

JAERI-Tech

94-004



芳香族系ポリエーテル樹脂製  
照射キャプセルの開発  
(共同研究)

1994年7月

有金賢次・大友昭敏・笹島文雄・高橋秀武・瀬口忠男・村上 澤\*

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.  
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division,  
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura,  
Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1994

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 いばらき印刷株

## 芳香族系ポリエーテル樹脂製照射キャップセルの開発

日本原子力研究所東海研究所研究炉部

有金 賢次・大友 昭敏・笹島 文雄  
高橋 秀武<sup>+</sup>・瀬口 忠男<sup>++</sup>・村上 滋\*

(1994年5月27日受理)

芳香族系ポリエーテル樹脂（B E K）の原子炉照射による機械的性質の変化等を明らかにし、J R R - 3 M 気送管で最大150時間の照射が可能な試料照射用キャップセルを開発した。J R R - 3 M 気送管における試料の照射は、これまでポリエチレンキャップセルの使用で最大20分に制限されてきたが、B E K 製キャップセルの開発により長時間の照射が可能になった。また、B E Kは、ポリエチレンと同様に誘導放射能が低いことから、照射後の試料の取扱いも簡便である。

本報告は、B E Kの原子炉照射による特性の変化と、キャップセル開発の研究をまとめたものである。

---

本研究は、出光興産㈱との共同研究の成果である。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

+ 安全管理室

++高崎研究所材料開発部

\* 出光興産株式会社中央研究所

Development of Irradiation Capsule for Nuclear  
Research Reactor using Aromatic Polyether (BEK)

Kenji ARIGANE, Akitoshi OHTOMO, Humio SASAJIMA  
Hidetake TAKAHASHI<sup>+</sup>, Tadao SEGUCHI<sup>++</sup> and Shigeru MURAKAMI<sup>\*</sup>

Department of Research Reactor  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 27, 1994)

The nuclear reactor irradiation capsule was developed using a poly(arylen ether nitrile)(BEK) on the bases of the research of BEK by irradiation in the pneumatic tube of JRR-3M. The capsule showed high stability until 150 hours irradiation, which was much longer time compared with the 20 minutes for the capsule made of polyethylene. The radioactivity induced by the reactor irradiation was low as same as polyethylene capsule. This report described the irradiation effects of BEK and the stability of the capsule after nuclear reactor irradiation.

Keywords: Thermoplastic Polymer, BEK, Radiation Resistance, Nuclear Research Reactor, JRR-3M, Irradiation Capsule, Molding, Pneumatic Tube, Mechanical Property, Radioactivity, Irradiation Effect

---

This research report is the result of the joint study with Idemitsu Kosan Co., Ltd.

+ Office of Safety and Control

++Department of Material Development,

Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment

\* Central Research Laboratories, Idemitsu Kosan Co., Ltd.

## 目 次

1.はじめに .....	1
2. BEKキャップセルの開発 .....	2
2.1 BEKキャップセルの概要 .....	2
2.2 BEKキャップセルの開発 .....	2
3. BEKの基本特性 .....	7
3.1 結晶性 .....	7
3.2 密度 .....	7
3.3 機械的性質 .....	7
3.4 熱的特性 .....	7
4. BEKの照射特性 .....	8
4.1 引張試験 .....	8
4.2 曲げ試験 .....	8
4.3 衝撃試験 .....	8
4.4 ガラス転移温度測定 .....	8
5. 放射化分析によるBEKの不純物分析 .....	13
5.1 分析試料 .....	13
5.2 試料照射 .....	13
5.3 測定及びデータ解析 .....	13
5.4 測定結果 .....	14
6. BEKキャップセルの試作 .....	22
6.1 キャップセル模擬搬送装置 .....	22
6.2 金型製作 .....	22
6.3 キャップセル製作 .....	22
7. キャップセル照射試験 .....	25
7.1 照射条件 .....	25
7.2 外観試験及びキャップセル開封試験 .....	25
7.3 衝撃試験 .....	25
7.4 衝撃力測定 .....	25
7.5 搬送試験 .....	26
7.6 照射試験 .....	26
7.7 圧縮破壊試験 .....	26
7.8 放射能強度測定 .....	27

8. まとめ .....	32
9. 結論 .....	33
謝辞 .....	33
参考文献 .....	33

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Development of BEK Capsule .....	2
2.1 Outline of BEK Capsule .....	2
2.2 Development of BEK Capsule .....	2
3. Characteristics of BEK .....	7
3.1 Crystallinity .....	7
3.2 Density .....	7
3.3 Mechanical Properties .....	7
3.4 Heat Resisting Properties .....	7
4. Irradiation Effects of BEK .....	8
4.1 Tensile Test .....	8
4.2 Flexural Test .....	8
4.3 Impact Test .....	8
4.4 Glass Transition Temperature .....	8
5. Activation Analyses of BEK .....	13
5.1 Samples .....	13
5.2 Sample Irradiations .....	13
5.3 Measurements and Analyses .....	13
5.4 Measurement Results .....	14
6. Trial Manufacture of BEK Capsule .....	22
6.1 Mock-up Facility for Capsule Impact Test .....	22
6.2 Fabrication of Injection Mold .....	22
6.3 Fabrication of Capsule .....	22
7. Irradiation Tests of Capsule .....	25
7.1 Irradiation Conditions .....	25
7.2 Visual Test and Capsule Opening Test .....	25
7.3 Impact Test .....	25
7.4 Measurement of Capsule Impact Force .....	25
7.5 Capsule Transfer Test in JRR-3M Pneumatic Tube .....	26
7.6 Capsule Irradiation Test in JRR-3M Pneumatic Tube .....	26
7.7 Capsule Compression Fracture Test .....	26
7.8 Activities of Irradiated Capsule .....	27

8. Summaries .....	32
9. Conclusion .....	33
Acknowledgment .....	33
References .....	33

## 1. はじめに

日本原子力研究所の研究炉（JRR-2（10MW）、JRR-3M（20MW）、JRR-4（3.5MW））では、放射化分析やR I 製造などに用いるキャップセルとして、ポリエチレンやアルミニウムあるいはポリイミドを材料としたキャップセルを使用している。

ポリエチレンは成型加工性に優れ放射化も少ないことから気送管用の照射キャップセルとして広く利用されているが、耐熱、耐放射線性が低いためその使用は短時間の照射に限定されている。

アルミニウムは熱と放射線に安定であるため、長時間照射キャップセルとして用いられているが、照射量とともに放射能が高くなり、照射後の試料の取扱いは遮蔽を備えたホットセル等で行う必要がある。

一方、ポリイミドは、高分子材料の中では高い耐放射線性を有している<sup>1)</sup>ことから、各種照射装置で100時間程度の照射に使用されてきたが、キャップセルへの加工は切削加工によるため製造コストが高く、その使用は特殊照射に限定してきた。

しかし、近年の照射利用の多様化、高度化にともない、数時間から数十時間の照射が可能で、誘導放射能の低い、いわゆる低放射化長時間照射キャップセルの開発が望まれてきた。このため、1991年にポリエチレンナフタレート（PEN）を用い、JRR-4水力照射設備で6時間の照射が可能なキャップセルを開発した<sup>2)</sup>。また、JRR-3Mが1990年11月に利用運転を開始してから、カドミウム比の高い気送管で数十時間以上の長時間照射の要望が出され、気送管でも長時間の照射ができる低放射化キャップセルの開発が望まれるようになった。このため、出光興産株式会社中央研究所が新規開発した熱可塑性ポリエーテル樹脂BEK<sup>3)</sup>を材料とし、JRR-3M気送管で100時間程度の照射が可能で、しかも射出成型で大量生産できるキャップセルの開発を同社との共同研究で行った。

本報告は、芳香族系ポリエーテル樹脂製照射キャップセル（以下「BEKキャップセル」という。）の研究開発を目的に平成4年度と5年度の2年間に行ったキャップセル開発の共同研究成果報告である。

本報告では、第2章にキャップセルの概要と開発試験項目、第3章にBEKの基本特性について述べ、第4章、第5章にBEKの照射特性と不純物分析、第6章にキャップセル製作、第7章にキャップセルの開発試験について述べている。

## 2. BEKキャップセルの開発

### 2.1 BEKキャップセルの概要

BEKキャップセルはJRR-3M気送管で数十時間から100時間程度の試料照射を行うために開発した試料照射用のキャップセルで、材料には芳香族系ポリエーテル樹脂（BEK）を用いている。BEKキャップセルの基本形状は従来の気送管用ポリエチレンキャップセルと同じネジ式である。

Fig. 2.1にBEKキャップセルを示す。BEKキャップセルはネジ式のインナーキャップセルとアウターキャップセルから構成され、アウターキャップセルは外径32.5mm、長さ96mm、肉厚2mmの円筒体で、搬送キャップセルとして使用する。照射試料は外径25mm、長さ74mm、肉厚2mmのインナーキャップセルに入れ照射する。照射後の試料は、キャップセル両端にある溝にキャップセル開封機の爪をセットし、遠隔操作でキャップセルを開封し取り出す。キャップセル重量はアウターキャップセルが38g、インナーキャップセルが16gで、合計54gである。このキャップセルで照射可能な試料重量は最大10gである。

### 2.2 BEKキャップセルの開発

BEKは、出光興産株式会社が高強度・高耐熱性なエンジニアリングプラスチックとして開発した芳香族系の熱可塑性ポリエーテル樹脂である。これまでの研究でカプトンやユーピレックスを超える耐放射線性を有することが明らかにされており、BEKの用途の一つとして、宇宙構造材料や核融合炉用絶縁材料といった大線量放射線環境下での適用も考えられる<sup>3)</sup>。この材料を成型加工品の用途に、しかも、短時間に大線量の照射を受けるような原子炉用照射キャップセルとして用いるためには、材料の照射効果や不純物等を明らかにし、照射キャップセルとしての健全性を評価する必要がある。このため、以下に示す各種試験を実施した。詳細については、第4章以下に述べている。

#### 2.2.1 試験項目

##### 1) 材料に関する試験

- ① 引張試験
- ② 曲げ試験
- ③ 衝撃試験
- ④ ガラス転移温度測定
- ⑤ 放射化分析による不純物分析

##### 2) キャップセルに関する試験

- ① 外観試験及びキャップセル開封試験
- ② 衝撃試験

- ③ 衝撃力測定
- ④ 搬送試験
- ⑤ 照射試験
- ⑥ 圧縮破壊試験
- ⑦ 放射能強度測定

### 2.2.2 試験サンプル照射及び照射場の特性

材料試験片及び試験用キャップセル等の試験サンプルの照射は、JRR-3M（最大熱出力20MW：スイミングプール型研究用原子炉）とJRR-4（最大熱出力3.5MW：スイミングプール型研究用原子炉）の照射設備で照射した。

引張、曲げ、衝撃試験用の試験片は、JRR-3Mの水力照射設備（HR-2）で照射した。キャップセル外観試験、開封試験、衝撃試験、搬送試験並びに圧縮破壊試験に用いるキャップセルは、大型試料の照射が可能なJRR-3Mの均一照射装置（SI-1）で照射した。キャップセル照射試験では、JRR-3M気送管（PN-1、2）でキャップセルを実際に照射した。キャップセルの放射能測定には、キャップセル照射試験で照射したキャップセルを試験サンプルとした。また、放射化分析のための試料の照射は、JRR-4の照射設備（気送管、Tパイプ、Dパイプ）で行った。Table 2.1 に各照射設備の特性を、Fig. 2.2、2.3 にJRR-3M、JRR-4の炉心配置を示す。

Table 2.1 Irradiation conditions of the irradiation facilities  
of the JRR-3M and JRR-4

Reactor	Irradiation facility	Irradiation dose rate (MGy/h)	Thermal neutron flux ( $10^{13} n/cm^2/s$ )	Fast neutron flux ( $10^{13} n/cm^2/s$ )
JRR-3M	HR-2	2.5	10.0	0.014
	SI-1	0.44	2.0	-
	PN-1	0.75	6.0	0.002
	PN-2	0.75	5.5	0.002
JRR-4	PN	2.0	4.0	0.75
	S-pipe	2.4	5.0	0.55
	D-pipe	2.3	4.2	0.55

