

JAERI-M

9 5 8 4

軽水炉と高分子材料

1981年7月

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.

軽水炉と高分子材料

日本原子力研究所 大阪研究所

中瀬吉昭

(1981年6月30日受理)

高崎研究所開発試験場に、原子炉用電線材料健全性試験装置 (SEAMATE-II) が昭和54年8月に完成し、現在まで約1年半にわたって順調に稼動している。本試験装置の開発を昭和51年度前半に計画し、先ず SEAMATE-I を製作して、SEAMATE-II の設計・製作時に問題となる点、温度制御法、電線導入部を検討し、次に、その製作に入った。この計画と同時に、国内外の原子炉用電気機器に関する品質認定試験条件、試験規格等について現状を調査した。

本報告は、上述の調査結果、及び試験方法等に関する基礎的研究を、国際電気標準会議 (IEC) の検討項目に従って分類、解説し、今後に残された問題点等を明らかにした。

Light Water Reactor and Polymeric Materials

Yoshiaki NAKASE

Osaka Laboratory for Radiation Chemistry, JAERI

(Received June 30, 1981)

SEAMATE-II (Simulated Environmental Apparatus for Material Testing-II) has been constructed in August, 1979 at Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment, which is working quite well during one and half a year until now.

Development of SEAMATE-II was planned at earlier period of 1976, and the apparatus was designed and built in the fiscal year of 1978. Meanwhile, SEAMATE-I was used to solve the problems for constructing SEAMATE-II. During the time the qualification test condition, guide or standard for electrical equipment used in nuclear power station has been investigated extensively from data published in and out of Japan.

This report is a summary and an interpretation of qualification test conditions, testing methods, guides or standards for the electrical equipments used in light water reactors, and also data related to them. Items for the interpretation are selected from those of IEC (International Electrotechnical Commission) investigation.

Keywords: Light Water Reactors, Polymeric Materials, Electrical Equipments, Qualification Test Condition, LOCA, Guides, Standards, SEAMATE-II

## 目 次

|                                |    |
|--------------------------------|----|
| 1. はじめに .....                  | 1  |
| 2. 軽水炉格納容器内で使用されている高分子材料 ..... | 6  |
| 3. 高分子材料の使用環境 .....            | 8  |
| 3.1 通常運転時 .....                | 8  |
| 3.2 事故時 (LOCA時) .....          | 8  |
| 3.3 品質認定試験条件 .....             | 9  |
| 4. 品質認定試験・型式試験規格 .....         | 14 |
| 5. 絶縁材料の耐放射線性試験に関する規格 .....    | 17 |
| 6. 試験研究の現状と今後の課題 .....         | 21 |
| 7. おわりに .....                  | 28 |

## Contents

|                                                                                                |    |
|------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 1. Introduction .....                                                                          | 1  |
| 2. Polymeric materials used in the primary containment<br>vessel of light water reactors ..... | 6  |
| 3. Environment of polymeric materials used in the primary<br>containment vessel .....          | 8  |
| 3.1 Normal operation .....                                                                     | 8  |
| 3.2 Abnormal operation .....                                                                   | 8  |
| 3.3 Qualification test condition .....                                                         | 9  |
| 4. Standards for qualification tests and type tests<br>available .....                         | 14 |
| 5. Selection guide or classification of polymeric materials<br>for radiation resistance .....  | 17 |
| 6. Present status of research works, and future works .....                                    | 21 |
| 7. Epilogue .....                                                                              | 28 |

## 1. はじめに<sup>\*</sup>

近年の石油エネルギー危機を契機として原子力発電所の重要性が再認識されてきた。原子力施設における機器材料の健全性、信頼性の確保が原子力エネルギー開発の推進、とくに原子力発電所の建設を進める上で大きな課題となってきた。

原子力発電の主流である軽水炉の安全性については、核的、工学的な面から大型施設を用いた安全性確認試験が、原研安全性試験研究センターや原子力工学試験センターなどで数年来積極的に行われている。とくに、原子炉内、あるいは関連設備で異常事態が生じたとき、核燃料や冷却材が予想したような挙動をするかどうか、さらに異常時に対処して備えてある ECCS などの安全系装置が、その時に適切に作動するかどうか、などについて核的、構造的、また機能的に色々な面から試験研究が進められている。原子炉で用いられている金属材料は、燃料本体、あるいは圧力容器などの構造体として、炉の主体となるものであるため、従来から詳細な研究が進められ、その結果に基づき材料の選択、その後の改善等も行われてきた。

原子炉施設には有機材料も数多く使用されているが、これらの安全性確保のための研究は、金属材料ほど活発ではなかった。例えば、原子力発電施設では、火力発電施設におけると同様に多量の電線・ケーブルが使用されている。これらのケーブルのうち原子炉本体まわりの高温高放射線下で使用するものは、無機絶縁体（MI ケーブル）が用いられている。また、その他の区域では格納容器内を含んで多くの有機高分子材料を絶縁体とした電線ケーブルが使われている。このようなケーブルが極めてすぐれた電気特性をもち、可とう性があるため使い易く、安価であるなどの特徴のため多く使用される。しかし、有機高分子材料は本来金属材料やセラミック材料ほどには高温に耐えるものではなく、比較的燃え易い欠点を持っている。また、燃えた場合には有害ガスや腐食性ガスを発生する場合もあり、これらの欠点を認識しておく必要がある。<sup>1)</sup>

具体的な例として、米国の Browns Ferry 原子力発電所で起った火災事故がある。その原因はケーブルペネトレーションのリークテストに用いたローソクの炎が“すき間”の充填のために用いてある発泡ポリウレタンに燃え移り、さらにケーブル束に延焼して大きな火災事故に至ったものである。煙、悪臭等により視界もきかず、現場への接近が不可能であったため、鎮火するまでに約4時間かかったと云われている。幸いにして火災事故のみにて済み、原子炉事故には到らなかった。その後、メータ類の点検、ケーブルの交換などを行い、約1年半後に漸く運転が再開された。その損害は莫大なものであった。

ここで、もし燃え難い絶縁材料を使ったケーブル、あるいは、万一燃えても自己消火性のある材料を用いたケーブルが使用されていたならば、このような大きな火災事故に発展しなかったであろう。また、原子炉の設計・製作者や、発電炉従事者が、有機材料に対する正しい認識、すなわち、有機材料は可燃性物質であることを識っていたならばこのような事故は起らなかったと思われる。

\* 上田隆三氏（前原研理事）の原案による。

原子炉の安全保護系の各種機器・装置類には独立性、及び多重性をもたせ、単一の故障で安全保護機能が喪失しないように設計されているが、上述の Browns Ferry 原子力発電所の火災事故は、簡単なケーブル火災により幾つかの多重系統の安全保護系が同時に破損又は停止し、Common mode failure に至ることがわかり、今までの盲点をつかれた結果となったものである。

この火災事故以来、原子力発電所用電線ケーブルに対する規制が一段と厳しくなってきた。たとえば、Browns Ferry 原子力発電所の火災事故発生と同じ年に我が国でも「発電用原子炉施設に関する技術基準を定める省令の一部を改正する省令」が通産省より出された（昭和 50 年 12 月 23 日付官報）。その中で原子力発電施設に用いる電線ケーブルに関して「原子炉制御室その他原子炉の付属設備にあっては、火災の発生、延焼等の影響をうけるおそれのあるものについては、必要に応じて不燃材料又は耐熱材料を使用しなければならない」としている。

最近起った Three Mile Island 原子力発電所Ⅱ号炉の事故は、原子力発電所の品質保証<sup>2)</sup>に対する再検討の必要性を提起した。この事故の詳細については多くの報告がなされている。これは小さな故障の重なりで、炉内の冷却材が減少し続けるという冷却材喪失事故の性格を帯びたものである。小さな故障の中には、電気機器類の関連するものがあり、また、指示値の信頼性に関するものもあった。

TMI 発電所の事故発生後、我が国の原子力安全委員会は、「米国原子力発電所事故調査特別委員会を組織し、2回にわたり調査報告書を作成した。第1次報告書は事故の概要であり、第2次報告書は、その詳細を述べるとともに、「我が国の安全確保対策に反映させるべき事項」を指摘した（昭和 54 年 9 月）。これらの事項は、今後の安全規制、安全審査に繰り入れられることになっている。この中で有機材料（弁、絶縁体など）に直接関係する項目は、①原子炉計測制御系、及びプロセス計測制御系の信頼性が、異常時においても総合的に確保しうることを確認しておくこと。これは通常運転時および運転時の異常な過渡変化時において、中性子束、原子炉水位、圧力、温度、放射線レベル等を監視、記録することを意味している。②事故時に必要とされる系統、及び機器についてその運転が困難とならないこと。ここでは、原子炉冷却水の確保と、冠水維持、すなわち長期冷却システムの確保が重要であることを意味し、余熱（残留熱）除去系のポンプの稼働確保、放射性物質の漏洩防止対策等が示されている。また、③事故時における放射線、及び放射性物質に関する測定の必要性。これらの測定機器は事故時においても十分な測定範囲を有するとともに、その環境条件によって機能が損われることのないことが要求される。さらに、④より一層厳しい品質保証を行うこと。これは安全研究関係であり、モータ、ケーブル、端子盤等格納容器内の機器の高温度、高湿度、高放射線等の環境下での信頼性を確認することの必要性が指摘されている。また、故障データバンクの設置、事故対策用データバンクシステムに関する研究も提案されている。これらには、絶縁材料等有機材料に関するデータも含まれる予定である。

