

JAERI-M

7776

$^{85}\text{Kr}$ 線源の塗膜硬化への利用

1978年8月

津久井公平・佐々木 隆・大塚 徳勝

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

$^{85}\text{Kr}$  線源の塗膜硬化への利用

日本原子力研究所高崎研究所研究部  
津久井公平・佐々木 隆<sup>+</sup>・大塚 徳勝

( 1978年6月30日受理 )

$^{85}\text{Kr}$  線源を用いて不飽和ポリエステル樹脂の塗膜硬化に関する照射実験を行い、 $^{85}\text{Kr}$  線源の照射工学的特性、および塗膜の硬化特性について調べた。照射はシール材で覆った試料を  $^{85}\text{Kr}$  雰囲気に行い、線源には  $40.9\text{ mCi/cc}$  の  $^{85}\text{Kr}$  ガスを  $300\text{ Ci}$  使用した。その結果、次のことが明らかとなった。

①シール内の線量率は、シール材の厚さの増大に伴って指数関数的に低下し、その目安となる  $\beta$  線の吸収係数は見かけ上、公知の式から求めた値の約3倍である。②塗膜の放射能面密度は、塗膜硬化に必要な線量とシール材の厚さに依存し、シール材の厚さが増すにつれて急激に低下する。その値を法律の規制値以下に抑えるに必要なシール材の厚さは、線量が  $10\text{ Mrad}$  のとき約  $6\text{ mg/cm}^2$  である。③  $^{85}\text{Kr}$  線源と電子線加速器で照射した試料相互間には、塗膜硬化特性に顕著な相違がある。④  $^{85}\text{Kr}$  線源による照射では、塗膜の硬化度に及ぼす塗膜厚の影響が比較的大きい。⑤塗膜の硬化反応に及ぼす線量率、ならびにシール内の雰囲気の影響は認められない。

---

+ ) 開発試験場第4開発室。

Utilization of  $^{85}\text{Kr}$  Source for Radiation Curing  
of Surface Coatings

Kohei TSUKUI, Takashi SASAKI<sup>†</sup> and Norikatsu OOTSUKA

Division of Research, Takasaki Radiation Research  
Establishment, JAERI

(Received June 30, 1978)

$^{85}\text{Kr}$  isotope was used as the radiation source for curing coatings of unsaturated polyester resin to investigate characteristic aspects of radiation technology and curing behavior peculiar to a gaseous  $\beta$  emitter. Irradiation was performed by setting a sample covered with a sealant in the atmosphere of 300 Ci  $^{85}\text{Kr}$  gas (40.9 mCi/cc).

The dose rate inside the sealant decreased exponentially with increasing thickness of the sealant, the apparent absorption coefficient being three times as much as the one calculated from the known equation. The surface concentration of radioactivity of the coating depended on the dose required to cure it and decreased abruptly with increasing thickness of the sealant. The minimum thickness to maintain the surface concentration of radioactivity below the regulated level was ca.  $6 \text{ mg/cm}^2$  when the dose was 10 Mrad. The curing behavior of coatings irradiated by  $^{85}\text{Kr}$  had remarkably different aspects with those by accelerated electron beam. The thickness of coatings had a considerable effect on the degree of curing in cases irradiated by  $^{85}\text{Kr}$ . The curing rate of coatings was not affected by the dose rate and atmosphere inside the sealant.

Keywords: Kr-85 Source, Radiation Curing, Unsaturated Polyester,  
Surface Concentration of Radioactivity, Sealant,  
Surface Coatings

---

+) Pilot Scale Research Station

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実 験 .....	1
2.1 照 射 .....	1
2.2 $^{85}\text{Kr}$ 線源 .....	1
2.3 線量測定 .....	2
2.4 試料の調製 .....	2
2.5 放射能面密度, 鉛筆硬度, ゲル分率の測定 .....	2
3. 結果と考察 .....	3
3.1 $^{85}\text{Kr}$ 線源の照射工学的特性 .....	3
3.1.1 線源ガス圧と線量率 .....	3
3.1.2 線量率に及ぼすシール材の影響 .....	3
3.1.3 放射能面密度に及ぼすシール材の影響 .....	3
3.2 塗膜の硬化特性 .....	5
3.2.1 雰囲気の影響 .....	5
3.2.2 線量の影響 .....	5
3.2.3 線量率依存性 .....	6
3.2.4 塗膜厚の影響 .....	6
4. おわりに .....	6
謝 辞 .....	7
文 献 .....	7

## Contents

1. Introduction.....	1
2. Experimental.....	1
2.1 Irradiation.....	1
2.2 $^{85}\text{Kr}$ source.....	1
2.2 Dosimetry.....	2
2.4 Preparation of samples.....	2
2.5 Measurements of surface concentration of radioactivity, pencil hardness, and gel fraction.....	2
3. Results and discussion.....	3
3.1 Radiation technological aspects of $^{85}\text{Kr}$ source.....	3
3.1.1 Relationship between $^{85}\text{Kr}$ pressure and dose rate.....	3
3.1.2 Effect of sealant on dose rate.....	3
3.1.3 Effect of sealant on the surface concentration of radioactivity.....	3
3.2 Curing of coatings.....	5
3.2.1 Effect of atmosphere.....	5
3.2.2 Effect of dose.....	5
3.2.3 Dose rate dependence.....	6
3.2.4 Effect of coating thickness.....	6
4. Conclusion.....	6
Acknowledgement.....	7
References.....	7

## 1. はじめに

$^{85}\text{Kr}$  は  $\beta$  線 ( $E_{\max} = 0.67 \text{ MeV}$ ) を放出する不活性ガスである。先に筆者らは非密封  $^{85}\text{Kr}$  線源の固体表面照射処理への利用を目的として、 $^{85}\text{Kr}$  線源を充填した円筒型容器内の線量測定を行い、 $10^7 \text{ rad/h}$  以上の高線量率が得られることを確かめた<sup>1)</sup>。そこで固体表面照射処理の一例として、不飽和ポリエステル樹脂の塗膜硬化を採りあげ、 $^{85}\text{Kr}$  線源による塗膜硬化に関して実験的研究を行った。

一般に  $^{85}\text{Kr}$  線源雰囲気の中で試料を照射する場合、照射方式としては、試料を裸のままに照射する方法（ノーシール法）と、それをシール材で封じて照射する方法（シール法）が考えられる。前者はシール材による放射線の減弱がないので、放射線エネルギーの利用効率は極めて高い反面、 $^{85}\text{Kr}$  線源と試料とが直接接触するため、試料表面への  $^{85}\text{Kr}$  の付着が問題になる。これに対して後者は、シール材による放射線の減弱のため、放射線エネルギーの利用効率は低下するが、適当なシール材を用いることにより、 $^{85}\text{Kr}$  の付着を低減ないしは防止することが可能である。

いずれの方法にも一長一短はあるが、本研究ではシール法を採りあげ、主としてシール材による線量率の低下、ならびに  $^{85}\text{Kr}$  の付着防止効果等の照射工学的問題について検討を行うとともに、 $^{85}\text{Kr}$  線源による塗膜の硬化特性について調べた。さらに、 $^{85}\text{Kr}$  線源による塗膜の硬化特性を比較するため、電子線加速器による塗膜の硬化実験も合わせて行った。

## 2. 実 験

### 2.1 照 射

本実験に用いた  $^{85}\text{Kr}$  照射装置の主要部のフローシートを Fig. 1 に示す。照射は次の手順に従って行った。

まず、試料を照射容器 ( $210 \phi \times 210 \text{ L}$ ) の底部に設置した後、同容器内の真空脱気を行った。次いで、ソーブションポンプに貯蔵中の  $^{85}\text{Kr}$  線源を照射容器の中に充填し、照射を開始した。所定時間を経過した後、同容器内の  $^{85}\text{Kr}$  線源をソーブションポンプに回収した。

照射は、すべて室温で行った。

### 2.2 $^{85}\text{Kr}$ 線源

実験に使用した  $^{85}\text{Kr}$  線源の量は  $300 \text{ Ci}$  で、その放射能濃度は  $40.9 \text{ mCi/cc}$  である。

