

平成 29 年度原子力規制庁委託成果報告書

水処理二次廃棄物の管理基準等の検討

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構

平成 30 年 3 月

本報告書は、原子力規制委員会原子力規制庁からの委託により実施した業務の成果を取りまとめたものです。

本報告書に関する問合せは、原子力規制庁までお願いします。

目次

はじめに	1
第1章 本事業の背景と目的	2
第1章参考文献	5
第2章 電子線／ガンマ線によるポリエチレンの放射線劣化に関する 既往の調査・研究事例の整理	9
第2章参考文献	12
第3章 試験準備および試験方法	24
第3章参考文献	30
第4章 電子線／ガンマ線照射によるポリエチレンの特性変化に関する データ取得	36
第4-1章 線量率と酸化層厚さの関係評価	36
第4-2章 ポリエチレンの特性変化に及ぼす線種の影響評価	37
第4章参考文献	40
第5章 高線量域におけるポリエチレンの特性変化に関するデータ取得	49
第5章参考文献	60
第6章 非酸化領域を含むポリエチレンの特性変化に関するデータ取得	87
第6章参考文献	90
第7章 試験結果のまとめ	99

付録

- ・ポリエチレンの特性評価のための測定条件の検討について
- ・ポリエチレンの放射線照射による特性変化に関するデータ集

図目次

図 1-1	ガンマ線線量率とポリエチレンモデル材料の酸化層厚さの関係 (第 1 章参考文献(4)より)	8
図 3-1	本試験で使用した試薬の化学構造	32
図 3-2	電子加速器における電子線射出窓からの距離と電子線線量率の関係 (加速電圧 : 2 MeV、電子電流値 : 1 mA)	33
図 3-3	コバルト 60 ガンマ線源からの距離とガンマ線線量率の関係	34
図 3-4	顕微 FT-IR 装置を用いたポリエチレンシート試料断面における カルボニル基のライン分析結果の例	35
図 4-1	2 MeV 電子線の線量率とポリエチレンシート試料の酸化層厚さの関係 (空气中、常温(28°C)照射)	41
図 4-2	ガンマ線の線量率とポリエチレンシート試料の酸化層厚さの関係 (空气中、常温(28°C)照射)	42
図 4-3	電子線／ガンマ線の線量率とポリエチレンシート試料の 酸化層厚さの関係	43
図 4-4	電子線／ガンマ線を照射後のポリエチレンフィルム試料の引張試験結果 : (a) 引張り破断時伸び、(b) 引張り強度、(c) 引張り弾性率	44
図 4-5	電子線／ガンマ線を照射後のポリエチレンフィルム試料のダイナミック硬度 特性測定結果 : (a) ダイナミック硬さ、(b) 押し込み弾性率	45
図 4-6	電子線／ガンマ線を照射後のポリエチレンフィルム試料の 密度測定結果	46
図 4-7	電子線／ガンマ線を照射後のポリエチレンフィルム試料の ゲル分率測定結果	47
図 4-8	電子線／ガンマ線を照射後のポリエチレンフィルム試料の FT-IR 分析結果	48
図 5-1	ガンマ線の線量率とポリエチレンの酸化層厚さの関係 (水中、60°C照射)	61
図 5-2	各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤 なし)表面の光学顕微鏡観察結果	62
図 5-3	各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤	

	なし)の引張試験結果 : (a) 引張り破断時伸び、(b) 引張り強度、(c) 引張り弾性率.	63
図 5-4	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)のダイナミック硬度特性測定結果 : (a) ダイナミック硬さ、(b) 押し込み弾性率.	64
図 5-5	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の密度測定結果.	65
図 5-6	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)のゲル分率測定結果.	66
図 5-7	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)表面のカルボニル基ピーク比強度.	67
図 5-8	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)のストレスラッキング試験結果.	68
図 5-9	Air 雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の引張試験における応力-ひずみ曲線 : (a) 全体、(b) 低ひずみ領域の拡大図.	69
図 5-10	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)表面の光学顕微鏡観察結果.	70
図 5-11	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)の引張試験結果 : (a) 引張り破断時伸び、(b) 引張り強度、(c) 引張り弾性率.	71
図 5-12	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)のダイナミック硬度特性測定結果 : (a) ダイナミック硬さ、(b) 押し込み弾性率.	72
図 5-13	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)の密度測定結果.	73
図 5-14	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)のゲル分率測定結果.	74
図 5-15	各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)のストレスラッキング試験結果.	75
図 5-16	Air/Water 雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料の引	

張り破断時伸びの変化.	76
図 5-17 Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料のダイナミック硬度特性の変化：(a) ダイナミック硬さ、(b) 押し込み弾性率.	77
図 5-18 Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料の密度の変化.	78
図 5-19 Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料のゲル分率の変化.	79
図 5-20 Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料のストレスクラッキング特性の変化.	80
図 5-21 ダイナミック微小硬度計を用いたポリエチレンシート試料表面のインデンテーションクリープ率の評価方法.	81
図 5-22 Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料のインデンテーションクリープ率の変化：(a) 酸化防止剤なし試料、(b) 酸化防止剤あり試料.	82
図 5-23 ポリエチレンシート試料のインデンテーションクリープ率の測定温度依存性：(a) 未照射(酸化防止剤なし試料)、(b) Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後(酸化防止剤なし試料)、(c) Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後(酸化防止剤あり試料).	83
図 5-24 XRCT 装置を用いて撮像したストレスクラッキング試験片の外観(Air 雰囲気中、60°C照射、酸化防止剤なし試料).	84
図 5-25 XRCT 装置を用いたクラック深さの測定(Air 雰囲気中、60°C照射、酸化防止剤なし試料)：(a) 測定箇所例、(b) クラック深さの度数分布、(c) クラック深さの平均値および最大値と線量の関係.	85
図 5-26 各種雰囲気中でストレスクラッキング試験後のクラック深さの測定(60°C照射、酸化防止剤なし試料)：(a) 試験片外観像、(b) クラック深さの度数分布、(c) クラック深さの平均値と最大値.	86
図 6-1 ポリエチレンシート試料の真空中におけるガンマ線照射試験のための真空ラインとガラスアンプル.	92
図 6-2 ガンマ線の線量率とポリエチレンシート試料の酸化層厚さの関係 (空气中、常温(18°C)照射、酸化防止剤なし試料).	93
図 6-3 真空中および空气中各線量率においてガンマ線照射後のポリエチレンシート	

試料(酸化防止剤なし)のゲル分率測定結果.	94
図 6-4 真空中および空气中各線量率においてガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)のダイナミック硬度特性測定結果 : (a) ダイナミック硬さ、(b) 押し込み弾性率.	95
図 6-5 真空中および空气中各線量率においてガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の引張り試験結果 : (a) 引張り破断時伸び、(b) 引張り強度、(c) 引張り弾性率.	96
図 6-6 真空中および空气中各線量率においてガンマ線を 120 kGy 照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の酸化層厚さ割合と各種特性の関係 : (a) ゲル分率、(b) ダイナミック硬さ、(c) 押し込み弾性率、(d) 引張り破断時伸び、(e) 引張り強度、(f) 引張り弾性率.	97
図 6-7 空气中各線量率においてガンマ線を 120 kGy 照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし) 表面のカルボニル基ピーク比強度.	98

表目次

表 1-1 福島第一原子力発電所で使用されているポリエチレン製高性能容器の 収容物と保管数 (2017年7月5日現在).	6
表 1-2 既往研究における試験条件と HIC 保管環境の比較.	7
表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における 試験条件の整理.	13~22
表 2-2 高性能容器に用いられているポリエチレンの耐放射線性評価試験における 試験条件.	23
表 3-1 本試験で作製したポリエチレンフィルム試料およびシート試料の 初期特性.	31
表 6-1 各種線量率でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし) の酸化層厚さ割合.	91

はじめに

東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故以来、原子炉建屋・タービン建屋内等の汚染水処理に伴い発生する水処理二次廃棄物を保管するための容器量は増大している。当該廃棄物は高濃度の放射性物質を含み、一部はポリエチレン製の保管容器に収容され、一定期間保管される。保管期間中における保管容器の健全性について把握しておくことは不可欠であり、そのため、保管容器の材質であるポリエチレンの放射線劣化等の可能性を洗い出し、監視すべきポイント、講ずるべき措置を検討するための技術的知見を蓄積することが必要である。

本報告書は、原子力規制庁の「平成 29 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費（水処理二次廃棄物の管理基準等の検討）事業」において、水処理二次廃棄物保管容器の材質であるポリエチレンの放射線劣化に関する既往の調査・研究事例から劣化に影響を及ぼす因子を整理するとともに、不足しているデータを取得し、ポリエチレンの放射線劣化挙動、試験条件、評価手法に関する知見を整理し、報告書として取りまとめるものである。

第1章 本事業の背景と目的

東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故以来、原子炉建屋・タービン建屋内等から発生する汚染水の処理は最重要課題の一つとして実施されている。汚染水を処理するための設備として、多核種除去設備や増設多核種除去設備等が設置され、Cs、Sr、I、Sb、Co、Ru等の核種が除去されており、これらを含む放射性廃棄物が水処理二次廃棄物として発生している⁽¹⁾。水処理二次廃棄物の一部はポリエチレン製の高性能容器(High Integrity Container: HIC)に收容されており、主な收容物および保管数は表1-1に示す通りである。吸着材は脱水処理後に、鉄共沈処理設備・炭酸塩沈殿処理設備で発生するスラッジ(沈殿生成物)はスラリーとして收容されている。2017年7月5日時点での全体の保管数は2454基となっている⁽²⁾。その内訳は、吸着材用:200基、鉄スラリー用:366基、炭酸塩スラリー用:1888基となっており、炭酸塩スラリー用HICが全体の77%を占めている。

ポリエチレン製HICの保管数は日々増加しており、またこれらは一定期間福島第一原子力発電所敷地内にて保管される。したがって、ポリエチレンが使用される環境を考慮し、その放射線劣化等の可能性を洗い出し、監視すべきポイント、講ずるべき措置を検討するための技術的知見を蓄積することが必要である。

そこで、平成26年度事故プラント廃棄物に係る規制基準の整備委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業、平成27年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業、平成28年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業が実施され、その中でポリエチレンの放射線劣化に関する既往研究成果の整理、不足しているデータ取得試験が行なわれてきた。

平成26年度事業においては、ポリエチレンの放射線劣化メカニズムと影響因子について知見が整理され、

- ・ポリエチレンの放射線劣化は主に酸化に起因する。
 - ・ポリエチレンの放射線劣化に影響を及ぼす因子は、ポリエチレンの種類・添加剤、放射線の線量率(単位時間当たりの吸収線量)、照射温度である。
 - ・HIC保管環境に照らして、「水(スラリー)」雰囲気中におけるポリエチレンの放射線劣化に関するデータが不足している(表1-2)。
- 等がまとめられた⁽³⁾。

平成 27 年度事業においては、「水」雰囲気におけるガンマ線照射によるポリエチレンの特性変化データの取得がなされ、

・空気中の場合と比較して、水中では、線量に対する引張り特性の変化はほぼ同様であったが、試験片を U 字に曲げた状態で照射した場合に低線量域でクラックが生成した(ストレスクラッキング試験の結果)。

・酸化防止剤を添加することにより、水中でも放射線劣化を抑制することができる。

・酸素の侵入を抑制するのではなく、基材であるポリエチレンの酸化を抑制することが酸化防止剤の役割である。

等が新たに得られた知見としてまとめられた⁽⁴⁾。

平成 28 年度事業においては、「スラリー」の構成成分がポリエチレンの特性変化に及ぼす影響を明らかにするためのデータ取得がなされ、

・引張り特性、ゲル分率(溶媒に不溶な成分の重量割合)の変化挙動に対するスラリー成分の影響は、水のみ雰囲気とほぼ同様であった。

・酸化防止剤を含まない試料のストレスクラッキング試験において、スラリー成分の存在下では、クラックが生成し始める線量が低くなる結果が得られた。

等の知見がまとめられている⁽⁵⁾。

ところで、表 1-1 に示したように、保管数が最も多い炭酸塩沈殿処理設備で発生するスラッジに含まれる Sr はベータ核種である。これは、HIC の容器内部において、ポリエチレンが電子線の照射環境下にあることを意味しており、最も高い積算線量が約 10 年間で 2000kGy となる試算もなされている⁽⁶⁾。これまでの事業において、ベータ線の影響は検討されておらず、また、試験された線量も 100 kGy 程度の低い線量域である。そのため、ベータ線とガンマ線の線種の影響、および高線量域におけるポリエチレンの特性変化挙動についてのデータが不足している。

一方、10 年間で 2000 kGy の積算線量を単純に 1 時間あたりに計算すると、ベータ線の平均線量率は、22.8 Gy/h であり、ガンマ線の場合の 0.26 Gy/h と比較して約 88 倍高い線量率となる。平成 27 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業報告書において、図 1-1 に示す線量率とポリエチレンモデル材料の酸化層厚さ(酸素の侵入深さ)の関係から、下式(1-1)の近似式が得られている。なお、ここでは、空气中室温においてガンマ線照射が行なわれた。

$$L = 0.0063 I^{-1/2} \quad \dots \text{式(1-1)}$$

ここで、 $L(\text{cm})$ は酸化層厚さ、 I は線量率(Gy/sec)である。上述の線量率を基に、およ

その酸素の侵入深さを計算すると、容器内側表面から約 0.8 mm、外側表面から約 7.4 mm となり、肉厚 11.4 mm の HIC 容器断面方向において⁽⁶⁾、酸素が到達しない非酸化領域が形成される可能性がある。しかしながら、これまで酸化/非酸化領域を積極的に制御してポリエチレンの放射線劣化挙動を調べた研究例はない。

上述のような背景の下、本事業においては、

- 【1】 ポリエチレンの劣化に及ぼす電子線／ガンマ線の線種の影響解明
- 【2】 ポリエチレンの高線量域における特性変化挙動の解明
- 【3】 ポリエチレンの劣化に及ぼす酸化層厚さ割合の影響解明

を目的とし、以下の点について調査・試験を実施した。

- 【1-1】 ポリエチレンの放射線劣化に関する既往の調査・研究事例の整理
- 【1-2】 電子線／ガンマ線照射によるポリエチレンの特性変化に関するデータ取得
 - 【1-2-1】 線量率と酸化層厚さの関係評価
 - 【1-2-2】 ポリエチレンの特性変化に及ぼす線種の影響評価(電子線／ガンマ線)
- 【2】 高線量域におけるポリエチレンの特性変化に関するデータ取得(ガンマ線)
- 【3】 非酸化領域を含むポリエチレンの特性変化に関するデータ取得

第 1 章参考文献

- (1) “水処理二次廃棄物の処理に向けた検討状況”，東京電力ホールディングス株式会社，特定原子力施設放射性廃棄物規制検討会(第 5 回)資料 2, 2017 年 2 月 10 日.
- (2) “スラリー、スラッジの安定化処理に向けた検討状況”，東京電力ホールディングス株式会社，特定原子力施設放射性廃棄物規制検討会(第 6 回)資料 2, 2017 年 7 月 25 日.
- (3) “平成 26 年度事故プラント廃棄物に係る規制基準の整備委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業報告書”，日本原子力研究開発機構，2015 年 3 月，国立国会図書館 書誌 ID 026494390.
- (4) “平成 27 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業報告書”，日本原子力研究開発機構，2016 年 3 月，国立国会図書館 書誌 ID 027346790.
- (5) “平成 28 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業報告書”，日本原子力研究開発機構，2017 年 3 月.
- (6) “HIC のたまり水発生の原因と対策の検討・実施状況”，東京電力株式会社，特定原子力施設監視・評価検討会(第 36 回)資料 5-1, 2015 年 7 月 1 日.

表 1-1 福島第一原子力発電所で使用されているポリエチレン製高性能容器の収容物と保管数（2017年7月5日現在）。

種別	主な収容物	除去対象元素	保管数	備考
吸着材 1	活性炭	コロイド	200 基	脱水処理後に収容
吸着材 2	チタン酸塩	Sr		
吸着材 3	フェロシアン化合物	Cs		
吸着材 4	Ag 添着活性炭	I		
吸着材 5	酸化チタン	Sb		
吸着材 6	キレート樹脂	Co		
吸着材 7	樹脂系吸着材	Ru 等負電荷コロイド		
鉄共沈処理	水酸化鉄	有機物、α核種、Co、Mn	366 基	スラリーとして収容
炭酸塩沈殿処理	炭酸塩	Sr、Mg、Ca	1888 基	として収容

表 1-2 既往研究における試験条件と HIC 保管環境の比較.

		既往研究	HIC 保管環境
線量		—	46 kGy (20 年間) ※最も高線量の容器外表面
線量率		5~1 × 10 ⁵ Gy/h	0.26 Gy/h ※20 年間の積算線量を単純計算
温度		室温~175℃	65℃
雰囲気	空気	●	●
	真空	●	
	純酸素	●	
	水	○ (ほぼ無)	● (スラリー)

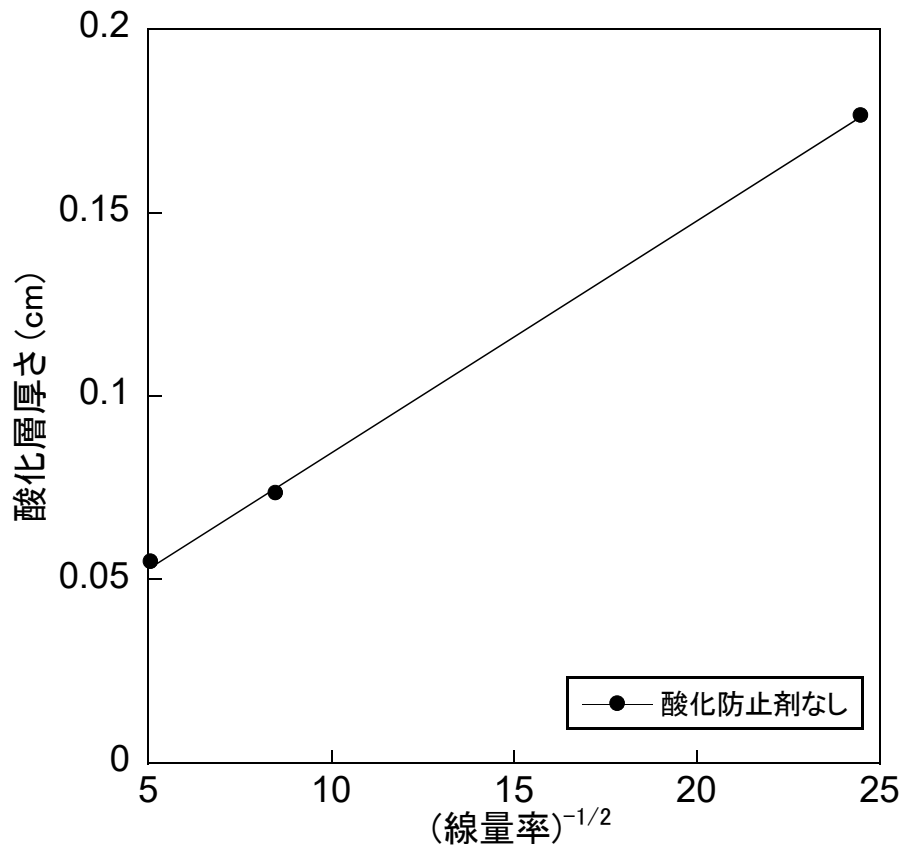


図 1-1 ガンマ線線量率とポリエチレンモデル材料の酸化層厚さの関係 (第 1 章参考文献(4)より).

第2章 電子線／ガンマ線によるポリエチレンの放射線劣化に関する既往の調査・研究事例の整理

ポリエチレンの放射線照射による特性変化・劣化メカニズム解明に関する文献等は多数あり、既往研究例を表 2-1 に挙げる。ここでは、ポリエチレン(種類、形状)・線種(線量率)・照射雰囲気・照射温度の試験条件を整理した。表中、ポリエチレンは略称で表記し、LDPE：低密度ポリエチレン、LLDPE：直鎖状低密度ポリエチレン、HDPE：高密度ポリエチレン、XLPE：架橋ポリエチレン、UHMWPE：超高分子量ポリエチレンを表し、PE は特に種類について記載のなかったものを表す。

ポリエチレンを対象とした放射線照射効果に関する研究では、特性劣化挙動や劣化メカニズムの解明、放射線架橋による特性改善の他、特性劣化評価への陽電子消滅法の適用検討等も実施されている。既往の研究において利用されている線種として、ガンマ線その他、電子線、中性子、イオンビームがあるが、本章では、ポリエチレンの放射線照射による特性変化について、主に電子線／ガンマ線を利用したものを取り上げ、整理した。

表 2-1 中、番号(42)において Wang らは、超高分子量ポリエチレン(粒径 110 μm パウダー)に空气中、常温においてコバルト 60 ガンマ線(線量率：7 kGy/h)あるいは 2.5 MeV 電子線(線量率：3,312,000 kGy/h)を照射後、ゲル分率や酸化層形成挙動について調べている。100 kGy 以上の線量域において、同一線量で比較した際、電子線照射試料の表面酸化層厚さ約 10 μm に対してガンマ線照射試料の場合は約 45 μm であり、ゲル分率が低くなる結果が報告されている⁽¹⁾。

また、表 2-1 中、番号(48)において Kamiya らは、超高分子量ポリエチレン(50 mm \times 50 mm ロッド)に空气中室温においてコバルト 60 ガンマ線(線量率：8 kGy/h)を 200 kGy まで照射するとヤング率や 0.2%耐力の圧縮特性が未照射の場合よりも向上したことを報告している。また、空气中室温において 170 keV 電子線(線量率の記載なし)を照射すると塑性流動応力が高くなり、超高分子量ポリエチレンの表面改質に電子線照射が有効であると述べている⁽²⁾。

表 2-1 中、番号(35)において宮川らは、低密度ポリエチレン(0.3 mm 厚フィルム)にコバルト 60 ガンマ線(線量率：13.5 kGy/h)あるいは 2 MeV 電子線(220,000 kGy/h)を照射後(雰囲気、照射温度については記載なし)、分子量分布の変化を調べ、電子線照

射の場合、線量とともに不溶成分が単調に増加したのに対し、ガンマ線照射の場合、60 kGy 以上で不溶成分が減少し、この変化挙動が引張試験におけるネッキング応力の変化とよく一致したことを報告している⁽³⁾。

表 2-1 中、番号(29)において Żenkiewicz らは、低密度ポリエチレン(150 µm 厚フィルム)にガンマ線(線量率：1.9 kGy/h)あるいは 5~13 MeV 電子線(線量率の記載なし)を照射後、同一線量において、ガンマ線照射試料表面の酸化が促進されていることを X 線光電子分光分析により明らかにしたことを報告している⁽⁴⁾。

また、表 2-1 中、番号(15)において春山らは、ポリエチレン(1 mm 厚シート)に真空中、30~40℃の温度においてコバルト 60 ガンマ線(線量率：9 kGy/h)あるいは 2 MeV 電子線(線量率：465 kGy/h)を照射後、引張り特性やゲル分率を測定し、ガンマ線と電子線の間で特性変化挙動がほぼ同様となったことを報告している⁽⁵⁾。

一方、東京電力株式会社が発表している資料から、HIC に用いられているポリエチレンについて、ガンマ線、電子線を利用した耐放射線性に関する試験結果が報告されている(表 2-2)^(6, 7)。HIC 製造メーカーによって実施された試験では、厚さ 12.7 mm の試料に空气中 10 kGy/h で最大 3000 kGy までガンマ線を照射後、引張り試験を行なった結果、100 kGy までは引張り強度および延性に有意な変化が無かったことが報告されている。また、試料寸法は明記されていないが、空气中、室温、1 kGy/h でのガンマ線照射試験後の引張り試験、シャルピー衝撃試験も行なわれており、いずれの特性も 100 kGy まで有意な変化が無かったことが報告されている。また、ベータ核種の収容を考慮した 10 MeV 電子線照射試験も行なわれており、この場合、500 kGy まで有意な特性変化が無かったことが報告されている。なお、これら一連の報告において、電子線／ガンマ線の線種の影響については言及されていない。

上述の例から分かるように、電子線とガンマ線を利用したポリエチレンの特性変化に関する既往研究事例は少ない上に、ポリエチレンの放射線劣化に対する電子線／ガンマ線の線種の影響を厳密に比較できる事例がない。なぜなら、ポリエチレンの放射線劣化は主に酸化に起因するためである。ポリエチレンの放射線酸化には線量率や照射温度が大きな影響を及ぼすが、線量率が 10,000 倍以上も異なる照射条件では、同一線量でも酸化状態(酸化層厚さ、酸化量等)が異なるポリエチレン試験片が得られるため、劣化状態の異なる試験片の特性を評価していることになる。また、照射中のいわゆるビーム加熱(放射線による加熱)の影響も考慮する必要がある。これは、放射線のエネルギーが試料中で熱に転換され蓄積することによって試料が加熱される現象

であり、例えば、加速電圧 2 MeV、電子電流値 1 mA (線量率 : 11,160 kGy/h) の条件において、アルミニウム板に電子線を照射した時、室温 24~25°C に対し、板の温度は約 55°C まで上昇した例もある(著者による実験)。照射温度が変化するとポリエチレンの酸化挙動も変化することから、試料の冷却や線量率の低減等によりビーム加熱を抑制する必要がある。

ポリエチレンの放射線劣化に関する電子線/ガンマ線の線種の影響を比較するためには、ポリエチレンの放射線劣化メカニズムに基づき、試験片全体が酸化される条件下で照射試験を行なった試験片の特性変化を調べるのが重要である。そこで本事業では、次章以降のデータ取得試験において、試験片全体が酸化される照射条件(試料厚さ、線量率、照射温度)を設定し、ポリエチレンの酸化挙動および特性変化挙動を調べ、電子線/ガンマ線の線種の影響を評価した。

第 2 章参考文献

- (1) “Radiation-induced oxidation of ultra-high molecular weight polyethylene (UHMWPE) powder by gamma rays and electron beams: A clear dependence of dose rate”, H. Wang, L. Xu, J. Hu, M. Wang, G. Wu, *Radiation Physics and Chemistry*, 115, pp. 88-96 (2015).
- (2) “Effect of irradiation treatment on compressive properties of ultra-high-molecular-weight polyethylene”, M. Kamiya, H. Kikugawa, T. Asaka, M. Kanda, Y. Nishi, *Materials Transactions*, Vol. 58, No. 8, pp. 1150-1154 (2017).
- (3) “ガンマ線および電子線照射 LDPE フィルムの力学的性質と分子量分布変化”, 宮川栄一, 神澤岳史, 徳満勝久, 田中皓, *高分子論文集*, Vol. 66, No. 6, pp. 202-210 (2009).
- (4) “Comparison of some oxidation effects in polyethylene film irradiated with electron beam or gamma rays”, M. Żenkiewicz, M. Rauchfleisz, J. Czupryńska, *Radiation Physics and Chemistry*, 68, pp. 799-809 (2003).
- (5) “高分子絶縁材料の γ 線と電子線の照射効果の比較”, 春山保幸, 森田洋右, 瀬口忠男, 田中隆一, 金沢孝夫, 四本圭一, 吉田健三, *JAERI-M 88-197* (1988).
- (6) “多核種除去設備の運転開始に当たっての安全性評価”, 東京電力株式会社, 特定原子力施設監視・評価検討会(第 2 回)資料 4, 2013 年 1 月 24 日.
- (7) “HIC のたまり水発生の原因と対策の検討・実施状況”, 東京電力株式会社, 特定原子力施設監視・評価検討会(第 36 回)資料 5-1, 2015 年 7 月 1 日.

表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における試験条件の整理.

番号	発表題目			
	著者・発表者			
	出典・会議名称			
	ポリエチレン(種類、形状等)	線種(線量率)	照射雰囲気	照射温度
1	Effect of Physical State During the Electron Irradiation of Hydrocarbon Polymers. Part I. the Influence of Physical State on Reactions Occurring in Polyethylene During and Following the Irradiation			
	E. J. Lawton, J. S. Balwit, R. S. Powell			
	Journal of Polymer Science, Vol. 32, No. 125, pp. 257-275 (1958)			
	HDPE, LDPE 50 μm フィルム	800 keV 電子線	窒素	25~150°C
2	Effect of Physical State During the Electron Irradiation of Hydrocarbon Polymers. Part II. Additional Experiments and Discussion Pertaining to Trapped Radicals in Hydrocarbon Polymers			
	E. J. Lawton, R. S. Powell, J. S. Balwit			
	Journal of Polymer Science, Vol. 32, No. 125, pp. 277-290 (1958)			
	HDPE, LDPE 50~200 μm フィルム	800 keV 電子線	窒素	室温
3	Compilation of Radiation Damage Test Data Part I: Cable Insulating Materials			
	H. Schönbacher, A. Stolarz-Iżycka			
	CERN 79-04 (1979)			
	PE, XLPE(ケーブル絶縁材料) 2~3mm 厚シート	ガンマ線(100 Gy/h)	空気	~30°C
4	Radiation Induced Oxidative Degradation of Polymers-IV. Dose Rate Effects on Chemical and Mechanical Properties			
	T. Seguchi, K. Arakawa, N. Hayakawa, S. Machi			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 18, No. 3-4, pp. 671-678 (1981)			
	LDPE 1mm 厚シート	ガンマ線	0.2~0.5 atm 酸素	室温
5	各種材料の放射線劣化に対する線量率効果			
	岡本信一, 早川力, 竹谷千加士			
	電気学会絶縁材料研究会資料 EIM-82-112, pp.37-47 (1982)			
	PE 1mm 厚シート	ガンマ線 (50~10000 Gy/h)	空気	—

表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における試験条件の整理
(続き).

番号	発表題目			
	著者・発表者			
	出典・会議名称			
	ポリエチレン(種類、形状等)	線種(線量率)	照射雰囲気	照射温度
6	Compilation of Radiation Damage Test Data Part III : Materials Used Around High -Energy Accelerators			
	P. Beynel, P. Maier, H. Schönbacher			
	CERN 82-10 (1982)			
	PE, XLPE(ケーブル絶縁材料) 1.5~2 mm 厚シート	高速中性子	空気	32~45°C
7	Properties of Radioactive Wastes and Waste Containers			
	H. Arora, K. J. Swyler, and R. Dayal			
	Proceedings of the fifth annual participants' information meeting DOE Low -level Waste Management Program, pp. 325-337 (1983)			
	HDPE	ガンマ線 (1, 15, 70 kGy/h)	空気, 真空, 酸素	—
8	Long-Term Radiation Effects on Commercial Cable-Insulating Materials Irradiated at CERN			
	P. Maier, A. Stolarz			
	CERN 83-08 (1983)			
	PE, XLPE 1.4~2.5 mm シート	ガンマ線 (18~720 Gy/h)	空気	20~40°C
9	Radiation Induced Oxidative Degradation of Polymers -III: Effect of Radiation on Mechanical Properties			
	T. Seguchi, K. Arakawa, M. Ito, N. Hayakawa, S. Machi			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 21, No. 6, pp. 495-501 (1983)			
	LDPE 1 mm シート	ガンマ線(5 kGy/h)	真空, 10 atm 酸素	室温
10	Radiation-Induced Oxidation of Polymers. Effect of Antioxidant and Antirad Agent on Oxygen Consumption and Gas Evolution			
	K. Arakawa, T. Seguchi, N. Hayakawa, S. Machi			
	Polymer Chemistry, Vol. 21, No. 4, pp.1173-1181 (1983)			
	PE フィルム	ガンマ線(2 kGy/h)	0~700 torr 酸素	室温

表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における試験条件の整理
(続き).

番号	発表題目			
	著者・発表者			
	出典・会議名称			
	ポリエチレン(種類、形状等)	線種(線量率)	照射雰囲気	照射温度
11	Thermogravimetric Studies of the Thermooxidative Stability of Irradiated and Unirradiated Polyethylene Part I . Effect of Antioxidant			
	O. Gal , Lj. Novaković, V. Marković, V.T.Stannett, Radiation Physics and Chemistry, Vol. 22, No. 3-5, pp. 627-634 (1983)			
	LDPE 0.3~0.4mm 厚フィルム	ガンマ線 (30 kGy/h)	アルゴン	室温
12	An Evaluation of the Radiation Resistance of High-Density Polyethylene			
	D. R. Dougherty, J. W. Adams, R. E. Barletta BNL-NUREG-34425 (1984)			
	HDPE 4 mm 厚シート	ガンマ線 (14~930 Gy/h)	空気	10~63°C
13	電線用絶縁材料の高速中性子照射効果			
	河野功, 矢野倉実, 元永昭七, 上坪宏道, 小林弘忠, 末松達也, 八橋元治 電気学会絶縁材料研究会資料 EIM-84-140, pp.29-35 (1984)			
	XLPE 1 mm 厚シート	ガンマ線 高速中性子	—	—
14	Diffusion and Solubility of Oxygen in γ -ray Irradiated Polymer Insulation Materials			
	T. Seguchi, Y. Yamamoto JAERI 1299 (1986)			
	LDPE, HDPE 1 mm 厚シート	ガンマ線 (真空: 10 kGy/h, 酸素: 5 kGy/h)	真空, 酸素	室温, 70°C
15	高分子絶縁材料の γ 線と電子線の照射効果の比較			
	春山保幸, 森田洋右, 瀬口忠男, 田中隆一, 金沢孝夫, 四本圭一, 吉田健三 JAERI-M 88-197 (1988)			
	PE 1 mm 厚シート	ガンマ線(9 kGy/h) 2 MeV 電子線 (465 kGy/h)	真空	30~40°C

表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における試験条件の整理
(続き).

番号	発表題目			
	著者・発表者			
	出典・会議名称			
	ポリエチレン(種類、形状等)	線種(線量率)	照射雰囲気	照射温度
16	Effects of Chemical and Gamma Irradiation Environments on the Mechanical Properties of High-Density Polyethylene (HDPE)			
	P. Soo			
	BNL-NUREG-40842 (1988)			
	HDPE U-bend (25×2.5×0.32 cm)	ガンマ線(930 Gy/h)	空気, 界面活性剤等を含む溶液	—
17	Compilation of Radiation Damage Test Data Part I, 2nd edition : Halogen -Free Cable - Insulating Materials			
	H. Schönbacher and M. Tavlet			
	CERN 89-12 (1989)			
	PE, XLPE(ケーブル絶縁材料) 1~3 mm 厚シート	ガンマ線(~200 kGy/h)	空気	60℃未満
18	Effect of Radiochemical Ageing on the Tensile Properties of High Density Polyethylene			
	L. Audouin-Jirackova, G. Papet, J. Verdu			
	European Polymer Journal, Vol. 25, No. 2, pp. 181-186 (1989)			
	HDPE 0.15 mm 厚フィルム	ガンマ線 (空気:684-2484 Gy/h, 真空:2484 Gy/h)	空気, 真空	20℃
19	A Study of the Use of Crosslinked High -Density Polyethylene for Low -Level Radioactive Waste Containers			
	P. Soo, C. I. Anderson, J. H. Clinton			
	NUREG/CR-5363, BNL-NUREG-52196 (1989)			
	HDPE	ガンマ線 (14, 840, 4400 Gy/h)	空気	—
20	Effect of Molecular Orientation on the Radiolysis of Polyethylene in the Presence of Oxygen			
	Y. Izumi, M. Nishii, T. Seguchi, K. Ema, T. Yamamoto			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 37, No. 2, pp. 213-216 (1991)			
	UHMWPE, HDPE 繊維、ペレット	ガンマ線(10 kGy/h)	0-60 kPa 酸素	室温

表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における試験条件の整理
(続き).

番号	発表題目			
	著者・発表者			
	出典・会議名称			
	ポリエチレン(種類、形状等)	線種(線量率)	照射雰囲気	照射温度
21	Comparison of Antioxidants for Combined Radiation and Thermal Aging and Superposition of Radiation and Thermal Aging for EPR and XLPE			
	A.B. Reynolds, P.A. Wlodkowski			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 38, No. 6, pp. 553-559 (1991)			
	XLPE 1.27 mm 厚シート	ガンマ線(230 Gy/h)	空気	室温
22	Effect of Antioxidants on Aging of Nuclear Plant Cable Insulation			
	A. B. Reynolds, J. W. Ray, P.A. Wlodkowski			
	EPRI-NP-7140 Project 2614-26 Final Report (1991)			
	XLPE 1.27 mm 厚シート	ガンマ線 (200~300 Gy/h)	空気	室温
23	Development of Radiation Resistant Electrical Cable Insulations			
	B. S. Lee, P. Soo and D. R. MacKenzie			
	BNL-49748 (1993)			
	LDPE 1.7 mm 厚シート	ガンマ線 (3.3~10 kGy/h)	空気中	10℃
24	Compilation of Radiation Damage Test Data Part II, 2nd edition: Thermoset and Thermoplastic Resins, Composite Materials			
	M. Tavlet, A. Fontaine and H. Schönbacher			
	CERN 98-01 (1998)			
	PE 2~6 mm シート	ガンマ線 (約 4 kGy/h)	空気	60℃未満
25	Comprehensive Testing to Measure the Response of Liner Materials to Hanford Tank Waste Simulant			
	Paul J. Nigrey and T. G. Dickens			
	SAND99-0419 (1999)			
	XLPE, HDPE 3.2 mm 厚シート	ガンマ線(~2 kGy/h)	空気	18~60℃

表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における試験条件の整理
(続き).

番号	発表題目			
	著者・発表者			
	出典・会議名称			
	ポリエチレン(種類、形状等)	線種(線量率)	照射雰囲気	照射温度
26	水・放射線暴露などによる高分子系素材の複合劣化挙動			
	小山徹、塚野隆、濱義昌			
	放射線化学, Vol. 67, pp. 30-34 (1999)			
	PE, XLPE	ガンマ線 (6.45~50 Gy/h)	水	—
27	Long-Term Oxidative Degradation in Polyethylene Irradiated with Ion Beams			
	Y. Hama, T. Oka, J. Uchiyama, H. Kanbe, K. Nabeta, F. Yatagai			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 62, pp. 133-139 (2001)			
	HDPE, LDPE 2 mm 厚シート	イオンビーム(100 MeV O ⁵⁺ , 120 MeV Ne ⁶⁺ , 1620 MeV C ⁶⁺ , 2700 MeV Ne ¹⁰⁺ 等)	真空 空気(1000 MeV 以上のビーム)	室温
28	Degradation of Crosslinked Polyethylene in Water by Gamma-Irradiation			
	T. Matsui, T. Takano, S. Takayama, M.i Ito, I. Narisawa			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 63, pp. 193-200 (2002)			
	XLPE 2 mm 厚シート	ガンマ線 (6.45~50 Gy/h)	水	40~80℃
29	Comparison of Some Oxidation Effects in Polyethylene Film Irradiated with Electron Beam or Gamma Rays			
	M. Żenkiewicz, M. Rauchfleisz, J. Czupryńska			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 68, pp. 799-809 (2003)			
	LDPE 150 μm 厚フィルム	ガンマ線(1.9 kGy/h) 5~13 MeV 電子線	空気	室温
30	Long Term Behaviour of Polyethylene High Integrity Containers under Repository Conditions			
	A. Vokál, V. Plaček, B. Bartoníček and S.Konopásková			
	Long term behaviour of low and intermediate level waste packages under repository conditions, IAEA-TECDOC-1397, pp. 73-88 (2004)			
	HDPE 15×8×1 mm	ガンマ線 (8.5~8855 Gy/h)	空気中	4℃

表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における試験条件の整理
(続き).

番号	発表題目			
	著者・発表者			
	出典・会議名称			
	ポリエチレン(種類、形状等)	線種(線量率)	照射雰囲気	照射温度
31	Creep Behavior of Linear Low-Density Polyethylene Films			
	Y. B. Unigovski, A. L. Bobovitch, E. M. Gutman			
	Journal of Metals, Materials and Minerals, Vol. 16, No. 1, pp. 1-6 (2006)			
	LDPE 15 μm フィルム	電子線	—	—
32	Changes in Mechanical Properties Due to Gamma Irradiation of High -Density Polyethylene (HDPE)			
	S. S. Cota, V. Vasconcelos, M. Senne Jr., L. L. Carvalho, D. B. Rezende and R. F. Côrrea			
	Brazilian Journal of Chemical Engineering, Vol. 24, No. 2, pp. 259-265 (2007)			
	HDPE 12.5 mm 厚プレート	ガンマ線 (115~1000 Gy/h)	空気	室温
33	The Influence of Orientation on the Radiation -Induced Crosslinking/Oxidative Behavior of Different PEs			
	D. Miličević, S. Trifunović, M. Popović, T. Vukašinović Milić, E. Suljovrujić			
	Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 260, pp. 603-612 (2007)			
	LDPE, LLDPE, HDPE	ガンマ線(9 kGy/h)	空気	室温
34	ガンマ線および電子線照射 LDPE フィルムの力学的性質と分子量分布変化			
	宮川栄一、神澤岳史、徳満勝久、田中皓			
	高分子論文集, Vol 66, No. 6, pp. 202-210 (2009)			
	LDPE 0.3 mm 厚フィルム	ガンマ線(13.5 kGy/h) 2 MeV 電子線 (220000 kGy/h)	—	—
35	各種高分子材料の耐放射線性 -実使用環境模擬の劣化評価-			
	瀬口忠男、反町正美、田村清俊			
	JAEA-Data/Code 2009-018 (2010)			
	XLPE, LDPE 1 mm 厚シート	ガンマ線(空気: 10 kGy/h, 酸素: 1.5kGy/h)	空気, 5 atm 酸素	室温

表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における試験条件の整理
(続き).

番号	発表題目			
	著者・発表者			
	出典・会議名称			
	ポリエチレン(種類、形状等)	線種(線量率)	照射雰囲気	照射温度
36	熱・放射線劣化させた架橋ポリエチレンケーブル絶縁材料の材料物性と微細構造分析			
	栗原隆史、高橋俊裕、水谷嘉伸、金神雅樹、土肥謙次、本間宏也、岡本達希			
	電力中央研究所報告 研究報告:H09017 (2010)			
	XLPE 1 mm 厚シート	ガンマ線 (3~100 Gy/h)	空気	80~100°C
37	Gamma Irradiation Effects in Low Density Polyethylene			
	L. S. Ono, S. R. Scagliusi, E. E. L. Cardoso, A. B. Lugão			
	2011 International Nuclear Atlantic Conference, Oct 24-28, 2011, Belo Horizonte, Brazil			
	LDPE ペレット	ガンマ線(5 kGy/h)	空気	室温
38	熱・放射線ストレスによる XLPE 絶縁体の機械特性の劣化 -酸化防止剤濃度の影響-			
	金神雅樹、栗原隆史、布施則一、水谷嘉伸、本間宏也、秀耕一郎、岡本達希			
	電力中央研究所報告 研究報告:H10014 (2011)			
	XLPE 1 mm 厚シート	ガンマ線(100 Gy/h)	空気	室温, 60°C, 100°C
39	Degradation Mechanisms of Cable Insulation Materials during Radiation-Thermal Ageing in Radiation Environment			
	T. Seguchi, K. Tamura, T. Ohshima, A. Shimada, H. Kudoh			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 80, pp. 268-273 (2011)			
	XLPE 2 mm 厚シート	ガンマ線(1 kGy/h)	空気	100~175°C
40	ケーブル絶縁材料の経年劣化研究			
	瀬口忠男、田村清俊、工藤久明、島田明彦、杉本雅樹、出崎亮、大島武、吉川正人			
	JAEA-Review 2012-027 (2012)			
	PE, LDPE, XLPE 1~4 mm 厚シート	ガンマ線 (80~10000 Gy/h)	~10 atm 酸素	室温

表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における試験条件の整理
(続き).

番号	発表題目			
	著者・発表者			
	出典・会議名称			
	ポリエチレン(種類、形状等)	線種(線量率)	照射雰囲気	照射温度
41	Post-Irradiation Effects in Polyethylenes Irradiated under Various Atmospheres			
	E. Suljovrujic			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 89, pp. 43-50 (2013)			
	LDPE, LLDPE, HDPE 0.28 mm 厚フィルム	ガンマ線(9 kGy/h)	空気, 窒素	室温
42	Radiation-Induced Oxidation of Ultra-High Molecular Weight Polyethylene (UHMWPE) Powder by Gamma Rays and Electron Beams: A Clear Dependence of Dose Rate			
	H. Wang, L. Xu, J. Hu, M. Wang, G. Wu			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 115, pp. 88-96 (2015).			
	UHMWPE φ110 μm パウダー	ガンマ線(7 kGy/h) 2.5 MeV 電子線 (331200 kGy/h)	空気	室温
43	The Alterations in High Density Polyethylene Properties with Gamma Irradiation			
	M. F. Zaki, Y. H. Elshaer, D. H. Taha			
	Radiation Physics and Chemistry, Vol. 139, pp. 90-96 (2017)			
	HDPE 1 mm 厚シート	ガンマ線	空気	室温
44	Effect of γ -irradiation on the biodegradation of polyethylene films			
	M. Negrin, E. Macerata, G. Consolati, F. Quasso, A. Lucotti, M. Tommasini, M. Mariani			
	30th Miller Conference on Radiation Chemistry, Oct 7 -11, 2017, Castellammare del Golfo, Italy			
	HDPE, LDPE	ガンマ線	空気	—
45	Degradation of Electron/Gamma-Irradiated Polymer Studied by Positron Annihilation Technique			
	T. Oka, K. Onodera, Y. Kino, T. Sekine			
	30th Miller Conference on Radiation Chemistry, Oct 7 -11, 2017, Castellammare del Golfo, Italy			
	HDPE, LDPE	ガンマ線 電子線	真空	室温

表 2-1 ポリエチレンの放射線照射効果に関する既往研究例における試験条件の整理
(続き).

番号	発表題目			
	著者・発表者			
	出典・会議名称			
	ポリエチレン(種類、形状等)	線種(線量率)	照射雰囲気	照射温度
46	Degradation of Electron-Irradiated Polyethylene Studied by Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy			
	K. Onodera, T. Oka, Y. Kino, T. Sekine			
	Journal of Physics: Conf. Series 791 012026 (2017)			
	HDPE 2 mm 厚シート	2 MeV 電子線	真空	室温
47	Crosslinking Polyethylene Resins via E-Beam Irradiation			
	G. Billovits, M. Spalding, B. Barton, M. Behr, E. Hukkanen, T. Peterson			
	ANTEC Anaheim 2017, May 8-10, 2017, Anaheim, U.S.A.			
	PE 76~102 μm フィルム	70, 200 keV 電子線	窒素	—
48	Effect of Irradiation Treatment on Compressive Properties of Ultra-High-Molecular-Weight Polyethylene			
	M. Kamiya, H. Kikugawa, T. Asaka, M. Kanda, Y. Nishi			
	Materials Transactions, Vol. 58, No. 8, pp. 1150-1154 (2017)			
	UHMWPE 50 mm × 50 mm ロッド	ガンマ線(8 kGy/h) 170 keV 電子線	空気(ガンマ線) 窒素(電子線)	室温

表 2-2 高性能容器に用いられているポリエチレンの耐放射線性評価試験における試験条件.

