

高分子系高性能遮蔽材の開発と応用に関する研究

三浦 俊正*、平尾 好弘*、金井 康二**、
石田 紀久***、小田野 直光***、頼経 勉***

Study on the Development and Application of High-Performance Shielding Materials of Polymer-Type

By

Toshimasa MIURA, Yoshihiro HIRAO, Yasuji KANAI, Toshihisa ISHIDA,
Naoteru ODANO, Tsutomu YORITSUNE

Abstract

It is necessary to make the shield structure of marine reactor lighter and smaller until nuclear ships are put into practical use. Meanwhile, efforts have been made to reduce the exposure of employees in nuclear facilities following instructions based on the ALARA spirit, which requires more shields. Development of high-performance shielding materials is one of the ways to meet these requirements which oppose each other. Such materials are also very useful for the transport or the storage technology of radioactive materials.

Studies are carried out to develop high-performance shielding materials that have good shielding performance for both neutrons and gamma rays and have low activation property. As raw materials, lead and boron or their chemical compounds and high hydrogen content monomers are selected. They are mixed and made into a solid state by using an ultraviolet curing system. Computational analysis of the materials proves their shielding and activation properties sufficiently well as expected. That is, an ordinary concrete shield can be replaced with the material of about half thickness. Furthermore, almost no change is observed in their weight when they are heated up to 100°C degree from room temperature.

Tentatively, one of the materials is applied as a compensational shield in irregularities, that is, a bent duct and an annular offset gap. Calculations prove that the application of the material to these shield defects is made successfully.

* 東海支所

** システム技術部

*** 日本原子力研究所

原稿受付 平成11年1月 5日

審査済 平成11年5月19日

-目次-

1. まえがき
2. 元素の選択と元素比率の決定
3. 液体遮蔽材の作成とゲル化手法の検討
 - 3.1 溶解実験
 - 3.2 アクリル酸鉛モノマー、ポリマーの作成
 - 3.3 メタクリル酸鉛モノマー、ポリマーの作成
 - 3.4 紫外線硬化モノマーによるゲル化の検討
4. 紫外線硬化法による遮蔽材の作成
 - 4.1 紫外線硬化法
 - 4.2 溶液の密度測定
 - 4.3 単官能基紫外線硬化モノマーによる遮蔽材の作成
 - 4.4 多官能基紫外線硬化モノマーによる遮蔽材の作成
 - 4.5 積層化
 - 4.6 高密度化
 - 4.7 中性子吸収材の検討
 - 4.8 高性能遮蔽材の元素密度
 - 4.9 温度特性
5. 遮蔽材 E-01 の遮蔽性能と放射化
 - 5.1 遮蔽計算
 - 5.2 計算結果と検討

6. まとめ

参考文献

[付録A] 高分子系高性能遮蔽材の補償遮蔽設計への適用

- A. 1 2回90度屈曲円筒ダクト
- A. 2 オフセット状円環ギャップ

[付録B] 硼素含有割合の遮蔽性能への影響

参考文献

1. まえがき

実用的な船用炉の実現化のためには、遮蔽構造の軽量・小型化が極めて重要な課題とされている⁽¹⁾。しかし、原子力施設の従事等に対する被曝低減化については、ARARAの思想に従い従前より不断の努力が続けられているが、安全性等のより一層の向上が要求されている。これらの背景から、遮蔽の軽量・小型化と一層の遮蔽性能の向上を同時に可能とするような高性能、高機能な遮蔽材料の技術開発を行うことが望まれている。これはまた、今後増加することが予想される放射性物質、あるいは放射性物質に汚染された物質の海上における運送・貯蔵に関する技術開発としても重要である。そこで、本研究ではそのような高性能遮蔽材の開発を目指して中性子およびガンマ線の双方に対する良好な遮蔽効果、良好な施工性、低放射化あるいは廃棄物処理を行う際問題が少ない等、遮蔽材料として望ましい特性を有する遮蔽材料の試作を行い、その性能評価等を行った。

原子炉で使用される遮蔽材は中性子及びガンマ線の双方に対して良い遮蔽性能を持つ必要がある。遮蔽材

の放射線に対する遮蔽性能は材料に含まれる元素の種類及び各元素の単位体積当りの数により決定される。ガンマ線に対して良い遮蔽性能を示す元素は一般的に密度の大きな物質であり、例えば、鉄、タングステン、タリウム、鉛、ビスマス、ウラン等がそうである。一方、良い中性子遮蔽材としての条件はガンマ線の場合のように単純ではない。条件の一つは水素の含有量の大きなこと⁽²⁾であるが、それだけでは十分とはいえない。中性子に対する遮蔽性能は元素の種類や中性子のエネルギーによって複雑に変化するので中性子と物質の反応断面積と反応の効果、及び中性子が物質と相互作用した結果発生する二次的な放射線、さらには中性子が吸収されることによる物質の放射化の効果を含めて考慮する必要がある。放射化は例えば原子炉の停止時における保守点検作業における被曝の原因となる。また、施設の解体撤去の際の廃棄物処理に伴う環境への影響を考えると放射化量をできるだけ少なくすることが望ましい。このようにいろいろな観点から最適な遮蔽材を見つける必要があるが、これは必ずしも容易ではない。実際には構造材としての性能や経済性等の点で有利なコンクリートや鉄が一般的な遮蔽材として使用され、また部分的には鉛、水、ポリエチレン等が使用される。表-1にこれらの材料の定性的評価を示す。これらの遮蔽材の遮蔽材としての性能の概略を述べると以下ようになる。