$^{85}\text{Kr}$  線源の組成と濃度は質量分析法により測定した。質量分析計には、日立製の RMU-6

## 1. はじめに

$^{85}\text{Kr}$  は  $\beta$  線 ( $E_{\text{max}} = 0.67 \text{ MeV}$ ) を放出する不活性ガスである。先に筆者らは非密封  $^{85}\text{Kr}$  線源の固体表面照射処理への利用を目的として、 $^{85}\text{Kr}$  線源を充填した円筒型容器内の線量測定を行い、 $10^7 \text{ rad/h}$  以上の高線量率が得られることを確かめた<sup>1)</sup>。そこで固体表面照射処理の一例として、不飽和ポリエステル樹脂の塗膜硬化を採りあげ、 $^{85}\text{Kr}$  線源による塗膜硬化に関して実験的研究を行った。

一般に  $^{85}\text{Kr}$  線源雰囲気の中で試料を照射する場合、照射方式としては、試料を裸のままに照射する方法（ノーシール法）と、それをシール材で封じて照射する方法（シール法）が考えられる。前者はシール材による放射線の減弱がないので、放射線エネルギーの利用効率は極めて高い反面、 $^{85}\text{Kr}$  線源と試料とが直接接触するため、試料表面への  $^{85}\text{Kr}$  の付着が問題になる。これに対して後者は、シール材による放射線の減弱のため、放射線エネルギーの利用効率は低下するが、適当なシール材を用いることにより、 $^{85}\text{Kr}$  の付着を低減ないしは防止することが可能である。

いずれの方法にも一長一短はあるが、本研究ではシール法を採りあげ、主としてシール材による線量率の低下、ならびに  $^{85}\text{Kr}$  の付着防止効果等の照射工学的問題について検討を行うとともに、 $^{85}\text{Kr}$  線源による塗膜の硬化特性について調べた。さらに、 $^{85}\text{Kr}$  線源による塗膜の硬化特性を比較するため、電子線加速器による塗膜の硬化実験も合わせて行った。

## 2. 実 験

### 2.1 照 射

本実験に用いた  $^{85}\text{Kr}$  照射装置の主要部のフローシートを Fig. 1 に示す。照射は次の手順に従って行った。

まず、試料を照射容器 ( $210 \phi \times 210 \text{ L}$ ) の底部に設置した後、同容器内の真空脱気を行った。次いで、ソーブションポンプに貯蔵中の  $^{85}\text{Kr}$  線源を照射容器の中に充填し、照射を開始した。所定時間を経過した後、同容器内の  $^{85}\text{Kr}$  線源をソーブションポンプに回収した。

照射は、すべて室温で行った。

### 2.2 $^{85}\text{Kr}$ 線源

実験に使用した  $^{85}\text{Kr}$  線源の量は  $300 \text{ Ci}$  で、その放射能濃度は  $40.9 \text{ mCi/cc}$  である。

$^{85}\text{Kr}$  線源の組成と濃度は質量分析法により測定した。質量分析計には、日立製の RMU-6



改良型を用いた。その結果を Table 1 に示す。線源ガスの中、Kr 同位体は約 99% を占めている。この中、放射性の  $^{85}\text{Kr}$  は 3.04% である。

$^{85}\text{Kr}$  は  $E_{\max} = 0.67 \text{ MeV}$  の  $\beta$  線の他に、 $0.15 \text{ MeV}$  の  $\beta$  線と  $0.51 \text{ MeV}$  の  $\gamma$  線を放出するが、それらの割合は共に小さい ( $0.4\%$ ) ので、線量への寄与は無視できる。

### 2.3 線量測定

線量測定は、シールの内外において行った。試料の線量測定に当たっては、試料と一緒に線量計をシール内に封入した状態で照射を行った。線量計には、Avisco 社製のブルーセロファンを使用した。その大きさは  $13 \times 45 \text{ mm}$  で、厚さは  $1 \text{ mil}$  である。

ブルーセロファンの退色度は波長  $655 \text{ nm}$  における吸光度の変化から求めた。吸光度の測定には、日立製の分光光度計 UV-VIS 139 型を使用した。

$^{85}\text{Kr}$  線源による線量測定に先立ち、 $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線源を用いて、本線量計の検量線を作成した。その結果を Fig. 2 に示す。 $^{85}\text{Kr}$  線源によるブルーセロファンの吸収線量から試料の吸収線量を求める際には、ブルーセロファンと試料との平均質量阻止能比 ( $1.61^{2)}$ ) を考慮した。

### 2.4 試料の調製

まず、不飽和ポリエステルは無水フタル酸 ( $\text{C}_8\text{H}_4\text{O}_3$ )  $4 \text{ mol}$ 、無水マレイン酸 ( $\text{C}_4\text{H}_2\text{O}_3$ )  $6 \text{ mol}$ 、およびプロピレングリコール ( $\text{C}_3\text{H}_8\text{O}_2$ )  $11 \text{ mol}$  を窒素雰囲気中で反応させて合成した。反応は  $200^\circ\text{C}$  以下で行い、生成した水分は反応後除去した。次に、不飽和ポリエステル樹脂は上記不飽和ポリエステル  $70 \text{ wt}\%$  をスチレン  $30 \text{ wt}\%$  に溶解させて作成した。得られた樹脂の密度は  $1.15 \text{ g/cm}^3$  である。試薬は、すべて市販一級品をそのまま使用した。

試料の作成は次の手順に従って行った。

まず、一定量の不飽和ポリエステル樹脂を厚さ  $2 \text{ mm}$  のガラス板上に、空気中で一様に塗布した。塗布面積は  $72 \text{ cm}^2$  である。次に、それを袋状のシール材の中に挿入し、ヒートシール法で封じた。シール材には、厚さがそれぞれ異なるポリエステル、アルミニウム、およびポリエチレンの 3 フィルムをラミネートしたものを使用した。シール材の組成と厚さとの関係を Table 2 に示す。

### 2.5 放射能面密度、鉛筆硬度、ゲル分率の測定

照射終了後、シール材の中から試料を取出し、塗膜の放射能面密度、鉛筆硬度、およびゲル分率のそれぞれを測定した。

まず、放射能面密度は GM カウンタで測定した。計数率  $n$  (cpm) から放射能面密度  $R$  ( $\mu\text{Ci/cm}^2$ ) への換算には、次式を用いた。

$$R = \frac{n}{3.7 \times 10^4 \times 60 \cdot \eta \cdot s} \quad (1)$$

ここに、 $\eta$ はGM管の計数効率、 $s$  ( $\text{cm}^2$ )は塗膜の表面積を表わす。検出器には、アロカ製の $\beta$ 線用端窓型GM管2503Aを用いた。

次に、鉛筆硬度は引掻き試験用の鉛筆(日本塗料検査協会検定済)を用いて、所定の方法<sup>3)</sup>により測定した。

最後に、ゲル分率は次のようにして求めた。まず、塗膜をガラス板から削りとった後、アセトン溶媒としてソックスレー抽出器で可溶部分を抽出した。次いで、不溶部分を真空乾燥した。ゲル分率は、その重量変化から求めた。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 $^{85}\text{Kr}$ 線源の照射工学的特性

##### 3.1.1 線源ガス圧と線量率

$^{85}\text{Kr}$ 線源による線量測定を行い、線源ガス圧と線量率との関係について調べた。線量測定はシールの内外において実施した。その結果をFig.3に示す。実験には、厚さ密度が $10.3\text{mg}/\text{cm}^2$ のシール材を用いた。

図から明らかなように、線量率は、いずれの場合も線源ガス圧に比例し、且つシール材の存在により、シール内の線量率はシール外のそれに比べて若干、低下する。

##### 3.1.2 線量率に及ぼすシール材の影響

シール内の線量率はシール材によって若干、低下する。そこでシール材の厚さと線量率との関係について調べた。その結果をFig.4に実線で示す。照射は線源ガス圧を150 Torrにして行った。

