

JAERI-Tech

95-003



高温電子線照射容器の開発

1995年2月

春山保幸・大島明博*・池田重利**・須永博美・滝沢春喜・瀬口忠男

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

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

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

高温電子線照射容器の開発

日本原子力研究所高崎研究所材料開発部

春山 保幸・大島 明博*・池田 重利**・須永 博美+
滝沢 春喜+・瀬口 忠男

(1995年1月24日受理)

ポリテトラフルオロエチレン (PTFE) の放射線架橋などの高分子材料を高温、不活性ガス雰囲気電子線照射する容器を開発した。試料の加熱は予め加熱した不活性ガスを強制的に循環させる方法で行い、均一な温度での照射が可能となった。PTFEシートを200℃から400℃の範囲で一定温度制御しながら電子線照射ができた。

高崎研究所：〒370-12 群馬県高崎市綿貫町1233

+ 放射線高度利用センター

* 東海大学

** (株)レイテック

Development of High Temperature Electron Beam
Irradiation Vessel

Yasuyuki HARUYAMA, Akihiro OSHIMA*, Shigetoshi IKEDA**
Hiromi SUNAGA⁺, Haruki TAKIZAWA⁺ and Tadao SEGUCHI

Department of Material Development
Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Watanuki-cho, Takasaki-shi, Gunma-ken

(Received January 24, 1995)

An electron beam irradiation vessel was developed for the irradiation of polymer materials at elevated temperature in inert gas atmosphere such as the radiation crosslinking of PTFE. The polymer materials were heated by the forced circulation of heated inert gas, and the temperature of materials during irradiation was controlled uniformly. For PTFE sheet sample, the temperature was regulated between 200-400°C during electron beam irradiation.

Keywords: Irradiation Vessel, Electron Beam, High Temperature, Inert Gas, Polymer, Material.

⁺Advanced Radiation Technology Center

*Tokai University

**RAYTECH CORPORATION

目 次

1. はじめに	1
2. 照射装置の設計	1
2.1 照射装置の設計仕様	1
2.2 各部仕様の検討	2
3. 開発した照射装置の性能	3
3.1 照射容器	3
3.2 制御装置	3
3.3 付属装置	4
4. 照射容器の特性	4
4.1 照射装置の特性	4
4.2 改良後の照射装置の特性	5
4.3 照射容器内の線量分布	7
5. まとめ	7
参考文献	8

Contents

1. Introduction	1
2. Design of Irradiation Vessel	1
2.1 Specification of Irradiation Vessel	1
2.2 Specification of Each Part	2
3. Characteristics of Developed Vessel	3
3.1 Irradiation Vessel	3
3.2 Control Board	3
3.3 Attachment Parts	4
4. Temperature Characteristic of Irradiation Vessel	4
4.1 Characteristic of Irradiation Vessel	4
4.2 Characteristic of Irradiation Vessel after Modification	5
4.3 Dose Distribution in Irradiation Vessel	7
5. Conclusion	7
References	8

1. はじめに

電子加速器を用いた放射線照射は、 γ 線照射に比べ高い線量率が得られ、短時間で照射が行えることから、高分子材料の改質や電線被覆の架橋材料、医療器具の滅菌など、多くの分野において利用されている。

電子線照射の多くは空气中室温で行われているが、特殊な照射においては照射中の酸素の影響を除くため、真空中あるいは不活性ガス中で照射が行われている^{1,2)}。真空中および不活性ガス中の照射容器はこれまでいくつか製作はされている。また高温で照射する場合には、従来は試料支持台に熱媒体を流通させるか、直接電気ヒーターで加熱する方法がとられていた。しかし、その方法では熱伝導のため試料温度の均一性が得られず、試料を高温に保持して真空中あるいは不活性ガス雰囲気中で照射するための照射容器はこれまで開発されていなかった。

最近、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)を結晶融点(327°C)以上の340°C程度で、不活性ガス雰囲気中で放射線照射すると架橋反応が起こることが明らかにされた^{3,4)}。この技術開発のために、PTFEシートを電子線照射により均一に架橋させるための照射容器の開発を行った。

本報告では、開発した“高温電子線架橋用照射装置”の特徴と容器内部の温度および線量分布等の特性について述べる。

2. 照射装置の設計

2.1 照射装置の設計仕様

本照射装置は、高温下において比較的広い面積のPTFEシート(幅80×長さ400×厚さ0.1~1.0mm)を対象に電子線照射で均一に架橋させるものである。照射容器本体及び温度制御装置から構成される。PTFEの架橋においては酸素があると架橋が抑制されるため、酸素の影響を排除する必要がある。そのため、真空(10⁻¹Pa)に排気できる気密構造の外容器と、被照射試料を均一に加熱するための内容器との二重容器構造とした。また、照射容器の材質については放射線場で使用するため、照射中に発生するオゾンや試料からの生成ガスの影響を考慮し、電子線入射窓等の指定箇所を除きステンレス(SUS)を用いることとした。

また、照射容器内の温度制御は、200°CからPTFEの結晶化融点以上の400°C程度までの広範囲の温度域で制御できるようにした。

主な設計仕様は以下の通りである。

1) 照射容器

- 材質 : 主構造体はステンレス(SUS)材とする。
- 電子線入射窓 : 有効窓寸法 幅 80mm×長さ 600mm チタン箔(50 μ m)
(外容器) 10⁻¹Paの気密を保てること。
- 試料保温用窓 : 電子線入射窓寸法チタン箔(50 μ m)を幅 100mm×長さ 600mmの
大きさの窓にはめ込む。

(内容器)

1. はじめに

電子加速器を用いた放射線照射は、 γ 線照射に比べ高い線量率が得られ、短時間で照射が行えることから、高分子材料の改質や電線被覆の架橋材料、医療器具の滅菌など、多くの分野において利用されている。

電子線照射の多くは空気中室温で行われているが、特殊な照射においては照射中の酸素の影響を除くため、真空中あるいは不活性ガス中で照射が行われている^{1,2)}。真空中および不活性ガス中の照射容器はこれまでいくつか製作はされている。また高温で照射する場合には、従来は試料支持台に熱媒体を流通させるか、直接電気ヒーターで加熱する方法がとられていた。しかし、その方法では熱伝導のため試料温度の均一性が得られず、試料を高温に保持して真空中あるいは不活性ガス雰囲気中で照射するための照射容器はこれまで開発されていなかった。

最近、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)を結晶融点(327°C)以上の340°C程度で、不活性ガス雰囲気中で放射線照射すると架橋反応が起こることが明らかにされた^{3,4)}。この技術開発のために、PTFEシートを電子線照射により均一に架橋させるための照射容器の開発を行った。

本報告では、開発した“高温電子線架橋用照射装置”の特徴と容器内部の温度および線量分布等の特性について述べる。

2. 照射装置の設計

2. 1 照射装置の設計仕様

本照射装置は、高温下において比較的広い面積のPTFEシート(幅80×長さ400×厚さ0.1~1.0mm)を対象に電子線照射で均一に架橋させるものである。照射容器本体及び温度制御装置から構成される。PTFEの架橋においては酸素があると架橋が抑制されるため、酸素の影響を排除する必要がある。そのため、真空(10⁻¹Pa)に排気できる気密構造の外容器と、被照射試料を均一に加熱するための内容器との二重容器構造とした。また、照射容器の材質については放射線場で使用するため、照射中に発生するオゾンや試料からの生成ガスの影響を考慮し、電子線入射窓等の指定箇所を除きステンレス(SUS)を用いることとした。

また、照射容器内の温度制御は、200°CからPTFEの結晶化融点以上の400°C程度までの広範囲の温度域で制御できるようにした。

主な設計仕様は以下の通りである。

1) 照射容器

- 材質 : 主構造体はステンレス(SUS)材とする。
- 電子線入射窓 : 有効窓寸法 幅 80mm×長さ 600mm チタン箔(50 μ m)
(外容器) 10⁻¹Pa の気密を保てること。
- 試料保温用窓 : 電子線入射窓寸法チタン箔(50 μ m)を幅 100mm×長さ 600mm の
大きさの窓にはめ込む。
(内容器)

試料支持台寸法：有効寸法 幅 110mm×長さ 600mm SUS 200 μ m (交換可能な構造とする)。

ガス攪拌羽：加熱されたガスの循環用プロペラで、外容器外部よりモーター駆動とする。

熱電対出力端子：照射容器内の真空が保てる構造であること。照射容器の温度制御 (1対) および内部温度のモニター用 (3対)。

加熱用ヒーター：両側面及び底面に設置し、試料支持台をガスによる熱対流により間接的に加熱させる。

2) 制御装置

加熱温度制御範囲：200~400°CでKタイプ熱電対による検出。

容器内温度測定用出力端子：Kタイプ4点 (内1点は温度制御用)

2. 2 各部仕様の検討

外容器の入射窓は真空または不活性ガス導入時の圧力に耐えられる気密構造で、また電子加速器からの入射電子を効率よく透過させる必要がある。電子線の透過力は2MeVのエネルギーの場合に比重1の水で約1cmであり、それ以上の距離ではほとんど吸収される。このため電子線の入射窓には機械的強度が高く、耐腐蝕性の材料として、厚さ50 μ mのチタン箔を用いた。

