線性電気絶縁材料の開発」(IEEE-383規格を対象としたケーブル材料の開発)の研究成果を発展させて、実用ケーブルを試作し、ケーブル用LOCA模擬試験法や垂直トレイ燃焼試験法を適用し、ビニール系シース・ケーブルがBWRなどの原子力発電所ケーブルとして使用することの困難であることを明らかにしたものである。

1 緒 言

石油に代る新しいエネルギーとしては原子力エネルギーが最もすぐれたものであり、今後原子力発電の占める地位が益々重要となろう。この原子力発電所には、水力あるいは火力発電所におけると同様に多量の電線ケーブルが使われるが、これらのケーブル仕様は、その安全性からとくに信頼性の高いものが要求されている点で他のケーブルと異なっている。

ここにいうケーブルの信頼性とは、単に使用状況において所定の性能を定められた寿命期間発揮し続けるというだけでなく、万一不慮の事故に遭遇した場合でもケーブルの機能を確保することである。このように極端にきびしい要求は、その事故の内容によっては大災害となることが予想されるからである。

この厳しい要求を具体化したものが、IEEE Std. 323およびIEEE Std. 383であり、最近他の原子力発電所関係の規格とともにこれらも益々厳しい内容に書きかえられている。たとえば、40年という原子炉の寿命末期に、万一LOCA(Loss of Coolant Accident, 冷却材喪失事故)に遭遇しても、その影響が限定された範囲内にとどまるように、また事故中もある期間正常に作動するように関連する機器や材料に対して要求されている。また、火災の場合でも難燃化処理で延焼を防ぎ、かつ有害ガスを発生しない低煙害性などの性能が要請されている。

これまで有機材料の耐放射線性の研究が盛んに行われ、ほとんどの電線用絶縁材料の放射線雰囲気における使用限界線量のデータが揃っている。しかし、上述したような安全性の確保という厳しい要求、たとえば熱劣化、放射線劣化、高温水蒸気劣化の組み合わせられた環境条件における耐久性のデータは全く不足している。ここでは、各種絶縁材料の耐放射線性およびLOCAを含めた劣化条件に耐えるケーブル材料の開発のため行なった実験結果について報告する。

第2編の筆者は、栗山 将，早川直宏，中瀬吉昭(日本原子力研究所)

川和田七郎，小椋二郎，笠井耕一，大西隆雄(日立電線KK)

*) 電気学会より転載の許可を得た。

2 絶縁材料の耐放射線性

絶縁材料の耐放射線性については、O.D.Bopp, O.Sisman らの膨大な研究を始め、多くの報告がある¹⁾。

我々も電線用プラスチックおよびゴムについても検討し、Fig. 2.1 のような評価を行なっている^{2,3&4)}。この図からもわかるように放射線単独の環境では、 10^8 RにおいてもEPゴム、化学架橋ポリエチレンなどはかなりの特性を残して十分使用に耐える。たとえば、Fig. 2.2 及び3は化学架橋ポリエチレンの放射線照射による特性変化であるが、概して強度低下が少なく、電気特性も高度の値を保っている。その照射劣化は十分安定化してさえあれば 1×10^8 Rでも中程度である。Fig. 2.4 は、ビニールの劣化状況を示したものである。軟質ビニールは照射による機械的性質の劣化が意外に少なく $3 \sim 6 \times 10^7$ R で架橋が進むため、むしろ改善さえみられる。しかし電氣的性質は 3×10^7 R ですでに著しい低下がみられる。たゞしこれらは放射線のみによる劣化で、これにLOCAの条件が加わると機械的特性の劣化も著しく劇しくなるが、これに関しては後述する。EPゴムの結果はFig. 2.5 に示した。 5×10^8 Rでなおかなり高い引張り強さと伸びを保っており、電気特性の低下も少なくゴムの中で最も耐放射性に富む部類に入る。

先にもふれたように原子力発電所の特定の場所に使われる電線ケーブル材料は、まず難燃性でしかも放射線ばかりでなく、熱-放射線-高温水蒸気の組合わされた環境下で高度の性能を保持することが要求される。難燃性はハロゲンを含むポリマーがすぐれているが、クロロプレノンゴムやクロロスルフォン化ポリエチレンは耐放射線性がそれほどよくない。しかしこれは配合によって、さらに改善することが可能であり、それに関しては後でふれる。