図から明らかなように、線量率はシール材の厚さ密度が増すにつれて指数関数的に低下している。実線の勾配から $\beta$ 線の吸収係数を求めると、 $\mu_a = 102.0\text{ cm}^2/\text{g}$ となる。しかるに、これは $\beta$ 線の最大エネルギーと吸収係数との関係式 $\mu_c = 17.0 E_{\text{max}}^{-1.43}\text{ cm}^2/\text{g}$ <sup>4)</sup>から求めた値 $\mu_c = 30.0\text{ cm}^2/\text{g}$ に比べて、はるかに大きい。Fig.4の点線は $\mu_c$ を基にして求めた、シール材による線量率の低下に関する推定値を表わしたものである。両吸収係数の相違は、 $^{85}\text{Kr}$ 線源からの $\beta$ 線がシール材に対して斜方向から入射するため、 $\beta$ 線の透過距離がシール材の実厚より長くなり、その結果、吸収係数 $\mu_a$ が見かけ上、増大することによるものと思われる。

##### 3.1.3 放射能面密度に及ぼすシール材の影響

$^{85}\text{Kr}$ 線源による照射の際には、シール材が極端に厚くない限り、その一部はシール材を透過してシール内に拡散し、樹脂表面に吸着される。 $^{85}\text{Kr}$ の吸着量はシール材の厚さが薄いほど、また照射時間が長くなるほど、多くなるものと思われる。照射済試料の放射能面密度は、法令の規制値( $10^{-4}\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ )以下に抑えなければならない。そこで、シール材の厚さと塗

ここに、 $\eta$  は GM 管の計数効率、 $s$  ( $\text{cm}^2$ ) は塗膜の表面積を表わす。検出器には、アロカ製の  $\beta$  線用端窓型 GM 管 2503 A を用いた。

次に、鉛筆硬度は引掻き試験用の鉛筆（日本塗料検査協会検定済）を用いて、所定の方法<sup>3)</sup>により測定した。

最後に、ゲル分率は次のようにして求めた。まず、塗膜をガラス板から削りとった後、アセトンを溶媒としてソックスレー抽出器で可溶部分を抽出した。次いで、不溶部分を真空乾燥した。ゲル分率は、その重量変化から求めた。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 $^{85}\text{Kr}$ 線源の照射工学的特性

##### 3.1.1 線源ガス圧と線量率

$^{85}\text{Kr}$  線源による線量測定を行い、線源ガス圧と線量率との関係について調べた。線量測定はシールの内外において実施した。その結果を Fig. 3 に示す。実験には、厚さ密度が  $10.3\text{mg}/\text{cm}^2$  のシール材を用いた。

図から明らかなように、線量率は、いずれの場合も線源ガス圧に比例し、且つシール材の存在により、シール内の線量率はシール外のそれに比べて若干、低下する。

##### 3.1.2 線量率に及ぼすシール材の影響

シール内の線量率はシール材によって若干、低下する。そこでシール材の厚さと線量率との関係について調べた。その結果を Fig. 4 に実線で示す。照射は線源ガス圧を 150 Torr にして行った。

図から明らかなように、線量率はシール材の厚さ密度が増すにつれて指数関数的に低下している。実線の勾配から  $\beta$  線の吸収係数を求めると、 $\mu_a = 102.0\text{ cm}^2/\text{g}$  となる。しかるに、これは  $\beta$  線の最大エネルギーと吸収係数との関係式  $\mu_c = 17.0 E_{\text{max}}^{-1.43}\text{ cm}^2/\text{g}$ <sup>4)</sup> から求めた値  $\mu_c = 30.0\text{ cm}^2/\text{g}$  に比べて、はるかに大きい。Fig. 4 の点線は  $\mu_c$  を基にして求めた、シール材による線量率の低下に関する推定値を表わしたものである。両吸収係数の相違は、 $^{85}\text{Kr}$  線源からの  $\beta$  線がシール材に対して斜方向から入射するため、 $\beta$  線の透過距離がシール材の実厚より長くなり、その結果、吸収係数  $\mu_a$  が見かけ上、増大することによるものと思われる。

##### 3.1.3 放射能面密度に及ぼすシール材の影響

$^{85}\text{Kr}$  線源による照射の際には、シール材が極端に厚くない限り、その一部はシール材を透過してシール内に拡散し、樹脂表面に吸着される。 $^{85}\text{Kr}$  の吸着量はシール材の厚さが薄いほど、また照射時間が長くなるほど、多くなるものと思われる。照射済試料の放射能面密度は、法令の規制値 ( $10^{-4}\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ ) 以下に抑えなければならない。そこで、シール材の厚さと塗

膜の放射能面密度との関係について調べた。照射は、線源ガス圧が 150 Torr の下で、いずれも全線量を一定 (10 Mrad) にして行った。実験結果を Fig. 5 に示す。この図から明らかなように、放射能面密度は、シール材の厚さが比較的薄い範囲では、厚さが増大するに伴って急激に減少している。また、放射能面密度を  $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$  以下に抑えるに必要なシール材の厚さは  $6 \text{ mg}/\text{cm}^2$  となる。

塗膜を硬化させるには、一定の線量が必要である。シール材の厚さが増大するとシール内の線量率が低下するので、照射時間は逆に長くなる。その結果、全体としての  $^{85}\text{Kr}$  の透過量は却って増大することも考えられる。そこで、放射能面密度に及ぼす諸因子の影響について検討を行った。

塗膜の放射能面密度は、次のようにして推定することができる。

まず、膜を通してのガスの透過は一般に Fick の法則 ( $dN/dt = KA \cdot dP/dx$ ) に従うので、シール内へ透過した  $^{85}\text{Kr}$  の量  $N$  は

$$N = K_1 A \frac{P_1 - P_2}{x} t \quad (2)$$

で表わされる。ここに、 $A$  はシール材の表面積、 $P_1$  は照射容器内の  $^{85}\text{Kr}$  の分圧、 $P_2$  はシール内の  $^{85}\text{Kr}$  の分圧、 $x$  はシール材の厚さ、 $t$  は照射時間、 $K_1$  は透過係数である。一般に  $P_1 \gg P_2$  が成立つので、(2)式は次のように近似できる。

$$N = K_1 A \frac{P_1}{x} t \quad (3)$$

一方、シール内で塗膜が受ける線量  $D$  は照射容器内の  $^{85}\text{Kr}$  の分圧、シール材の厚さ、およびシール材の  $\beta$  線に対する見かけの吸収係数  $\mu_a$  によって決まるので、

$$D = K_2 P_1 \exp(-\mu_a x) t \quad (4)$$

で表わされる。ここに、 $K_2$  は比例定数である。

(3)式と(4)式から  $t$  を消去すると、次の関係が得られる。

$$N = \frac{K_1}{K_2} \cdot AD \cdot \frac{\exp(\mu_a x)}{x} \quad (5)$$

本照射系では、シール材の表面積  $A$  は一定であるので、塗膜の放射能面密度  $R$  ( $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ ) は結局、(6)式で表わすことができる。

$$R = KD \frac{\exp(\mu_a x)}{x} \quad (6)$$

ここに、 $K$  は比例定数である。

さらに、(6)式から  $dR/dx = 0$  が成立つ条件を求めると、 $\mu_a x = 1$  となる。それゆえ、放射能面密度は、シール材の厚さ  $x$  が  $1/\mu_a$  に等しいとき、極小値を示すことになる。前節で述べたように、シール材の  $\beta$  線に対する見かけの吸収係数は  $\mu_a = 102.0 \text{ cm}^2/\text{g}$  である。したがって、極値は  $x = 9.8 \text{ mg}/\text{cm}^2$  で現われることになる。Fig. 5 から明らかなように、極値は  $x = 11 \text{ mg}/\text{cm}^2$  で現われており、実験値と計算値とは比較的よく一致している。

塗膜の放射能面密度は、(6)式から明らかなように、塗膜硬化に必要な線量とシール材の厚さ

に依存する。それゆえ、塗膜硬化に必要な線量を与えられると、放射能面密度を規制値以下に抑えるに十分なシール材の厚さは、自ずから決まってくる。

### 3.2 塗膜の硬化特性

$^{85}\text{Kr}$  線源を用いて不飽和ポリエステル樹脂の塗膜硬化反応を行い、硬化度（ゲル分率、鉛筆硬度）に及ぼす諸因子（雰囲気、線量、線量率、塗膜厚）の影響について調べた。さらに、それらの実験結果と電子線加速器による実験結果との比較を行った。電子線加速器には、高崎研の2号加速器（コッククロフト・ウォルトン型、 $3\text{MV}_p$ 、 $5\text{mA}$ ）を使用した。