加熱時の熱の発散を防止し加熱効率を上げる目的で容器は二重構造とした。外容器入射窓の他に内容器の上面にも金属製薄膜(厚さ50 μ mのチタン箔)を設けた。試料の加熱は全体の温度を均一にするため、試料支持台を直接加熱する方法を避け、アルゴンガスのような不活性ガスを介した熱対流によって間接的に試料を加熱させる方法とした。そのため内容器内部の試料支持台下部にガス攪拌羽を設け、加熱された高温のガスを強制対流させる方法とした。また、加熱温度は細かく制御できる電子温度調節器を用い、ヒーターは照射容器及び照射試料の形状から板状ヒーターとし、内容器の上面を除く両側面と底面全体に配置する構造にした。さらに、照射及び加熱により照射容器が高温になることが予測されたため、外容器両側のフランジ部及びガス攪拌羽の軸受け部は水冷にした。また、ヒーターのみによる温度コントロールでは降温時の応答が良くないことが予測されたため、内容器の隅に冷却管を配置し、窒素ガス等の流通による試料の冷却制御が可能な構造とした。

試料支持台は、耐熱性の薄膜あるいは金属メッシュ又はクロスで、電子線照射による熱の蓄積が少ない材質がよく、また照射試料から発生する腐蝕性分解ガスも考慮する必要がある。そのため、厚さ200 μ mのステンレス板から炭素繊維の布等の試料支持台にも容易に交換可能な構造とした。また、照射容器内の温度制御及び試料周辺部の温度監視(3点)のための熱電対を試料支持台下部に設置した。なお、熱電対には、600°Cまで測定可能なKタイプの熱電対を用いた。

また、本照射容器の特徴として、試料取出口とヒーター及び攪拌機構部を別々の方向に設け、照射試料の取出しや熱電対及びヒーターの交換及び容器内部の清掃と点検等が容易な構造とした。Fig.1に照射容器の概要を示す。

3. 開発した照射装置の性能

3. 1 照射容器

作製された照射容器は設計仕様に基づいた二重容器構造であり、外容器は真空(10⁻⁴Pa)まで排気できる気密構造になっている。Fig.2 に“高温電子線架橋用照射装置”の構造図を、また Photo.1 にその外観を示す。外容器の外部にはバルブ付きの吸・排気口が各1ヶ、圧力計、ガス攪拌用モーター及び温度出力端子等が備えられている。

また、内容器は試料加熱時の熱分布を均一にするためのものであり気密にはなっていない。照射する試料は内容器に挿入される試料支持台の上に設置される。この試料支持台は試料取り出し口のフランジに接合しており、試料の交換が容易な構造となっている。Photo.2 に PTFE シートをセットした試料支持台を示す。内容器内にはこのほかにモーター連動のガス攪拌羽、下部及び左右に加熱用ヒーターが、また、左右のヒーターの上下部に強制冷却用の冷却管が組込まれている。

試料支持台中央に設置した PTFE 試料は、排気口よりロータリーポンプとメカニカルブースターポンプの併用により、短時間で 10⁻⁴Pa 程度の真空に排気し、続いてガス導入口よりアルゴンガスを流入させ、気密容器内のガス置換を行う。排気及びアルゴンガスの流入時には容器側面に設けられているアナログ式圧力計で確認できる。内部容器の底部には 1.5 kW、両側面部には各 1.0 kW の板状のヒーターが設置されており、流入したアルゴンガスを加熱する。このヒーターは、制御盤内に設けられた電力調節器により制御されており、ヒーターの ON/OFF 制御とは違う細かな制御を可能にしている。この加熱されたアルゴンガスは攪拌羽により毎分約 30 から 300 回転の速度で攪拌され、照射容器内部及び内部の照射試料の温度を均一にする。容器内部の試料等の温度(4点)はK(如ルアルル)タイプのガラス繊維被覆の熱電対により計測され、気密構造の照射容器からは真空用部品の電流端子を介して外部の補償導線によって制御盤内の温度制御器等に接続される。温度制御用の熱電対は試料支持台中央下部に設置してあり、この指示によりヒーターの出力が制御される。その他、試料支持台両端及び試料温度測定用熱電対は、照射容器内の温度分布監視用として温度記録計に出力される。

電子線照射は照射容器上部のチタン製薄膜(外容器と内容器の2枚のチタン箔;各 50 μm)の入射窓を通して試料に照射される。電子線照射により試料の温度が上がり過ぎた時は、冷却管に窒素ガス等を流して冷却される。これらのヒーター及び冷却管は試料取り出し口と反対の方から取り外すことができ、清掃及び保守が容易な構造となっている。

3. 2 制御装置

制御盤には、加熱用ヒーター及びガス攪拌羽用モーター(ORIENTAL MOTOR 製 41K25RGN-C, ギアヘッド 4GN3K)などの制御機構と、容器内部の測定温度出力端子等が備えられている。加熱用ヒーターはガス攪拌羽用モーターにインターロックされており、ガス攪拌羽用モーターを起動しないと加熱用ヒーターのスイッチが入れられないようになっている。またガス攪拌羽用モーターの回転数調節器は0回転にして局部加熱されないよう安全のため、容易に操作できない制御盤の内部に設置した。操作盤上の温度調節器にはPID動作(比例動作、

積分動作、微分動作を組み合わせたもの)のコントローラー (omron 製 E5AX-A) を用い、加熱用ヒーターの制御は位相制御方式の交流電力調節器 (omron 製 G3PX-220EU) を採用したため、細かな温度制御ができる。

3. 3 付属装置

本照射装置は加熱用ヒーターの容量が大きい (計 3.5kW) ため、電源は交流 200V の3相を必要とする。そのため、照射容器部及び制御盤にはアース線が用意されており、使用する時には必ずアースを取るようになっている。

試料取り出し部等のフランジ及びガス攪拌羽用モーターの軸受け部は、加熱防止のためワンタッチカップラー (口径 3/8 インチ) の接続で水冷を行っている。また、照射中の照射容器上面には、容器側壁及びガス攪拌羽用モーター等に不要な電子線が当たることを避けるため、水冷式のスリットが取り付けられる。これらへの冷却ホースの接続は確実に行うことが必要である。

4. 照射容器の特性

本照射容器は各種特性試験を行ったところ、幾つかの問題点が見出されたため容器の一部を改良した。改良前と改良後の特性について以下に示す。

4. 1 照射装置の特性

1) 照射していないときの照射容器内温度特性

照射容器内の温度特性を調べるため、PTFE のシート (寸法:幅 80×長さ 300×厚さ 0.5mm) を用い、アルゴンガス雰囲気中で 300°C に設定したときの温度を測定した。Fig.3 に試料支持台の温度測定位置を示す。

試料をセットした後、照射容器内を約 10⁻¹Pa の真空に排気してからアルゴンガスでガス置換を行い、ガス攪拌羽及び加熱ヒーターの電源を入れた。加熱を開始してから約 20 分で制御盤上の温度調節器の表示は設定温度である 300°C に達した。その後は±2°C の範囲内で温度が保持された。このときの照射容器内部の各温度値は Fig.4 に示すように設定温度に対して試料支持台の両端では-1%~2%とやや低くなる傾向ではあった。しかし、300°C までの加熱時及び冷却時において、支持台の奥側(c)と手前側(b) (アルゴンガス流入側) では約 5%程の温度差が見られた。これは、室温のアルゴンガスが流入したことによって入り口に近い手前側の温度が低くなったためと思われる。この時の試料支持台は 200 μm の SUS 板であり、またガス攪拌羽の回転数は毎分約 300 回転であった。

加熱用ヒーターの電源を止めてからの自然冷却速度は、200°C までは約 20 分であった。

2) 照射時の照射容器内温度特性

PTFE 試料を照射容器内に入れ加熱温度を 300°C に設定し、電子線照射を行ったときの電子加速器と照射容器との幾何学的関係を Fig.5 および Photo.3 に、温度変化の測定値を Fig.6 に示す。電子加速器は日本原子力研究所 高崎研究所の 1 号加速器 (コッククロフトウォルトン型；

積分動作、微分動作を組み合わせたもの)のコントローラー (omron 製 E5AX-A) を用い、加熱用ヒーターの制御は位相制御方式の交流電力調節器 (omron 製 G3PX-220EU) を採用したため、細かな温度制御ができる。

3. 3 付属装置

本照射装置は加熱用ヒーターの容量が大きい (計 3.5kW) ため、電源は交流 200V の3相を必要とする。そのため、照射容器部及び制御盤にはアース線が用意されており、使用する時には必ずアースを取るようになっている。

試料取り出し部等のフランジ及びガス攪拌羽用モーターの軸受け部は、加熱防止のためワンタッチカップラー (口径 3/8 インチ) の接続で水冷を行っている。また、照射中の照射容器上面には、容器側壁及びガス攪拌羽用モーター等に不要な電子線が当たることを避けるため、水冷式のスリットが取り付けられる。これらへの冷却ホースの接続は確実に行うことが必要である。