	ガンマ線照射試験	10MeV 電子線照射試験
線量	~3000 kGy	~2000 kGy
線量率	1, 10 kGy/h	— (記載なし)
温度	室温	室温
雰囲気	空気	— (記載なし)

第3章 試験準備および試験方法

本試験では、ポリエチレンの特性変化に及ぼす電子線／ガンマ線の影響、高線量域における特性変化挙動、非酸化領域を含むポリエチレンの特性変化挙動に関するデータを取得・整理した。ここでは、試薬メーカーから販売されている高密度ポリエチレンをモデル材料として用いてデータを取得した。これは、東京電力株式会社福島第一原子力発電所で使用されている HIC のポリエチレンを構成する材質について開示されている情報がほとんど無いためである。従って、本試験で得られたデータは HIC の健全性を直接評価するためのデータではないことに注意されたい。

試験の準備・実施に当たり、平成 27 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業報告書、平成 28 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業報告書に従い、同様の方法で試料作製や照射容器作製、特性評価を行なった。

(3-1)試料準備

本試験に用いたポリエチレンは Sigma Aldrich 製の高密度ポリエチレンであり、その軟化温度は約 123℃である。架橋剤として、Luperox101®(Archema 製、2,5-ビス(t-ブチルプロピル)2,5-ジメチルヘキサノール)を用いた。カタログ値より、最高混練温度は 150℃、標準架橋温度は 190℃である。酸化防止剤として、BASF 社より Irganox1010®として市販されているペンタエリトリールテトラキス[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]を用いた。図 3-1 に本試験で使用した試薬の化学構造式を示す。

熔融混練機(井元製作所製、混練押出特性試験機 1AF0・ミキサユニット 1AF3 改)に所定量の高密度ポリエチレンを入れ、攪拌しながら 130℃で加熱熔融後、マイクロピペットにて所定量(高密度ポリエチレンに対し 1.5 wt%)量り採った架橋剤を滴下して混合した。その後、30 rpm で 1 min 混練を行なった後、熱プレス機を用いて 190℃、150 kgf/cm²、5 min の条件でシート試料に加工した。酸化防止剤を添加する場合には、高密度ポリエチレンに対し 1 wt%となるよう秤量した酸化防止剤を架橋剤の滴下後速やかに熔融混練機へ入れ、混練を行なった。この場合の熱プレス条件は上述と同様である。

本試験では厚さの異なるポリエチレン試料を試験に供した。ここでは、8 cm×8 cm×50 μm のポリイミド樹脂製型枠、15 cm×15 cm×1 mm のステンレス鋼製型枠、15 cm×15 cm×2 mm のステンレス製鋼型枠を用いてそれぞれ 100 μm 厚、1 mm 厚、2 mm 厚のポリエチレン試料を作製した。厚さ 50 μm の型枠を用いたが、本試験条件で安定的に得られた最薄の試料厚さは約 100 μm であった。

(3-2)電子線／ガンマ線照射試験

(3-2-1)電子線照射試験

電子線照射試験には、量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所 電子線照射施設を利用した。本施設には、コッククロフト・ワルトン型電子加速器が設置されており、加速電圧：0.5～2.0 MeV、電子電流：0.1～30 mA の範囲で任意の照射条件を制御可能である。

試験に先立ち、電子加速器で得られる線量率を評価した。線量計には酢酸セルロース(CTA)フィルム(富士フィルム, FTR-125)を用いた。電子線照射による線量と CTA フィルムの UV 吸収強度の間には比例関係があり、これを利用して単位時間・単位電子電流当たりの線量を求めた⁽¹⁾。加速電圧：1, 2 MeV、電子電流：1 mA の設定において 60 sec 電子線を照射した後、CTA フィルムの UV 吸収測定および線量計算を行った。電子線の線量率は、電子電流値あるいは電子線射出窓からの距離を調整することによって制御可能である。図 3-2 に示すように、加速電圧 2 MeV、電子電流値 1 mA において、電子線射出窓下 126 cm における線量率は、0.15 kGy/sec・mA であった。この結果を基に、安定的に得られる最低電子電流値 0.1 mA を設定することにより、線量率：0.015 kGy/sec (54 kGy/h)を得た。

電子線照射試験は、ポリエチレン試料を銅製の水冷板の上に載せて実施した。これは、電子線照射による加熱を防止するためであり、電子線照射中、試料近傍の温度は約 28℃で一定であった。

(3-2-2)ガンマ線照射試験

ガンマ線照射試験には、量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所 コバルト 60 照射施設 第 2 照射室を利用した。線量率を評価する線量計にはアラニン線量計(日立電線, アミノグレイ)を用いた。ガンマ線照射による線量とアラニン線量計素子に生じるフリーラジカル数の間には比例関係があり、これを利用して単位時間当た

りの線量を求めた⁽²⁾。ガンマ線源からの距離に対する線量率の変化を図 3-3 に示す。当該照射室では、12~0.2 kGy/h の範囲で線量率を調整することができる。

(3-3)特性評価

(3-3-1)引張り試験

引張り試験については JIS K7161、K7162 に従った。フィルム試料、シート試料ともに引張り速度 200 mm/min の条件において、最低 3 点の試験片について測定したデータを基に平均値を算出した(TOYOSEIKI 製, STROGRAPH VE5D)。8×8 cm のフィルム試料(100 μm 厚)、7.5×15 cm のシート試料(1 mm 厚)から 1BA 形ダンベル試験片を切り出し、標線間距離は 25 mm とした。引張り強度、破断時伸び、引張り弾性率は以下の式により計算した。

$$\cdot \text{引張り強度 (MPa)} = \frac{F}{A}$$

F : 測定荷重 (N)

A : 試験片の断面積 (mm²)

$$\cdot \text{引張り破断時伸び (\%)} = \frac{L-L_0}{L_0} \times 100$$

L_0 : 試験片の初期の標線間距離 (mm)

L : 試験片の破断時の標線間距離 (mm)

$$\cdot \text{引張り弾性率 (MPa)} = \frac{\sigma_2 - \sigma_1}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}$$

σ_1 : ひずみ $\varepsilon_1=0.0005$ において測定された引張応力 (MPa)

σ_2 : ひずみ $\varepsilon_2=0.0025$ において測定された引張応力 (MPa)

(3-3-2)ダイナミック硬度特性試験

JIS Z 2255 およびポリエチレン等のプラスチック材料の測定例を参考に測定条件を決定し、ダイナミック硬度特性試験(負荷-除荷試験)を実施した^(3,4)。使用した試験機は Shimadzu 製 DUH-211 であり、稜角 115°の三角錐ダイヤモンド圧子を使用した。フィルム試料については、試験力 0.98 mN、負荷速度 0.03 mN/sec、保持時間 5 sec の条件で、シート試料については、試験力 9.8 mN、負荷速度 0.29 mN/sec、保持時間 5 sec の条件で測定を行なった。いずれの試料についても最低 5 点の測定結果を元に平均値を算出した。ダイナミック硬さ、押し込み弾性率は以下の式から求めた。

$$\cdot \text{ダイナミック硬さ} = \alpha \times \frac{P}{D^2}$$

P : 試験力 (mN)

D : 押し込み深さ (μm)

α : 圧子形状による定数 (稜角 115° では 3.86)

$$\cdot \text{押し込み弾性率 (MPa)} = \frac{E_r E_i (1 - \nu_s^2)}{E_i - E_r (1 - \nu_i^2)}$$

$$S = dP/dh = 2 \cdot E_r \cdot A_p^{0.5} / \Pi^{0.5}$$

$$A_p = 23.96 \cdot h_c^2$$

$$h_c = h_{max} - 0.75(h_{max} - h_r)$$

E_r : 押し込みの接触による換算弾性率

E_i : 圧子のヤング率 ($1.14 \times 10^2 \text{ N/m}^2$)

ν_i : 圧子のポワソン比 (0.07)

ν_s : 試料のポワソン比

S : 除荷開始時の傾き (近似曲線の傾き)

A_p : 接触投影面積 (23.96 は三角錐圧子 115° の場合の定数)

h_c : 接触深さ

h_r : 試験力-深さ曲線の最大試験力における除荷曲線の接線が深さ軸と交わる切片

(3-3-3)密度測定

密度測定には、Shimadzu 製 マイクロメリティックス乾式自動密度計 アキュピック II 1340 を使用した。ヘリウムガスを用いた定容積膨張法により、測定温度 $27.0 \sim 27.5^\circ\text{C}$ において試料体積を測定するとともに、予め測定した試料の質量から密度を計算した。

(3-3-4)ゲル分率測定

フィルム試料の場合、ダンベル試験片を切り出した残りの部分から、合計約 200 mg となるよう試験片を切り出した。シート試料の場合、シートの任意の 3 か所から小片を合計約 200 mg となるよう試験片を切り出した。ゲル分率測定は沸騰キシレン (144°C) を溶媒とし、溶媒抽出前後の試験片重量を基に、下式によりゲル分率を算出した。抽出時間は 7 hr、乾燥は減圧下、 70°C 、16 hr の条件で行なった。

$$\cdot \text{ゲル分率 (\%)} = \frac{W}{W_0} \times 100$$

W : 溶媒抽出・乾燥後の試験片重量

W_0 : 溶媒抽出前の試験片重量

(3-3-5)フーリエ変換赤外分光(Fourier-Transform Infrared; FT-IR)分析

FT-IR 分析は Shimadzu 製, IRAffinity-1S を用い、全反射法により行なった。フィルム試料、およびシート試料の表面について測定を行ない、 1720 cm^{-1} 付近の酸化生成物であるカルボニル基($>\text{C}=\text{O}$)に由来するピークと 1460 cm^{-1} 付近のポリエチレンの主骨格であるメチレン基($-\text{CH}_2-$)に由来するピークの比を求め、酸化生成物の相対的な量を評価した^(5, 6)。1 試験片に対し 3 点の測定結果を元に平均値を算出した。

(3-3-6)顕微フーリエ変換赤外分光(FT-IR)分析

シート試料の断面厚さ方向における酸化領域の評価は、顕微赤外分光分析装置(Thermo Fisher Scientific 製, NICOLET iN10 MX)を用いて行なった。2 mm 厚のシートを作製し約 40 kGy までガンマ線を照射した後、シート厚さ方向の断面を含むよう $50 \mu\text{m}$ の厚さにミクロトーム(YAMATO 製, リトラトーム REM-710)を用いて測定用試験片を切り出した。これを透過法により $10 \mu\text{m}$ 間隔で厚さ方向のラインスキャンを行なった。図 3-4 に示すように、横軸に波数(cm^{-1})、縦軸に距離(μm)を取ったマッピングデータにおけるカルボニル基($>\text{C}=\text{O}$)のピーク分布から酸化層の厚さを評価した。なお、図 3-4 はシート試料の断面の片側を測定した時のマッピングデータである。1 試験片に対し最低 4 点の測定結果を元に平均値を算出した。

(3-3-7)ストレスクラッキング試験

ストレスクラッキング試験は JIS Z1703 に従い、厚さ 2 mm、幅 13 mm、長さ 38 mm の試験片を作製し、専用の冶具(井元製作所製、ストレスクラッキングテスター IMC-1584)を用いて試験片ホルダに固定した。ガンマ線照射後、生成したクラック数を計測し、ストレスクラッキング特性を評価した。3 点の試験片について評価を行ない、平均値を算出した。

(3-3-8)X 線コンピュータ断層撮影(X-Ray Computed Tomography; XRCT)

代表的なストレスクラッキング試験後の試験片を選択し、XRCT 装置(Nikon 製,

MCT225)を用いて試料外観および断面を撮像した。断面写真から生成したクラック深さを計測し、平均値および最大値を評価した。

(3-3-9)デジタル光学顕微鏡観察

デジタル光学顕微鏡(Keyence 製, VHX-1000)を用い、照射後のポリエチレンシート試料表面を観察した。

(3-4)フィルム・シート試料の初期特性

(3-1)項で述べた条件において作製したポリエチレンフィルムおよびシート試料の初期特性を表 3-1 にまとめる。フィルム試料とシート試料(いずれも酸化防止剤非添加)を比較すると、引張り破断時伸び、引張り弾性率はほぼ同様であったが、引張り強度は断面積の小さいフィルム試料の方が高くなった。ダイナミック硬さ、押込み弾性率は測定条件が異なるため直接的な比較ができないが、値の大きな違いはなかった。密度は、フィルム試料の方が高く、これは薄い(100 μm 厚)試料中に含まれる閉気孔(ヘリウムガスが侵入できない独立した気孔)が少なくなるためである。フィルム試料のゲル分率はシート試料よりも約 18%低く、熱プレス処理時の化学架橋が不十分であった可能性がある。

一方、シート試料については、酸化防止剤の有無に関わらず、全ての特性において大きな違いは認められず、初期特性に及ぼす酸化防止剤の影響は見られなかった。

第3章参考文献

- (1) “電子線吸収線量の算出と測定－300 keV 電子加速器の場合－”，岡部茂，津守邦彦，多幡達夫，吉田俊夫，永井昭夫，広三寿，石田国彦，坂本勇，河合禎，荒川和男，井上崇，村上知之，応用物理，第43巻，第9号，pp. 909-918 (1974).
- (2) “電子スピン共鳴(ESR)法を用いた大線量測定”，小嶋拓治，田中隆一，Radioisotopes, Vol. 41, pp. 320-330 (1992).
- (3) “プラスチック成形品の性能評価技術（第4報）－微小硬度・破水試験－”，中島秀樹，望月政夫，井沢徹，茨城県工業技術センター研究報告，第22号，pp. 37-39 (1993).
- (4) “島津ダイナミック超微小硬度計 DUH-W201S 極細プラスチックチューブの硬度評価”，島津試験 CSC ニュース, No. 131, (<https://solutions.shimadzu.co.jp>).
- (5) “Characterization of gamma irradiated low and high density polyethylene using the FTIR and DSC technique”, A. Sadighzadeh, P. A. Asiabi, A. Ramazani, M. Ghoranneviss, A. S. Elahi, Journal of Inorganic Organometallic Polymers and Materials, 25, pp. 1448-1455 (2015).
- (6) “Product analysis for polyethylene degradation by radiation and thermal ageing”, M. Sugimoto, A. Shimada, H. Kudoh, K. Tamura, T. Seguchi, Radiation Physics and Chemistry, Vol. 82, pp. 69-73 (2013).

表 3-1 本試験で作製したポリエチレンフィルム試料およびシート試料の初期特性.

試料	酸化防止剤	引張り特性			ダイナミック硬度特性		密度 (g/cm ³)	ゲル分率 (%)
		破断時伸び (%)	引張り強度 (MPa)	引張り弾性率 (MPa)	ダイナミック硬さ	押し込み弾性率 (MPa)		
100 μ m フィルム	なし	625.2 \pm 59.6	41.7 \pm 8.9	207.5 \pm 10.9	4.0 \pm 0.3	978.9 \pm 51.9	0.9438 \pm 0.0053	79.6 \pm 9.3
1mm シート	なし	581.3 \pm 28.9	26.4 \pm 3.6	274.4 \pm 66.6	2.9 \pm 0.1	919.3 \pm 46.3	0.9301 \pm 0.0039	97.4 \pm 0.7
	あり (1wt%)	657.5 \pm 52.2	29.2 \pm 3.7	260.5 \pm 24.9	3.0 \pm 0.1	1055.4 \pm 194.6	0.9310 \pm 0.0032	96.8 \pm 0.3

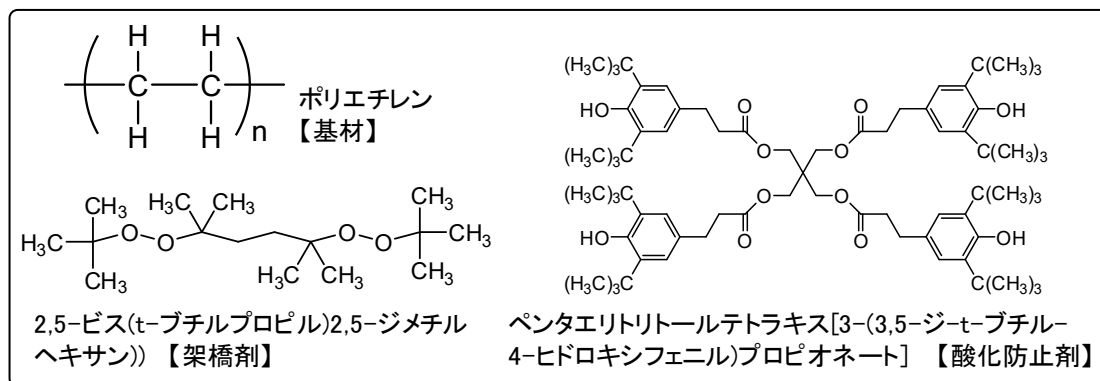


図 3-1 本試験で使用した試薬の化学構造.

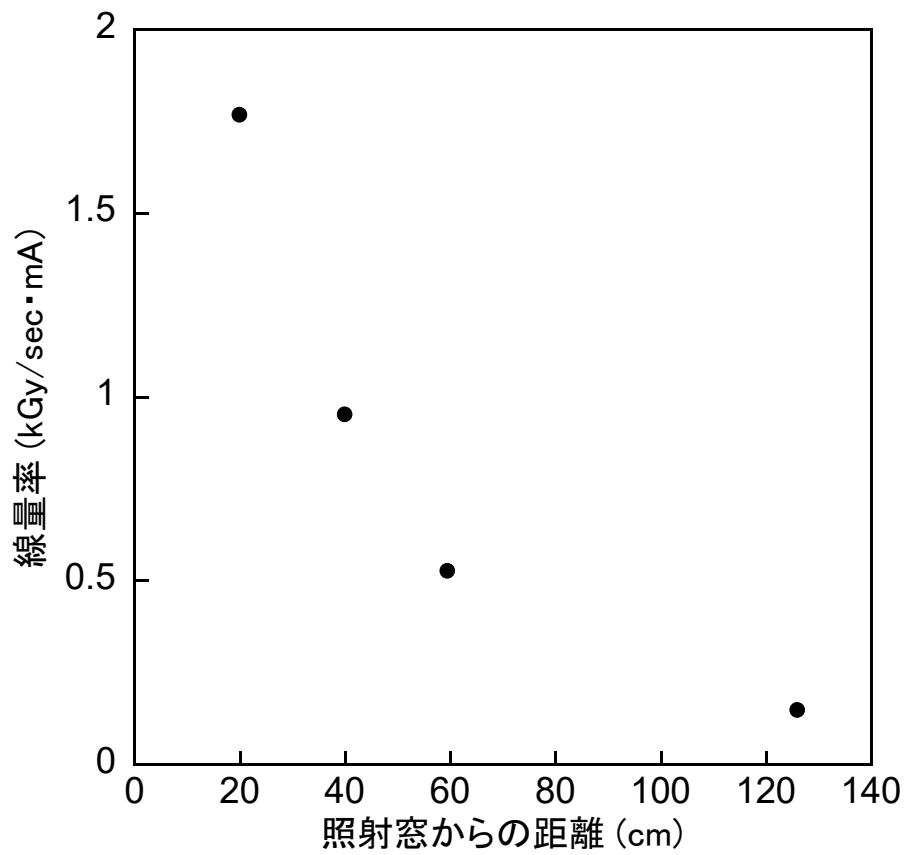


図 3-2 電子加速器における電子線射出窓からの距離と電子線線量率の関係(加速電圧 : 2 MeV、電子電流値 : 1 mA).

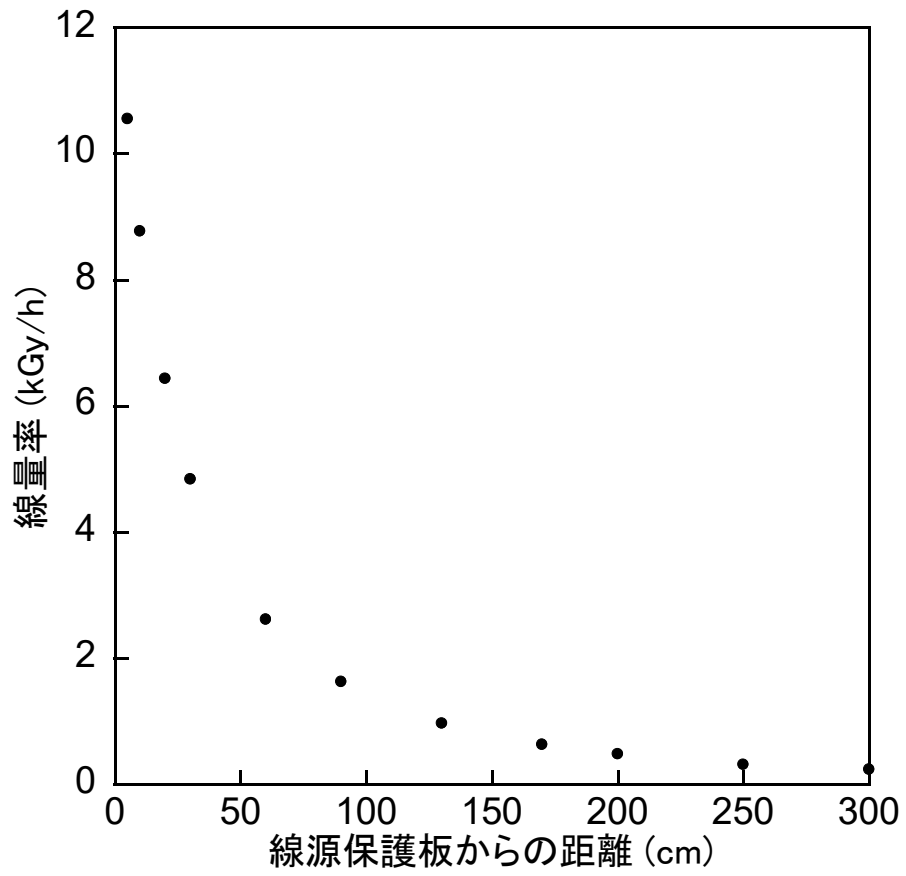


図 3-3 コバルト 60 ガンマ線源からの距離とガンマ線線量率の関係.

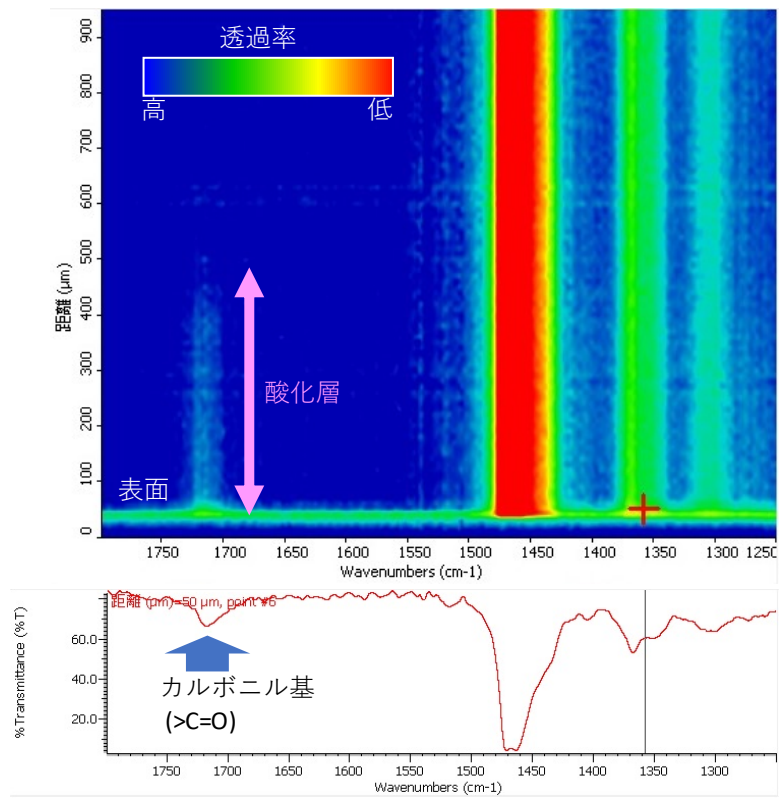


図 3-4 顕微 FT-IR 装置を用いたポリエチレンシート試料断面におけるカルボニル基のライン分析結果の例.

第4章 電子線／ガンマ線照射によるポリエチレンの特性変化に関するデータ取得

炭酸塩スラリーはベータ核種である Sr を含んでおり、これを収容する HIC においては、ポリエチレンはガンマ線に加えベータ線(電子線)の照射環境下に置かれる。第2章で取りまとめたように、電子線とガンマ線を同時に利用したポリエチレンの特性変化に関する既往研究事例は少ない上に、ポリエチレンの放射線劣化に対する電子線／ガンマ線の線種の影響を厳密に比較できる事例がない。ポリエチレンの放射線劣化に関する電子線／ガンマ線の線種の影響を比較するためには、ポリエチレンの放射線劣化メカニズムに基づき、試験片全体が酸化される条件下で照射試験を行なった試験片の特性変化を調べることが重要である。

そこで本章では、電子線／ガンマ線ともに、試験片全体が酸化される照射条件(試料厚さ、線量率、照射温度)を設定し、ポリエチレンの酸化挙動および特性変化挙動を調べ、線種の影響を評価した。

(4-1)線量率と酸化層厚さの関係評価

(4-1-1)試験方法

第3章(2)項で述べたように、電子線射出窓およびガンマ線源と試料の距離を調整することにより電子線およびガンマ線の線量率を制御し、酸化防止剤を含まない 2 mm 厚のポリエチレンシートに対して約 40 kGy まで照射を行なった後、顕微 FT-IR 装置を用いて表面からの酸化層厚さを評価した。

ここで、2 MeV 電子線の線量率を、0.015, 0.074, 0.15, 0.294 kGy/sec (それぞれ 54, 266, 540, 1058 kGy/h)、ガンマ線の線量率を、0.1, 0.14, 0.2, 0.5 kGy/h とした。

電子線、ガンマ線、いずれの照射試験の場合も、照射中の試料近傍の平均温度は約 28°C であった。この時の室温は 24~26°C の範囲であり、第2章で述べたようなビーム加熱により 2~4°C 試料温度が上昇したが、電子線、ガンマ線ともに同様の照射温度であり、ポリエチレンの酸化挙動、特性変化挙動に及ぼす線種の影響を評価する上で、同一の試験条件である。

(4-1-2)試験結果

図 4-1 に 2 MeV 電子線の線量率とポリエチレンの酸化層厚さの関係を示す。電子

線の線量率が低くなるにつれ酸化層の厚さが増加し、本試験で得られた最低線量率 0.015 kGy/sec における酸化層厚さは 54 μm であった。ガンマ線の場合も同様に、低線量率ほど酸化層の厚さは増加し、0.1 kGy/h の場合、662 μm となった(図 4-2)。

Seguchi らによって、空気中においてポリエチレンにガンマ線を照射した場合の線量率(I)と酸化層厚さ(L)の間に以下の関係式が成り立つことが報告されている⁽¹⁾。

$$L = A \cdot I^{-1/2} \quad \dots \text{式(2-1)}$$

ここで、 A は、ポリエチレンにおける酸素の拡散係数、溶解度、酸素の消費係数からなる定数である。図 4-1, 2 に示した結果を式(2-1)に当てはめてプロットすることにより図 4-3 を得た。この図から、ばらつきはあるものの、電子線の場合とガンマ線の場合において、直線関係から大きく外れるような傾向は認められず、電子線/ガンマ線において、ポリエチレンは同様に酸化されると言うことができる。つまり、ポリエチレンの放射線酸化挙動に及ぼす線種の影響はないと言える。

(4-2)ポリエチレンの特性変化に及ぼす線種の影響評価

(4-2-1)試験方法

図 4-1 に示した結果から、2 MeV 電子線の線量率を 0.015 kGy/sec (54 kGy/h) とした時のポリエチレン表面からの酸化層厚さは 50 μm を超えた。これは片側の値であり、つまり、厚さ 100 μm のフィルムは全体が完全に酸化される条件となる。そこで本章では、第 3-1 章の方法で作製した 100 μm 厚フィルムを試料として供した。本章では、酸化防止剤非添加のポリエチレンを試料とした。

電子線照射試験においては、電子線のエネルギー依存性も併せて評価するため、加速電圧、線量率を 2 MeV, 0.015 kGy/sec と 1 MeV, 0.013 kGy/sec の 2 条件を設定した。ガンマ線照射試験においては、100 μm 厚フィルムを完全に酸化可能な線量率として、2 kGy/h を設定した。試料が完全に酸化される条件では、線量率の影響は無視することができる⁽²⁾。電子線、ガンマ線を空気中約 28°C において、約 100 kGy まで照射し、その後、引張り試験、ダイナミック硬度特性測定、密度測定、ゲル分率測定、FT-IR 分析を行なった(それぞれの評価方法は第 3 章のフィルム試料の箇所を参照)。

(4-2-2)試験結果

図 4-4 に引張り試験の結果を示す。ポリエチレンの引張り破断時伸びは、線量に対

して変化が大きいため劣化評価の指標とされることが多いが、本試験の条件下では、電子線照射試料、ガンマ線照射試料ともに引張り破断時伸びは大きく低下せず、初期値の 625%に対し、100 kGy 照射後も 500%の伸びを維持した。これは、第 3 章で示したフィルム試料のゲル分率がシート試料よりも低いことに原因があると考えられる。低いゲル分率は、熱プレス時の架橋処理が十分に進んでいない可能性を示している。十分に架橋反応が進んだ試料の場合、放射線酸化による分子鎖切断により引張り破断時伸びは線量の増加とともに急激に低下するが、架橋反応が不十分な場合、分子鎖切断を伴う酸化反応に加え、放射線照射による架橋反応も起こるため、見かけ上劣化が起こらなかったと考えられる。引張り強度については、初期値の 42 MPa から、照射後 27~38 MPa まで低下したが、電子線照射試料、ガンマ線照射試料ともに線量による変化挙動の違いは見られなかった。引張り弾性率については、照射後の測定値のばらつきが大きく、線量による変化の判定が困難であるが、電子線/ガンマ線の間で特性変化の傾向の違いは認められなかった。また、電子線エネルギーによる特性変化挙動の違いも認められなかった。

図 4-5 にダイナミック硬度特性測定の結果を示す。初期のダイナミック硬さ、押し込み弾性率はそれぞれ、4.0、979 MPa であった。本試験の条件下では、電子線照射試料、ガンマ線照射試料ともに線量に対するダイナミック硬さ、押し込み弾性率の変化は小さく、また線種や電子線エネルギーの影響は認められなかった。

図 4-6 に密度測定結果を示す。照射後の試料の密度は全て初期値の $0.9438 \pm 0.0053 \text{ g/cm}^3$ のばらつきの範囲内にあり、線量、線種、電子線エネルギーの影響は認められなかった。

図 4-7 にゲル分率測定結果を示す。ゲル分率の初期値は 80%であり、約 40 kGy 以上で徐々に減少した。ゲル分率は、放射線酸化によって分子鎖が切断され、溶媒に可溶性成分が増加することによって低下する。約 40 kGy までの線量域においては、分子鎖切断と架橋が起こっているためゲル分率が低下しなかったと考えられる。ゲル分率変化についても線種、電子線エネルギーの影響は認められなかった。

図 4-8 に電子線、ガンマ線を 40 kGy まで照射後の試料の FT-IR スペクトルを示す。1460, 1470, 1720 cm^{-1} にそれぞれ、メチレン基(-CH₂-)、メチレン基(-CH₂-)、カルボニル基(>C=O)に帰属される顕著な吸収ピークが見られた⁽³⁾。未照射試料に対し、電子線、ガンマ線照射後の 1720 cm^{-1} におけるピーク強度はほぼ同様であり、酸化生成物の量(相対的な量)に対する電子線/ガンマ線の線種の影響はなく、照射によって

起こる酸化反応は同程度であると考えられる。

以上の結果から、ポリエチレンの特性変化に及ぼす電子線／ガンマ線の線種の影響および電子線のエネルギーの影響は見られなかった。

なお、本試験では、酸化防止剤を 1 wt% 添加したフィルム試料も作製して試験を行ったが、その特性変化挙動は、酸化防止剤なしの試料と全く同様の傾向を示したことから本章ではデータ整理を行なわなかった。試験データは巻末の付録にまとめた。

(4-3)まとめ

酸化防止剤非添加のポリエチレン試料に対し、線量率を変化させた 2 MeV 電子線およびガンマ線を空気中約 28℃において 40 kGy まで照射した時の酸化層厚さを評価した。その結果、電子線／ガンマ線の間でポリエチレンの酸化挙動に大きな違いは認められず、線種の影響はないことが明らかになった。

また、試料全体が完全に酸化される条件下、電子線、ガンマ線を空気中約 28℃において、100 kGy まで照射後の特性を評価した結果、ポリエチレンの特性変化に及ぼす電子線／ガンマ線の線種の影響および電子線エネルギーの影響は認められなかった。

以上のことから、試料が完全に酸化される条件であれば、ポリエチレンの放射線劣化に対する電子線とガンマ線の線種の影響はないと考えられる。

第 4 章参考文献

- (1) “各種高分子材料の耐放射線性－実使用環境模擬の劣化評価－”，瀬口忠男，反町正美，田村清俊，JAEA-Data/Code 2009-018, (2009).
- (2) “Radiation induced oxidative degradation of polymers-IV. dose rate effects on chemical and mechanical properties”, T. Seguchi, K. Arakawa, N. Hayakawa, S. Machi, Radiation Physics and Chemistry, Vol. 18, No. 3-4, pp. 671-678 (1981).
- (3) “Characterization of gamma irradiated low and high density polyethylene using the FTIR and DSC technique”, A. Sadighzadeh, P. A. Asiabi, A. Ramazani, M. Ghoranneviss, A. S. Elahi, Journal of Inorganic Organometallic Polymers and Materials, 25, pp. 1448-1455 (2015).

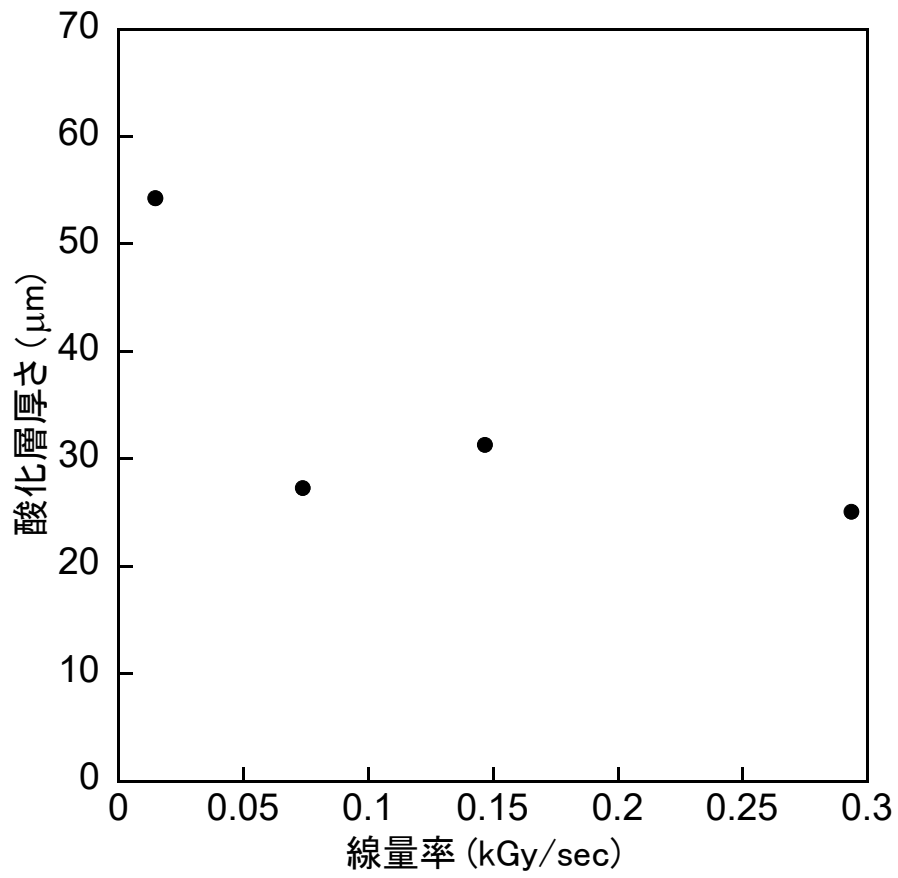


図 4-1 2 MeV 電子線の線量率とポリエチレンシート試料の酸化層厚さの関係 (空气中、常温(28°C)照射).

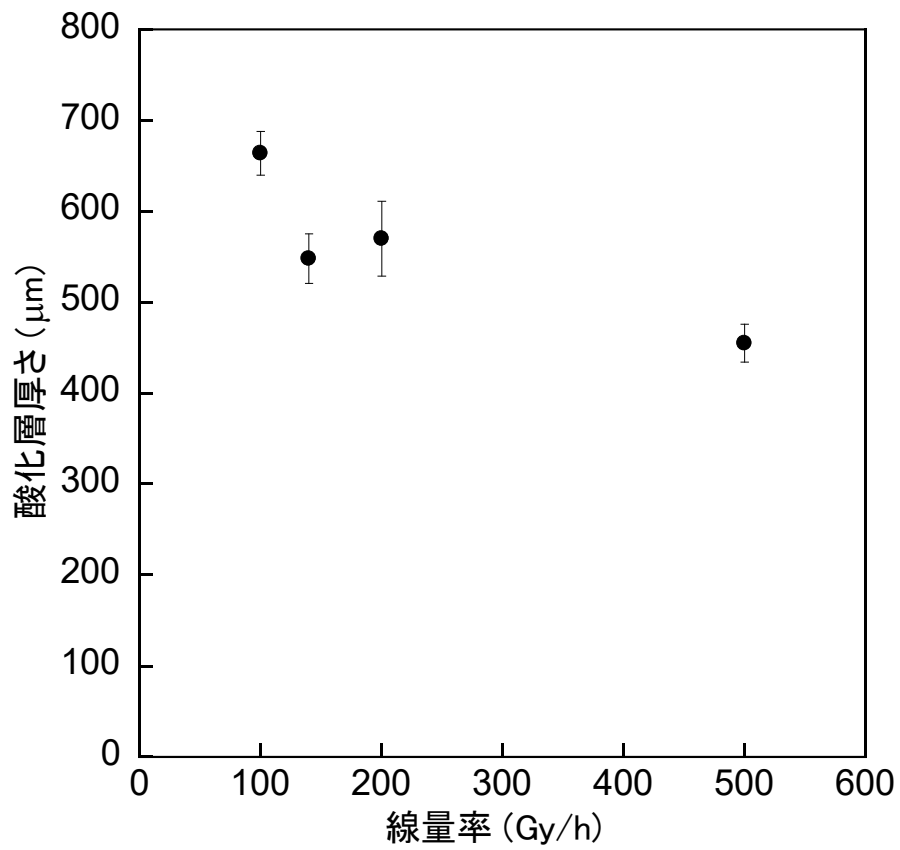


図 4-2 ガンマ線の線量率とポリエチレンシート試料の酸化層厚さの関係 (空气中、常温(28°C)照射).

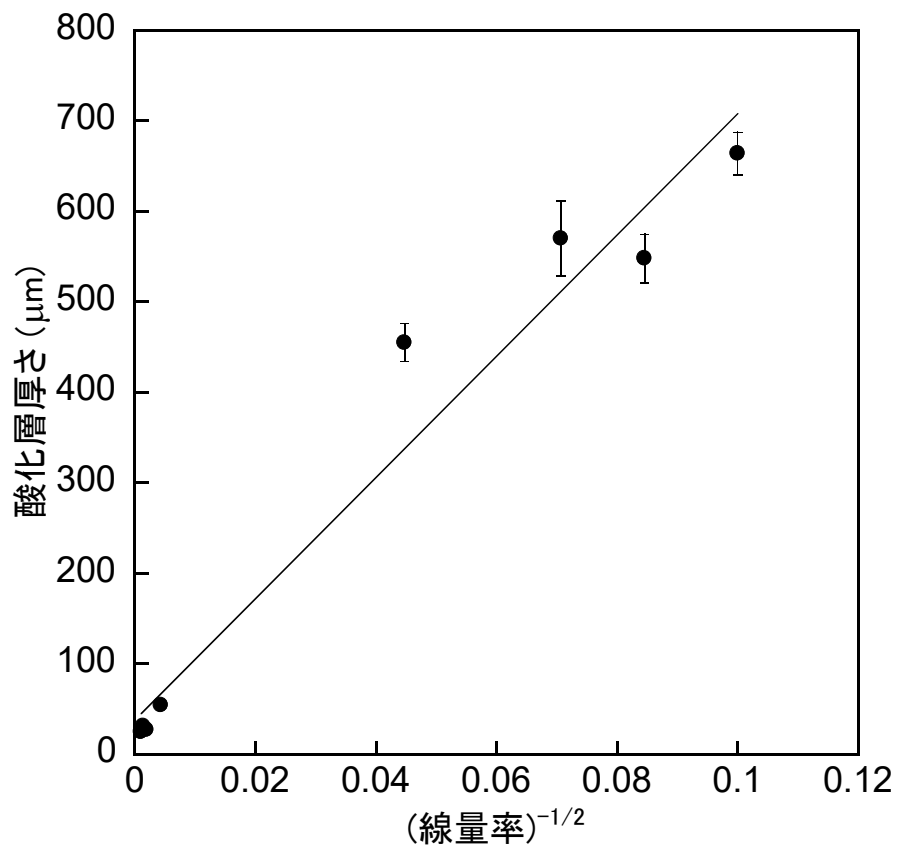


図 4-3 電子線／ガンマ線の(線量率)^{-1/2}とポリエチレンの酸化層厚さの関係.

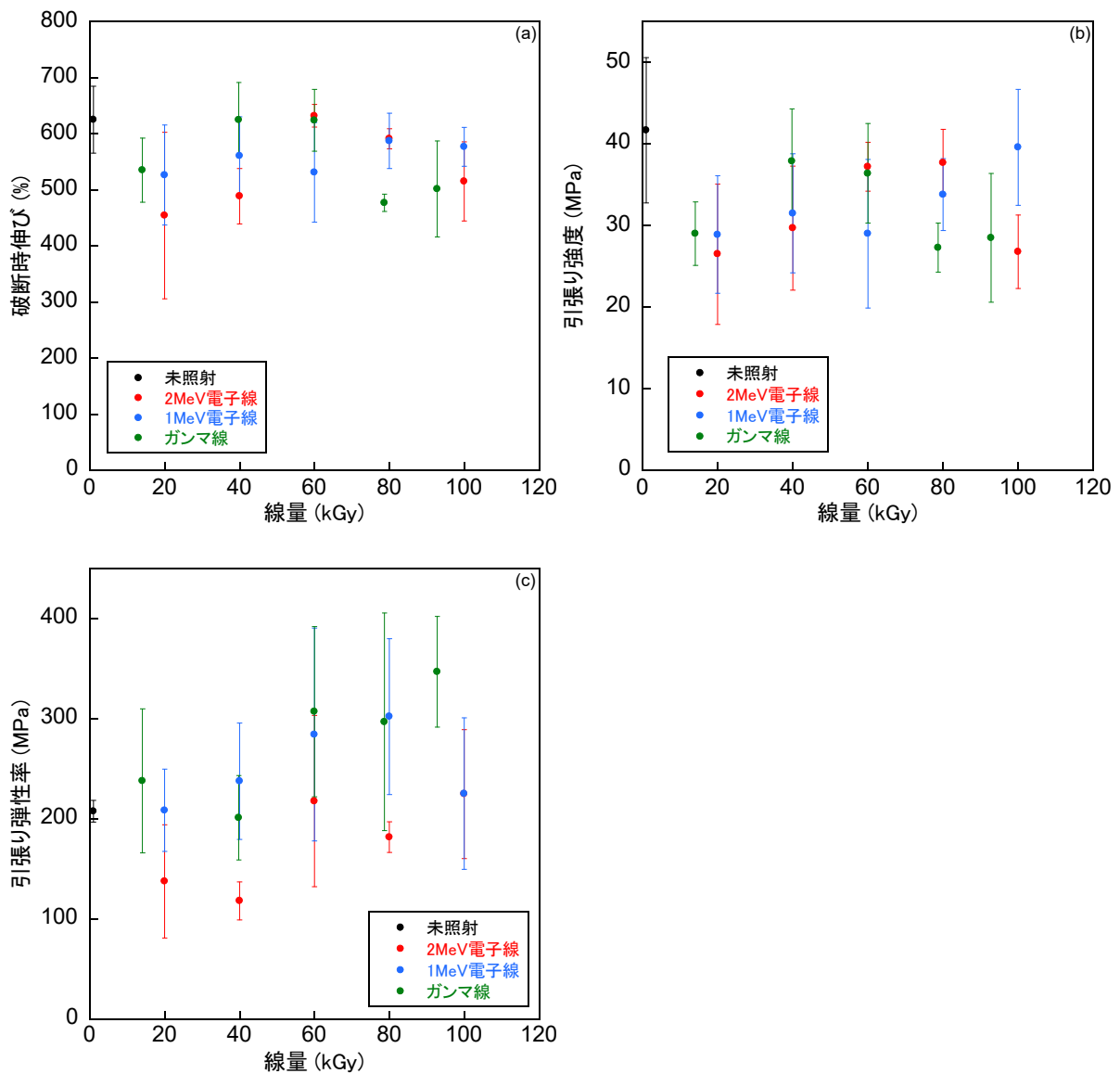


図 4-4 電子線／ガンマ線を照射後のポリエチレンフィルム試料の引張試験結果：(a) 引張り破断時伸び、(b) 引張り強度、(c) 引張り弾性率。

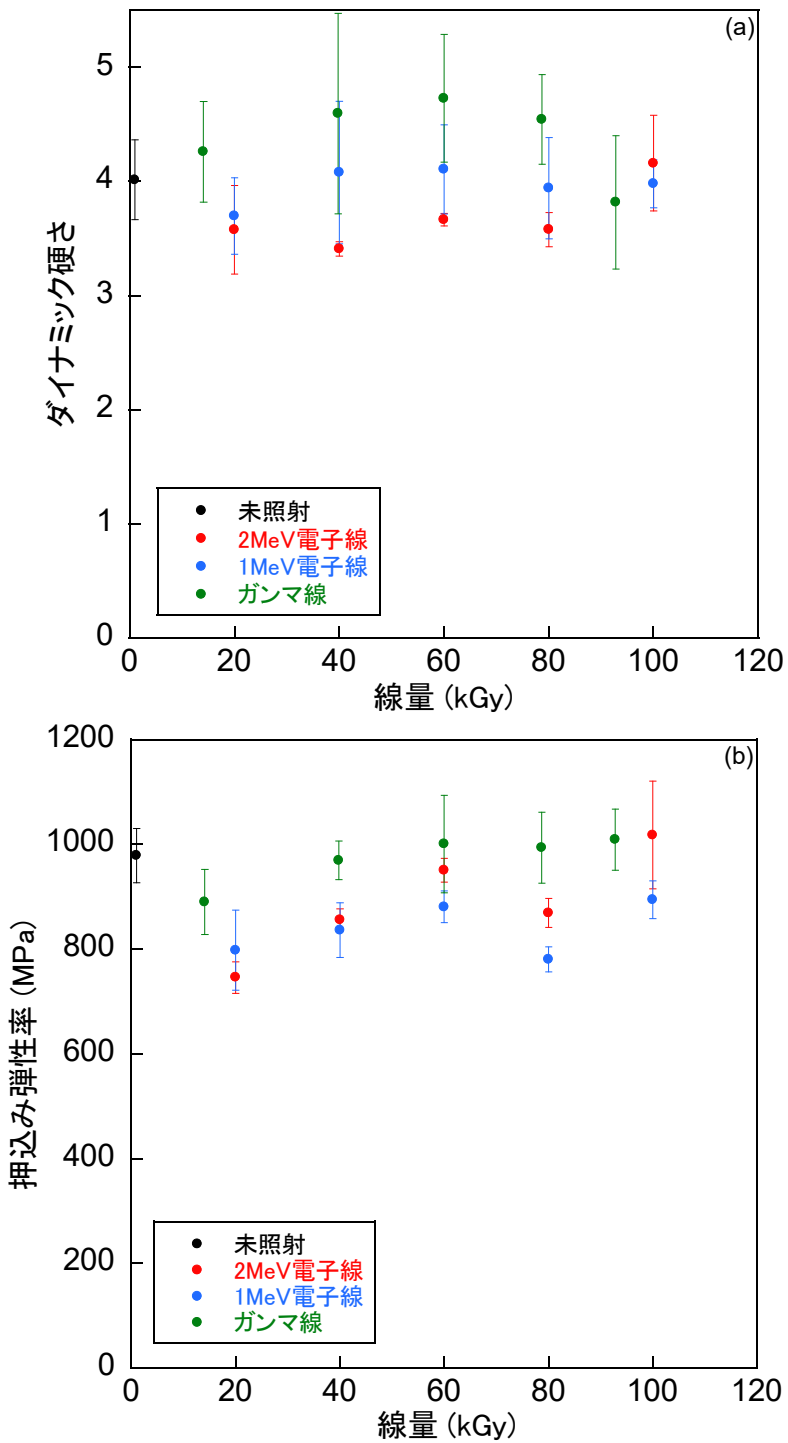


図 4-5 電子線／ガンマ線を照射後のポリエチレンフィルム試料のダイナミック硬度特性測定結果：(a) ダイナミック硬さ、(b) 押し込み弾性率。

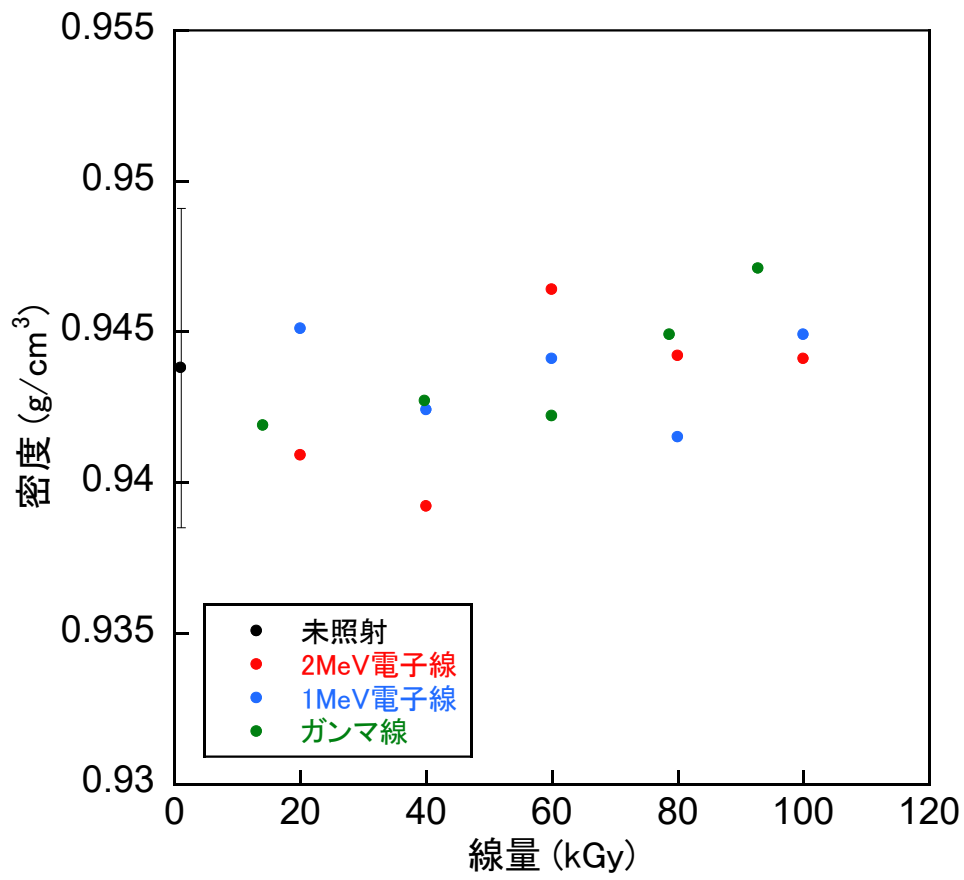


図 4-6 電子線／ガンマ線を照射後のポリエチレンフィルム試料の密度測定結果.

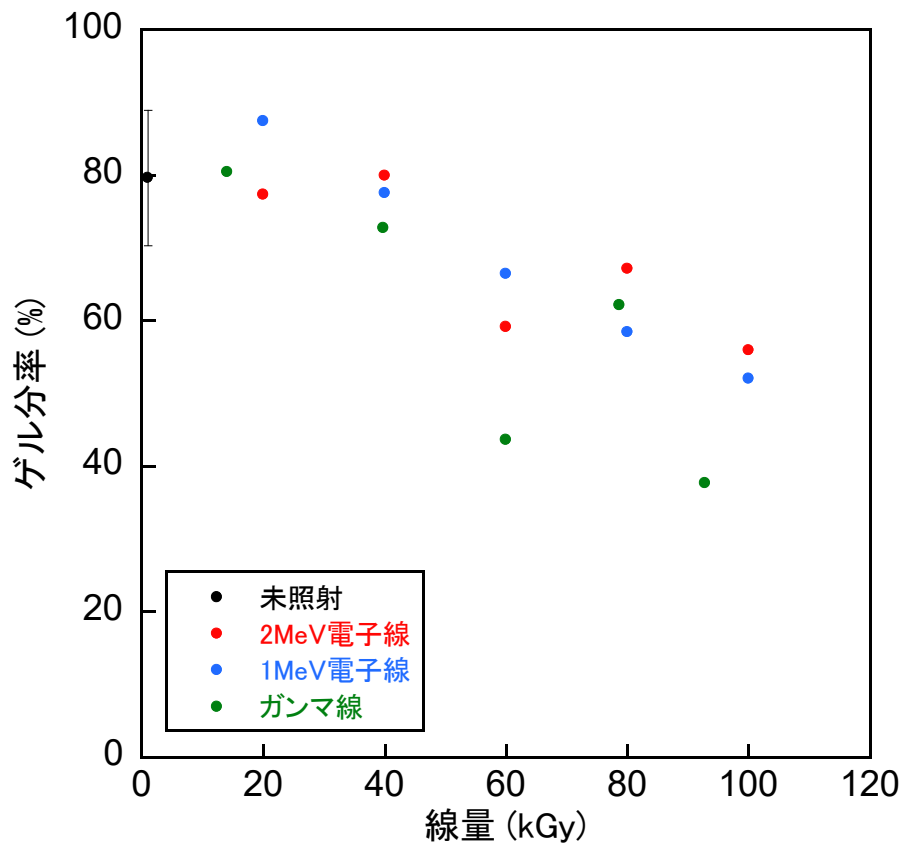


図 4-7 電子線／ガンマ線を照射後のポリエチレンフィルム試料のゲル分率測定結果.