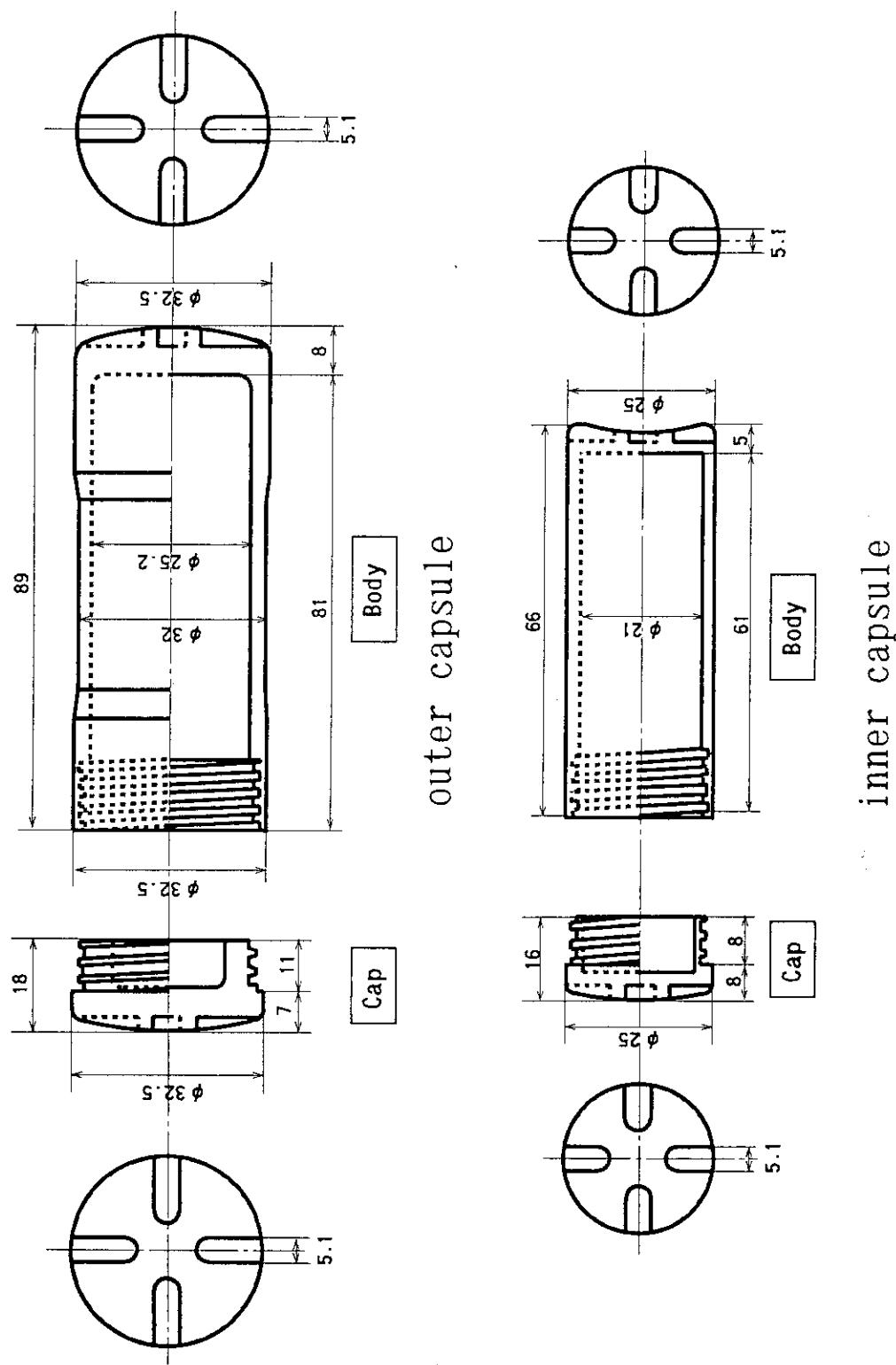


Fig. 2.1 JRR-3M pneumatic BEK capsule

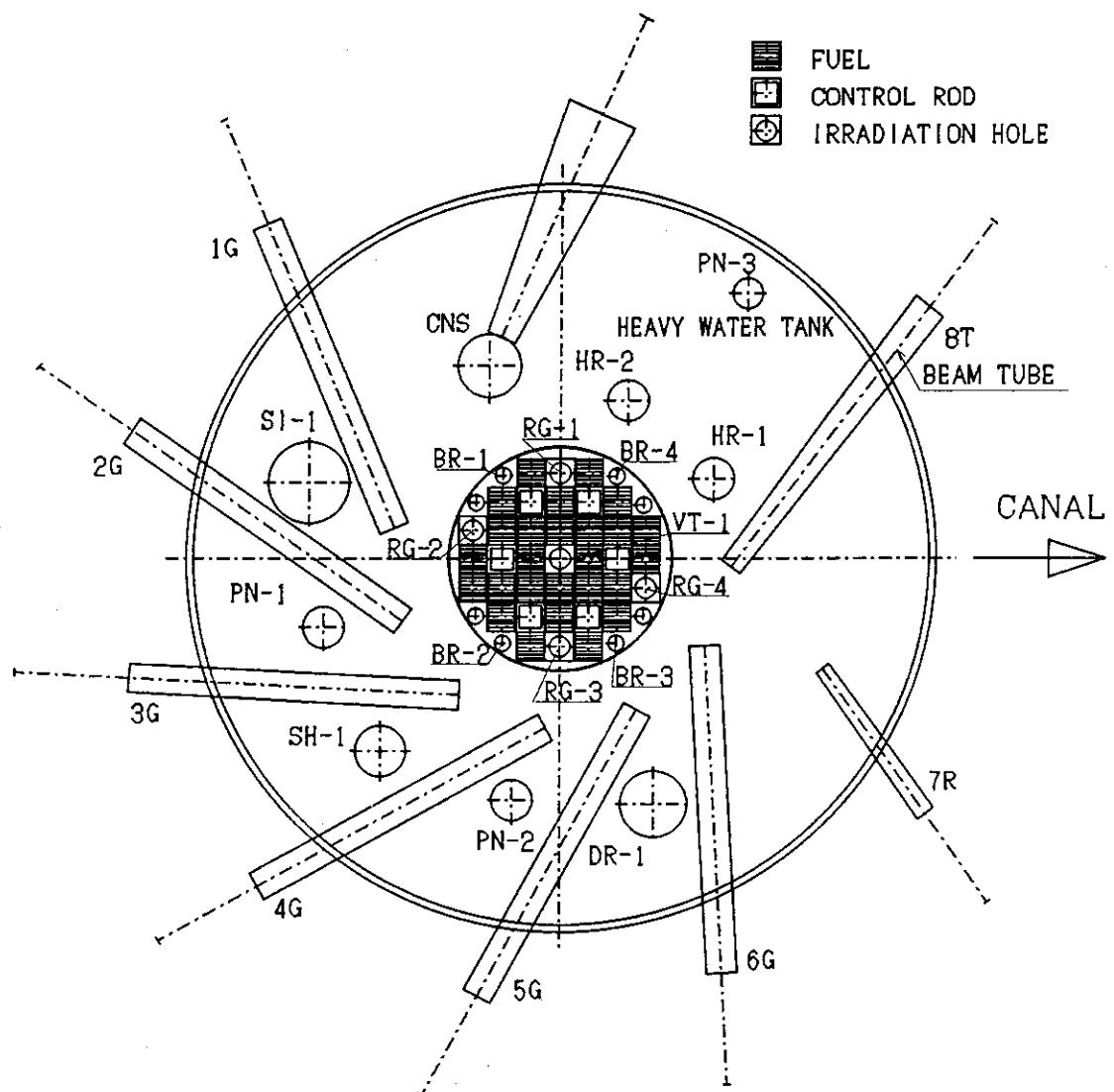
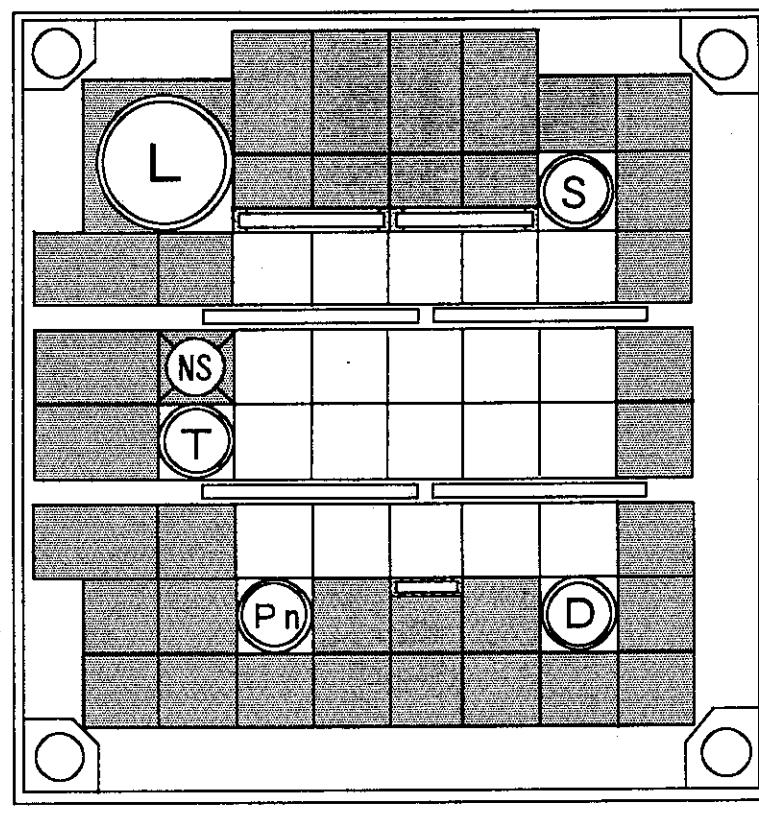


Fig. 2.2 JRR-3M core configuration



 Fuel

 L-Pipe

 Graphite Reflector

 D-Pipe

 Neutron Source

 Pneumatic Tube

 S-Pipe

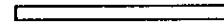
 Control Rod

Fig. 2.3 JRR-4 core configuration

### 3. BEKの基本特性

BEKは優れた耐熱性、耐薬品性と成型加工性を備えた材料で、耐放射線性にも優れた材料である<sup>3)</sup>。以下に、BEKの基本特性を原子炉照射キャップセルとの関連で示す。

#### 3.1 結晶性<sup>4)</sup>

BEKは結晶性の熱可塑性樹脂で、結晶化度は溶融状態からのアニーリング条件によって異なる。また、溶融状態からのクエンチングによって非結晶性になり、ガラス転移温度以上における熱処理条件等により結晶化度を制御することができる。照射キャップセルは耐衝撃性が必要なため、非晶性BEKでキャップセルを成型した。

#### 3.2 密度

BEKの密度は1.26 g/cm<sup>3</sup>で、ポリエチレン(0.95 g/cm<sup>3</sup>)より大きく、ポリイミド(Vespel SP-1、1.36 g/cm<sup>3</sup>)より小さい。従って、ポリエチレン及びポリイミド製の両キャップセルを搬送可能なJRR-3M気送管においては、キャップセル形状が同じであることから、キャップセル重量において問題となることはない。

#### 3.3 機械的性質

BEKの機械的性質をTable 3.1に示す。

#### 3.4 熱的特性

BEKの融点は360°C、ガラス転移温度は188°Cで、熱変形温度(18.6kgf/cm<sup>2</sup>)は178°Cである。JRR-3M気送管においては、照射中、キャップセルは常に温度約40°Cの窒素ガスで冷却されていることから、耐熱上問題になることはない。また、熱膨張係数がポリエチレンの約1/2と小さいことから、キャップセルの熱変形が少なく、キャップセルを管路内で移動させる気送管においては、搬送の確実性において優れている。

Table 3.1 Mechanical properties of BEK

- Tensile strength (MPa)	82
- Elongation (%)	21
- Flexural strength (MPa)	107
- Izod impact strength (kJ/m <sup>2</sup> )	50(notched)

## 4. BEKの照射特性

BEKの原子炉照射における機械的、熱的特性の変化を調べるため、Fig. 4.1 に示す引張、曲げ、衝撃試験片を JRR-3M 水力照射設備 (HR-2) で照射し、照射による機械的性質の変化を試験した。曲げ試験終了後、曲げ試験片から試料を採取し、DSC (Differential Scanning Calorimetry) によりガラス転移温度を測定した。試験片の照射量は最大 375 MGy で、気送管で 500 時間の照射に相当する照射量まで照射した。Table 4.1 に、各試験片の照射時間、照射量及び試験片の数を示す。

### 4.1 引張試験

Fig. 4.2 に照射による引張強さ、破断伸びの変化を示す。試験は、INSTRON 4301型引張・圧縮試験機を用い、ロードセル 5 kN、引張速度 2 mm/min、室温で行った。

未照射時の引張強さは 76.4 MPa で、250 MGy の照射、すなわち気送管で 350 時間に相当する照射までは引張強さは増加したが、375 MGy の照射では未照射時の 76%、58.2 MPa となった。破断伸びについては、未照射時が 26.7% で、伸びは照射とともに減少した。しかし、375 MGy の照射でも 2.7% の伸びを保持した。

### 4.2 曲げ試験

Fig. 4.3 に照射による曲げ強さの変化を示す。試験は INSTRON 4301 型引張・圧縮試験機を用い、ロードセル 1 kN、曲げ速度 2 mm/sec、支点間距離 60 mm、加圧クサビ及び支持台の半径 5 mm、室温で行った。