Fig 2.1 電線用ゴム・プラスチック材料の耐放射線性

材 料	使用可能線量 (R)					備 考
	10^5	2×10^6	4×10^6	2×10^7	4×10^7	
ゴ ム	天然ゴム	-----	-----	-----	-----	引張強さ減少大、オゾン亀裂 オゾン亀裂 軟化 硬化大 ρ 低下大、硬化 機械特性低下
	スチレン・ブタジエンゴム	-----	-----	-----	-----	
	ブチルゴム	-----	-----	-----	-----	
	EP ゴム	-----	-----	-----	-----	
	クロロプレノンゴム	-----	-----	-----	-----	
	ハイパロン	-----	-----	-----	-----	
	シリコーンゴム	-----	-----	-----	-----	
プ ラ ス チ ク	ウレタンゴム	-----	-----	-----	-----	} 電気特性低下(特に高温) 脆化 電気特性低下大、伸び低下大 脆化
	ポリエチレン	-----	-----	-----	-----	
	架橋PE (一般)	-----	-----	-----	-----	
	架橋PE (可撓性)	-----	-----	-----	-----	
	ポリプロピレン	-----	-----	-----	-----	
	ビニル	-----	-----	-----	-----	
	四フッ化エチレン樹脂	-----	-----	-----	-----	
ポリエステル	-----	-----	-----	-----		
ナイロン	-----	-----	-----	-----		