このように、各種の事故から多くの教訓を学び原子力発電所の安全確保の向上に努力はなされており、有機材料に関する関心も高まりつつある。

原子炉で冷却材喪失事故（LOCA）の発生を想定した場合に非常炉心冷却装置（ECCS）が完全にその機能を発揮することが、安全確保のための第1条件である。万一事故が起った場合、これらの機器が完全であっても、ECCS を作動させる電気回路が働かなければ、その機能を発揮で

きない。この回路に用いる電力・制御ケーブルは、原子炉が稼動している間（通常運転時）に相当量の放射線照射をうける。また、事故時には、さらに高い放射線をあびるとともに、高温高圧の水蒸気にさらされることになる。そのような条件下においても電力・制御ケーブルはその性能を充分果さなければならない宿命にある。

米国電気学会（Institute of Electrical and Electronic Engineers）では、原子力発電所で用いられる電気機器、とくに安全性と密接な関連をもつ緊急停止や放射性物質の隔離を完全<sup>3)</sup>に行うために必要な電気機器等に関する品質認定・試験法の規格を制定している。これらの規格の中で、上述の安全系の機器に対する試験条件は、沸とう水型と加圧水型とで異っている。また、これらの規格も今までの経験の蓄積と技術の進歩によって必要に応じて改訂されることになっており、幾つかの規格に関しては、すでにその改訂の作業に入っている。

わが国においては、電気学会絶縁材料技術委員会に絶縁材料放射線試験調査専門委員会が設置され（昭和50年（1975）5月）、電線・ケーブルの耐放射線性試験に関する調査が3ヶ年<sup>4)</sup>にわたって行われた。

従来、高分子材料の照射効果については、多くの研究がなされているが、実用の絶縁材料の照射による物性変化、あるいは、2種以上の複合環境下における照射効果の研究は極めて少ない。これは、学術的な評価が難かしいことによると思われる。しかし、昭和54年（1980）後半になって、主として企業側から原子炉格納容器内の複合環境下における劣化の研究報告が出され始めた。

耐放射線性であり、かつ耐熱性、耐延焼性を持ち、さらに事故時の雰囲気<sup>5)</sup>に耐える絶縁材料を開発するためには、燃焼に対する基礎データに加えて、事故を模擬した雰囲気（複合環境）下における試験データが必要である。

原研高崎研においては、電気絶縁材料等の耐放射線性の評価に関する研究から始まって、放射線損傷、あるいは耐放射線性の研究が進展し、絶縁材料の開発に大きな寄与をしてきた。現在は、さらに発展し、複合環境下における劣化挙動等の研究を開始し、軽水炉LOCA環境を模擬する装置を用いて、品質認定試験方法に関する試験研究を行っている。今後、複合環境下劣化に関する基礎データの蓄積が期待できる。

以上、軽水炉用電線・ケーブルについて述べたが、原子炉施設においては、ケーブル以外に電磁弁、コイル等でも高分子材料が使用されている。しかし、これらは従来、原子炉の主要な部分でないために、比較的注意が払われていなかった。

高分子材料は、先に述べた Browns Ferry 原子力発電所の火災事故での例のように、熱に弱く、燃え易い。また、放射線に対しても、無機材料に比べて、それほど強くないことは明白であり、事故ではこれらの欠点がよく目立つ。しかし、電気的性質や耐薬品性、また加工の仕易さなど、金属やセラミックが持ち得ない優れた性質を持っている。したがって、これらの特徴を生かして、原子炉施設で高分子材料がすでに使われているし、将来も広く使用される機会が増大するであろう。

高レベルの放射性物質を含んだ酸、アルカリ、有機溶媒を取扱う再処理工場やプルトニウム再生工場などでは金属材料の腐食が大きな問題となっている。Atlantic Richfield Hanford Co.



の L. E. Bruns は 10 年間の Plutonium Reclamation Facility (PRF) の運転経験からプラスチックが金属材料より極めて有用であることを明らかにし、施設の各種部品がプラスチックに次第に置きかえられ、将来は殆んどプラスチックから構成された PRF ができることを示唆している。しかし、この示唆が実現するためには、プラスチックが放射線に対してどこまで耐え得るか明確にする必要があり、今後の研究の発展を待たねばならない。

将来、核融合炉が実現するときには、超電導マグネットが使用されると思われるが、この場合、電気絶縁材料として、現段階ではエポキシ系高分子材料が使用されると考えられる。また低温での断熱にも強化ガラス系複合材料が使われる可能性もある。これらの材料はかなり高エネルギーの放射線にさらされることになるが、極低温から超高温までの熱サイクル、あるいは各温度において電磁力による張力等を受けるが、このような状態における照射効果に関する研究は重要である。しかし、現在、この方面の研究は非常に少なく、その必要性が原子力関係者の間で痛感されている。

ここで、軽水炉型原子炉に使用される高分子材料について、少し詳しく解説してみたい。

先ず、現状をよく把握するために、現在格納容器内で使用されている高分子材料を調査し、その具体的な使用目的に使用場所等を明らかにする。次に、その使用されている環境を、軽水炉の通常運転時、及び仮想事故時（冷却材喪失事故 - LOCA）にわけて説明し、これらの使用環境下における健全性、信頼性の評価のための試験条件として実行されている条件を紹介する。さらに、品質認定試験規格、型式試験規格の現状、絶縁材料の耐放射線性に関する規格、IEC における検討項目をその優先順位に従って解説する。

文 献

- 1) R.L. Scott, "Browns Ferry Nuclear Power-Plant Fire on Mar. 22, 1975"  
Nucl. Safety 17 592 1976
- 2) 例えば,
  - a) 原子力安全委員会月報 54年5月, 9月
  - b) 阪田, 金木, 「TMI 原子力発電所の事故調査報告概要」 安全工学 19 99 1980
  - c) 「米国スリーマイルアイランド原子力発電所事故報告」OHM 1979年6月~11月号
- 3)
  - a) IEEE std. 323-1974, "Standard for Qualifying Class 1E Electric Equipment for Nuclear Power Generating Stations"
  - b) IEEE std. 383-1974, "IEEE Standard for Type Test of Class 1E Electric Cables, Field Splices, and Connections for Nuclear Power Generating Stations"
- 4) 電気学会絶縁材料放射線試験調査専門委員会「絶縁材料の放射線劣化と耐放射線性試験法の現状」(Ⅱ部) 第86号 1979年12月
- 5) 田中, 中瀬, 岡田, 伊藤, 日馬, 吉田, 「SEAMATE-Ⅱによる工学データ」Ⅰ急昇温実験 JAERI-M 9361 1981
- 6) L.E. Bruns, "Plastics in Nuclear Processing Plants" Chem. Eng. Prog., 71 59 1975

## 2. 軽水炉格納容器内で使用されている高分子材料

格納容器内に設置されている機器は、一般的な火力発電所に設置されている機器とほとんど同じものと考えることができる。ただ、原子力発電所では、万一事故が起った場合、周辺におよぼす影響の重大性に鑑み、多重防護思想に基づいた安全保護系が付設されている。したがって、付帯設備は火力発電所に比べて莫大なものになる。これらの設備の中には、数多くの高分子材料が用いられている。先ず、格納容器内にあり、かつ高分子材料に関連のある機器・部品について述べる。

最初に、機器等に動力を供給する電力ケーブルを挙げねばならない。機器の稼動を制御・監視するための制御・計装ケーブルも忘れられない。これらのケーブルは電気ペネトレーションを通して、格納容器外に引き出されるが、このペネトレーションは、格納容器内雰囲気を外より隔離するために重要な役割を果たすものである。次にケーブルは、コネクタ、端子盤で中継され、リレー・スイッチ類を経て各種機器につながれている。ここでいうスイッチ類には、レベルスイッチ、リミットスイッチ、圧力スイッチ等がある。機器・部品として、キャパシタ、各種変換器、電磁弁、空気作動弁、弁開閉用モーター、ポンプ・ファン用モータなどがある。具体的な品名としては、絶縁材料があり、ガスケット、Oリング、スペーサー、シーラント、潤滑材などもある。また、各種機器・部品、格納容器内壁を含むコンクリートには、塗装がほどこされ、さび、水の透過等を防ぐようになっている。これらの塗料が劣化すると、床に落ち格納容器内の水の配管等がつまる原因となる。特に、事故時にこの配管のつまりが起り、水を循環することができなければ、重大な結果にいたることは明白である。

その他、原子炉圧力容器に直接関連した部分に用いられている高分子材料としては、制御棒等の駆動用絶縁体、中性子計測器挿入用油潤滑剤等がある。それ以外に、燃料ウラン( $\text{UO}_2$ )焼結のためにもプラスチックバインダーが用いられているとともに、水処理のためのイオン交換膜・樹脂、空気フィルターがある。使用プラスチックの種類として、ポリエチレン、ポリエステル、<sup>1)</sup>ポリイミド、エポキシ樹脂、ワニス、ポリオレフィン等がある。

これまで、機器・部品の立場から使用されている高分子材料について解説したが、全く見方を変えて、原子炉の停止にまで至った事故の原因の中に有機高分子材料の関連するものがあるかどうか検討してみた。

第1表は、原子力発電便覧、原子力ハンドブックよりまとめた日本の原子力発電所における停止事故の原因の分類であり、日本で原子力発電所が稼動し始めてから最近までの発生件数の総計である。

冷却材の漏れ、検出器や制御器の故障、さらに制御棒駆動装置の故障によるものは、発生件数の全体の約半数に達している。これらの故障の中には、高分子材料の劣化、損傷が原因となっていると考えられるものがある。しかし、これは故障、事故の状況の記述から類推したものであり、その詳細については、さらに詳しい事故報告書の内容を検討する必要がある。