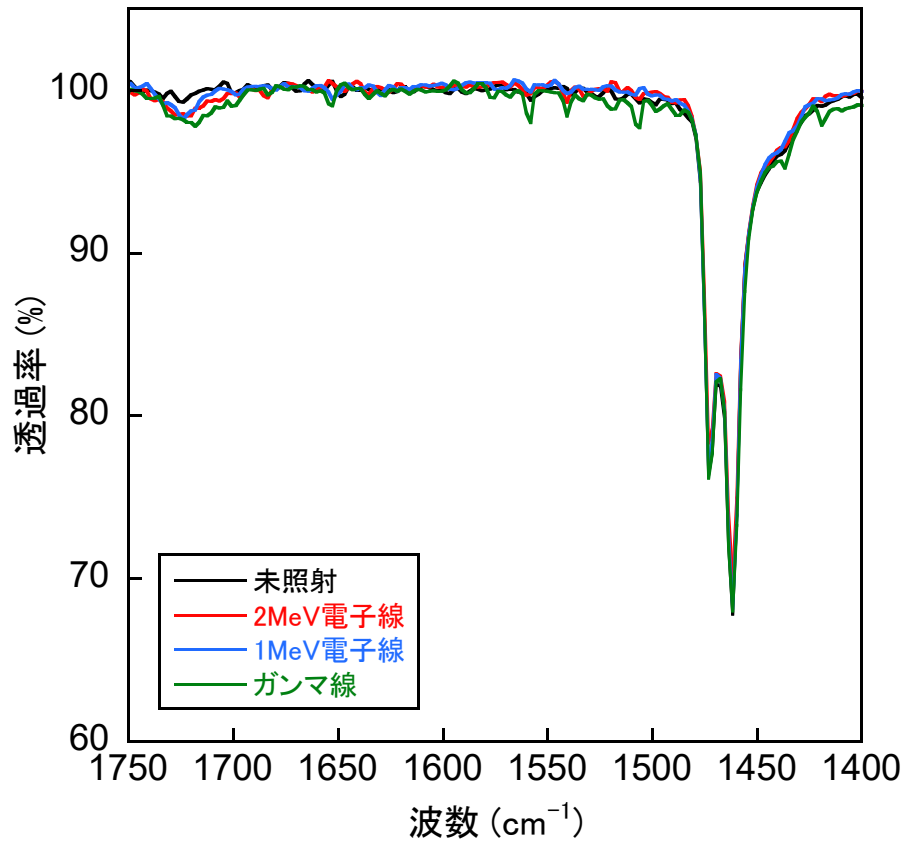


図 4-8 電子線／ガンマ線を照射後のポリエチレンフィルム試料の FT-IR 分析結果.

第5章 高線量域におけるポリエチレンの特性変化に関するデータ取得

第1章で述べたように、ベータ核種を収容するポリエチレン製高性能容器(High Integrity Container; HIC)の容器内側では、約10年間の保管期間中2000 kGyの積算線量になるものがあるとの試算がなされている⁽¹⁾。しかしながら、平成27年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業報告書、平成28年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業報告書において、試験された線量域は100 kGy程度であり、高線量域におけるデータが取得されていない。そこで本章では、より高線量域までのポリエチレンの特性変化挙動のデータを取得し、(1)照射雰囲気(空気、水、スラリー成分)の影響、(2)酸化防止剤の効果、(3)クリープ特性変化の検討、(4)ストレスクラック進展の可能性検討、の点について整理した。

なお、第4章においてポリエチレンの特性変化に及ぼす電子線／ガンマ線の線種の影響は認められなかったことから、本章では線種としてガンマ線を用いて試験を行った。

(5-1)試験方法

(5-1-1)ポリエチレンシート試料

本章で使用した試料は第3章(3-1)項の方法で作製した、酸化防止剤非添加のシート試料と酸化防止剤としてIgranox1010[®]を1 wt%添加したシート試料である。以降、それぞれを「酸化防止剤なし」、「酸化防止剤あり」と表記する。試料の厚さは1 mmを基本とし、ストレスクラッキング試験片のみ2 mm厚の試料を用いた。

(5-1-2)スラリー成分の調製

鉄共沈処理によって発生するスラリーでは酸化水酸化鉄(III) ($\text{FeO}(\text{OH}) \cdot \text{H}_2\text{O}$)、炭酸塩処理の場合は炭酸カルシウム (CaCO_3)と水酸化マグネシウム ($\text{Mg}(\text{OH})_2$)が主成分であることが報告されている⁽²⁾。スラリーの固液比(重量比)は、鉄共沈スラリーの場合10:90、炭酸塩スラリーの場合14:86であるとの情報を基に、酸化水酸化鉄(III)／精製水、および炭酸カルシウム／水酸化マグネシウム／精製水を調製した。それぞれのスラリーのpHを測定したところ、酸化水酸化鉄(III)／精製水で7.6、炭酸カル

シウム／水酸化マグネシウム／精製水で 9.2 と、いずれも弱アルカリ性を示した。なお、スラリー調製に用いた試薬は、酸化水酸化鉄(III) (関東化学製)、炭酸カルシウム (和光純薬工業製、試薬特級)、水酸化マグネシウム (和光純薬工業製、0.6 μ m、和光一級)である。

(5-1-3)ガンマ線照射容器

本試験の実施に当たり、水／スラリー成分中でポリエチレン試料にガンマ線照射を行なうための容器を製作した。平底の枝管付セパラブルフラスコの周囲をマントルヒーターによって加熱する構造とし、外部からエアーポンプによる空気のバブリング (150 cc/min)を行なった状態でガンマ線照射試験を実施した。空気中でのガンマ線照射には、内部にヒーターおよびファンが設置された空気循環式の恒温槽を用いた。なお、本照射容器は、平成 27 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業報告書および平成 28 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(水処理二次廃棄物の管理基準等の検討)事業報告書に記載のものと同様である。

次に、容器を置かない時の空気中線量率と精製水を入れた水中照射容器内の線量率から、照射容器によるガンマ線の線量減衰率の評価を行なった。照射容器毎に評価した減衰率を基にそれぞれの照射容器を設置する位置(線源からの距離)を決定した。

なお、本報告書では、空気、精製水、酸化水酸化鉄(III)／精製水、炭酸カルシウム／水酸化マグネシウム／精製水の照射雰囲気それぞれ、Air 雰囲気、Water 雰囲気、Fe 雰囲気、CaMg 雰囲気と表記する。

(5-1-4)ガンマ線照射試験における線量率の決定

水中 60℃において、線量率を変化させて約 40 kGy まで照射後、顕微 FT-IR を用いて酸化層の厚さを評価した結果、線量率が 0.5 kGy/h の時、酸化層厚さが 480 μ m、0.6 kGy/h の時、420 μ m となった(図 5-1)。本試験では、できるだけ高線量域におけるポリエチレンの特性変化データを取得する目的から、ガンマ線の線量率を 0.5 kGy/h と決定した。

(5-1-5)特性評価

ガンマ線照射後の特性評価として、引張り試験、ダイナミック硬度特性測定、密度

測定、ゲル分率測定、FT-IR 分析、ストレスクラッキング試験を行なった(それぞれの評価方法は第 3 章のシート試料の箇所を参照)。

(5-2)試験結果

(5-2-1)ポリエチレンの劣化に及ぼす照射雰囲気の影響：酸化防止剤なし

図 5-2 に各種雰囲気中でガンマ線照射後の試料表面の光学顕微鏡観察結果を示す。全ての試料において、約 200 kGy 以上の線量で表面にひび割れが発生し、線量の増加とともにひび割れの数が増加した。また、ひび割れの方向はランダムであった。このようなひび割れの発生は、主にシート試料作製時の残留応力に原因があると考えられる。CaMg 雰囲気の場合、ひび割れが細かく、他の雰囲気とは様子が異なっていた。この原因については不明であるが、CaMg 雰囲気の pH は 9.2 であり、Water 雰囲気の 7、Fe 雰囲気の 7.6 よりも高く、水酸化ラジカル($\cdot\text{OH}$)がポリエチレン分子の水素($-\text{H}$)を引き抜いて二重結合を生成することが報告されていることから⁽³⁾、これが CaMg 雰囲気における試料表面の状態変化に影響を及ぼしている可能性がある。

図 5-3 に各種雰囲気中でガンマ線照射後の引張り試験の結果を示す。照射雰囲気に依らず、引張り破断時伸びは未照射の 580%から急激に減少し、200~500 kGy の間でほぼ 0%まで低下した(図 5-3 (a))。引張り強度は、初期値が 26 MPa であったが、線量の増加とともに減少し、500 kGy において 10~15 MPa となった(図 5-3 (b))。また、引張り弾性率は、約 100 kGy までの線量域では増加し、その後減少する結果が得られた(図 5-3 (c))。ここで、500 kGy 以上では破断時伸びがほぼ 0%の結果となっており、これは、引張り試験開始直後に試験片が破断したことを示している。引張り強度、引張り弾性率は値として得られたが、データの信頼性は低いと考えられるため、データの取り扱いに注意が必要である。

ダイナミック硬度特性試験は、試料表面の硬さと弾性率を評価する試験である。測定箇所は光学顕微鏡の下、図 5-2 に示したひび割れ部分を避けて選んだ。図 5-4 に各種雰囲気中でガンマ線照射後のダイナミック硬度特性試験の結果を示す。表面のダイナミック硬さは照射雰囲気に依らず、初期の 2.9 から線量の増加とともに最大 7~13 まで増加し、500~1000 kGy の間で減少に転じた(図 5-4 (a))。CaMg 雰囲気のダイナミック硬さは他の雰囲気と比較して高くなっていたが、ひび割れの入り方等、表面状態が異なることに起因している可能性がある。押し込み弾性率については、ダイナミック硬さと同様、照射雰囲気に依らず、初期値 920 MPa に対して、線量増加とともに

最大 3000 MPa 程度まで増加し、500～1000 kGy の間で減少に転じた(図 5-4 (b))。上述の引張り試験の結果と併せ、500～1000 kGy の線量域において、ポリエチレン試料が脆化していると考えられる。

以上のように、100 kGy 以上の高線量域におけるポリエチレンの機械的特性変化に及ぼす照射雰囲気の影響は小さく、これまで平成 27、28 年度の事業報告書において報告されている結果と同様であることが分かった(4, 5)。

図 5-5 に各種雰囲気中でガンマ線照射後の密度測定の結果を示す。未照射試料の 0.93 g/cm^3 に対し、線量の増加とともに密度が増加し、1000～1500 kGy の範囲で飽和に近づく傾向が見られた。Water 雰囲気、Fe 雰囲気、CaMg 雰囲気はほぼ同様の値で変化し、1500 kGy で約 0.97 g/cm^3 となった。Air 雰囲気では約 0.99 g/cm^3 であり、他の雰囲気よりも密度が高くなる結果が得られた。密度増加の要因として、酸化による質量増加と網目(架橋)構造の崩壊による分子パッキング性の向上が考えられる。

図 5-6 に各種雰囲気中でガンマ線照射後のゲル分率測定の結果を示す。ポリエチレンに放射線を照射すると、ポリエチレン分子に生成するフリーラジカルと酸素が反応して酸化物を生成するとともに、分子鎖の切断を引き起こす。分子鎖が切断されることによって溶媒に可溶性成分が増加するため、不溶成分の重量割合を示すゲル分率が低下する。ゲル分率の初期値は 97% であり、シート試料作製時に化学的にほぼ完全に架橋された状態であったが、線量の増加とともにゲル分率は減少した。100 kGy までの線量域では、Air 雰囲気のゲル分率が他の Water 雰囲気、Fe 雰囲気、CaMg 雰囲気のゲル分率よりも低く、分子鎖の切断が促進されたと考えられる。500 kGy 以上の線量域では、ゲル分率は 40～60% と幅はあるもののほぼ一定となり、照射雰囲気による傾向の違いは見られなかった。

図 5-7 に FT-IR 分析結果からまとめた、各種雰囲気中でガンマ線照射後の試料表面のカルボニル基ピーク比強度を示す。これは、 1460 cm^{-1} におけるメチレン基($-\text{CH}_2-$)の吸収ピーク強度を基準として、 1720 cm^{-1} におけるカルボニル基($>\text{C}=\text{O}$)のピーク強度を比較したものである。全ての試料について、線量の増加とともにピーク比強度が増加し、1000～1500 kGy の範囲で飽和に近づく結果が得られた。同一線量で比較すると、ピーク比強度は、Air 雰囲気 $>$ Water 雰囲気 \approx Fe 雰囲気 $>$ CaMg 雰囲気の順となっており、Air 雰囲気が最も酸化されていることが分かった。

図 5-8 に示すストレスクラッキング試験の結果においては、従来の報告と同様に、Water 雰囲気、Fe 雰囲気、CaMg 雰囲気において低線量域からクラックが生成し始

める結果が得られた(4, 5)。ストレスクラック生成の要因は、破断応力を超える荷重の負荷である。ストレスクラッキング試験において、試験片は U 字に曲げられ試験片外側に引張り荷重が負荷された状態でガンマ線を照射される。図 5-9 は Air 雰囲気中、ガンマ線を照射後の試料の引張り試験における応力 - ひずみ曲線であるが、この図から明らかなように、線量増加とともに脆性的に、低応力で破断が起こる。この破断応力を超える荷重が負荷されている場合、クラックが生成する。ポリエチレンにガンマ線を照射すると分子鎖の切断が生じるが、引張り荷重を担っていた分子鎖が切断されると、そこに負荷されていた引張り荷重は緩和されると考えられる。図 5-6 に示したゲル分率変化の結果から、Air 雰囲気中では他の雰囲気と比べて分子鎖切断が促進されており、引張り荷重の緩和も大きくなったと考えられる。これらのことから、破断応力が低下する一方で引張り荷重が緩和された結果、Air 雰囲気中において、クラックの生成開始線量が他の雰囲気よりも高線量側にシフトしたと考えられる。逆に言い換えると、引張り特性の変化は Air 雰囲気中と同様であるが、表面の酸化、分子鎖切断が抑制され、引張り荷重の緩和が低減される Water 雰囲気、Fe 雰囲気、CaMg 雰囲気では、Air 雰囲気よりも低線量域でクラックが生成したと考えられる。

(5-2-2)ポリエチレンの劣化に及ぼす照射雰囲気の影響：酸化防止剤あり

図 5-10 に各種雰囲気中でガンマ線照射後の試料表面の光学顕微鏡観察結果を示す。照射雰囲気に依らず、全ての試料において約 400 kGy 以上で表面にひび割れが観察された。線量の増加とともにひび割れの数は増加し、またひび割れの方向はランダムであった。図 5-2 に示した酸化防止剤なしの試料の場合と比較すると、ひび割れが発生する線量が約 200 kGy 高かったが、ひび割れ発生の様子はほぼ同様であり、酸化防止剤ありの試料においても CaMg 雰囲気ではひび割れが細かく、他の雰囲気とは様子が異なっていた。

図 5-11 に各種雰囲気中でガンマ線照射後の引張り試験結果を示す。未照射試料では引張り破断時伸びが 658%であったが、線量の増加とともに低下し、500 kGy 以上ではほぼ 0%となった。破断時伸びが 0%となった試験片は、引張り試験開始直後に破断しており、酸化防止剤なし試料と同様に、高線量域における引張り強度、引張り弾性率の値の信頼性が低く、データの取り扱いに注意が必要である。引張り強度は初期値の 29 MPa から 500 kGy 照射後、10~15 MPa まで低下した。また、引張り弾性率は初期値 261 MPa であり、数十 kGy の線量域で 270~310 MPa まで増加したが、

その後減少した。

図 5-12 に各種雰囲気中でガンマ線照射後のダイナミック硬度特性試験結果を示す。表面のダイナミック硬さは雰囲気に依らず、初期値の 3.0 から線量の増加とともに最大 10~12 まで増加し、1000 kGy 以上で減少する傾向を示した。CaMg 雰囲気の場合、他と比べて若干高い値を示したが、ひび割れの入り方に起因する表面状態の違いによると考えられる。押し込み弾性率については、ダイナミック硬さの変化と同様、初期値 1055 MPa から線量増加とともに 3000~4000 MPa まで増加し、約 1000 kGy をピークに減少に転じた。

図 5-13 に各種雰囲気中でガンマ線照射後の密度測定結果を示す。未照射試料の 0.93 g/cm³ に対し、線量の増加とともに密度は増加し、約 1500 kGy 照射後、0.98~0.99 g/cm³ の範囲で飽和に近づいた。密度変化に対する照射雰囲気の影響は見られなかった。

図 5-14 に各種雰囲気中でガンマ線照射後のゲル分率測定結果を示す。初期値 97% に対し、ゲル分率は減少したが、500 kGy 以上の線量域では約 50% で一定となった。この変化挙動は照射雰囲気に依らず同様であった。

図 5-15 に各種雰囲気中でのストレスクラッキング試験結果を示す。Water 雰囲気、Fe 雰囲気、CaMg 雰囲気では、400 kGy 以上でクラックが発生した。Air 雰囲気の場合、500 kGy 照射後クラックは全く発生していなかったが、1250 kGy 照射後、100 個を超えるクラックの生成が確認された。クラックが生成し始める線量は、500~1250 kGy の間にあると考えられる。

以上の結果から、酸化防止剤あり試料の場合についても特性変化に及ぼす照射雰囲気の影響は小さく、酸化防止剤は照射雰囲気を問わず効果を発現することが明らかになった。

(5-2-3) ポリエチレンの特性変化に及ぼす酸化防止剤の効果

(5-2-1) および(5-2-2) に示した結果から、500 kGy を超える線量域におけるポリエチレンの特性変化挙動は酸化防止剤の有無に関わらずほぼ同様であり、また、照射雰囲気の影響もほぼ同様であったため、ここでは、Air 雰囲気、Water 雰囲気において 500 kGy までの線量域におけるポリエチレンの特性変化挙動に対する酸化防止剤の効果を整理した。

図 5-16 に各雰囲気中でガンマ線照射後の引張り破断時伸びの変化を示す。酸化防

止剤なし試料の場合、100 kGy までの線量域において破断時伸びが約 100%まで低下し、約 250 kGy で 50%、400 kGy 以上ではほぼ完全に 0%まで低下した。これに対し、酸化防止剤あり試料の場合、100 kGy までの線量域では 400%以上の破断時伸びを維持し、その後酸化防止剤なし試料の場合よりも緩やかに破断時伸びが低下した。

図 5-17 に各雰囲気中でガンマ線照射後のダイナミック硬さおよび押し込み弾性率の変化を示す。酸化防止剤なし試料、酸化防止剤あり試料ともに、線量の増加に伴ってダイナミック硬さと押し込み弾性率が増加したが、酸化防止剤あり試料の場合、約 300 kGy までの線量域においてダイナミック硬さ、押し込み弾性率の増加が酸化防止剤なし試料の場合よりも抑制された。

図 5-18 に各雰囲気中でガンマ線照射後の密度変化を示す。酸化防止剤なし試料、酸化防止剤あり試料ともに線量の増加によって密度が増加したが、特に Air 雰囲気中での照射の場合に着目すると、250 kGy までの線量域において酸化防止剤あり試料の密度が低く、450 kGy ではほぼ同様となった。密度増加の要因は、酸化による質量増加と分子鎖切断によるパッキング性の向上が挙げられる。酸化防止剤を添加することによって酸化およびそれに伴う分子鎖切断が抑制されるため、密度の増加が抑制されたと考えられる。450 kGy 以上では、酸化防止剤の効果が失われ、密度はほぼ同様になったと考えられる。

分子鎖切断を抑制する効果はゲル分率の変化にも現れた(図 5-19)。酸化防止剤なし試料の場合、100 kGy までの線量域においてゲル分率が急激に低下し、250 kGy 以上で 50~60%でほぼ一定となったのに対し、酸化防止剤あり試料の場合、100 kGy までの線量域におけるゲル分率の低下は緩やかであり、250 kGy 以上で 50~60%でほぼ一定となり、酸化防止剤なし試料と同等であった。この結果から、酸化防止剤の有無に関わらず、250 kGy 以上の線量域では分子鎖切断の程度は同等であり、450 kGy 以上の線量域では酸化防止剤の効果が失われ、酸化による質量増加も同等となり、図 5-18 に示したように、密度がほぼ同様になったと考えられる。

図 5-20 に各雰囲気中でガンマ線照射後のストレスクラッキング試験の結果を示す。酸化防止剤なし試料の場合、Water 雰囲気中において 100 kGy 以上、Air 雰囲気中において 200~300 kGy 以上の線量域でクラックが生成し始めたのに対し、酸化防止剤あり試料の場合、Water 雰囲気中において約 400 kGy 以上、Air 雰囲気中においては 500~1250 kGy の範囲においてクラックが生成し始めることが確認され、いずれの雰囲気においても酸化防止剤を添加することによってクラックが生成し始める線量

が高線量側にシフトした。また、他の特性と比べ、ストレスクラッキング特性において、酸化防止剤の添加効果が最も顕著に現れた。

以上の結果から、評価する特性によるが、200～400 kGy の線量域まで酸化防止剤はポリエチレンの特性劣化を抑制する効果を示した。ただし、この結果は本試験で使用するポリエチレンと酸化防止剤の組合せ・配合比において得られたものである。実用されているポリエチレンにおいては、酸化防止剤をはじめ様々な添加剤が配合されていることが一般的であり、本試験の結果が HIC の材質として使用されているポリエチレンの特性変化を示すものではない。

(5-2-4)クリープ特性変化の検討

保管中の HIC には収容物による静的荷重が負荷されており、クリープ変形の可能性について検討しておく必要がある。そこで本試験では、ガンマ線照射がポリエチレンのクリープ特性の変化に及ぼす影響を調べるため、ダイナミック微小硬度計を用いたインデンテーションクリープ特性を評価した。この特性はダイヤモンド圧子をごく微小な試験力で試料に押し込み、一定時間経過後の圧子の侵入深さの変化量からインデンテーションクリープ率を求めることにより評価した(図 5-21)。本試験では、試験力：0.46 mN、負荷速度：0.05 mN/sec、保持時間：60 sec とし、測定温度：20～70℃の範囲でガンマ線照射前後の試料について特性を評価した。試験片全体の特性を調べる引張りクリープ試験等とは異なり、本特性評価はポリエチレン試料表面の変形率の変化挙動を調べることを目的としている。本評価は、最も劣化が進んでいる試料表面を評価するものであり、放射線照射による変形を考慮する上で参考にできるデータが得られると考えられる。

図 5-22 に酸化防止剤なし試料、酸化防止剤あり試料について、Air 雰囲気中、Water 雰囲気中、60℃においてガンマ線照射後のインデンテーションクリープ率の変化を示す。測定温度は室温(21℃)である。酸化防止剤の有無、照射雰囲気に依らず、インデンテーションクリープ率は線量の増加とともに減少する傾向が見られた。図 5-4, 12 に示したように、ガンマ線照射後のダイナミック硬さと押し込み弾性率は線量の増加とともに増加する結果が得られており、ガンマ線照射によって表面が硬化することによりインデンテーションクリープ率は減少したと考えられる。

図 5-23(a)に未照射試料(酸化防止剤なし)についてインデンテーションクリープ率の測定温度依存性を示すが、70℃までの測定温度において、インデンテーションクリ

ープ率の顕著な変化は見られなかった。各雰囲気中においてガンマ線照射後の試料についての結果を図 5-23 (b), (c)に示す。酸化防止剤の有無、照射雰囲気によらず、インデンテーションクリープ率の顕著な変化は認められなかった。ポリエチレンは熱可塑性であり、高温において変形しやすくなる⁽⁶⁾。本試験では、HIC の保管環境を想定し、室温から 70°C までの測定温度においてインデンテーションクリープ率を評価したが、大きな変化はなく、ガンマ線照射によってポリエチレンが変形しやすくなる挙動は示さないことが分かった。

(5-2-5) ストレスクラック進展の可能性検討

図 5-8, 15 に示したように、ストレスクラッキング試験において、酸化防止剤の有無に関わらずクラックが生成し、線量の増加とともにクラック数が増加する結果が得られた。この結果は平成 27, 28 年度事業の報告書で報告されている結果と同様である。一方、クラックの深さについてはこれまでの試験において評価されていなかった。そこで本試験では、XRCT 装置を用いてストレスクラッキング試験後の試験片を観察するとともに、試験片断面像からクラック深さを調べた。

図 5-24 に XRCT 装置を用いて撮像したストレスクラッキング試験片の外観を示す。試験片は、Air 雰囲気中でガンマ線照射した酸化防止剤なし試料である。ここで、試験片の長辺方向に見える傷は JIS Z 1703 において規定されている、試験前に付けることとされている深さ 500 μm の切り込みである。図から、線量の増加とともにクラック数が増加し、また、クラックの方向について、低線量域では試験片の短辺方向に入るクラックがほとんどであったが、高線量域においてクラックはランダム方向に生成することが分かった。

次に、図 5-25(a)に示すように試験片の断面像を切り出し、クラックの深さを測定した。1 試験片に対し 2 か所の断面像から深さを測定し、データ整理した結果を図 5-25(b)に、得られた結果から求めたクラック深さの平均値および最大値と線量の関係を図 5-25(c)に示す。Air 雰囲気中でガンマ線照射した酸化防止剤なし試料において、線量の増加とともにクラック深さの平均値が増加するとともに、最大値も増加し、1723 kGy 照射後、最大 1167 μm のクラックが確認された。このように、高線量域においてクラックが深さ方向に進展する結果が得られたが、全ての試験片において、試験片厚さ 2 mm を貫通するようなクラックは見られなかった。

図 2-26 に各種雰囲気中でストレスクラッキング試験を行なった後の試験片の

XRCT 像を示す。Water 雰囲気、Fe 雰囲気、CaMg 雰囲気ではクラック数が Air 雰囲気の場合よりも多く、クラックの方向はランダムであった(図 5-26 (a), (b))。Air 雰囲気、Water 雰囲気、Fe 雰囲気、CaMg 雰囲気について、クラック深さの平均値はそれぞれ 337, 282, 297, 355 μm であり、最大値はそれぞれ 742, 756, 588, 688 μm であり、照射雰囲気による顕著な違いは見られなかった(図 5-26(c))。

(5-3)まとめ

本章では、これまでの事業において取得されていなかった 100 kGy 以上の高線量域におけるポリエチレンの特性変化挙動のデータを取得し、(1)照射雰囲気(空気、水、スラリー成分)の影響、(2)酸化防止剤の効果、(3)クリープ特性変化の検討、(4)ストレスクラック進展の可能性検討、の点について整理した。得られた結果を以下にまとめる。

●高線量域におけるポリエチレンの特性変化挙動

- ・酸化防止剤なし試料の場合、約 200 kGy、酸化防止剤あり試料の場合、約 400 kGy を超える線量域で 1 mm 厚シート表面にひび割れが生じた。
- ・引張り破断時伸びは、500 kGy 以上の線量域で 0%となった。
- ・ダイナミック硬さ、押込み弾性率は 500~1000 kGy の線量域において増加から減少に転じた。
- ・密度は線量の増加とともに増加し、0.97~0.99 g/cm^3 の値で飽和に近づいた。
- ・ゲル分率は線量の増加とともに減少したが、40~60%でほぼ一定となった。
- ・ストレスクラッキング試験において、高線量域では全ての照射条件でクラックが生成し、線量の増加とともにクラック数が増加した。

●照射雰囲気(空気、水、スラリー成分)の影響

- ・酸化防止剤の有無に関わらず、水、スラリー成分を含む照射雰囲気では、ストレスクラッキング試験において空気中の場合よりも低線量域でクラックが生成した。
- ・引張り特性、ダイナミック硬度特性、密度、ゲル分率の特性変化に対する照射雰囲気の影響は小さかった。ただし、酸化防止剤なし試料については、空気中照射における酸化量が大きく、他の雰囲気と比較して高密度、低ゲル分率となる傾向が見られた。
- ・シート試料表面のひび割れ発生について、CaMg 雰囲気では他の雰囲気よりもひ

び割れが細くなる結果が得られた。詳細な原因は不明であるが、水酸化ラジカルが影響を及ぼしている可能性がある。

●酸化防止剤の効果

- ・評価する特性によって違いがあるが、酸化防止剤は 200～400 kGy の線量域まで、ポリエチレンの特性劣化を抑制する効果を示した。500 kGy 以上ではその効果が失われ、酸化防止剤なし試料とほぼ同様の特性変化挙動を示した。

●クリープ特性変化の検討

- ・ガンマ線照射後、ポリエチレン表面の変形率を示すインデンテーションクリープ率が減少する傾向が見られた。また、65℃の測定温度において、インデンテーションクリープ率が極端に増加するような結果は得られなかった。

●ストレスクラック進展の可能性検討

- ・ストレスクラッキング試験において生成したクラックは、線量の増加とともに深さ方向に進展する結果が得られた。水、スラリー成分を含む雰囲気中におけるクラック深さは空気中の場合と同等であった。
- ・試験片の厚さ 2 mm を貫通するようなクラックは見られなかった。

第 5 章参考文献

- (1) “HIC のたまり水発生の原因と対策の検討・実施状況”，東京電力株式会社，特定原子力施設監視・評価検討会(第 36 回)資料 5-1, 2015 年 7 月 1 日.
- (2) IRID 公開情報 平成 26 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業補助金（固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発）」中間報告, 2016 年 4 月.
- (3) “Radiolysis of the polyethylene/water system: Studies on the role of hydroxyl radical”, N. Billamboz, M. Grivet, S. Foley, G. Baldacchino, J. C. Hubinois, *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 79, pp. 36-40 (2010).
- (4) “平成 27 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費（水処理二次廃棄物の管理基準等の検討）事業報告書”，国立国会図書館 書誌 ID 027346790, 日本原子力研究開発機構, 2016 年 3 月.
- (5) “平成 28 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費（水処理二次廃棄物の管理基準等の検討）事業報告書”，日本原子力研究開発機構, 2017 年 3 月.
- (6) “Creep behavior of linear low-density polyethylene films”, Y. B. Unigovski, A. L. Bobovitch, E. M. Gutman, *Journal of Metals, Materials and Minerals*, Vol. 16, No. 1, pp. 1-6 (2006).

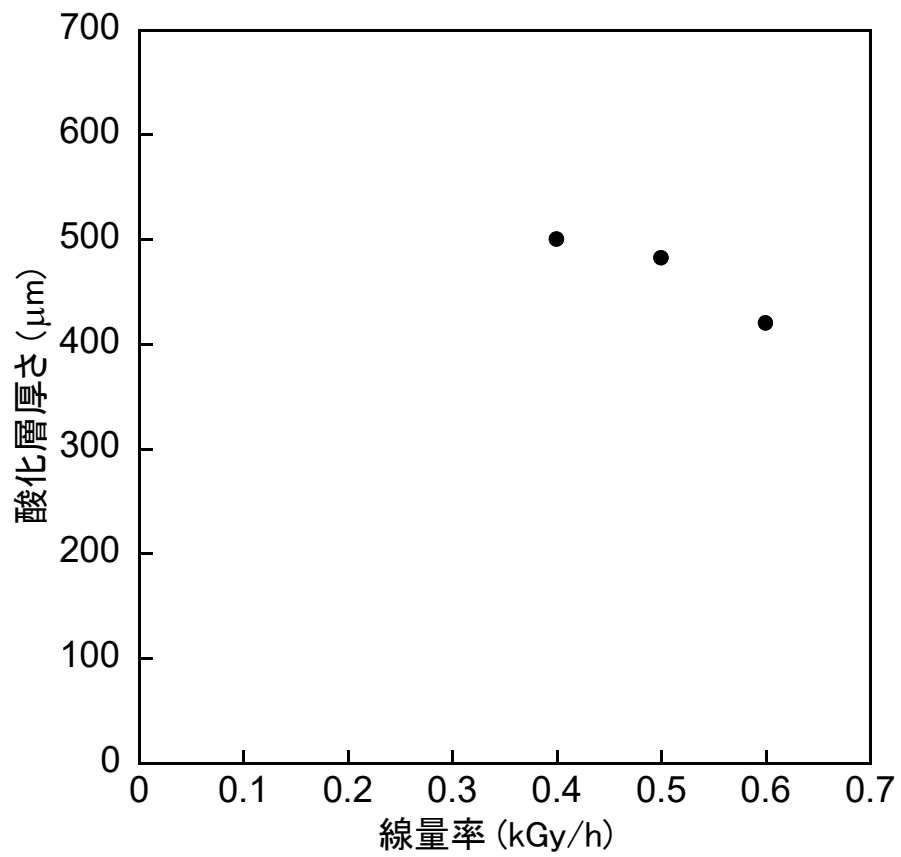


図 5-1 ガンマ線の線量率とポリエチレンの酸化層厚さの関係 (水中、60°C照射).

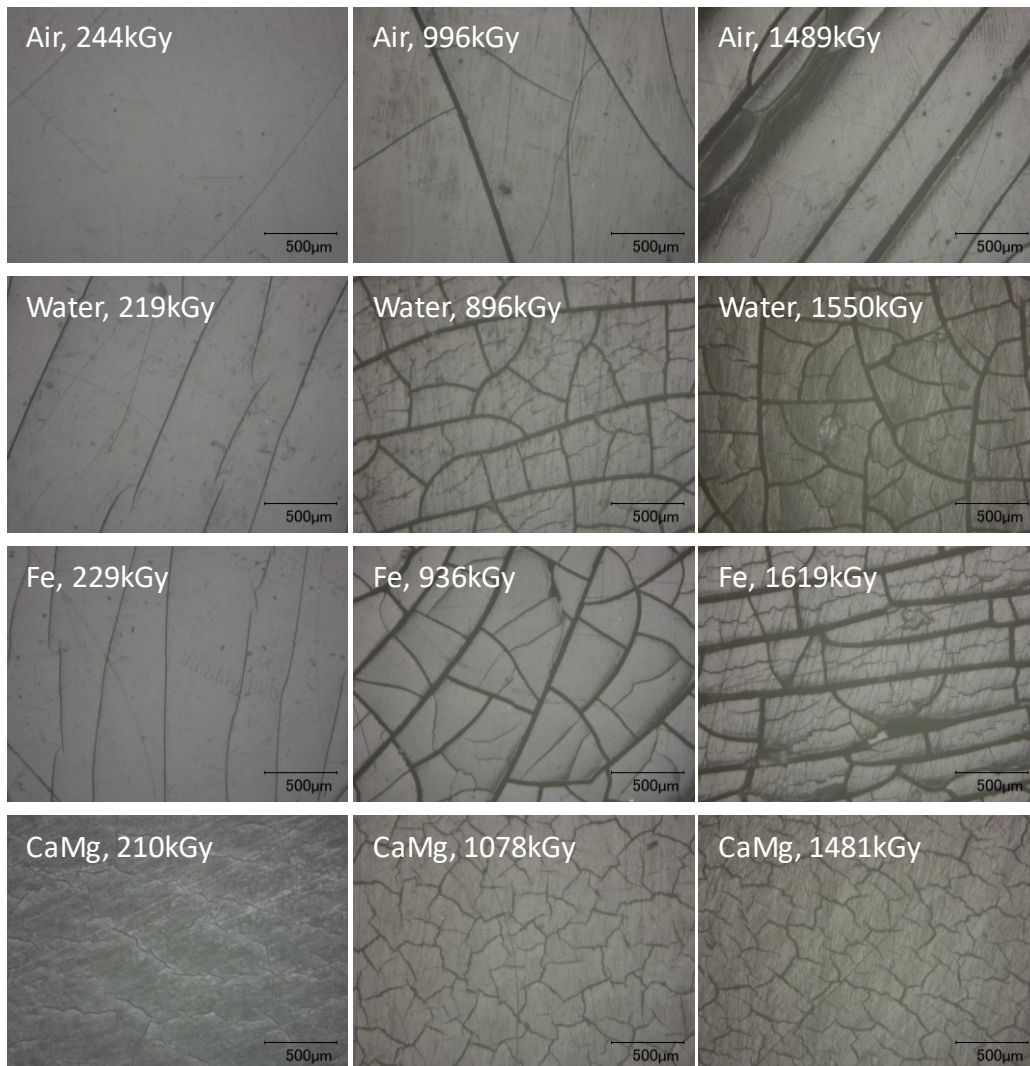


図 5-2 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)表面の光学顕微鏡観察結果.

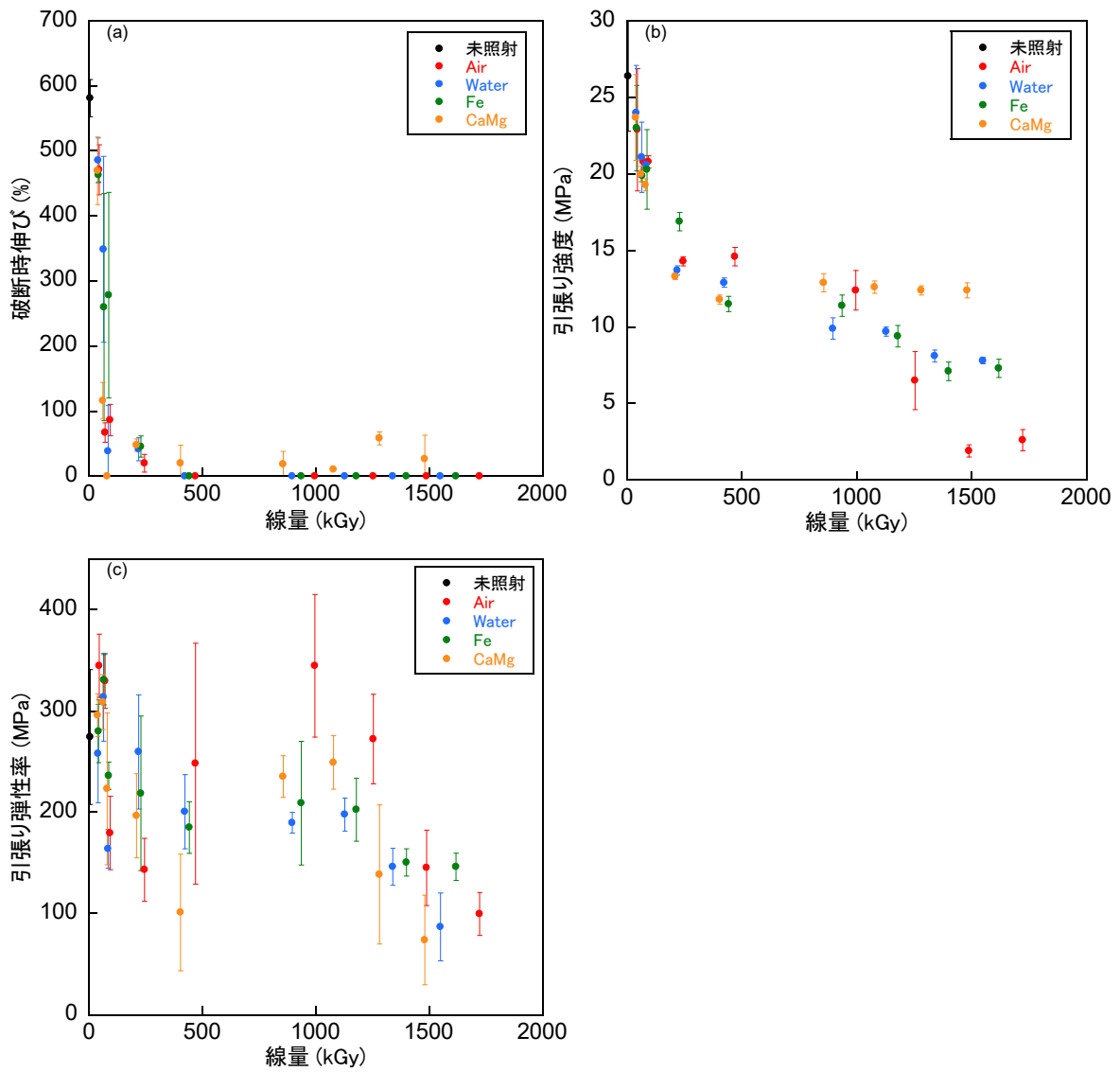


図 5-3 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の引張試験結果：(a) 引張り破断時伸び、(b) 引張り強度、(c) 引張り弾性率。

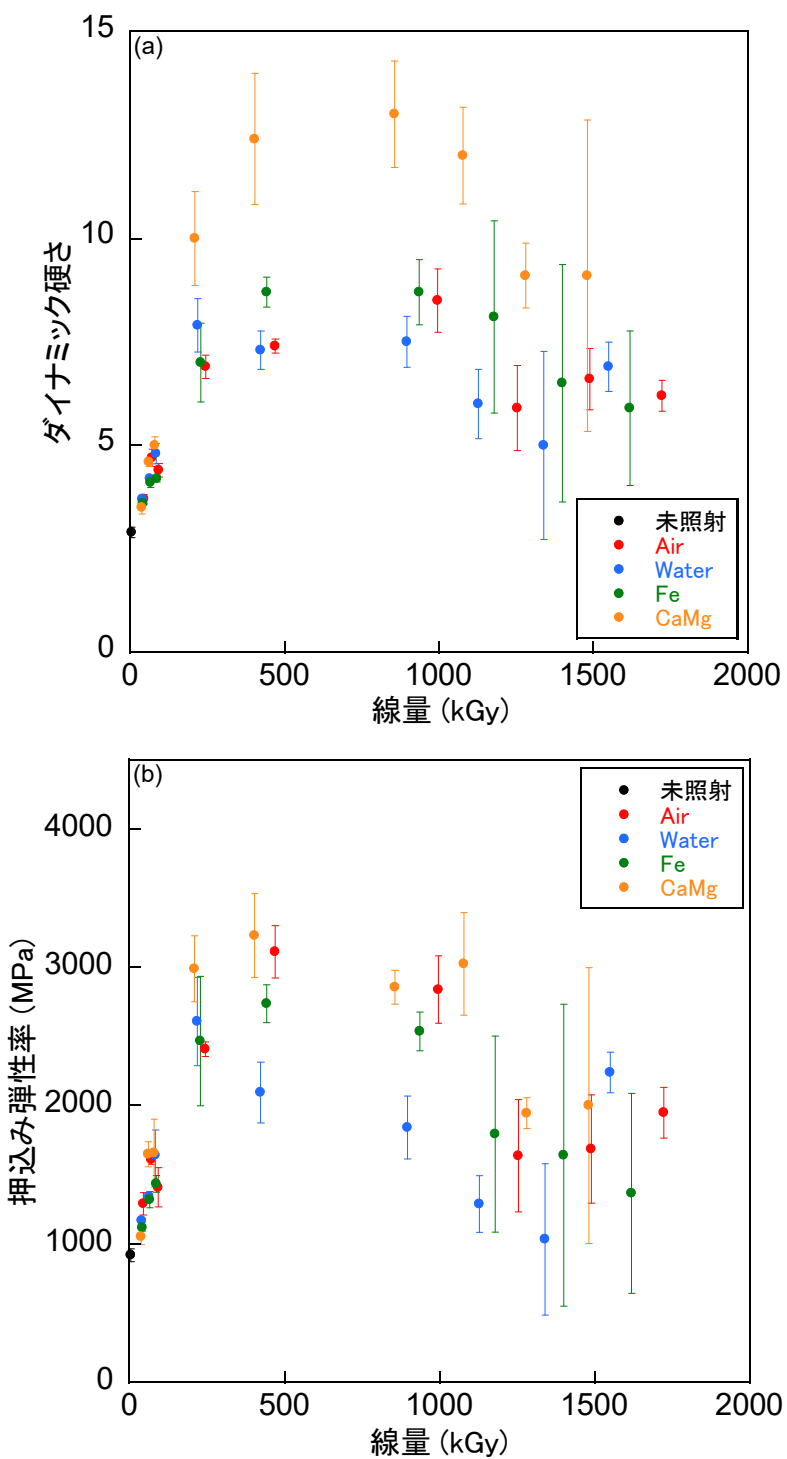


図 5-4 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)のダイナミック硬度特性測定結果：(a) ダイナミック硬さ、(b) 押し込み弾性率。

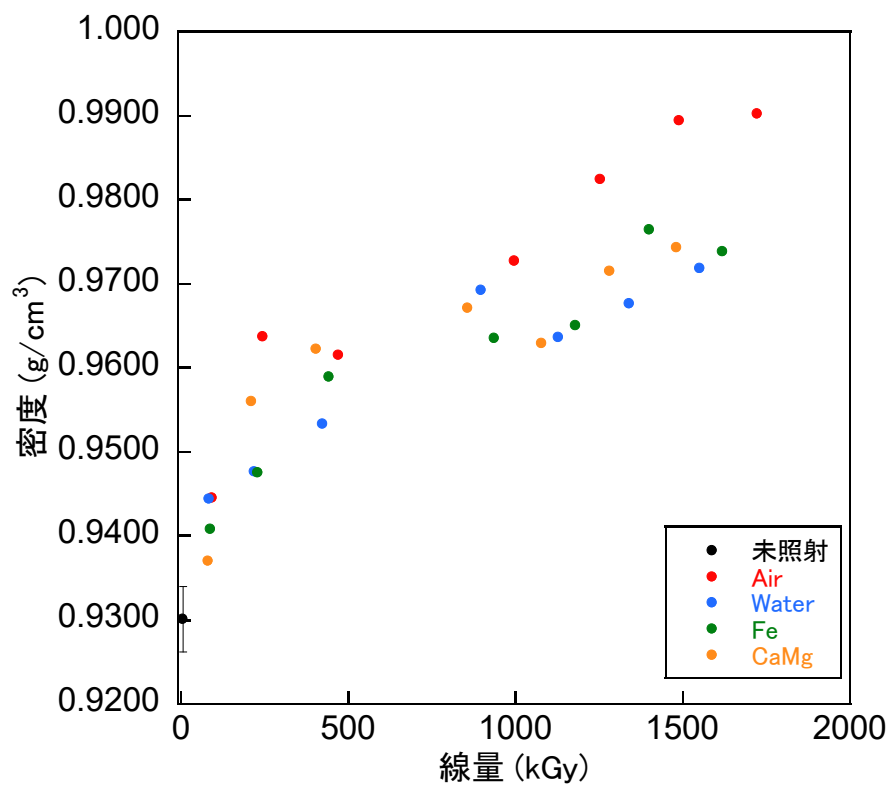


図 5-5 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の密度測定結果.

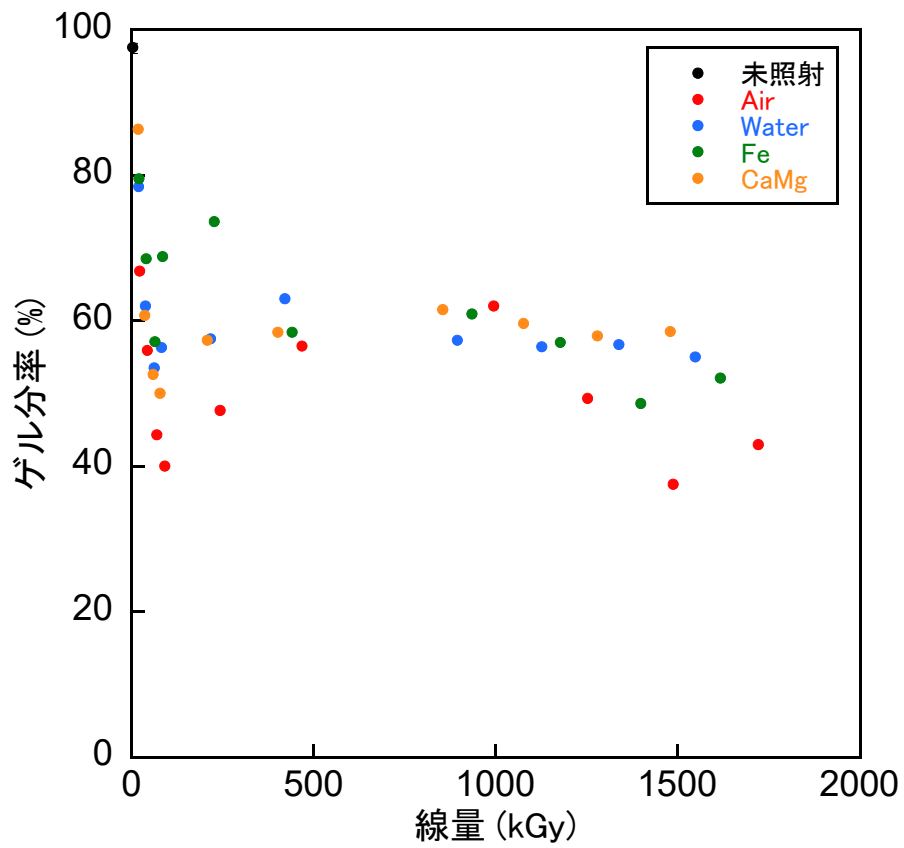


図 5-6 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)のゲル分率測定結果.