最もよく使用されるコンクリートには普通コンクリートと重コンクリートがある。普通コンクリートの密度は2.2～2.4でガンマ線に対する遮蔽性能はそれほどよくない。密度が3.7～4.8の重コンクリートの方が遮蔽性能はよいが高価である。また、重コンクリートは放射化量が多い。コンクリートの中性子遮蔽性能は含水量により大きく影響される。高温ではこの含水量が急速に減ることに注意する必要がある。鉄もコンクリートと同じようによく使用される。鉄は構造材として

表-1 一般的な遮蔽材の定性的評価

遮蔽材	遮蔽性能		2次γ線発生量	放射化	施工性	価格
	中性子	γ線				
コンクリート	△*	△	▲	▲	○	◎
鉄	▲	◎	■	■	○	○
鉛	▲	◎	△	◎	▲	▲
水	◎	■	▲	◎	◎	◎
ポリエチレン	◎	■	▲	◎	○	▲

*◎極めて良い、○良い、△まずまずである、

▲あまり良くない、■悪い

の強度が大きく、熱や放射線損傷にも強い。このため、他の遮蔽材の補強材としても用いられる。鉄の中性子遮蔽性能はそれほどよくない。しかし、高いエネルギーでは非弾性散乱断面積が大きいので水素より遮蔽性能がよくなる。鉄は中性子の捕獲や非弾性散乱によりエネルギーの高い二次ガンマ線を発生するため、それらに対する遮蔽を考慮する必要がある。鉄の放射化についてはそれ自体の他にそれに含まれる不純物であるマンガン、ニッケル、クロム、コバルト等も考慮する必要がある。鉛は機械的強度が小さく、融点が327度と低く熱に弱い、放射線損傷に強く、また放射化しにくい特徴を持つ。鉛の遮蔽性能はガンマ線に対しては優れているが中性子に対してはよくない。しかし、鉄と同じように高いエネルギーでは非弾性散乱断面積が大きいので水素より遮蔽性能がよくなる。水はよい中性子遮蔽材であるが中性子捕獲断面積が比較的大きく、2.23MeVの捕獲ガンマ線を100%放出することに注意する必要がある。また、放射線分解により水素ガスを発生することにも注意する必要がある。しかし、放射線損傷は小さい。ポリエチレンは一般的な遮蔽材のなかで最も中性子遮蔽効果の大きな物質である。しかし、熱に弱く40度℃位から柔らかくなり始める。また、放射線損傷に対しては弱い。中性子捕獲ガンマ線については水と同様である。従って、水やポリエチレンを中性子遮蔽材として使用する場合は捕獲ガンマ線に対する遮蔽材を併せて使用する必要がある。

一方、特殊な遮蔽材として最近我国等において開発されたあるいは開発中の遮蔽材としてはシリコンゴム系、ポリエチレン系、含水素金属系、セラミックス系、その他のものがある(表-2参照)。遮蔽材として望ましい点あるいは特性としては前述の遮蔽性能の他に化学的安定性、耐火性、施工性等の点で良いこと、使用後の廃棄物処理が容易、低価格である等があげられる。これらの点を考えるとこれらの遮蔽材はいずれも一長一短である。

本研究では中性子及びガンマ線の双方に対する良好な遮蔽効果、良好な施工性、低放射化あるいは廃棄物処理を行う際問題が少ない等遮蔽材料として望ましい多くの特性を有する遮蔽材料を開発する。水素の含有量が多い、いわゆる高含水素物質は水素の反応断面積が大きい中高エネルギーにおいて遮蔽性能が極めて良い。しかし、高エネルギーでは水素の断面積が小さくなるため遮蔽性能はよくない。また、熱エネルギーに近づくと水素に比べ圧倒的に断面積の大きな物質がいくつか存在する。さらに当然のことであるが高含水素物質は密度が小さいのでガンマ線に対する遮蔽性能は期待できない。そこで高エネルギー領域において非弾性散乱による減速効果が期待でき、またガンマ線の遮蔽効果のある鉛や鉄等の重い物質、低エネルギーにおける捕獲断面積の大きなカドミウムや硼素等の中性子

吸収材を高含水素物質の中に適当な形で取り込み固定させることにより新しい遮蔽材を作成することを試みる。遮蔽材の作成方法としてこれまで行われたものとして、焼結法、凍結・部分脱水法、粉末冶金法等があるが、本研究では界面活性剤を用いた溶解法、および紫外線硬化法⁽³⁾による材料作成法を検討する。また、新しい遮蔽材の開発を行う場合、それをどのように利用できるかを併せて明らかにしておくことも必要である。そこで、高性能遮蔽材の中性子及びガンマ線の混在場における遮蔽欠損部補償遮蔽設計⁽⁴⁾への適応性を調べた。この結果を付録Aに示す。

2. 元素の選択と元素比率の決定

物質の遮蔽効果は放射線の種類とエネルギーに依存して変化する。ガンマ線に関して遮蔽上考えねばならない反応は主に光電効果、コンプトン散乱、及び電子対生成である。これらの反応の断面積は、近似的にい