一方、火災事故は、当然、有機材料に関連しているものであるが、過去14年間の運転期間中に

ただ1回しか起っていない。これは、火災事故そのものに対して十分な注意が払われていることを示すものである。

## 文 献

- 1) 栗山, 「原子力産業で要求される高分子材料」 JAERI-M 9412 1981

第1表 原子力発電所の運転停止事故における  
原因の分類と発生件数 (1981年1月現在)

| 原因                                                | 発生件数<br>(1966.8~1980.2) |
|---------------------------------------------------|-------------------------|
| 軸封, 弁, ガスケット, 各種<br>シール部からの冷却材のもれ                 | 22                      |
| 検出器, 制御器の故障, 又は<br>誤設定                            | 38                      |
| 制御棒駆動装置, 弁駆動装置<br>などの動的機器の故障                      | 19                      |
| 電力機器の故障又は所外電源<br>喪失                               | 16 (所外7)                |
| 振動疲労, 粒界応力腐食によ<br>るクラックの発生                        | 9 (燃料棒関係5)              |
| 構造材の減肉, 溶接部の不良,<br>急速加熱による伝熱管, 配管<br>等におけるクラックの発生 | 35                      |
| 火 災                                               | 1                       |
| 格納系 FP フィルターの異常,<br>感電, 油洩れ, ガス洩れ等                | 8                       |
| 合 計                                               | 148                     |

### 3. 高分子材料の使用環境

前項において、格納容器内で使用されている高分子材料の種類、用途について述べた。ここでは、その使用環境について簡単に述べる。詳細については、他の文献を参考にされたい。<sup>1)</sup>

原子炉施設における電気機器については、炉の耐用年数と同等の40年間の使用寿命を持つことが要求される。したがって、通常運転時の雰囲気下で40年間使用されるものとする必要がある。また、仮想事故もこの40年間に起るものとして、その環境における耐久性を評価する。

炉型によって、格納容器内の環境は異なるため、ここでは、BWRとPWRとにわけて雰囲気条件(第2表)を示すとともに、その説明を通常運転時と事故時(LOCA時)にわけて行う。

#### 3.1 通常運転時

BWR 格納容器内雰囲気は、発電所により異なり、やや減圧の大気の場合と酸素量を5%以下にした窒素雰囲気の場合がある。後者の場合、防火の立場からは非常に効果的と思われるが、有機材料の酸化劣化の立場からは、大気下と大差がない。<sup>2)</sup> 雰囲気温度は平均値として57℃、湿度は常湿の範囲内である。線量率は格納容器内の場所により異なるが、その最大値を採り、積算線量は18 Mradとしている。

一方、PWR格納容器内雰囲気は、大気であるがやや減圧に保たれている。その温度は場所により異なるが評価用としては50℃が採用されており、湿度は常湿の範囲内にある。<sup>3)</sup> 線量率はやはり場所により異なるが、最大値で評価し、累積線量はBWRの場合の約2倍、35 Mrad、と計算されている。

BWR、PWRの両型式炉に共通の問題として、通常運転時には、炉心からγ線(3 KeV ~ 8 MeV)と中性子(0.025 eV ~ 10 MeV)とが飛び出してくる。ここで、中性子束値の計算は行われているが、有機材料に対する照射効果については、明確でないため、γ線による効果が主とみなされγ線の照射線量が基準として採用されている。一方、雰囲気温度は上述のように、両型式炉において約50℃であるが、電線・ケーブル等では通常運転時には、課通電されていることから、通常運転時の温度は66℃、80℃が提案されている。<sup>4)</sup> また、一方では、許容温度90℃の電線・ケーブルが用いられていることから、その裕度を見て、90℃で使用するとみなすこともできる。<sup>5)</sup>

これらの温度は、通常運転時の40年間の劣化を一週間程度で材料を促進劣化する場合の条件を決定するために重要であり、早急に通常運転時の温度を何度にすべきが結論を出す必要がある。

#### 3.2 事故時(LOCA時)

仮想事故として軽水炉では冷却材喪失事故(LOCA)が主に安全性評価のために考えられている。LOCAとは、原子炉本体圧力容器につながっている配管のうちで最大径の配管が、瞬時に完全にちぎれ(いわゆるギロチン破断)、冷却材がなくなる事故を想定したものである。BWRで

は約 290 °C (70 気圧) の冷却材が格納容器内に流出し、PWR では約 350 °C (160 気圧) の冷却材が流出し、このため格納容器内は、水蒸気で満される。したがって、格納容器内の温度は、冷却材の流出量と格納容器の大きさ(体積)から推定されているが、事故発生直後に最高の温度・圧力に達し、その後は、若干の上下をしながら連続的に、低温側、低圧力側へ、すなわち安全側<sup>1b)</sup>へ移行する。事故発生と同時に、燃料棒の被覆材が溶融し、今まで密閉されていた放射性物質(ヨウ素、キセノン等)が格納容器内に充満するが、これらを BWR では脱塩水スプレーで、また PWR では化学液スプレーで取り除く。しかし、格納容器内の高分子材料に対しては、放射性物質からの  $\beta$ 、あるいは  $\gamma$  線が、直接作用して材料を劣化させると仮定する。この場合の放射線量を第 2 表に示した。しかし、放射線(全線量)は、 $\gamma$  線に関してのみ計算されたものである。 $\beta$  線についてもその影響を評価すべきであるが、さし当っては、その材料への透過力の小さいことから無視されている。

IEEE std. 323-1974<sup>3)</sup> では、事故時の全線量は BWR で 26 Mrad、PWR で 150 Mrad と示されているが、最近の報告では 500 Mrad と大巾に増加した値が出された。これは、事故時に  $\gamma$  線の影響と同時に、 $\beta$  線の影響も考慮した場合である。この計算根拠は、4000 MW(t) 発電後  $6.25 \times 10^{10} \text{ cm}^3$  の格納容器内でギロチン破断があった場合、最高の線量率が 70 MR/h と評価されたことによる。

このように  $\beta$  線による線量を考慮すると 500 MR にまで耐える有機材料が必要とされる。しかし、このような材料は現在のところ開発途上にあると云える。ここで、 $\beta$  線の材料の劣化に与える影響について、透過力が小さいと云って、本当に無視して良いものかどうか、再検討する必要があることを指摘しておきたい。

ここで、通常運転時、及び事故時を通して格納容器内の高分子材料の使用環境をまとめる。

BWR では、全放射線量は約 45 Mrad である。また、BWR の通常運転時の平均温度、及び事故時の最高温度は PWR の場合より高い。一方、PWR では、全線量は 185 Mrad で非常に大きい。温度は BWR に比べて比較的低い。いずれの使用環境も、高分子材料にとっては非常に厳しい状況であることには変わりなく、劣化は非常にはげしく起ると考えられる。とくに、有機材料の劣化は、大気中、又は酸素の存在する雰囲気中では、酸化反応による劣化が主原因とみなされているから、高温での使用は、この酸化反応を促進し、劣化を助長する。さらに、放射線照射下では、副成するオゾンによる劣化も考慮する必要がある。本来、有機物は放射線に対して決して強くないことを考えると、200 Mrad 近くの線量は、非常に大きな影響力を示す値である。特に、高温下での照射は劣化が促進されるとともに、副次的な反応をも誘起する可能性があり、これらを十分考慮する必要がある。

### 3.3 品質認定試験条件

上述の環境下で使用する電気機器類の信頼性、あるいは健全性を確認するために、品質認定試験(Qualification)、型式試験(Type Test)が行われている。ここで、これらの試験条件について言及したい。試験の実施状況等の現況については後述する。

通常運転期間(耐用年間-40年)の信頼性、健全性の確認のためには、この期間の経年変化に

対応する劣化を可能なかぎり短時間で与えて試験する必要がある。この試験の現状は、熱劣化と放射線劣化とを別々に与えている（逐次法）。熱劣化は、一般的に 121℃、7日間であり、放射線劣化は、室温大気中で 50 Mrad 照射する。第 2 表において、耐用年間（40年）に受ける線量は、BWR で約 18 Mrad、PWR で約 35 Mrad となっているが、試験のためには、裕度を見て、50 Mrad を照射している。一方、熱劣化の加速条件（121℃、7日間）は、許容温度 90℃のケーブルの耐熱性試験条件から借用したものであり、決して、40年の耐用年間の劣化に対応したものではない。

事故時（LOCA 時）の信頼性、健全性の確認のための試験条件は、アメリカの基準・規格<sup>7)</sup>に基づいて作成されている。温度・圧力（蒸気暴露）条件の一例を第 1 図<sup>8)</sup>に示す。

BWR では、熱劣化後、76 Mrad（通常時 50 Mrad + LOCA 時 26 Mrad）照射し、引き続き蒸気暴露を行う。一方、PWR では、線量が 200 Mrad（通常時 50 Mrad + LOCA 時 150 Mrad）であり、蒸気暴露条件も BWR とは異なる。また、BWR では、脱塩水をスプレーすることになっているが、実際の試験では、飽和蒸気下で行われていることから、水スプレーは省略されている。PWR では、薬液スプレーを行っているが、最初の 24 時間で打切られている。

試験結果の合否は、劣化したケーブルの屈曲浸水耐電圧試験（ケーブルの自己径の 40 倍に曲げて、交流 3.15 KV/mm（絶縁体）を 5 分間印加する）で決定される。

ここで、蒸気暴露条件の適用ケーブルについてふれておきたい。BWR では格納容器（Primary Containment Vessel - PCV）内外の 2 領域に分けて、それぞれのケーブルについて、別々の試験を行う。一方、PWR では、安全保護系と非安全系の機能で分け、安全保護系ケーブルのみを試験する。一般的には、第 1 図の PWR (1) の条件を採用するが、裕度を見るため、急速加熱を 2 回行う PWR (2) を採用する場合もあるが、試験期間は 48 h である。より信頼性のあるデータを得るために、BWR と PWR に共用できる条件（BWR/PWR）で、長時間（30日）試験する場合もある。