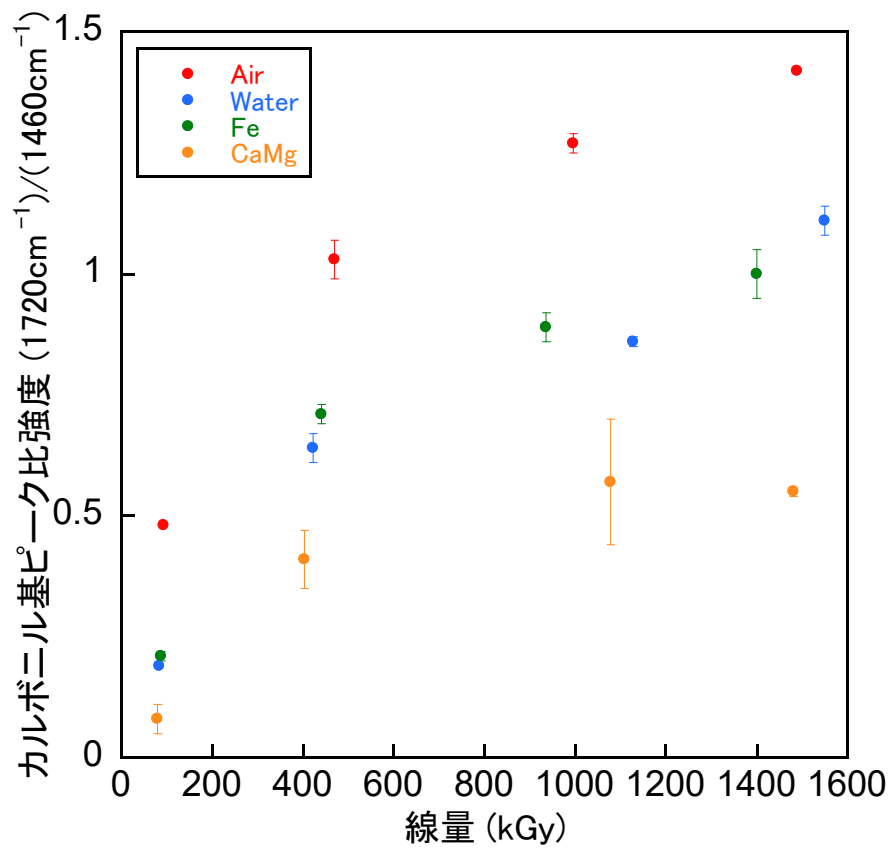


図 5-7 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)表面のカルボニル基ピーク比強度。

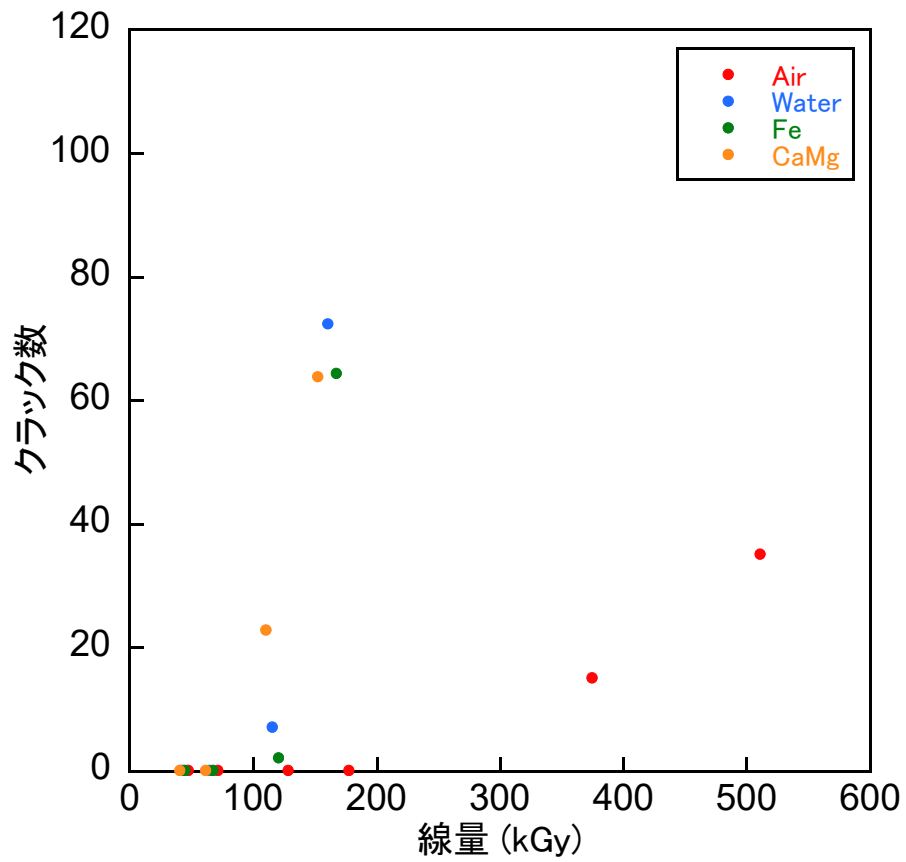


図 5-8 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)のストレスクラッキング試験結果.

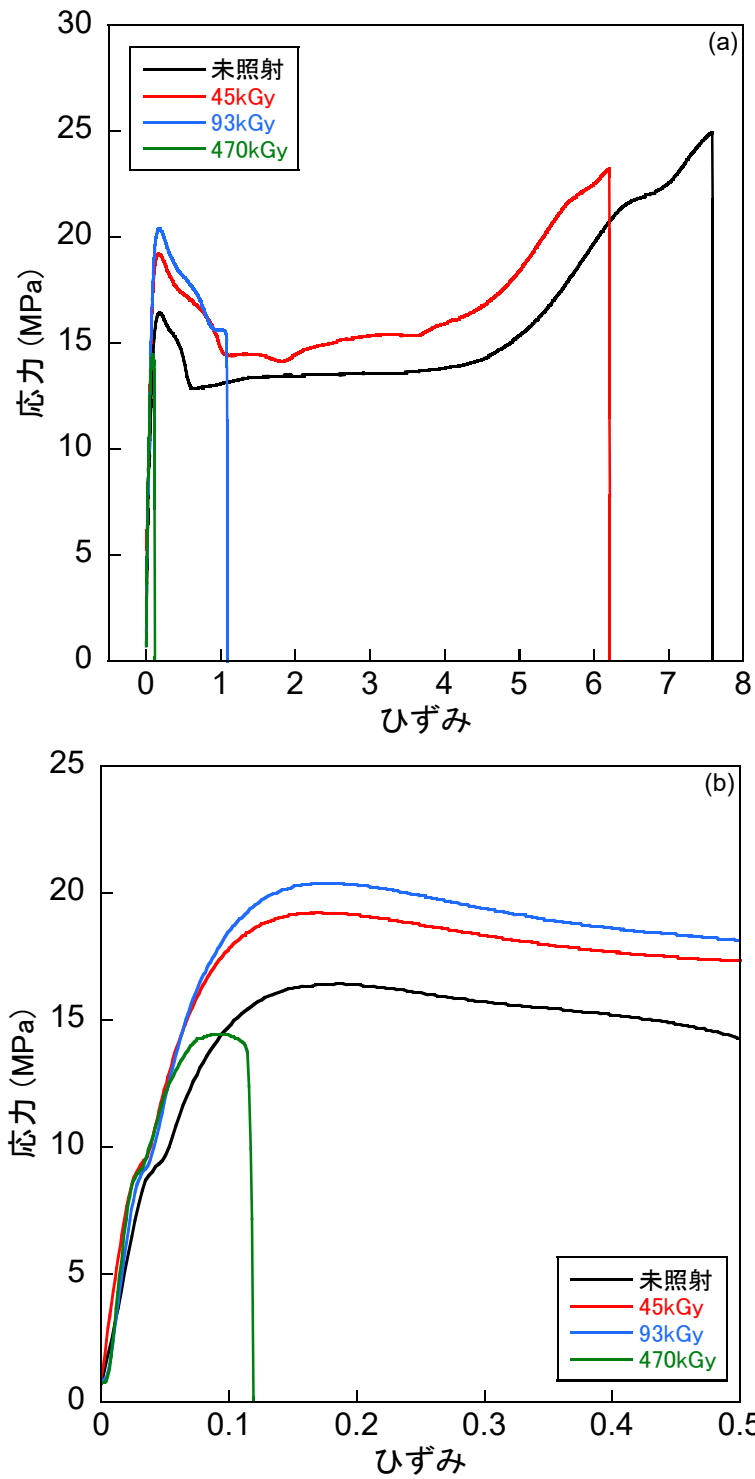


図 5-9 空气中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の引張試験における応力-ひずみ曲線：(a) 全体、(b) 低ひずみ領域の拡大図。

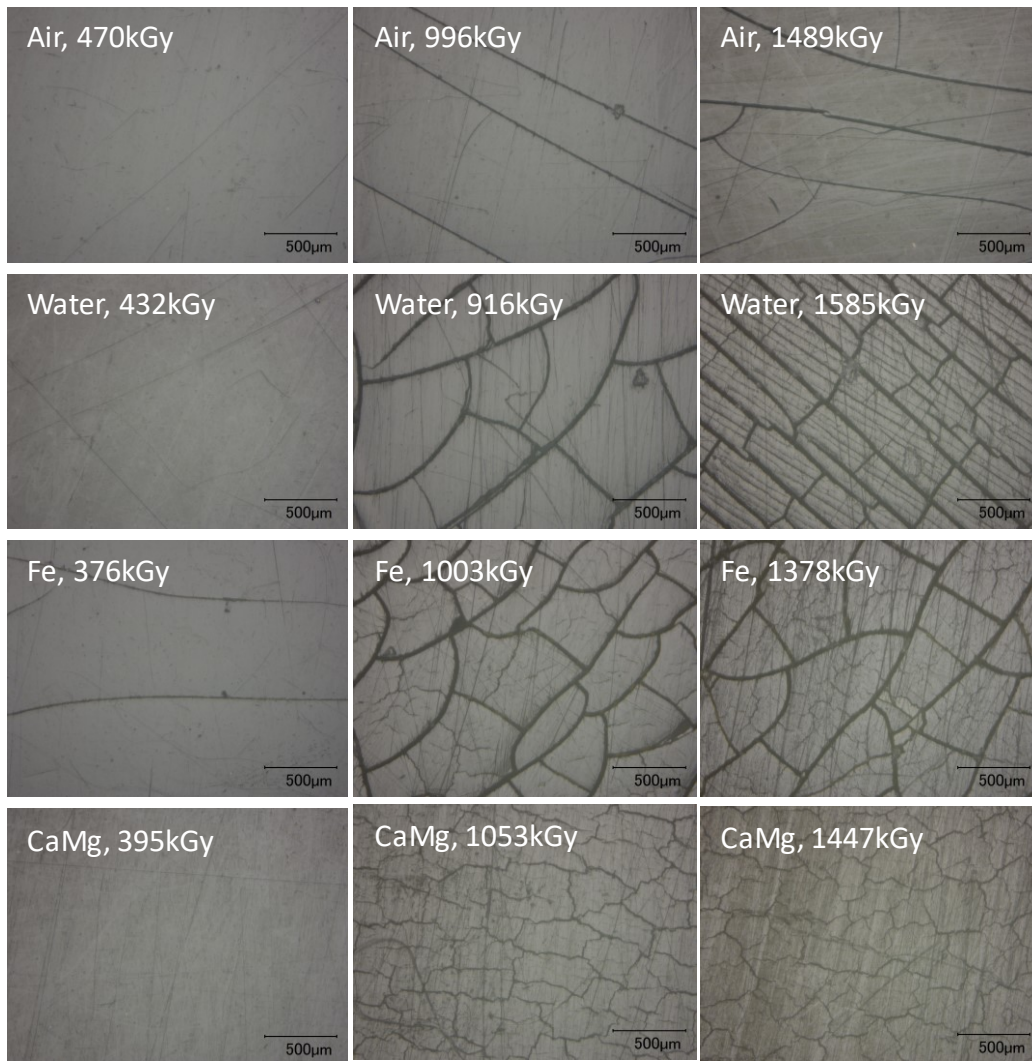


図 5-10 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)表面の光学顕微鏡観察結果.

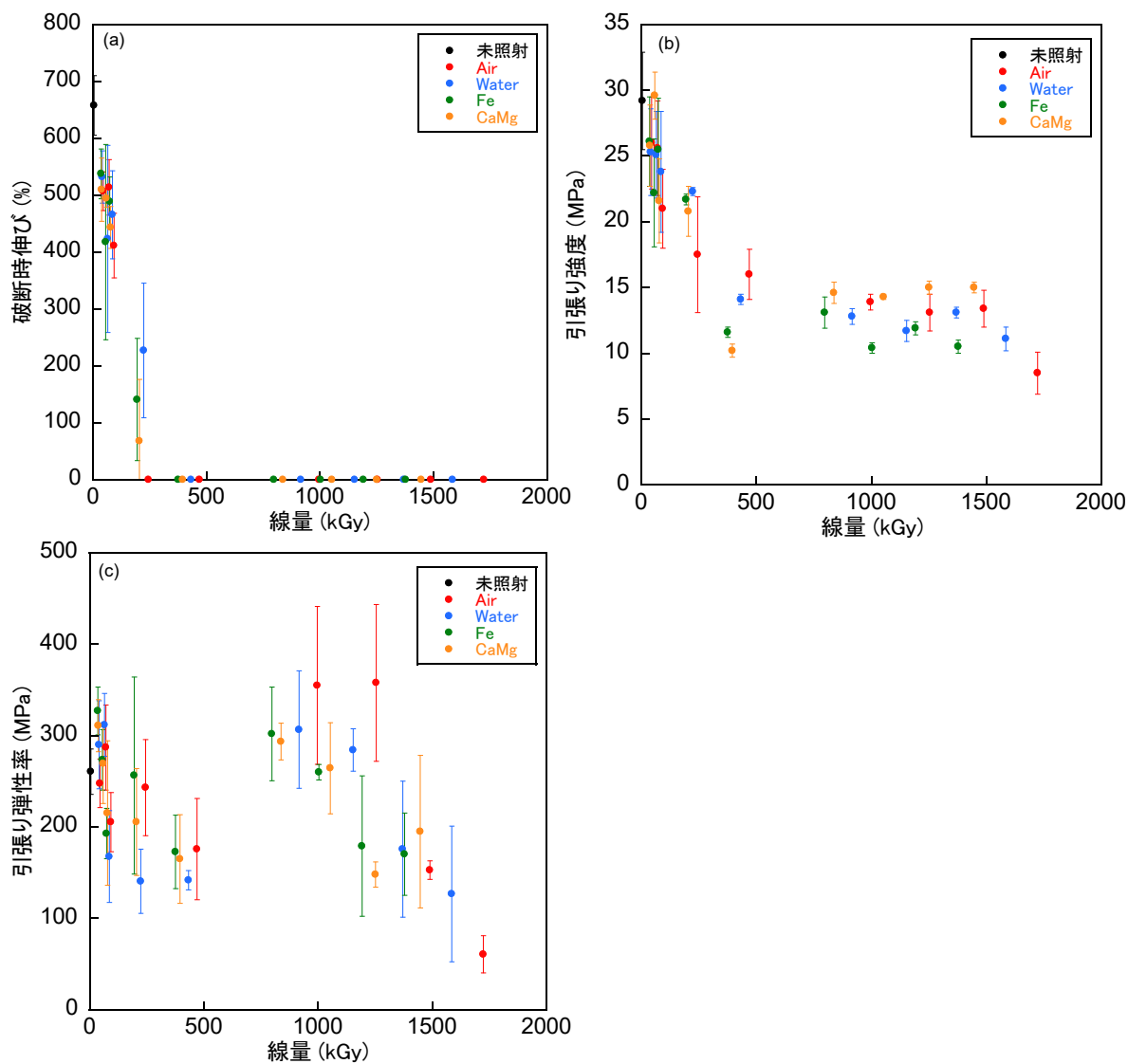


図 5-11 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)の引張試験結果：(a) 引張り破断時伸び、(b) 引張り強度、(c) 引張り弾性率。

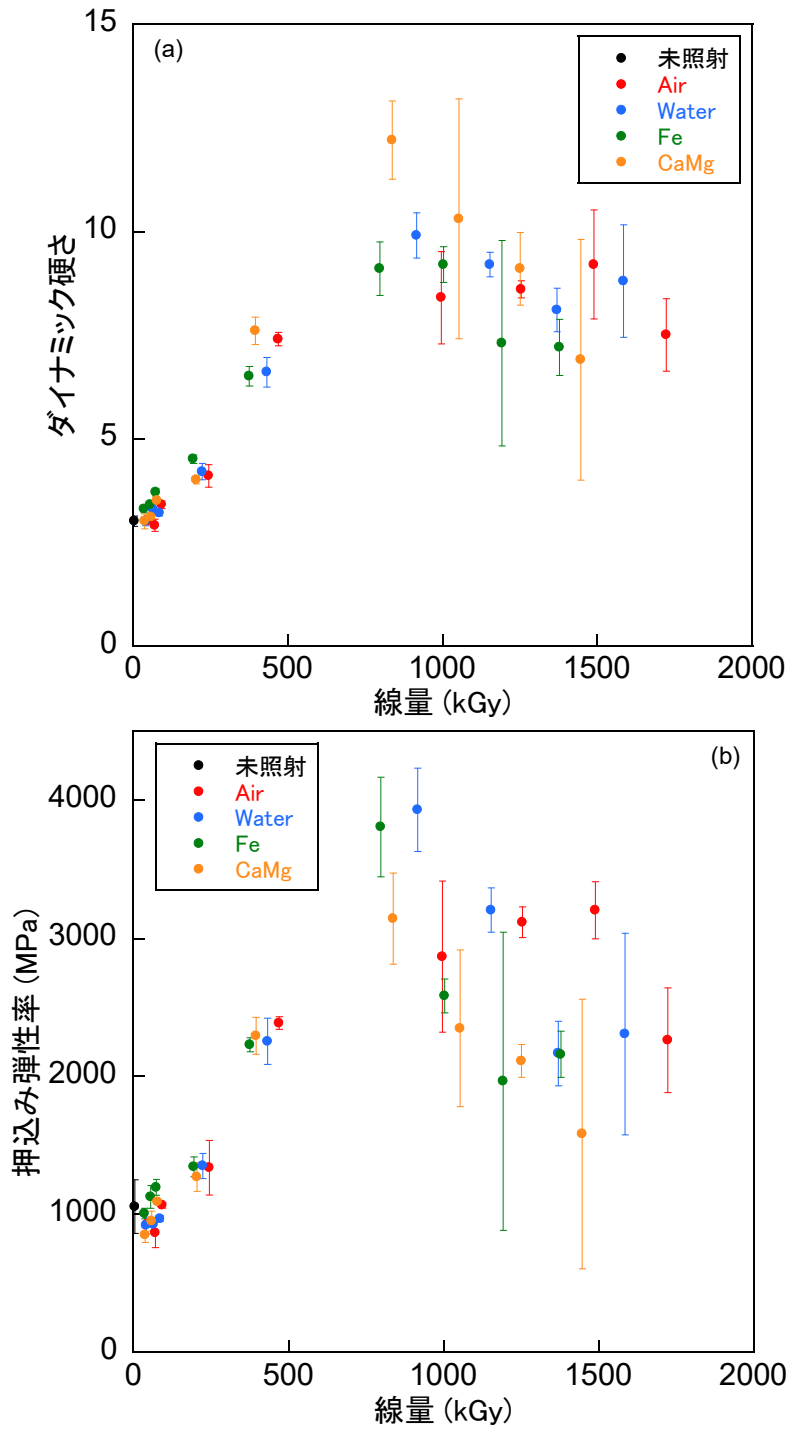


図 5-12 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)のダイナミック硬度特性測定結果：(a) ダイナミック硬さ、(b) 押し込み弾性率。

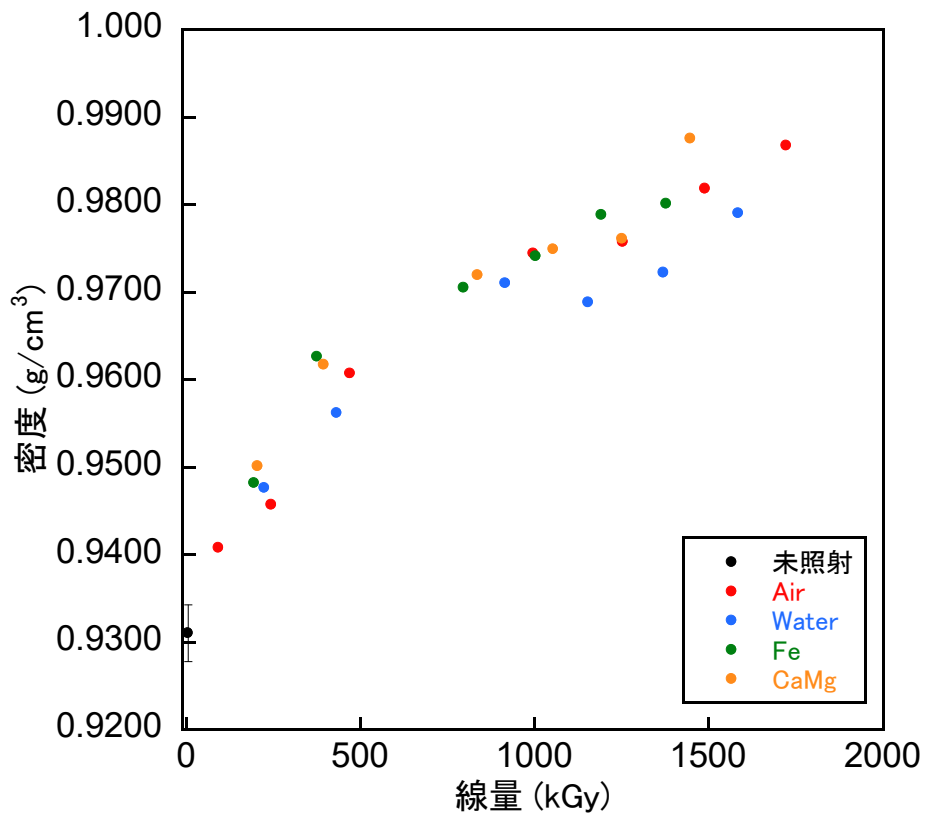


図 5-13 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)の密度測定結果.

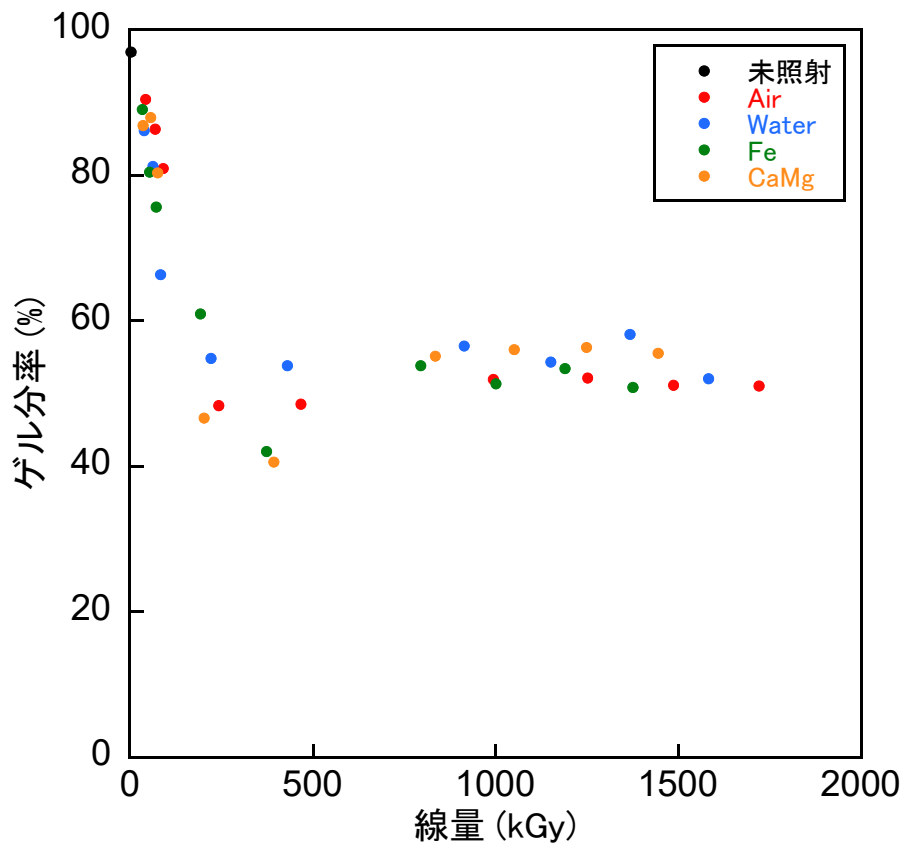


図 5-14 各種雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)のゲル分率測定結果.

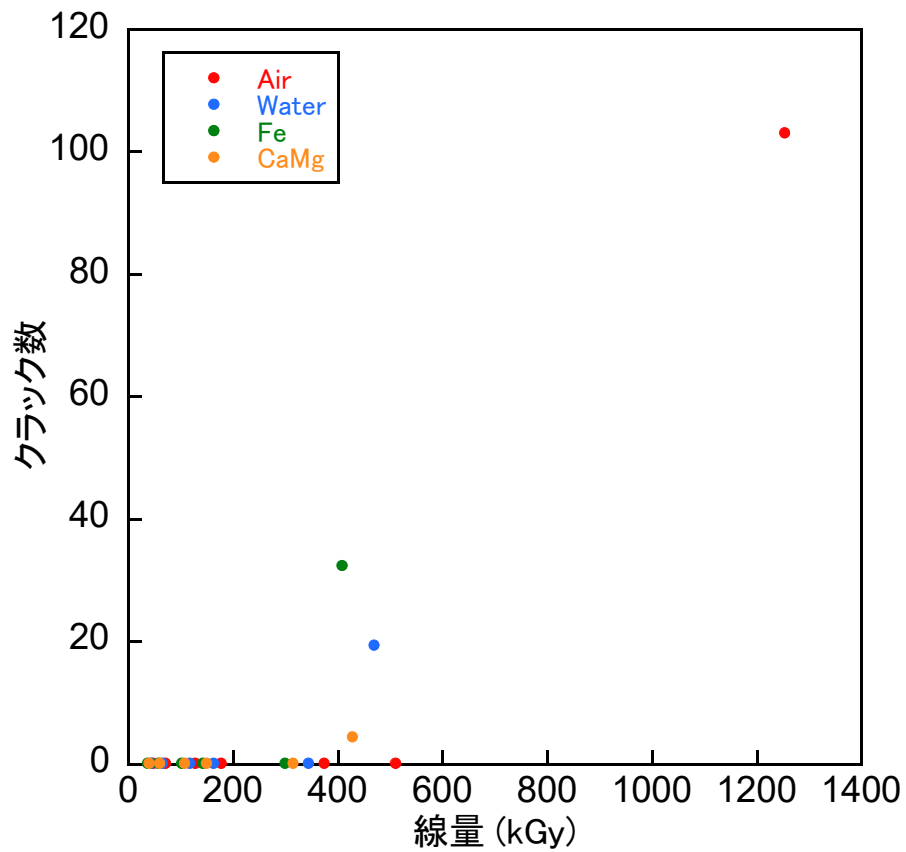


図 5-15 各種雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤あり)のストレスクラッキング試験結果。

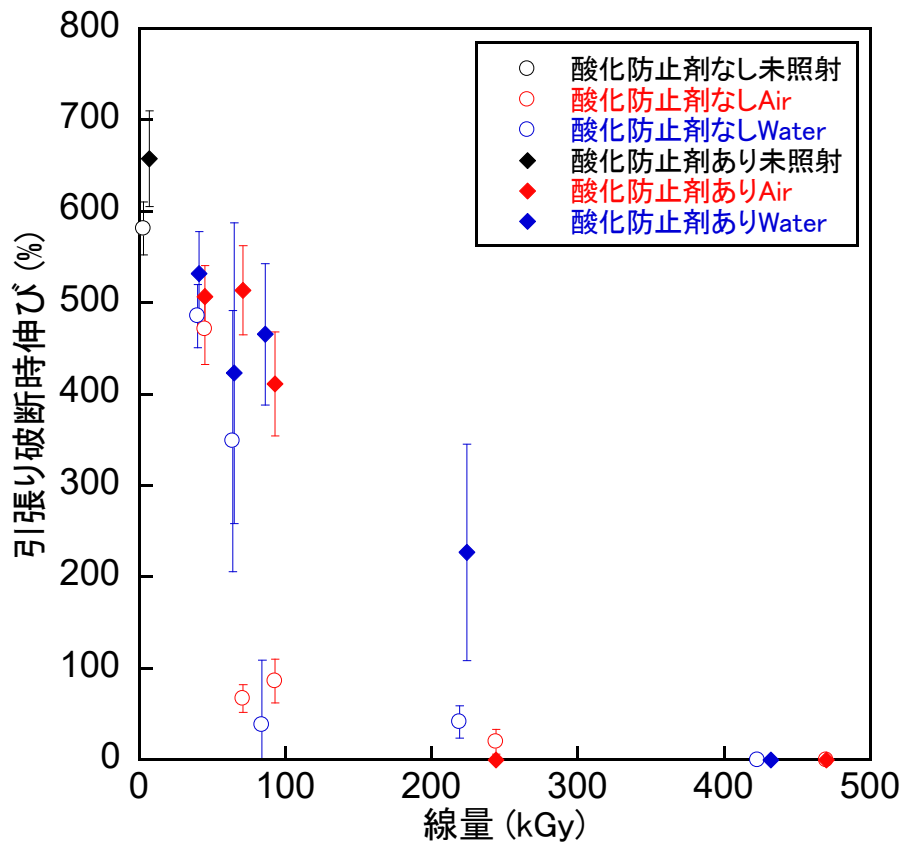


図 5-16 Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料の引張り破断時伸びの変化。

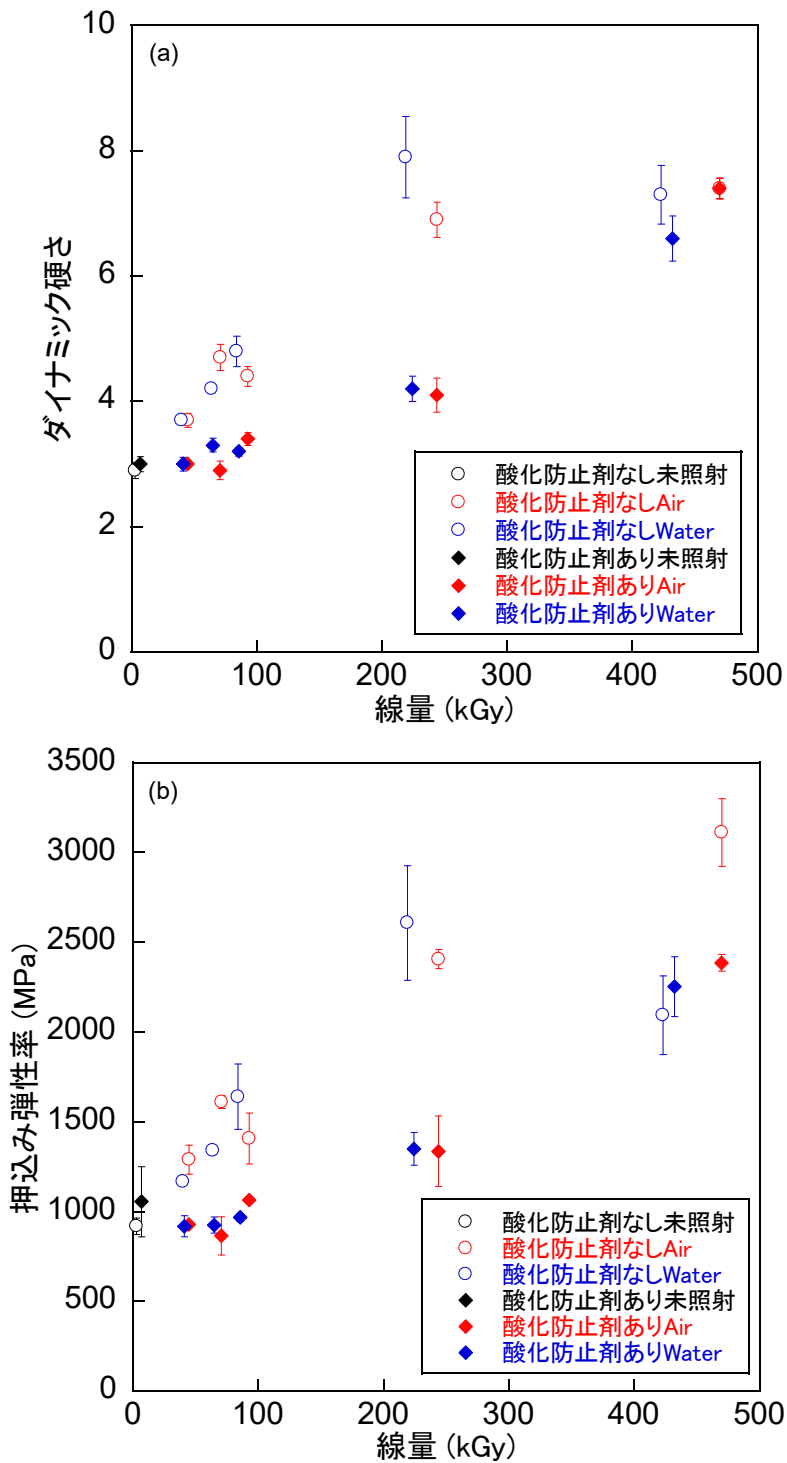


図 5-17 Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料のダイナミック硬度特性の変化：(a) ダイナミック硬さ、(b) 押し込み弾性率。

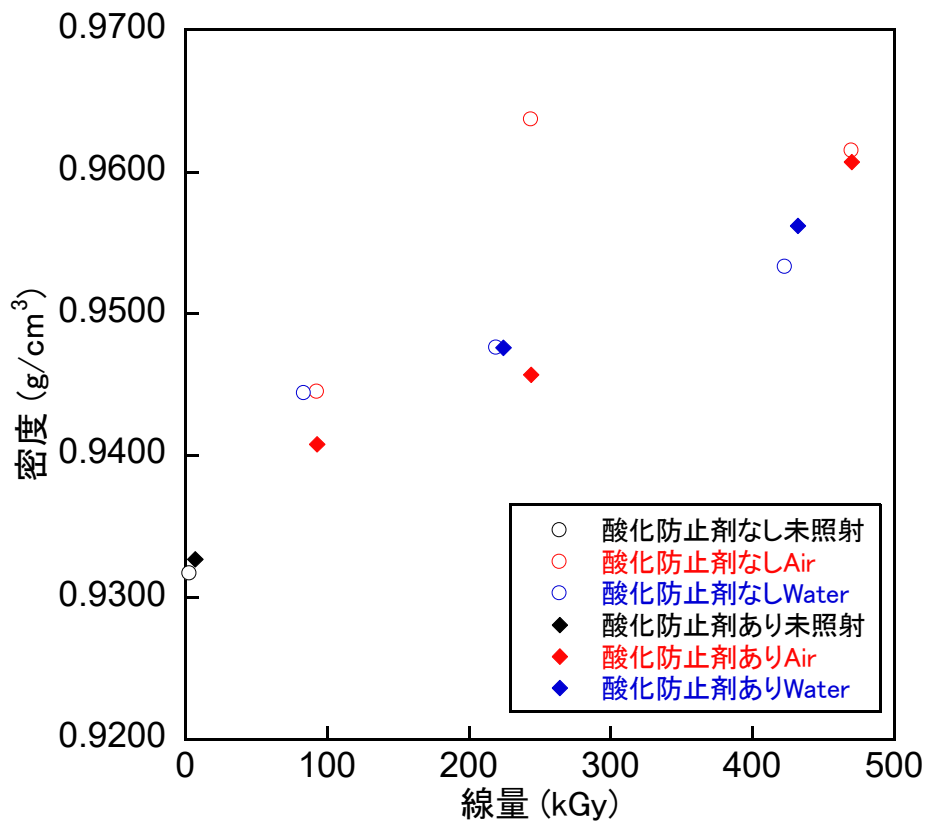


図 5-18 Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料の密度の変化.

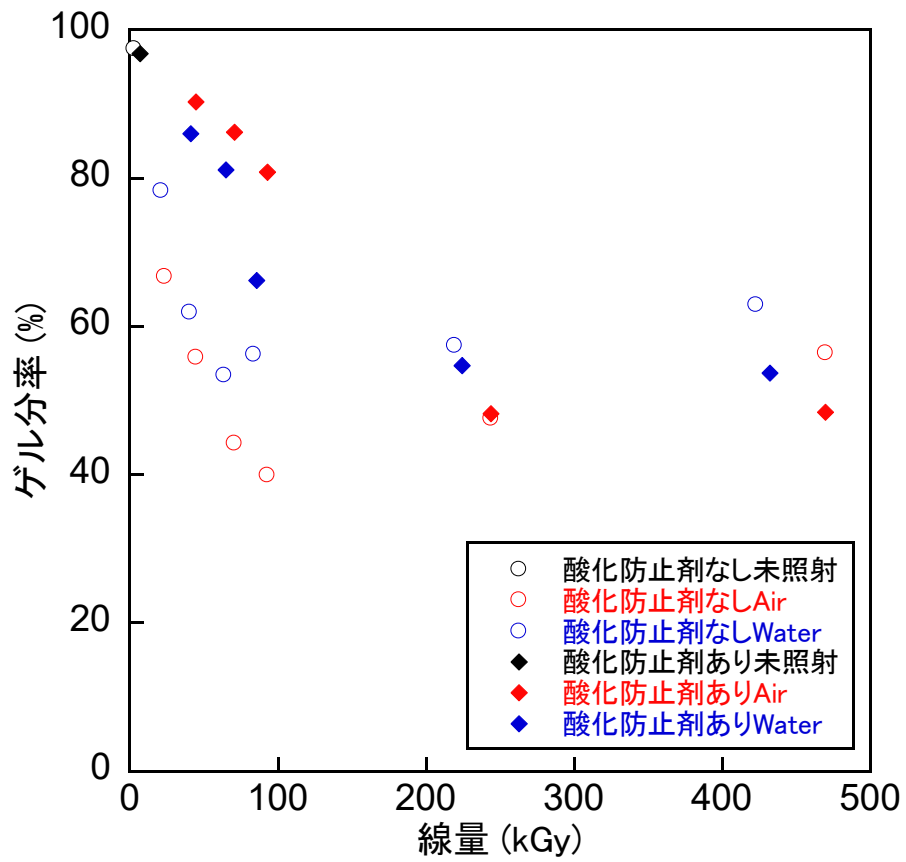


図 5-19 Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後のポリエチレンシート試料のゲル分率の変化。

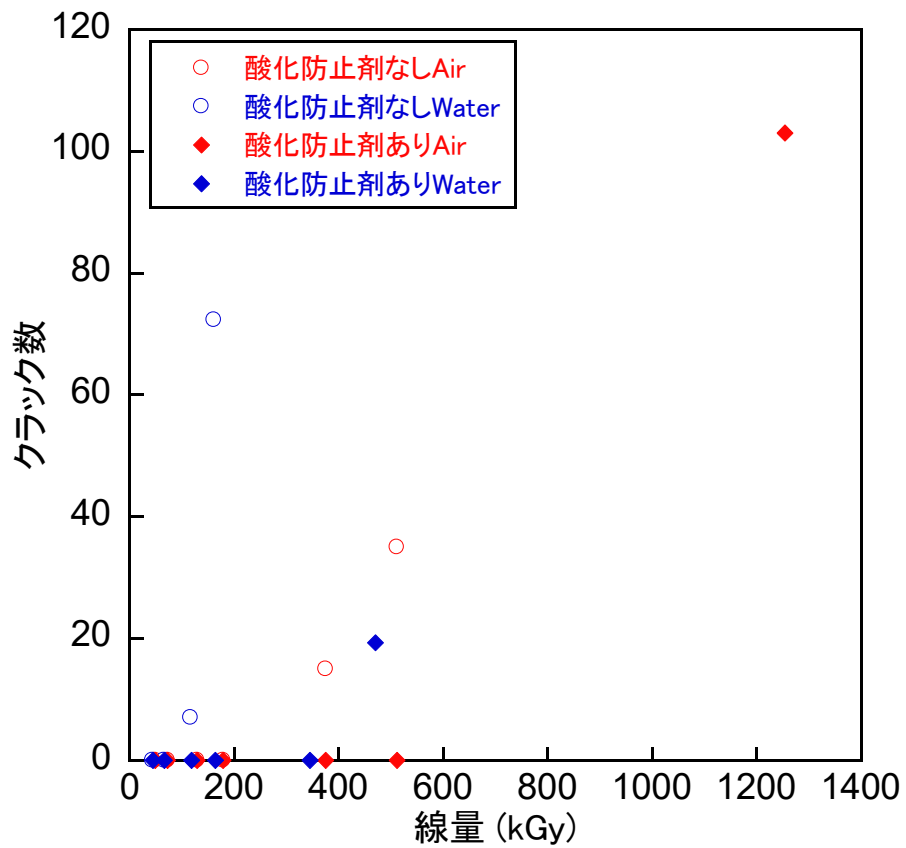
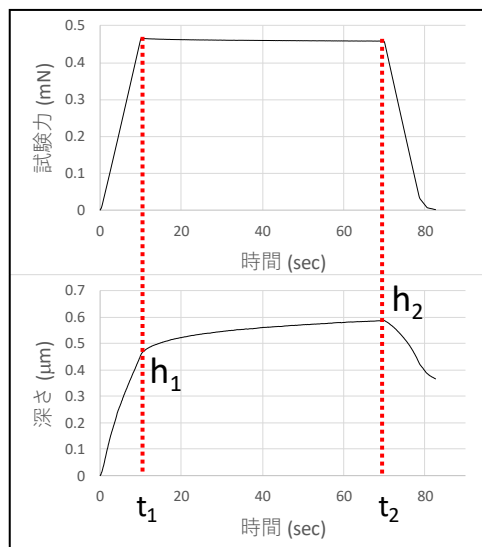


図 5-20 Air/Water 雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料のストレスクラッキング特性の変化.



インデンテーションクリープ率 (%)

$$= \frac{h_2 - h_1}{h_1} \times 100$$

h_1 : t_1 における深さ (μm)

h_2 : t_2 における深さ (μm)

図 5-21 ダイナミック微小硬度計を用いたポリエチレンシート試料表面のインデンテーションクリープ率の評価方法.

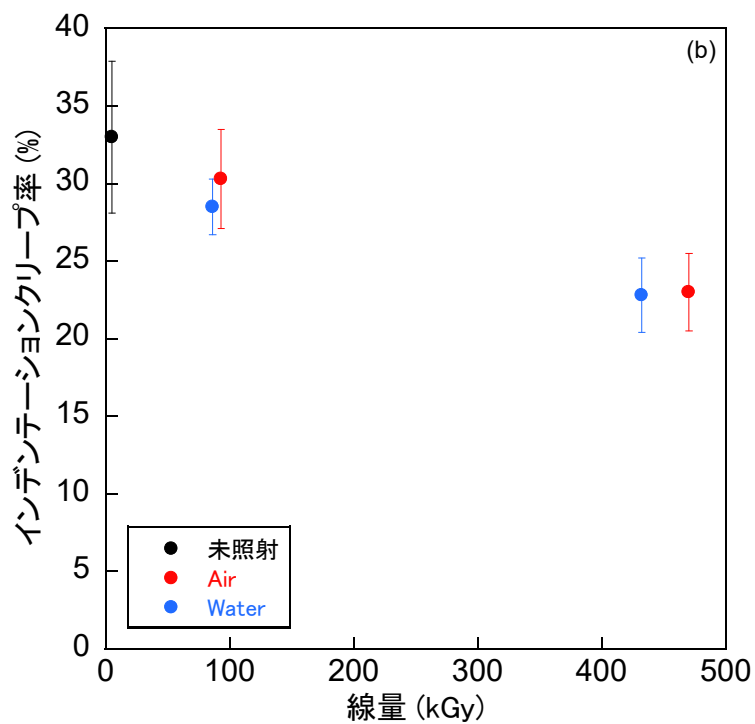
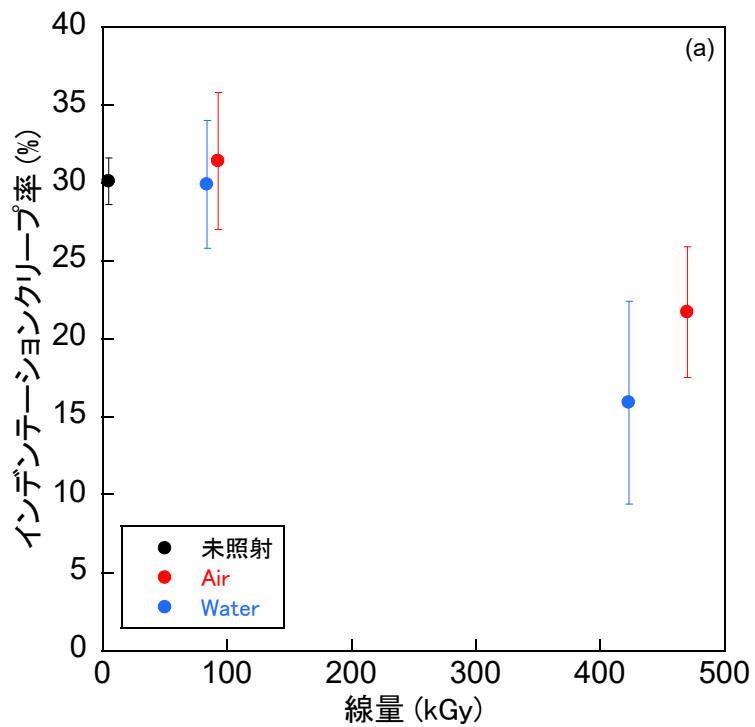


図 5-22 Air/Water 雰囲気中、60℃でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料のインデンテーションクリープ率の変化：(a) 酸化防止剤なし試料、(b) 酸化防止剤あり試料.

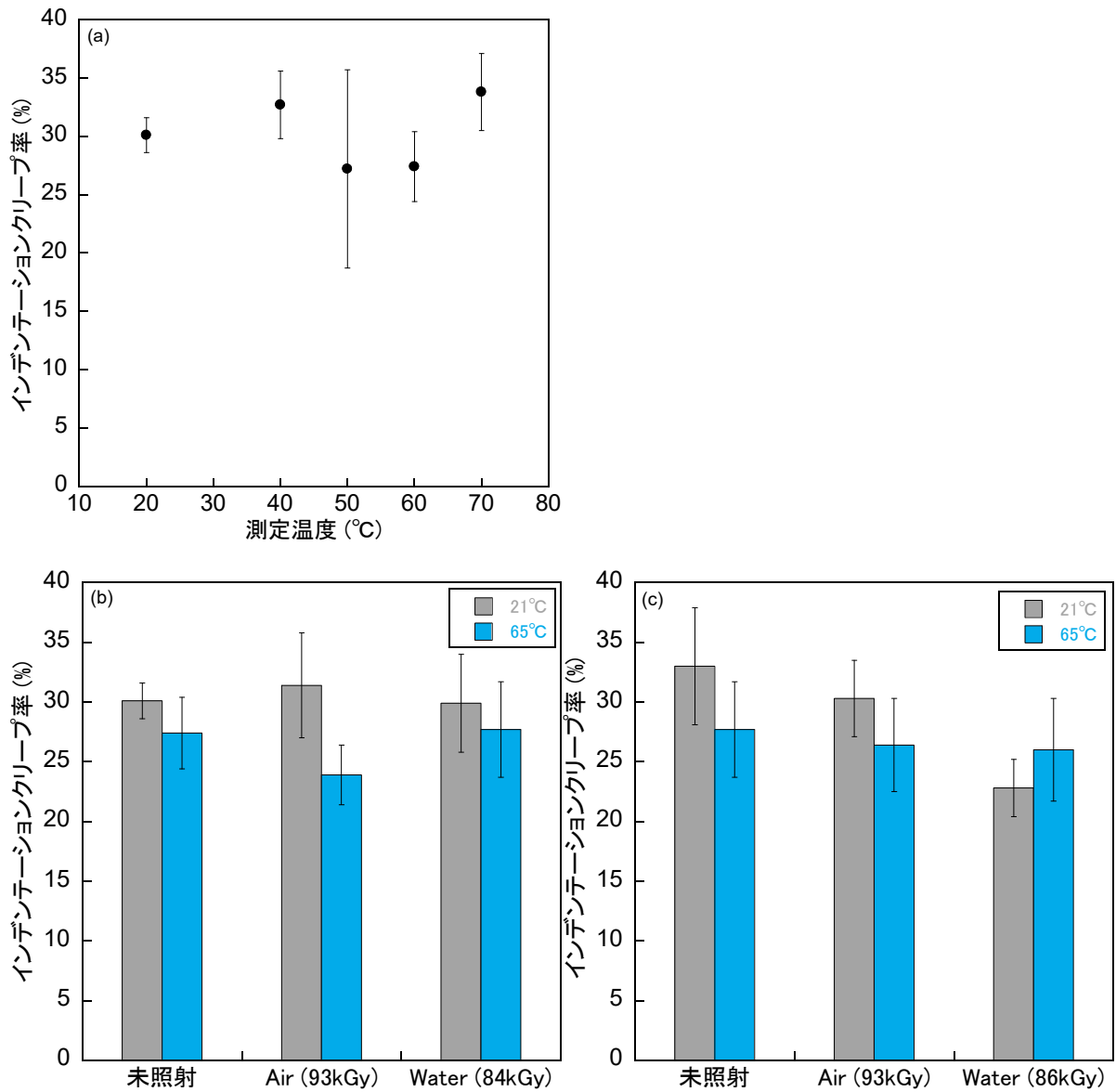


図 5-23 ポリエチレンシート試料のインデンテーションクリープ率の測定温度依存性：(a) 未照射(酸化防止剤なし試料)、(b) Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後(酸化防止剤なし試料)、(c) Air/Water 雰囲気中、60°Cでガンマ線照射後(酸化防止剤あり試料)。

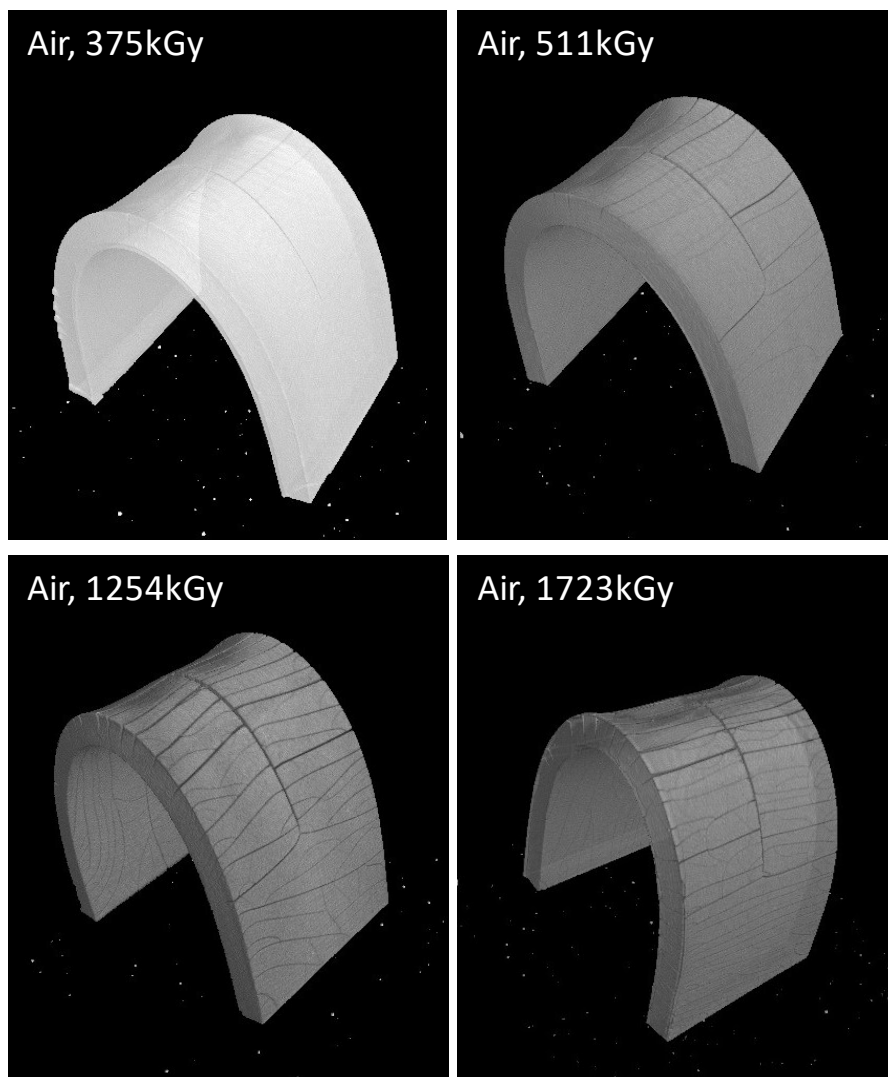


図 5-24 XRCT 装置を用いて撮像したストレスクラッキング試験片の外観(Air 雰囲気中、60°C照射、酸化防止剤なし試料).