未照射時の曲げ強さは 114.5 MPa で、曲げ強さは低下することなく、375 MGy の照射でも初期値を保持した。

### 4.3 衝撃試験

Fig. 4.4 に照射によるアイゾット衝撃強さの変化を示す。試験は、秤量 5.5 J の TOYOSEIKI のアイゾット衝撃試験機を用い、室温で行った。

未照射時の衝撃強さは 37.4 kJ/m<sup>2</sup> で、衝撃強さは照射とともに低下し、375 MGy の照射では未照射時の 5.6%、2.1 kJ/m<sup>2</sup> まで減少した。

### 4.4 ガラス転移温度測定

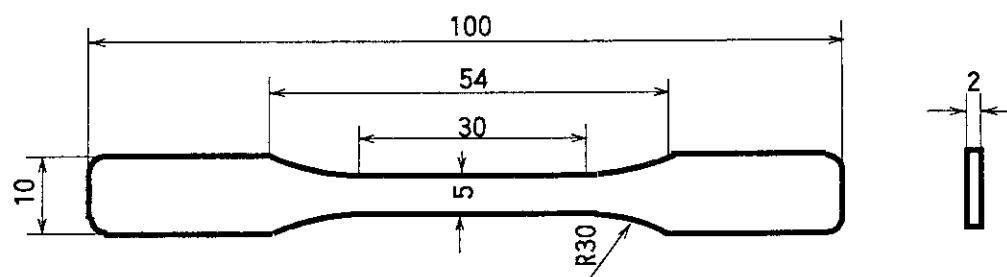
Fig. 4.5 に照射によるガラス転移温度の変化を示す。ガラス転移温度は SEIKO 電子工業の

DSC220を用い、昇温速度20°C/minで420°Cまで昇温して測定した。試料は、試験済みの曲げ試験片から各照射量に対し1点づつ約3~5mg採取した。

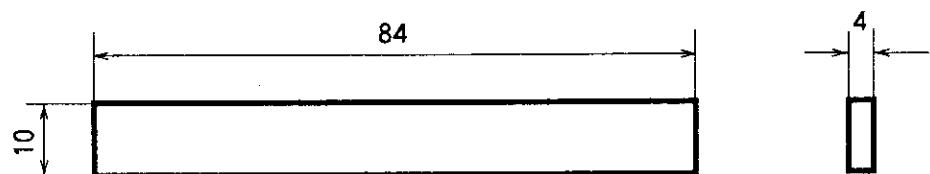
BEKのガラス転移温度は照射によって約50°C上昇した。ガラス転移温度が照射によって上昇するのは放射線による架橋のために、このことから、BEKの照射による機械的性質の変化は放射線により架橋が生じたものと推察される。

Table 4.1 Irradiation conditions of test pieces for mechanical test

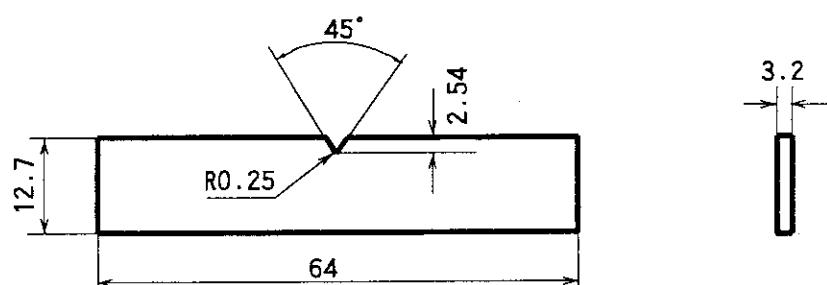
Irradiation Time in HR-2 (hr)	Total Dose in Reactor (MGy)	Number of Test Pieces		
		Tensile	Flexural	Impact
0	0	5	4	4
20	50	5	5	4
50	125	5	5	4
100	250	5	5	4
150	375	4	5	4



Test Piece for Tensile Test



Test Piece for Bend Test



Test Piece for Izod Impact Test

Fig. 4.1 Test pieces of BEK for mechanical property test

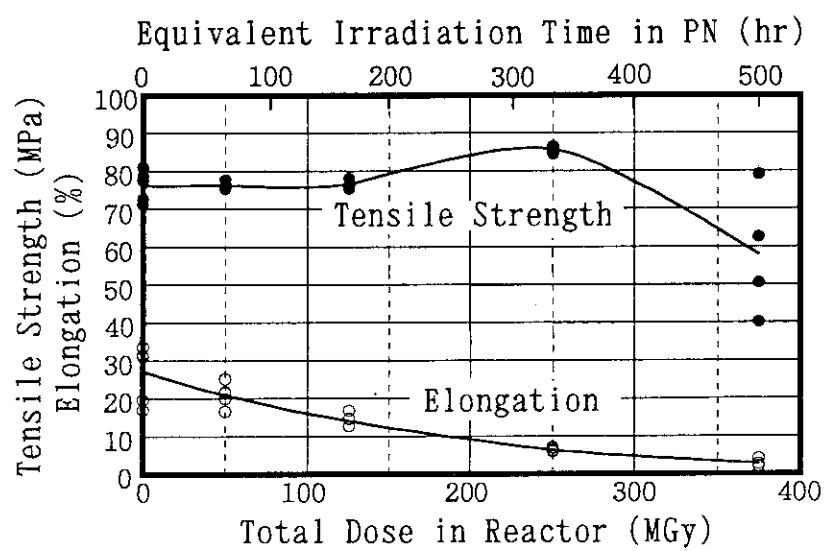


Fig. 4.2 Tensile test of BEK

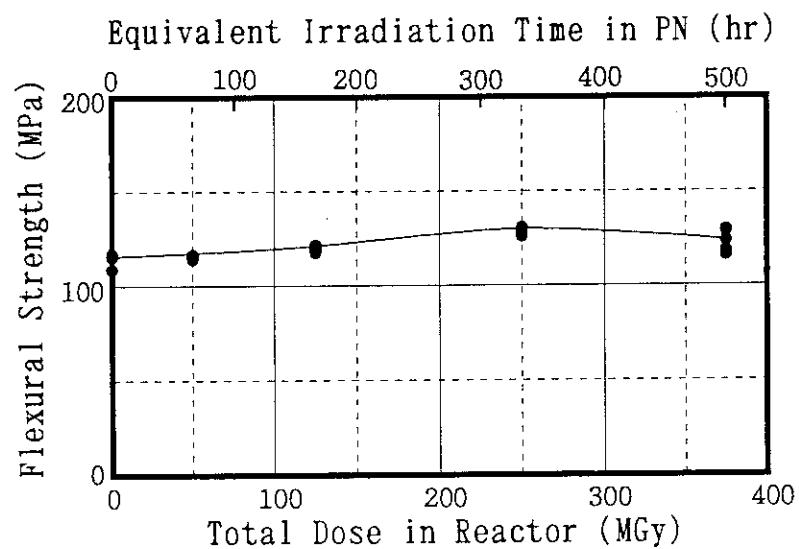


Fig. 4.3 Flexural test of BEK

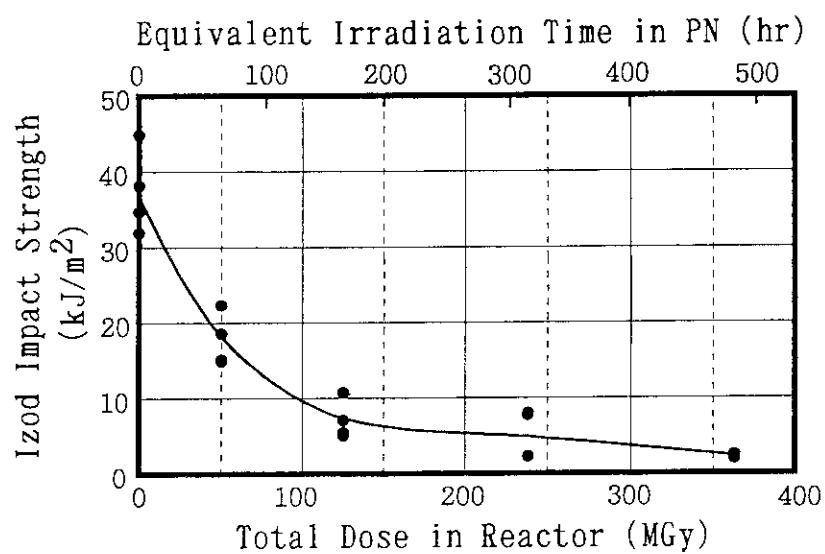


Fig. 4.4 Izod impact test of BEK

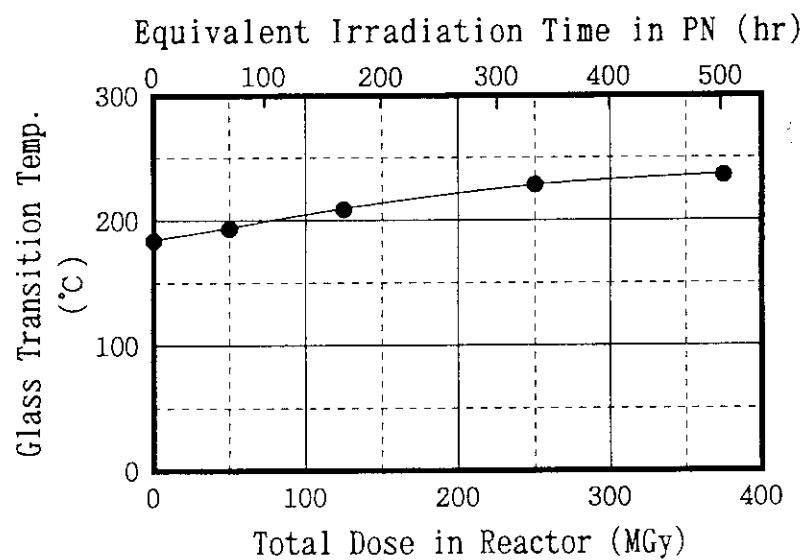


Fig. 4.5 Glass transition temperature of BEK

## 5. 放射化分析による B E K の不純物分析

高分子材料に含まれる不純物として、ポリマー及び成形品の製造工程から混入する不純物がある。ポリマー製造工程からは触媒残渣、添加剤等であり、成形品製造工程からは粉碎機、押出機、成型機、金型等からの混入不純物である。これらの不純物は中性子との核反応で放射性物質となり、照射後の試料やキャップセルは遮蔽を備えたホットセル等で取り扱わなければならなくなる。

一般に、放射化分析の場合、短半減期核種の分析を行う場合は照射後直ちに試料を取り出し測定する必要がある。また、R I 製造やその他の場合においても、その後の処理、測定等のため速やかに試料を取り出す必要がある。さらに、キャップセルの取り扱い、処理・処分の面から、キャップセルの誘導放射能はできるだけ低いことが望まれる。このような観点から、試料照射に用いるキャップセルや試料包装材には不純物の少ない材料が求められ、不純物の評価が求められる。このため、B E K ポリマー及び成形品の放射化分析を実施し、不純物の定量分析を行った。

### 5.1 分析試料

放射化分析は、キャップセル本体及び蓋に使用した B E K のペレット（2 軸押出品）2 種類と射出成形品であるキャップセル本体及び蓋の計 4 種類について行った。試料は、精製水で表面洗浄後、精製水中で超音波洗浄し、恒温槽で十分乾燥させた後、一定量を秤量し、十分に洗浄、乾燥した包装材に封入した。

### 5.2 試料照射

試料の照射は、分析対象核種毎に半減期が異なるため、各試料について、短時間（10秒）、中時間（10分）、長時間（6時間）の照射を行った。照射にあたっては、照射毎の照射場の中性子束の変動を補正するため、中性子モニター（Au、Co）を入れて照射した。また、定量分析に使用する標準物質は、標準溶液、高純度の試薬、金属を調整し、照射試料と一緒に照射した。Table 5.1 に照射条件、試料重量、標準物質元素を示す。

### 5.3 測定及びデータ解析

短時間照射試料は、分析対象核種の半減期が短いため、J R R - 4 の気送管で照射後、J R R - 4 実験室の放射化分析装置（Ge 検出器：ORTEC GMX-10200、M C A : CANBERRA S-35plus）で測定した。また、中、長時間照射試料は、J R R - 4 の T パイプと D パイプで照射後、研究炉実験管理棟の実験室まで運搬し、低エネルギー領域（0-400KeV）と全エネルギー領域（0-4MeV）の測定が同時にできる放射化分析装置（Ge 検出器：ORTEC GMX-20190-S、M C A : CANBERRA S-95）で測定した。データ解析は、SEIKO の「環境用ガンマ線分析システム」を用い、照射時間、

冷却時間、測定時間、重量等を考慮し、比較法で不純物の定量を行った。エネルギー校正には、4 MeVまでの領域で一様に分布するエネルギーを持つ  $^{56}\text{Co}$  線源を用いた。