4. 照射容器の特性

本照射容器は各種特性試験を行ったところ、幾つかの問題点が見出されたため容器の一部を改良した。改良前と改良後の特性について以下に示す。

4. 1 照射装置の特性

1) 照射していないときの照射容器内温度特性

照射容器内の温度特性を調べるため、PTFE のシート (寸法:幅 80×長さ 300×厚さ 0.5mm) を用い、アルゴンガス雰囲気中で 300°C に設定したときの温度を測定した。Fig.3 に試料支持台の温度測定位置を示す。

試料をセットした後、照射容器内を約 10⁻¹Pa の真空に排気してからアルゴンガスでガス置換を行い、ガス攪拌羽及び加熱ヒーターの電源を入れた。加熱を開始してから約 20 分で制御盤上の温度調節器の表示は設定温度である 300°C に達した。その後は±2°C の範囲内で温度が保持された。このときの照射容器内部の各温度値は Fig.4 に示すように設定温度に対して試料支持台の両端では-1%~2%とやや低くなる傾向ではあった。しかし、300°C までの加熱時及び冷却時において、支持台の奥側(c)と手前側(b) (アルゴンガス流入側) では約 5%程の温度差が見られた。これは、室温のアルゴンガスが流入したことによって入り口に近い手前側の温度が低くなったためと思われる。この時の試料支持台は 200 μm の SUS 板であり、またガス攪拌羽の回転数は毎分約 300 回転であった。

加熱用ヒーターの電源を止めてからの自然冷却速度は、200°C までは約 20 分であった。

2) 照射時の照射容器内温度特性

PTFE 試料を照射容器内に入れ加熱温度を 300°C に設定し、電子線照射を行ったときの電子加速器と照射容器との幾何学的関係を Fig.5 および Photo.3 に、温度変化の測定値を Fig.6 に示す。電子加速器は日本原子力研究所 高崎研究所の 1 号加速器 (コッククロフトウォルトン型；

2MV,30mA,60kW,ビームスキャン幅 120cm) を用い⁵⁾, 2.0MV で 1.0mA (試料位置での線量率: 1.2kGy/s, 加速器照射窓からの距離: 30cm) の電子線照射を行なった。照射開始とともに試料支持台中央では 1 分で約 40°C 温度が上昇したが, 照射を止めると約 5 分で設定温度まで下がり, その後は一定温度が保持された。この急激な温度上昇は, 照射された電子線により試料及び厚さ 200 μ m の SUS 板製の試料支持台が急速に加熱されるためである。このため, 電子線の電流値を大きく変化させる場合には, 急激に増加又は減少させずに徐々に操作させる必要があり, また急激に増加又は減少させる時には加熱ヒーターの設定温度も電流値の変化に対応させて変化させる必要がある。また, この時に得られた PTFE 架橋シートは SUS 板製試料支持台と融着して不均一なシートであった。なお, ガラス繊維被覆の熱電対は素線が一部露出し, 不良になるものがでた。

3) 課題の検討

以上の特性試験から以下の問題点が見出された。

- a) 試料温度の不均一の発生
- b) 熱電対の劣化
- c) 照射時の急激な温度上昇

4. 2 改良後の照射装置の特性

改良後の特性については以下のとおりである。

1) 照射していないときの照射容器内温度特性

試料支持台の材質を板状の SUS からガスの透過しやすい 100 μ m のステンレスメッシュおよび耐熱性のあるケブラー繊維とカーボン繊維の織布に変えてみた。ガス攪拌羽については形状をプロペラ形からラセン形に変更するとともに, モーターの減速器を交換して最高回転数を毎分 300 回転から 500 回転に増した。また, 流入ガスによる試料の温度低下を防ぐため循環方向を変えた。熱電対については, 温度測定を確実にするためガラス繊維被覆のものから 600°C 耐熱のステンレスシース型熱電対 (直径 1.6mm) に変更した。

改良後, カーボン繊維を支持台の材質に用い, 非照射下で空気中の雰囲気 (空気の強制吸気なし) で設定温度を 340°C にして温度分布を測定したところ, Fig.7 に見られるように 10°C 以上の温度差があった。また, 冷却時においても測定部位で温度のばらつきが観察された。

そこで, 照射雰囲気と同じアルゴンガス雰囲気 (ガスフロー) において測定を行ったところ, Fig.8 に示されるように加熱速度においては改良前に比べて 3 分程度速くなり, 温度の変化も 1°C 程度であった。また試料面においては設定温度よりは高い傾向ではあるが, 全面にわたって $\pm 1.5\%$ と均一な温度分布を示した。

次いで, 支持台の材質をカーボン繊維からケブラー繊維と 100 μ m のステンレスメッシュに変えた場合には Fig.8 に示す温度分布と同様の値が得られた。

以上のことから, 試料支持台における温度分布は支持台の材質と, アルゴンガス雰囲気とその排気及びガス攪拌の方法が重要であることがわかった。また, 設定温度を 340°C から 25°C 程

度に下げた時の照射容器の冷却速度は、強制冷却を行わない場合でも 150°C程度まではある程度速やかに下降し、今回の PTFE の照射においては強制冷却を行う必要がないことがわかった。

2) 照射時の照射容器内温度特性

試料支持台の材質にステンレスメッシュを用いて、PTFE を 340°C の熔融状態で放射線照射したところ、試料の測定部での温度分布は比較的均一であったが、熔融状態での照射のため試料にステンレスメッシュの形跡が残ること、接触部と非接触部の微細な箇所温度差が発生することにより、作製した PTFE 架橋シートの一部に歪が生じた。ケブラー繊維を支持台に用いた場合は、ステンレスメッシュの場合のように温度差は見られず比較的均一な PTFE 架橋体が作製できた。しかし、ケブラーと PTFE の分解ガスが反応し、架橋体に影響をあたえることがわかった。カーボン繊維を試料支持に用い、照射を行った場合には、温度分布は前述のケブラー繊維同様に一定であり、PTFE 架橋体に何ら影響を与えないことが確かめられた。したがって、試料支持台の材質にはカーボン繊維を用いることとした。

前述のように、電子線照射を行うと照射開始と同時に試料の温度は上昇する。そこで、設定温度の 340°C に到達してから照射開始時の電子流の値を 0.1 から 1.0mA の範囲で変化させて温度上昇を確認した。Fig.9 に見られるように、0.1mA で照射を開始したときには約 4°C とほとんど温度が上昇しなかったが、0.3mA では約 60 秒後に 7~10°C、0.5mA では 90 秒で 15°C、0.8mA では 120 秒後に 20~25°C、1.0mA の時には 30~35°C 上昇した。その後、5分から 10 分程で温度制御器によって設定温度に戻る。この時に制御盤から加熱ヒーターの設定温度は変えていない。Fig.9 において試料台手前の温度が中央および奥に比べてやや低い値を示したが、これは照射を行わない時の均一な温度分布結果から、SUS シース熱電対の取り付け位置の違いにより電子線の強度分布を反映しているものと考えられる。このことは後述する電子加速器の特徴であるビーム分布によるものである。

次に、電子線の電流値を徐々に上げて照射した時の温度を Fig.10 に示す。試料支持台には前述のカーボン繊維の織布を張ってある。試料加熱設定温度を 340°C にし、まず加速器の電流値を 0.2mA で照射を開始した。この時約 4°C ほど温度上昇するが、すぐに設定温度に下がる。温度が安定化した後電子線の電流値を 0.1mA ずつ増加し、この操作を 0.9mA まで行った。その結果、極端な温度上昇もなく照射試料が均一に加熱された。

なお、照射後の冷却速度は、約 20 分で 200°C まで下がった。このため、強制冷却は行っていない。

3) 改良後の効果

試料支持台の材質を SUS 板からカーボン繊維の織布に変更したことにより熱伝導性が変わったため、設定温度に到達する速度が向上した。また、ガス攪拌羽の形状および攪拌速度を変更したことにより、試料全面にわたって温度分布が均一になった。温度測定は SUS シースタイプの熱電対を用いたため、信頼性が向上した。以上の改良による効果を Table 1 に示す。

Table 1 項目とその改良による効果

項目	改良前	改良後	効果
ガス攪拌羽			
・形状変更	4枚プロペラ形(3ヶ)	ラセン形(軸の全面)	攪拌面積拡大され、ガス循環速度増加した。
・回転数増大	300回転(max)	500回転(max)	ガス循環速度が増加した。
・回転方向	ガス吸入口から排気口	逆方向	ガスの流入方向とガス攪拌方向が変わったため、試料が流入ガスによって冷やされない。
・試料支持台の材質	200 μ m のSUS板	カーボン繊維	電子線照射による加熱が少なく照射試料に変化を与えない。

4. 3 照射容器内の線量分布

試料の照射においては、照射容器内の線量分布が重要である。そのため、カーボン繊維の試料支持台上面にCTA(三酢酸セルロース;富士写真フィルム(株)製FTR-125)線量計⁶⁾を張り付けて、2MeV,0.5mAで100秒間照射を行い、表面線量分布を調べた。X軸方向は電子加速器の電子線の走査方向であり、またY軸方向も試料台中央が加速器照射窓の中央になるように設置した。その結果、Fig.11に示すように、X軸方向においては試料支持台の両端では容器の縁による影響から吸収線量に低下が見られるが、50cmの範囲においては $\pm 4.2\%$ 、40cmでは2.7%、30cmでは2.2%とほぼ均一に照射されることがわかる。Y軸方向についてはFig.12に見られるような線量分布を示す。中央の最大線量に対する4cm端の線量は約半分の55~60%であった。これは走査型電子加速器の特徴であり、もし均一に線量を当てるためには照射容器または試料を移動させなければならない。そのため、照射において必要最低線量は中央ではなく4cm端の線量で見積もる必要がある。