表-2 我国等において開発された、または開発中の遮蔽材

シリコン ゴム系	シリコンゴムに重金属粉末、金属酸化物、ホウ素化合物、ポリエチレン粉末、水素吸蔵合金を添加したものである。重金属粉末を混ぜたものはガンマ線用である。その他のものは主に中性子用であるが、数 MeV 以上の高エネルギー中性子に対する遮蔽効果は低い。水素吸蔵合金を添加したものは熱中性子を除く中性子及びガンマ線に対し良い遮蔽効果を示すが極めて高価である。耐熱性はポリエチレンを混ぜたものが70度と低い、その他のものは200度と樹脂系のものとしては比較的高い。
ポリエチ レン系	ポリエチレン樹脂にホウ素化合物を添加し、成型したものである。これはシリコンゴム系のものに比べ水素密度を大きくできるが、数 MeV 以上の高エネルギー中性子やガンマ線に対する遮蔽効果は低い。また耐熱性は約70度と低い。
含水素金 属系	ZrHやTiH等がある。これらは中性子及びガンマ線の双方に対して遮蔽効果は良いが極めて高価である。
セラミッ クス系	セラミックスに遮蔽機能を付加しようとするもの。
その他	放射化に重点をおいた低放射化コンクリート、高速炉用の遮蔽材として黒鉛、酸化ガドリニウム、タングステン、鉄を高温、高圧下で焼結させたもの等がある。

例えば、光電効果と電子対生成の場合はそれぞれ元素の原子番号 Z の5乗及び2乗に比例し、コンプトン散乱の場合は電子密度に比例する。それ故、ガンマ線に対する遮蔽性能は原子番号の大きな元素のほうが良いといえる。一方、中性子の物質中での挙動に係わる現象は図-1に示すように複雑である。まず高エネルギーで発生した中性子は物質と弾性あるいは非弾性散乱を起こしてエネルギーを減少または減速する。その後同様の減速を繰り返し最終的には物質を構成する原子核に吸収される。この間、中性子のエネルギーは大きく変化し、例えば平均エネルギーが約2MeVの核分裂中性子が熱中性子となる場合、約 $1/10^8$ となる。また、この過程において、非弾性散乱や吸収の際、二次的なガンマ線が発生する。吸収によって発生する捕獲ガンマ線はエネルギーが高いため透過力が強いので、その遮蔽は重要な問題である。また、中性子を吸収した原子核は放射化し、一定の半減期で崩壊しながら崩壊ガンマ線を放出する。これは原子炉等の施設の運転停止時に行う保守点検時における被曝の主な線源となる。図-2に中性子遮蔽における重要な元素の全断面積のいくつかを示す。一般に水素の含有量が大きな水やポリエチレンは良い中性子遮蔽材である。それは水素の1回の衝突あたりの中性子減速効果が大きいためである。しかし、図-2に示すようにその断面積は10keVを越えるあたりから減少し始め100keV以上から数MeVまではほぼ中性子速度に逆比例して減少する。数MeV以上ではさらに急速に減少する。このためエネルギーの高いところでは他の原子核と比べて遮蔽効果は高いとはいえない。図-2に示すように数MeV以上ではむしろ鉄や鉛のような重い核の方が遮蔽効果が高い。このエネルギー領域での中性子と重い核の主な反応は非弾性散乱である。例えば、鉄に10MeVの中性子が入射した場合、非弾性散乱により放出される中性子のエネルギーは10MeV以下1keV程度まで連続分布する。特に1MeV近

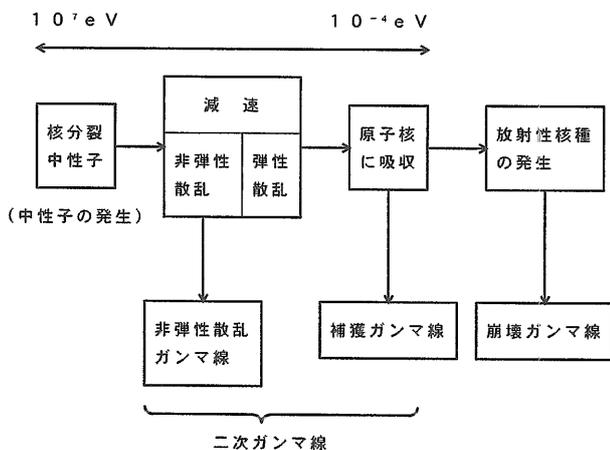


図-1 中性子の挙動と二次ガンマ線の発生

傍のエネルギーに落ちる確率が最も高い。これらのことからMeV領域の中性子の効果的な遮蔽方法として重い核の非弾性散乱により水素の減速効果が大きくなる領域までエネルギーを落とすことが考えられる。また、水素を多く含む物質は電子密度が小さくガンマ線に対する遮蔽効果はあまり期待できないが、重い元素を加えることによりガンマ線に対する遮蔽効果を大きくできるので都合がよい。エネルギーの低いところでは例えばカドミウムや硼素のように水素に比べ圧倒的に中性子吸収効果の高い物質がある(図-2参照)。このような中性子吸収材には、例えば硼素のように捕獲ガンマ線をほとんど発生しないものもある。中性子に対する