#### 3.2.1 雰囲気の影響

電子線加速器による不飽和ポリエステル樹脂の塗膜硬化反応では、雰囲気の影響があることが報告されている<sup>5)</sup>。酸素の存在下では硬化反応に、その濃度に応じた誘導期が現われる。

$^{85}\text{Kr}$  線源による照射のように、照射時間が比較的長い系では、特にその影響が大きくなるものと思われる。そこで、まず照射実験方法の検討を行うため、塗膜硬化に及ぼすシール内の雰囲気の影響について調べた。試料は、シール内をそれぞれ空気雰囲気、ならびに窒素雰囲気にして作成した。塗膜の厚さは一定（ $97\text{mg}/\text{cm}^2$ ）にした。照射した線量は $10\text{Mrad}$ である。実験結果をTable 3に示す。

この表から明らかなように、両試料のゲル分率、および鉛筆硬度に違いは認められない。雰囲気の影響が現われなかった原因としては、シール内のガス拡散量が少ないことが考えられる。即ち、シール内では、塗膜面とシール材との間隙が狭いので、酸素の拡散量が少なくなり、その結果、誘導期が全体の照射時間に対して無視できるほど短くなるためと推定される。それゆえ、以下の照射実験は、すべてシール内を空気雰囲気にして行った。

#### 3.2.2 線量の影響

塗膜厚が一定（ $97\text{mg}/\text{cm}^2$ ）の試料を両線源で照射し、線量とゲル分率、ならびに線量と鉛筆硬度との関係を調べた。実験結果をそれぞれFig.6とFig.7に示す。 $^{85}\text{Kr}$  線源による照射は線量率が $7.0 \times 10^4 \sim 1.5 \times 10^6\text{rad}/\text{hr}$ の下で行い、電子線加速器による照射は加速電圧が $1\text{MV}_p$ および $2\text{MV}_p$ 、ビーム電流が $1\text{mA}$ の下で行った。

まず、ゲル分率に関してはFig.6から明らかなように、 $^{85}\text{Kr}$  線源で照射した試料のそれは線量の増加に伴って徐々に増大し、かなりの大線量でも100%に達しない。これに対して、電子線加速器で照射した試料のそれは線量の増加に伴って急激に増大し、且つ比較的到低線量で100%に達する。

次に、鉛筆硬度に関してはFig.7から明らかなように、 $^{85}\text{Kr}$  線源で照射した試料のそれは線量の増加とともに急激に増大する。これに対して、電子線加速器で照射した試料のそれは比較的到低線量でも、かなりの硬度を示し、且つ線量の増加とともに徐々に増大する。

このように、両線源による塗膜の硬化反応相互間には、顕著な相違が認められるが、これは両線源の電子のエネルギーが極端に違うために現われたものと思われる。

$^{85}\text{Kr}$  線源から放出される  $\beta$  線の平均エネルギーは  $0.24 \text{ MeV}$  <sup>6)</sup> (最大飛程:  $0.23 \text{ g/cm}^2$ ) であるのに対して、電子線加速器で得られた電子線のエネルギーは  $1 \text{ MeV}$  (同  $0.46 \text{ g/cm}^2$ )、および  $2 \text{ MeV}$  (同  $1.03 \text{ g/cm}^2$ ) である。それゆえ、電子線加速器による照射では、電子の飛程が塗膜厚より充分長いので、塗膜の深部までほぼ均一に照射される。その結果、比較的到低線量でも、かなりの硬化度が得られることになる。

これに対して、 $^{85}\text{Kr}$  線源による照射では、 $\beta$  線の中で比較的エネルギーの低い電子は塗膜の深部まで到達しないので、深部での硬化反応は進み難くなる。それゆえ、塗膜の表面が硬化しても、深部には未硬化の軟弱層が残ることになる。その結果、塗膜全体のゲル分率は減少し、且つ鉛筆硬度も低下するものと思われる。

### 3.2.3 線量率依存性

ゲル分率の線量率依存性を調べるため、塗膜厚が  $97 \text{ mg/cm}^2$  の試料を  $^{85}\text{Kr}$  線源で  $10 \text{ Mrad}$  照射した。実験は  $0.33 \sim 1.5 \text{ Mrad/hr}$  の線量率範囲で行った。実験結果を Fig. 8 に示す。図から明らかなように、ゲル分率の線量率依存性は認められない。

一般に、不飽和ポリエステル樹脂の塗膜硬化反応では、ゲル分率は線量率により影響を受けると報告<sup>7)</sup>されているが、Hoffman ら<sup>8) 9)</sup>の実験結果によると、線量率が  $10 \text{ Mrad/min}$  ( $600 \text{ Mrad/hr}$ ) 以下では、ゲル分率の線量率依存性は認められない。本実験結果は Hoffman らのそれとよく一致している。

### 3.2.4 塗膜厚の影響

$^{85}\text{Kr}$  線源から放出される  $\beta$  線の飛程は一般の電子線加速器で得られる電子のそれに比べて、かなり短い。それゆえ、 $^{85}\text{Kr}$  線源を用いて塗膜硬化を行う場合には、仮に塗膜の吸収線量が一定であっても、塗膜の硬化度は塗膜厚によって、かなり異なるものと思われる。そこで、塗膜厚がそれぞれ異なる試料を  $^{85}\text{Kr}$  線源で照射し、塗膜厚とゲル分率との関係について調べた。照射は、いずれも全線量を一定 ( $10 \text{ Mrad}$ ) にして行った。実験結果を Fig. 9 に示す。

この図から明らかなように、塗膜厚が増大するにつれて、ゲル分率は次第に低下する。これは前節で述べたように、 $^{85}\text{Kr}$  線源による照射では  $\beta$  線の飛程が比較的短いいため、塗膜の深部においては硬化反応が進み難くなり、その結果、塗膜全体のゲル分率が低下したものと思われる。

## 4. お わ り に

$^{85}\text{Kr}$  線源を充填した照射容器内において、シール材で覆った不飽和ポリエステル樹脂の塗膜硬化反応を行い、シール法で照射を行う際の技術的問題点、ならびに  $^{85}\text{Kr}$  線源による塗膜の硬化特性について調べた。その結果、次のことが明らかとなった。

- (1) シール内の線量率はシール材の厚さの増大に伴って、指数関数的に低下し、その目安と

$^{85}\text{Kr}$  線源から放出される  $\beta$  線の平均エネルギーは  $0.24 \text{ MeV}$  <sup>6)</sup> (最大飛程:  $0.23 \text{ g/cm}^2$ ) であるのに対して、電子線加速器で得られた電子線のエネルギーは  $1 \text{ MeV}$  (同  $0.46 \text{ g/cm}^2$ )、および  $2 \text{ MeV}$  (同  $1.03 \text{ g/cm}^2$ ) である。それゆえ、電子線加速器による照射では、電子の飛程が塗膜厚より充分長いので、塗膜の深部までほぼ均一に照射される。その結果、比較的到低線量でも、かなりの硬化度が得られることになる。

これに対して、 $^{85}\text{Kr}$  線源による照射では、 $\beta$  線の中で比較的エネルギーの低い電子は塗膜の深部まで到達しないので、深部での硬化反応は進み難くなる。それゆえ、塗膜の表面が硬化しても、深部には未硬化の軟弱層が残ることになる。その結果、塗膜全体のゲル分率は減少し、且つ鉛筆硬度も低下するものと思われる。

### 3.2.3 線量率依存性

ゲル分率の線量率依存性を調べるため、塗膜厚が  $97 \text{ mg/cm}^2$  の試料を  $^{85}\text{Kr}$  線源で  $10 \text{ Mrad}$  照射した。実験は  $0.33 \sim 1.5 \text{ Mrad/hr}$  の線量率範囲で行った。実験結果を Fig. 8 に示す。図から明らかなように、ゲル分率の線量率依存性は認められない。

一般に、不飽和ポリエステル樹脂の塗膜硬化反応では、ゲル分率は線量率により影響を受けると報告<sup>7)</sup>されているが、Hoffman ら<sup>8) 9)</sup>の実験結果によると、線量率が  $10 \text{ Mrad/min}$  ( $600 \text{ Mrad/hr}$ ) 以下では、ゲル分率の線量率依存性は認められない。本実験結果は Hoffman らのそれとよく一致している。