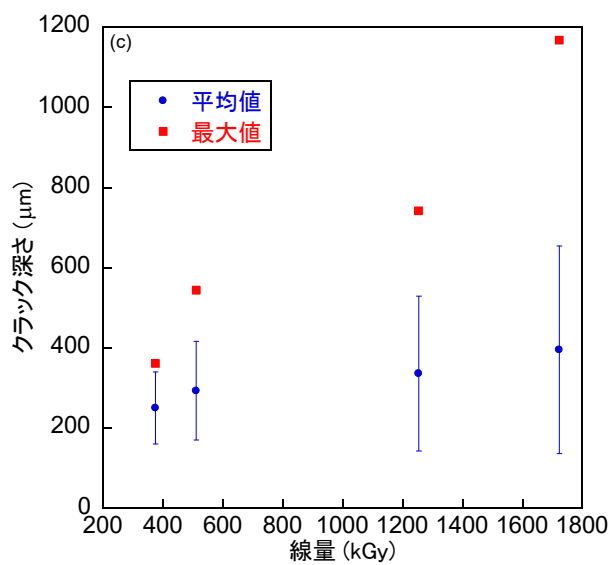
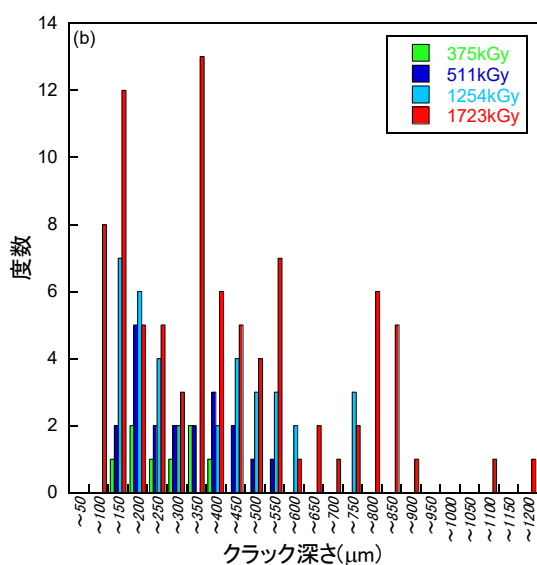
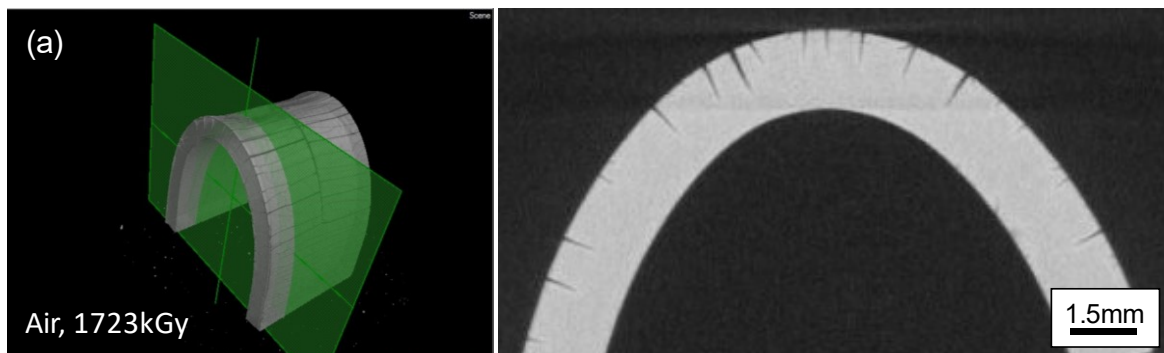


図 5-25 XRCT 装置を用いたクラック深さの測定(Air 雰囲気中、60°C照射、酸化防止剤なし試料) : (a) 測定箇所例、(b) クラック深さの度数分布、(c) クラック深さの平均値および最大値と線量の関係。

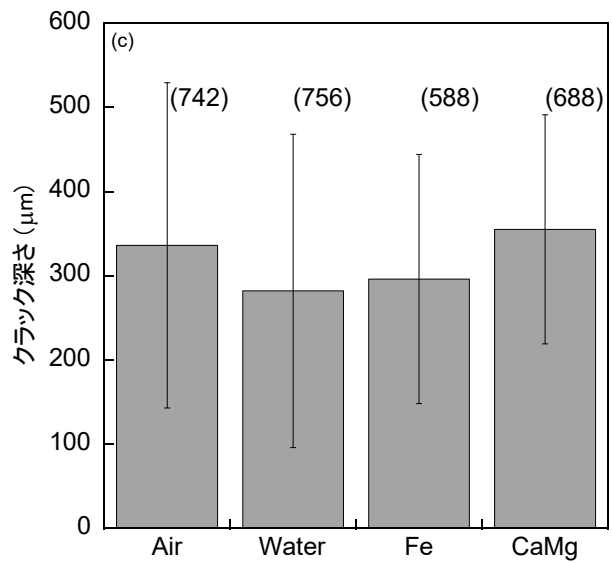
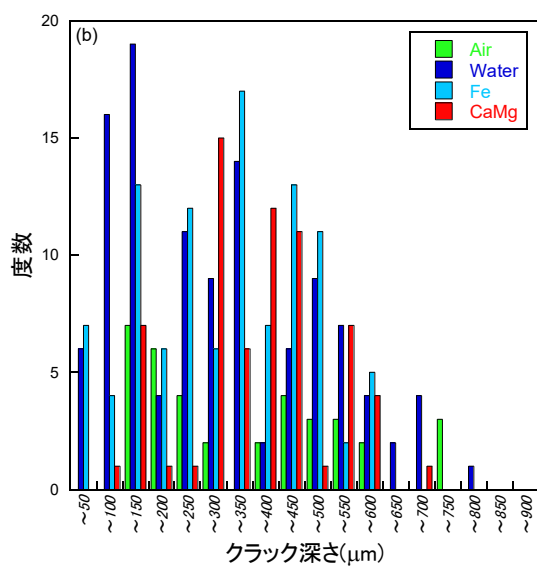
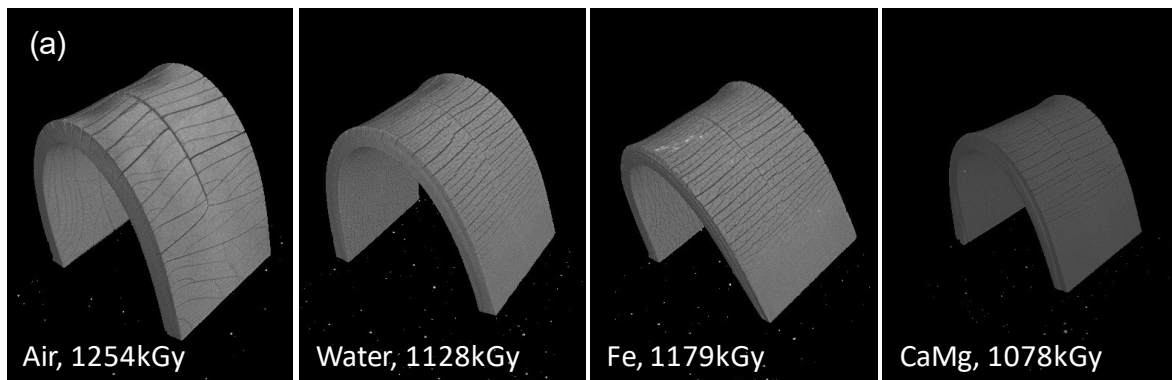


図 5-26 各種雰囲気中でストレスクラッキング試験後のクラック深さの測定(60°C照射、酸化防止剤なし試料)：(a) 試験片外観像、(b) クラック深さの度数分布、(c) クラック深さの平均値と最大値.

第6章 非酸化領域を含むポリエチレンの特性変化に関するデータ取得

第1章で述べたように、ポリエチレン製高性能容器(High Integrity Container: HIC)の保管環境下においては、酸素が到達しない「非酸化領域」が形成される可能性がある。このことは、容器断面方向に対してポリエチレンの酸化(劣化)が不均一であることを示している。このような条件下でポリエチレンの特性変化について調べられた例はなく、本章では、酸化領域/非酸化領域を含むポリエチレン試料を準備し、その特性変化挙動データを取得して、酸化層厚さ割合と特性変化挙動の関係について整理した。

(6-1)試験方法

第3章(3-1)項で述べた方法により作製した酸化防止剤なし1 mm厚シートを試料とした。空气中、常温(平均18°C)において、線量率を0.2~12 kGy/hの間で変化させガンマ線を所定の線量まで照射した。また本章では、酸化領域のない試料を得るため、真空中でのガンマ線照射を実施した。図6-1に示す真空ラインを用いてポリエチレン試料をガラスアンプル中に真空封入し、常温(平均18°C)、線量率12 kGy/hの条件においてガンマ線を所定の線量まで照射した。ガンマ線照射後、顕微FT-IR装置を用いて試料表面から深さ方向の酸化生成物分布を分析し、酸化層の厚さを評価するとともに、ゲル分率測定、ダイナミック硬度特性測定、引張り試験を行なった。真空中で照射した試料は、照射終了後一度空气中に取り出し、デシケーター(空气中、室温)中で保管し、各種特性評価に供した。

(6-2)試験結果

図6-2に空气中照射におけるガンマ線の線量率と酸化層厚さの関係を示す。酸化層厚さは線量率が低いほど厚くなり、0.2 kGy/hの場合、平均581.5 μmであった。この値はシート試料の片側に対する酸化層厚さであり、この2倍の値とシート試料の厚さから酸化層割合を計算し、表6-1に示す結果を得た。0.2 kGy/hの場合、酸化層厚さ割合は124%となったが、ここでは、100%以上を完全酸化と見なす。これにより、酸化層厚さ割合を40~100%の間で制御した試料を準備した。

図6-3に真空中および空气中各線量率においてガンマ線照射後のゲル分率の変化

を示す。真空中照射の場合、150 kGy までの線量域においてゲル分率は全く低下しなかったが、空气中照射の場合、線量率が低くなるにつれ、同一線量におけるゲル分率が低くなった。

図 6-4 に真空中および空气中各線量率においてガンマ線照射後のダイナミック硬度特性の変化を示す。ダイナミック硬さ、押し込み弾性率ともに、全ての照射条件で線量の増加とともに増加する結果が得られた。真空中照射の場合と、空气中 12 および 2 kGy/h での照射の場合は、ダイナミック硬度特性の変化挙動がほぼ同様であったが、空气中 0.2 kGy/h での照射の場合、ダイナミック硬さ、押し込み弾性率ともに他の条件よりも増加量が高い結果となった。

図 6-5 に真空中および空气中各線量率においてガンマ線照射後の引張り特性の変化を示す。引張り強度、引張り弾性率では、結果のばらつきが大きいものの、特に引張り破断時伸びの結果において、ゲル分率変化やダイナミック硬度特性変化で見られたような傾向が認められず、全ての照射条件において線量の増加とともに単調に破断時伸びが低下する結果が得られた。

真空中および空气中各線量率で 120 kGy までガンマ線を照射後の各種特性を、横軸に酸化層厚さ割合をとってプロットした結果を図 6-6 にまとめる。ゲル分率は酸化層厚さ割合が増加するとともに低下し(図 6-6 (a))、ダイナミック硬さと押し込み弾性率は酸化層厚さ割合増加とともに増加する結果が得られた(図 6-6 (b), (c))。一方、引張り特性においては、特に引張り破断時伸びにおいて酸化層厚さ割合の影響は全く見られなかった(図 6-6 (d), (e), (f))。ゲル分率の低下は、酸化を伴う分子鎖切断によるものである。酸化層の割合が増加するにしたがってゲル分率が低下したことから、ゲル分率の変化は、酸化層厚さ割合を反映した結果であると言えることができる。ここで、図 6-7 に各線量率で 120 kGy までガンマ線照射後の試料表面のカルボニル基のピーク比強度と線量率の関係を示す。線量率が低いほどピーク比強度が高くなっており、120 kGy 照射後の表面酸化量が多いことを示している。これは、低線量率ほど同一線量に到達するまでの照射時間が長くなるためであると考えられる。この結果とダイナミック硬度特性変化の結果を併せて見ると、表面の酸化量が増加するにしたがって、表面の硬さ、弾性率も高くなっていることから、ダイナミック硬度特性の変化は表面酸化量を反映した結果であると言えることができる。一方、本試験では、引張り特性の変化が酸化層厚さ割合あるいは表面酸化量を反映しない結果が得られた。すなわち、表面の酸化(劣化)が試験片全体の特性に影響を及ぼす「ノッチ効果」が認められた。この

ノッチ効果はポリエチレンやポリスチレン等の耐候性試験において報告されている現象であり⁽¹⁻⁴⁾、表面からある程度の深さまで酸化劣化が起こることによって、試料内部が酸化されていない状態でも試料全体の機械的特性が低下することが明らかにされている。本試験においてもこれと同様の効果が見られたと考えられる。

(6-3)まとめ

本章では、HIC 容器断面方向において酸素が到達しない「非酸化領域」が形成される可能性を考慮し、酸化領域／非酸化領域を含むポリエチレン試料を準備し、その特性変化挙動データを取得して、酸化層の割合(厚さ)と特性変化挙動の関係について整理した。

その結果、ゲル分率やダイナミック硬度特性の変化挙動は、酸化層厚さ割合または表面酸化量を反映したが、引張り特性においては、表面の酸化(劣化)が試料全体の特性に影響を及ぼす「ノッチ効果」が認められた。

第6章参考文献

- (1) “The effect of ultraviolet light on the mechanical properties of polyethylene and polypropylene films”, M. Raab, L. Kotulák, J. Kolařík, J. Pospíšil, *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 27, pp. 2457-2466 (1982).
- (2) “促進暴露によるポリエチレンシートの厚さ方向の劣化”, 渡辺寧, 代田忠, 石樽芳直, *高分子論文集*, Vol. 38, No. 8, pp. 535-540 (1981).
- (3) “ウェザリングの評価法”, 渡辺寧, *SEN-I GAKKAISHI(繊維と工業)*, Vol. 40, No. 7, pp. 461-465 (1984).
- (4) “高分子の促進耐候試験の環境と課題”, 渡辺寧, *マテリアルライフ(Materials Life)*, Vol. 1, No. 2, pp. 58-63 (1989).

表 6-1 各種線量率でガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の酸化層厚さ割合.

	0.2kGy/h	2kGy/h	6kGy/h	12kGy/h
酸化層厚さ×2 (mm)	1.163	0.671	0.404	0.379
シート平均厚さ (mm)	0.94	0.95	0.94	0.97
酸化層割合 (%)	124	71	43	39

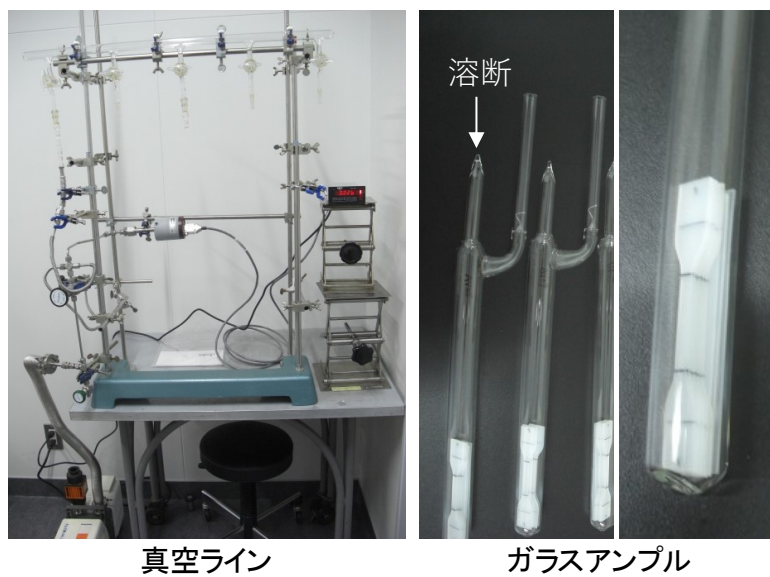


図 6-1 ポリエチレンシート試料の真空中におけるガンマ線照射試験のための真空ラインとガラスアンプル。

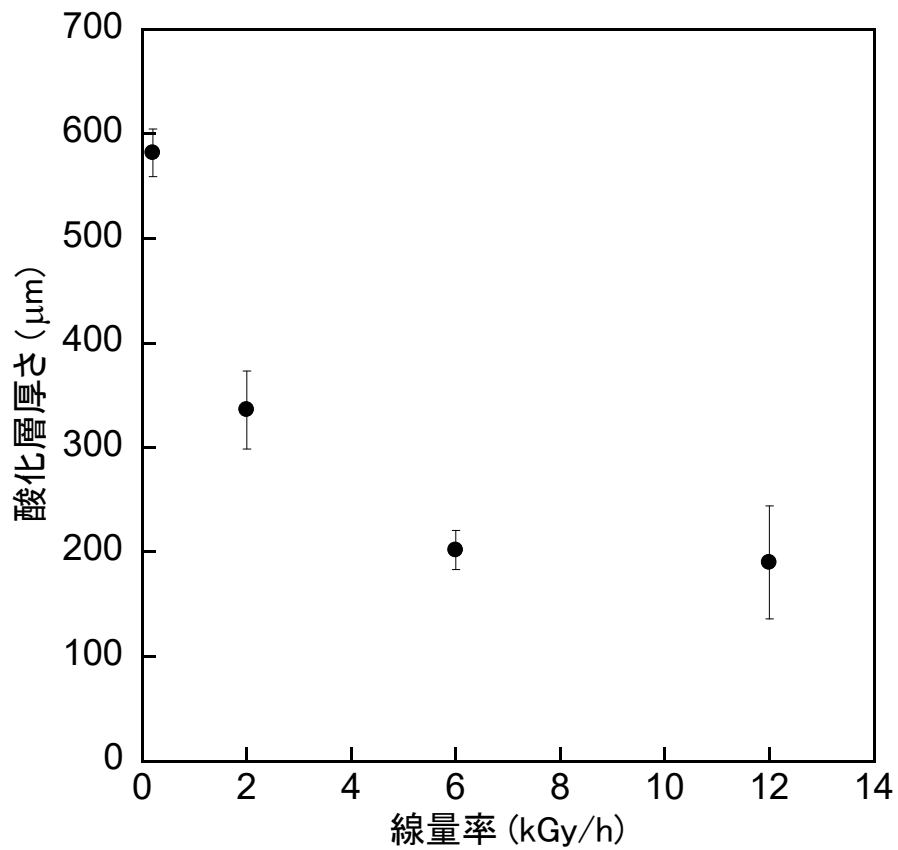


図 6-2 ガンマ線の線量率とポリエチレンシート試料の酸化層厚さの関係（空气中、常温(18°C)照射、酸化防止剤なし試料）。

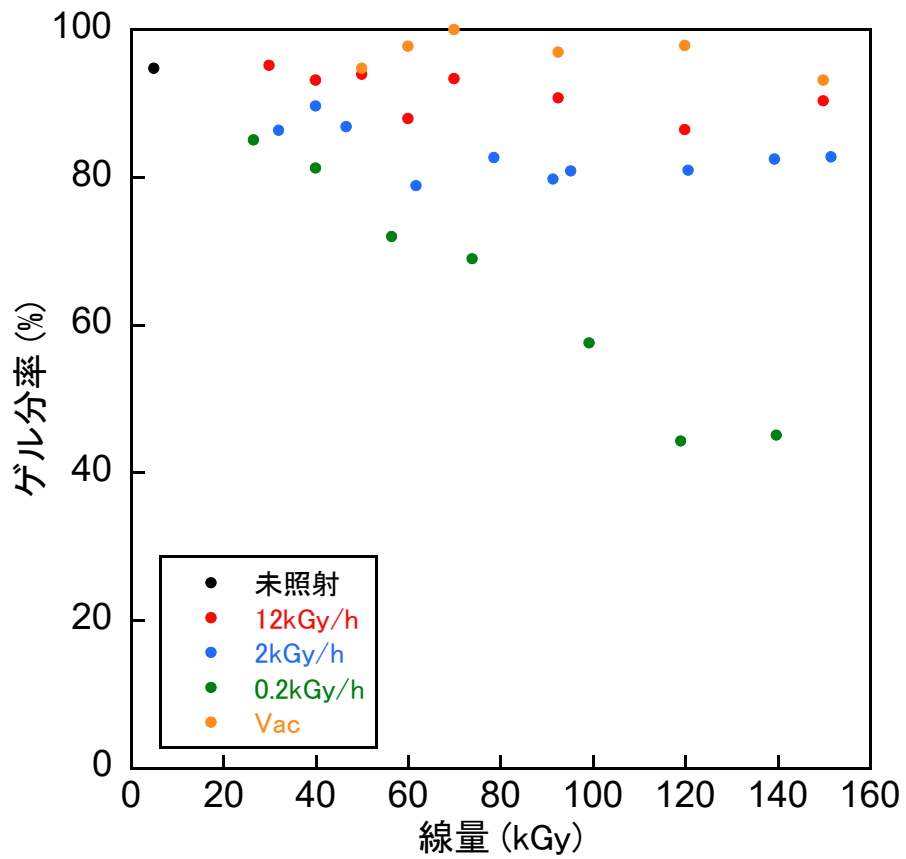


図 6-3 真空中および空气中各線量率においてガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)のゲル分率測定結果.

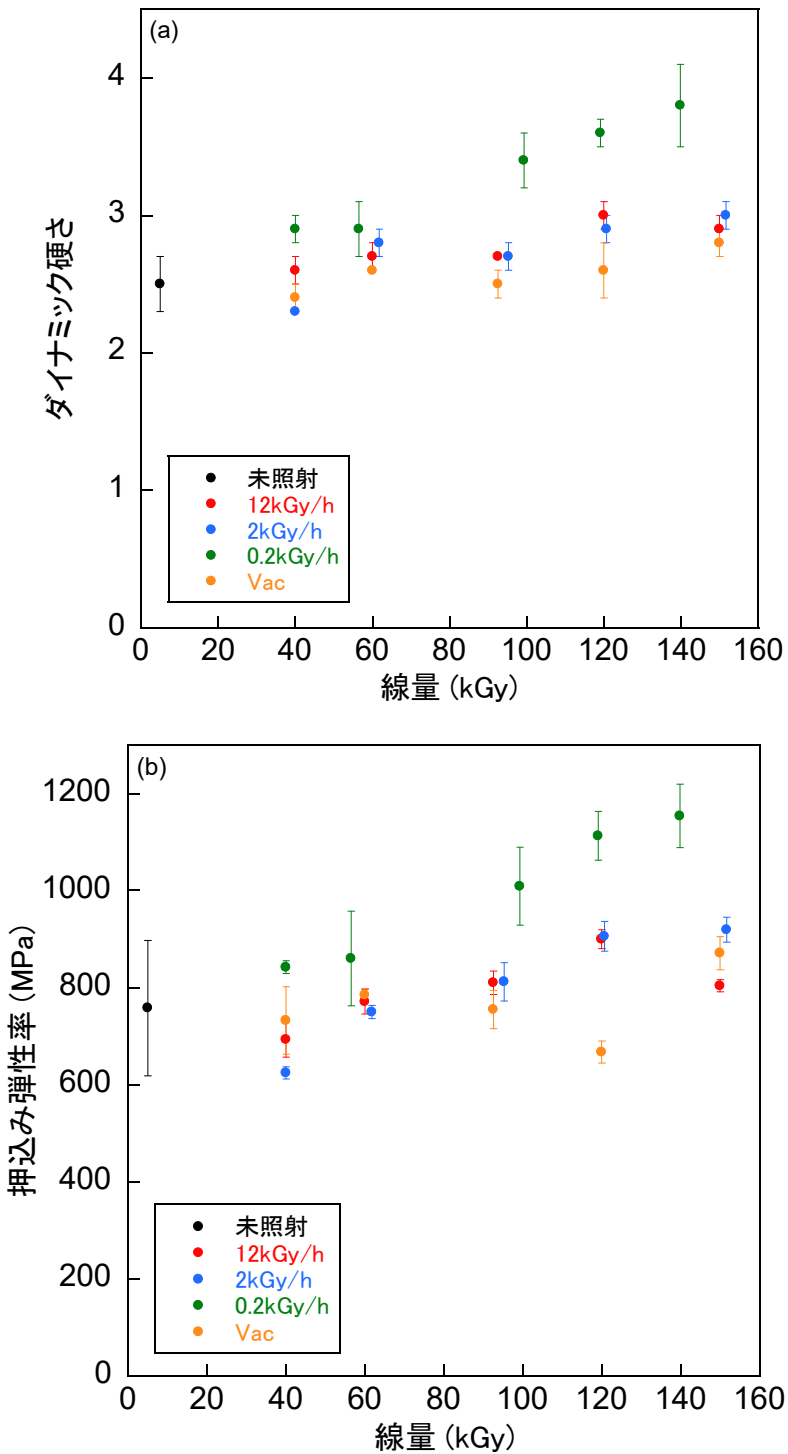


図 6-4 真空中および空气中各線量率においてガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の動的硬度特性測定結果：(a) 動的硬度、(b) 押し込み弾性率。

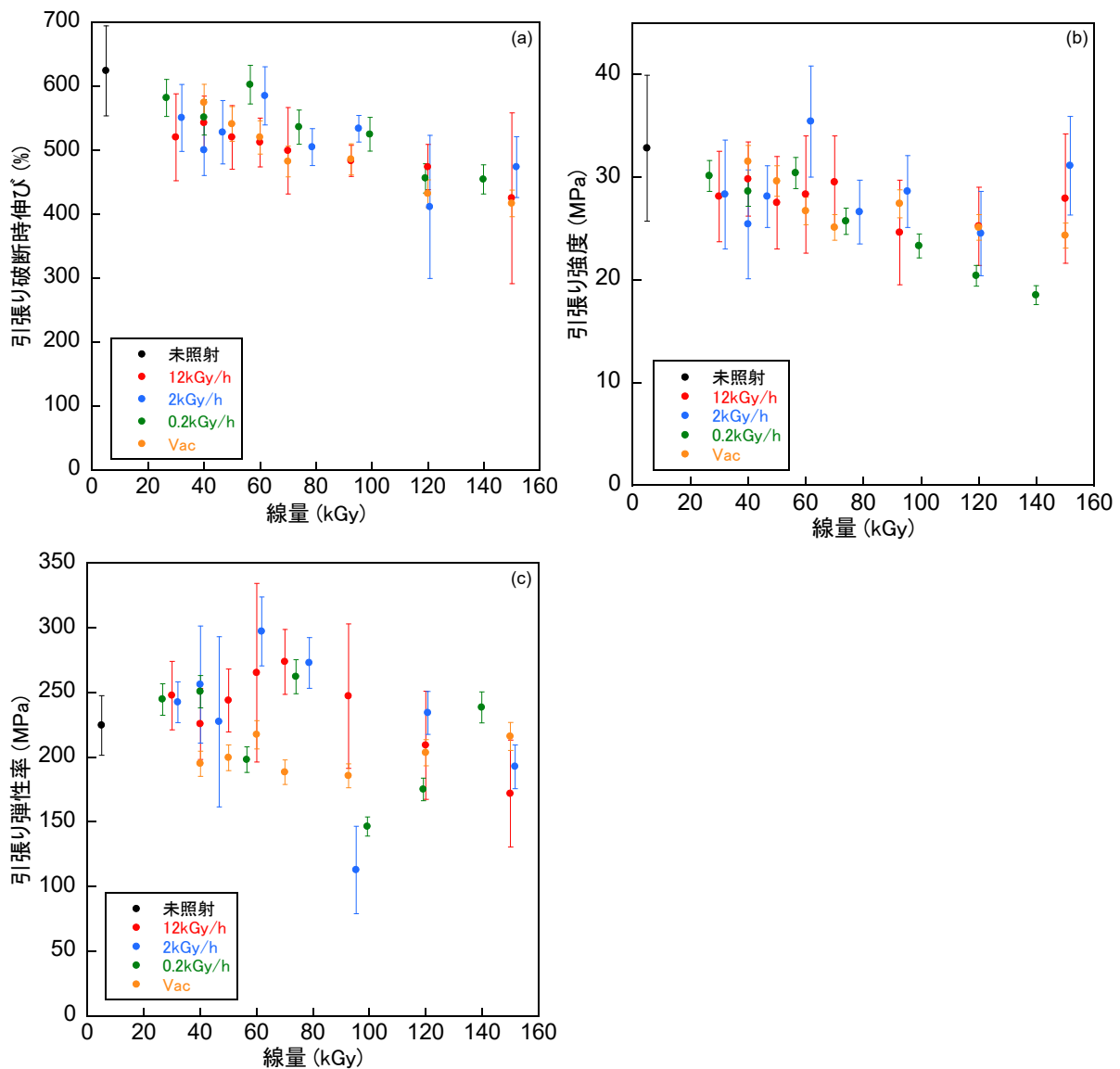


図 6-5 真空中および空气中各線量率においてガンマ線照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の引張り試験結果：(a) 引張り破断時伸び、(b) 引張り強度、(c) 引張り弾性率。

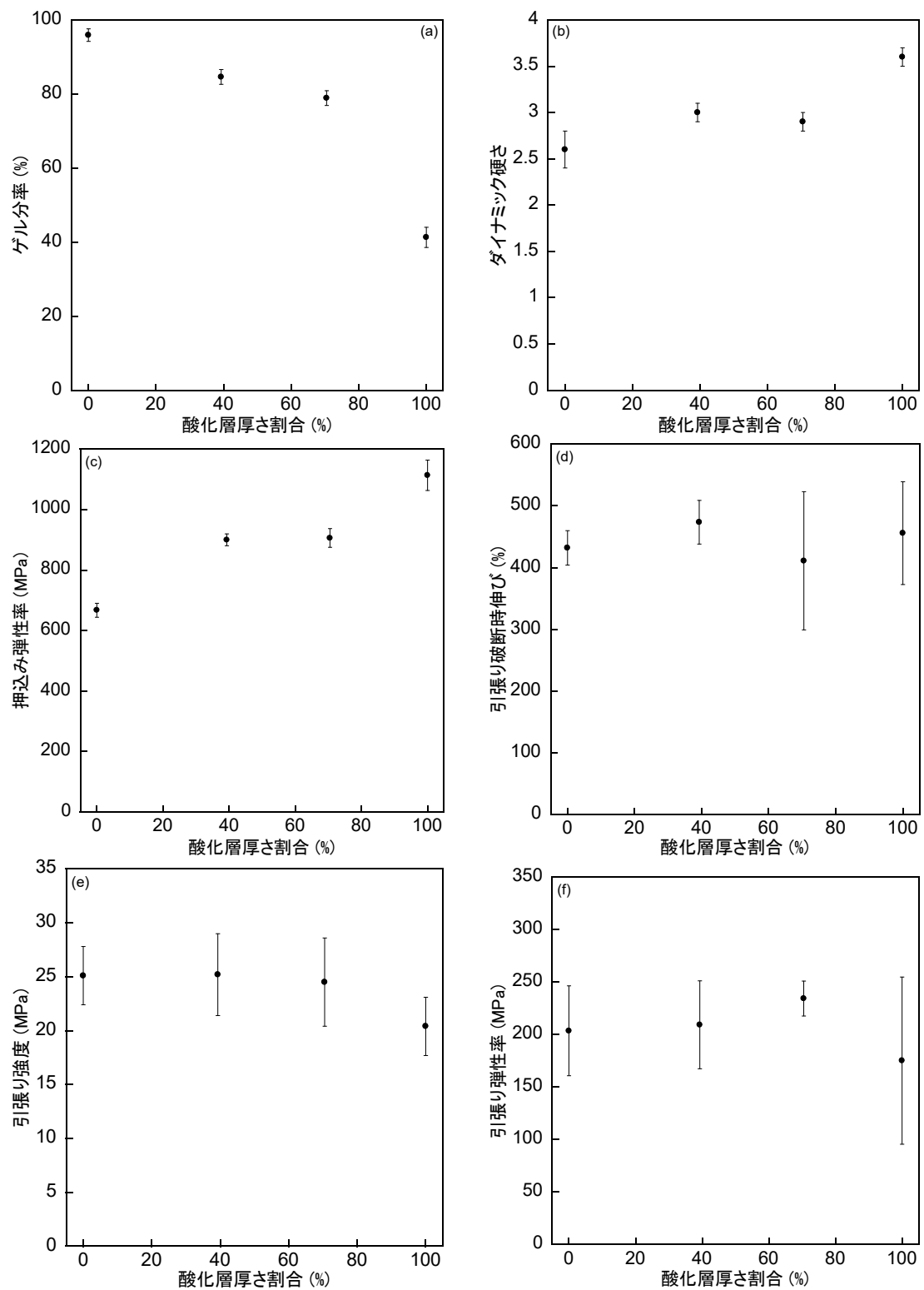


図 6-6 真空中および空气中各線量率においてガンマ線を 120 kGy 照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)の酸化層厚さ割合と各種特性の関係：(a) ゲル分率、(b) ダイナミック硬さ、(c) 押込み弾性率、(d) 引張り破断時伸び、(e) 引張り強度、(f) 引張り弾性率。

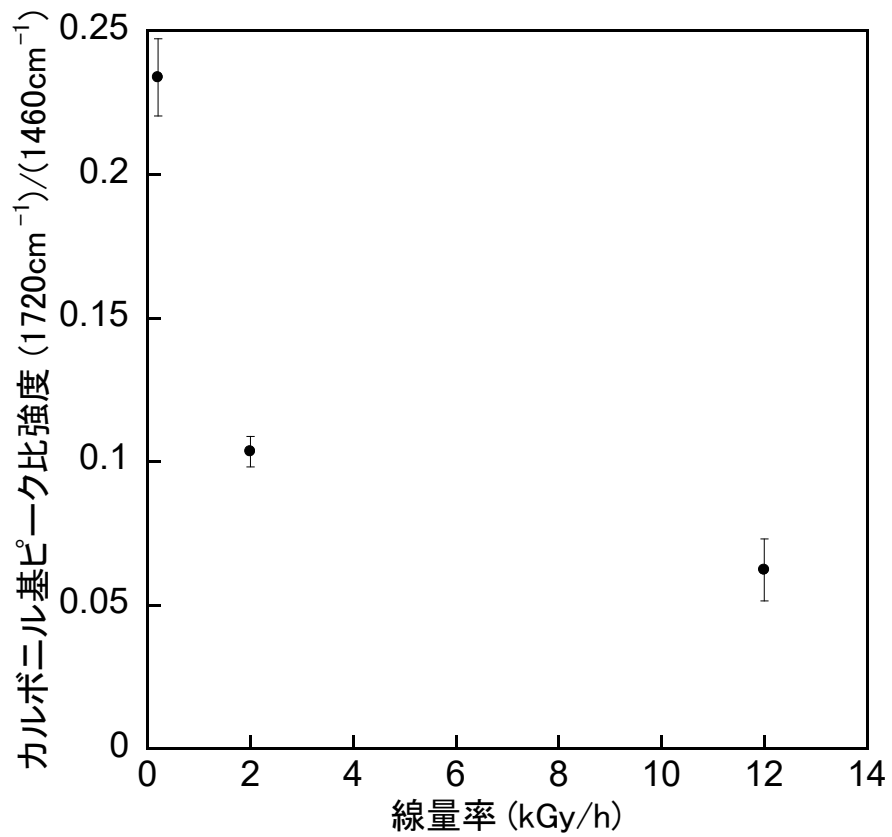


図 6-7 空气中各線量率においてガンマ線を 120 kGy 照射後のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし) 表面のカルボニル基ピーク比強度.

第7章 試験結果のまとめ

本試験では、東京電力株式会社福島第一原子力発電所におけるポリエチレン製高性能容器(High Integrity Container; HIC)の保管環境を考慮し、HICの材質であるポリエチレンの放射線劣化に関する技術的知見を蓄積するため、

【1】 ポリエチレンの劣化に及ぼす電子線／ガンマ線の線種の影響解明

【2】 ポリエチレンの高線量域における特性変化挙動の解明

【3】 ポリエチレンの劣化に及ぼす酸化層厚さ割合の影響解明

を目的とし、既往研究の調査およびデータ取得試験を実施した。

なお、本試験では、試薬メーカーから販売されている高密度ポリエチレンをモデル材料として用いてデータを取得した。従って、本試験で得られたデータはHICの健全性を直接評価するためのデータではないことに注意されたい。

【1】 ポリエチレンの劣化に及ぼす電子線／ガンマ線の線種の影響解明

文献等を調査した結果、ポリエチレンの放射線照射による特性変化に関する電子線／ガンマ線の線種の影響を厳密に比較できる研究例はないことが分かった。ポリエチレンの放射線酸化には線量率や照射温度が大きな影響を及ぼすが、既往研究例のように、線量率が10,000倍以上も異なる照射条件では、酸化状態(酸化層厚さ、酸化量)が異なるポリエチレン試験片が得られるため、劣化状態の異なる試験片の特性を評価していることになる。そのため、ポリエチレンの特性変化挙動について厳密に比較することは困難である。また、照射中のいわゆるビーム加熱(放射線による加熱)の影響も考慮する必要がある。そこで本試験では、ポリエチレンの放射線劣化に関する電子線／ガンマ線の線種の影響を比較するため、ポリエチレンの放射線劣化メカニズムに基づき、試験片全体が酸化される条件(試料厚さ：100 μm、線量率：(電子線)54 kGy/h、(ガンマ線)2 kGy/h、照射温度：28℃)下で照射試験を行なった試験片の特性変化を調べた。その結果、本試験において、ポリエチレンの電子線／ガンマ線照射による酸化層形成挙動、特性変化挙動に及ぼす線種の影響は認められなかった。

【2】 ポリエチレンの高線量域における特性変化挙動の解明

本試験では、これまでの事業において取得されていなかった100 kGy以上の高線量域において、試験片全体が酸化される条件(試料厚さ、線量率)下でポリエチレンの特性変化挙動のデータを取得し、(1)照射雰囲気(空気、水、スラリー成分)の影響、(2)

酸化防止剤の効果、(3)クリープ特性変化の検討、(4)ストレスクラック進展の可能性検討、の点について整理した。

(1) 照射雰囲気(空気、水、スラリー成分)の影響

水、スラリー成分を含む照射雰囲気では、ストレスクラッキング試験において空気中の場合よりも低線量域でクラックが生成した。引張り特性、ダイナミック硬度特性、密度、ゲル分率の特性変化に対する照射雰囲気の影響は小さかった。ただし、酸化防止剤を含まない試料については、空气中照射における酸化量が大きく、他の雰囲気と比較して高密度、低ゲル分率となる傾向が見られた。

(2)酸化防止剤の効果

酸化防止剤は水、スラリー成分存在下でも有効であることが分かった。また、評価する特性によって違いがあるが、200～400 kGy の線量域までポリエチレンの特性劣化を抑制する効果を維持することが分かった。ただし、この結果は、本試験で使用したポリエチレンと酸化防止剤の組合せ・配合比において得られたものである。

(3)クリープ特性変化の検討

ガンマ線照射後のポリエチレン表面の変形率を示すインデンテーションクリープ率は減少する傾向を示した。また、測定温度 65℃までの範囲で大きく増加するような結果は得られなかった。

(4)ストレスクラック進展の可能性検討

照射雰囲気に依らず、ストレスクラッキング試験において生成したクラックは、線量の増加とともに深さ方向に進展する傾向が認められた。ただし、本試験において、試験片厚さ 2 mm を貫通するようなクラックは見られなかった。

【3】 ポリエチレンの劣化に及ぼす酸化層厚さ割合の影響解明

空气中、線量率を変化させることによって酸化層厚さ割合を制御したポリエチレン試料の特性を評価し、酸化層厚さ割合と特性変化挙動の関係について調べた結果、ゲル分率やダイナミック硬度特性の変化挙動は、酸化層厚さ割合または表面酸化量を反映したが、引張り特性においては、表面の酸化(劣化)が試料全体の特性に影響を及ぼす「ノッチ効果」が認められた。

付録資料

1. ポリエチレンの特性評価のための測定条件の検討について
2. ポリエチレンの放射線照射による特性変化に関するデータ集

1. ポリエチレンの特性評価のための測定条件の検討について

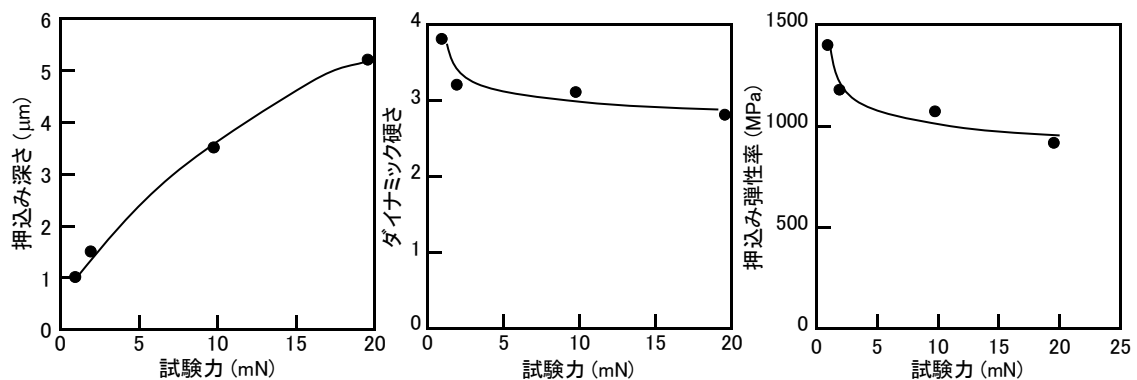
■ダイナミック硬度特性の評価

JIS 2255「超微小負荷硬さ試験方法」において、以下のポイントが示されている。

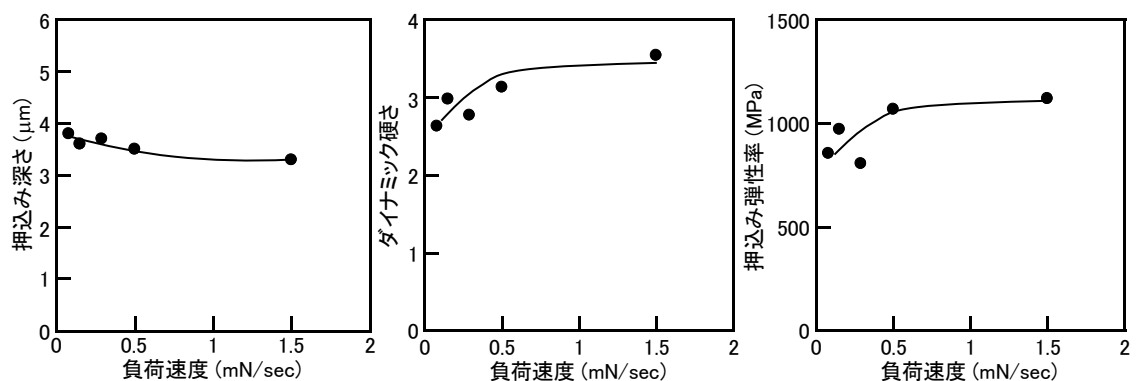
- ・ 試料は押し込み深さの 10 倍以上の厚さを持たなければならない。
- ・ 押し込み深さは少なくとも $1\ \mu\text{m}$ 以上とする。
- ・ 試験力を加え始めてから最大試験力に到達するまでの所要時間は 10~30 秒とする。
- ・ 最大試験力での保持時間は 5~15 秒とする。

そこで、1 mm 厚のポリエチレンシート試料(酸化防止剤なし)について、ダイナミック硬度特性に及ぼす(1)試験力、(2)負荷速度、(3)保持時間の影響を検討した。

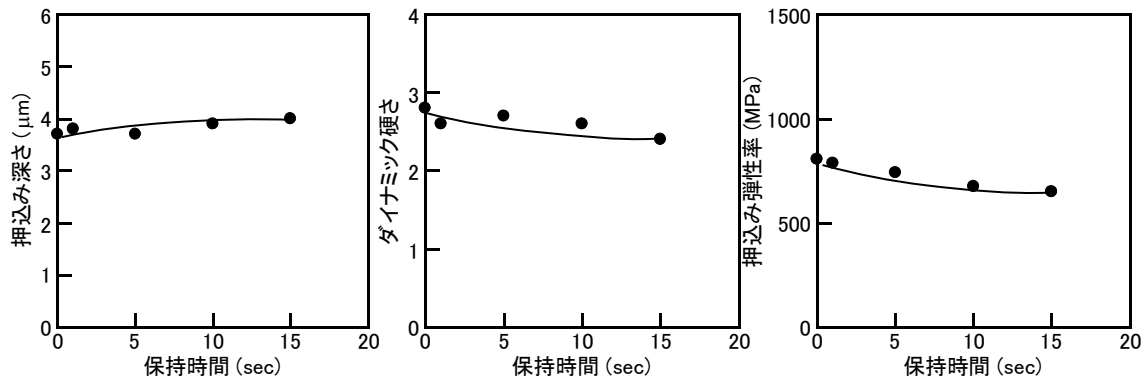
(1)試験力の影響(負荷速度 : 0.5 mN/sec、保持時間 : 0 sec)



(2)負荷速度の影響(試験力 : 9.8 mN、保持時間 : 0 sec)



(3)保持時間の影響(試験力：9.8 mN、負荷速度：0.29 mN/sec)



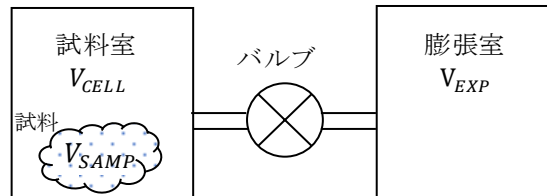
一方、ポリエチレンをはじめプラスチック材料の測定条件として、島津試験 CSC ニュース No. 131 (<https://solutions.shimadzu.co.jp>)では、試験力：9.8 mN、負荷速度：0.28 mN/sec、保持時間：5 sec の測定条件において極細プラスチックチューブの硬度特性が評価されている。また、中島らにより、試験力：10 gf (9.8 mN)、保持時間：10 sec の測定条件においてポリエチレンのダイナミック硬さ：4.2、押し込み深さ：5.1 μm の値が報告されている(“プラスチック成形品の性能評価技術(第4報)－微小硬度・破水試験－”,茨城県工業技術センター研究報告, 第22号, pp. 37-39 (1993))。

上述の試験力・負荷速度・保持時間の検討結果と既報の測定例における測定条件を踏まえ、本試験においては、シート試料については、試験力：9.8 mN、負荷速度：0.29 mN/sec、保持時間：5 sec を測定条件とした。フィルム試料については、押し込み深さが1~2 μm となるよう、試験力を0.98 mNとし、負荷速度：0.03 mN/sec、保持時間：5 sec の条件を設定した。この測定条件で得られたダイナミック硬度特性は下表のとおりであった。

試料	ダイナミック硬度特性	
	ダイナミック硬さ	押し込み弾性率 (MPa)
1mm 厚シート	2.9±0.1	919.3±46.3
100μm 厚フィルム	4.0±0.3	978.9±51.9

■密度の測定

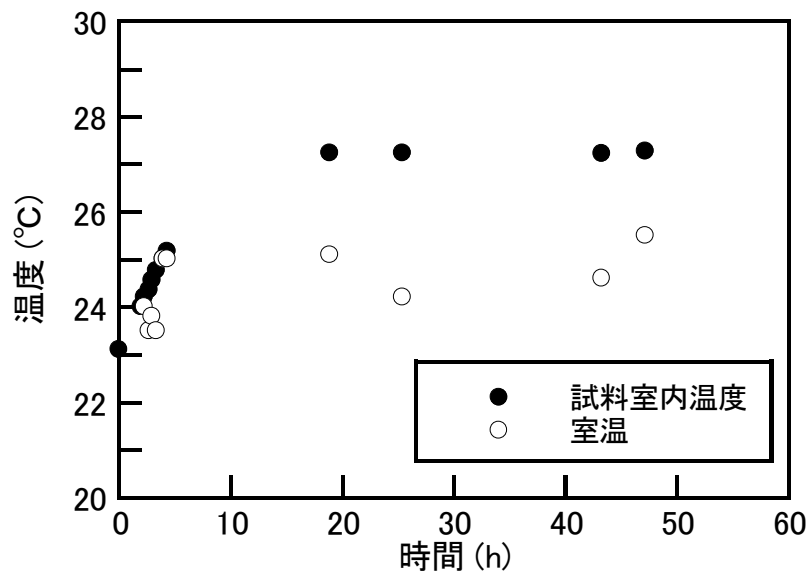
本試験では、ヘリウムガスを用いた定容積膨張法によりポリエチレン試料の密度を測定した。定容積膨張法では、下図に示すように、一定体積 V_{CELL} の試料室中に体積 V_{SAMP} の試料を設置し、ヘリウムガスを導入して所定の圧力(P_0)とした後、バルブを開放して体積 V_{EXP} が既知である膨張室につなぎ、圧力 P_1 を読み取る。