#### 5.4 測定結果

Table 5.2 に分析結果を、Fig. 5.1~Fig. 5.6 に短、中、長時間照射した成型品の  $\gamma$  線スペクトルを示す。キャップセル本体については、ペレットから 13 元素、成型品から 14 元素が検出され、ペレットに微量含まれていた Sc は成型品からは検出されず、ペレットに含まれていない Al が成型品から検出された。ペレットに含まれていた Cr、Fe、Co、Ni、Cu については、成型品でその含有量が増加していることから、これらについてはキャップセル成型工程で混入したものと考えられた。また、蓋については、ペレットから 13 元素、成型品から 15 元素が検出された。このうちペレットから検出された Al については成型品から検出されず、ペレットに含まれていない Sb、Ta、W が成型品から検出された。これらについても成型工程で混入したものと考えられた。Co の含有量は、キャップセル本体が 0.72 ppm、蓋が 0.38 ppm であった。

Table 5.1 Irradiation conditions, sample weight and standard elements for activation analyses of BEK

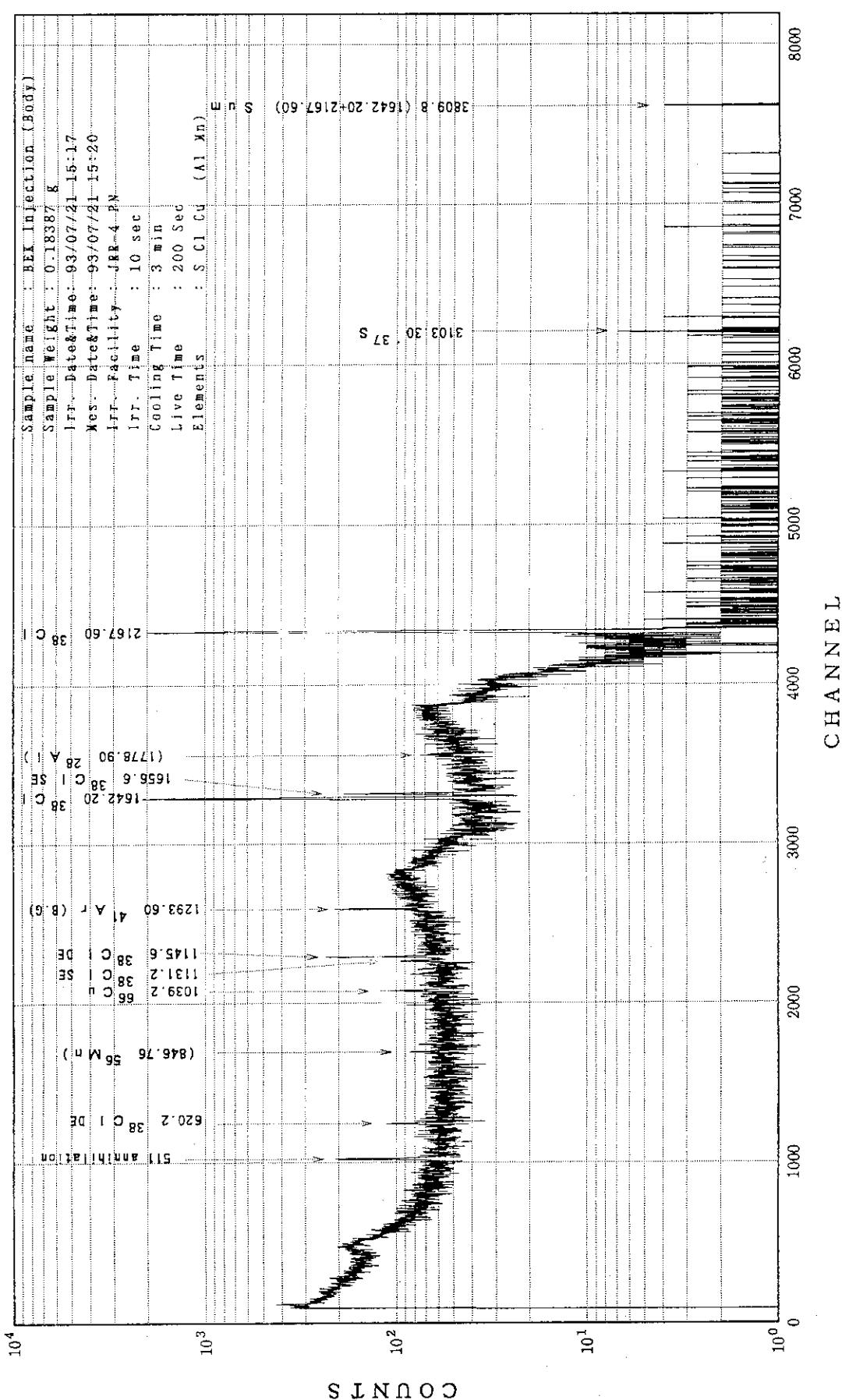
Irradiation Time	10sec	10min	6hr
Irradiation Facility	JRR-4 PN	JRR-4 T-pipe	JRR-4 D-pipe
<hr/>			
Sample Weight(g)			
- Pellet(Cap)	0.12315	0.13105	0.14925
- Pellet(Body)	0.15742	0.15833	0.14982
- Injection(Cap)	0.17700	0.16338	0.15429
- Injection(Body)	0.18387	0.16451	0.17260
<hr/>			
Standard Elements	Al, S, Cl, Mn, Cu	Na, K, Cr, Fe, Ni, Br, Ta, W, Au	Sc, Co, Zn, Sb, Au
<hr/>			

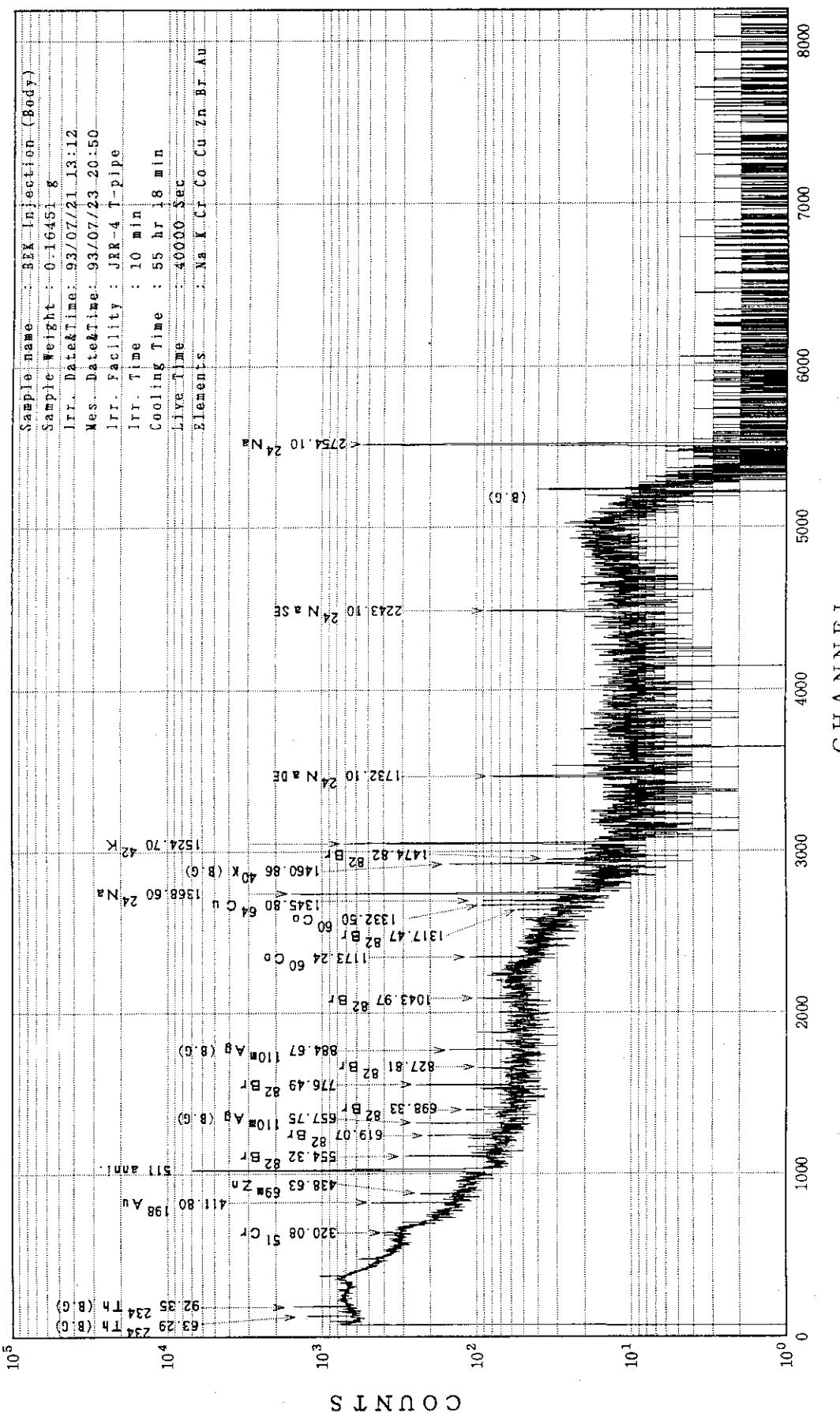
Table 5.2 Activation analyses of BEK

unit ppm ( $\mu\text{g/g}$ )

Element	Pellet (Cap)	Pellet (Body)	Injection (Cap)	Injection (Body)
N a	0.894±0.013	1.74±0.028	1.83±0.031	1.15±0.021
A l	1.68±0.24	—	—	0.783±0.19
S	—	3340±690	—	2930±620
C l	2250±37	2350±37	2370±35	2350±35
K	39.6±0.64	79.1±1.4	74.3±1.5	49.3±1.3
S c	0.000375±0.000065	0.000312±0.000049	0.000620±0.000068	—
C r	0.444±0.0060	0.393±0.0043	0.743±0.0059	0.633±0.0084
M n	—	—	※ < 0.171±0.076	—
F e	5.01±0.56	5.41±0.42	36.2±0.83	10.8±0.98
C o	0.0283±0.0013	0.0615±0.0013	0.375±0.0039	0.724±0.0079
N i	0.726±0.12	0.519±0.094	1.35±0.12	1.99±0.21
C u	9.29±1.6	6.23±1.3	11.8±1.4	8.68±1.3
Z n	6.85±0.11	6.749±0.086	7.149±0.092	6.620±0.12
B r	0.338±0.0050	0.0817±0.0047	0.0897±0.0049	0.0454±0.0030
S b	—	0.00340±0.00085	0.00411±0.00083	0.00537±0.0017
T a	—	—	2.81±0.74	—
W	—	—	0.0511±0.0038	—
A u	0.000617±0.000078	※ < 0.000450±0.00016	0.00110±0.00019	0.000975±0.000064

※ Less than Detection Limit

Fig. 5.1  $\gamma$ -ray spectrum of body of BEK capsule (Short half life nuclides)

Fig. 5.2  $\gamma$ -ray spectrum of body of BEK capsule (Middle half life nuclides)