5. まとめ

高分子等の材料を高温で電子線照射する場合には、試料支持台に熱媒体を流通させるか、直接電気ヒーターで加熱するかの方法がとられていた。その方法では、試料温度の均一性が得られないこと、また、電子線を照射すると試料温度が局所的に上昇して温度の制御ができなくなるなど、高温下での照射に著しい困難があった。今回開発した照射装置は試料支持台近傍の不活性ガスの雰囲気温度を制御する方法により、試料(寸法 幅80×長さ400mm)加熱温度を200から400°Cの範囲で制御が可能となった。340°Cに設定したときの試料支持台上の温度分布は $\pm 1.5\%$ の範囲内であった。

Table 1 項目とその改良による効果

項目	改良前	改良後	効果
ガス攪拌羽			
・形状変更	4枚プロペラ形(3ヶ)	ラセン形(軸の全面)	攪拌面積拡大され、ガス循環速度増加した。
・回転数増大	300回転(max)	500回転(max)	ガス循環速度が増加した。
・回転方向	ガス吸入口から排気口	逆方向	ガスの流入方向とガス攪拌方向が変わったため、試料が流入ガスによって冷やされない。
・試料支持台の材質	200 μ m のSUS板	カーボン繊維	電子線照射による加熱が少なく照射試料に変化を与えない。

4. 3 照射容器内の線量分布

試料の照射においては、照射容器内の線量分布が重要である。そのため、カーボン繊維の試料支持台上面にCTA(三酢酸セルロース;富士写真フィルム(株)製 FTR-125)線量計⁶⁾を張り付けて、2MeV,0.5mAで100秒間照射を行い、表面線量分布を調べた。X軸方向は電子加速器の電子線の走査方向であり、またY軸方向も試料台中央が加速器照射窓の中央になるように設置した。その結果、Fig.11に示すように、X軸方向においては試料支持台の両端では容器の縁による影響から吸収線量に低下が見られるが、50cmの範囲においては $\pm 4.2\%$ 、40cmでは2.7%、30cmでは2.2%とほぼ均一に照射されることがわかる。Y軸方向についてはFig.12に見られるような線量分布を示す。中央の最大線量に対する4cm端の線量は約半分の55~60%であった。これは走査型電子加速器の特徴であり、もし均一に線量を当てるためには照射容器または試料を移動させなければならない。そのため、照射において必要最低線量は中央ではなく4cm端の線量で見積もる必要がある。

5. まとめ

高分子等の材料を高温で電子線照射する場合には、試料支持台に熱媒体を流通させるか、直接電気ヒーターで加熱するかの方法がとられていた。その方法では、試料温度の均一性が得られないこと、また、電子線を照射すると試料温度が局所的に上昇して温度の制御ができなくなるなど、高温下での照射に著しい困難があった。今回開発した照射装置は試料支持台近傍の不活性ガスの雰囲気温度を制御する方法により、試料(寸法 幅80×長さ400mm)加熱温度を200から400°Cの範囲で制御が可能となった。340°Cに設定したときの試料支持台上の温度分布は $\pm 1.5\%$ の範囲内であった。

参考文献

- 1) 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 “高分子絶縁材料の γ 線と電子線の照射効果の比較” (1988)
- 2) 金沢孝夫, 春山保幸, 四本圭一; JAERI-M, “電子線照射容器の製作とその特性”, 日本原子力研究所(1992)
- 3) Akihiro Oshima, Yoneho Tabata, Hisaaki Kudoh and Tadao Seguchi, Radiat.Rhys.Chem. Vol.45,pp269-273,(1995)
- 4) Akihiro Oshima, Yoneho Tabata and Tadao Seguchi; Scientific program and abstracts of "Radiation Induced Crosslinking of Porytetrafluoroethylene and its Properties" in The 14th International Symposium on Fluorine Chemistry,(1994),pp278,
- 5) 金沢孝夫, 春山保幸, 宇野定則, 四本圭一, 田中隆一, 鷺野正光, 吉田健三; “高崎研1号加速器(デュアルビーム型, 2MeV,60kW)の電子線出力特性” (1986)
- 6) 田中隆一, 三友昭市, 須永博美, 松田光司, 田村直幸; “CTA線量計マニュアル” (1982)

- ① Gas inlet
- ② Gas outlet, vacuum port
- ③ Motor
- ④ Conector of thermo-cupple
- ⑤ Sample support
- ⑥ Fan
- ⑦ Inside vessel with heater
- ⑧ Ti window
- ⑨ Ti window

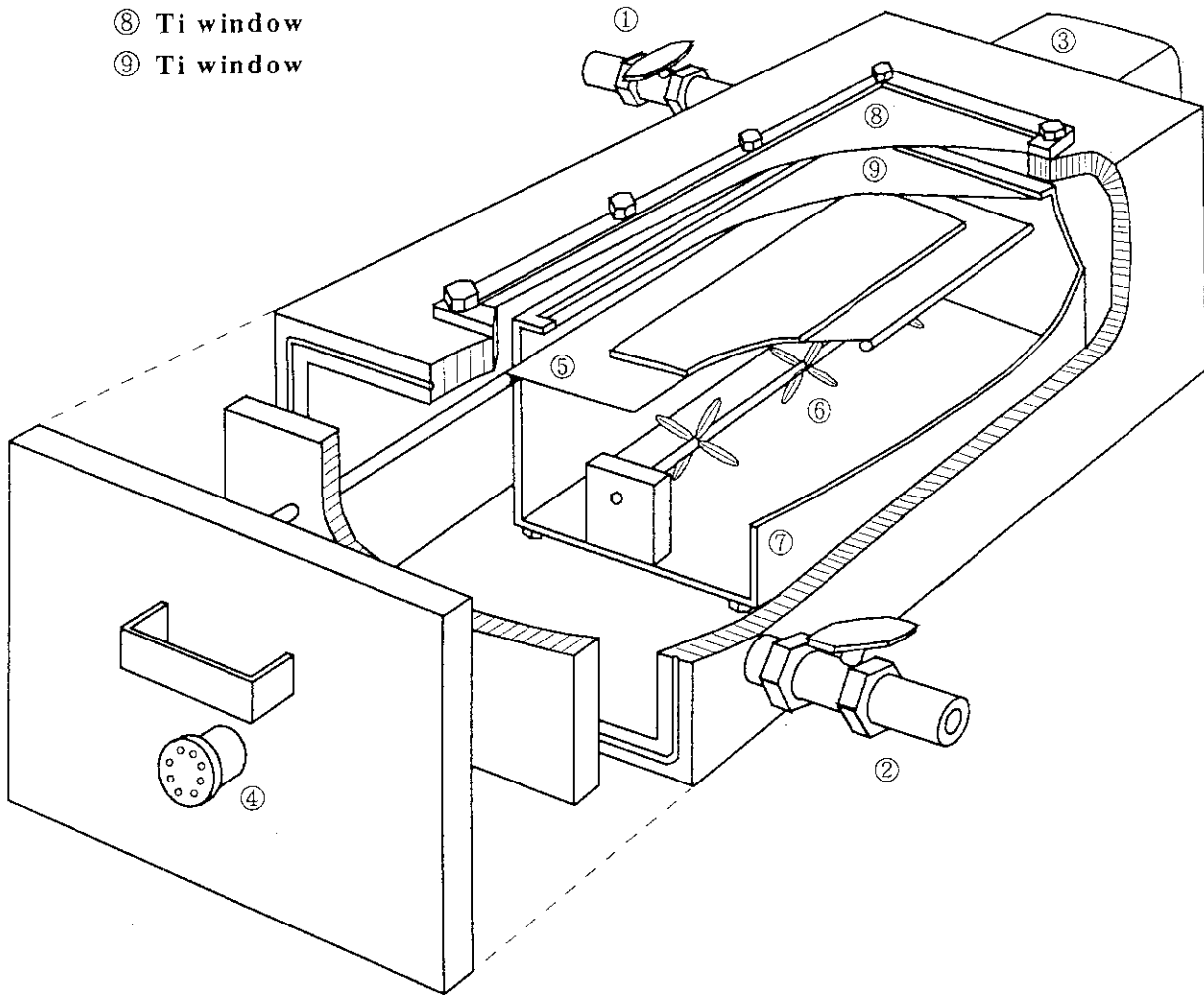


Fig.1 Over view of electron beam irradiation vessel in inert gas atmosphere at elevated temperature.