## 文 献

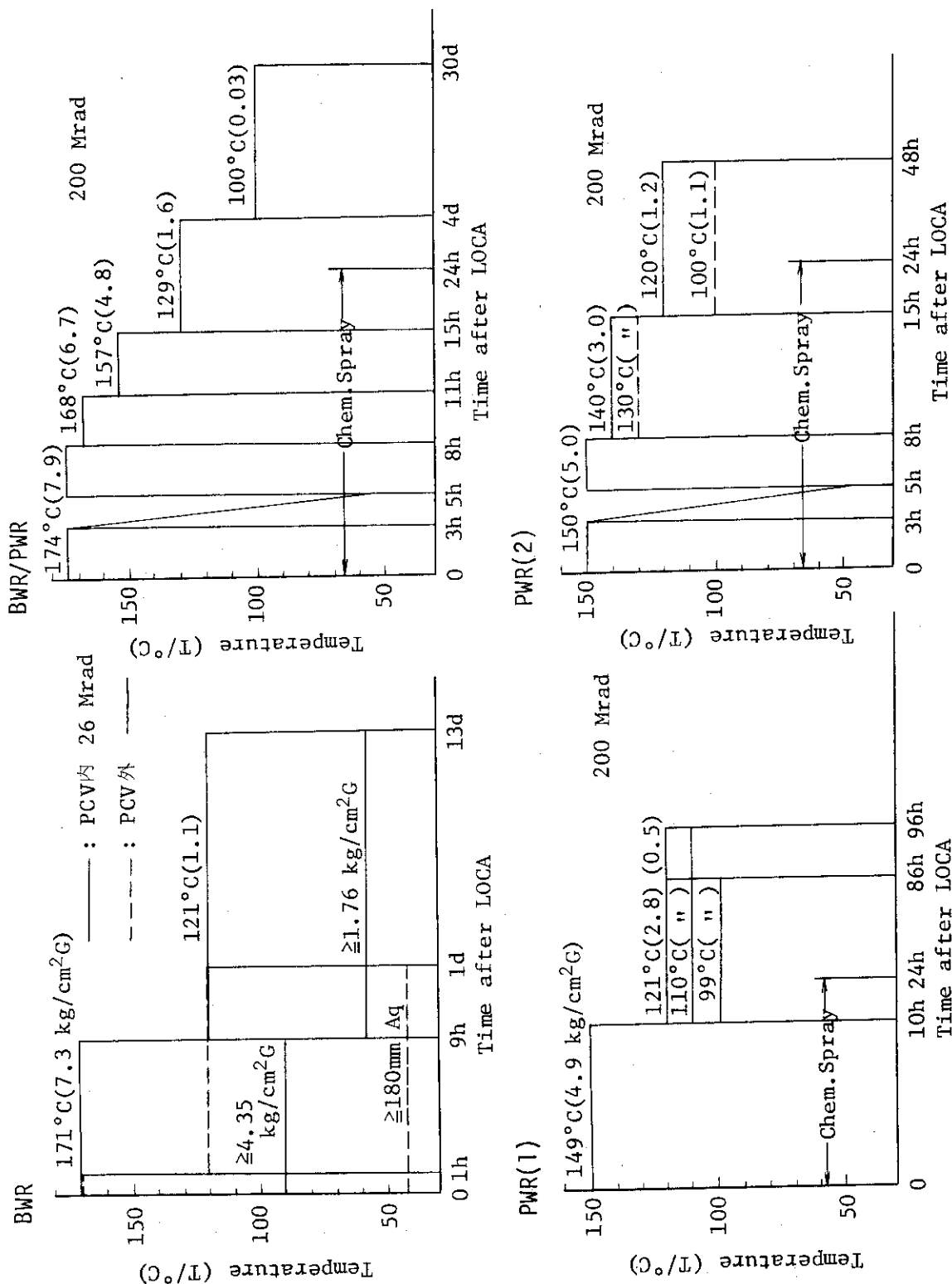
- 1) a. 電気学会絶縁材料放射線試験調査専門委員会「絶縁材料の放射線劣化と耐放射線性試験法の現状」技術報告(Ⅱ部)第86号 1979.12.  
b. IEEE std. 323-1974, "Standard for Qualifying Class 1E Electric Equipment for Nuclear Power Generating Station"
- 2) S. Tamura and K. Murakami, "Influence of Oxygen Content in the Atmosphere on Chemical Stress Relaxation of Natural Rubber Vulcanizates", *Polymer* 21 1399 1980
- 3) F.J. Compbell, "Radiation Damage in Organic Materials", Third International Meeting on Radiation Processing, Tokyo, Oct. 28 - 30, 1980  
a. 村田, 森川, 「原子力発電所用ケーブルの開発」住友電気 第112号 11 1978  
b. 栗山, 長谷川, 小椋, 大西, 木村「原子力発電所用ケーブルの開発」日立評論 58 246 1976
- 5) a. M.G. Noble, "Electric Cable Insulation for Nuclear Plants", *Power Engineering*, July 60 1976  
b. C. Hosticka, E.R. Kingsbury and A.C. Bruhin, "Qualification of Cables to IEEE Standards", *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, NS-27 885 1980  
c. 小椋, 佐藤, 佐藤, 柳生, 大西, 太田, 笠井, 「原子力発電所PCV内用ケーブルの特性」電気学会, 絶縁材料・原子力合同研究会資料 EIM-78-96 (NE-78-13) 1978
- 6) a. IPCEA (現ICEA) Pub. S-19-81 (NEMA Pub. No. WC3-1969)  
"Rubber-Insulated Wire and Cable for the Transmission and Distribution of Electric Energy"  
b. IPCEA (現ICEA) Pub. S-66-516 (NEMA Pub. No. WC8-1976)  
"Ethylene-Propylene-Rubber-Insulated Wire and Cable for the Transmission and Distribution of Electric Energy"  
c. IPCEA (現ICEA) Pub. S-66-524 (NEMA Pub. No. WC7-1971)  
"Cross-Linked-Thermosetting-Polyethylene-Insulated Wire and Cable for the Transmission and Distribution of Electric Energy"
- 7) IEEE Std. 383-1974 (ANSI N41.10-1975)  
"IEEE Standard for Type Test of Class 1E Electric Cables, Field Splices, and Connections for Nuclear Power Generating Stations"
- 8) 池, 花井, 山本, 「原子力発電所用ケーブルの動向と要求性能」昭和電線電纜レビュー 28(2) 3 1978



第2表 高分子材料の使用環境

|                                       | BWR                          | PWR                                          |
|---------------------------------------|------------------------------|----------------------------------------------|
| 1) 通常運転時                              |                              |                                              |
| 雰囲気                                   | 大気又は<br>窒素 (酸素 $\leq 5\%$ )  | 大気                                           |
| 温度                                    | 40 ~ 66 °C 平均 57 °C          | 10 ~ 50 °C                                   |
| 相対湿度                                  | 40 ~ 55 %                    | 50 ~ 90 %                                    |
| 放射線                                   |                              |                                              |
| 線量率<br>(40年間の積算線量)                    | 10 ~ 50 rad/h<br>(~ 18 Mrad) | 10 ~ 100 rad/h<br>(~ 35 Mrad)                |
| 2) 事故時 (LOCA時)                        |                              |                                              |
| 雰囲気                                   | 水蒸気                          | 水蒸気                                          |
| 最高温度                                  | 171 °C                       | 150 °C                                       |
| 最高圧力                                  | 428 kPa                      | 483 kPa                                      |
| スプレー<br>(6.1 l/min · m <sup>2</sup> ) | 水<br>(脱塩水)                   | 化学液: PH 10.5<br>(苛性ソーダ<br>ホウ酸水溶液<br>チオ硫酸ソーダ) |
| 放射線 (全線量)<br>( $\gamma$ -線)           | 26 Mrad                      | 150 Mrad<br>500 Mrad*                        |

\* L.L. Bonzon, "Radiation Signature Following the Hypothesized LOCA"  
SAND 76-0740 (NUREG 76-6521) 1977.



第1図 LOCA 模擬試験条件の一例

#### 4. 品質認定試験・型式試験規格

軽水炉の安全性を確保するためには、原子炉の緊急停止、また事故時の格納容器の隔離、炉心冷却などの安全系に対し、重要な役割をはたす電気機器が高い信頼性を持っている必要がある。このため世界各国において、安全保護系電気機器の品質認定試験方法の規格化、基準化が重要課題となり、検討されている。これらを第3表にまとめ、国際的な動き、各国別の動きを次に紹介する。

国際的には、International Electrotechnical Commission (IEC)の第15(絶縁材料)技術委員会 (TC 15)、及び第45(核計装)技術委員会 (TC 45)が中心となり、原子力発電所用安全保護系電気機器の試験方法の規格化を進めている。TC 15の小委員会 (SC 15 A)では、燃焼試験方法を採用している。また、TC 45の小委員会 (SC 45 A)では、安全保護系全体、電線・ケーブルの配線方式、ペネトレーション部分に関する規格の検討がなされている。さらに、安全保護系電気機器の品質認定試験方法をも検討しているが、これは、アメリカ、IEEE std. 323-1974 とほとんど同一のものである。

軽水炉用電気機器の品質認定方法などについては、アメリカが先行し、Institute of Electrical and Electronics Engineers Inc. (IEEE)が、安全保護系電気機器 (Class IE)の認定試験方法、あるいは型式試験方法の基準、規格を作成し、必要に応じて、Nuclear Regulatory Commission (NRC)が、これらに改良を加えた後、規制指針 (Regulatory Guide)として公表している (第3表において、IEEEの登録番号で示したもののうち、Regulatory Guide となったものは、その番号を記した。その他、American National Standard Institute (ANSI)規格となったものについても、その登録番号を記した)。具体的な電気機器、部品の個々に対して基準、規格が定められたもの、あるいは検討中のもの (P○○○)<sup>1)</sup>が数多くある。