### 3.2.4 塗膜厚の影響

$^{85}\text{Kr}$  線源から放出される  $\beta$  線の飛程は一般の電子線加速器で得られる電子のそれに比べて、かなり短い。それゆえ、 $^{85}\text{Kr}$  線源を用いて塗膜硬化を行う場合には、仮に塗膜の吸収線量が一定であっても、塗膜の硬化度は塗膜厚によって、かなり異なるものと思われる。そこで、塗膜厚がそれぞれ異なる試料を  $^{85}\text{Kr}$  線源で照射し、塗膜厚とゲル分率との関係について調べた。照射は、いずれも全線量を一定 ( $10 \text{ Mrad}$ ) にして行った。実験結果を Fig. 9 に示す。

この図から明らかなように、塗膜厚が増大するにつれて、ゲル分率は次第に低下する。これは前節で述べたように、 $^{85}\text{Kr}$  線源による照射では  $\beta$  線の飛程が比較的短いため、塗膜の深部においては硬化反応が進み難くなり、その結果、塗膜全体のゲル分率が低下したものと思われる。

## 4. お わ り に

$^{85}\text{Kr}$  線源を充填した照射容器内において、シール材で覆った不飽和ポリエステル樹脂の塗膜硬化反応を行い、シール法で照射を行う際の技術的問題点、ならびに  $^{85}\text{Kr}$  線源による塗膜の硬化特性について調べた。その結果、次のことが明らかとなった。

- (1) シール内の線量率はシール材の厚さの増大に伴って、指数関数的に低下し、その目安と

なる $\beta$ 線の吸収係数は見かけ上、公知の式から求めた値の約3倍である。

(2) 塗膜の放射能面密度は、塗膜硬化に必要な線量とシール材の厚さに依存し、シール材の厚さが増すにつれて急激に低下する。その値を法律の規制値 ( $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ ) 以下に抑えるに必要なシール材の厚さは、線量が  $10 \text{ Mrad}$  のとき、約  $6 \text{ mg}/\text{cm}^2$  である。

(3)  $^{85}\text{Kr}$  線源と電子線加速器で照射した試料相互間には、塗膜硬化特性に顕著な相違がある。

(4)  $^{85}\text{Kr}$  線源による照射では、塗膜の硬化度に及ぼす塗膜厚の影響が比較的大きい。

(5) 塗膜の硬化反応に及ぼす線量率、ならびにシール内の雰囲気の影響は認められない。

本研究により、 $^{85}\text{Kr}$  線源を用いて一般の固体表面の照射処理を行う際の技術的問題点、ならびに  $^{85}\text{Kr}$  線源の照射工学的特性についても、かなりの知見が得られた。非密封の  $^{85}\text{Kr}$  線源による固体表面の照射処理は、 $^{85}\text{Kr}$  線源の特長を最もよく発揮する照射系であると思われるが、本研究の結果、被照射体に対する  $^{85}\text{Kr}$  の付着が予想以上に大きいことがわかった。より効果的な、 $^{85}\text{Kr}$  の付着防止方法、あるいは付着  $^{85}\text{Kr}$  の脱離方法については今後の研究に待たねばならない。

## 謝 辞

本研究を行うに当たって、ご協力をいただいた高崎研研究部の山本忠利研究員、ならびに荒木邦夫元高崎研第4開発室長(現東海研高レベル廃棄物処理処分研究室長)に、また各種のシール材を快く提供していただいた大日本印刷王子工場、ならびに日本ケロッグ高崎工場の関係各位に深く感謝の意を表する。

## 参考文献

- 1) 津久井公平, 大塚徳勝:  $^{85}\text{Kr}$  雰囲気における線量測定(1975)。
- 2) L.Pages, E.Bertel, H.Joffre, L.Sklavenitis: CEA-R-3942 (1970)。
- 3) 塗装技術便覧編集委員会: 塗装技術便覧 252 (1967)。
- 4) G.I.Gleason, I.D.Taylor and D.L.Tabern: Nuclonics 8, 12 (1951)。
- 5) M.F.Blin and G.Gaussens: IAEA Symposium "Large Radiation Sources for Industrial Processes", Munich, Aug. 1969, SM-123/36, 7 (1969)。
- 6) K.Z.Morgan: Radiation Hygiene Handbook, 14 (McGraw-Hill Book Co., 1959)。
- 7) A.Charlesby: Atomic Radiation and Polymers (団野, 齊藤, 渡部, 小池, 井口共訳, 放射線と高分子, pp 359, 朝倉書店, 1962)。
- 8) A.S.Hoffman et al: ACS 157th National Meeting "Electron Radiation Curing of Styrene/Polyester Mixtures" Minneapolis, April, 1969。
- 9) idem: Isotopes and Radiation Technology, 9, No.1, 78 (Fall, 1971)。



なる $\beta$ 線の吸収係数は見かけ上、公知の式から求めた値の約3倍である。

(2) 塗膜の放射能面密度は、塗膜硬化に必要な線量とシール材の厚さに依存し、シール材の厚さが増すにつれて急激に低下する。その値を法律の規制値 ( $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ ) 以下に抑えるに必要なシール材の厚さは、線量が  $10 \text{ Mrad}$  のとき、約  $6 \text{ mg}/\text{cm}^2$  である。

(3)  $^{85}\text{Kr}$  線源と電子線加速器で照射した試料相互間には、塗膜硬化特性に顕著な相違がある。

(4)  $^{85}\text{Kr}$  線源による照射では、塗膜の硬化度に及ぼす塗膜厚の影響が比較的大きい。

(5) 塗膜の硬化反応に及ぼす線量率、ならびにシール内の雰囲気の影響は認められない。

本研究により、 $^{85}\text{Kr}$  線源を用いて一般の固体表面の照射処理を行う際の技術的問題点、ならびに $^{85}\text{Kr}$  線源の照射工学的特性についても、かなりの知見が得られた。非密封の $^{85}\text{Kr}$  線源による固体表面の照射処理は、 $^{85}\text{Kr}$  線源の特長を最もよく発揮する照射系であると思われるが、本研究の結果、被照射体に対する $^{85}\text{Kr}$  の付着が予想以上に大きいことがわかった。より効果的な、 $^{85}\text{Kr}$  の付着防止方法、あるいは付着 $^{85}\text{Kr}$  の脱離方法については今後の研究に待たねばならない。

## 謝 辞

本研究を行うに当たって、ご協力をいただいた高崎研研究部の山本忠利研究員、ならびに荒木邦夫元高崎研第4開発室長(現東海研高レベル廃棄物処理処分研究室長)に、また各種のシール材を快く提供していただいた大日本印刷王子工場、ならびに日本クロック高崎工場の関係各位に深く感謝の意を表す。

## 参考文献

- 1) 津久井公平, 大塚徳勝:  $^{85}\text{Kr}$  雰囲気における線量測定(1975)。
- 2) L.Pages, E.Bertel, H.Joffre, L.Sklavenitis: OEA-R-3942 (1970)。
- 3) 塗装技術便覧編集委員会: 塗装技術便覧 252 (1967)。
- 4) G.I.Gleason, I.D.Taylor and D.L.Tabern: Nuclonics 8, 12 (1951)。
- 5) M.F.Blin and G.Gaussens: IAEA Symposium "Large Radiation Sources for Industrial Processes", Munich, Aug. 1969, SM-123/36, 7 (1969)。
- 6) K.Z.Morgan: Radiation Hygiene Handbook, 14 (McGraw-Hill Book Co., 1959)。
- 7) A.Charlesby: Atomic Radiation and Polymers (団野, 齊藤, 渡部, 小池, 井口共訳, 放射線と高分子, pp 359, 朝倉書店, 1962)。
- 8) A.S.Hoffman et al: ACS 157th National Meeting "Electron Radiation Curing of Styrene/Polyester Mixtures" Minneapolis, April, 1969。
- 9) idem: Isotopes and Radiation Technology, 9, No.1, 78 (Fall, 1971)。