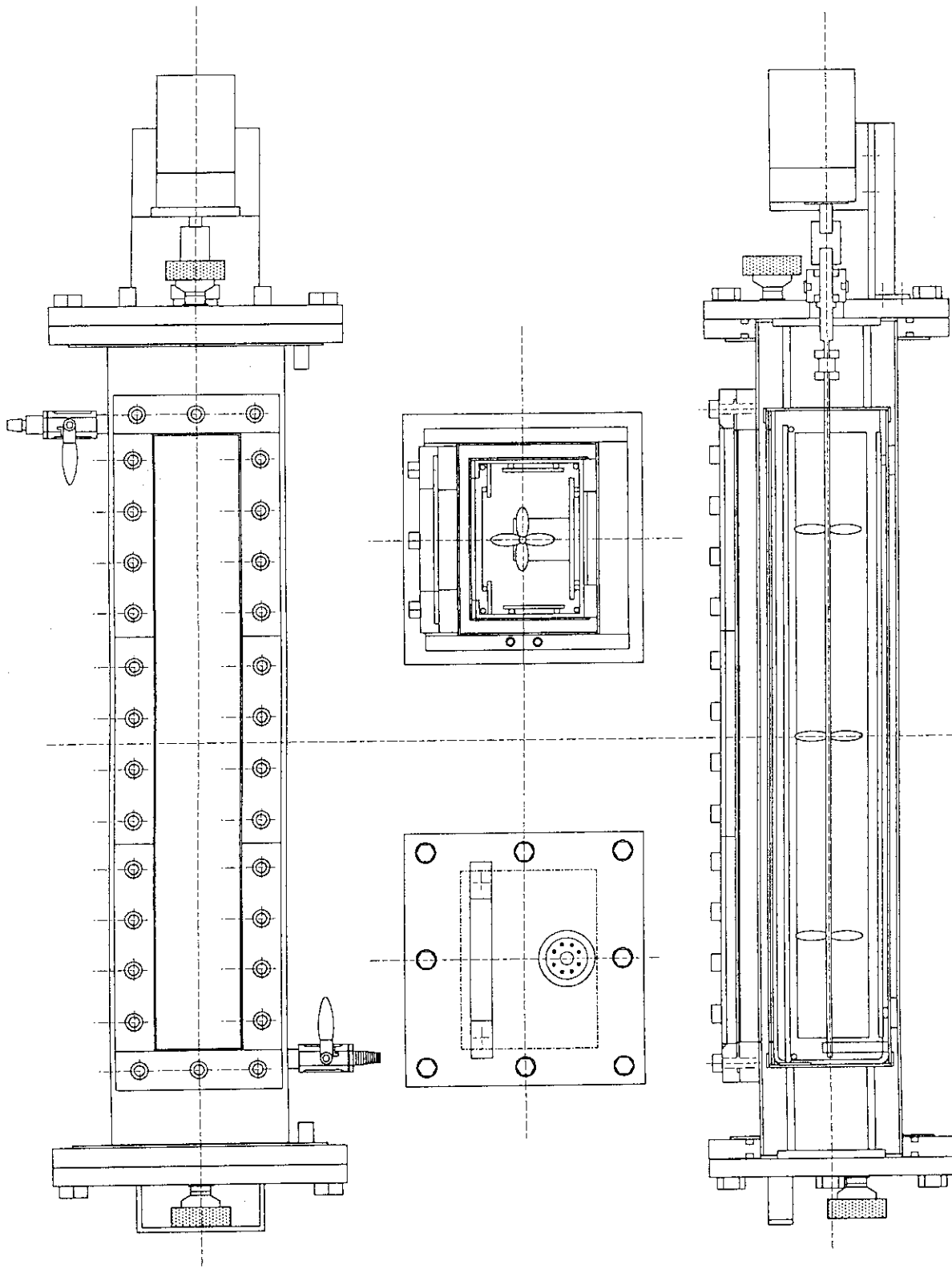


Fig.2 Drawing for manufacture of developed irradiation vessel.

① ~ ⑤

measurement points of dose distribution

a ~ c

measurement points of temperature

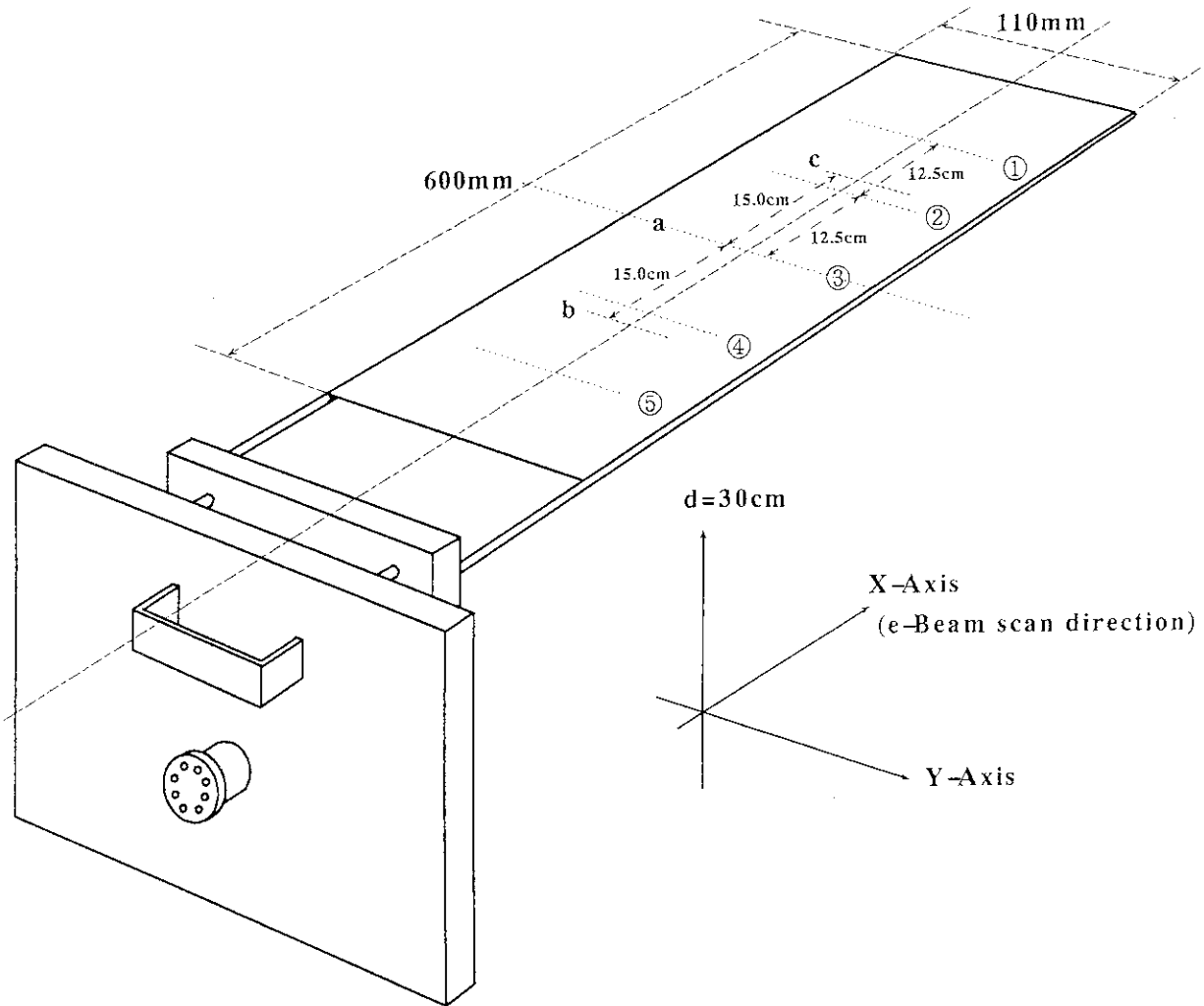


Fig.3 Detector position of temperature and dose on plate for sample support.