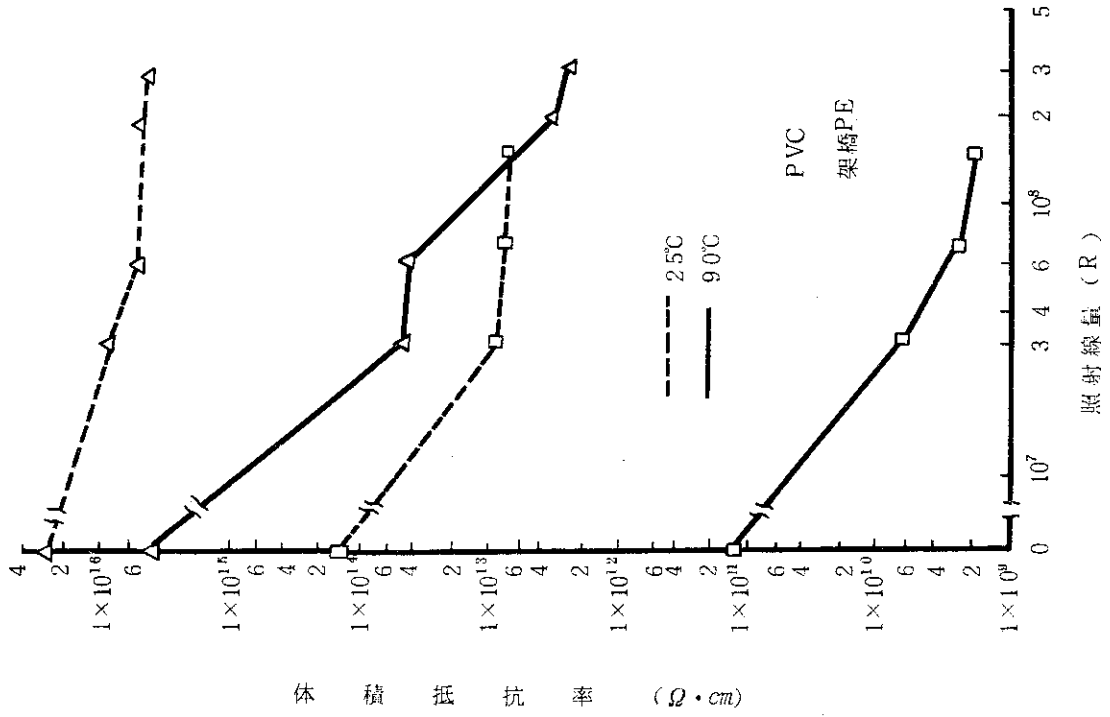


Fig. 2.3 照射による体積抵抗率の低下

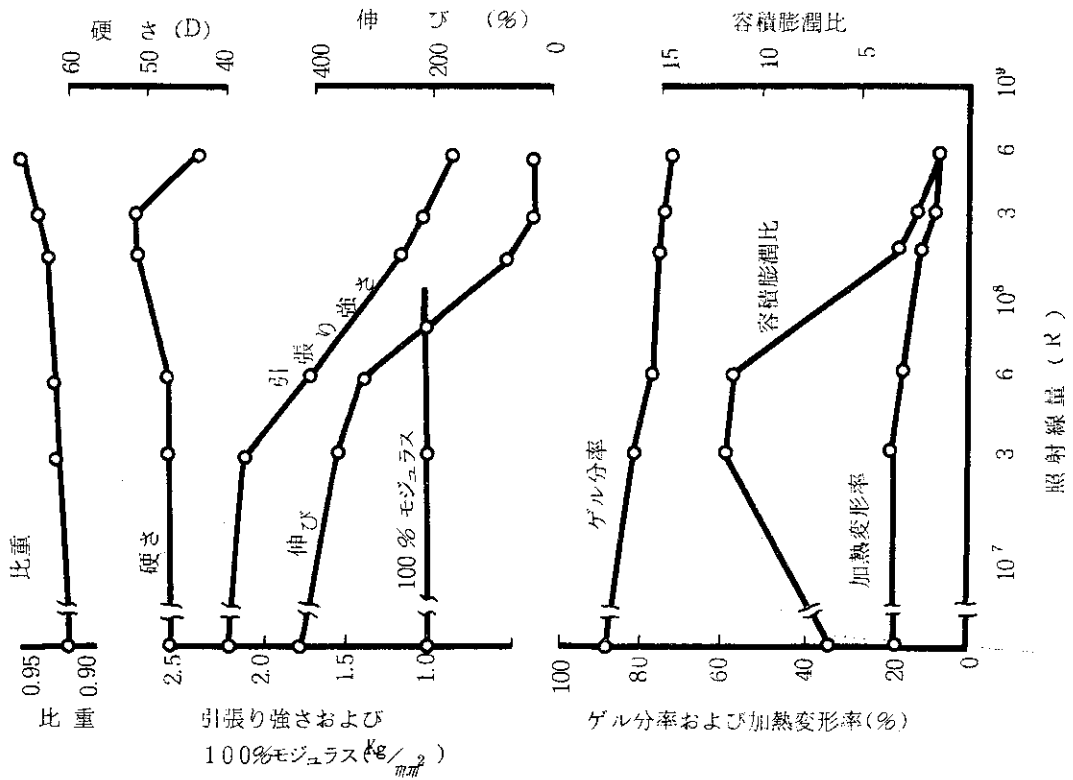


Fig. 2.2 架橋PEの照射による劣化特性

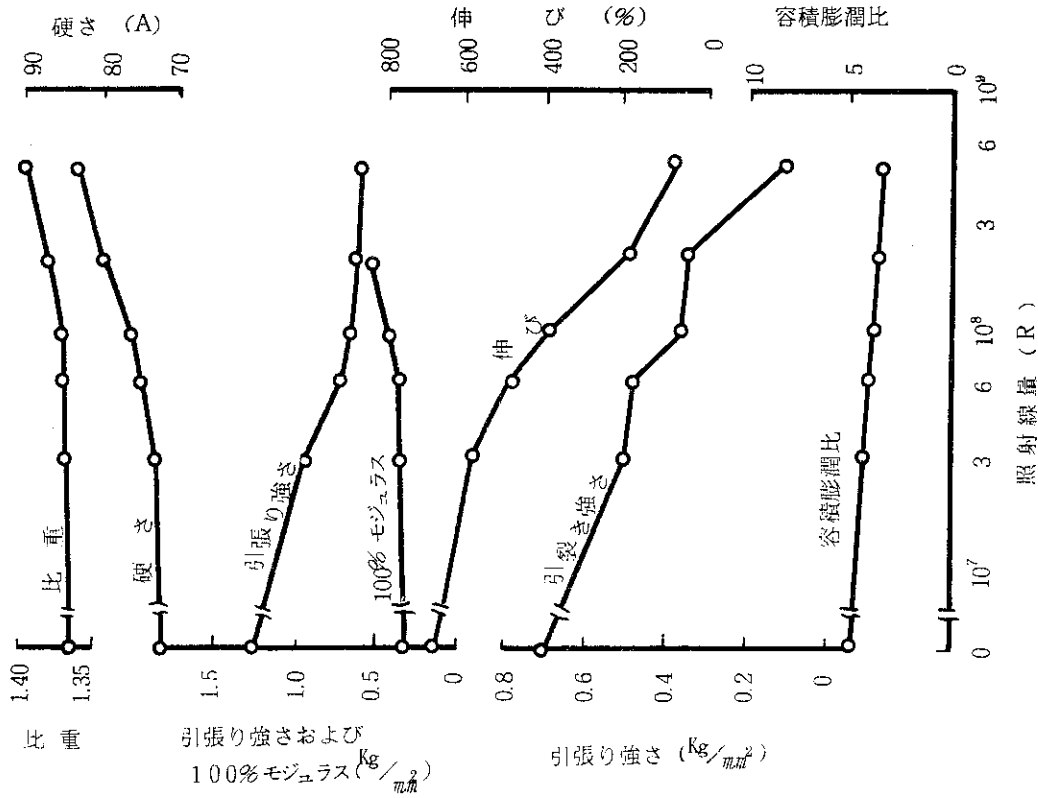


Fig. 2.5 EPDMの照射による特性劣化

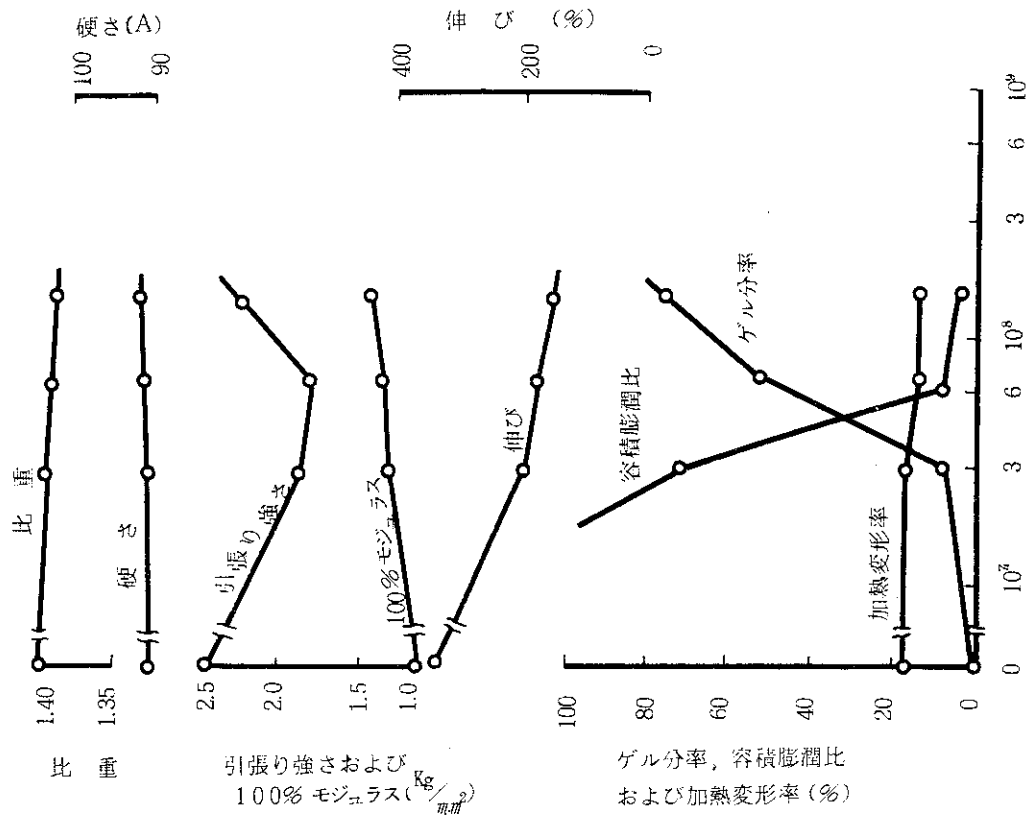


Fig. 2.4 ベニルの照射による劣化特性