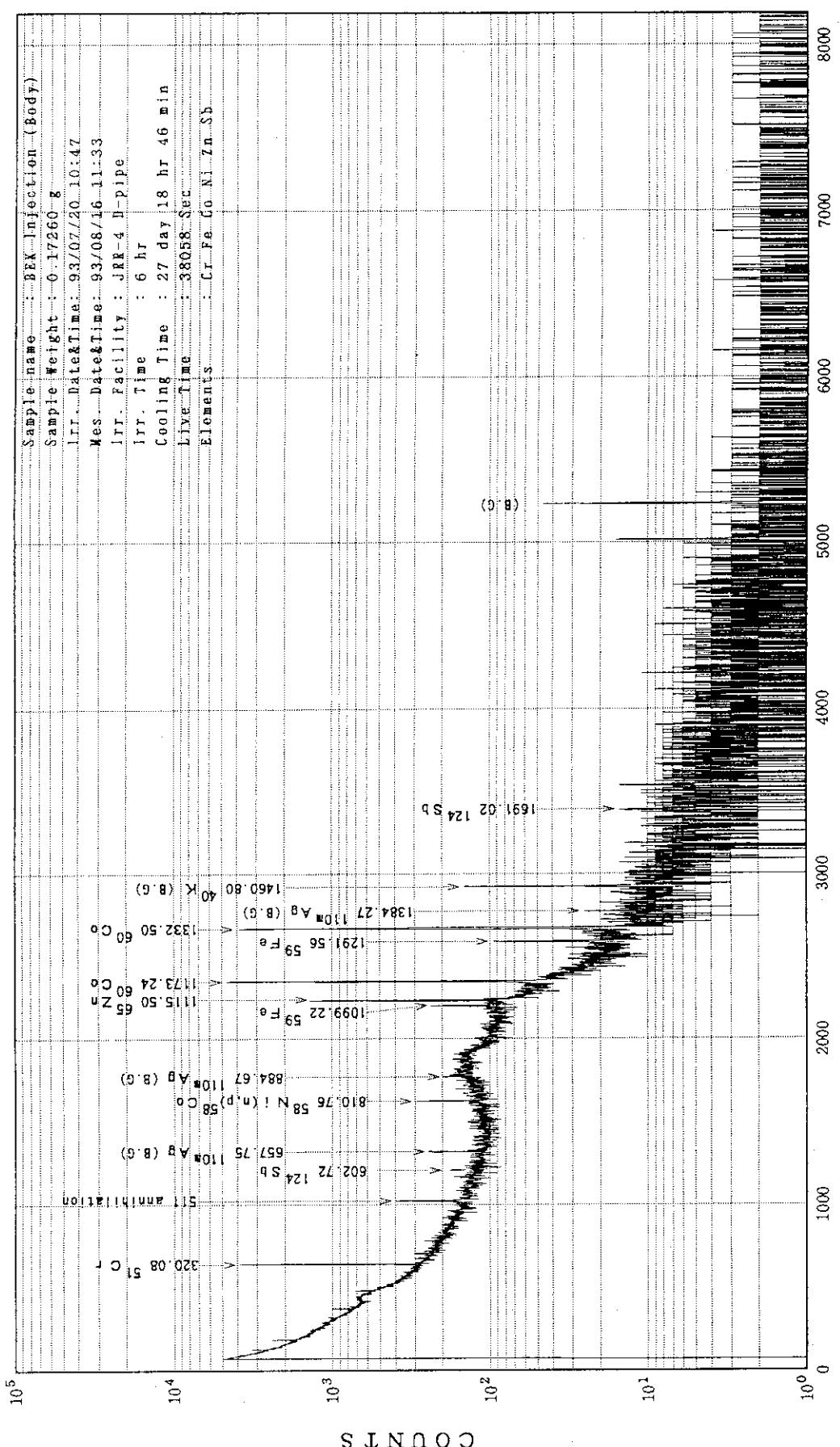
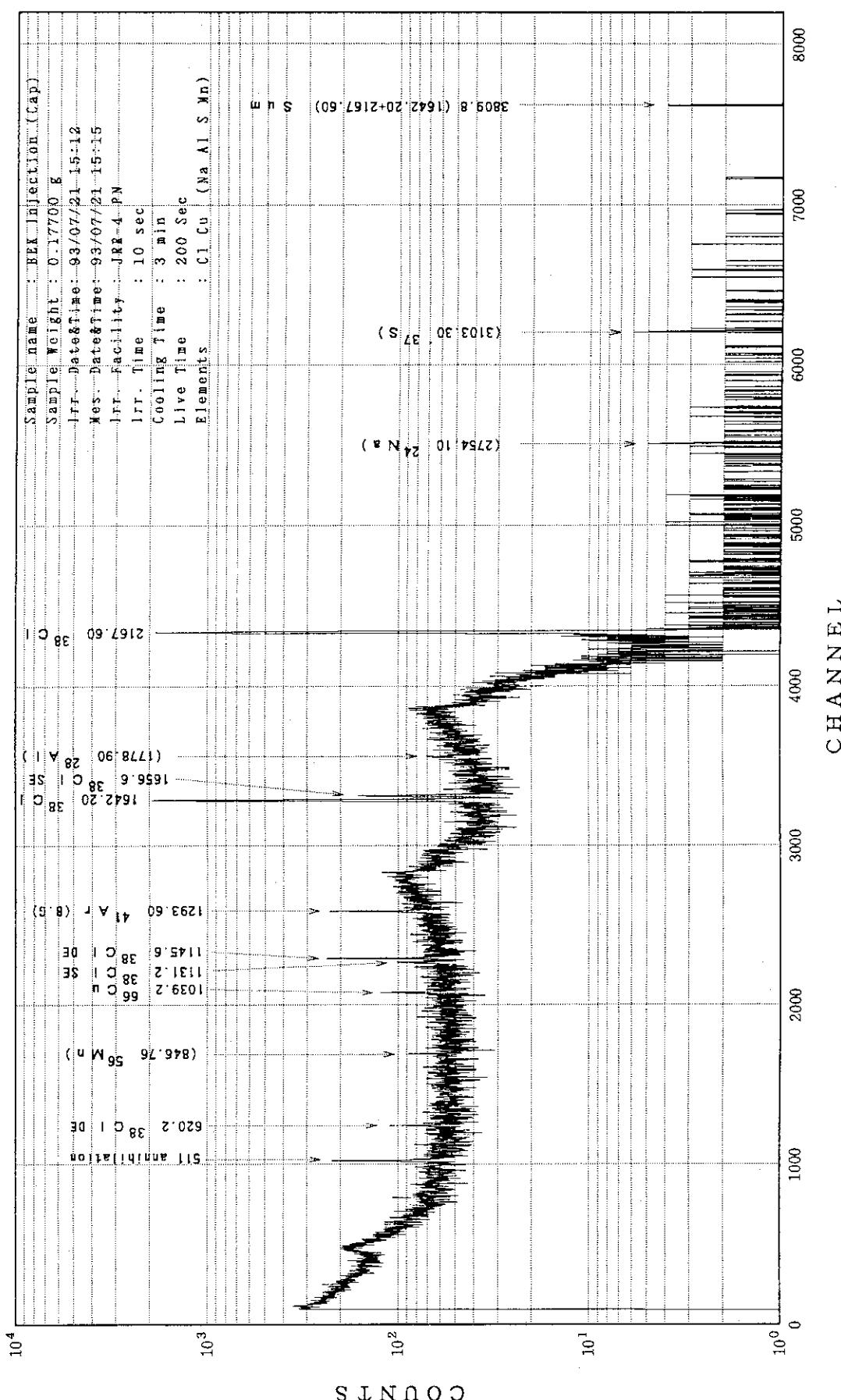
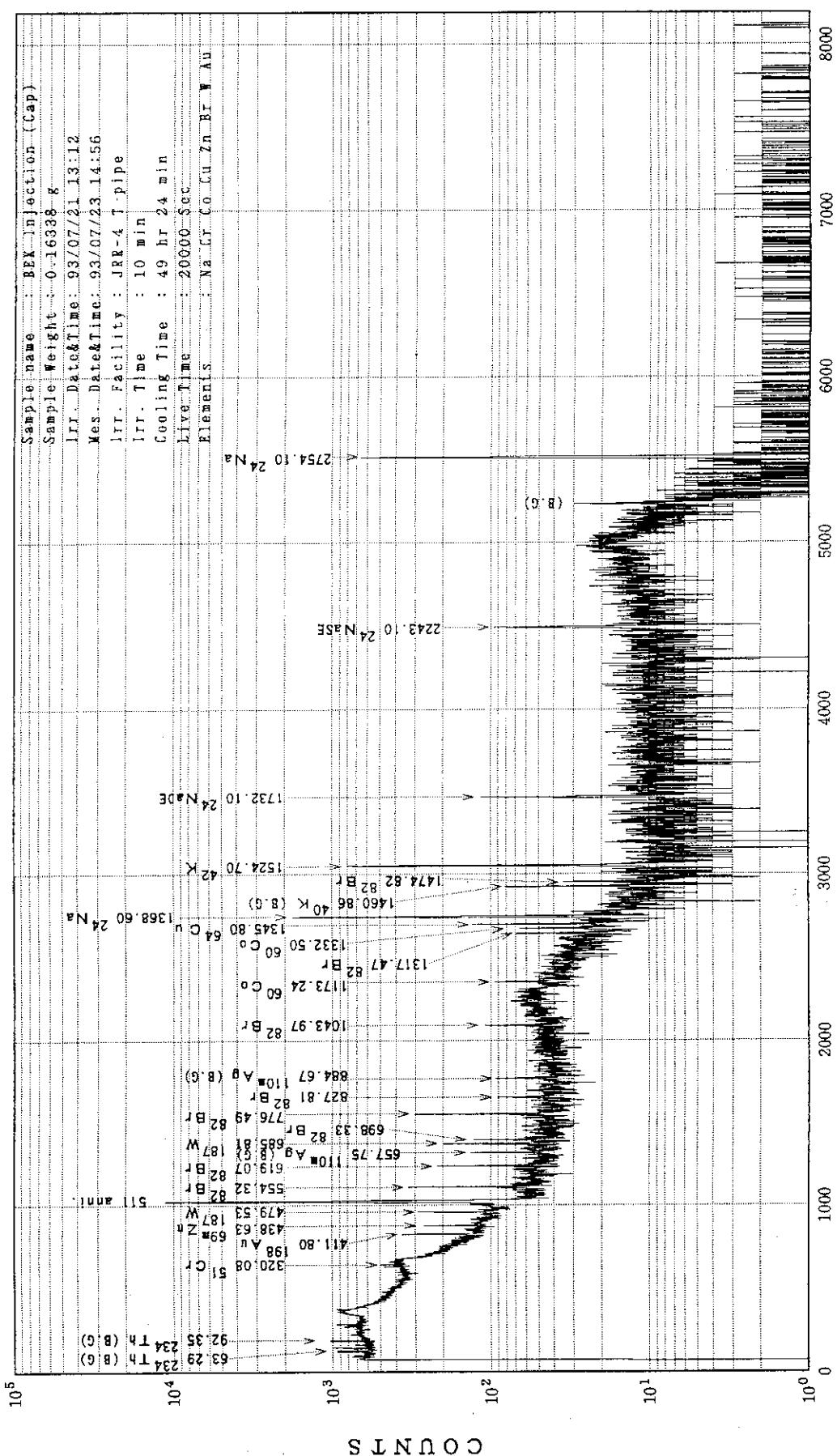


Fig.5.3  $\gamma$ -ray spectrum of body of BEK capsule (Long half life nuclides)

Fig. 5.4  $\gamma$ -ray spectrum of cap of BEK capsule (Short half life nuclides)

Fig. 5.5  $\gamma$ -ray spectrum of cap of BEK capsule (Middle half life nuclides)

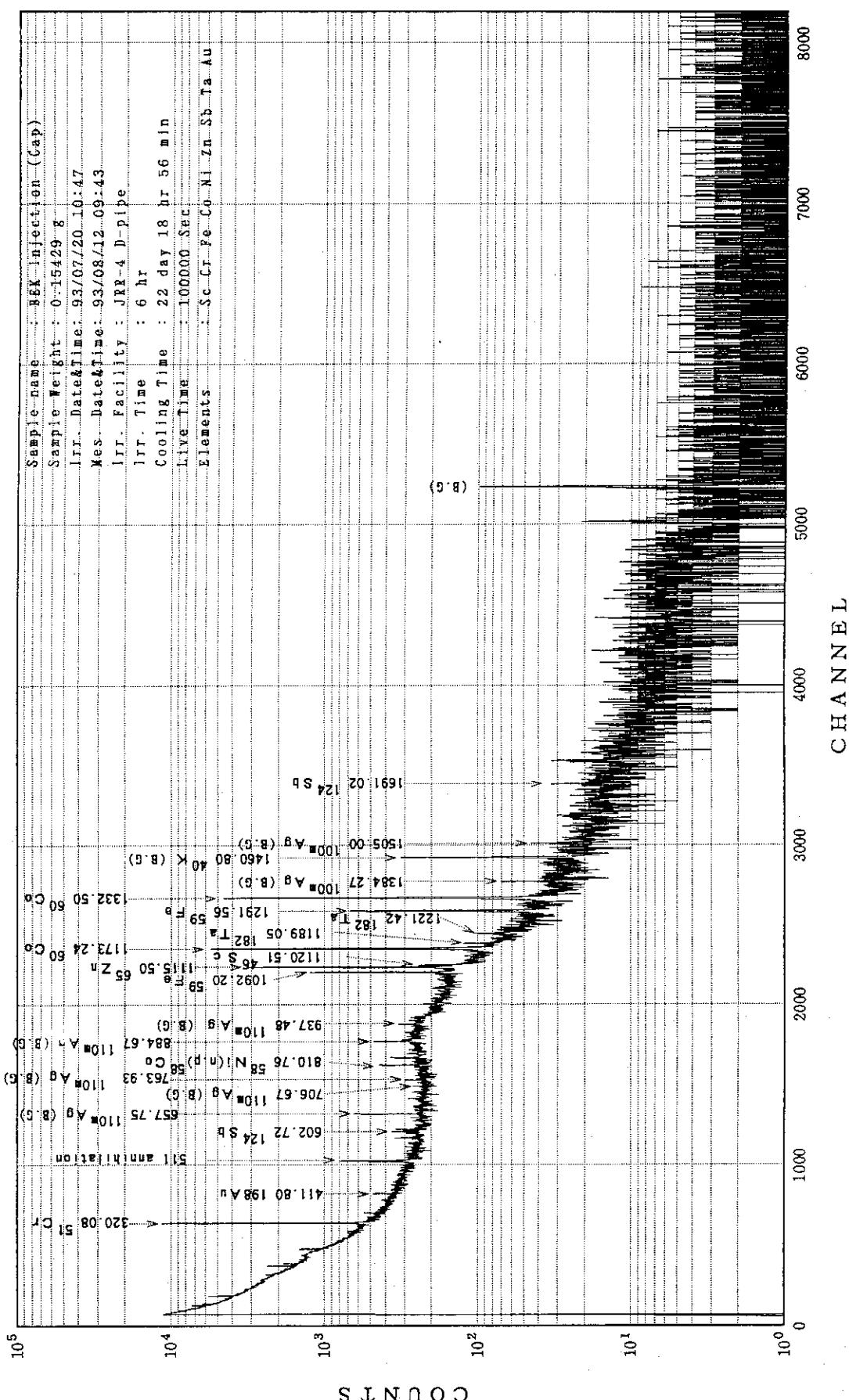


Fig. 5.6  $\gamma$ -ray spectrum of cap of BEK capsule (Long half life nuclides)