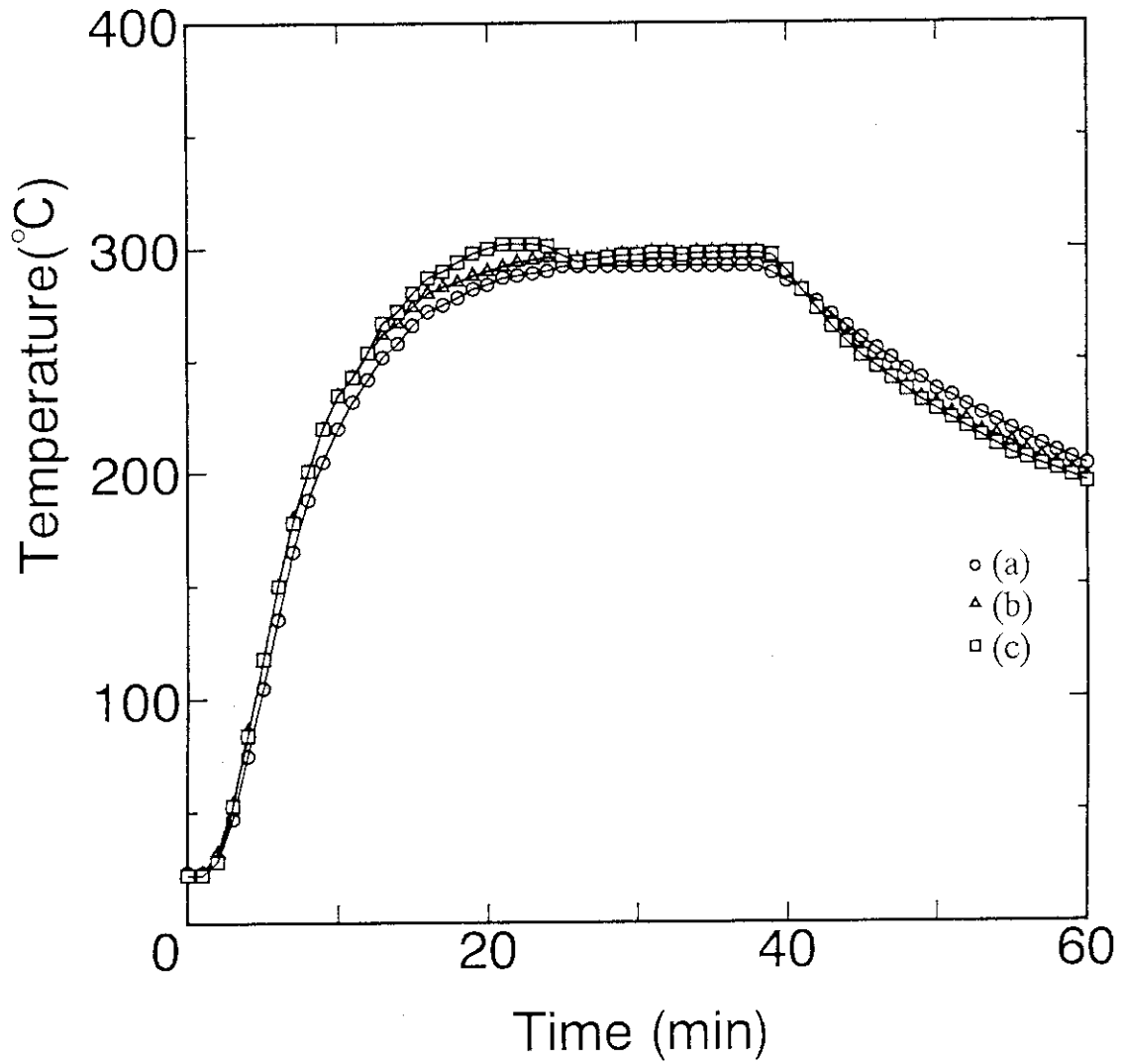


Fig.4 Temperature profile on heating time of irradiation vessel when the setting temperature was 300°C

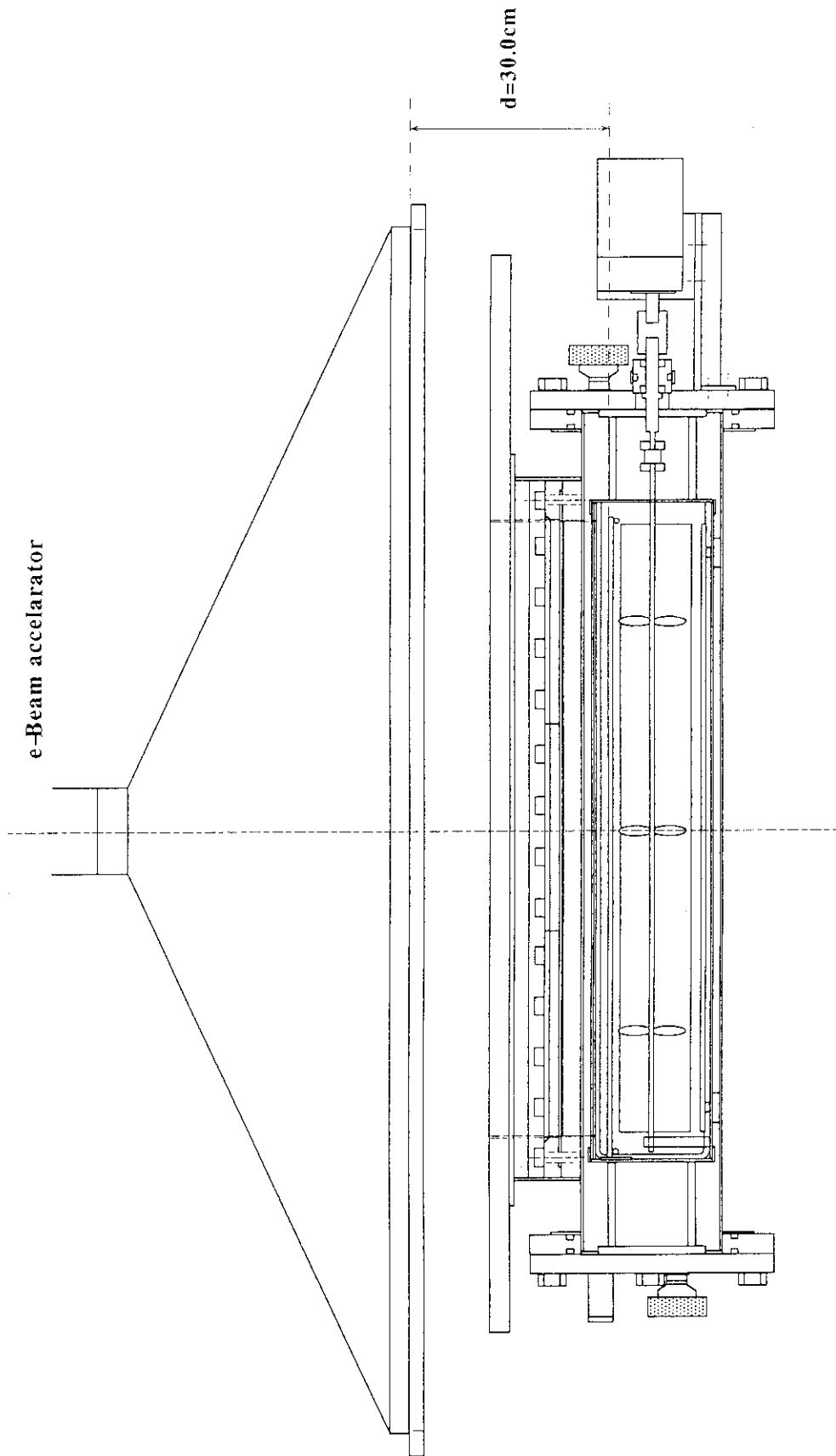


Fig.5 Setting of irradiation vessel under electron accelerator.

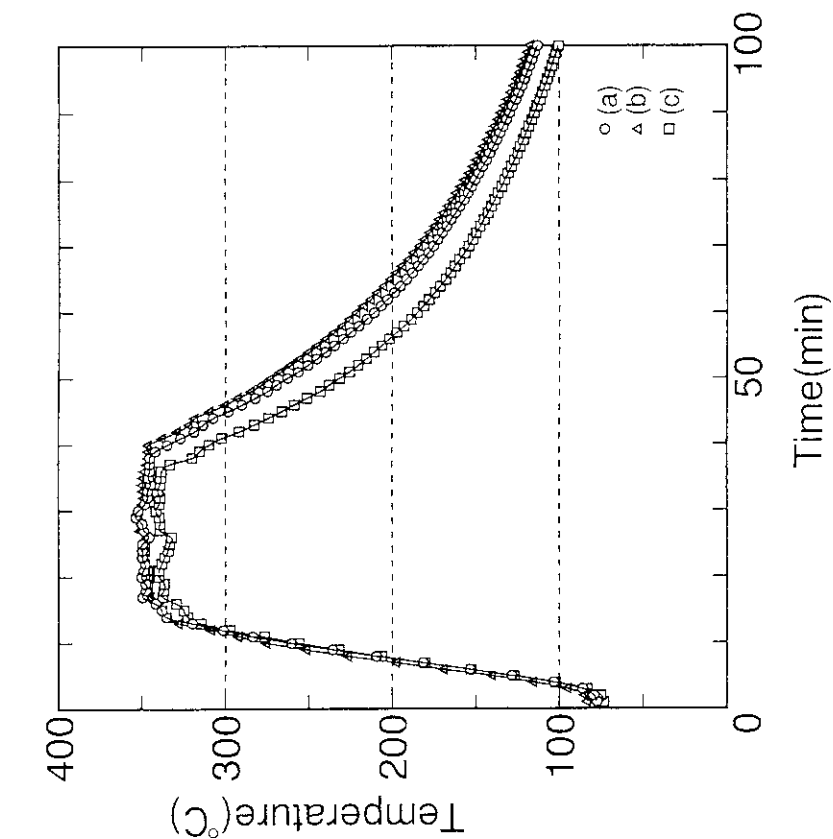


Fig.6 Temperature profile at sample holder under electron beam irradiation. Setting temperature 300°C, EB : 2MV, 1mA, and the distance between the accelerator window and sample holder is 30cm.