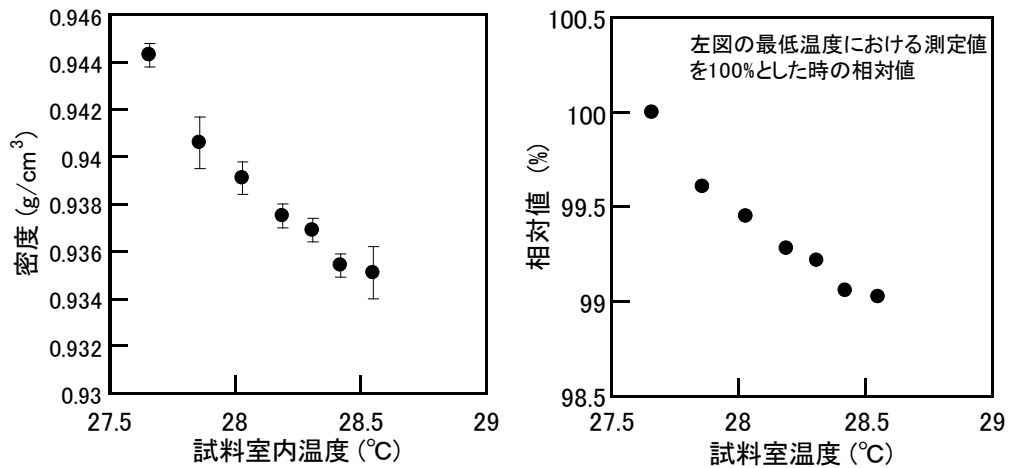
ボイル・シャルルの法則から、下式により試料体積を計算するとともに、事前に測定した試料の質量から密度を求める。

$$V_{SAMP} = V_{CELL} - \frac{V_{EXP}}{\frac{P_0}{P_1} - 1}$$

本試験で用いた Shimadzu 製 マイクロメリティックス乾式自動密度計 アキュピック II 1340 について、電源投入後、試料室内の温度が時間経過とともに上昇し、27.0 ~ 27.5°C で安定することが分かった。



密度測定における測定温度は重要である。なぜなら、測定温度が上昇すると、測定される体積が膨張し、その結果、密度が低下するためである。そこで、密度の測定温度依存性を評価したところ、下図に示すように、測定値のばらつきは1%程度に収まったが、試料間でデータを比較するためには測定温度を揃えることが必要である。



以上のことから、本試験では、密度測定を行なう時の試料室内温度を 27.0~27.5°C とした。

2. ポリエチレンの放射線照射による特性変化に関するデータ集

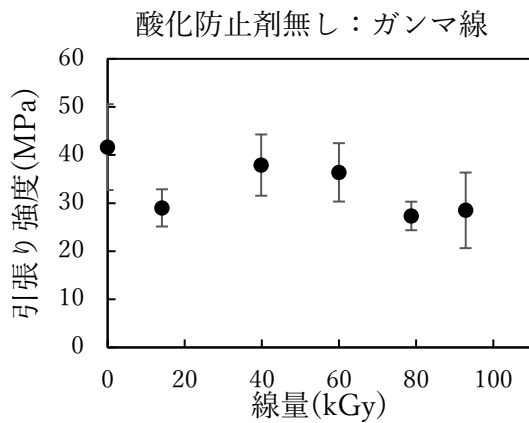
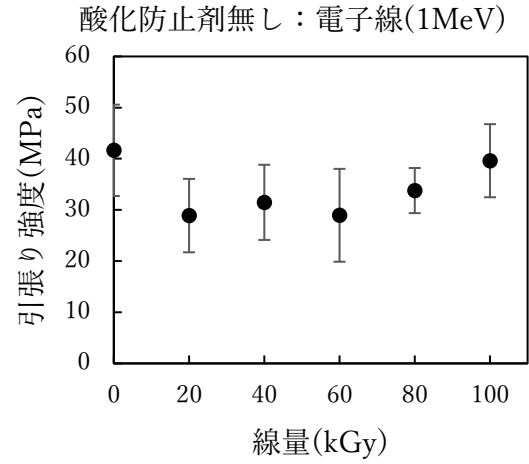
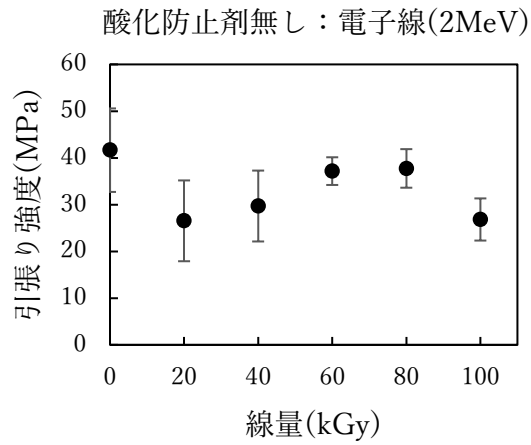
本試験で取得したポリエチレン試料の特性変化に関するデータを、以下の通り、各章ごとにまとめた。

- ・第4章 電子線／ガンマ線照射によるポリエチレンの特性変化に関するデータ取得
試料：酸化防止剤なし／あり 100 μm 厚フィルム
評価：引張り試験、ゲル分率測定、密度測定、ダイナミック硬度特性測定
- ・第5章 高線量域におけるポリエチレンの特性変化に関するデータ取得
試料：酸化防止剤なし／あり 1 mm 厚シート
(ストレスクラッキング試験片は 2 mm 厚)
評価：引張り試験、ゲル分率測定、密度測定、ダイナミック硬度特性測定、ストレスクラッキング試験
- ・第6章 非酸化領域を含むポリエチレンの特性変化に関するデータ取得
試料：酸化防止剤なし 1 mm 厚シート
評価：引張り試験、ゲル分率測定、ダイナミック硬度特性測定

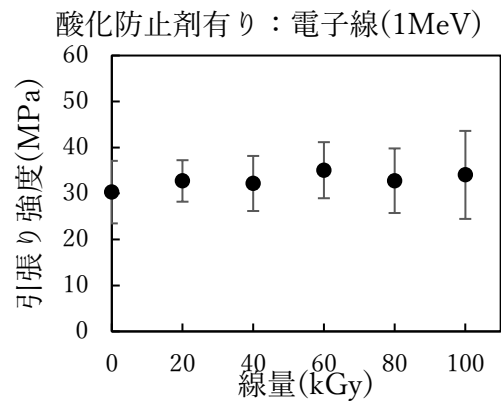
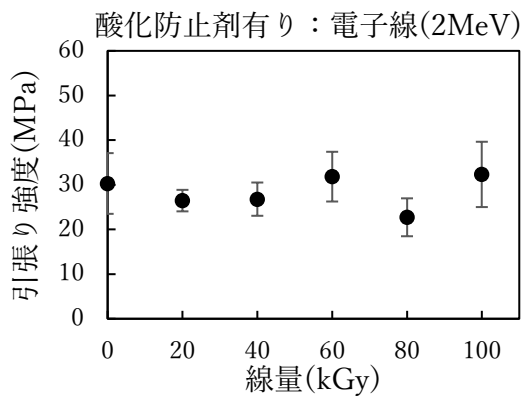
【第4章 電子線ガンマ線照射によるポリエチレンの特性変化に関するデータ取得】

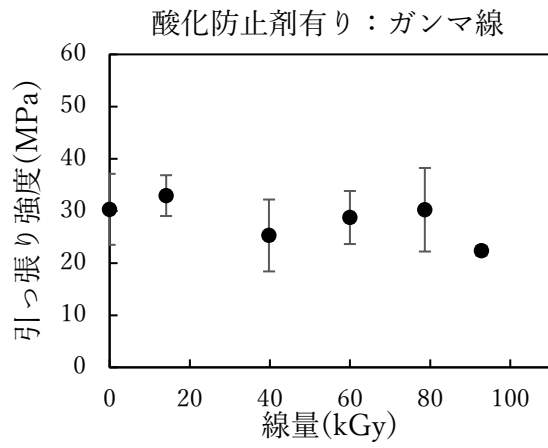
■引張り試験結果

・引張り強度:酸化防止剤無し

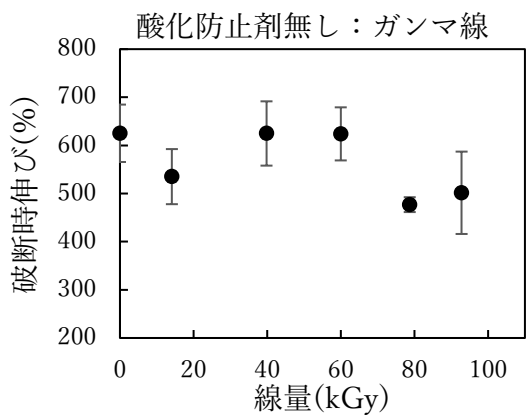
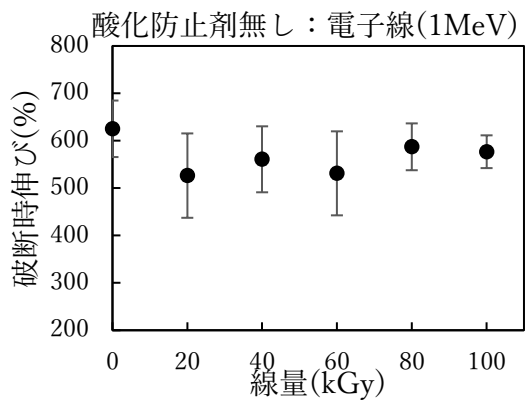
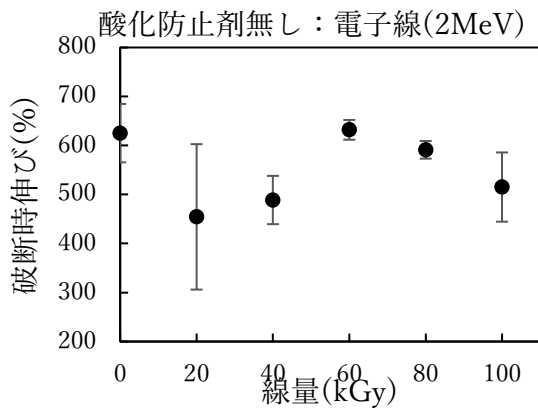


・引張り強度:酸化防止剤有り

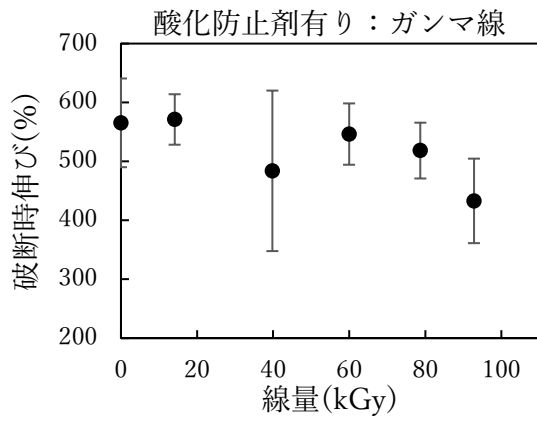
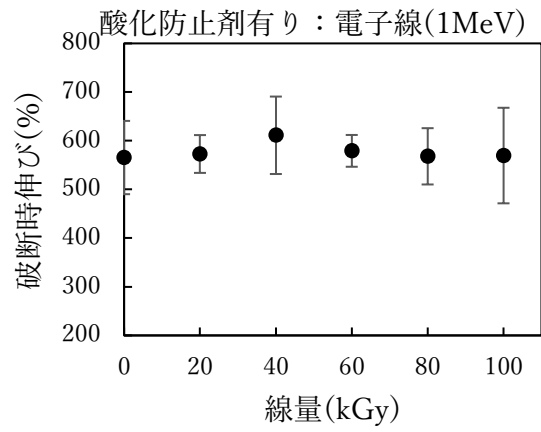
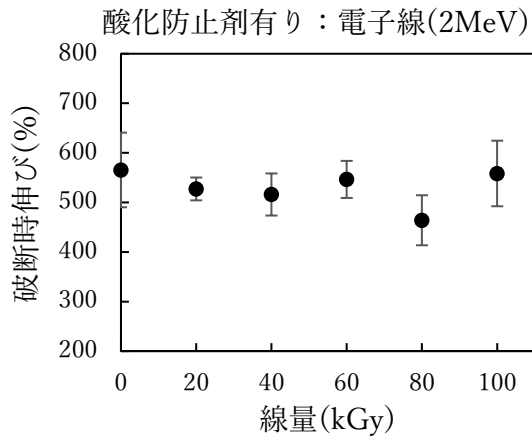




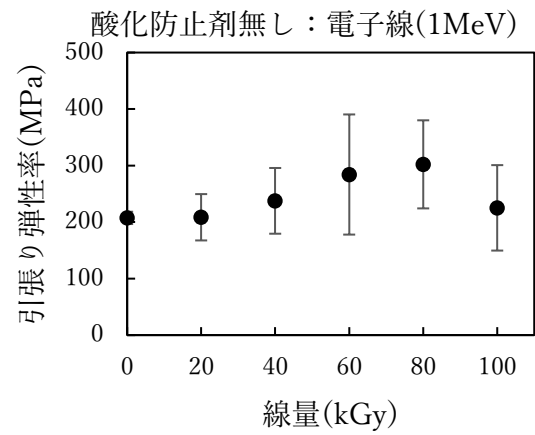
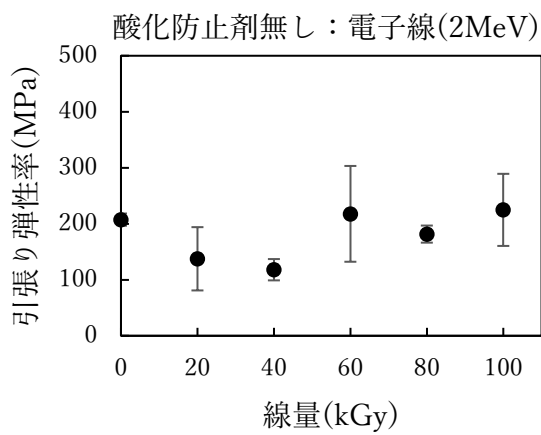
・破断時伸び:酸化防止剤無し

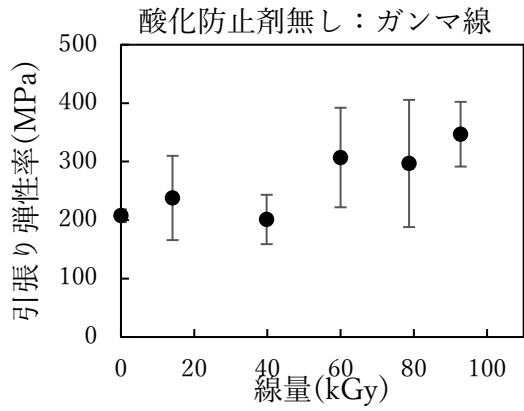


・破断時伸び:酸化防止剤有り

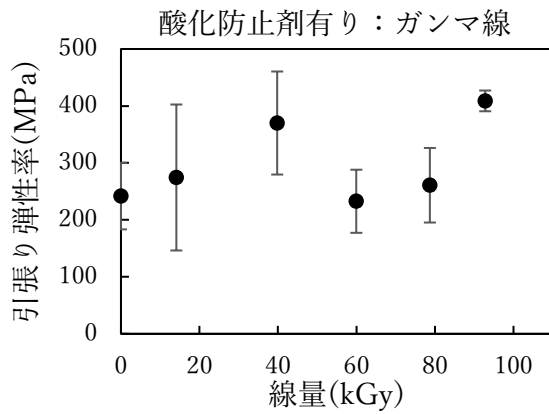
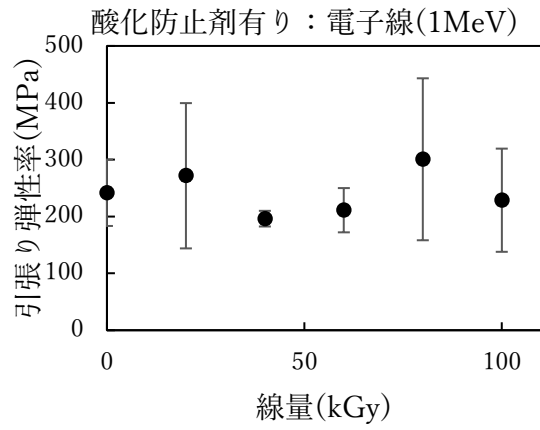
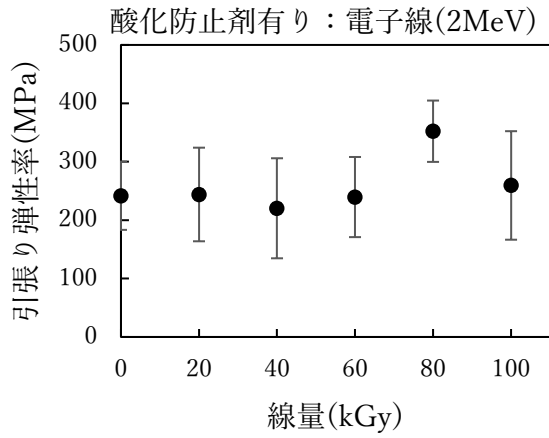


・引張り弾性率:酸化防止剤無し





・引張り弾性率：酸化防止剤有り



引張り試験結果:酸化防止剤無し

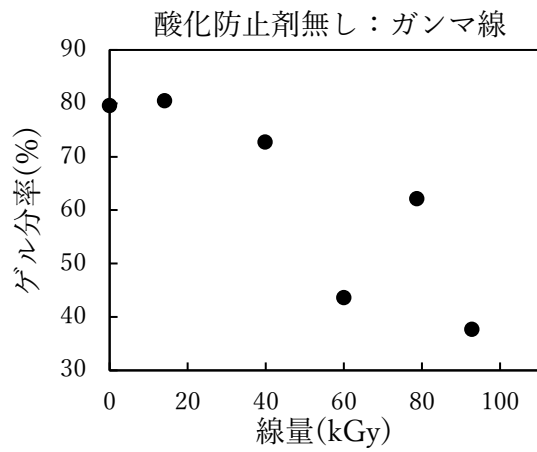
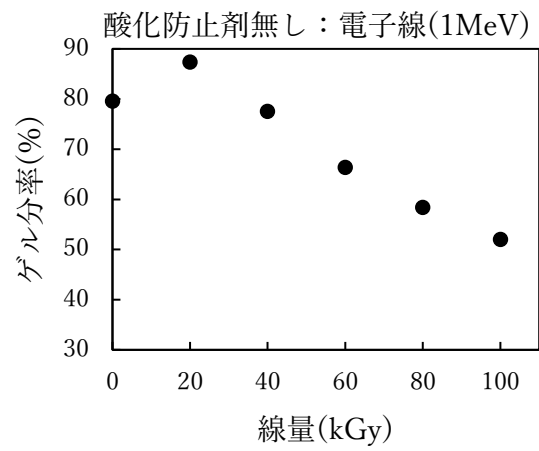
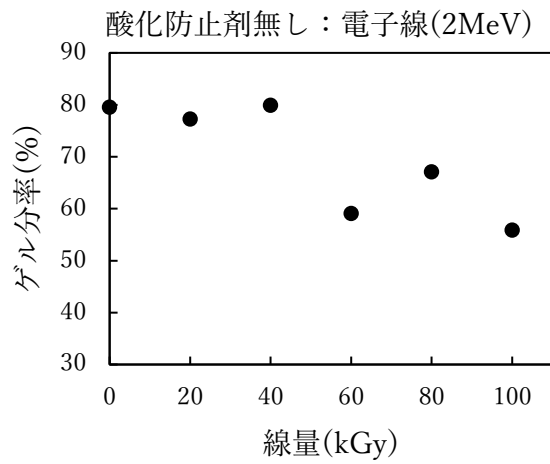
酸化防止剤 (wt%)	線種	線量(kGy)	破断時伸び(%)		引張り強度(MPa)		弾性率(MPa)	
			平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
0	初期値		625.2	59.6	41.7	8.9	207.5	10.9
	電子線 (2MeV)	20.0	454.4	148.4	26.5	8.6	137.5	56.5
		40.0	488.8	49.3	29.7	7.6	118.0	19.0
		60.0	632.0	20.2	37.2	3.0	217.7	85.5
		80.0	591.2	18.0	37.7	4.1	181.6	15.3
		100.0	515.2	70.6	26.8	4.5	224.8	64.4
	電子線 (1MeV)	20.0	526.4	89.0	28.9	7.2	208.5	41.0
		40.0	560.8	69.6	31.5	7.3	237.6	58.1
		60.0	531.2	88.7	29.0	9.1	284.2	106.3
		80.0	587.2	49.4	33.8	4.4	302.2	77.9
		100.0	576.8	34.6	39.6	7.1	225.2	75.6
	ガンマ線	14.1	535.2	57.2	29.0	3.9	237.9	72.1
		39.8	624.8	66.8	37.9	6.4	201.1	42.2
		60.0	624.0	55.1	36.4	6.1	307.1	85.1
		78.7	477.0	15.4	27.3	3.0	296.9	108.8
92.8		501.6	85.5	28.5	7.9	346.9	55.4	

引張り試験結果:酸化防止剤有り

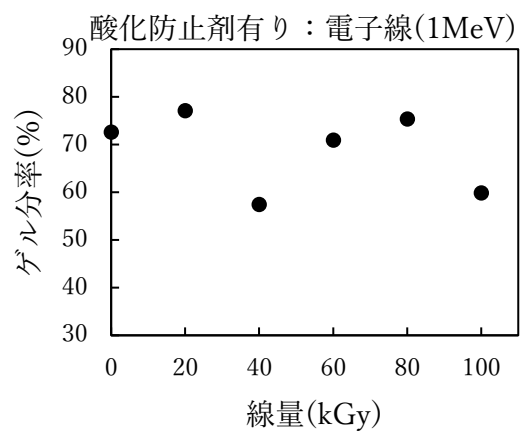
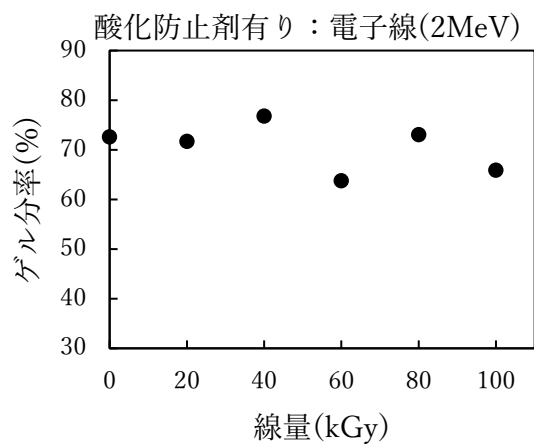
酸化防止剤 (wt%)	線種	線量(kGy)	破断時伸び(%)		引張り強度(MPa)		弾性率(MPa)	
			平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
1	初期値		565.5	75.3	30.3	6.8	241.8	58.4
	電子線 (2MeV)	20.0	527.2	23.0	26.5	2.4	244.0	80.2
		40.0	516.0	42.5	26.8	3.7	220.3	85.6
		60.0	546.4	37.4	31.8	5.6	239.6	68.6
		80.0	464.0	50.5	22.7	4.2	352.3	52.5
		100.0	558.4	66.1	32.3	7.3	259.4	92.9
	電子線 (1MeV)	20.0	572.8	38.8	32.7	4.5	271.7	127.8
		40.0	611.2	79.6	32.2	6.0	196.2	13.8
		60.0	579.2	32.7	35.1	6.1	211.1	38.9
		80.0	568.0	57.8	32.8	7.0	300.7	142.4
		100.0	569.6	98.2	34.0	9.6	228.7	90.7
	ガンマ線	14.1	571.2	42.8	32.9	3.9	274.4	128.2
		39.8	484.0	136.2	25.3	6.9	370.1	90.5
		60.0	546.4	52.0	28.7	5.1	232.7	55.4
		78.7	518.4	47.4	30.2	8.0	260.8	65.5
	92.8	433.0	71.7	22.4	0.9	408.9	18.2	

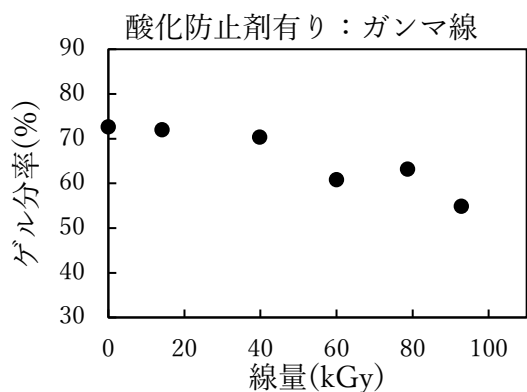
■ゲル分率測定結果

・酸化防止剤無し



・酸化防止剤有り





ゲル分率測定結果:酸化防止剤無し

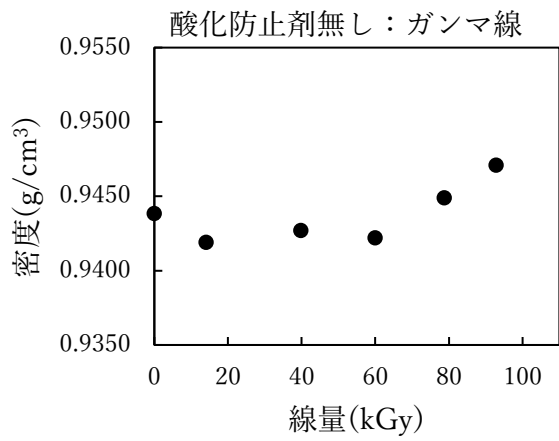
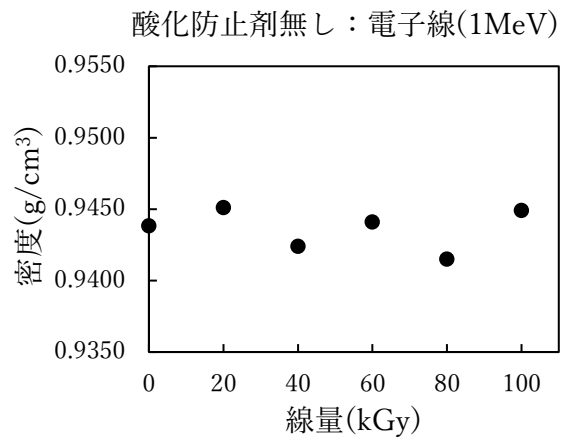
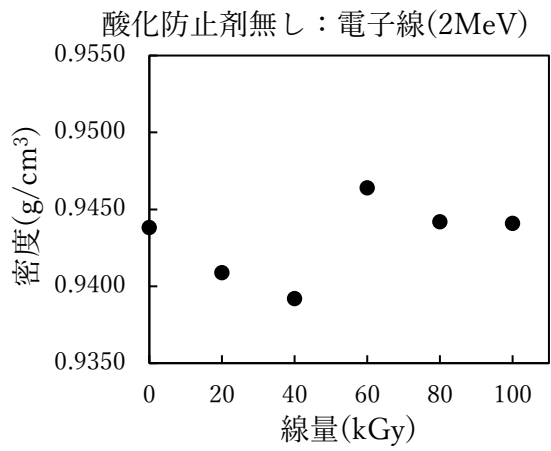
酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	ゲル分率(%)
0	初期値		79.6
	電子線 (2MeV)	20.0	77.3
		40.0	79.9
		60.0	59.1
		80.0	67.1
		100.0	55.9
	電子線 (1MeV)	20.0	87.4
		40.0	77.5
		60.0	66.4
		80.0	58.4
		100.0	52.0
	ガンマ線	14.1	80.4
		39.8	72.7
		60.0	43.6
		78.7	62.1
92.8		37.7	

ゲル分率測定結果:酸化防止剤有り

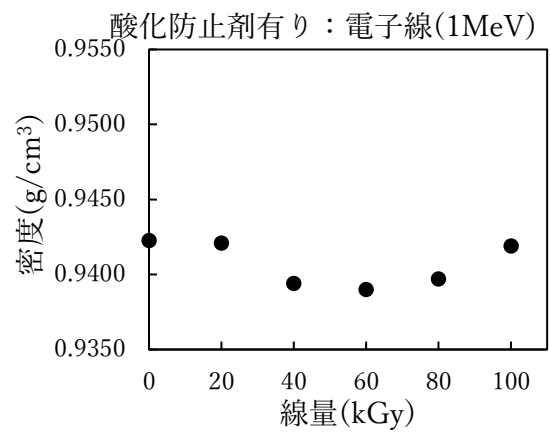
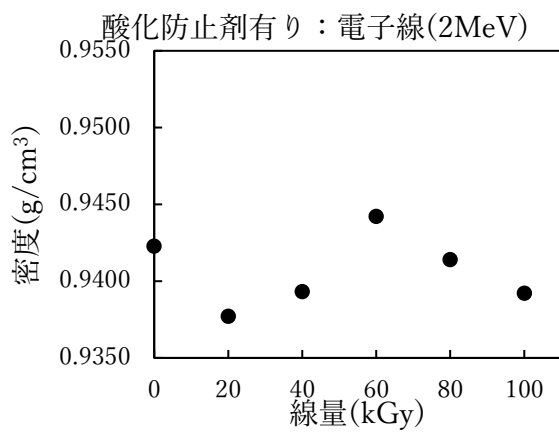
酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	ゲル分率(%)
1	初期値		72.6
	電子線 (2MeV)	20.0	71.7
		40.0	76.8
		60.0	63.8
		80.0	73.1
		100.0	65.9
	電子線 (1MeV)	20.0	77.1
		40.0	57.5
		60.0	71.0
		80.0	75.4
		100.0	59.8
	ガンマ線	14.1	72.0
		39.8	70.3
		60.0	60.8
		78.7	63.2
92.8		54.8	

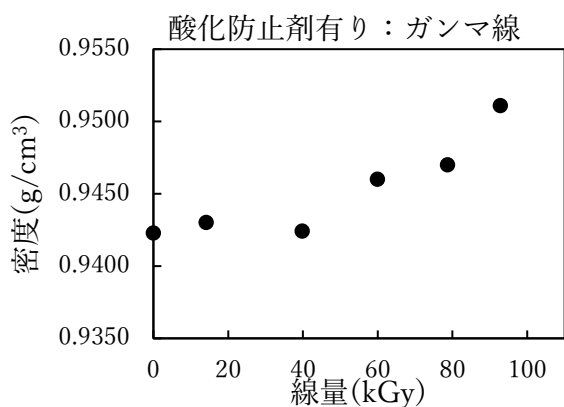
■ 密度測定結果

・酸化防止剤無し



・酸化防止剤有り





密度測定結果:酸化防止剤無し

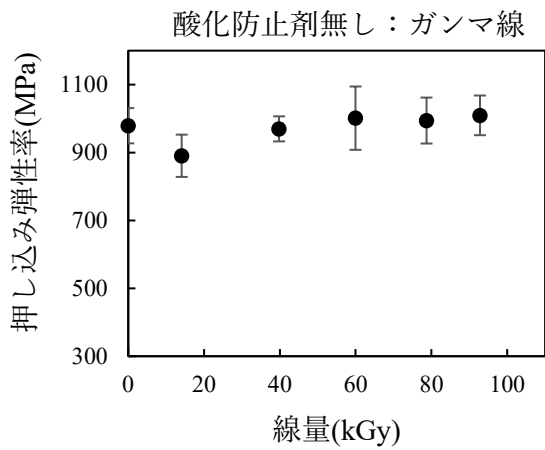
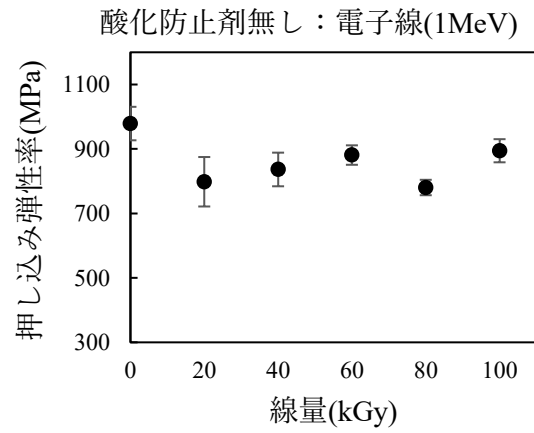
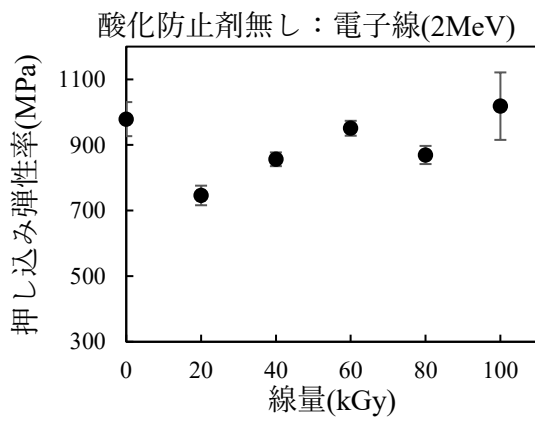
酸化防止剤 (wt%)	線種	線量(kGy)	密度(g/cm ³)
0	初期値		0.9438
	電子線 (2MeV)	20.0	0.9409
		40.0	0.9392
		60.0	0.9464
		80.0	0.9442
		100.0	0.9441
	電子線 (1MeV)	20.0	0.9451
		40.0	0.9424
		60.0	0.9441
		80.0	0.9415
		100.0	0.9449
	ガンマ線	14.1	0.9419
		39.8	0.9427
		60.0	0.9422
78.7		0.9449	
92.8		0.9471	

密度測定結果:酸化防止剤有り

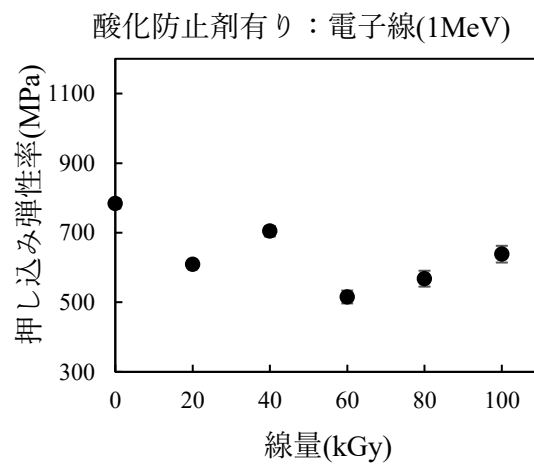
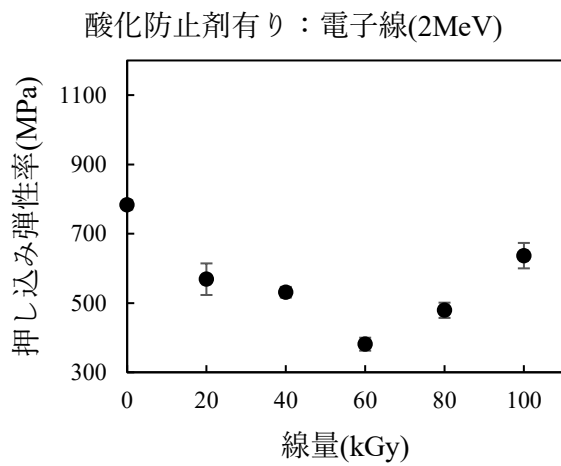
酸化防止剤 (wt%)	線種	線量(kGy)	密度(g/cm ³)
1	初期値		0.9423
	電子線 (2MeV)	20.0	0.9377
		40.0	0.9393
		60.0	0.9442
		80.0	0.9414
		100.0	0.9392
	電子線 (1MeV)	20.0	0.9421
		40.0	0.9394
		60.0	0.9390
		80.0	0.9397
		100.0	0.9419
	ガンマ線	14.1	0.9430
		39.8	0.9424
		60.0	0.9460
78.7		0.9470	
92.8		0.9511	

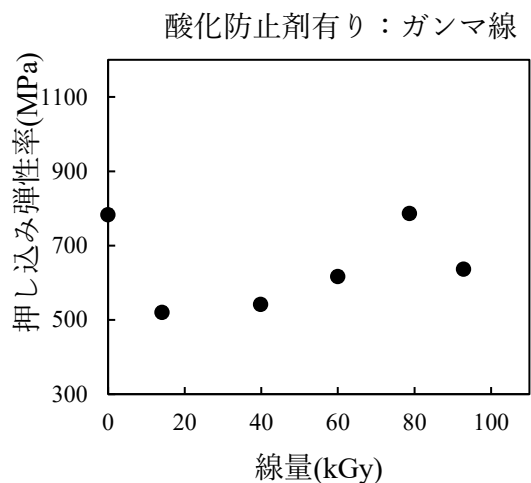
■ダイナミック硬度特性測定結果

・押し込み弾性率:酸化防止剤無し

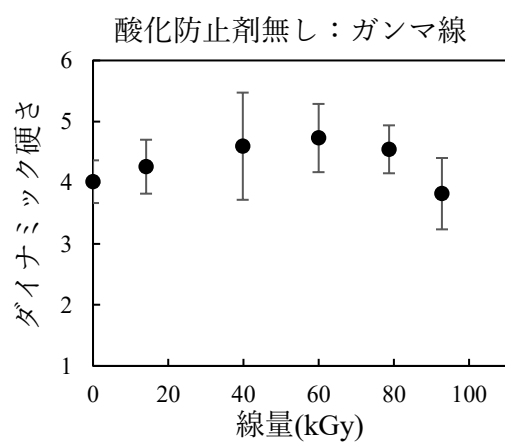
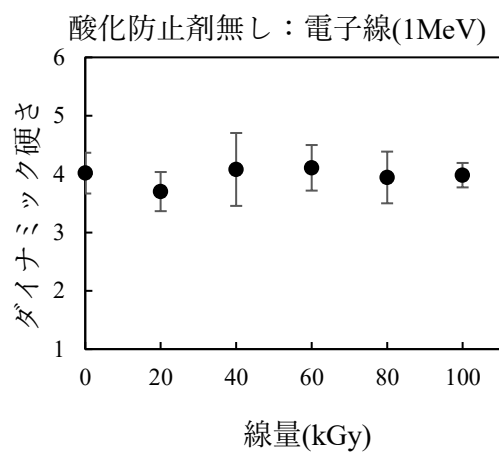
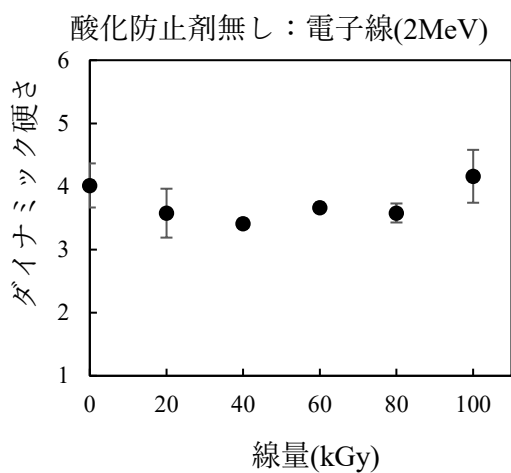


・押し込み弾性率:酸化防止剤有り

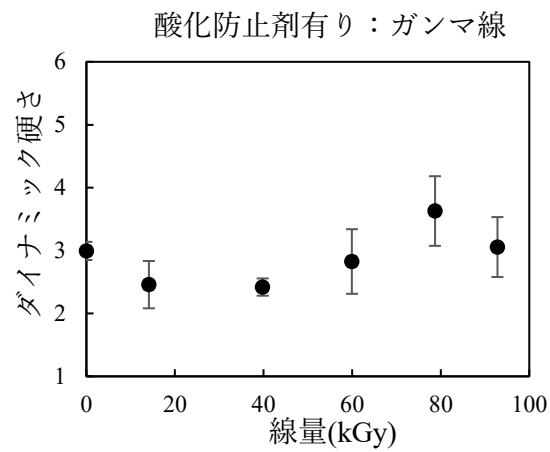
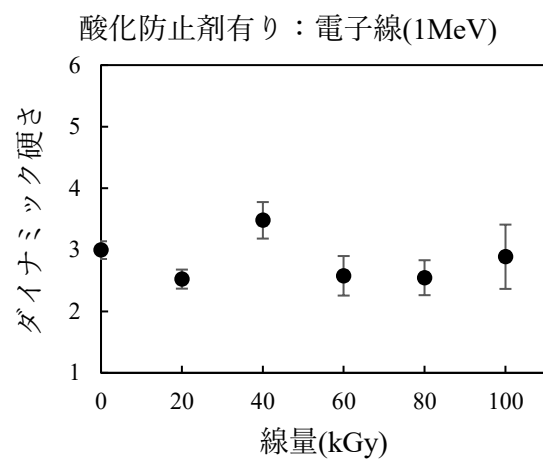
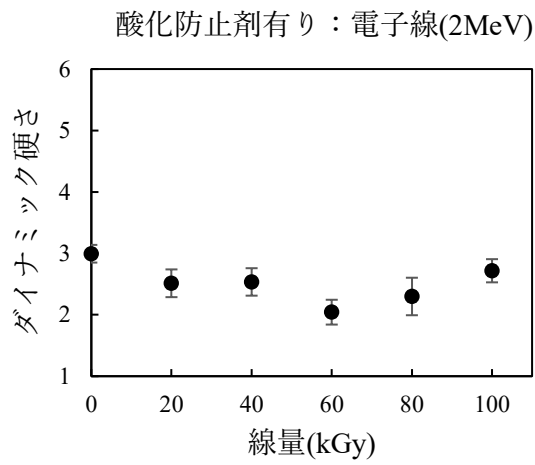




・ダイナミック硬さ：酸化防止剤無し



・ダイナミック硬さ:酸化防止剤有り



ダイナミック硬度特性測定結果:酸化防止剤無し

酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	押し込み弾性率(MPa)		ダイナミック硬さ	
			平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
0	初期値		978.9	51.9	4.0	0.3
	電子線 (2MeV)	20.0	746.1	29.9	3.6	0.4
		40.0	856.4	21.0	3.4	0.1
		60.0	951.0	22.7	3.7	0.1
		80.0	869.5	27.6	3.6	0.2
		100.0	1018.4	102.8	4.2	0.4
	電子線 (1MeV)	20.0	798.3	76.8	3.7	0.3
		40.0	836.4	52.2	4.1	0.6
		60.0	881.1	30.2	4.1	0.4
		80.0	780.4	23.9	3.9	0.4
		100.0	894.5	35.9	4.0	0.2
	ガンマ線	14.1	890.3	62.3	4.3	0.4
		39.8	969.7	36.9	4.6	0.9
		60.0	1001.2	93.3	4.7	0.6
		78.7	994.1	67.6	4.5	0.4
92.8		1009.4	58.4	3.8	0.6	

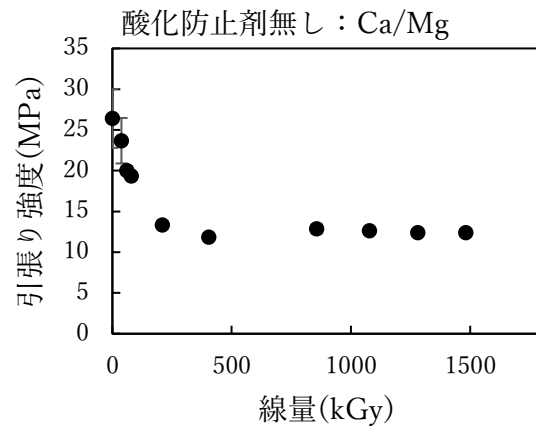
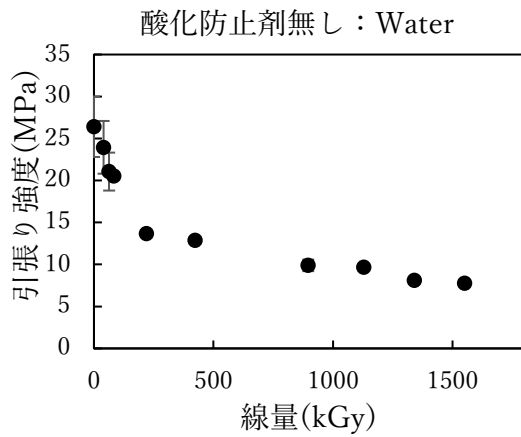
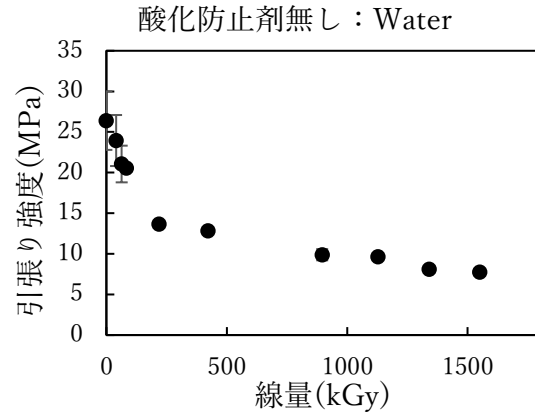
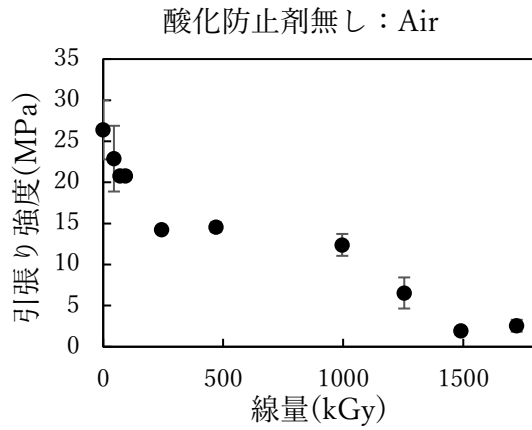
ダイナミック硬度特性測定結果:酸化防止剤有り

酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	押し込み弾性率(MPa)		ダイナミック硬さ	
			平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
1		初期値	783.5	13.7	3.0	0.1
	電子線 (2MeV)	20.0	568.7	45.6	2.5	0.2
		40.0	531.1	15.3	2.5	0.2
		60.0	381.1	18.7	2.0	0.2
		80.0	478.9	22.0	2.3	0.3
		100.0	636.6	36.7	2.7	0.2
	電子線 (1MeV)	20.0	608.7	5.8	2.5	0.2
		40.0	704.2	14.8	3.5	0.3
		60.0	515.2	18.5	2.6	0.3
		80.0	567.8	22.8	2.5	0.3
		100.0	638.3	24.0	2.9	0.5
	ガンマ線	14.1	520.4	23.7	2.5	0.4
		39.8	541.9	17.3	2.4	0.1
		60.0	617.3	22.9	2.8	0.5
		78.7	786.4	18.2	3.6	0.6
		92.8	636.7	39.3	3.1	0.5

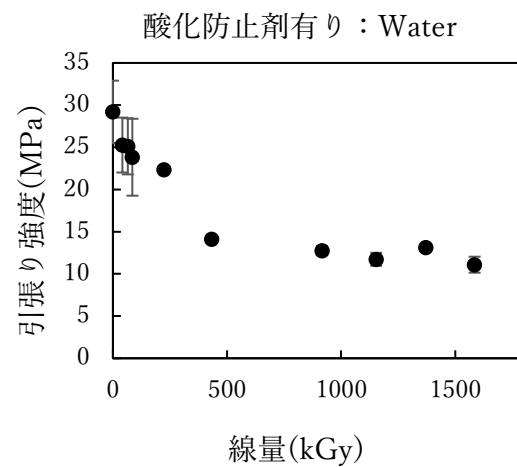
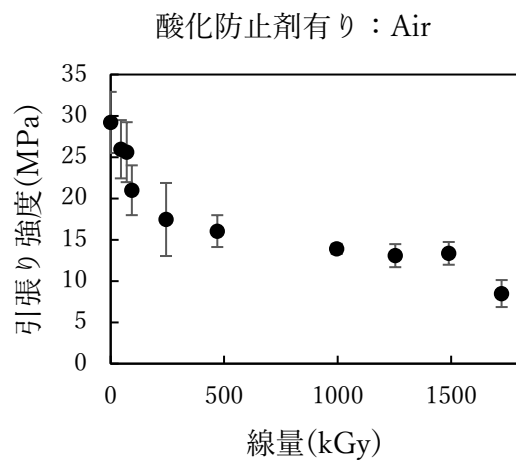
【第5章 高線領域におけるポリエチレンの特性変化に関するデータ取得】

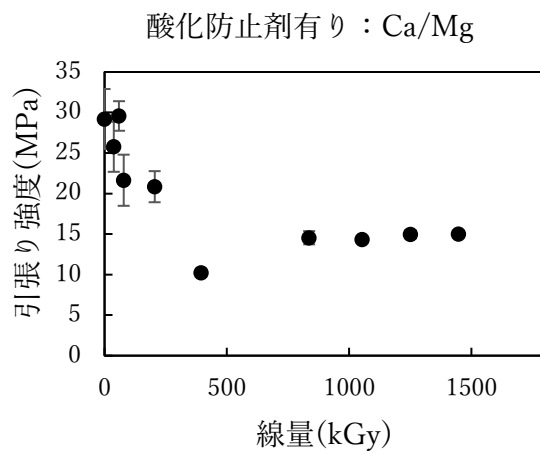
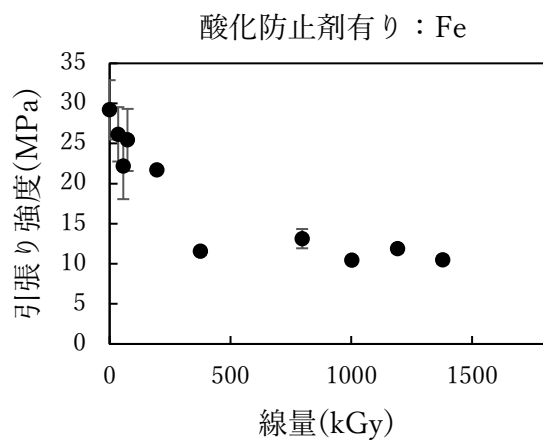
■引張り試験結果