## 6. BEKキャップセルの試作

原子炉用照射キャップセルは放射化分析やラジオアイソトープ（R I）の製造等のため、各種照射試料を一定時間原子炉内で照射するための試料容器であり、照射中はもちろん、その後の工程においても健全でなければならない。

BEKキャップセルは、カドミウム比の高いJRR-3M気送管で100時間程度の試料照射を行うことを目的に開発したキャップセルで、主に放射化分析の試料照射に使われる。気送管で試料照射を行う場合、Fig. 6.1 の系統図に示したように、先ず試料を入れたキャップセルをキャップセル挿入機にセットし、次いで、窒素ガスで炉室内にある詰替セルの転送機に送り、その後原子炉内の照射位置まで搬送する。搬送速度は10.5m/secである。原子炉内で一定時間照射したキャップセルは、往路と同じ経路を通って転送機まで戻り、実験利用棟の詰替セルに取り出す。このように、1回の照射でキャップセルは転送機に2度、照射位置と詰替セルで各1度づつ、合計4度転送機等のストッパーに衝突する。このような条件でキャップセルを使用するため、材料の耐放射線性はもとより、キャップセルは十分な耐衝撃性をも備えていなければならない。このため、キャップセルの製作にあたっては、JRR-3M気送管を模擬したキャップセル模擬搬送装置を炉外に設置し、キャップセルの耐衝撃性を試験しながら進めた。

### 6.1 キャップセル模擬搬送装置

キャップセル模擬搬送装置は、窒素ガスでキャップセルを長さ8mの直管内を速度10～16m/secで飛行させ、実機を模擬したストッパーに衝突させ、その健全性を試験するものである。キャップセル速度は窒素ガスの流量で制御し、速度はストッパーの直前に間隔33cmで取り付けた2つの光電式センサー間の通過時間で検出する。

### 6.2 金型製作

金型の製作にあたっては、キャップセル本体コア部の傾倒、成型方向、ガス抜き、樹脂進入路、入れ子の形状、肉厚等の諸条件を考慮した。その後、BEK樹脂を用いて成型試験を行い、ゲート部を調整した。次いで、インナーキャップセルの入れ子を製作した。

### 6.3 キャップセル製作

射出成型法でキャップセルを製作し、ネジのはめ合い、キャップセル開封用溝の修正を行って試作キャップセルを試作した。試作キャップセルの耐衝撃性をキャップセル模擬搬送装置で試験した結果、キャップセル本体と蓋のネジ部に亀裂が生じた。このため、キャップセルを改良し、衝撃試験を行った。また、照射後の耐衝撃性を確認するため、キャップセルをS I - 1で最大112MGy照射し、

衝撃試験を行った。その結果、一部についてネジ部に亀裂がみられたことから、さらに改良を加え、未照射状態で衝撃試験を行った。その結果、速度約1.5 m/sec、使用条件の約1.4倍の速度でもキャップセルは全て健全であったことから、本キャップセルを最終形状とした。照射後の衝撃試験については第7章で述べている。

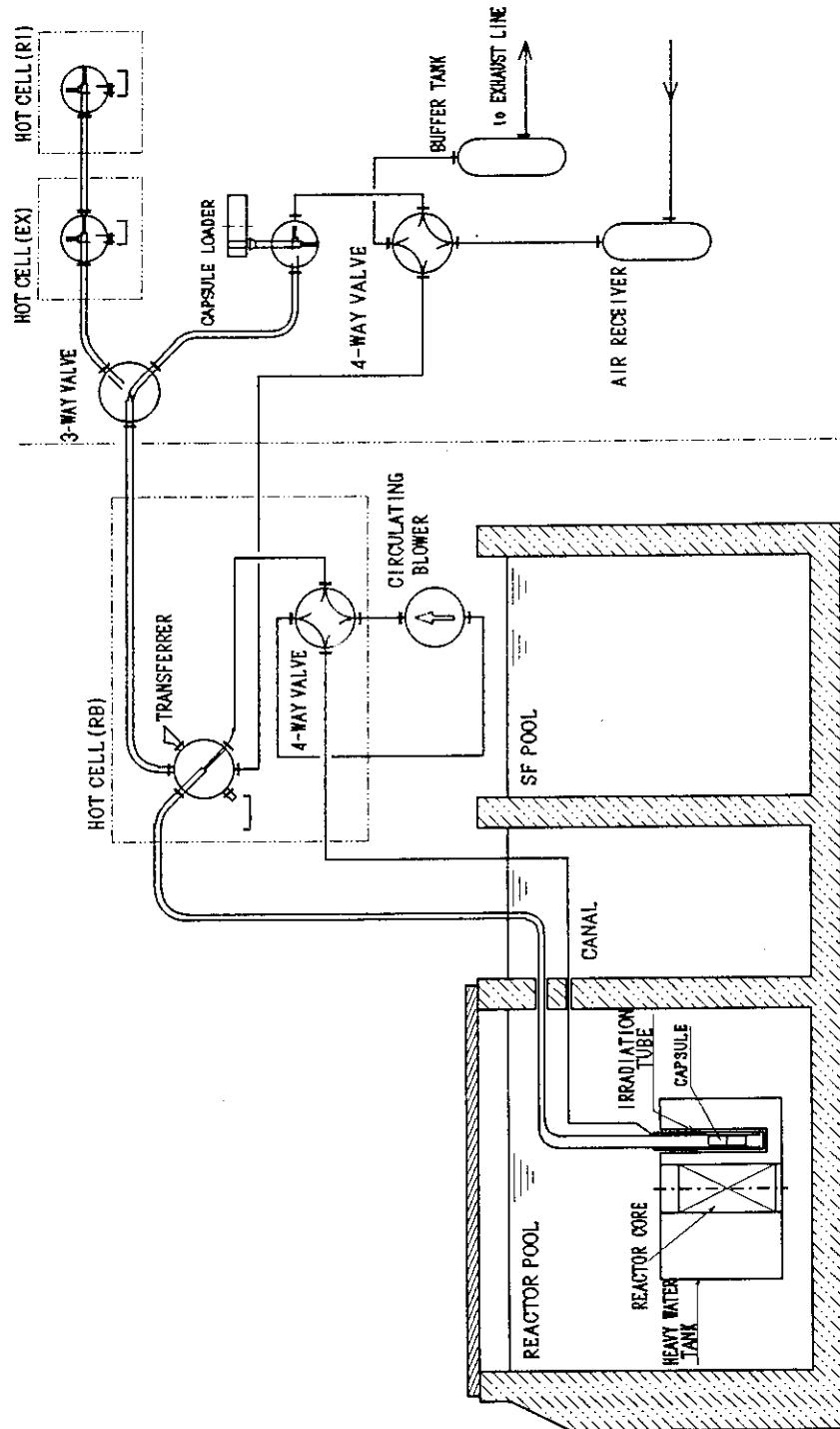


Fig. 6.1 Schematic drawing of JRR-3M pneumatic tube

## 7. キャプセル照射試験

キャプセルの照射健全性を試験するため、最終形状を確定したB E Kキャプセルを照射し、外観試験、キャプセル開封試験、キャプセル模擬搬送装置による衝撃試験、衝撃力測定、搬送試験、照射試験、圧縮破壊試験、放射能強度測定を行った。

### 7.1 照射条件

B E Kキャプセルの照射はS I - 1で行った。照射量は、3 7 MGy、7 5 MGy、1 1 2 MGy、1 5 0 MGy の4種類で、1 5 0 MGyの照射量は気送管で2 0 0 時間の照射量に相当する。照射キャプセル数は各照射量とも9個で、それらを各試験に割り当てた。Table 7.1 に、キャプセルの照射時間、照射量、各試験のキャプセル数を示す。

照射は、キャプセルをFig. 7.1 に示すアルミニウム製の照射容器に入れ、それをさらに均一照射用のアルミニウムホルダーに入れて行った。照射にあたっては、照射孔内の中性子束及び $\gamma$ 線分布に勾配があることから、各キャプセルの照射量が均一になるよう、照射途中で照射容器を1 8 0 度回転した。

### 7.2 外観試験及びキャプセル開封試験

照射キャプセル全数について、照射後、外観試験、キャプセル開封試験を実施した。未照射キャプセルの色調は黒褐色であり、照射によってさらに黒化した。しかし、1 5 0 MGy の照射でもキャプセルの変形はなく、キャプセルの開封性にも異常はなかった。

### 7.3 衝撃試験

キャプセル衝撃試験は、6.1 で述べたキャプセル模擬搬送装置を用いて行った。試験は、模擬試料として鉛粒1 0 g を用い、J R R - 3 M 気送管での照射を想定し、ストッパーへの衝突面をキャプセルの蓋-底-蓋-底の順に4度変え、一回分の照射に相当する衝撃をキャプセルに与え、その時々の異常の有無を観察した。試験キャプセル数は各照射時間とも4個で、試験速度は初め約1 1 m/sec で行い、その後同じキャプセルを用い、速度約1 3 m/sec と約1 5 m/sec でも試験した。その結果、全ての条件においてキャプセルは全数異常なく、搬送速度においても使用条件の1.4倍の余裕を持ち、気送管で2 0 0 時間の照射に相当する照射量まで健全であることが確認できた。Fig. 7.2 に、未照射及び照射キャプセルの試験速度を示す。

### 7.4 衝撃力測定

キャップセル衝突時の衝撃力を評価するため、キャップセル模擬搬送装置のストッパーをロードセルに変え、キャップセル速度と重量をパラメータとして衝撃力を測定した。ロードセルはミネベア（NMB）製の小型圧縮型（C2MI-1T）で、オートバランス式動ひずみ測定器（NMB DAS-406）、デジタルオシロスコープ（YOKOGAWA DL3120B）を用い測定した。試験は、重量パラメータとして、①鉛粒10gの模擬試料入りBEKキャップセル、②鉛粒20gの模擬試料入りBEKキャップセル、③模擬試料無しのBEKキャップセル、④BEKアウターキャップセルのみの4種類について行い、速度パラメータとして、キャップセル速度を約8m/secから約16m/secの範囲で変化させた。その結果、Fig. 7.3に示すように、衝撃力はキャップセル速度に比例して増加し、①の条件で速度10.5m/secの時、衝撃力は約600kgであった。また、インナーキャップセルとアウターキャップセルを組み合わせた①～③の場合、速度が同じであれば衝撃力に大きな変化はなく、④と比較して衝撃力にバラツキがみられた。これは、④の場合はアウターキャップセルのみで衝突体は単一であるのに対し、①～③の場合には内部にインナーキャップセルや模擬試料が入っているため、それが別個の衝突体として作用するためと考えられた。

### 7.5 搬送試験

JRR-3M気送管におけるキャップセルの搬送性及びキャップセルの耐衝撃性を確認するため、未照射及び照射キャップセル各2個づつを用い、原子炉停止時に通常の照射と同じ方法で搬送試験を実施した。その結果、キャップセルの搬送性及び耐衝撃性とも異常はなく、気送管で200時間の照射に相当する照射キャップセルでも耐衝撃性は十分であった。

### 7.6 照射試験

キャップセル搬送試験においてBEKキャップセルの搬送性及び耐衝撃性に問題がないことが確認されたため、JRR-3M気送管でBEKキャップセルの照射試験を実施した。照射時間は20分、1時間、5時間、20時間、50時間、100時間、150時間の7種類である。照射キャップセル数は各照射時間について2個づつで、うち1個については重さ10gのシリコン片を模擬試料とし、他の1個についてはBEKフィルムを入れて照射した。試験の結果、各キャップセルとも異常はなく、150時間の実照射においてもBEKキャップセルは実用上十分な性能を有していることが確認できた。

### 7.7 圧縮破壊試験

未照射及び照射済キャップセルの圧縮破壊試験を、ミネベア（NMB）製の万能引張圧縮試験機（TCM-1000型）を行い行った。試験にはアウターキャップセルのみを用い、加圧クサビをキャップセル長手方向中心に直角にセットし、ロードセル10kN、クロスヘッド速度（CHS）2mm/min及び20mm/min、スパン間隔30mm、室温で行った。加圧クサビ及び支持台の半径は5mmである。