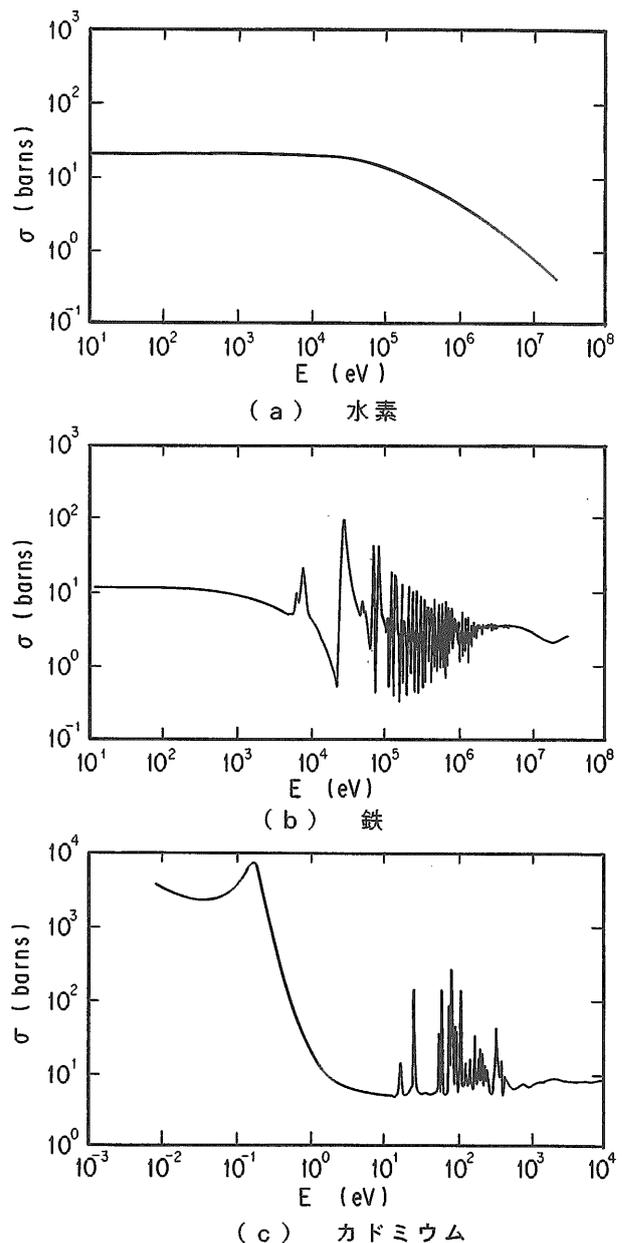


図-2 水素、鉄、カドミウムの全断面積

遮蔽性能を考える場合、二次ガンマ線に対する遮蔽効果を含める必要があるため、このような中性子吸収材を用いれば遮蔽効果を飛躍的に高められることが期待できる。従って、中性子遮蔽材に対しては(1)広いエネルギー範囲に渡る中性子遮蔽性能、(2)二次放射線の発生量とそれに対する遮蔽性能、(3)放射化量とその経時変化を考慮する必要がある。

本研究では(1)に対する観点からすでに示したように低エネルギーから高エネルギーの中性子に対し高含水素物質を、高エネルギー中性子及びガンマ線に対する重い物質として鉛化合物、低エネルギー吸収材として天然硼素化合物を選んだ。鉛化合物及び天然硼素化合物を選んだ理由は鉛及び硼素は放射化し難いこと、比較的安価で現実的であること等による。

これらの物質の混合割合は次のような条件で定めた。まず本遮蔽材は中性子を主な対象とする。しかし、ガンマ線に対しても普通コンクリート並の遮蔽性能を持たせる。これより、密度は2.2を目標とする。また、硼素の含有量は5重量%とする。これより水素、鉛、硼素の元素比率を次のように決定する。まず、水、鉛、天然硼素の混合により密度2.2の物質を作成とする。これらの比重はそれぞれ1.0、11.3及び2.3である。従って、これらの混合物1cm³中のそれぞれの体積をv₁、v₂、v₃とすると

$$v_1 + 11.3 \times v_2 + 2.3 \times v_3 = 2.2 \quad (1)$$

$$2.3 \times v_3 = 2.2 \times 0.05 \quad (2)$$

$$v_1 + v_2 + v_3 = 1 \quad (3)$$

となる。これを解くと

$$v_1 = 0.842 \quad (4)$$

$$v_2 = 0.110 \quad (5)$$

$$v_3 = 0.0478 \quad (6)$$

となり、これより原子数比率は

$$N_H : N_{Pb} : N_B = 5.63 \times 10^{22} : 3.63 \times 10^{21} : 6.12 \times 10^{21} \\ \approx 16 : 1 : 2 \quad (7)$$

となる。なお、硼素含有量の最適値を検討した結果を付録Bに示すが、核分裂線源の場合、遮蔽体が150cm以下であれば硼素含有量が0.2から5%の間で変化しても線量当量率の変化は小さい。

3. 液体遮蔽材の作成とゲル化手法の検討

原子炉等を対象とした場合最も効果的な遮蔽材としては、減速能の大きな高含水素物質、高エネルギーにおいて非弾性散乱による遮蔽効果が期待できる重い物質、低エネルギーにおいて吸収効果が期待できる中性