フランスでは、Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA)が電力会社 EDF (Electricité de France)や、原子炉メーカー Framatome の協力のもとに、加圧型軽水炉 (PWR)で使用する Class I E 機器の品質認定方法に関するドラフトを作成し、検討を進めている段階である。

わが国においては、電気学会において原子力発電所用電線・ケーブル調査専門委員会 (原子力技術委員会に所属)が設置され、昭和53 (1978)年4月より活動を開始し、原子力発電所用電線・ケーブルの環境試験方法、及び耐延焼性試験方法の推奨案の作成を進めた。現在は、その審議は終了し、公表されるのを待つばかりである。

「安全設計審査指針」の中に、高分子材料に関連するものとして、指針6、火災に対する設計上の考慮、指針17、計測制御系があり、後者では、通常運転時、及び事故時において必要なパラメータが維持制御、確認できることが要求されている。「安全評価」においても、安全保護系設備、非常炉心冷却設備の稼動が設計通りにできるかどうか重要視されている。ここには当然高分子有機材料が関与している。「技術基準の省令」においては、不燃性、難燃性材料の使用が推

奨されており、有機材料の火災に対する注意が大きな関心事になっている。

次に、上述の品質認定試験、型式試験方法に基づいて試験された例について述べてみたい。

アメリカでは、Franklin Research Center で上記の試験が、民間会社の依頼で行われている。1 E級電気機器類の中で、電線・ケーブルが圧倒的に多く、塗料、バルブ等については、まだその数は少ない。これらの試験条件は、個々の原子炉や、機器部品の使用実状に合わせて決定されている。

わが国では、各電力会社がアメリカの基準、規格（IEEE std. 383-1974など）に準拠して、原子力発電所用電線ケーブル仕様を作成し、電線会社はそれに基づいた試験を独自の装置で行っている。これらの仕様の内容は、第1図に示したように、電力会社により、また、炉型によりかなり異っている。具体的な試験結果については電気学会技術報告等に述べられている。

フランスでは、Caderache で安全性試験が行われているようであるが、詳細については不明である。一方、西独等でも多数の原子力発電所が稼動しているが、安全確保のための品質認定試験は、それぞれの国の思想に基づいて行われていると思われるが、これらに関する情報が得られていない。これらの情報を集めることも重要である。

## 文 献

- 1) S.P. Carfagno, and R.J. Gibson, "Developments in the Qualification of Safety-Related Instruments" 1978 ISA Power Conference, Phil. Pa. May 22 - 28, 1978
- 2) 電気学会絶縁材料放射線試験調査専門委員会「絶縁材料の放射線劣化と耐放射線性試験法の現状」技術報告（Ⅱ部）第86号 1979.12.

第3表 1 E級電気機器類の品質試験規格

## Design

- IEC TC15, Insulating Materials; SC15A, Short time test;  
Draft : Flammability Test.  
TC45, Nuclear Instrumentation; SC45A, Reactor Instrumentation;  
Drafts : 1) Protection System, 2) Cabling, 3) Penetration Assemblies, 4) Qualification of Class 1E Equipment.
- IEEE std. 279-1971, Criteria for Protection Systems for Nuclear Power Generating Stations (ANSI N42.7-1972).
- IEEE std. 308-1974, Criteria for Class 1E Power Systems for Nuclear Power Generating Stations.
- IEEE std. 317-1972, Electrical Penetration Assemblies in Containment Structures for Nuclear Power Generating Stations (ANSI N45.3-1973).
- IEEE std. 627-1980, Standard for Design Qualification of Safety Systems Equipment used in Nuclear Power Generating Stations.

発電用軽水型原子炉施設に関する安全設計審査指針 (昭和52年6月 原子力委員会)  
 発電用軽水型原子炉施設の安全評価に関する審査指針 (昭和53年9月 原子力委員会)  
 発電用原子力設備に関する技術基準を定める省令 (通産省令第62号 (昭和40年), 同第122号 (昭和50年))

## Qualification

- IEEE std. 323-1974 Class 1E Equipments (Reg. Guide 1.89)
- IEEE std. 344-1977 Seismic, Class 1E Equipments (Regulatory Guide 1.100, ANSI N41.7)
- IEEE P385 Class 1E Switch and Breaker
- IEEE P572 Connectors
- IEEE P573 Radiation, Class 1E Equipments
- IEEE P638 Class 1E Transformer
- IEEE P649 Class 1E Motor Control Centers
- IEEE P650 Class 1E Battery Chargers and Static Inverters
- EDF E-SE/EL78-86 Principles and Bases of HM/063/7195/2
- EDF HM/063/7195/2 Class 1E Equipment for PWR

## Type Test

- IEEE std. 334-1974 Class 1E Motors (ANSI N41.9)
- IEEE std. 381-1977 Class 1E Modules
- IEEE std. 382-1972 Class 1E Valve Operator (ANSI N41.6)
- IEEE std. 383-1974 Class 1E Electric Cables, Field Splices, and Connections
- IEEE std. 420-1973 Class 1E Control Switchboards

電気学会推奨案 原子力発電所用電線・ケーブルの環境試験方法, および耐延焼性試験方法

## 5. 絶縁材料の耐放射線性試験に関する規格

完成品に対する試験規格を前項で述べた。ここでは、電気絶縁材料（素材）の耐放射線性試験に関する規格等について述べる。

高分子材料の耐放射線性、あるいは照射効果の研究は比較的古くから行われている。現在は、<sup>1,2)</sup>数多くの高分子材料が開発されており、これらの素材ポリマーについても研究は進展している。<sup>3)</sup>これらの研究成果を基礎として、絶縁材料の耐放射線性試験に関する規格、基準等が作成されている。これらを第4表にまとめた。

IEC では、照射効果の研究のため、国際的にデータの比較ができるように、照射方法、試験方法、データの評価方法、さらには、材料の選択基準（分級）に関する指針を出している。その他にも照射効果に対する線質の影響、あるいは、それらの相互比較を可能にすべく、活発な議論が各国からの代表者によって進められている。<sup>4)</sup>

ヨーロッパにおいては、欧州核研究機構（European Organization for Nuclear Research - Conseil Européen la Recherche Nucléaire - CERN）が、非常に積極的に高分子材料の選択基準や、放射線損傷に関する研究、および、データの編集を行っている。

アメリカにおいては、IEEE が中心となり、電気絶縁材料の照射効果に関するハンドブック、耐放射線性に関する選択基準（分級）をすでに提出している。さらに、IEEE 内の絶縁材料部会、放射線照射効果分科会では、原子炉格納容器内で使用される電気絶縁材料の選択基準を作成するため、活発な活動が開始された。

すでに、IEEE 規格として提出されたもののいくつかは、ASTM（American Society for Testing and Materials）規格として発行されている。また、NASA（National Aeronautics and Space Administration）においては、宇宙線対策として欠くことのできない関係もあって、照射効果の研究が各種電気絶縁材料を対象として進められている。

上述の基準、規格、あるいはハンドブック等は、数年ごとに見直され、新規に開発された材料に関するデータの補充、評価方法の改良等で適宜改訂されている。

例えば、IEC Publ. 544-3 は作成されたばかりであるが、低線量率（ $1 \times 10^2$  Gy/h 以下）で照射する場合、空气中照射においては試料をできるだけ薄くすべきことの指摘（第2図）<sup>5)</sup>に基づき、次の改訂時にはそれが加わることになっている。これは、放射線損傷に関するわれわれの研究成果<sup>6)</sup>、すなわち、 $1 \times 10^3$  Gy/h 以下で高分子材料を照射した場合、空气中では線量率効果が大きく認められるが、窒素中では、ほとんどその効果が認められないことの指摘に基づくものである。<sup>7)</sup>

今後も、各国における研究データの相互比較が容易にできるように、それぞれの国の規格、基準を十分考慮して IEC Publ. を作成している。一例として、IEC Publ. 544-4 は IEEE std. 278-1976、あるいは ASTM D2953-71 とほとんど同一の内容であるが、記述、あるいは図表の表現方法がかなり変っている。これは、各国の事情を考慮して、受け入れられ易いように改良されたものである。

日本において絶縁材料の耐放射線性、照射効果の研究が非常に活発に行われていることは電気学会技術報告<sup>8)</sup>で知ることができる。

## 文 献

- 1) C.D. Bopp and O. Sissman, "Radiation Stability of Plastics and Elastomers", ORNL 1373, 1953, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN.
- 2) A. Charlesby (団野皓文ら訳)「放射線と高分子」朝倉書店 1962
- 3) 例えば,  
A.J. Swallow, "Radiation Chemistry", Longman Group Ltd. London, 1973
- 4) 松葉, 「1976 IEC 報告」電気学会絶縁材料研究会資料 EIM-77-5 1977
- 5) F.J. Campbell, "Radiation Damage in Organic Materials", Third International Meeting on Radiation Processing, Oct. 28-30, 1980 Tokyo
- 6) I. Kuriyama, N. Hayakawa, Y. Nakase, J. Ogura, H. Yagyu, K. Kasai, "Effect of Dose Rate on Degradation Behavior of Insulating Polymer Materials", IEEE Trans. Elect. Insul., EI-14 272 1979
- 7) H. Schönbacher (CERN) 私信 1980. 8
- 8) 電気学会技術報告(Ⅱ部)第86号「絶縁材料の放射線劣化と耐放射線性試験法の現状」絶縁材料放射線試験調査専門委員会編 昭和54年(1979)12月