Fig. 7.4にキャップセルの圧縮破壊荷重と破壊時の変形量を示す。ここで、圧縮破壊荷重はキャ

プセルに亀裂が入った時またはキャップセルが破壊した時の荷重で、変形量は、圧縮破壊荷重時のキャップセルの原直径に対する変形寸法の割合である。Fig. 7.4 に示した試験結果のうち、未照射及び3.7 MGy 照射についてはキャップセル本体に亀裂が入ったのみで破壊には至らなかったが、7.5 MGy 以上の照射については、図に示した荷重でキャップセル本体に亀裂が生じ、その後破壊した。

### 7.8 放射能強度測定

B E K キャップセルの放射能強度を評価するため、キャップセル照射試験でB E K フィルムを入れて1時間～150時間照射したキャップセルの表面線量当量率を測定した。測定には、詰替セル内の電離箱式線量計を用い、B E K フィルムを入れたまま、照射後5分から測定した。結果をFig. 7.5 に示す。照射直後の放射能強度は50時間照射でほぼ飽和し、線量当量率は最大で約270 mSv/h であった。また、放射能の減衰曲線から、放射能の減衰は初めは<sup>38</sup>Cl の半減期(37.3分<sup>5)</sup>)で、その後は<sup>42</sup>K の半減期(12.36時間<sup>5)</sup>)で減衰した。

Table 7.1 Irradiation conditions of capsule for capsule irradiation tests

Irradiation Time in SI-1(hr)	0	85	170	255	340
Total Dose in Reactor(MGy)	0	37	75	112	150
Number of Capsule					
- Capsule Impact Test	5	4	4	4	4
- Capsule Transfer Test	2	2	2	2	2
- Capsule Compression Fracture Test	3	3	3	3	3

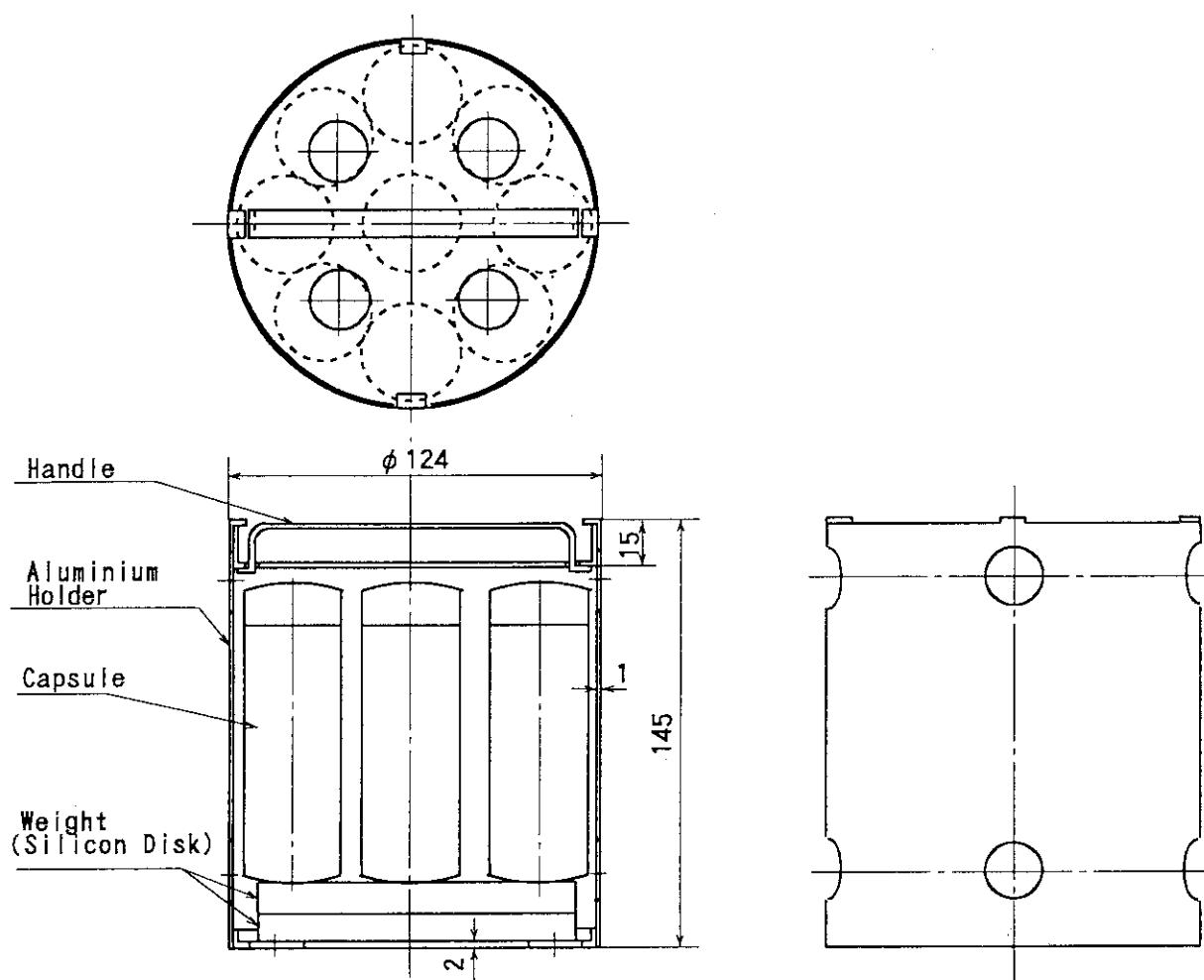
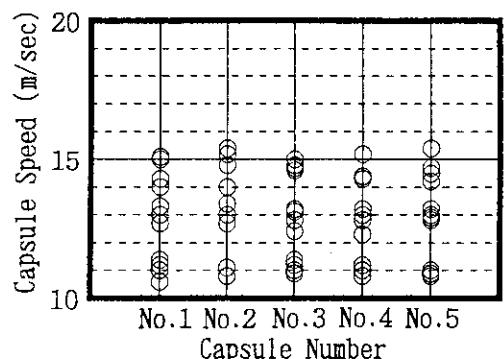
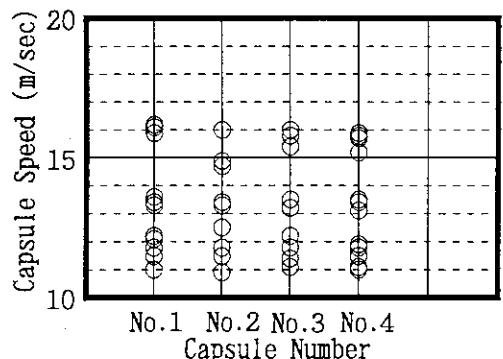