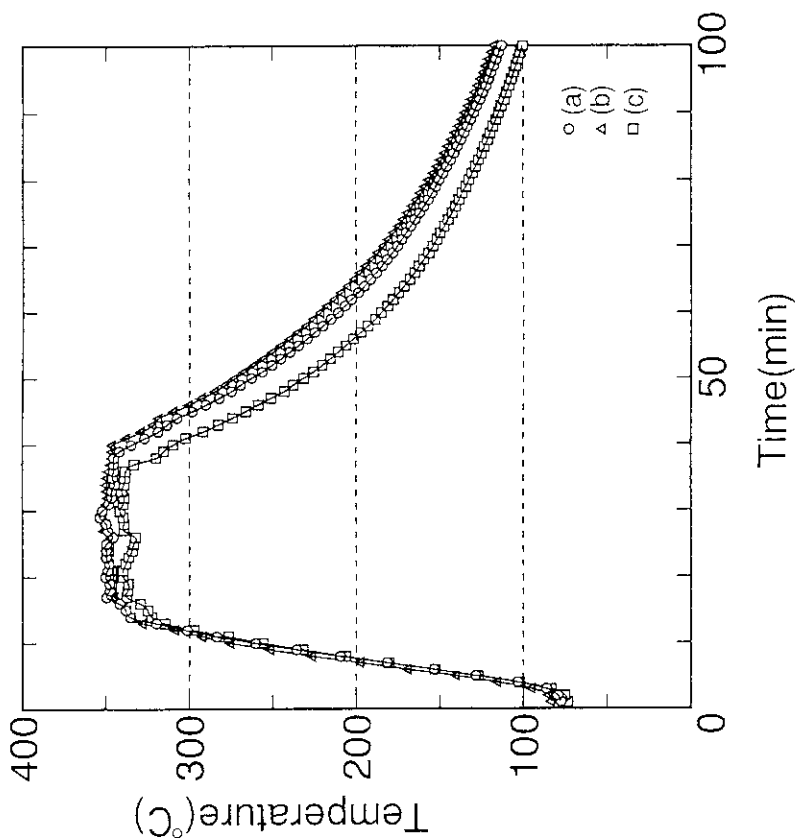


Fig.7 Temperature profile of irradiation vessel in the case of argon gas flow is stopped

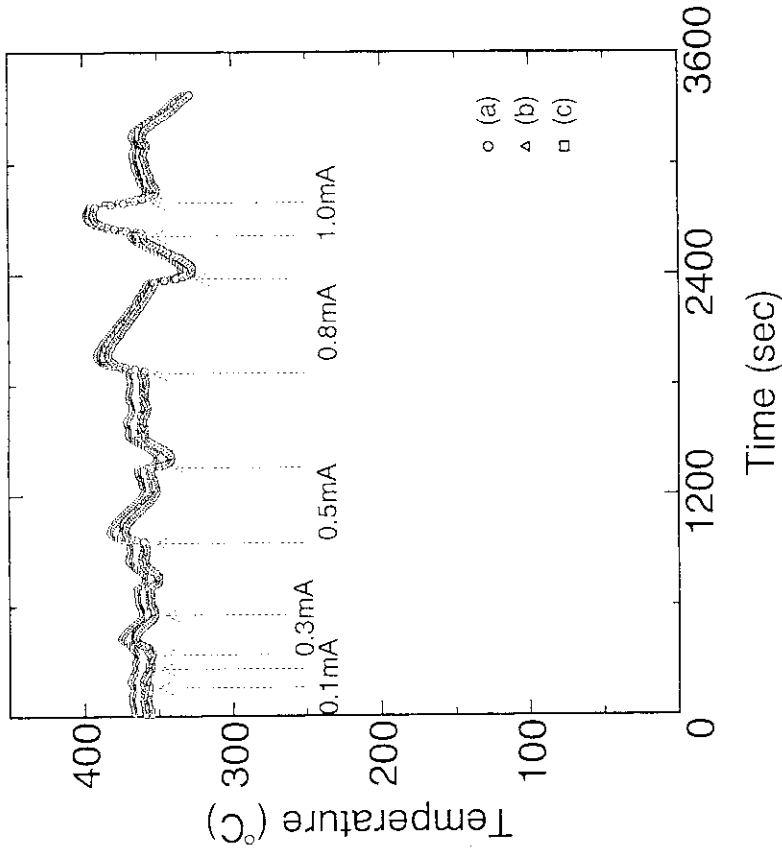


Fig.9 Temperature rise of irradiation vessel by change (0.1 to 1.0mA) of electron beam.

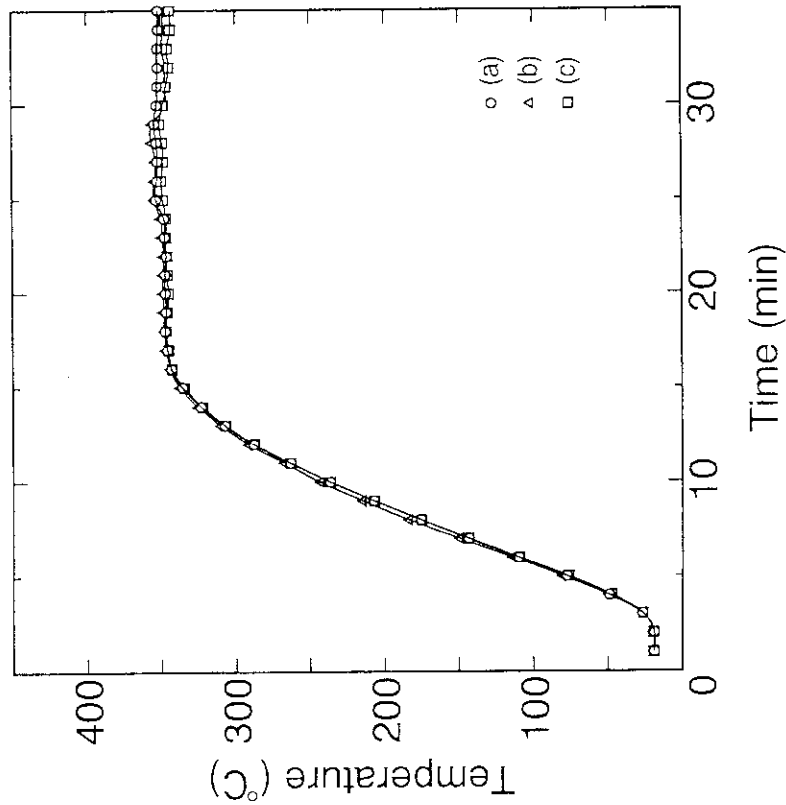


Fig.8 Temperature profile of irradiation vessel in the case of argon gas flow.

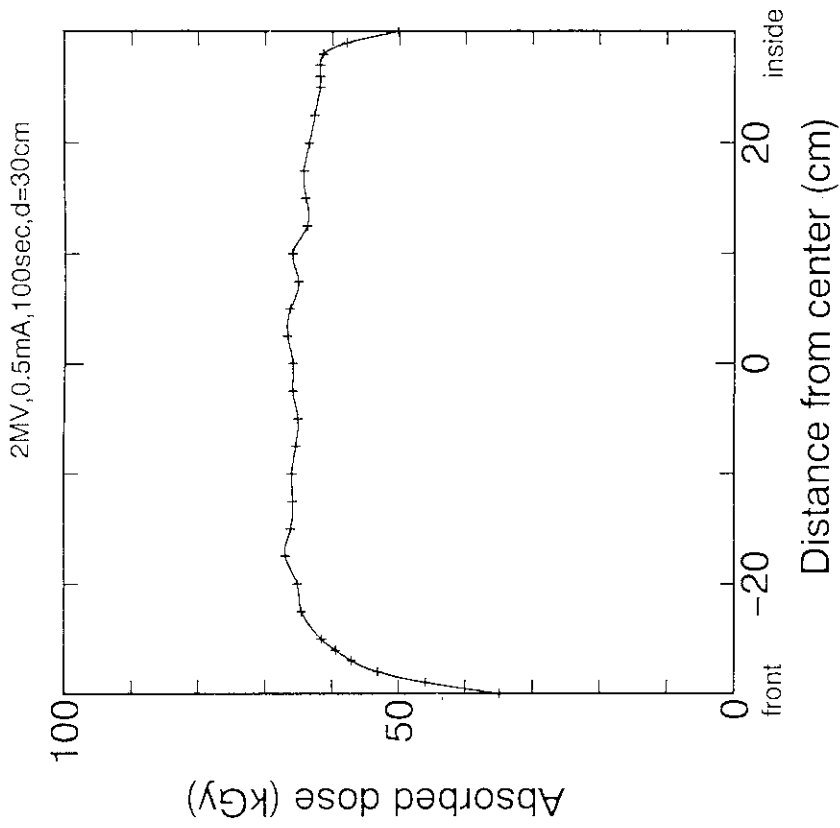


Fig.11 Dose distribution on X-axis direction in irradiation vessel. Electron beam are 2MV, 0.5mA, 100sec.