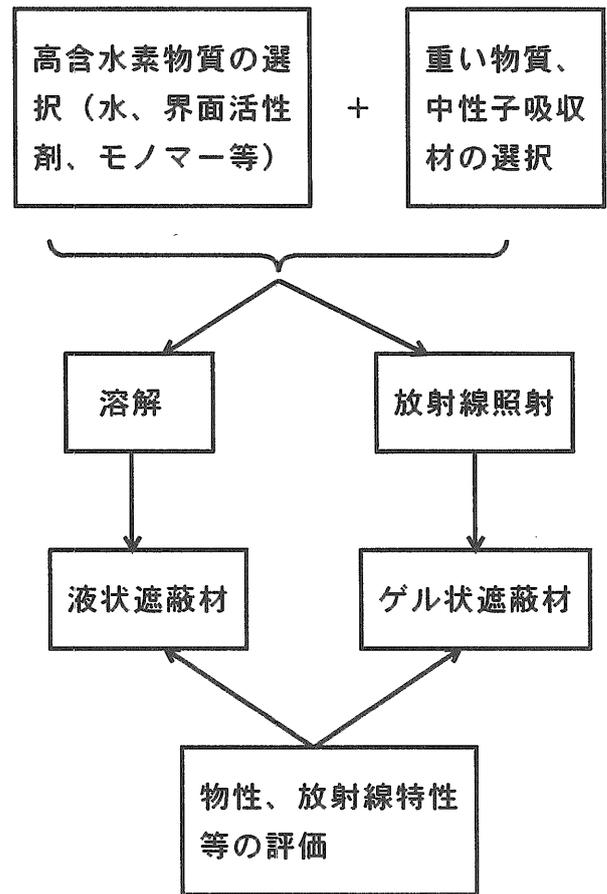


図-3 遮蔽材の作成方法

子吸収材を適切な比率で混合したものが考えられる。混合した物質を安定化させる方法としては溶解、乳化分散、化合、ゲル化等が考えられる。そこで図-3の高性能遮蔽材開発方法に示すように高含水素物質、重い物質、中性子吸収材等に対して含水素量、放射線特性、物質間の化学的相性、溶解方法、放射線硬化特性等について検討を行った上で適当な物質を選択、混合し、液状に溶解させるかまたは放射線照射により硬化させることにより遮蔽特性が良好かつ安定的な化学的性質を有する液状またはゲル状遮蔽材を開発することを試みる。

3.1 溶解実験

溶解に関する主な問題点は各物質の溶解度の大きさ、溶解度の温度による変化、及び各物質間の相性である。各物質間の相性は溶解度に大きな影響を与える。一般的に、鉛の化合物と硼素の化合物は水に溶解しにくい。従って、適切な界面活性剤を選択し、水中にミセルを作り、その中に鉛及び硼素の化合物を取り込むことにより溶解させる。ミセルとは界面活性剤が溶液内部で界面活性剤分子またはそのイオンが会合して生じる集合体である。このような溶液をコロイド溶液という。

また、互いに混合しない2液相の一方が他方にコロイド状に分散している系をエマルション（乳濁液）という。ここでは、鉛と硼素化合物を取り込むのに適したコロイドを作成する界面活性剤の選択、溶解条件等に関するデータを取得することを試みた。実験としては表-3に示す試薬の組合せで鉛化合物、硼素化合物、水、界面活性剤を混合分散させた。以下に実験例として試薬の組合せ1、2の場合について実験結果を示す。使用した界面活性剤は3種類で、それらの化学名、化学式、分子量を表-4に示す。分散液の作成は表-5に示す5種類の試薬の配合に対して行った。例えば、配合番号1-1の場合、鉛20.7g、硼酸12.4g、界面活性剤A、3.3gを乳鉢

表-3 試薬の組合せ

組み合わせ番号	試薬名	混合比率 (モル数)	備考
1	a 鉛(粉末)	1	Pb
	b 硼酸	2	H ₃ BO ₃
	c 水	5 - m x / 2	
	d 界面活性剤	x	水素分子換算
2	a 硼酸鉛	1	Pb(BO ₂) ₂ · H ₂ O
	b 水	7 - m x / 2	
	c 界面活性剤	x	水素分子換算
3	a 硝酸鉛	1	Pb(NO ₃) ₂
	b 硼酸	2	H ₃ BO ₃
	c 水	5 - m x / 2	
	d 界面活性剤	x	水素分子換算
4	a 鉛白	1	PbCO ₃ · Pb(OH) ₂
	b 硼酸	2	H ₃ BO ₃
	c 水	12 - m x / 2	
	d 界面活性剤	x	水素分子換算
5	a 酢酸鉛	1	Pb(CH ₃ COO) ₂ · 3H ₂ O
	b 硼酸	1	H ₃ BO ₃
	c 界面活性剤	適量	

[注] 表中mは界面活性剤の仮想分子式をH_m · Aとしたときのmである。

表-4 実験に使用した界面活性剤

	化学名	分子式	分子量
界面活性剤A	ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル	C ₃₅ H ₆₄ OR ₁₁	660
界面活性剤B	テトラメチル5デシン4,7ジオール(EO)	C ₂₂ H ₄₂ O ₆	402
界面活性剤C	ポリオキシエチレンアルキルエーテル	C ₁₉ H ₄₀ O ₄	332

に取り、よく混合した後、水6.1gを加え混合分散させた。その他の場合も同様にした。その結果、実験番号1-1、1-2の場合は混合分散直後はペースト状であったが、時間の経過とともに固形化し、上層部が白色、下層部が灰色となって分離し、安定性は不良であった。上層部は白色であるので鉛と硼酸が反応してできた硼酸鉛(白色)と硼酸、界面活性剤の水溶液、下層部は主として鉛(灰色)と考えられる。配合番号2-1、2-2、2-3の場合はいずれも混合分散直後はペースト状であったが、時間の経過とともに固形化した。水を所定量の2倍としても分離し、下層が固まり、安定性は不良であった。上層部は界面活性剤の水溶液、下層部(白色)は主として硼酸鉛と考えられる。

これらの実験例からもわかるように、鉛化合物を界面活性剤が作るコロイド粒子の中に閉じこめ、分散させて安定化させることはかなり難しいことが明らかとなった。その理由としては(1)鉛化合物と界面活性剤の相性(2)鉛化合物と界面活性剤の比重の差等があげられる。これらの問題は鉛化合物と界面活性剤が分離しているため起こることなので、両者を結合させれば解決できると考えられる。そこで、以下のように高分子有機鉛化合物を合成することにより安定した乳化分散液あるいはゲル化物をつくることを試みた。

3.2 アクリル酸鉛モノマー、ポリマーの作成

ここでは、アクリル系の化合物に酸化鉛、塩化鉛等を反応させアクリル酸鉛モノマーを合成し、補助剤として界面活性剤を用いて乳化重合させ分散液またはゲル化物の作成を試みた。以下に実験手順と結果を示す。