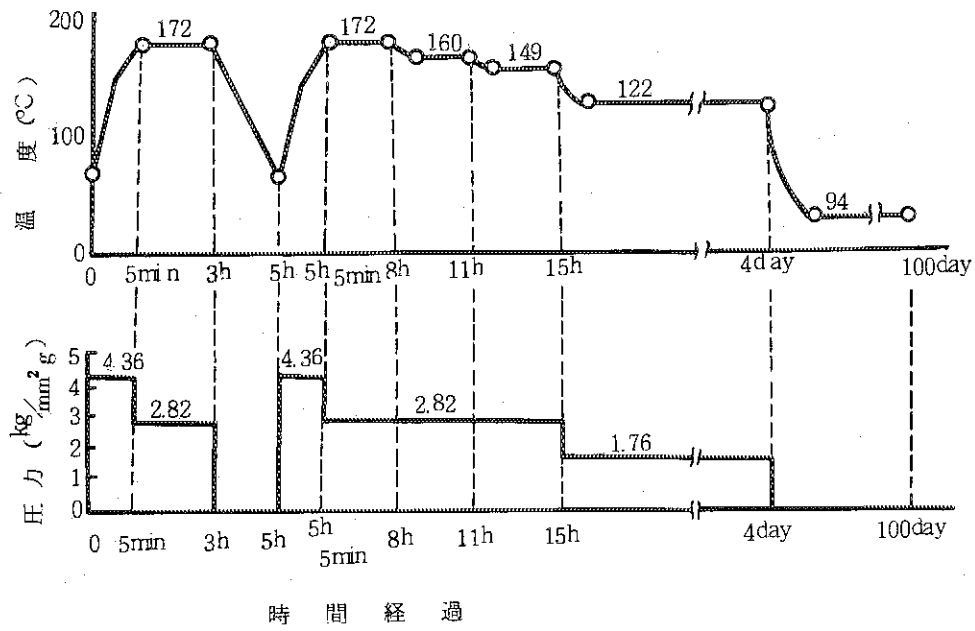


Fig 2.6 LOCA模擬条件 (115V, 23A 課電)

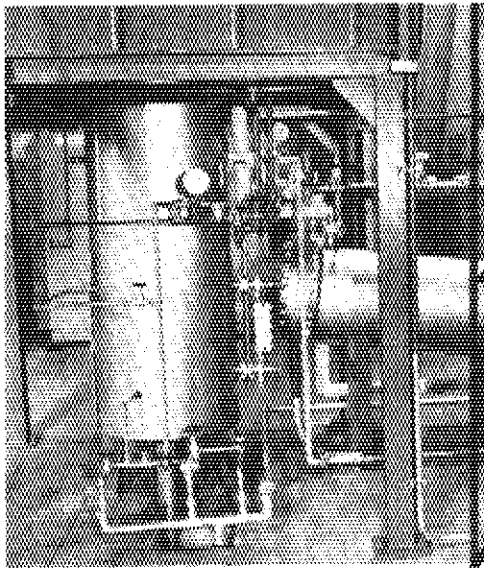


Fig 2.7 LOCA 模擬試験装置

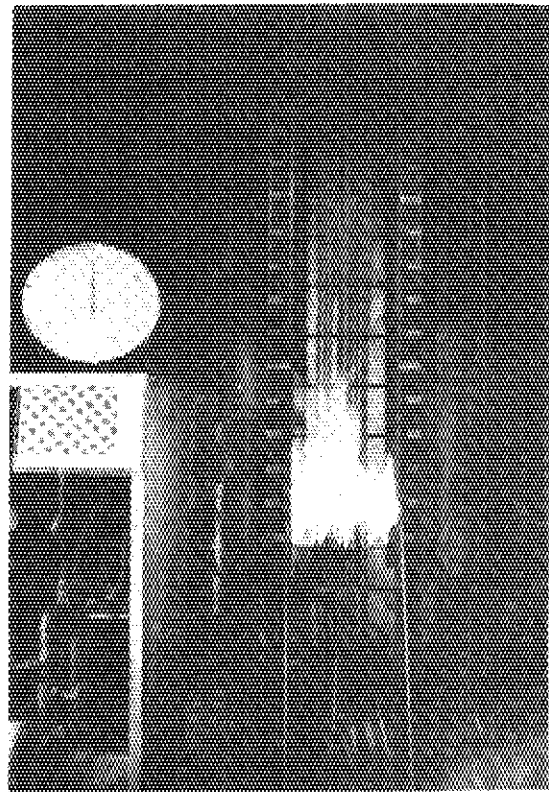


Fig 2.8 垂直トレイ燃焼試験

3 原子力発電所用電線材料に対する要求条件

ここでは原子力発電所内の第一次遮蔽外でPCV (Primary Containment Vessel) 内、すなわちIEEE Std. 308 (1974) でクラス1E系統に布設される制御、計装および電力ケーブル材料を対象とする。ドライウェル内の環境は原子炉によって異なるが、原則として最新のIEEE規格に準拠することになる。

ケーブルの一般特性は、それぞれのケーブルおよび材料に対応するIPCEA[※]規格等の工業規格に制約されているが、383規格の特長である最も厳しい型式試験は次の二つであろう。

(1) 熱-放射線-水蒸気の組み合わせ劣化試験

布設寿命(40年)に相当する促進老化試験→ 5×10^7 R, γ 線照射(線量率 1×10^6 R/h以下)→LOCA模擬試験(Fig. 2.6&7)