なる $\beta$ 線の吸収係数は見かけ上、公知の式から求めた値の約3倍である。

(2) 塗膜の放射能面密度は、塗膜硬化に必要な線量とシール材の厚さに依存し、シール材の厚さが増すにつれて急激に低下する。その値を法律の規制値 ( $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ ) 以下に抑えるに必要なシール材の厚さは、線量が  $10 \text{ Mrad}$  のとき、約  $6 \text{ mg}/\text{cm}^2$  である。

(3)  $^{85}\text{Kr}$  線源と電子線加速器で照射した試料相互間には、塗膜硬化特性に顕著な相違がある。

(4)  $^{85}\text{Kr}$  線源による照射では、塗膜の硬化度に及ぼす塗膜厚の影響が比較的大きい。

(5) 塗膜の硬化反応に及ぼす線量率、ならびにシール内の雰囲気の影響は認められない。

本研究により、 $^{85}\text{Kr}$  線源を用いて一般の固体表面の照射処理を行う際の技術的問題点、ならびに  $^{85}\text{Kr}$  線源の照射工学的特性についても、かなりの知見が得られた。非密封の  $^{85}\text{Kr}$  線源による固体表面の照射処理は、 $^{85}\text{Kr}$  線源の特長を最もよく発揮する照射系であると思われるが、本研究の結果、被照射体に対する  $^{85}\text{Kr}$  の付着が予想以上に大きいことがわかった。より効果的な、 $^{85}\text{Kr}$  の付着防止方法、あるいは付着  $^{85}\text{Kr}$  の脱離方法については今後の研究に待たねばならない。

## 謝 辞

本研究を行うに当たって、ご協力をいただいた高崎研研究部の山本忠利研究員、ならびに荒木邦夫元高崎研第4開発室長（現東海研高レベル廃棄物処理処分研究室長）に、また各種のシール材を快く提供していただいた大日本印刷王子工場、ならびに日本クロック高崎工場の関係各位に深く感謝の意を表する。

## 参考文献

- 1) 津久井公平, 大塚徳勝:  $^{85}\text{Kr}$  雰囲気における線量測定 (1975)。
- 2) L.Pages, E.Bertel, H.Joffre, L.Sklavenitis: CEA-R-3942 (1970)。
- 3) 塗装技術便覧編集委員会: 塗装技術便覧 252 (1967)。
- 4) G.I.Gleason, I.D.Taylor and D.L.Tabern: Nuclonics 8, 12 (1951)。
- 5) M.F.Blin and G.Gaussens: IAEA Symposium "Large Radiation Sources for Industrial Processes", Munich, Aug. 1969, SM-123/36, 7 (1969)。
- 6) K.Z.Morgan: Radiation Hygiene Handbook, 14 (McGraw-Hill Book Co., 1959)。
- 7) A.Charlesby: Atomic Radiation and Polymers (団野, 齊藤, 渡部, 小池, 井口共訳, 放射線と高分子, pp 359, 朝倉書店, 1962)。
- 8) A.S.Hoffman et al: ACS 157th National Meeting "Electron Radiation Curing of Styrene/Polyester Mixtures" Minneapolis, April, 1969。
- 9) idem: Isotopes and Radiation Technology, 9, No.1, 78 (Fall, 1971)。

Table 1 Composition of  $^{85}\text{Kr}$  radiation source analyzed by mass spectrometry.

Component gas	Content (Vol.%)
$\text{H}_2$	0.0074
Hydrocarbons	0.0053
$\text{H}_2\text{O}$	0.0105
$\text{N}_2$	0.120
$\text{O}_2$	0.0021
Ar	0.987
$\text{CO}_2$	0.0190
$^{78}\text{Kr} \sim ^{86}\text{Kr}$	98.849
( $^{85}\text{Kr}$ )	(3.04)

Table 2 Composition and thickness of sealants.

No.	Polyester	Al	Polyethylene	Thickness density
1	12 $\mu$	9 $\mu$	15 $\mu$	5.3 mg/cm <sup>2</sup>
2	12	15	15	6.9
3	12	9	40	7.6
4	12	15	40	9.2
5	12	9	70	10.3
6	12	15	70	12.0

Table 3 Influence of atmosphere on the radiation curing of unsaturated polyester coating by  $^{85}\text{Kr}$  source. Total dose : 10 Mrad, Coating thickness :  $97 \text{ mg/cm}^2$ .

	Atmosphere	
	Air	$\text{N}_2$
Gel fraction	81.7%	82.1%
Pencil hardness	4 H	4 H

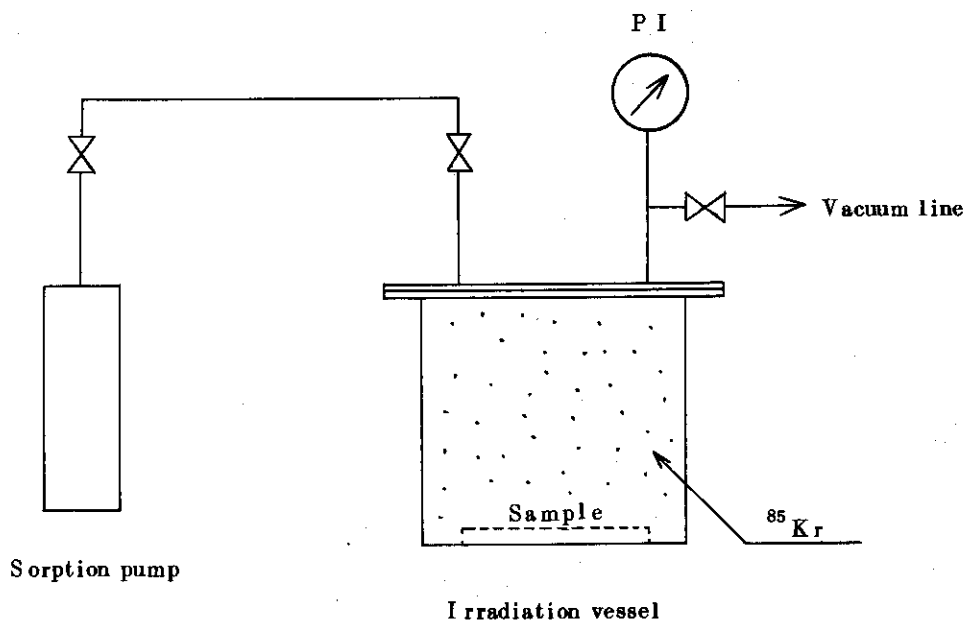


Fig.1 Schematic diagram of the  $^{85}\text{Kr}$  irradiation facility.

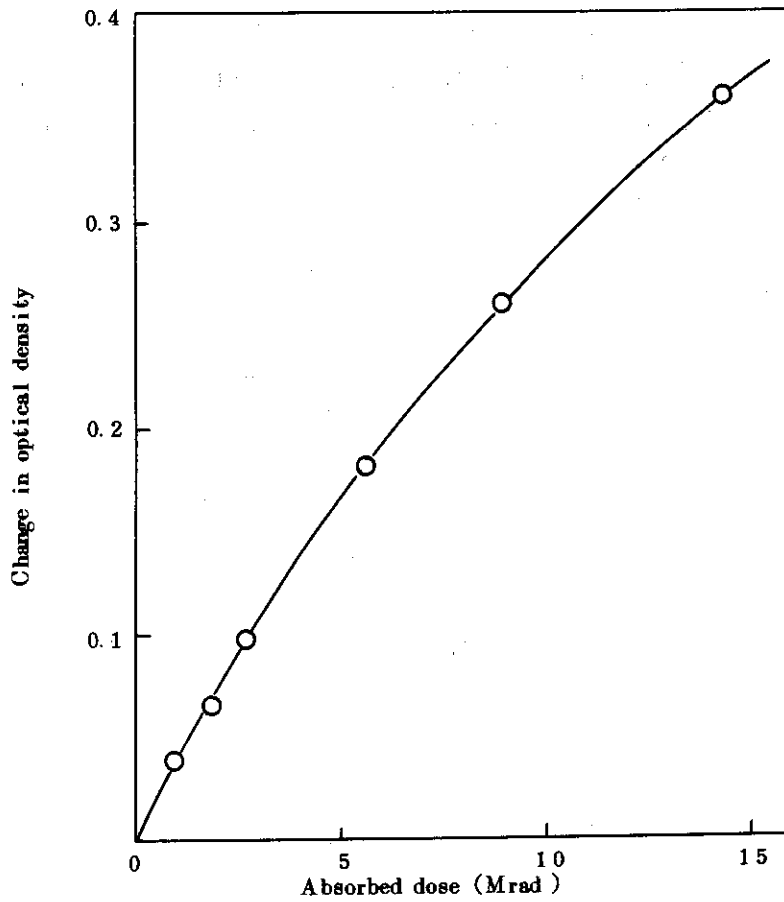


Fig.2 Calibration curve of the bluecellophane dosimeter.  
Wavelength : 655 nm.