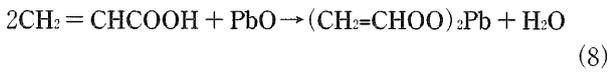
(1) アクリル酸鉛モノマーの合成

材料としてはアクリル酸[CH₂=CHCOOH]100gと酸化鉛155gを使用した。まず、攪拌機、ガス導入管、温度計及びコンデンサーを付けた500ccの四つ口フラスコの中へアクリル酸100gを入れ、窒素ガスを通しながら攪拌し、その中に酸化鉛155gを徐々に入れた。初めは反応熱により温度が上昇したが、コントロールしながら温度を100~105℃に保つと、約3時間で白色ペ

表-5 試薬の組合及び配合量(単位:g)

試薬名	配合番号				
	1-1	1-2	2-1	2-2	2-3
鉛	20.7	20.7	-	-	-
硼酸鉛	-	-	31.1	31.1	31.1
硼酸	12.4	12.4	-	-	-
水	6.1	8.6	9.7	11.8	11.9
界面活性剤A	3.3	-	3.3	-	-
界面活性剤B	-	0.4	-	0.8	-
界面活性剤C	-	-	-	-	0.4

ペースト状になったので冷却して反応物を取り出した。ここでは次式の反応が起こったと考えられる。



しかし、得られたものは水に不溶の比重約2.2の白色固形物であった。また、同様のことをメタクリル酸 $[\text{CH}_2=\text{C}(\text{CH}_3)\text{COOH}]$ を使用して行ったが、水に不溶の固形物となった。

(2) アクリル酸鉛モノマーのポリマー化

まず、以下のようにアクリル酸鉛モノマーを合成した。すなわち、(1)と同じ四つ口フラスコの中へ溶媒ジオキサン $[(\text{CH}_2\text{CH}_2)_2\text{O}_2]$ 200gと酸化鉛77.5gを仕込み、窒素ガスを通しながら攪拌し、その中にアクリル酸50gを徐々に加えた。初めは反応熱により温度が上昇したが、コントロールしながら温度を90~95℃に保つと、約1時間で白濁してきた。これを同温度範囲に保ちながら約5時間反応させると白色の分散液となった。これを冷却後ろ過し溶媒を取り除くと白色固形物の形でアクリル酸鉛モノマーが得られた。次に、同じフラスコに蒸留水120gと乳化剤ステアリン酸ナトリウム $[\text{C}_{17}\text{H}_{35}\text{O}_2\text{Na}]$ 5gを入れ溶解させ、その中に合成したアクリル酸鉛モノマー100gと開始剤過硫酸ナトリウム $[\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_8]$ 1gを入れ、窒素ガスを通しながら加熱攪拌して還流させた。反応開始約1時間後急激に反応しペースト状になったので停止剤ヒドロキノン $[\text{C}_6\text{H}_6\text{O}_2]$ を0.5gを加えたが、固化し水と分離し沈澱した。ろ過すると固い固形物を得られた。起こった反応は次式で示される。



結果として得られたものは固い白色固形物で水に不溶であった。

以上 (1) (2) で示したように、アクリル酸と酸化鉛を反応させ、アクリル酸鉛モノマーを合成したが生成物は固形物であり、乳化重合しても乳化分散液にならず水不溶の固形物となった。ポリマー化しても同様な結果となった。

3.3 メタクリル酸鉛モノマー、ポリマーの作成

ここでは、アクリル酸をメタクリル酸に換え3.2と同様の実験を行った。

(1) メタクリル酸鉛モノマーの合成

材料としてはメタクリル酸100gと酸化鉛130gを使用した。まず、攪拌機、ガス導入管、温度計及びコンデンサーを付けた1000ccの四つ口フラスコの中へジオキサン400gと酸化鉛130gを入れ、窒素ガスを通しながら攪拌し、その中にメタクリル酸100gを徐々に加えた。

初めは反応熱により温度が上昇したが、コントロールしながら温度を90~95℃に保ちながら約5時間反応させると淡いピンク色の分散液となる。この反応物を冷却し、約40℃でエバポレータにてジオキサンを回収すると、結晶物が析出したのでこれを濾過し、結晶物をデシケータにて乾燥した。得られたものは水に不溶の淡黄白色の固形物であった。

(2) メタクリル酸鉛モノマーのポリマー化

(1)と同様の500ccフラスコに蒸留水200ccとメタクリル酸鉛モノマー $[(\text{CH}_2=\text{C}(\text{CH}_3)\text{COO})_2\text{Pb}]$ 80gを仕込み、窒素ガスを通しながら攪拌し、その中に開始剤過硫酸ナトリウム1gを加え還流させる。約5時間反応させるとペースト状となったので、停止剤ヒドロキノン0.5gを加え、冷却し濾過した。これを乾燥させると水に不溶の硬い淡黄色の固形物となった。

以上3.2と3.3に示したように、この方法では分散液、または高含水素なゲルまたは固体の物質を作成することは難しいと考えられる。この方法については今後さらに検討することとするとし、紫外線硬化法によるゲル状遮蔽材の作成に関する予備実験を行った。

3.4 紫外線硬化モノマーによるゲル化の検討

ここでは鉛及び硼化合物と紫外線硬化モノマーを混合分散した場合、ゲル化が可能かどうか、また、可能な場合どのような種類の紫外線硬化モノマーが適しているか検討を行った。紫外線硬化法の詳細については4章に示す。表-6に予備実験で使用した紫外線硬化モノマーを示す。また、紫外線硬化実験全体を通して使用した主な光開始剤を表-7に示す。表-6の紫外線硬化モノマーは一般的によく使用されているもので、官能基数が1(単官能基)と3(多官能基)のものを選んだ。実験結果を表-8に示す。同表にはモノマー、鉛化合物、硼素化合物の組合せと配合比、及びこれらの混合物への紫外線照射結果を示した。光開始剤は実験A-02とA-12を除くと表-7の1を0.06モル、実験A-02は表-7の2を