通常運転による布設耐熱寿命40年間を保証するためには、136℃を含む3点以上のデータからArrheniusプロット法によることが推奨されている。しかし今まで報告された例をみると、そのほとんどがIPCEAの促進熱老化条件121℃, 168hを採用している^{5,6&7)}。放射線性照射量は383規格2.3.3.3項に 5×10^7 Rが定められている。

(2) 垂直トレイ燃焼試験

図8に金属製ラダートレイによるケーブルの燃焼実験の様態を示す。火源としては、プロパンガス等により、火炎温度1500°F(約815℃)で20min, 燃焼し続けたあとでも自己消炎して、トレイの高さ一杯まで延焼しないことが規定されている。

※ Insulated Power Cable Engineers Association

4 熱-放射線-水蒸気(シリーズ)組合わせ模擬条件による劣化

4.1 ビニール・シースの検討

ビニールは通常のケーブル用途においては、バランスのとれた特性を兼ね具え、かつ経済性もすぐれているため広範な用途に使用されている。しかし、本質的には、(1)熱可塑性である、(2)塩素を多量に含む、(3)エステル系可塑剤を多量に加えて実用に供するためにIEEE Std. 383の1E系統のケーブル材料としては問題がある。ここでは3種のビニール〔一般ビニール、超耐熱ビニール(分子量が大きい)および低煙害ビニール〕を施した架橋ポリエチレンの絶縁ビニール・シースケーブルについて、IEEE 383規格に準じた試験を行なった結果をTable 2.1に、その劣化状況例をFig. 2.9に示した。

ビニールに上述のように電気特性の照射劣化が大きい、機械的特性における耐放射線性はすぐれている。耐熱性もとくに超耐熱ビニールの場合著しくすぐれている。

問題は、放射線劣化にLOCA条件における高温水蒸気劣化を重畳した場合である。照射劣化によりポリマーが変質し、またエステル系可塑剤が加水分解して硬化あるいは脆化して亀裂に至るとか、低煙害化处理したビニールは塩酸捕獲剤としてアルカリ土類塩などを加えているが、これが使用条件において水に可溶性塩化物に変化するとLOCA環境で著しい膨潤あるいはクラックを生じやすくなる。これはFig.2.9の劇しい劣化をよく説明できる。このような結果から、ビニールはLOCA環境を含む条件で十分な信頼性を付与することがかなり困難であると判断できる。

4.2 架橋ポリマー材料の検討

LOCA環境を含む条件に耐える材料として色々のものが考えられるが予備的検討の結果、つぎに示す幾つかの架橋ポリマーを選んだ。絶縁体としては電気的特性にすぐれ、使用絶縁条件にも比較的耐える点で架橋ポリエチレンおよびEPゴムをとりあげた。制御ケーブルのコア-絶縁体にはULの垂直燃焼試験に適合する難燃化配合とした。シースについては、難燃化が容易である点からクロロスルホン化ポリエチレン、塩素化ポリエチレンおよびクロロプレナムゴムを選んだが、Fig.2.1においてもクロロプレナムゴムの耐放射線性が十分でない、これらを改善することにした。以下これらのポリマー材の組合せ環境劣化に対する挙動の中で、とくに注目される点について述べる。

熱劣化、放射線劣化、水蒸気劣化のいずれの過程においても酸化防止剤の役割は非常に重要である。Table 2.2は酸化防止剤H(ケトンアミン系)、I(チオカーバメート系)の熱劣化・放射線劣化に及ぼす影響を比較した結果である。熱空気老化に対してはHが著しい効果をもつが、放射線に対しては逆にIの方がすぐれている。このことはその添加剤の作用機構の相異によるものであるが、とくにその実用配合法が重要となる。また塩素含量の異なるクロロスルホン化ポリエチレン(CSM)について検討した結果をTable 2.3に掲げたが、熱空気老化においてはC>B>Aの順であるのに対し、放射線下ではA>B=C、水蒸気下ではC>B=Aである。これもどの特性に重点をおくかでベース・ポリマーの選択が重要であることを示している。ここで組合わせ環境劣化をみると、121℃、168hでの熱老化の場合は、あまり大