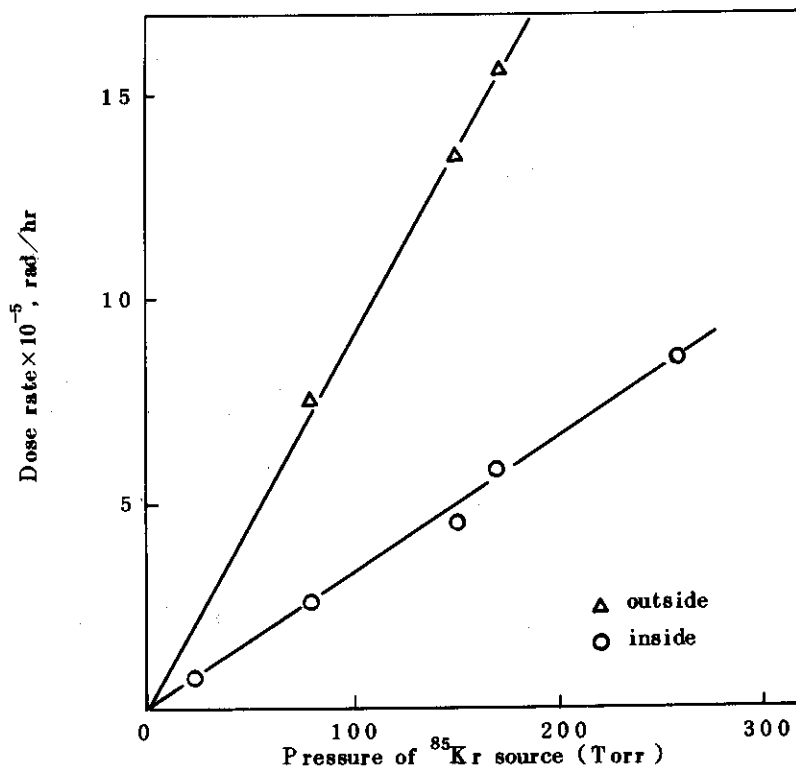


Fig.3 Relation between the pressure of  $^{85}\text{Kr}$  source and the dose rate inside and outside the sealant.

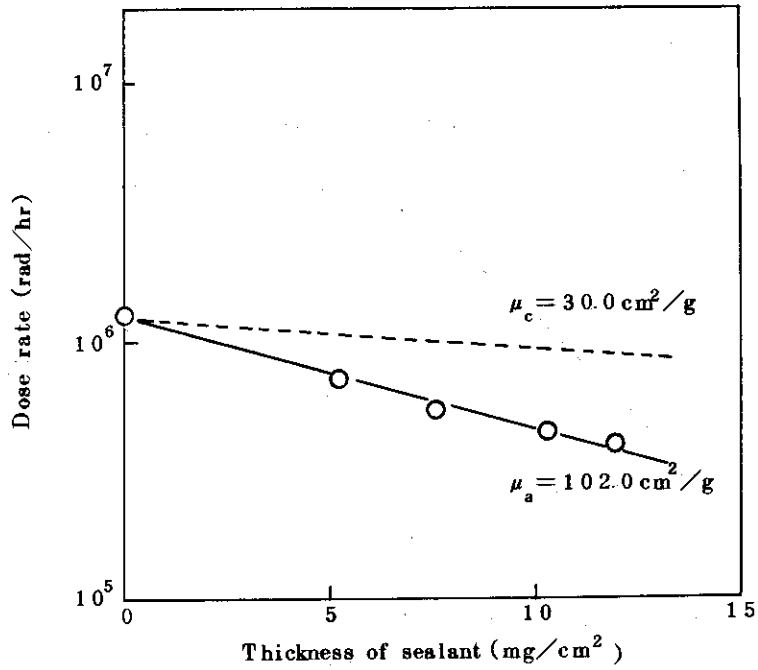


Fig.4 Decrease in dose rate by the sealant.

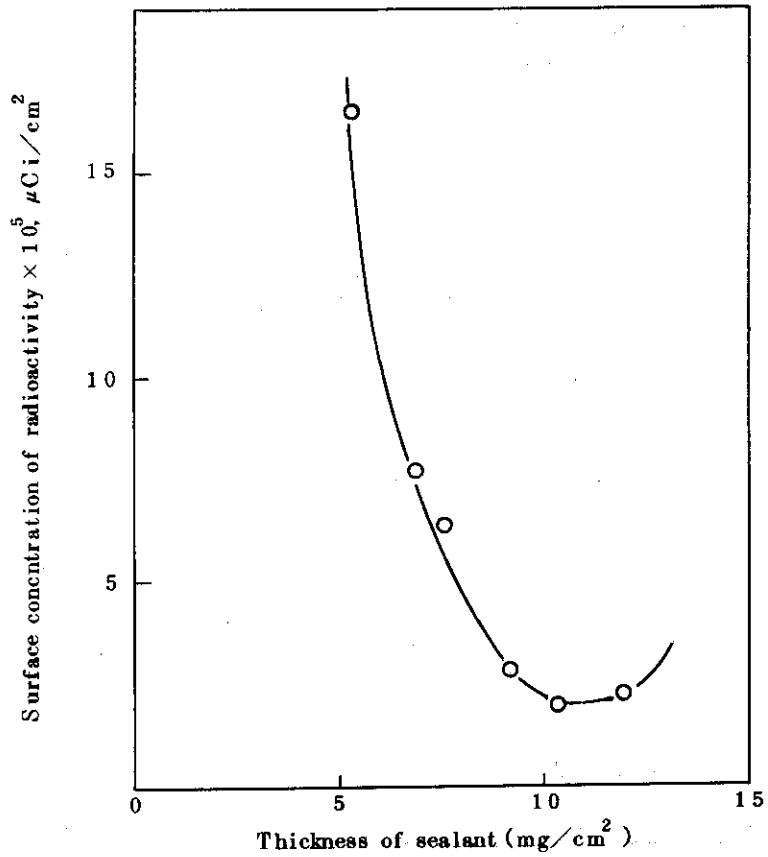


Fig.5 Decrease in surface concentration of radioactivity by the sealant.  
Total Dose : 10 Mrad.