表-6 予備実験で使用した紫外線硬化モノマー

	化学名	構造式	分子量	官能基数
モノマーA	ペンタエリスリトールトリアクリレート	$\text{HOCH}_2(\text{CH}_2\text{COOCH}=\text{CH}_2)_3$	298	3
モノマーB	トリメチロールプロパントリアクリレート	$\text{C}_2\text{H}_5-\text{C}(\text{CH}_2\text{COOCH}=\text{CH}_2)_3$	296	3
モノマーC	テトラヒドロフルフリルアクリレート	$\text{CH}_2=\text{CHCOOCH} \begin{matrix} \text{H} \\ \\ \text{C} \end{matrix}$	156	1
モノマーD	2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピリアクリレート	$\text{CH}_2=\text{CHCOOCH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2 \begin{matrix} \text{OC}_6\text{H}_5 \\ \end{matrix}$	222	1

表7 実験に使用した光開始剤

	化学名	分子式	分子量	$\lambda_{\max}^{1)}$ (nm)
光開始剤1	メチルベンゾイルホルメート	$C_9H_8O_3$	164	255
光開始剤2	1, 1ビス(4-tertブチルペロキシ, 3, 3, 5トリメチルシクロヘキサン)	$C_{13}H_{24}O_4$	302	- ²⁾
光開始剤3	ベンゾフェノン	$C_{13}H_{10}O$	164	360
光開始剤4	2-メチル-1-(4-(メチルチオ)フェニル)-2-モルホリノプロパノン-1	$C_{15}H_{21}O_2$ -SN	279	305

1) 最大吸収波長、2) 不明

表8 紫外線硬化法予備実験結果

実験番号	モノマー* (モル数)	混合材 (モル数)	結果
A-01	A (0.74)	硼酸鉛 (1.0)	ペースト状の混合分散液をコーティングし、紫外線照射すると白色の硬くて脆いゲル化物が得られた。
A-02	B (0.7)	硼酸鉛 (1.0)	ペースト状の混合分散液を130℃で30分間加熱ゲル化すると白色の硬くて脆いゲル化物が得られた。
A-03	C (1.17)	硼酸鉛 (1.0)	ペースト状の混合分散液をコーティングし、紫外線照射すると表面は柔軟性があるが内部は脆い不均質なゲル化物が得られた。
A-04	C (1.5)	硼酸鉛 (1.0)	流動性の分散液をコーティングし、紫外線照射するとシートの厚さが約1mm以下であると白色の柔軟性のあるゲル化物となる。シートの厚さが約2mmとなると紫外線照射のみではゲル化しないので80℃で2時間加熱すると完全にゲル化する。
A-05	D (1.0)	硼酸鉛 (1.0)	ペースト状の混合分散液をコーティングし、紫外線照射すると白色の柔軟性のあるゲル化物が得られた。
A-06	C (0.54) D (0.54)	硼酸鉛 (1.0)	ペースト状の混合分散液をコーティングし、紫外線照射すると白色の柔軟性のあるゲル化物が得られた。
A-07	C (0.83)	鉛 (1.0) 硼酸 (2.0)	混合分散物をコーティングし、紫外線照射すると灰黒色の柔軟性のあるゲル化物が得られた。
A-08	C (0.78)	鉛白 (0.33) 硼酸 (2.0)	混合分散物をコーティングし、紫外線照射すると白色の柔軟性のあるゲル化物が得られた。
A-09	C (1.08)	硝酸鉛 (1.0) 硼酸 (2.0)	混合分散物をコーティングし、紫外線照射すると部分的に黄色い白色の柔軟性のあるゲル化物が得られた。
A-10	C (0.08 3)	酢酸鉛 (1.0) 硼酸 (1.0)	混合分散物をコーティングし、紫外線照射したがゲル化物は得られなかった。
A-11	C (0.39) D (0.39)	鉛 (1.0) 硼酸 (2.0)	混合分散物をコーティングし、紫外線照射すると灰黒色の柔軟性のあるゲル化物が得られた。
A-12	C (0.38) D (0.38)	酸化鉛 (1.0) 硼酸 (2.0)	混合分散物をコーティングし、紫外線照射すると灰黒色の柔軟性のあるゲル化物が得られた。しかし、収縮縮が多い。
A-13	D (0.71)	鉛 (1.0) 硼酸 (2.0)	混合分散物をコーティングし、紫外線照射すると黒色の柔軟性のあるゲル化物が得られた。

*本欄のモノマーは表6に示すものである。

0.03モル、実験A-12は表7の1を0.12モルをそれぞれ使用した。各物質の配合量は(4)式を満たすように決定した。実験の詳細は以下の通りである。すなわち、例えば実験A-01ではモノマーAを11g、硼酸鉛15.5g及び光開始剤0.5gを乳鉢に取りよく混合分散させ、ペースト状になった混合分散物をガラス板上にコーティン

グし、紫外線照射装置にて紫外線照射すると白色のゲル化物が得られた。しかし、その性状は硬くて脆く、遮蔽材として不適であった。また、実験A-04では流動性の混合分散液をビニールシート上にコーティングし、紫外線照射すると厚さ1mm程度の白色の1様で柔軟性のあるゲル化物が得られた。しかし、シートの厚さが2mm程度になると紫外線照射のみでは内部までゲル化しなかったため80℃で2時間加熱すると完全にゲル化した。その他は表8の結果の欄に示すと通りである。