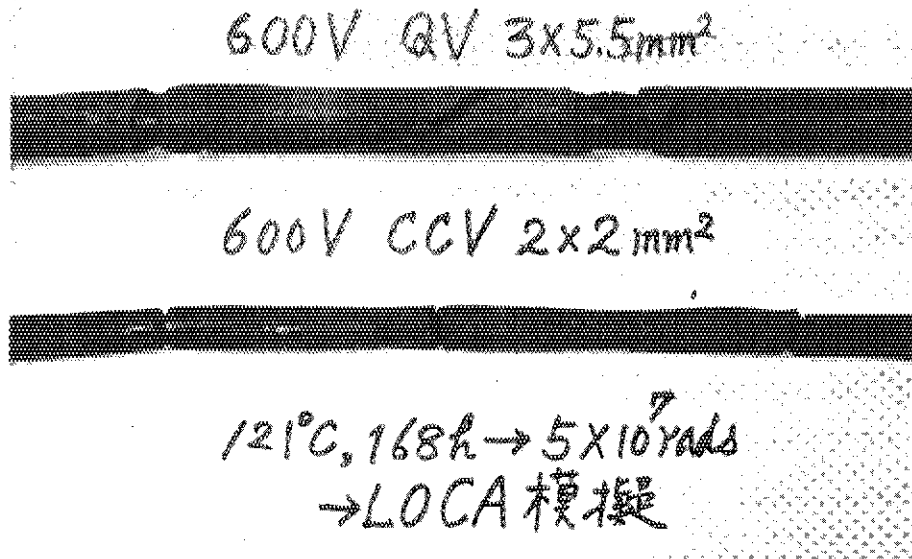


Fig. 29 ビニール・シースケーブルのLOCA模擬試験による劣化状況

Table 2.1 各種ビニールシースケーブルのLOCA模擬試験結果

シースの種類	判定
一般ビニール	不合格
超耐熱ビニール	不合格*
低煙害ビニール	不合格

* LOCA終了時、課電、通電が可能であるが、屈曲浸水耐圧試験の段階で不可となった場合もある。

Table 2.2 クロロブレンゴムにおける酸化防止剤の耐熱老化性、耐放射線性におよぼす影響

酸化防止剤	I	H
121°C, 168h	7	
TS (残率)	78	69
TE	83	66
硬さ	[+6]	[+8]
5×10 ⁷ R		
TS (残率)	32	41
TE	35	50
硬さ	[+15]	[+10]

Table 2.3 CSMベースゴムの塩素含量の影響

ベースゴム (塩素含有)		A (大)	B (中)	C (小)
150°C, 72h	TS 残率	72	35	48
	TE	18	35	57
1×10 ⁸ R	TS 残率	122	50	70
	TE	30	19	19
165°C (6Kg/cm ²)	TS 残率	71	64	99
	TE	102	97	98
121°C, 168h 5×10 ⁷ R ↓ 165°C, 10h	TS 残率	61	56	89
	TE	38	35	39
150°C, 72h 5×10 ⁷ R ↓ 165°C, 10h	TS 残率	測定不可	9	33
	TE		9	17

きな差はでていないが、150°C、72hr 老化したときにCSM-Aは測定不可の程度にまで崩壊してしまった。この配合は、放射線や熱によって高温水蒸気に侵されやすくなったためであり、配合剤自体のこれら環境因子に対する安定性が重大な影響を及ぼしていることを表わしている。

軟化剤、可塑剤なども、配合剤の一つであり、軟かい組成にすると放射線にはよく耐えるようになるが、LOCA条件にはマイナスの効果になることがよくみられた。

Table 2.4 はクロロスルホン化ポリエチレンの代表的加硫系について組合わせ劣化の影響をみたものである。ゴム配合において加硫系は大切な選択要素の一つであるがこの場合にはとくに重要である。この結果において、加硫剤Lの耐放射線性は最良でないが、組合わせ環境に対しては他の二つの系に比べはかるによい。放射線に対して安定なばかりでなく、湿熱環境における安定性がよいからである。これは化学的に安定なこととこの加硫系が構造的にタイトな加硫物を与え、しかも加硫時に耐水性を悪くするような生成物をつくらないことによる。

4.3 配合処方による改善

以上述べてきたように配合によって組合わせ環境劣化条件に対する抵抗性には著しい差がみられるが、これら検討の結果を総合して改善した組成物と普通のものとの比較の1例をFig. 2.10に示した。明らかに外観においても配合比による著しい差がみられ、普通のもののは脆化し亀裂しているのに対し、配合比を改善したもの(図の右側)ではほとんど変化がない。