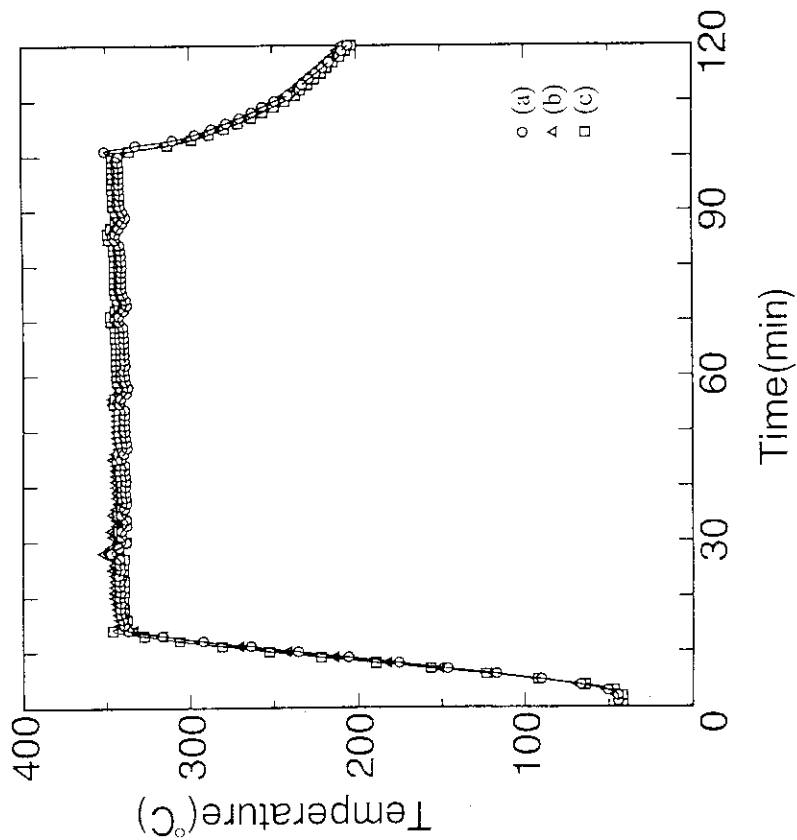


Fig.10 Temperature rise of irradiation vessel in the case that let electron beam increased from 0.2mA in 0.1mA.

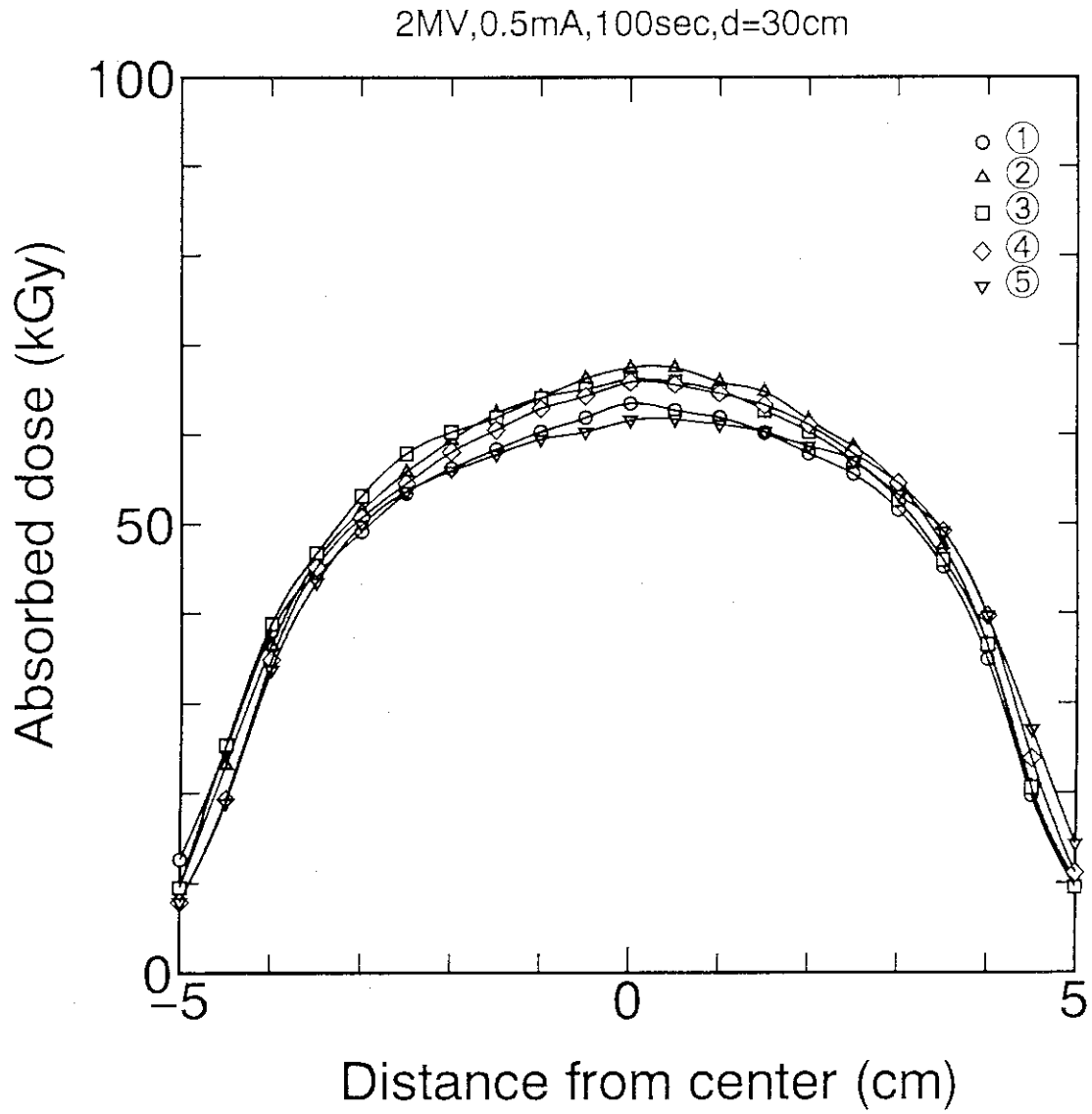


Fig.12 Dose distribution of Y-axis direction of irradiation vessel inside. Irradiation requirements are 2MV, 0.5mA, 100sec.

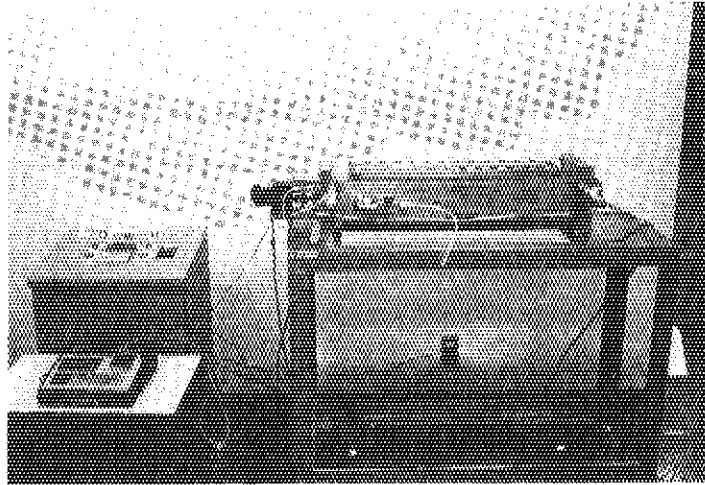


Photo.1 The outward appearance of irradiation equipment for the electron beam crosslink that produced it.

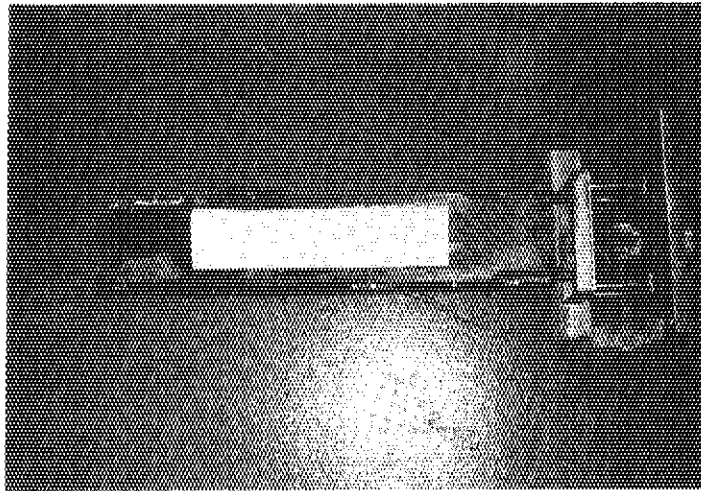


Photo.2 Sample holder in irradiation vessel.

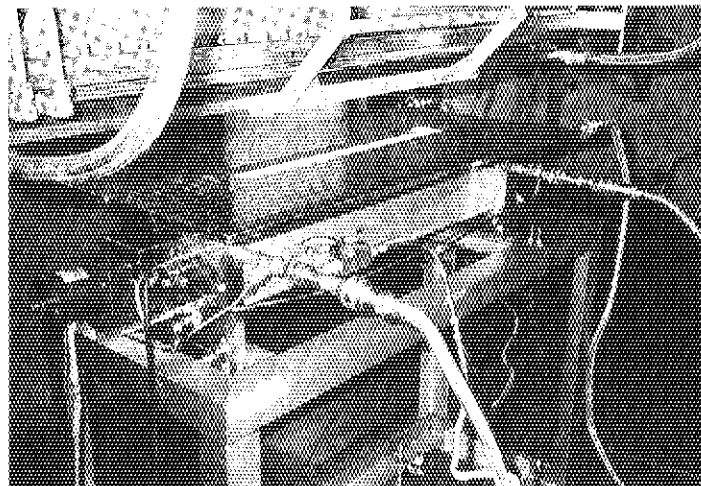


Photo.3 Irradiation vessel settled under electron accelerator.