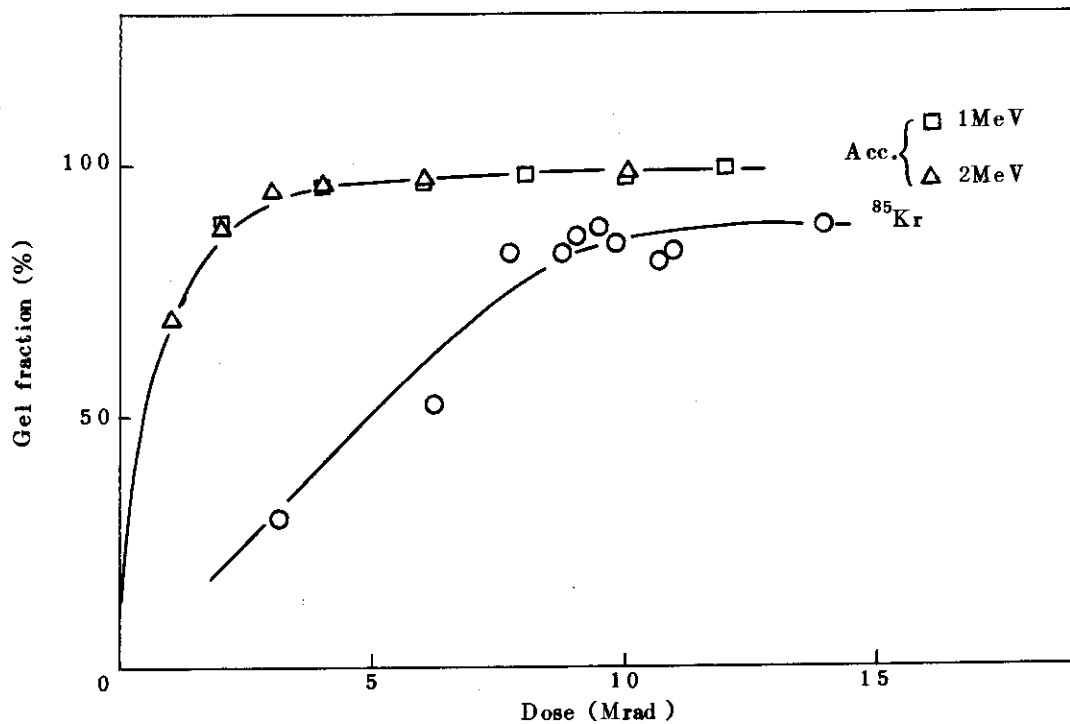


Fig. 6 Radiation curing of unsaturated polyester coating by <sup>85</sup>Kr source and electron accelerator. Coating thickness : 97 mg/cm<sup>2</sup>

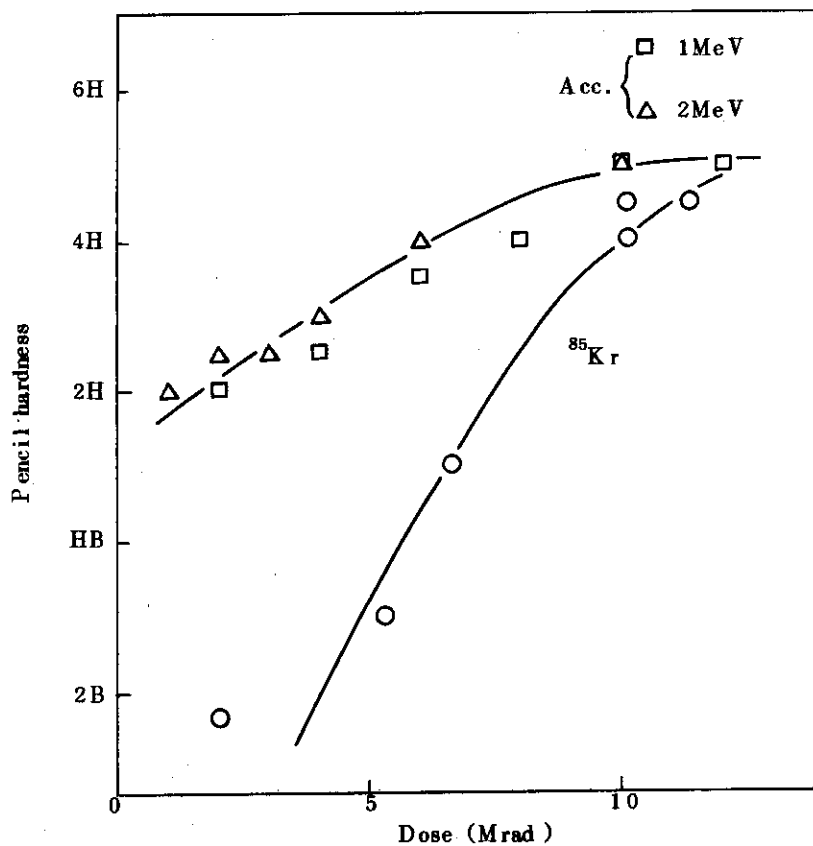


Fig. 7 Radiation curing of unsaturated polyester coating by <sup>85</sup>Kr source and electron accelerator. Coating thickness : 97 mg/cm<sup>2</sup>.

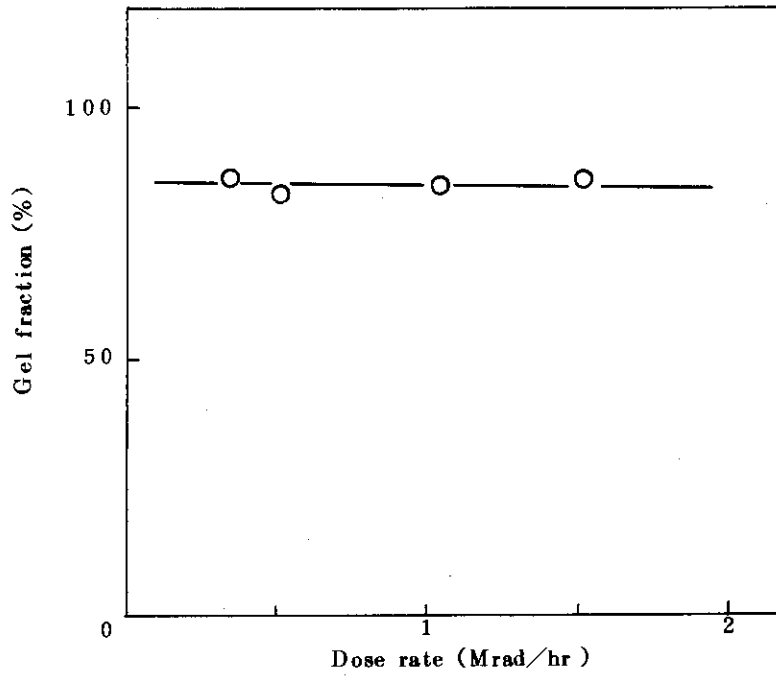


Fig.8 Effect of dose rate on the radiation curing of unsaturated polyester coating by  $^{85}\text{Kr}$  source. Total dose : 10Mrad, Coating thickness : 97mg/cm<sup>2</sup>.

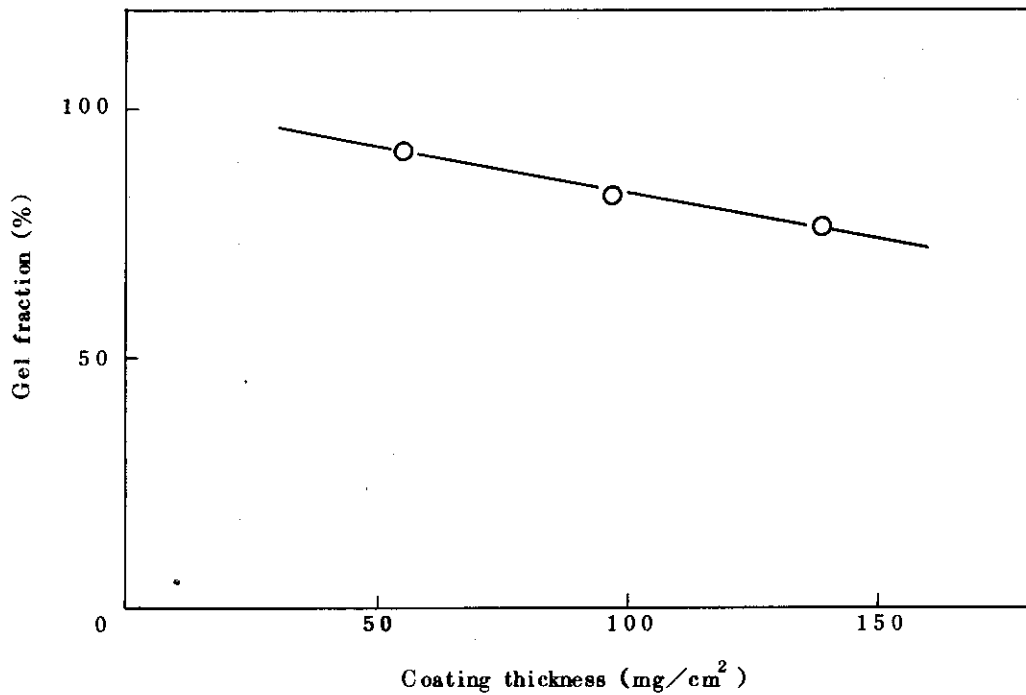


Fig.9 Effect of coating thickness on the radiation curing of unsaturated polyester coating by  $^{85}\text{Kr}$  source. Total dose : 10Mrad.