また、ケーブルについてLOCAを含む環境条件において測定した結果をTable 2.5に示す。

Table 2.4 CSMの加硫系の影響

加硫系		L	M	N
150°C, 72h	TS 残率	3.5	2.4	3.4
	TE	3.5	1.8	2.7
5×10 ⁷ R	TS 残率	9.3	9.5	9.9
	TE	4.7	5.5	5.1
1×10 ⁸ R	TS 残率	5.0	6.0	7.2
	TE	1.9	2.9	3.4
165°C(6kg/cm ² 水蒸気), 10h	TS 残率	6.4	4.0	4.5
	TE	9.7	8.8	8.3
150°C, 72h 5×10 ⁷ R 165°C, 10h	TS 残率	9	測定 不可	測定 不可
	TE	9		

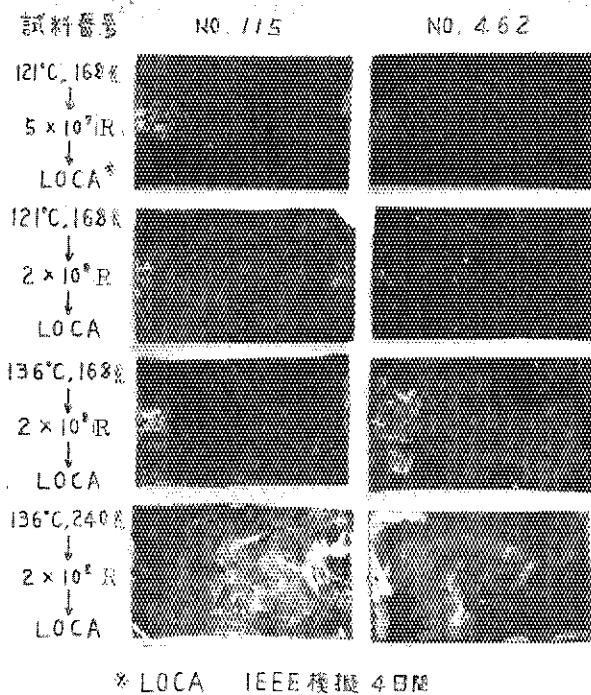


Fig. 2.10 配合処理の差による劣化状況の相異例

Table 25 CPN (特殊クロロブレンゴム) のLOCA 模擬試験結果

項目		初期値	熱老化後 (121°C, 168h)	照射後 (5 × 10 ⁷ R)	*1 LOCA後	破壊電圧	
耐電圧		2200V/1min 良			6kV/5min 良 ^{*2}	14~25kV	
絶縁抵抗 (MΩ-Km)		494	167	95.0			
材料特性	引張り強さ (kg/mm ²)	絶縁体	0.78	0.39(500)	0.47(60)	0.41(53)	
		シーズ	1.56	1.53(98)	1.21(78)	0.90(58)	
	伸び (%)	絶縁体	640	330(51)	100(16)	80(13)	
		シーズ	510	480(93)	170(33)	100(20)	

*1 Fig. 2.6の最初の4日間の試験を行なった。

*2 屈曲浸水耐電圧。

5 む す び

以上、原子力発電所用ケーブルを開発するに当って、主として絶縁材料上の問題点を述べてきたが、品質保証の方法、あるいはケーブル構造等にも多くの課題が残されている。

われわれはIEEE-383規格に適合するBWR用ケーブルを開発できたが、今後も要求条件は安全性の確保の見地から益々きびしくなることが予想され、これにかなりの裕度で以て適合するものが提供できるように努力して行きたい。

参 考 文 献

- (1) 電気学会，絶縁材料照射専門委員会：電気学会技術報告第79号（1967）
- (2) 川和田，小椋，吉川，井上：TAIC, 56, 2（1963）
- (3) 星，角田，川和田，藤田：第4回電気絶縁材料シンポジウム V-11（1971）
- (4) 栗山：“新しい電気絶縁材料”の講演予稿集（1974-11）
- (5) T.H.Ling, W.F.Morrison: IEEE PES Winter Meeting, C74, 045-1（1974）
- (6) J.W. Robertson: *ibid.*, C74, 207-7（1974）
- (7) E.E. McIlveen, V.L. Garrison, G.T. Dobrowolski: *ibid.*, T74, 044-4（1974）

謝 辞

おわりに本論文を草するにあたって、動燃受託研究内容の一部の引用に際して、心よく承認された動燃事業団の関係各位と、御指導と御激励を頂いた上田隆三理事、高崎研究所長 柴田長夫氏、同開発試験場長 重松友道氏に深く感謝します。また、熱心に討論して頂いた技術開発課の各位に対しても厚く感謝します。

(51.9.20)