・引張り強度:酸化防止剤無し

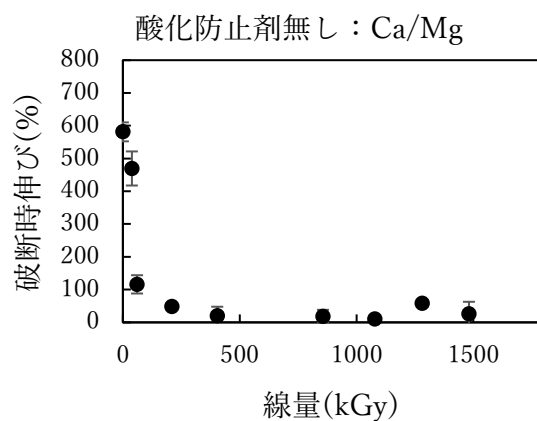
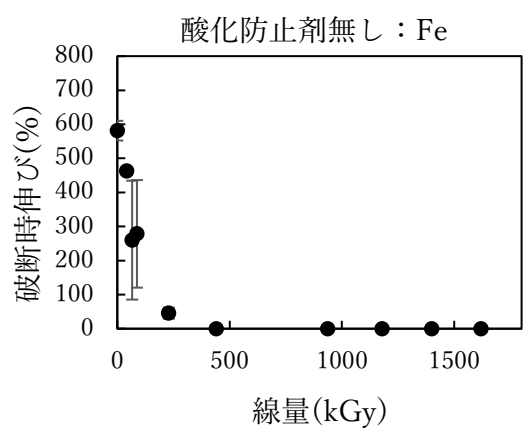
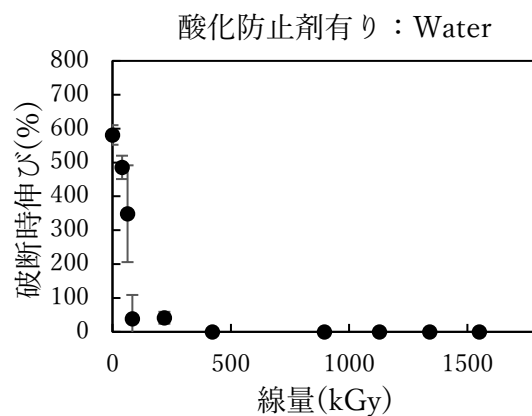
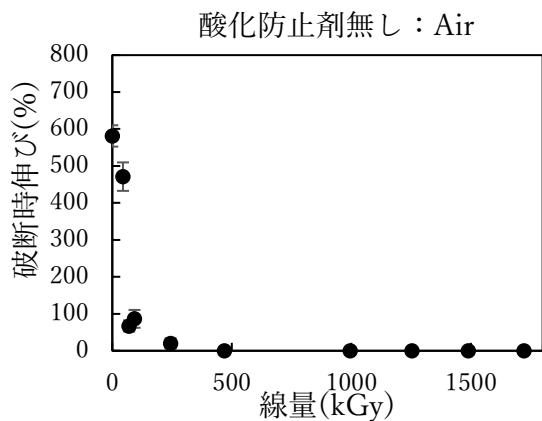


・引張り強度:酸化防止剤有り

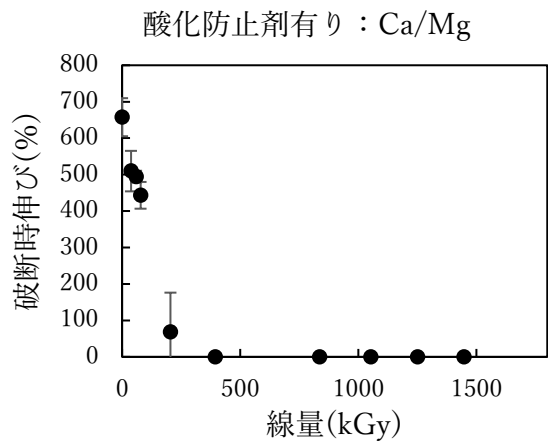
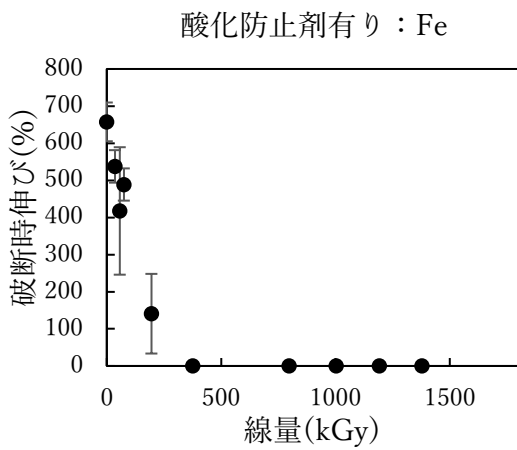
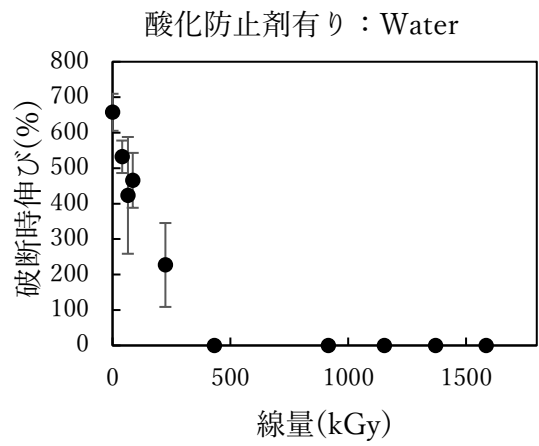
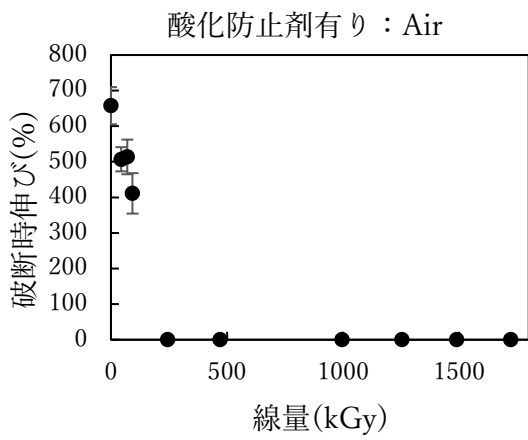




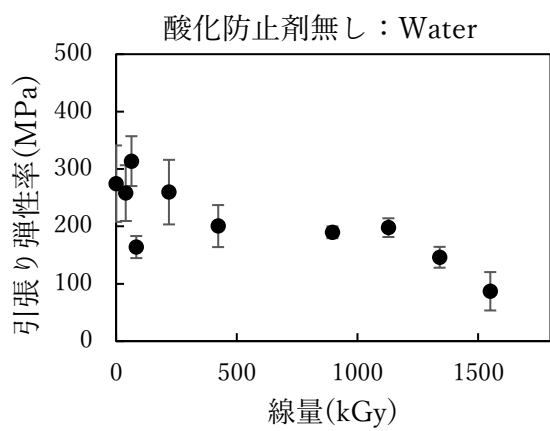
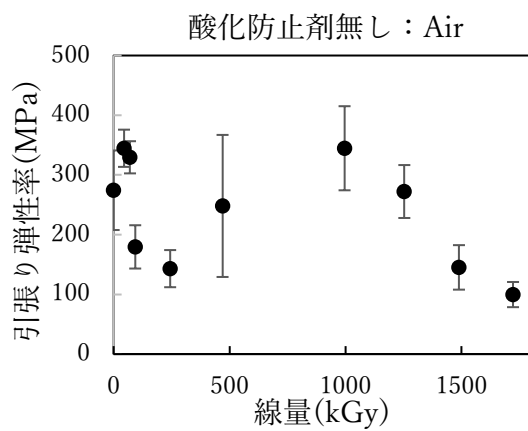
・破断時伸び：酸化防止剤無し

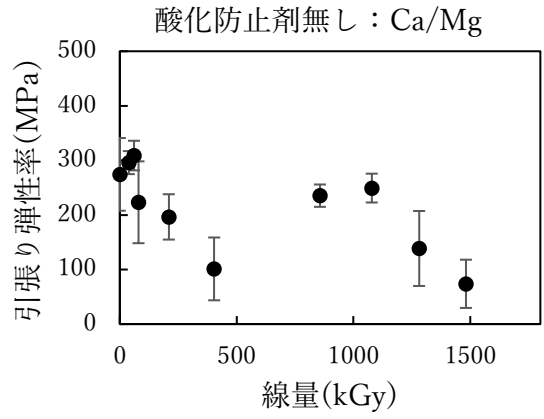
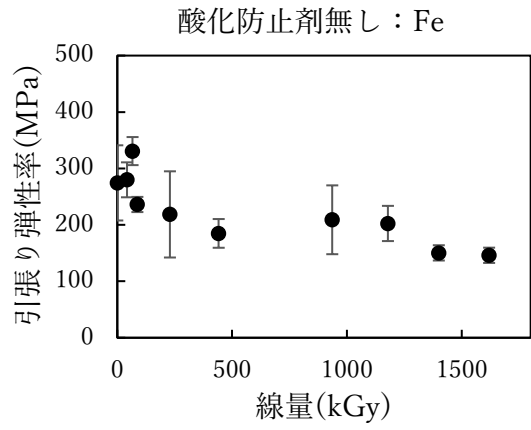


・破断時伸び:酸化防止剤有り

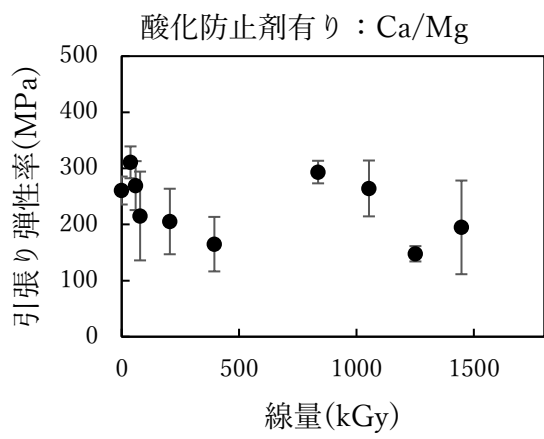
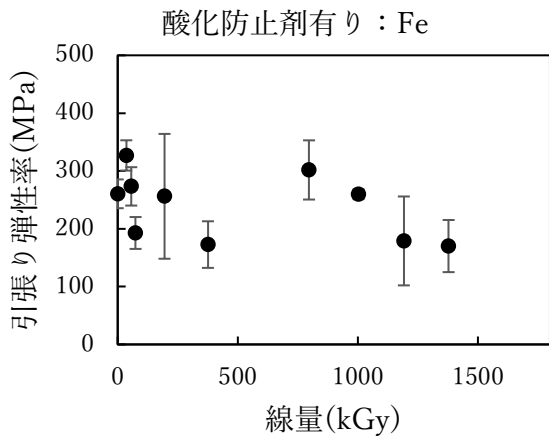
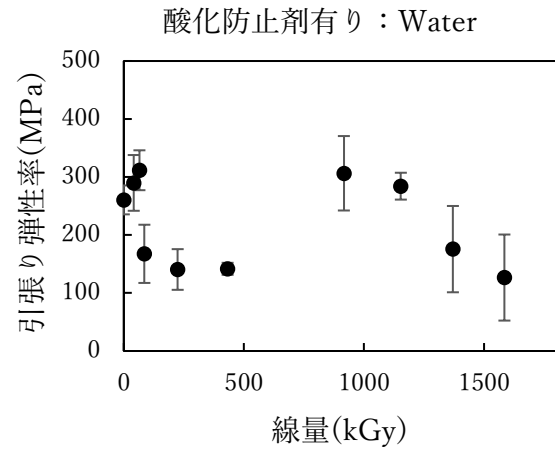
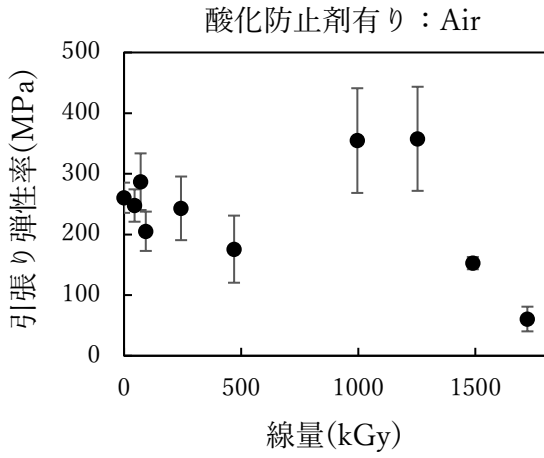


・引張り弾性率:酸化防止剤無し





・引張り弾性率：酸化防止剤有り

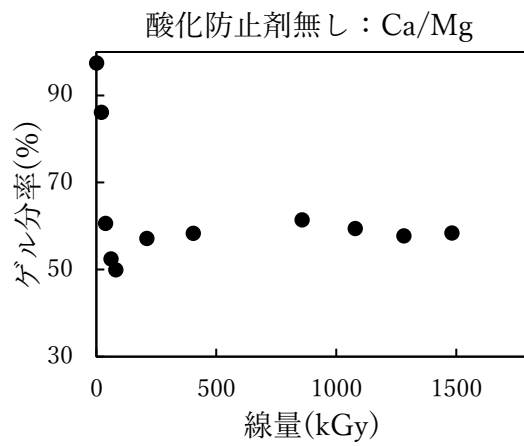
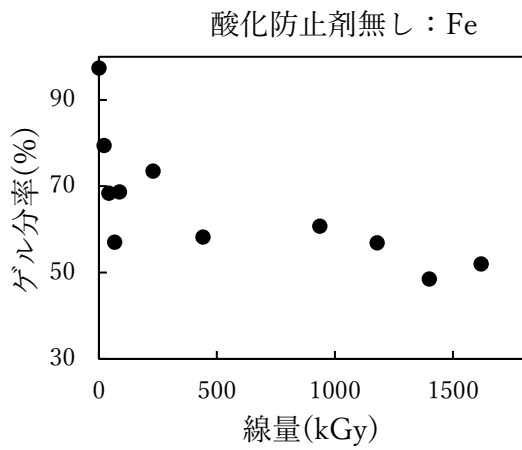
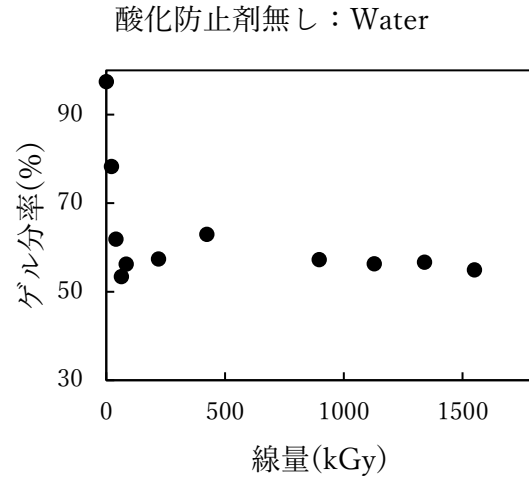
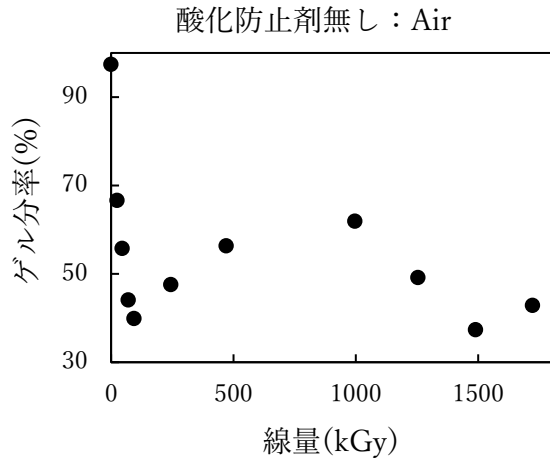


引張り試験結果:酸化防止剤有り

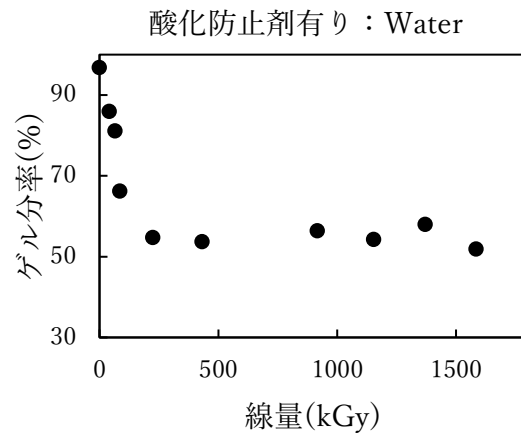
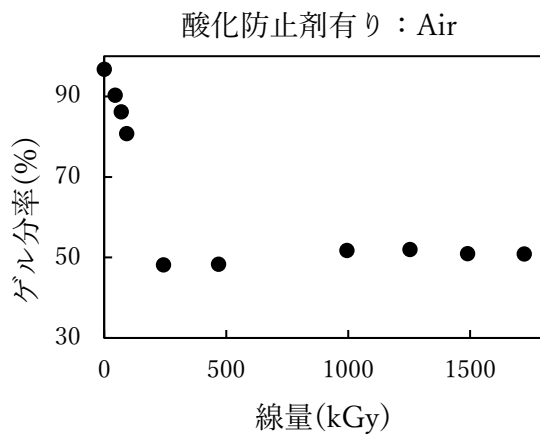
酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	破断時伸び(%)		引張り強度(MPa)		引張り弾性率(MPa)		
			平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	
		初期値	657.5	52.2	29.2	3.7	260.5	24.9	
	Air	45	507.0	34.0	26.0	3.5	247.7	26.7	
		71	513.6	48.7	25.6	3.6	287.0	46.7	
		93	411.2	56.8	21.0	3.0	205.2	32.4	
		244	0.0	0.0	17.5	4.4	243.0	52.5	
		470	0.0	0.0	16.0	1.9	175.7	55.3	
		996	0.0	0.0	13.9	0.6	354.8	86.3	
		1254	0.0	0.0	13.1	1.4	357.7	85.8	
		1489	0.0	0.0	13.4	1.4	152.7	10.1	
		1723	0.0	0.0	8.5	1.6	60.6	20.3	
			41	532.0	45.8	25.3	3.3	289.8	48.1
	Water	65	423.2	164.6	25.1	3.3	311.6	34.4	
		86	465.6	77.4	23.8	4.6	167.5	50.2	
		224	227.0	118.3	22.3	0.3	140.5	35.1	
		432	0.0	0.0	14.1	0.4	141.7	10.4	
		916	0.0	0.0	12.8	0.6	306.4	64.2	
		1153	0.0	0.0	11.7	0.8	284.2	23.2	
		1370	0.0	0.0	13.1	0.4	175.6	74.4	
		1585	0.0	0.0	11.1	0.9	126.6	74.2	
			36	537.6	43.8	26.1	3.4	326.9	26.2
			56	417.6	171.7	22.2	4.1	273.4	33.2
	Fe	74	488.8	43.4	25.5	3.9	192.8	27.6	
		195	140.8	107.3	21.7	0.4	256.2	107.9	
		376	0.0	0.0	11.6	0.4	172.7	40.3	
		797	0.0	0.0	13.1	1.2	301.8	51.2	
		1003	0.0	0.0	10.4	0.4	259.8	8.5	
		1192	0.0	0.0	11.9	0.5	179.0	76.9	
		1378	0.0	0.0	10.5	0.5	170.1	45.1	
			38	509.6	55.5	25.8	3.1	310.8	28.4
			59	494.4	16.1	29.6	1.8	269.3	43.6
			78	443.2	36.7	21.6	3.2	215.1	79.1
	Ca/Mg	205	68.0	108.2	20.8	1.9	205.3	58.4	
		395	0.0	0.0	10.2	0.5	164.9	48.6	
		837	0.0	0.0	14.6	0.8	293.4	20.1	
		1053	0.0	0.0	14.3	0.2	264.2	49.8	
		1251	0.0	0.0	15.0	0.5	147.8	13.7	
			1447	0.0	0.0	15.0	0.4	194.8	83.5

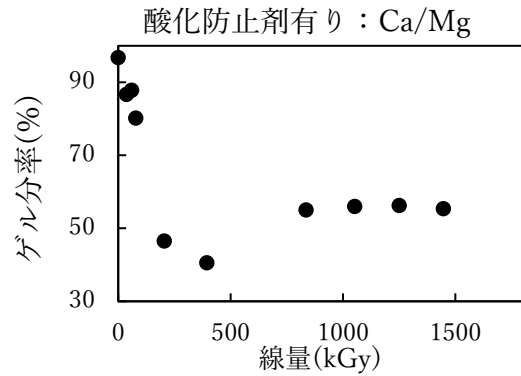
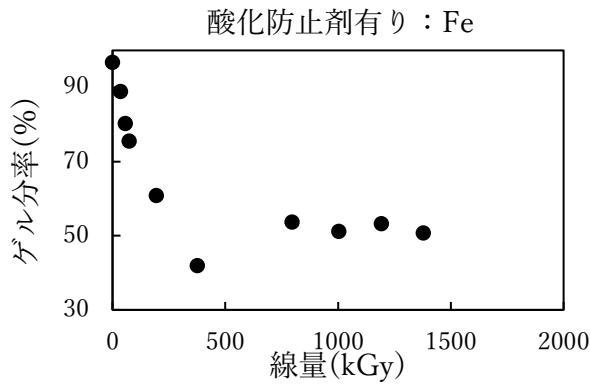
■ゲル分率測定結果

・酸化防止剤無し



・酸化防止剤有り





ゲル分率測定結果:酸化防止剤無し

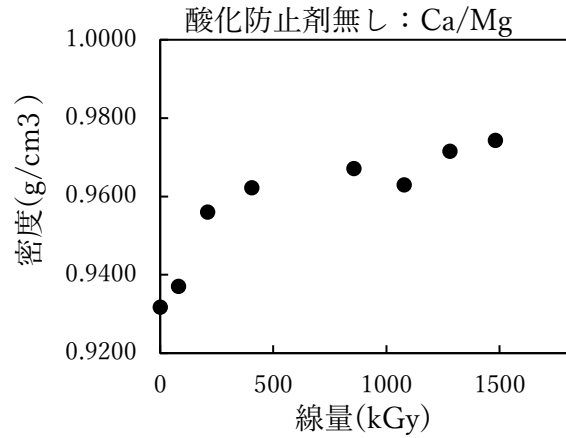
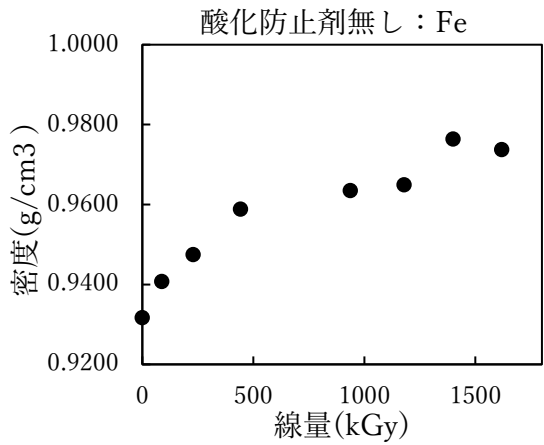
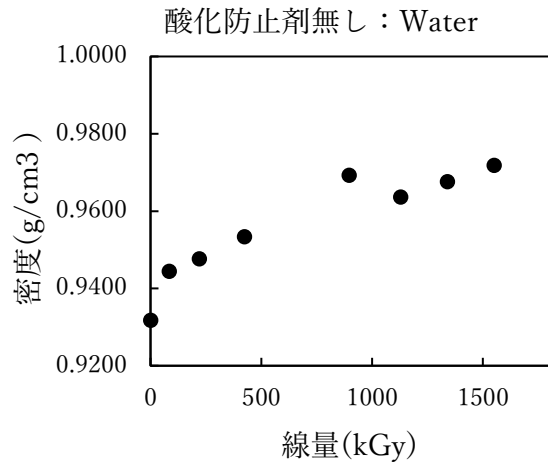
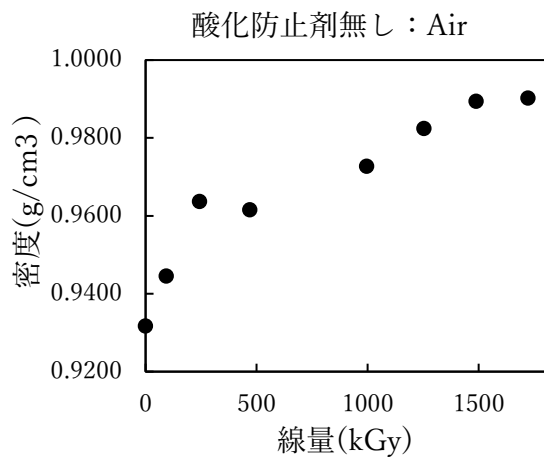
酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	ゲル分率(%)
0	初期値		97.4
	Air	23.6	66.7
		44.8	55.8
		70.6	44.2
		93.0	39.9
		243.8	47.6
		469.7	56.4
		995.9	61.9
		1253.8	49.2
		1489.4	37.4
		1722.5	42.9
	Water	21.2	78.3
		40.3	61.9
		63.6	53.4
		83.7	56.2
		219.4	57.4
		422.7	62.9
		896.3	57.2
		1128.4	56.3
		1340.5	56.6
		1550.3	54.9
	Fe	22.2	79.4
		42.1	68.4
		66.4	57.0
		87.4	68.7
		229.1	73.5
		441.5	58.3
		936.2	60.8
		1178.5	56.9
		1400.1	48.5
		1619.2	52.0
	Ca/Mg	20.3	86.2
		38.5	60.6
60.7		52.5	
80.0		49.9	
209.6		57.2	
403.9		58.3	
856.5		61.4	
1078.2		59.5	
1280.9		57.8	
1481.4		58.4	

ゲル分率測定結果:酸化防止剤有り

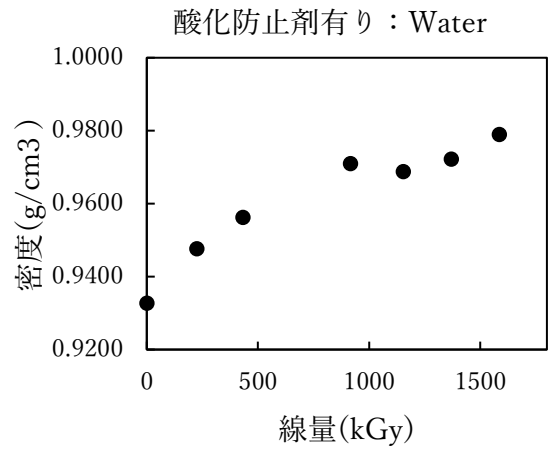
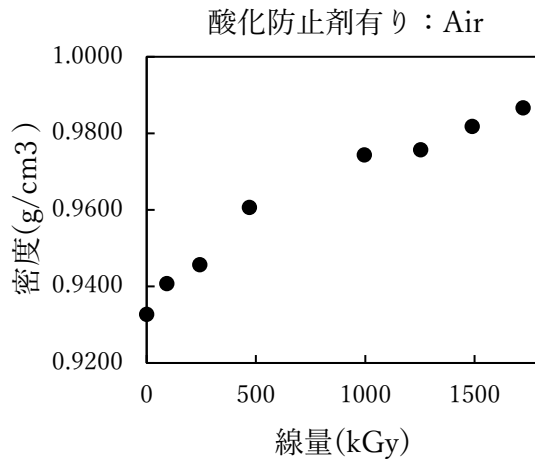
酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	ゲル分率(%)
1		初期値	96.8
	Air	44.8	90.3
		70.6	86.2
		93.0	80.8
		243.8	48.2
		469.7	48.4
		995.9	51.8
		1253.8	52.0
		1489.4	51.0
		1722.5	50.9
	Water	41.2	86.0
		65.0	81.1
		85.6	66.2
		224.3	54.7
		432.1	53.7
		916.3	56.4
		1153.5	54.2
		1370.3	58.0
	1584.7	51.9	
	Fe	35.8	88.9
		56.5	80.3
		74.4	75.5
		195.0	60.8
		375.8	41.9
		796.7	53.7
		1003.0	51.2
		1191.5	53.3
	1378.0	50.7	
	Ca/Mg	37.6	86.7
		59.3	87.8
		78.1	80.2
		204.8	46.5
		394.5	40.5
836.6		55.0	
1053.2		55.9	
1251.1		56.2	
1446.9	55.4		

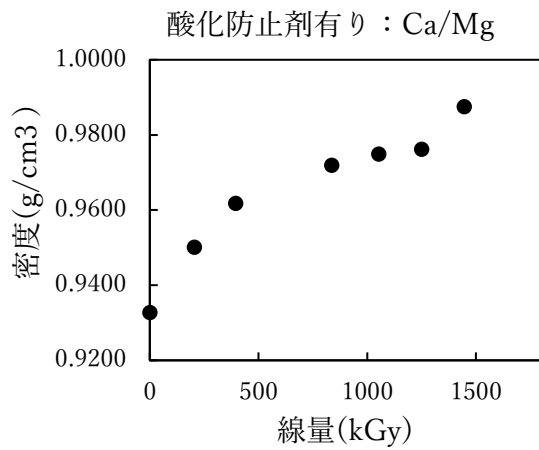
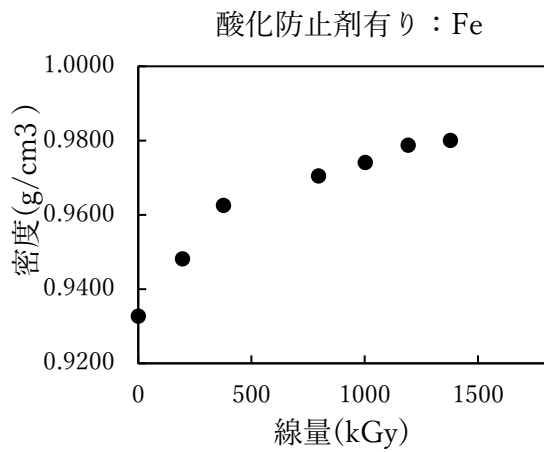
■ 密度測定結果

・酸化防止剤無し



・酸化防止剤有り





密度測定結果:酸化防止剤無し

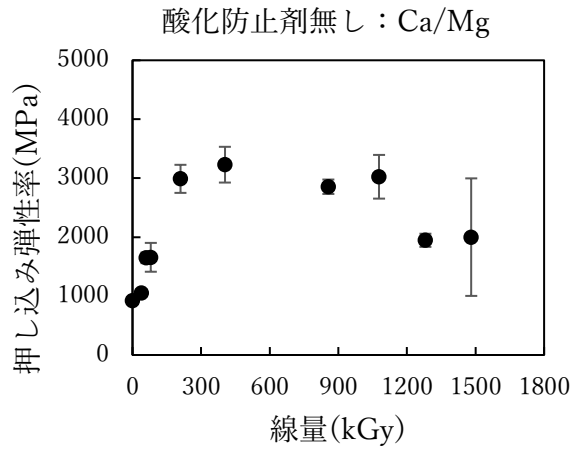
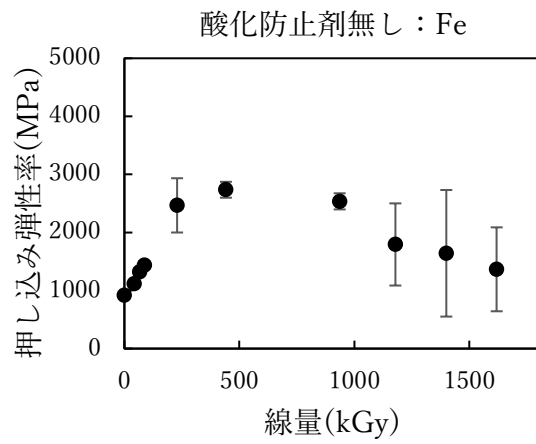
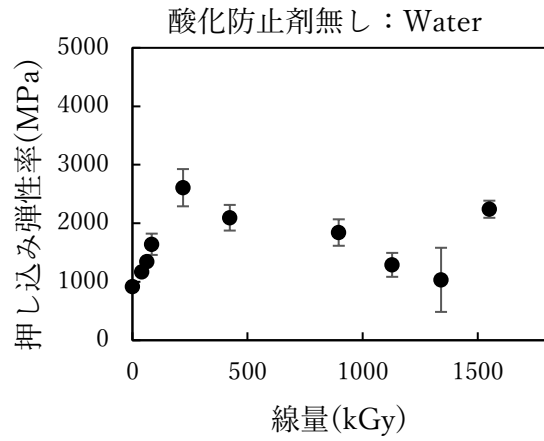
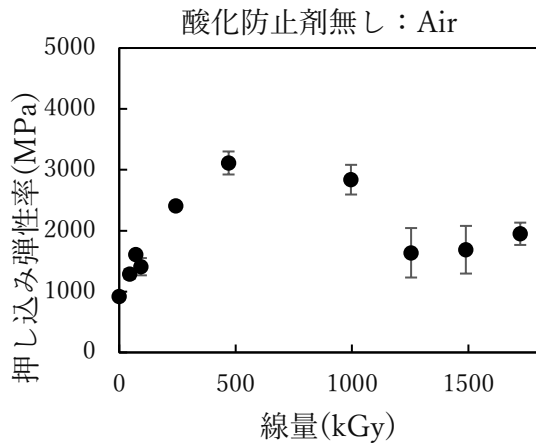
酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	密度(g/cm ³)
0	初期値		0.9317
	Air	93.0	0.9445
		243.8	0.9637
		470.0	0.9615
		995.9	0.9727
		1253.8	0.9824
		1489.0	0.9894
		1722.5	0.9902
	Water	83.7	0.9444
		219.4	0.9476
		423.0	0.9533
		896.3	0.9692
		1128.4	0.9636
		1340.0	0.9676
	Fe	1550.3	0.9718
		87.4	0.9408
		229.1	0.9475
		442.0	0.9589
		936.2	0.9635
	Ca/Mg	1178.5	0.9650
		1400.0	0.9764
		1619.2	0.9738
		80.0	0.9370
		209.6	0.9560
404.0		0.9622	
856.5		0.9671	
1078.2	0.9629		
1281.0	0.9715		
1481.4	0.9743		

密度測定結果:酸化防止剤有り

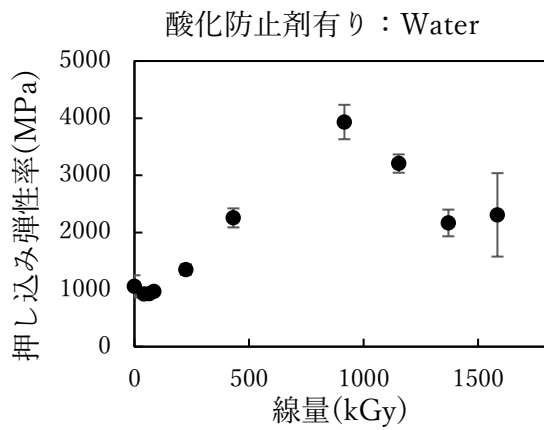
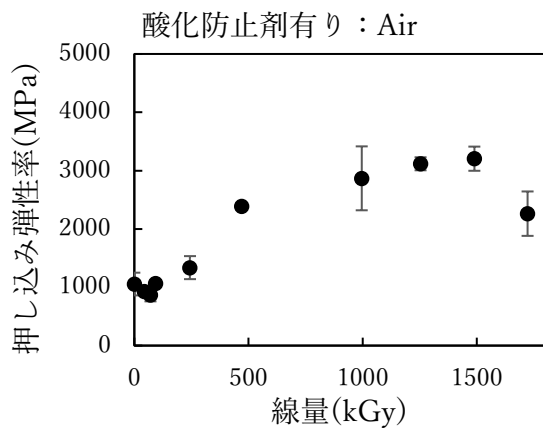
酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	密度(g/cm ³)
1	初期値		0.9327
	Air	93.0	0.9408
		243.8	0.9457
		470.0	0.9607
		995.9	0.9744
		1253.8	0.9757
		1489.0	0.9818
		1722.5	0.9867
	Water	224.3	0.9476
		432.0	0.9562
		916.3	0.9710
		1153.5	0.9688
		1370.0	0.9722
		1584.7	0.9790
	Fe	195.0	0.9482
		376.0	0.9626
		796.7	0.9705
		1003.0	0.9741
		1192.0	0.9788
		1378.0	0.9801
	Ca/Mg	204.8	0.9501
		395.0	0.9617
		836.6	0.9719
		1053.2	0.9749
1251.0		0.9761	
1446.9		0.9875	

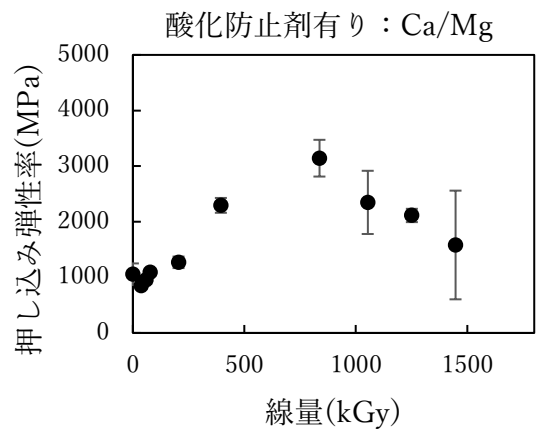
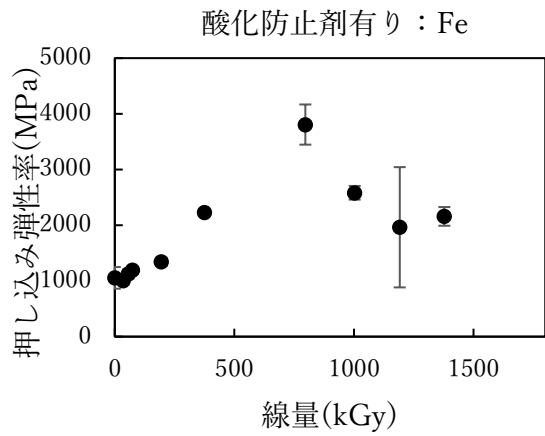
■ ダイナミック硬度特性測定結果

・押し込み弾性率:酸化防止剤無し

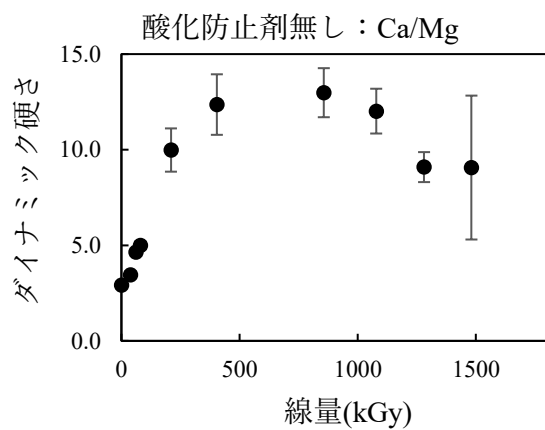
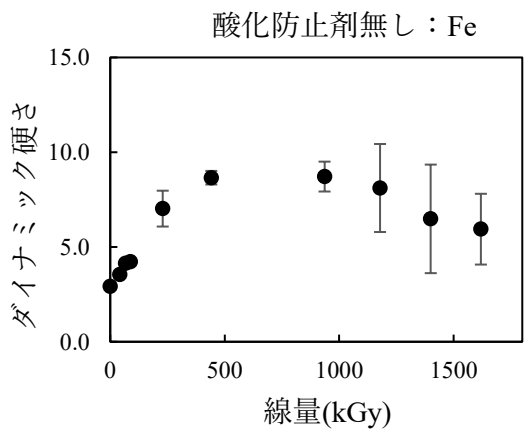
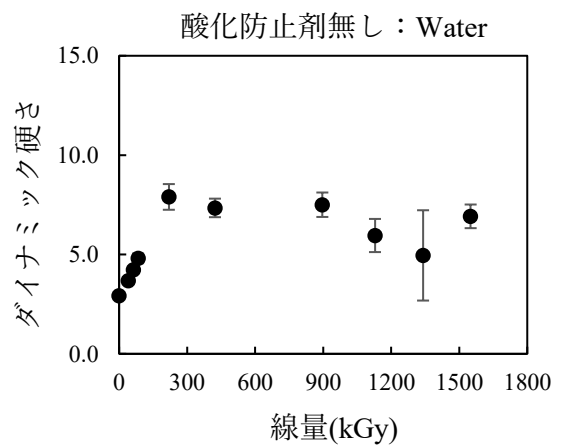
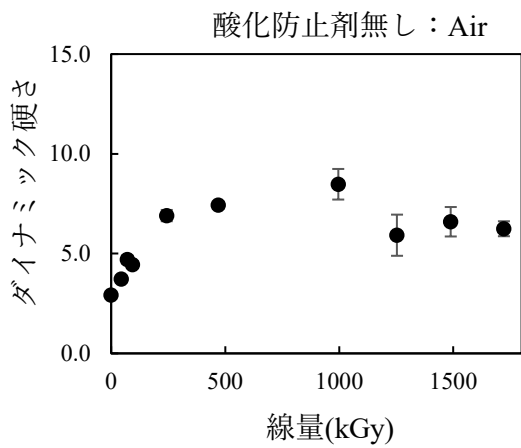


・押し込み弾性率:酸化防止剤有り

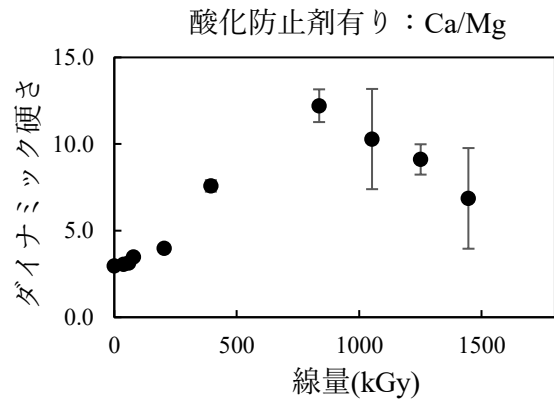
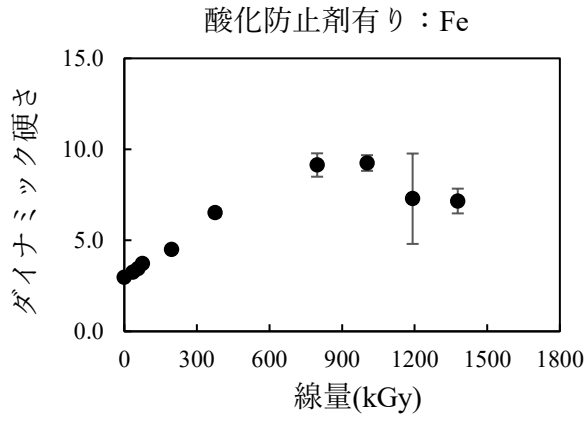
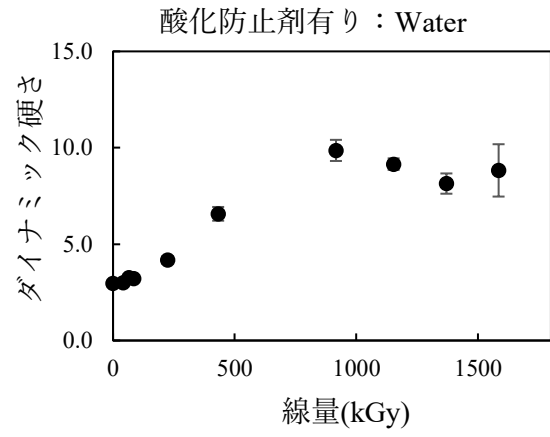
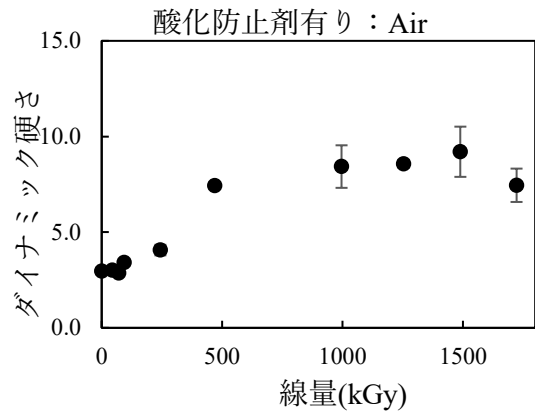




・ダイナミック硬さ：酸化防止剤無し



・ダイナミック硬さ:酸化防止剤有り



ダイナミック硬度特性測定結果:酸化防止剤無し

酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	押し込み弾性率(MPa)		ダイナミック硬さ	
			平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
0		初期値	919.3	46.3	2.9	0.13
	Air	45	1289.7	80.9	3.7	0.11
		71	1610.9	35.0	4.7	0.21
		93	1408.6	141.6	4.4	0.16
		244	2406.6	53.5	6.9	0.28
		470	3112.0	189.1	7.4	0.17
		996	2837.9	243.9	8.5	0.77
		1254	1637.1	406.2	5.9	1.03
		1489	1687.1	391.4	6.6	0.74
		1723	1949.0	183.1	6.2	0.37
	Water	40	1168.5	13.8	3.7	0.03
		64	1342.5	23.7	4.2	0.07
		84	1641.1	182.0	4.8	0.24
		219	2608.3	318.5	7.9	0.65
		423	2094.8	219.3	7.3	0.47
		896	1841.5	226.2	7.5	0.62
		1128	1289.1	204.5	6.0	0.83
		1340	1033.0	548.4	5.0	2.27
	1550	2240.1	146.2	6.9	0.59	
	Fe	42	1118.4	24.2	3.6	0.04
		66	1320.3	59.1	4.1	0.12
		87	1434.6	60.6	4.2	0.09
		229	2466.8	467.4	7.0	0.95
		442	2735.6	136.8	8.7	0.36
		936	2536.1	139.0	8.7	0.79
		1179	1793.7	707.5	8.1	2.32
		1400	1641.5	1090.1	6.5	2.86
	1619	1365.7	722.8	5.9	1.87	
	Ca/Mg	38	1053.3	56.0	3.5	0.16
		61	1647.9	89.7	4.6	0.11
		80	1657.3	244.5	5.0	0.21
		210	2988.6	237.9	10.0	1.13
404		3228.8	303.2	12.4	1.58	
856		2854.5	122.3	13.0	1.28	
1078		3024.0	370.7	12.0	1.17	
1281		1946.1	111.6	9.1	0.78	
1481	1999.5	997.1	9.1	3.76		

ダイナミック硬度特性測定結果:酸化防止剤有り

酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	実線量(kGy)	弾性率(MPa)		ダイナミック硬さ	
			平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
1		初期値	1055.4	194.6	3.0	0.12
	Air	44.8	928.8	15.9	3.0	0.06
		70.6	865.6	107.1	2.9	0.15
		93.0	1065.0	20.1	3.4	0.10
		243.8	1336.8	197.5	4.1	0.27
		469.7	2385.8	46.0	7.4	0.16
		995.9	2867.9	548.0	8.4	1.11
		1253.8	3117.4	111.6	8.6	0.21
		1489.4	3204.6	207.1	9.2	1.31
		1722.5	2262.1	380.8	7.5	0.87
	Water	41.2	919.0	59.1	3.0	0.11
		65.0	925.9	43.9	3.3	0.11
		85.6	968.3	21.9	3.2	0.07
		224.3	1350.0	91.4	4.2	0.20
		432.1	2253.9	166.6	6.6	0.36
		916.3	3932.5	301.5	9.9	0.55
		1153.5	3205.3	160.5	9.2	0.30
		1370.3	2166.0	233.7	8.1	0.53
		1584.7	2307.3	730.3	8.8	1.36
	Fe	35.8	1005.0	38.0	3.3	0.09
		56.5	1125.8	82.8	3.4	0.11
		74.4	1194.6	57.7	3.7	0.09
		195.0	1345.4	72.2	4.5	0.10
		375.8	2228.8	50.5	6.5	0.24
		796.7	3807.8	360.6	9.1	0.64
		1003.0	2583.1	122.5	9.2	0.43
		1191.5	1963.8	1079.4	7.3	2.48
		1378.0	2159.1	167.8	7.2	0.68
	Ca/Mg	37.6	848.9	53.7	3.0	0.18
		59.3	950.6	70.7	3.1	0.15
		78.1	1090.0	9.0	3.5	0.06
		204.8	1270.1	103.4	4.0	0.09
		394.5	2294.1	133.4	7.6	0.33
		836.6	3142.5	330.2	12.2	0.94
		1053.2	2347.5	568.4	10.3	2.89
		1251.1	2112.4	119.6	9.1	0.88
1446.9		1581.6	977.2	6.9	2.91	