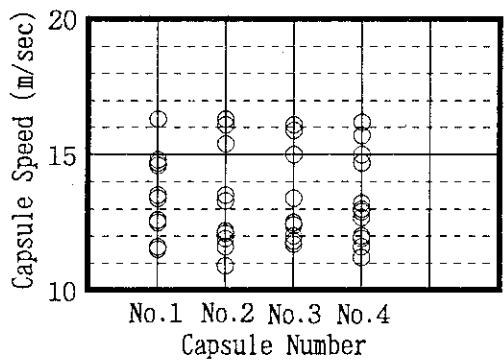
Fig. 7.1 BEK capsule irradiation holder



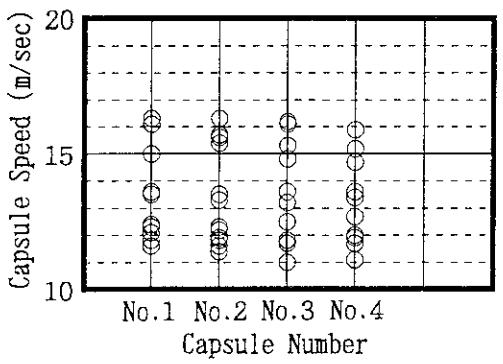
(A) Unirradiated Capsule



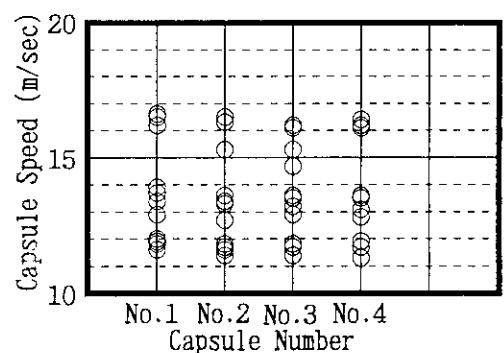
(B) 37MGy Irradiated Capsule



(C) 75MGy Irradiated Capsule



(D) 112MGy Irradiated Capsule



(E) 150MGy Irradiated Capsule

Fig. 7.2 Capsule speed at capsule impact test

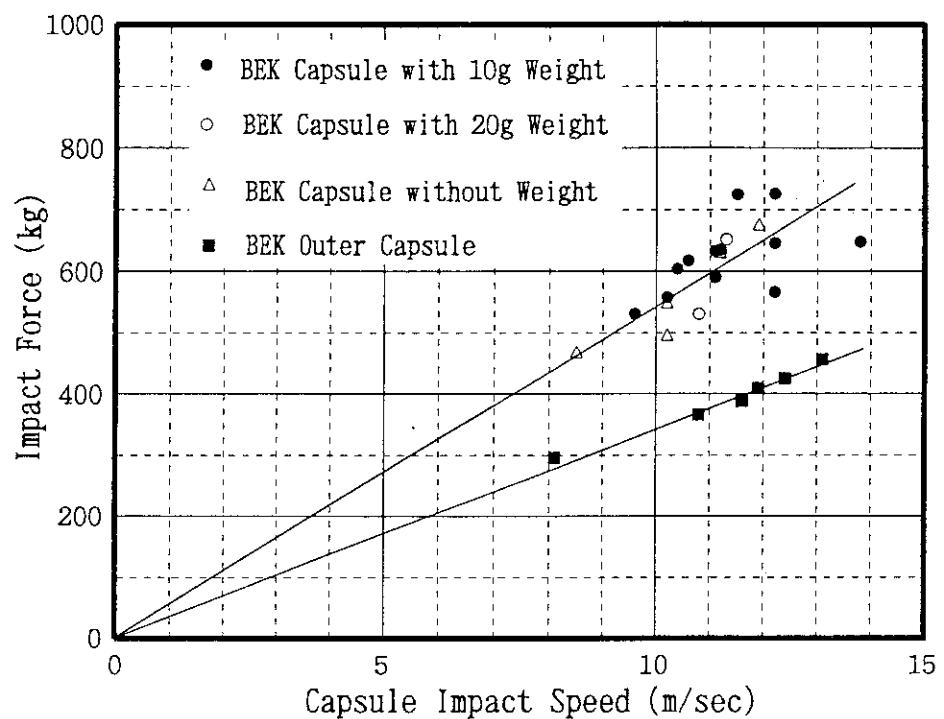


Fig. 7.3 Capsule impact force

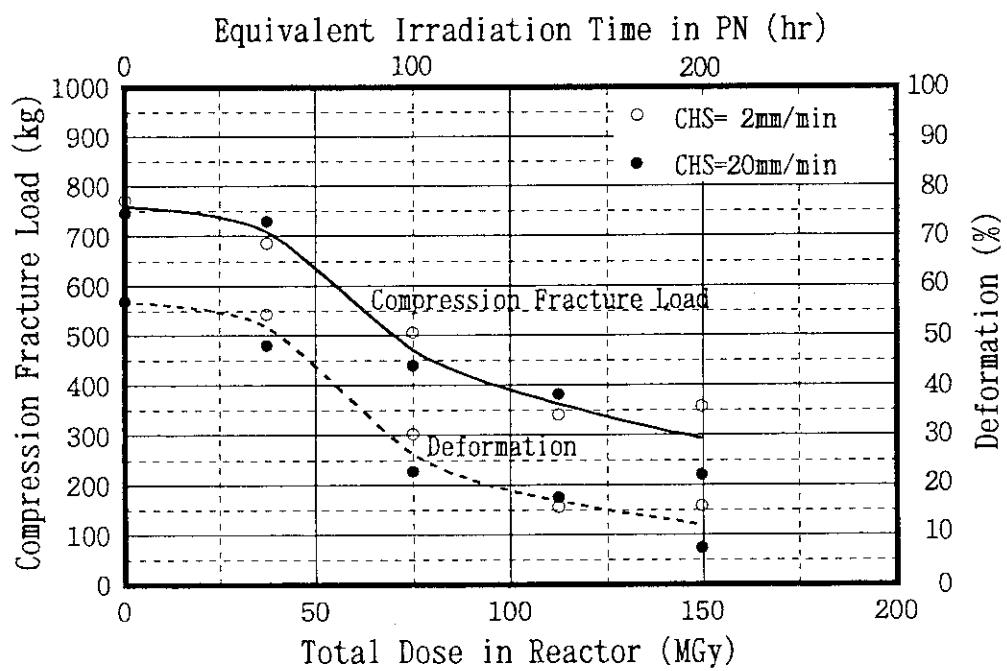


Fig. 7.4 Capsule compression fracture load and deformation of BEK capsule

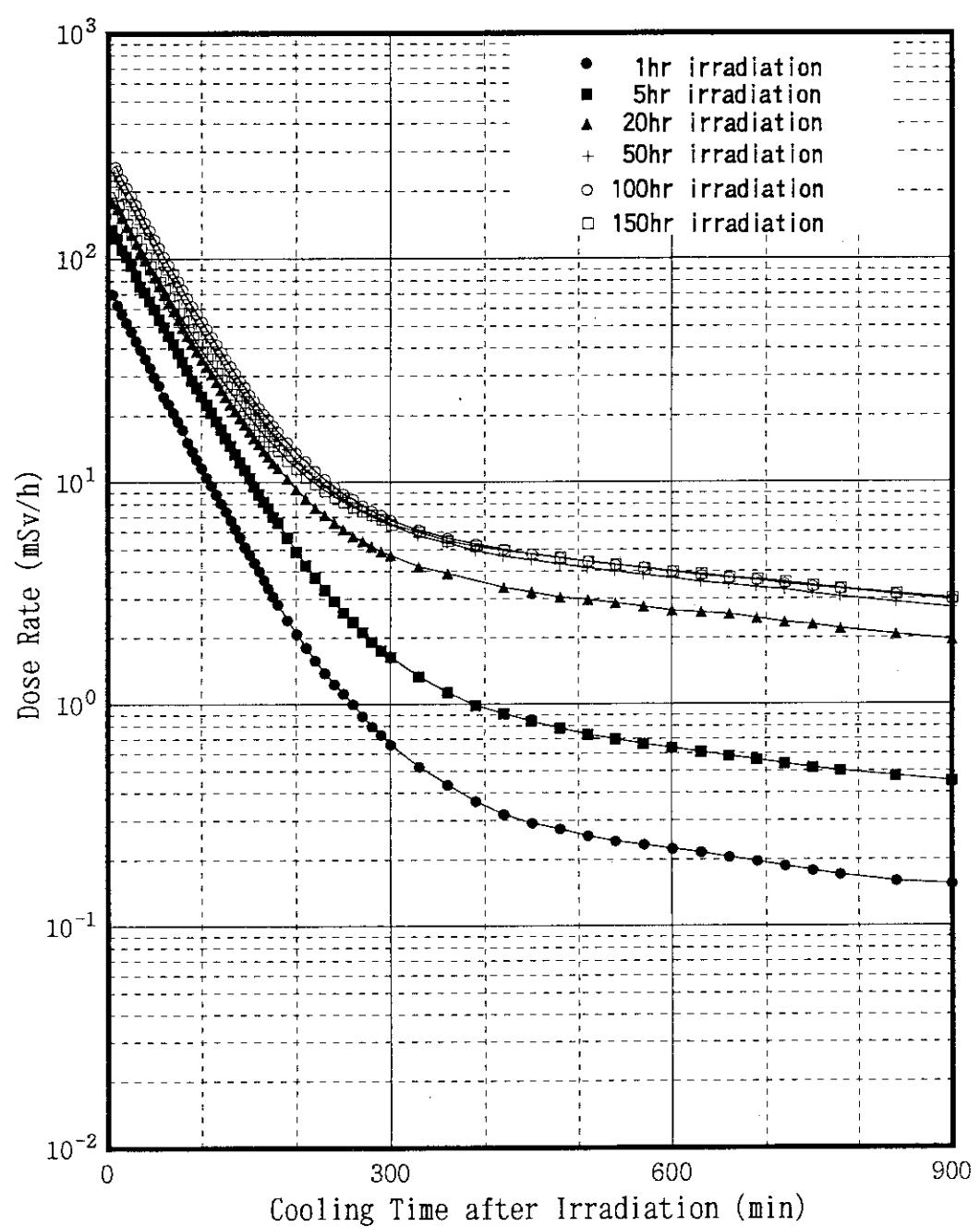


Fig. 7.5 Activities of BEK capsule after irradiation  
in pneumatic tube of JRR-3M

## 8. まとめ

誘導放射能が少なく、大量生産でき、JRR-3M気送管で100時間程度の照射ができる原子炉照射用キャップセルの開発を目的とし、出光興産株式会社中央研究所で開発したBEKを用い、JRR-3M気送管用の照射キャップセルを開発した。その結果、以下に示す結果を得た。

- (1) BEKの放射化分析の結果、キャップセルには触媒残渣、添加剤の他、キャップセル製作時の不純物が含まれる。これら不純物によるキャップセルの放射能強度は150時間照射でも照射直後は約270mSv/hで、その後は<sup>38</sup>Cl及び<sup>42</sup>Kの半減期で減衰する。
- (2) BEKの照射による機械的性質の変化は、引張強さはJRR-3M気送管で350時間相当までは増加するが、それ以上の照射では減少する。曲げ強さは、試験範囲内において初期値を保持した。衝撃強さ、破断伸びは照射とともに減少した。これらの機械的性質の変化は、ガラス転移温度の測定から、原子炉内放射線による架橋反応によるものと解釈された。
- (3) BEKキャップセルは、原子炉照射によって黒色化する。しかし、気送管で200時間に相当する照射量でもキャップセルに変形はなく、キャップの開封性にも異常はない。
- (4) キャップセル模擬搬送装置を用いた衝撃試験の結果、気送管で200時間の照射に相当する照射量まで照射したキャップセルでも異常なく、さらに、使用条件の約1.4倍の速度においても異常はなかった。このことから、BEKキャップセルは実用上十分な耐衝撃性を有することが確認できた。使用条件における衝撃力は、測定の結果、約600kgであった。
- (5) JRR-3M気送管で行った照射済キャップセルの搬送試験及び150時間までの照射試験の結果、キャップセルの搬送性及び耐衝撃性に支障はなく、BEKキャップセルは実用上十分な性能を有していることが確認できた。
- (6) キャップセルを横方向から圧縮したキャップセル圧縮破壊試験の結果、気送管で100時間に相当する照射キャップセルの圧縮破壊荷重は約470kgで、200時間相当では約300kgであった。通常の使用条件において横方向からの荷重は受けず、キャップセルは十分な強度を有していることが確認できた。

以上の結果及びキャップセルの使用条件等を考慮し、本キャップセルを「東海研究所キャップセル等設計・製作基準」で定める標準キャップセルとして共同利用照射に用いるための条件を検討した結果、JRR-3M気送管照射における最大照射時間を150時間とすることにより、安全かつ確実な照射が行い得るとの結論を得た。この場合の安全余裕は、試験最大照射量に対し130%、試験最大キャップセル速度に対し140%である。

## 9. 糸吉 論論

芳香族系ポリエーテル樹脂B E Kの原子炉照射による機械的性質の変化等を明らかにし、射出成型で大量生産できるJ R R - 3 M気送管用の長時間照射キャップセルを開発し、初期の目的を達した。開発試験の結果、本キャップセルは試験条件の範囲内において原子炉照射に十分耐え得る耐熱、耐放射線性並びに耐衝撃性を持っていることが確認できた。また、放射能強度も実用的に十分低いことが確認できた。本キャップセルを実用するにあたって、照射装置、使用条件等を考慮した結果、J R R - 3 M気送管での最大照射時間を150時間とすることが妥当であると結論された。

本キャップセルは、カドミウム比の高いJ R R - 3 M気送管において高精度の放射化分析等の研究に貢献するものと考えられる。また、B E Kは、優れた性能を有することから、照射キャップセルのみならず、他の原子力分野での応用が期待される。

## 謝　　辞

B E Kキャップセルの開発にあたり、熱エネルギー材料研究室石山新太郎氏、宇賀地弘和氏にはキャップセル圧縮破壊試験について御協力頂いた。J R R - 4管理課長中島照夫氏にはキャップセル模擬搬送試験について便宜を計って頂いた。研究炉利用課の諸氏には試料の照射、キャップセル衝撃試験等に御協力頂いた。研究炉利用課長一色正彦氏には本報告の査読を頂き貴重な御意見を頂いた。ここに感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1) T. SASUGA et al., Kobunshi Ronbunshu, Vol. 42(4), 283-290, (Apr., 1985)
- 2) 有金賢次、他、"原子炉照射用プラスチックキャップセルの開発", JAERI-M 92-078, 1992年6月
- 3) S. MURAKAMI et al., "Radiation Resistance of New Polymer", Polymer Preprints, Japan, Vol. 40(8), 2932-2934(1991)
- 4) S. MURAKAMI et al., "Radiation Resistant Aromatic Poly Ether(BEK) and the Application for Irradiation Capsules in a Research Reactor", 39th International SAMPE Symposium and Exhibition, California, USA, 2231-2242, April, 1994
- 5) "放射線データブック", 村上悠紀雄、他編, 地人書館

## 9. 稲吉 謙論

芳香族系ポリエーテル樹脂B E Kの原子炉照射による機械的性質の変化等を明らかにし、射出成型で大量生産できるJ R R - 3 M気送管用の長時間照射キャップセルを開発し、初期の目的を達した。開発試験の結果、本キャップセルは試験条件の範囲内において原子炉照射に十分耐え得る耐熱、耐放射線性並びに耐衝撃性を持っていることが確認できた。また、放射能強度も実用的に十分低いことが確認できた。本キャップセルを実用するにあたって、照射装置、使用条件等を考慮した結果、J R R - 3 M気送管での最大照射時間を150時間とすることが妥当であると結論された。

本キャップセルは、カドミウム比の高いJ R R - 3 M気送管において高精度の放射化分析等の研究に貢献するものと考えられる。また、B E Kは、優れた性能を有することから、照射キャップセルのみならず、他の原子力分野での応用が期待される。

## 謝　　辞

B E Kキャップセルの開発にあたり、熱エネルギー材料研究室石山新太郎氏、宇賀地弘和氏にはキャップセル圧縮破壊試験について御協力頂いた。J R R - 4管理課長中島照夫氏にはキャップセル模擬搬送試験について便宜を計って頂いた。研究炉利用課の諸氏には試料の照射、キャップセル衝撃試験等に御協力頂いた。研究炉利用課長一色正彦氏には本報告の査読を頂き貴重な御意見を頂いた。ここに感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1)T. SASUGA et al., Kobunshi Ronbunshu, Vol. 42(4), 283-290, (Apr., 1985)
- 2)有金賢次、他、"原子炉照射用プラスチックキャップセルの開発", JAERI-M 92-078, 1992年6月
- 3)S. MURAKAMI et al., "Radiation Resistance of New Polymer", Polymer Preprints, Japan, Vol. 40(8), 2932-2934(1991)
- 4)S. MURAKAMI et al., "Radiation Resistant Aromatic Poly Ether(BEK) and the Application for Irradiation Capsules in a Research Reactor", 39th International SAMPE Symposium and Exhibition, California, USA, 2231-2242, April, 1994
- 5)"放射線データブック", 村上悠紀雄、他編, 地人書館

## 9. 稲吉 論論

芳香族系ポリエーテル樹脂B E Kの原子炉照射による機械的性質の変化等を明らかにし、射出成型で大量生産できるJ R R - 3 M気送管用の長時間照射キャップセルを開発し、初期の目的を達した。開発試験の結果、本キャップセルは試験条件の範囲内において原子炉照射に十分耐え得る耐熱、耐放射線性並びに耐衝撃性を持っていることが確認できた。また、放射能強度も実用的に十分低いことが確認できた。本キャップセルを実用するにあたって、照射装置、使用条件等を考慮した結果、J R R - 3 M気送管での最大照射時間を150時間とすることが妥当であると結論された。

本キャップセルは、カドミウム比の高いJ R R - 3 M気送管において高精度の放射化分析等の研究に貢献するものと考えられる。また、B E Kは、優れた性能を有することから、照射キャップセルのみならず、他の原子力分野での応用が期待される。

## 謝　　辞

B E Kキャップセルの開発にあたり、熱エネルギー材料研究室石山新太郎氏、宇賀地弘和氏にはキャップセル圧縮破壊試験について御協力頂いた。J R R - 4管理課長中島照夫氏にはキャップセル模擬搬送試験について便宜を計って頂いた。研究炉利用課の諸氏には試料の照射、キャップセル衝撃試験等に御協力頂いた。研究炉利用課長一色正彦氏には本報告の査読を頂き貴重な御意見を頂いた。ここに感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1)T. SASUGA et al., Kobunshi Ronbunshu, Vol. 42(4), 283-290, (Apr., 1985)
- 2)有金賢次、他，“原子炉照射用プラスチックキャップセルの開発”，JAERI-M 92-078, 1992年6月
- 3)S. MURAKAMI et al., "Radiation Resistance of New Polymer", Polymer Preprints, Japan, Vol. 40(8), 2932-2934(1991)
- 4)S. MURAKAMI et al., "Radiation Resistant Aromatic Poly Ether(BEK) and the Application for Irradiation Capsules in a Research Reactor", 39th International SAMPE Symposium and Exhibition, California, USA, 2231-2242, April, 1994
- 5)"放射線データブック", 村上悠紀雄、他編, 地人書館