第4表 絶縁材料の耐放射線性試験に関する規格等

|      |                    |                                                                                                                                                                    |
|------|--------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| IEC  | Publ. 544          | Guide for Determining the Effects of Ionizing Radiation on Insulating Materials                                                                                    |
|      | 544-1 (1977)       | Part1. Radiation interaction                                                                                                                                       |
|      | 544-2 (1979)       | Part2. Procedures for Irradiation                                                                                                                                  |
|      | 544-3 (1979)       | Part3. Test Procedures for Parmanent Effects                                                                                                                       |
|      | 544-4              | Part4. Classification System for Service in Radiation                                                                                                              |
| CERN | 72-7 (1972)        | Selection Guide to Organic Materials for Nuclear Engineering                                                                                                       |
| CERN | 79-04 (1979)       | Compilation of Radiation Damage Test Data, Part I : Cable Insulating Materials                                                                                     |
| CERN | 79-08 (1979)       | Compilation of Radiation Damage Test Data, Part II : Thermosetting and Thermoplastic Resins                                                                        |
| IEEE | Publ. S-146 (1973) | Radiation Effects Handbook.                                                                                                                                        |
| IEEE | std. 278-1976      | Guide for Classifying Electrical Insulating Materials Exposed to Neutron and Gamma Radiation.                                                                      |
| IEEE | P672               | Synergistic Effects on Environmental Qualification of Class 1E Equipment.                                                                                          |
| IEEE | P775               | Electrical Insulation Selection Guide for Nuclear Power Plant Service inside the Containment.                                                                      |
| IEEE | Draft              | Electrical Insulation Society, Radiation Effects SC, WG-I Draft : Electrical Insulation Selection Criteria for Nuclear Power Plant service inside the Containment. |
| ASTM | D1672-66 (1971)    | Recommended Practices for Exposure of Polymeric Materials to High Energy Radiation.                                                                                |
| ASTM | D2953-71 (1972)    | Standard Classification System for Polymeric Materials for Service in Ionizing Radiation (ANSI N4.1-1973).                                                         |
| NASA | CR-1787-1971       | Radiation Effects Design Handbook. Section 3, Electrical Insulating Materials and Capacitors.                                                                      |



**PROCEDURE FOR DETERMINING IF  
DEGRADATION RATE  
IS AFFECTED BY OXYGEN INTERACTION**

**EXPOSURE 1: HIGH DOSE RATE—NO OXYGEN**  
RECOMMENDED RANGE:  $1 \text{ Gy s}^{-1}$  TO  $300 \text{ Gy s}^{-1}$  ( $10^8 \text{ rad h}^{-1}$ )  
(MAXIMUM LIMITED BY THE SPECIFIED SPECIMEN TEMPERATURE)

**EXPOSURE 2: LOW DOSE RATE—IN AIR**  
RECOMMENDED RANGE: UP TO  $3 \times 10^{-2} \text{ Gy s}^{-1}$  ( $10^4 \text{ rad h}^{-1}$ )  
→ (MINIMUM POSSIBLE SPECIMEN THICKNESS)

**SPECIMEN TEMPERATURES FOR EACH EXPOSURE:  
23°C AND 80°C**

第2図 IEC Publ. 544-3 "Test Procedures for Permanent Effects"  
5)  
における照射条件

## 6. 試験研究の現状と今後の課題

品質認定試験は、機器・部品に対するものであり、耐放射線性試験、あるいは環境試験は、材料の選択基準、使用限界を知るためのものである。

これらの試験結果は、機器・部品の設計、あるいは材料の選択に対して妥当な結果を与えるものでなければならない。そこで、各種試験方法は、新規に開発された材料に対する適合性の検討、測定手段の開発・改良、あるいは、評価基準の見直し等により適宜改訂する必要がある。この改訂のためには、それ相当のバックデータが要求される。

前述の IEC TC 15, 特に SC 15 B では、既発行規格の改訂等を考慮して、次の項目の検討を順を追って行うことにしている（第 4 表参照）。

- ① 低線量率照射劣化に対応する促進劣化条件：これは、IEC Publ. 544-3 の内容の再検討である。
- ② 温度、放射線の複合劣化：IEC Publ. 544-2 に関連し、同時法、逐次法の等価性等を評価する。
- ③ 各種複合環境劣化の促進劣化条件：IEC Publ. 544-3 に関連し、各種劣化因子を明らかにし、複雑な系での促進劣化条件を検討する。
- ④ 電子線照射効果： $\beta$ 線等による照射劣化の評価の試験でも、 $\gamma$ 線を照射して評価するケースが多い。 $\beta$ 線と $\gamma$ 線の劣化に対する換算則等を検討する。
- ⑤ 中性子照射効果：④と同じ理由により、中性子照射効果の $\gamma$ 線照射効果への換算則等を検討する。
- ⑥ 照射下の電気的性質：照射下における誘起電流等に関するものであり、一般的な化学的・物理的变化（劣化）が永久的なもののみならず、ここでは一時的に起る変化を評価しようとするものである。
- ⑦ 無機絶縁材料：耐熱性、不燃性の面においては、有機絶縁材料に対し絶体的に優位を保っている。しかし、加工性や可とう性の改良がないかぎり、実用材料として一般化し得ない。有機・無機の複合材料の検討は、具体的、かつ重要な課題である。

IEC TC 15, (SC 15 B) で上述の検討を行う場合には、各国の委員が、各種報告書で発表された基礎データを十分に尊重して、議論を進めている。また、これらの議論をより実のあるものにするために、研究テーマを設定し、それに対する基礎データの集積・検討も行っている。

上述の各項目に従って、現在進められている研究を簡単に述べる。各報告の詳細については個々の文献を参考にされたい。

1) 放射線劣化の主要因は、材料の酸化による高分子鎖の切断による低分子化と、逆の橋かけによる巨大分子化、すなわち脆化である。実使用時の放射線劣化は、低線量率におけるものであり、酸化劣化が主因となる。そこで実使用時の劣化を促進する条件として、高線量率であっても酸化反応を起す条件を見出せばよい。

ゴム・プラスチック材料の耐熱性試験において、大気圧下での加熱試験とともに、加圧酸素

下での加熱試験が JIS 規格にある。さらに、放射線劣化においても、照射により生成した活性<sup>2)</sup>点が酸素と充分反応するような雰囲気になれば、高線量率でも酸化劣化を起すことがわかった。そこで、加圧酸素下で照射することを計画し、低線量率で長時間照射で起る劣化と、高線量率<sup>3)</sup>(短時間)、加圧酸素雰囲気下の劣化とが対応する条件を見出した。したがって、加圧酸素雰囲気下では、高線量率であっても酸化劣化が起り、低線量率における劣化を促進できることがわかった。今後は、各種材料に対して、一般的な照射条件を見出すことが必要である。

2) 現在までの高分子材料の評価は、耐熱性、耐放射線性など単一環境条件に対して行われて来た。第4表に示した材料の選択基準などは、放射線下(室温、大気)の単一条件下で得られたものである。

これに対して、室温以上の温度で高分子材料に放射線を照射した場合、上述の選択基準と合わない結果が得られている。最近の研究報告を例にとると、アメリカ、Savannah River 原子力発電所に布設されていた電線・ケーブルが、2 Mrad (推定値)の照射で亀裂等を生じ使用に耐えなくなったことが見出された<sup>4)</sup>。これは、低線量率(max. 20 rad/h)での照射であること以外に、42℃(最高)の雰囲気であったことが強調され、複合環境下における酸化劣化が原因と結論されている。熱劣化と放射線劣化を順次材料に与える場合、その順序が材料の劣化に大きく影響することはすでに報告されている<sup>5)</sup>が、これら2つの因子の相乗効果の解明は今後の問題である。また、2あるいは3以上の劣化因子を同時に与えた場合(同時法)、別々に与えた場合(逐次法)、さらに逐次法においては、劣化因子を与える順序を変えた場合、材料の劣化がどのように起るか、また、それぞれの相互作用は材料により大きく異なる<sup>2)</sup>が、これらを明確にすることは今後の材料の開発のために非常に重要である。

3) さらに、実使用条件、あるいは、実使用下における異常時の条件をも考慮した上でそこに含まれる各種因子、例えば、温度、放射線、以外に湿度、高圧飽和水蒸気、酸素等を含む過熱蒸気、薬液など、の複合環境下における劣化については研究が始まったばかりである。

一般的に、実使用条件では、材料は長時間にわたって複合環境にさらされる。この時の材料の寿命等の評価するためには、短時間に試験ができる方法を確立する必要がある。すなわち、複合環境下において、長時間にわたって起る劣化を促進する条件を見出し、その妥当性を評価した上で試験条件を決定する必要がある。

また一方では、劣化を規定する値、すなわち、寿命を定義する必要もあるが、ここでは材料のどの物性値の変化に注目するか明らかにする必要がある。例えば、IEC Publ. 544-3 では、各種機械的性質の残率50%を判断規準と推奨しているが、この値は寿命とみなすには大きすぎる、単に選択基準値とみるべきものである。日本では、破断伸びの絶体値50%を寿命としているが、これも軽水炉用電線ケーブルの試験法としては実状にそぐわないようである。

したがって、材料の種類、材料の使用目的に従って、寿命評価のための試験項目、及びその値を決定する必要がある。

高分子材料の耐熱性試験では、材料を加熱した場合に起る重量減少から劣化状況を推定しよう<sup>6)</sup>と試みられている。ここでは、重量減少が5%になる温度、あるいは50%になる温度から、材料の使用許容温度を評価しようとするものである。