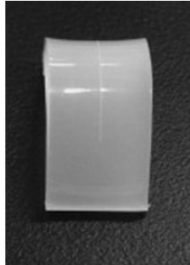
■ ストレスクラッキング試験結果

・酸化防止剤無し

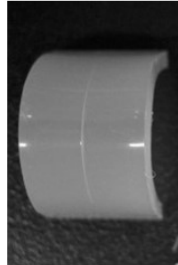
Air



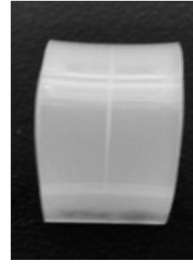
48kGy



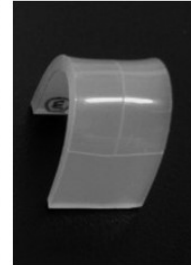
72kGy



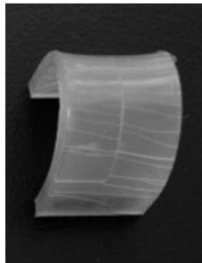
129kGy



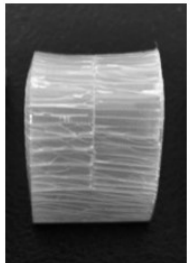
178kGy



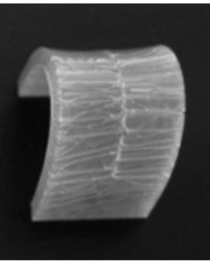
375kGy



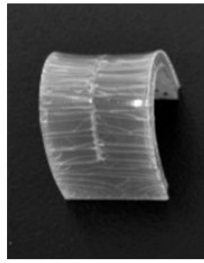
511kGy



1254kGy

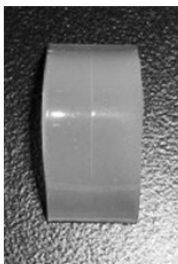


1489kGy

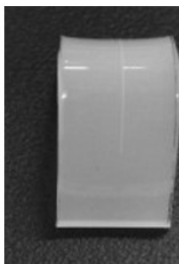


1723kGy

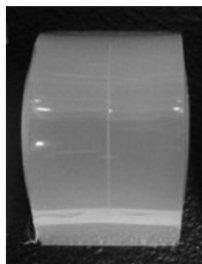
Water



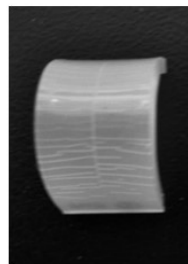
43kGy



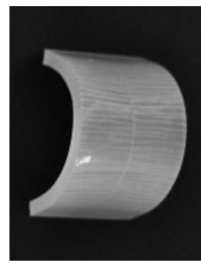
65kGy



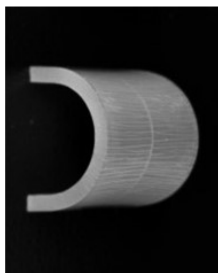
116kGy



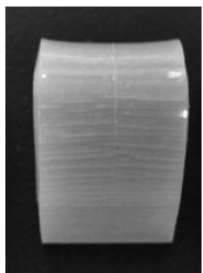
161kGy



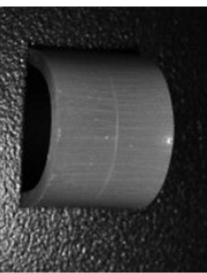
338kGy



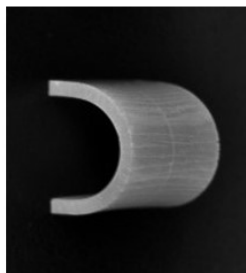
460kGy



1128kGy

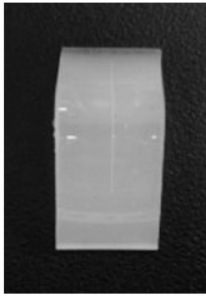


1340kGy

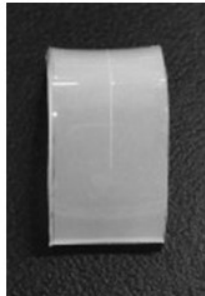


1550kGy

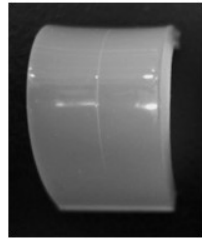
Fe



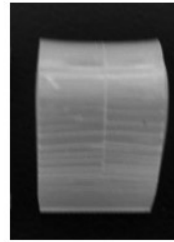
45kGy



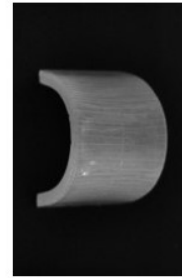
68kGy



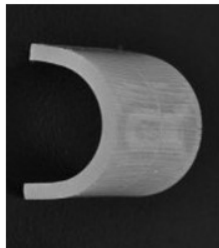
121kGy



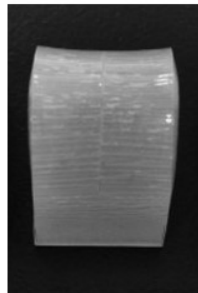
168kGy



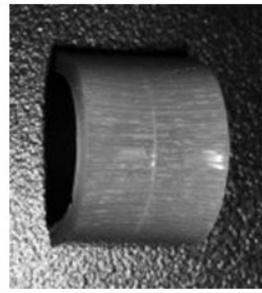
353kGy



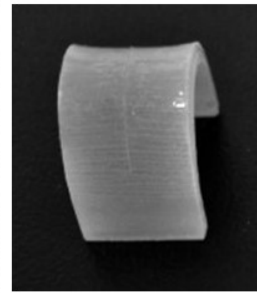
481kGy



1179kGy

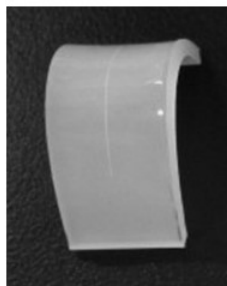


1400kGy

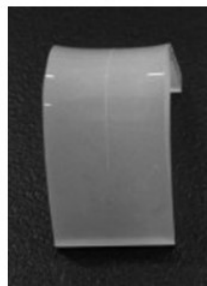


1619kGy

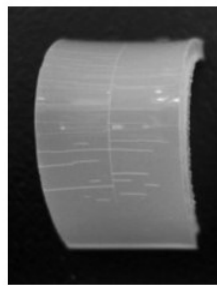
Ca/Mg



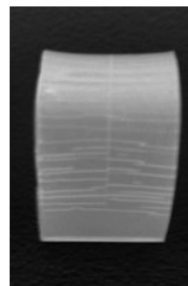
41kGy



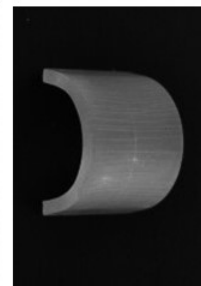
62kGy



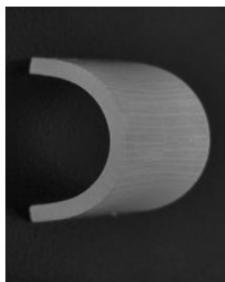
111kGy



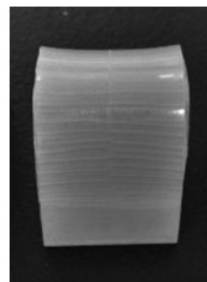
153kGy



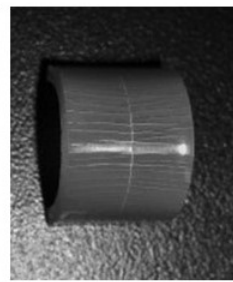
323kGy



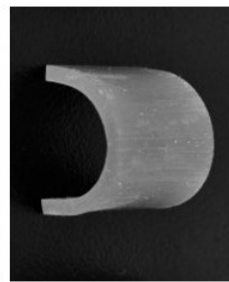
440kGy



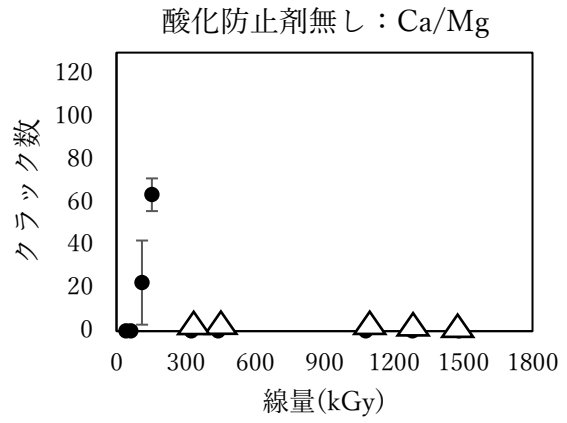
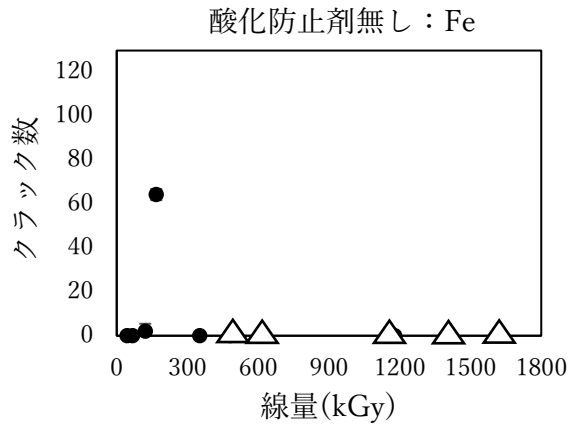
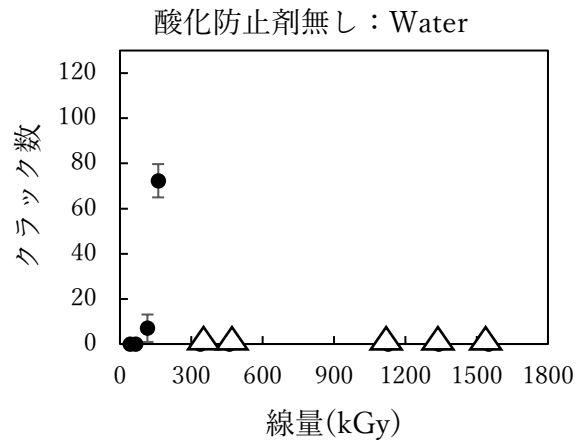
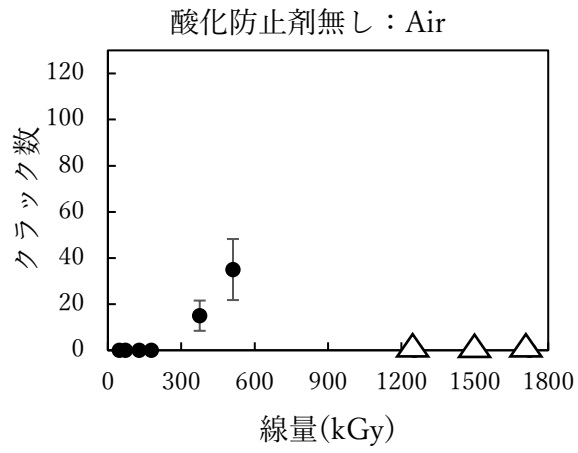
1078kGy



1281kGy



1481kGy



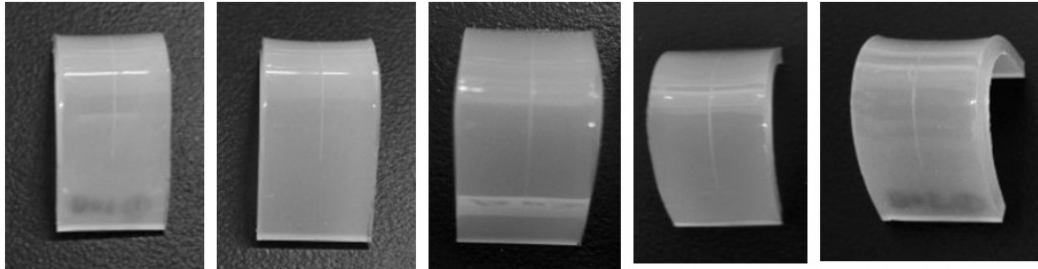
※図中、△はクラックが多数発生したため計測不可能であった試料

ストレスクラッキング試験結果:酸化防止剤無し

酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	クラック数	
			平均値	標準偏差
0	Air	48	0.0	0.0
		72	0.0	0.0
		129	0.0	0.0
		178	0.0	0.0
		375	15.0	6.6
		511	35.0	13.2
		1254	計測不能	
		1489	計測不能	
		1723	計測不能	
	Water	43	0.0	0.0
		65	0.0	0.0
		116	7.0	6.1
		161	72.3	7.4
		338	計測不能	
		460	計測不能	
		1128	計測不能	
		1340	計測不能	
	1550	計測不能		
	Fe	45	0.0	0.0
		68	0.0	0.0
		121	2.0	3.5
		168	64.3	2.5
		353	計測不能	
		481	計測不能	
		1179	計測不能	
		1400	計測不能	
	1619	計測不能		
	Ca/Mg	41	0.0	0.0
		62	0.0	0.0
		111	22.7	19.6
		153	63.7	7.6
		323	計測不能	
		440	計測不能	
1078		計測不能		
1281		計測不能		
1481	計測不能			

・酸化防止剤有り

Air



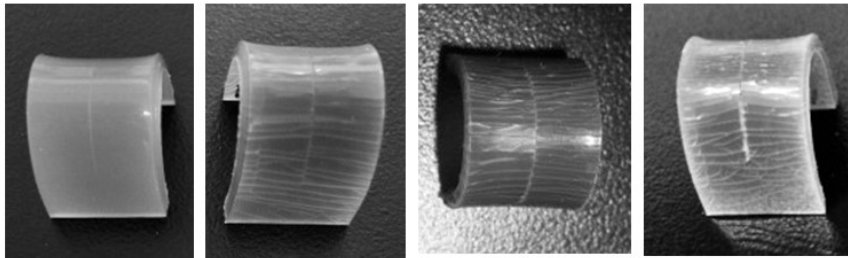
48kGy

72kGy

129kGy

178kGy

375kGy



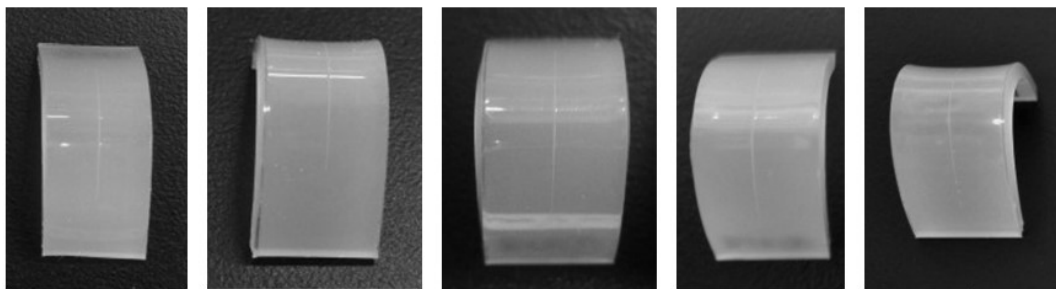
511kGy

1254kGy

1489kGy

1723kGy

Water



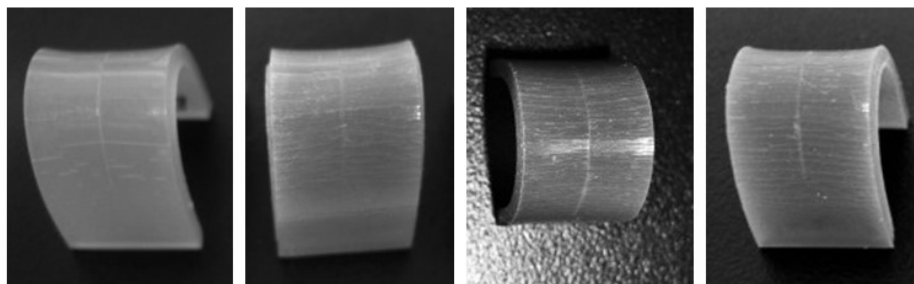
44kGy

66kGy

118kGy

164kGy

345kGy



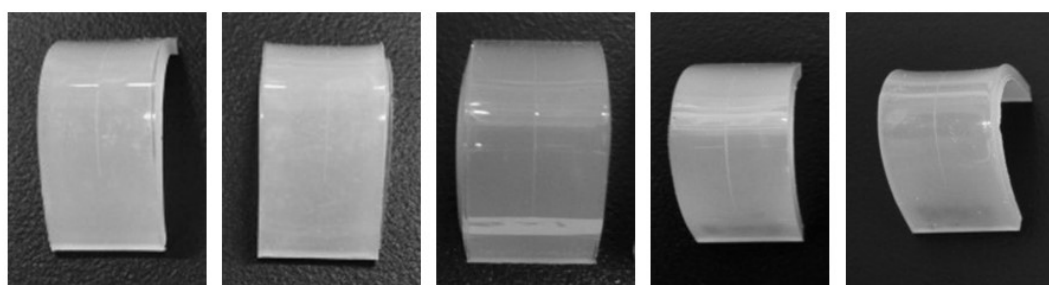
470kGy

1153kGy

1370kGy

1585kGy

Fe



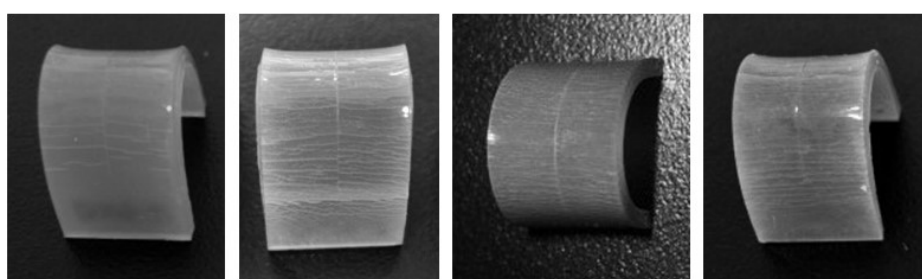
38kGy

58kGy

103kGy

143kGy

300kGy



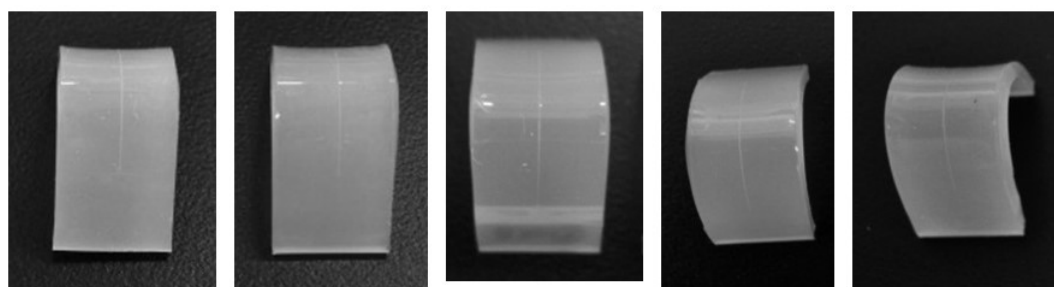
409kGy

1003kGy

1192kGy

1378kGy

Ca/Mg



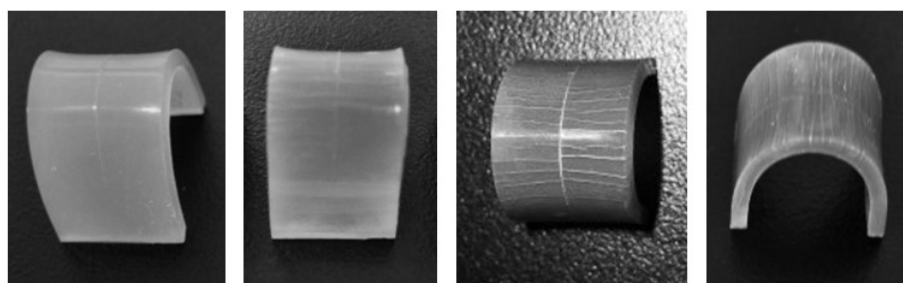
40kGy

61kGy

108kGy

150kGy

315kGy

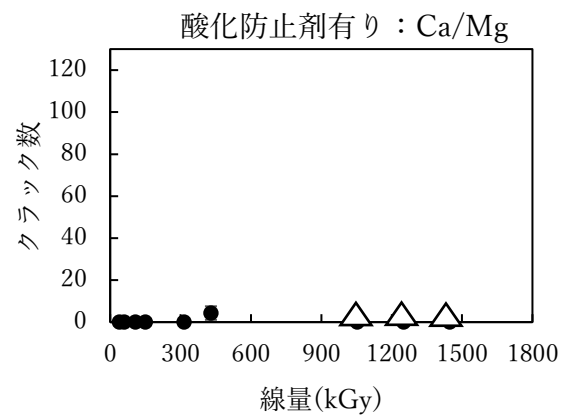
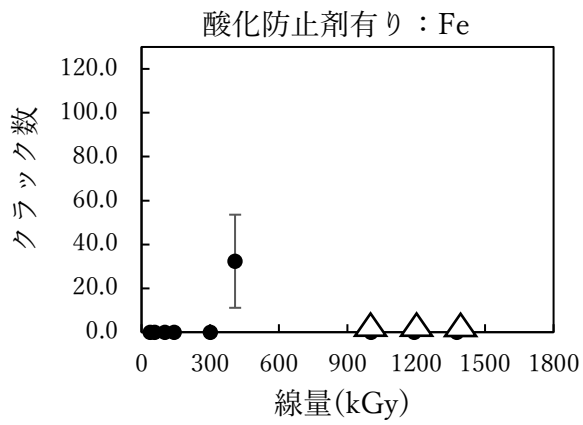
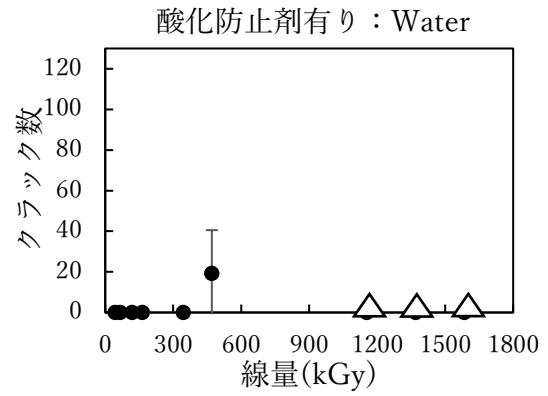
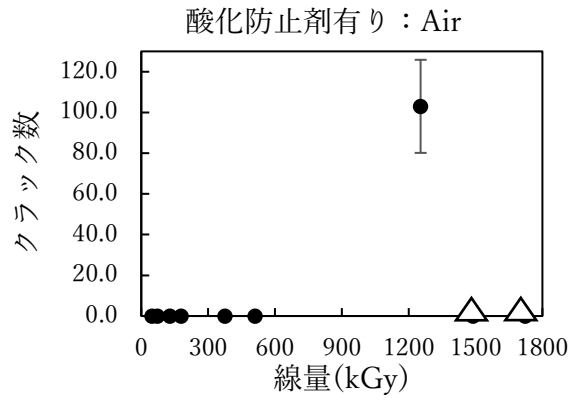


429kGy

1053kGy

1251kGy

1447kGy



※図中、△はクラックが多数発生したため計測不可能であった試料

ストレスクラッキング試験結果:酸化防止剤有り

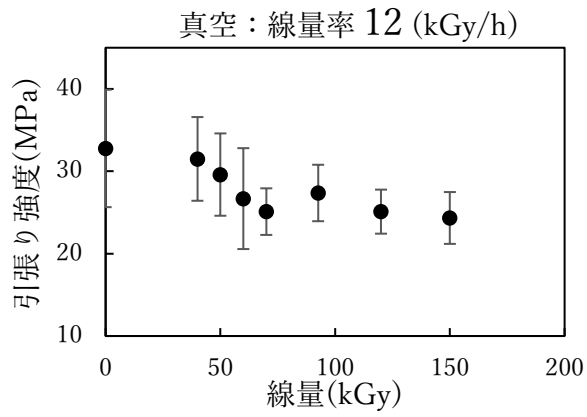
酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量(kGy)	クラック数	
			平均値	標準偏差
1	Air	48	0.0	0.0
		72	0.0	0.0
		129	0.0	0.0
		178	0.0	0.0
		375	0.0	0.0
		511	0.0	0.0
		1254	103.0	22.9
		1489	計測不能	
		1723	計測不能	
	Water	44	0.0	0.0
		66	0.0	0.0
		118	0.0	0.0
		164	0.0	0.0
		345	0.0	0.0
		470	19.3	26.1
		1153	計測不能	
		1370	計測不能	
		1585	計測不能	
	Fe	38	0.0	0.0
		58	0.0	0.0
		103	0.0	0.0
		143	0.0	0.0
		300	0.0	0.0
		409	32.3	21.2
		1003	計測不能	
		1192	計測不能	
		1378	計測不能	
	Ca/Mg	40	0.0	0.0
		61	0.0	0.0
		108	0.0	0.0
		150	0.0	0.0
		315	0.0	0.0
		429	4.3	3.2
		1053	計測不能	
		1251	計測不能	
		1447	計測不能	

【第6章 非酸化領域を含むポリエチレンの特性変化に関するデータ取得】

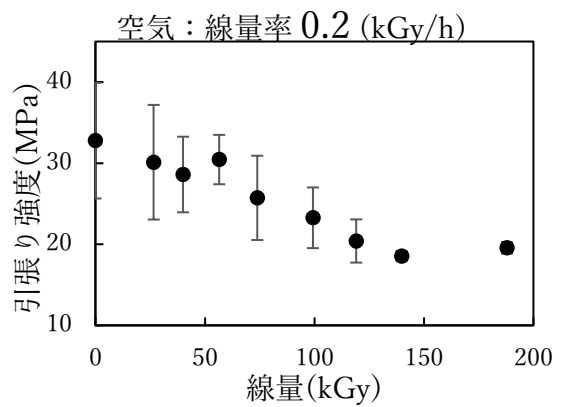
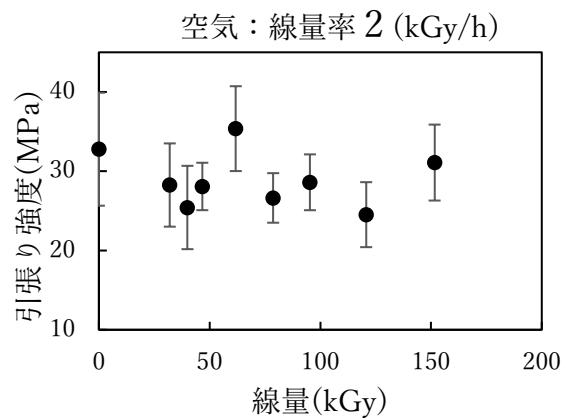
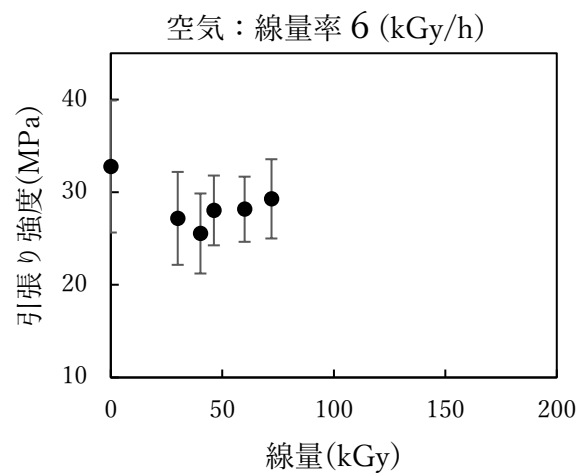
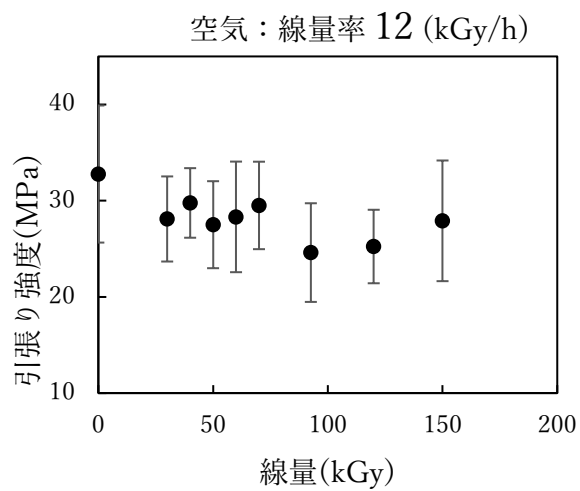
■引張り試験結果

・引張り強度

〈真空〉

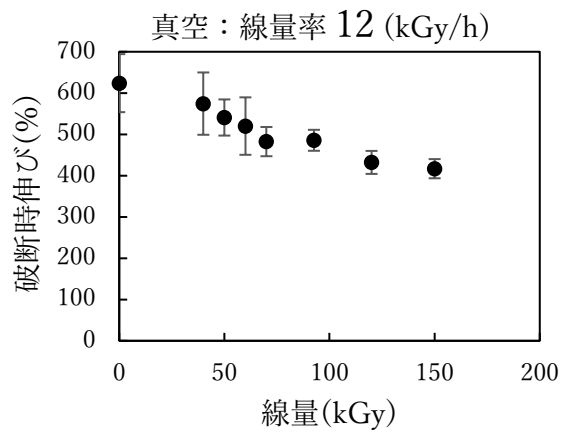


〈空気〉

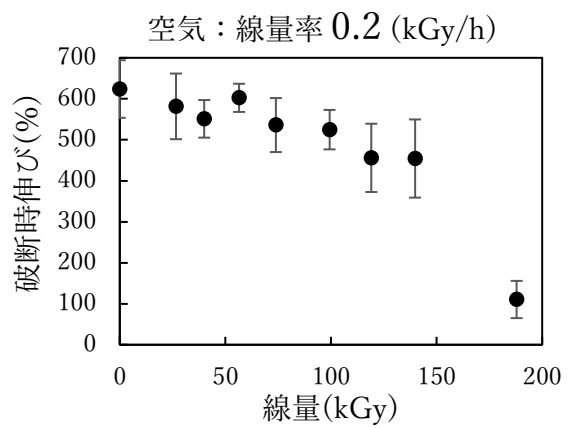
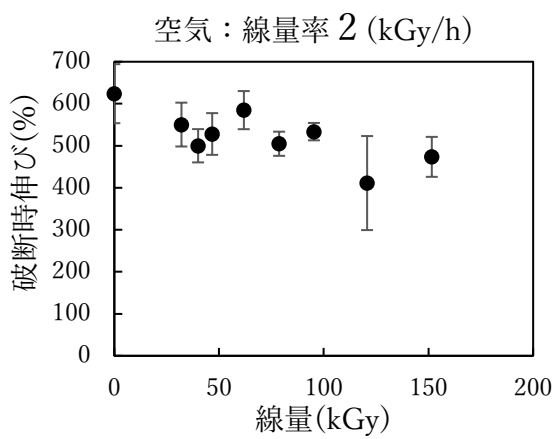
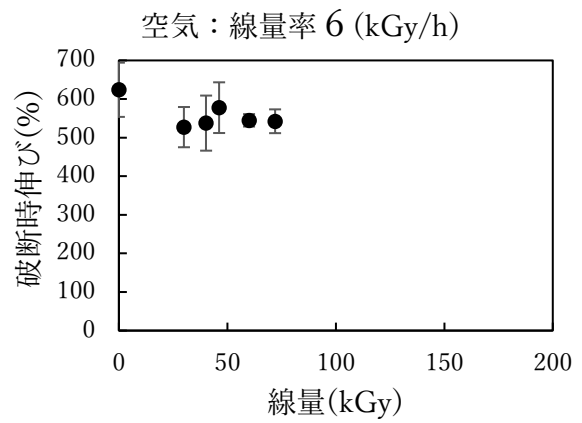
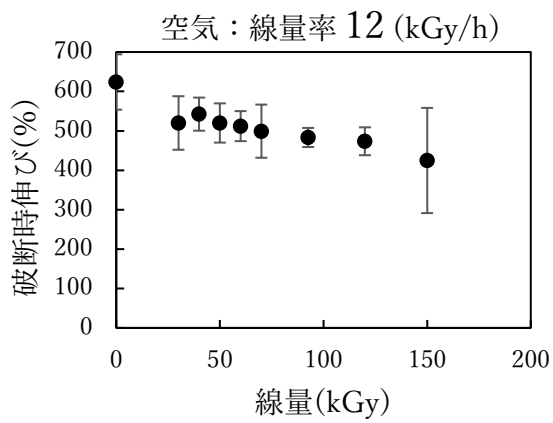


・破断時伸び

〈真空〉

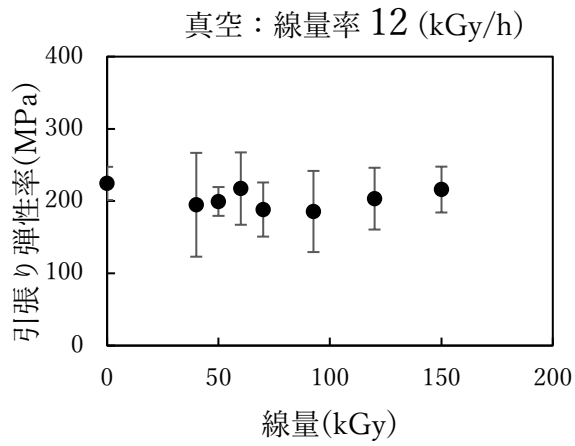


〈空気〉

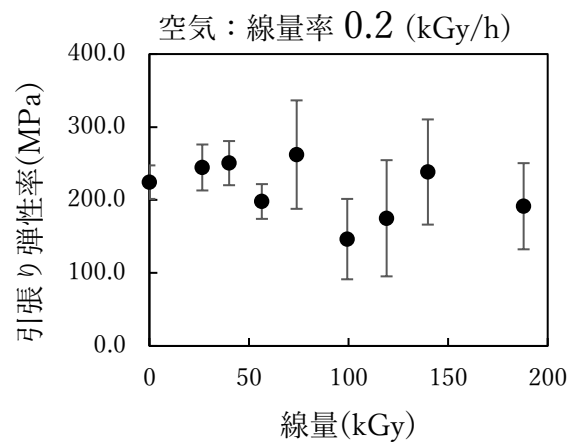
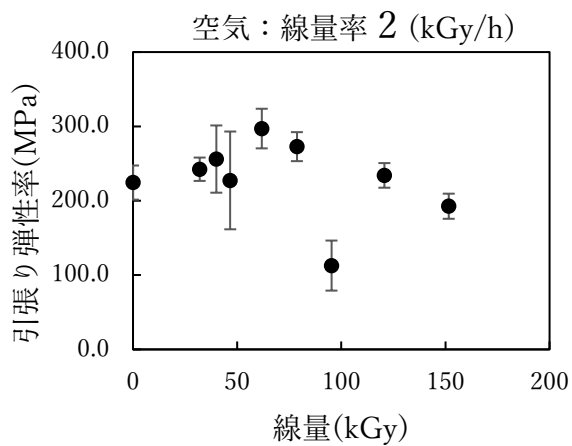
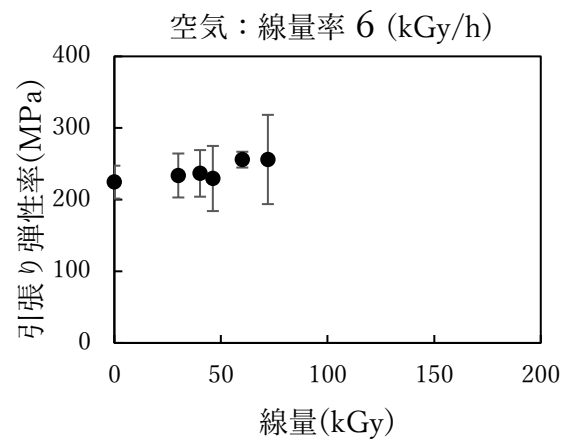
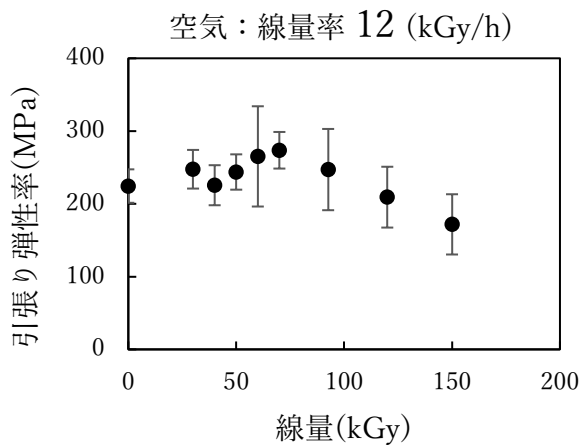


・引張り弾性率

〈真空〉



〈空気〉

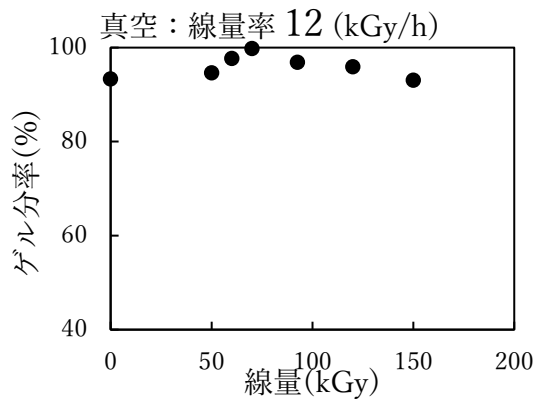


引張り試験結果

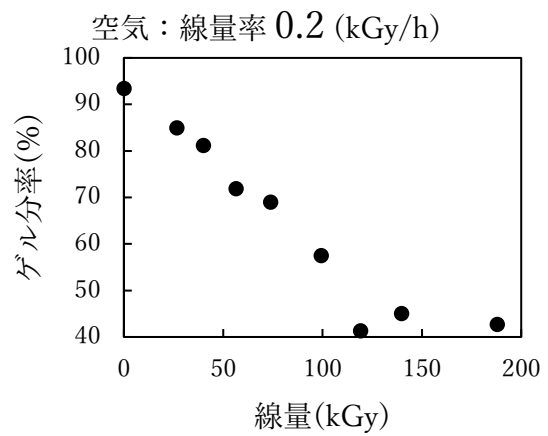
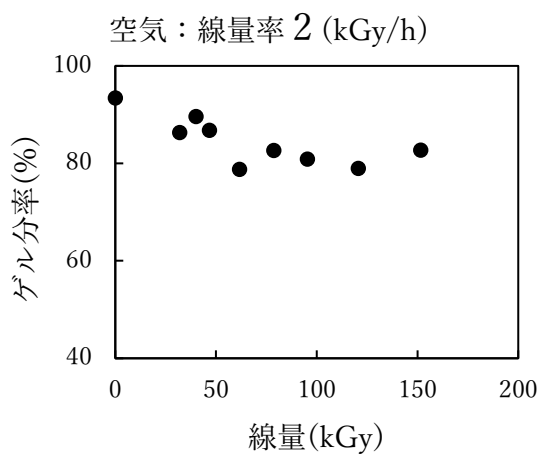
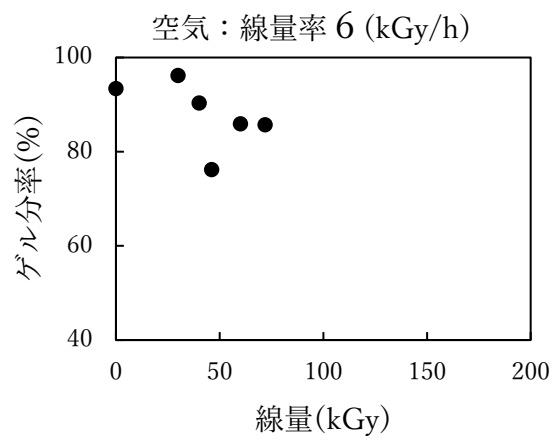
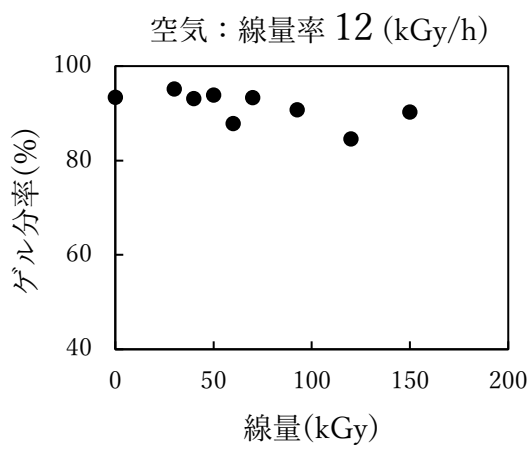
酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量率(kGy/h)	線量(kGy)	破断時伸び(%)		引張り強度(MPa)		引張り弾性率(MPa)				
				平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差			
0	真空	12	初期値	0	624.0	70.3	32.8	7.1	224.5	23.0		
				40.0	574.4	75.5	31.5	5.1	194.9	71.9		
				50.0	540.8	43.8	29.6	5.0	199.5	20.0		
				60.0	520.0	69.6	26.7	6.1	217.3	50.1		
				70.0	482.4	35.4	25.1	2.8	188.3	37.5		
				92.6	485.6	25.4	27.4	3.4	185.6	56.2		
				120.0	432.0	27.9	25.1	2.7	203.4	42.8		
				150.0	416.8	23.2	24.3	3.1	216.0	31.7		
				30.0	520.0	67.9	28.1	4.4	247.6	26.5		
				40.0	542.4	42.0	29.8	3.6	225.6	27.5		
	空気	12	0	50.0	520.0	49.8	27.5	4.5	243.8	24.3		
				60.0	512.0	38.1	28.3	5.7	265.2	68.9		
				70.0	499.2	67.4	29.5	4.5	273.7	25.1		
				92.6	483.2	24.2	24.6	5.1	247.1	55.8		
				120.0	473.6	35.4	25.2	3.8	209.2	41.8		
				150.0	424.8	133.5	27.9	6.3	171.8	41.4		
				30.0	527.2	52.1	27.2	5.0	233.8	30.7		
				40.2	537.6	71.4	25.5	4.3	236.7	32.5		
				46.2	577.6	65.7	28.0	3.8	229.5	45.5		
				60.0	544.8	16.1	28.2	3.5	255.8	11.0		
空気	6	0	72.0	542.4	30.8	29.3	4.3	256.1	62.3			
			32.0	550.4	52.2	28.3	5.3	242.4	15.7			
			40.0	500.0	39.6	25.4	5.3	256.1	45.2			
			46.7	528.0	49.6	28.1	3.0	227.3	65.8			
			61.8	584.8	45.4	35.4	5.4	297.1	26.6			
			78.7	504.8	28.8	26.6	3.1	272.8	19.5			
			95.3	533.6	20.7	28.6	3.5	112.8	33.7			
			120.7	411.2	111.9	24.5	4.1	234.1	16.6			
			151.6	473.6	47.5	31.1	4.8	192.6	16.9			
			空気	2	0	26.6	581.6	80.0	30.1	7.1	244.6	31.5
40.0	551.2	45.9				28.6	4.7	250.5	30.3			
56.5	602.4	34.4				30.4	3.0	198.0	23.8			
73.9	536.0	65.9				25.7	5.2	262.2	74.3			
99.3	524.8	48.1				23.3	3.7	146.4	55.1			
119.1	456.0	83.3				20.4	2.7	175.0	79.6			
139.8	454.4	95.4				18.5	0.6	238.4	72.1			
187.9	110.4	45.4				19.6	0.7	191.5	59.0			
空気	0.2	0				40.0	602.4	34.4	30.4	3.0	198.0	23.8
						73.9	536.0	65.9	25.7	5.2	262.2	74.3
			99.3	524.8	48.1	23.3	3.7	146.4	55.1			
			119.1	456.0	83.3	20.4	2.7	175.0	79.6			
			139.8	454.4	95.4	18.5	0.6	238.4	72.1			
			187.9	110.4	45.4	19.6	0.7	191.5	59.0			

■ゲル分率測定結果

〈真空〉



〈空気〉



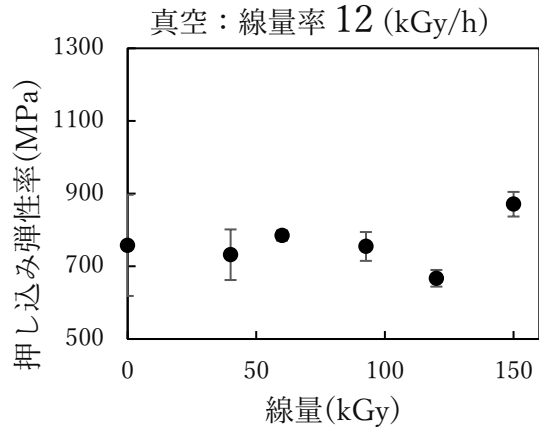
ゲル分率測定結果

酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量率(kGy/h)	線量(kGy)	ゲル分率(%)
0	初期値		0	93.4
	真空	12	50.0	94.7
			60.0	97.7
			70.0	99.9
			92.6	96.9
			120.0	95.9
			150.0	93.1
	空気	12	30.0	95.1
			40.0	93.1
			50.0	93.9
			60.0	87.9
			70.0	93.3
			92.6	90.7
			120.0	84.6
			150.0	90.3
		6	30.0	96.2
			40.2	90.4
			46.2	76.2
			60.0	85.9
			72.0	85.7
		2	32.0	86.3
			40.0	89.6
			46.7	86.8
			61.8	78.8
			78.7	82.6
			95.3	80.8
			120.7	78.9
			151.6	82.7
		0.2	26.6	85.0
			40.0	81.2
56.5			71.9	
73.9	68.9			
99.3	57.5			
119.1	41.3			
139.8	45.0			
187.9	42.7			

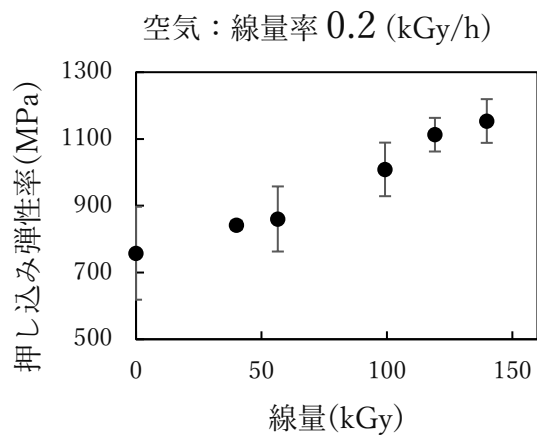
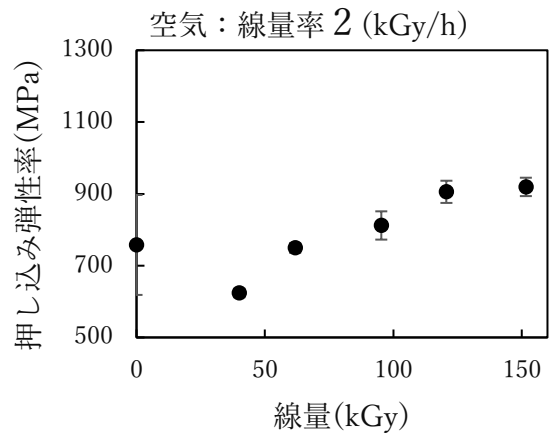
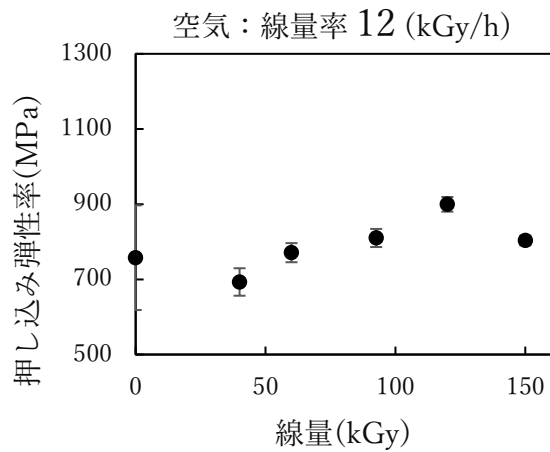
■ダイナミック硬度特性測定結果

・押し込み弾性率

〈真空〉

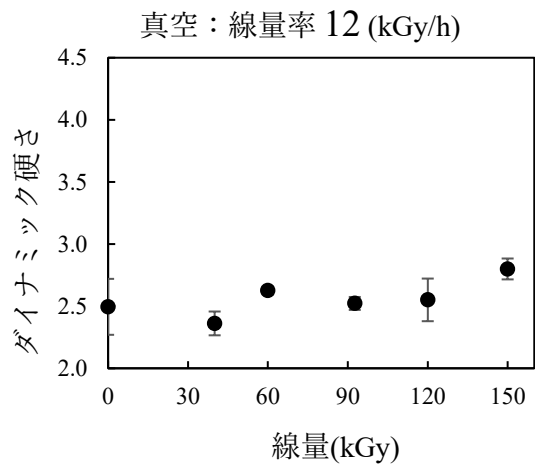


〈空気〉

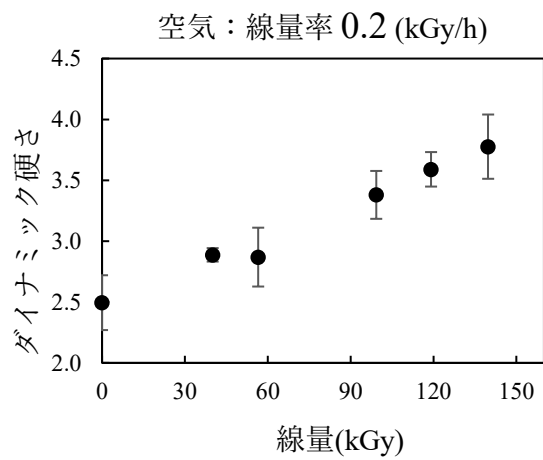
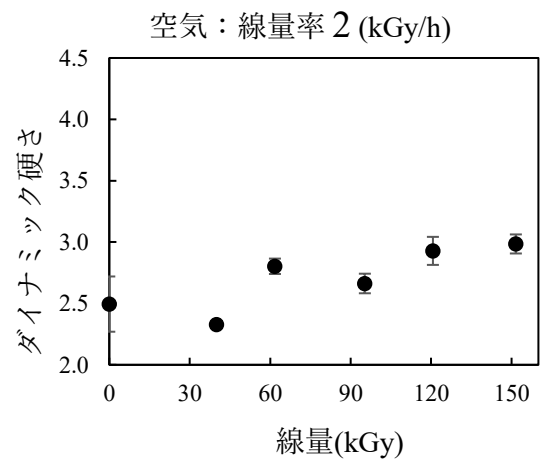
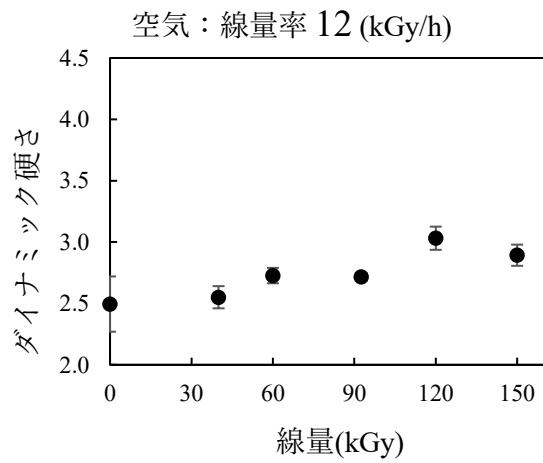


・ダイナミック硬さ

〈真空〉



〈空気〉



ダイナミック硬度特性測定結果

酸化防止剤 (wt%)	雰囲気	線量率(kGy/h)	線量(kGy)	押し込み弾性率(MPa)		ダイナミック硬度	
				平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
0	真空	12	初期値	757.7	139.2	2.5	0.23
				731.9	69.6	2.4	0.10
				784.8	13.8	2.6	0.03
				754.7	39.7	2.5	0.05
				667.1	22.9	2.6	0.17
				870.9	33.9	2.8	0.08
	空気	12	初期値	693.1	36.5	2.6	0.09
				771.0	25.4	2.7	0.06
				810.1	24.1	2.7	0.03
				899.6	19.5	3.0	0.09
				803.7	12.7	2.9	0.09
				624.1	12.2	2.3	0.03
空気	2	初期値	749.5	13.7	2.8	0.06	
			812.0	39.4	2.7	0.08	
			905.7	30.9	2.9	0.11	
			919.4	25.6	3.0	0.08	
			842.0	13.3	2.9	0.06	
			860.3	97.5	2.9	0.24	
空気	0.2	初期値	1008.8	80.2	3.4	0.20	
			1112.8	50.4	3.6	0.14	
			1153.8	65.5	3.8	0.26	
			139.8				
			119.1				
			99.3				