放射線劣化した材料に対しても、この方法を適用し、熱重量測定における加熱曲線の解析が

ら見かけの活性化エネルギーを求める試み、あるいは化学応力緩和現象の移動因子の評価から温度-線量率の換算をしようとする試みもなされている。<sup>7)</sup> これらの研究をさらに発展させることにより上述の諸問題を解決することであろう。

高分子材料は、その加工性の良さ、可とう性のあること、さらに製造が比較的容易で安定な品質のものが得られることから今後ますます使用量が増加するものと思われる。複合環境下で使用することを考慮した選択基準が明確になることは、安全設計のために重要である。

4) 高分子絶縁材料は、電子加速器で使用するケーブル・コイル絶縁等で多量に使用されている。<sup>8)</sup> 使用場所等に応じて、材料を選択する必要があるが、これに対する基準が提案されている。これも、大気圧下における照射効果の検討結果から出されたものであり、複合環境下での劣化を示すものではない。また、一般的に、放射線劣化試験は $\gamma$ 線照射が多く採用されている。現在、電子線、または $\beta$ 線による絶縁材料の劣化に関する研究は少なく、 $\gamma$ 線照射による劣化と同等であるかどうか結論は出せない。特に、軽水炉の仮想事故(LOCA時)には、 $\beta$ 線を放出する放射性物質が飛び出し、絶縁材料に直接付着することが考えられる。この場合の線量(線量率)は、 $\gamma$ 線の場合より1桁以上大きいことが計算から求められている。<sup>9)</sup> しかし、現在、格納容器内で使用されている絶縁材料に対し、 $\beta$ 線は直接当たらないか、当たっても照射効果は表面にかぎられているとの理由で、ほとんどの場合 $\beta$ 線の効果は無視されている。しかし、LOCA時に発生する $\beta$ 線のスペクトルは0.3~5 MeVの巾広いものであり、表面ではなく、ケーブルシース、絶縁体内部で吸収線量や電荷蓄積が極大となることが報告されている。<sup>9b)</sup> また、電子線の吸収線量の計算から、1.5 MeVの電子線照射が、上述の $\beta$ 線と同じ吸収挙動を示していることから、 $\beta$ 線による劣化は、1.5 MeV電子線を用いて研究する必要がある。次には、 $\beta$ 線(電子線)による劣化と等価な劣化を $\gamma$ 線で与える条件、方法も検討する必要がある。

5) 中性子照射効果については、軽水炉に限らず、他の原子炉、核融合炉で用いられる材料について共通の問題である。高分子材料は金属と接触して使用されている場合が多い。中性子照射により金属は放射化され $\gamma$ 線等の放射線を放出するが、この放射線により高分子材料が劣化する可能性がある。<sup>10)</sup> また、熱中性子による材料の劣化も一応評価され、 $\gamma$ 線線量に換算されているが、<sup>11)</sup> 現在の劣化に対する新知識を基に再検討する必要がある。

核融合炉で使用される材料については、極低温での中性子照射効果の研究が行われているが、<sup>12)</sup> 軽水炉では室温ないしは、室温以上の温度での照射効果の研究が必要であるとともに、材料中に含まれている金属などの放射化により誘導される放射線( $\gamma$ 線、 $\beta$ 線等)による劣化も考慮しなければならない。

6) 高分子材料を照射すると、電荷蓄積が起ることは古くから知られているが、最近改めて材料の劣化との関連で再検討が始められた。<sup>13)</sup> また、同軸ケーブル等の計装・信号ケーブルでは、上述の電荷蓄積はノイズ等の原因となり、各種のトラブルを引き起す可能性があり、高線量率下あるいは高電界での誘起電流の測定等の研究が報告されている。<sup>14)</sup>

照射効果を電氣的測定から検討することは、放射線化学の基礎を、今までとは異った面から研究することであり非常に有意義と思われる。これらについては、その研究手段、方法の基礎的な研究から始めなければならないが、放射線劣化機構の解明の本質にかかわることであり今後の早急な発展が期待される。

電力ケーブルに対しては、上述の電荷蓄積は絶縁体の部分放電あるいは絶縁破壊に関連するものであり、また、計装・同軸ケーブルに対しては、ノイズの発生、特に炉運転中のノイズの発生に関連するものであり、原子炉の安全な運転を確保するためには、是非検討すべき事項である。TMI 原子力発電所の事故から得られた教訓、及び安全対策に反映すべき事項で指摘されている課題の中にも含まれ重要視され始めたものである。

以上、試験研究の現状と今後の課題について、IEC. TC15 (SC15B) の検討項目に従って簡単に述べてみた。これらは、材料の試験方法の確立、材料の選択基準の制定等を主目的にした研究項目ではあるが、一つの研究の流れである。これとは別に、放射線照射効果、損傷機構の解明に関する研究は、古くから行われており、また、現在も精力的に続けられているが、これらについては、別の機会にまとめる予定である。

ここで、高崎研究所で行われた有機材料の耐放射線性に関する研究についてまとめてみたい。

昭和46年(1971)から、放射線レベルの高い高速増殖炉(Fast Breeder Reactor-FBR)<sup>15)</sup>で使用するための電気絶縁材料等の耐放射線性の評価(動燃受託研究)を行って以来、有機材料の耐放射線性、あるいは放射線損傷に関する研究が継続的に進められている。

上記受託研究では、電線・ケーブル絶縁体の設計資料、ベース・ポリマーの選定等に重要な使用限界線量の評価を各種材料について行った。さらに、Na ループ系で使用する油圧防振器に適合する耐放射線性の秀れた作動油に関する研究を行い、 $\gamma$ 線照射による粘性の変化、発生ガス量の評価から、多環芳香族炭化水素系油、シリコン系油が100MRまで使用可能なことを明らかにした。

無機・有機複合絶縁材料の耐放射線性の評価から、バインダーとしてポリエステルイミドなどが有用であること<sup>17)</sup>、軽水炉格納容器内で使用する電線・ケーブルには、化学架橋ポリエチレン、塩素化ポリエチレン、クロロスルホン化ポリエチレン、エチレン・プロピレンゴムなどが有効なことを明らかにした<sup>18)</sup>。また、添加剤に関する研究では、耐放射線性を向上させるものとして現在使用されているものには、芳香族系助剤とパラフィン系助剤があるが、前者では材料に照射されたエネルギーの移動により耐放射線性を向上させ、後者では照射により生成したラジカルに助剤が付加してそれ以上の反応を停止して、耐放射線性を向上させることを明らかにした<sup>19)</sup>。さらに、耐加水分解性の向上も重要であることから、フィラーとして用いる無機質材料の親水性等を考慮する必要のあることを明らかにするとともに、難燃性を向上させるためには、臭素化合物の添加することが良いことを見出した<sup>20)</sup><sup>21)</sup>。

一方、原子力船「むつ」の軽水炉(PWR)で 사용되는放射線遮蔽材の耐放射線性の評価の一部として、シリコン系樹脂の $\gamma$ 線照射下における発生ガスの定量分析を行い、この目的のために、十分使用し得る結論を得た(原船受託研究)<sup>22)</sup>。また、真空保持用パッキング材料(バイトン、パークロン、フッ素系ゴム、ニトリルゴム等)の照射下における発生ガスの組成分析等についても研究し、素材ゴムに対し、添加剤の配合組成を十分検討した真空用配合ゴムでは、発生ガス量を1/5程度に抑えることができた<sup>23)</sup>。

一方、軽水炉用電線・ケーブルの耐放射線性試験技術の開発では、冷却材喪失事故(LOCA)時の健全性試験技術の確立のために、原子炉用電線材料健全性試験装置(Simulated Environmental Apparatus for Material Testing-SEAMATE-II)<sup>24)</sup>の製作をすることになっ

た。本装置は、電線・ケーブルを課通電しながら LOCA 模擬環境にさらすことができるものである。その当時、高崎研においては、高圧蒸気で容器内雰囲気<sup>25)</sup>を一定温度に制御する技術の蓄積はなく、また、圧力容器内に電線・ケーブルを設置するためその導入部の機構に関する技術の蓄積もない。そこで、SEAMATE-Ⅱの設計に先立って、上記問題点を解決するために、高温高湿照射劣化実験装置 (SEAMATE-I) を試作した。

SEAMATE-I を用い、高圧蒸気による温度制御システムの検討を行い、飽和蒸気を注入し、容器内圧力を制御することにより、雰囲気温度の制御が可能であること、この場合、ドレン排出系にはスチームトラップが使用できること、を明らかにした。また、電線導入部の支持機構に関しては、 $\gamma$ 線照射による材料の劣化と高圧シールの機能の満足とを同時に検討した結果、電線・ケーブルの貫通方式でシール部を生ゴムと熱収縮チューブを使用して固定する方式が、作業性、安全性の面から有効であることを見出した。さらに、ケミカルスプレーの目づまり対策として、軽水炉格納容器で使用されているスプレーノズルを用いれば、飽和蒸気を用いるかぎり目づまりが起らないことを確認した。また、この確認と同時に、スプレーを行うことにより、圧力容器内<sup>26)</sup>雰囲気の温度分布がなくなることも明らかとなった。

このような有益な知見に基づき、SEAMATE-Ⅱが設計・製作された(昭和54年(1979)8月)。本装置の特徴は、急速加熱( $20^{\circ} \rightarrow 150^{\circ} \text{C} / 5 \text{ sec}$ ,  $150^{\circ} \rightarrow 200^{\circ} \text{C} / 30 \text{ sec}$ )、及び急速冷却( $200^{\circ} \rightarrow 30^{\circ} \text{C} / 12 \text{ min}$ )ができること、 $\gamma$ 線照射は中心線源方式であり、 $1 \text{ Mrad} / \text{h}$ <sup>27)</sup>の線量率(空気等価)が比較的容易に得られることである。

SEAMATE-Ⅱは、昭和56年3月現在、製作後1年半の間順調に稼動し、当初予定の研究計画を100%以上達成した。

これらの研究を遂行するに当って、その計画案は所内<sup>28)</sup>の事前評価を受けた。研究はこれに基づいて進展している。

一方、放射線損傷に関する研究の発展にもなって、酸素加圧下で放射線劣化を促進する方法を見出し、電線・ケーブルに対して応用しようと云う試みが進行している。これは、軽水炉の通常運転時に対する耐用年間(40年)の劣化を促進するための研究として非常に重要であり、その促進試験条件の妥当性の検討とともに、今後の発展が期待される。

## 文 献

- 1) 電気学会, 絶縁材料放射線試験調査専門委員会「絶縁材料の放射線劣化と耐放射線性試験法の現状」技術報告(Ⅱ部)第86号 1979.12.
- 2) I. Kuriyama, N. Hayakawa, Y. Nakase, J. Ogura, H. Yagyu, K. Kasai, "Effect of Dose Rate on Degradation Behavior of Insulating Polymer Materials", IEEE Trans. Electr. Insul., EI-14 272 1979
- 3) 瀬口, 荒川, 依田, 早川, 栗山, 「酸素加圧下における絶縁材料高分子の放射線劣化」EIM-77-58 1977.
- 4) R.L. Clough, K.T. Gillen, "Radiation-Thermal Degradation of PE and PVC : Mechanism of Synergism and Dose Rate Effects", Third International Meeting on Radiation Processing, Tokyo, Oct. 28 - 30, 1980
- 5) F.J. Campbell, "Combined Environments Versus Consecutive Exposures for Insulation Life Studies", IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-11 123 1964
- 6) 電気学会, 電気絶縁材料耐熱性試験法常置専門委員会「短時間耐熱性試験予備試験結果」技術報告(Ⅰ部)第118号(その1), 第121号(その2) 昭和52年(1977)
- 7) a) 岡田, 伊藤, 中瀬, 栗山, 「原子力発電所用電線絶縁材料の劣化試験法」日本原子力学会誌 21 808 1979.  
b) M. Ito, S. Okada, I. Kuriyama, "Chemical Stress Relaxation of Ethylene-Propylene Copolymer Rubber by Heat and Radiation", Radiat. Phys. Chem., 16 481 1980
- 8) H. Schönbacher, M.H. Van de Voorde, "Radiation and Fire Resistance of Cable-Insulating Materials Used in Accelerator Engineering", CERN 75-3 1975
- 9) a) L.L. Bonzon, N.A. Lurie, "Best-Estimate LOCA Radiation Signature", SAND79-2143 (NUREG/CR-1237) 1980  
b) J. Naber, N.A. Lurie, "Radiation Qualification of Nuclear Reactor Components", Nucl. Tech. 36 40 1977
- 10) 高田, 堺, 堀内, 「熱中性子照射の誘起電流におよぼす電極種類の効果」電気学会絶縁材料・原子力合同研究会資料 EIM-79-95 (NE-79-17) 1979
- 11) ANSI/ANS-6.11-1977, "Neutron and Gamma-Ray Flux-to-Dose-Rate Factors"
- 12) 例えば, 加藤, 高村, 「超電導磁石用絶縁材料の低温原子炉照射効果」(Ⅲ)液体ヘリウム試験, 低温工学 15 173 1980
- 13) 高橋, 新元, 一色, 中瀬, 栗山, 「各種高分子材料の放射線誘起電流」電学論誌 A 101 167 1981

- 14) a) 望月, 田村, 矢作, 「前処理低密度ポリエチレンの高線量率 $\gamma$ 線誘起電気伝導」電気学会, 絶縁材料・原子力合同研究会資料, EIM-80-92 (NE-80-1) 1980.  
 b) 田中, 須永, 田村, 安東, 家田, 「X線照射下における固体高分子中の電荷蓄積」電気学会絶縁材料・原子力合同研究会資料 EIM-80-93 (NE-80-2) 1980  
 c) H. Maeda, M. Kurashige, T. Nakakita, "Gamma-ray-induced Conduction in Polyethylene-Terephthalate under High Electric Fields", J. Appl. Phys., 50 758 1979  
 d) 田中, 橘, 浅香, 八橋, 砂塚, 「 $\gamma$ 線照射時の絶縁電線の電気特性」電気学会絶縁材料研究会資料 EIM-75-19 1975
- 15) 田村, 大島, 景山, 阿部, 栗山, 中村, 「電気絶縁材料等の耐放射線性の評価」未公開資料 1972
- 16) a) 徳永, 阿部, 景山, 「油圧防振器用動作油の放射線照射試験」未公開資料 1972  
 b) 徳永, 阿部, 「トリシロキサンの放射線照射効果—ガス発生および重合に対するフェニル基の効果について」日化誌 1975 228 1975
- 17) 田村, 早川, 川和田, 松賀, 柳生, 「耐放射線性電線用絶縁材料の開発」未公開資料 1974
- 18) 栗山, 早川, 中瀬, 川和田, 小椋, 笠井, 「耐放射線性電気絶縁材料の開発」未公開資料 1975
- 19) 藤村, 荒川, 早川, 栗山, 「ポリエチレンの耐放射線性におよぼす添加剤効果」電気学会絶縁材料研究会資料 EIM-76-36 1976
- 20) 栗山, 早川, 小椋, 柳生, 関, 笠井, 「電力ケーブル用耐放射線性高分子材料の開発」未公開資料 1978
- 21) 笠井, 森田, 萩原, 「臭素化アセナフチレン縮合体により難燃化したエチレン・プロピレン・ジエンゴムの複合環境劣化」電気学会絶縁材料・原子力合同研究会資料 EIM-80-105 (NE-80-14) 1980
- 22) 瀬口, 荒川, 早川, 栗山, 「原子力船用遮蔽材料の $\gamma$ 線等による発生ガスの定量分析」未公開資料 1977
- 23) 荒川, 早川, 栗山, 「 $^{60}\text{Co}$ - $\gamma$ 線照射による高分子材料からの発生ガスの定量分析」JAERI-M 7244, 1977
- 24) 開発試験場技術開発課炉材料試験係, 「原子炉用電線材料健全性試験装置の製作」未公開資料 1978
- 25) 技術開発課, 炉材料試験係, 「高温高湿照射劣化実験装置の試作」未公開資料 1979
- 26) 中瀬, 岡田, 伊藤, 笠原, 田中, 「高温高湿照射劣化実験装置による研究成果」JAERI-M 1981
- 27) a) 技術開発課, 炉材料試験係, 「原子炉用電線材料健全性試験装置の試作」未公開資料 1981  
 b) 中瀬, 吉田, 日馬, 伊藤, 岡田, 町, 「電線・ケーブル絶縁材料のLOCA環境劣化における同時法と逐次法との比較」電気学会絶縁材料・原子力合同研究会資料 EIM-80-98 (NE-80-7) 1980
- 28) 開発試験場技術開発課, 「高分子材料の耐放射線性の研究」(中間評価) 未公開資料 1976



## 7. お わ り に

高崎研究所開発試験場で、昭和46年度の動燃受託研究を契機として電線絶縁材料の耐放射線性の評価、それに引き続いて、耐放射線性絶縁材料の開発が進められて来た。昭和50年3月に起ったアメリカ Browns Ferry 原子力発電所のケーブル火災事故以来、ケーブル絶縁体などの有機材料の可燃性が問題となり、原子力発電所用電気機器、特に格納容器内で使用する機器・部品の品質認定試験法、すなわち IEEE std. 323, 383-1974 の存在意義が認識されだした。日本においても、軽水型原子炉用電線・ケーブルの健全性試験を上記 IEEE std に準拠して行ったり、この試験に合格するような各種材料の開発に拍車がかかった。これら業界のニーズを踏えて「LOCA 環境下劣化試験装置」(昭和52年度要求)の作成を計画した。しかし、LOCAという言葉の刺激的な意味のため、あるいは、藪をつついて蛇を出す恐れがあること、など色々と計画提出に際しての問題点が指摘された。そこで、名称を変更し、「軽水炉用電線類の安全性試験装置」(昭和53年度要求)の製作を計画した。さらに、名称の外部に与える影響を考慮して、最終的には、「原子炉用電線材料健全性試験装置」として昭和53年度予算(債)が認可された。

この認可にこぎつけるまでには、高崎研内、原研内におけるコンセンサスを得たこと、さらに業界からの支援があったことは云うまでもない。前者において、開発試験場内の耐放射線性試験、あるいは耐放射線性材料の開発、さらに $\gamma$ 線の照射、のそれぞれに関連する課室長等による「軽水炉用電線絶縁材料の耐放射線性の開発研究についての検討会」が組織され、12回にわたって会合が行われた。後者においては、「原子力発電所用電線絶縁材料の技術基準に関する研究調査会」が組織された。そこでは高崎研で立案した研究計画の説明、同計画に対する要望等が出され、計画の遂行に対して大きな支えとなった。

本報告は、調査結果をもとに、関連規格・基準、試験方法、及びそれに対する基礎研究の各項についてまとめ解説した。また、それぞれに対する今後の問題点、研究課題について言及した。

本報告書の作成に当って前理事(現東海大学教授)上田隆三氏の御激励に、前所長(現放射線安全技術センター理事)重松友道氏、元開発試験場次長(現開発試験場長)大島裕之助氏、元技術開発課長(現大阪研究所長心得)栗山将氏及び前技術開発課長(現開発試験場次長)田村直幸氏の各位の御指導に感謝いたします。さらに、技術開発課長代理早川直宏氏をはじめ技術開発課各位の御援助、適切な助言に感謝いたします。