以上紫外線硬化モノマーを使用して鉛化合物と硼素化合物をゲル化した結果、単官能基の紫外線硬化モノマーであるテトラヒドロフルフリルアクリレートあるいは2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピルアクリレートを使用した場合は良い結果が得られた。また、これら2種類の紫外線硬化モノマーを混合しても柔軟性のあるゲル化物ができることを確認した。ただし、混合物のシートの厚さが約1mm程度であると紫外線照射のみでゲル化するが、シートの厚さが約2mm以上になると紫外線照射のみではゲル化不足となる。この場合には80～130℃の加熱によりゲル化を促進できた。これに対して3官能基紫外線硬化モノマーの場合は硬化物が脆く均質なものができなかった。

4. 紫外線硬化法による遮蔽材の作成

各種の材料を混合し、光や放射線の照射によりゲル状に硬化させ遮蔽材を作成する手法としては、前章で示した紫外線硬化法他、電子線硬化法、ガンマ線硬化法、可視光による硬化法等がある。これらの硬化技術は照射放射線(あるいは光)が異なるが、使用する硬化材料等に関して共通する部分が多いので、紫外線硬化法を中心に、その説明を以下に示す。

4.1 紫外線硬化法⁽³⁾

紫外線硬化法は図4に示すように反応性樹脂組成物に高圧水銀ランプ等から放射される紫外線を照射して、フリーラジカルを発生させ、樹脂組成物をラジカル重合またはイオン重合および架橋等の化学反応を経て高分子(ポリマー)化する技術である。これまでの実験で使用した紫外線硬化モノマーとその構造式が表6に示されているが、主原料の光重合性オリゴマーやモノマーはアクリロイル基(表6参照)等の光重合性の大きな官能基を1個ないし数個持っているが、活性種がないと、このままでは重合しにくい。また、紫外線を照射してもそのエネルギーが約4eVと低いためラジカルを発生しにくいので、入射紫外線の波長域に吸収があり、励起状態から効率よくフリーラジカルを発生する化合物である光開始剤を添加する必要がある。光開始剤は紫外線の特定波長のものを吸収し、励起状態となりラジカルを発生する。これに関しては照射する紫外線の波長スペクトルと光吸収剤の吸収特性の整合を

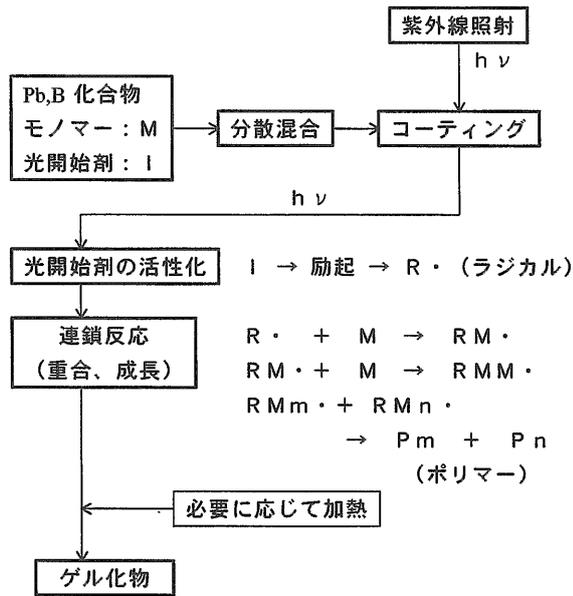


図4 紫外線硬化法によるゲル化 (ラジカル重合機構)

とり、硬化の効率化を図る必要がある。ラジカルを発生するとオリゴマー、モノマーと反応し重合が成長して高分子が作られることになる。この際、官能基の数が2個以上あると架橋が起こりゲルは三次元立体構造となるが、単官能基の場合は架橋は起こらない。架橋の数が多くなると一般にゲルは硬くなり強度が増し、また耐放射線性や耐熱性が向上することが予測されるが、同時に脆くなる傾向があるため、必ずしも、架橋の数が多いほど性状が良いとはいえない。また、このような性状は硬化材料に遮蔽材料を混ぜ合わせた場合変化する。この点に関しては全くデータがないので、実験的に調べる必要がある。電子線硬化法とガンマ線硬化法の場合は入射放射線のエネルギーが100keV以上と紫外線に比べて桁違いに大きいので開始剤は必要としない。また、ガンマ線の場合は透過力が強いので厚い材料を一度に硬化させることができる可能性がある。しかし、電子線およびガンマ線の場合は硬化のための照射がゲル化物の劣化を起こす原因ともなりうるので注意する必要がある。

4.2 溶液の密度測定

紫外線硬化モノマーと鉛化合物等の混合材を混ぜた状態は通常溶液である。これに紫外線を照射すると多少の収縮はありうるがそのままの容積でゲル化すると考えられる。従って、溶液の密度が2.2に近いことが必要である。そこで、6種類の材料の温度変化に伴う密度を測定した。測定には比重計として容量50ccの比重カップを、また、温度を変えるため低温恒温器及び定温恒温器を使用した。結果を表-9に示す。測定は0℃以上で行った。70℃以上になると硬化等の状態変化が起

表-9 溶液の密度測定結果 (単位: g/cm³)

実験番号	モノマー (モル数)	遮蔽材 (モル数)	温度 (℃)							
			0	10	20	30	40	50	60	70
B-01	C(1.0)	硼酸鉛(1.5)	2.026	2.021	2.015	2.012	2.003	1.994	1.987	1.973
B-02	C(0.54) D(0.54)	硼酸鉛(1.0)	2.192	2.159	2.144	2.131	2.116	2.100	2.091	2.085
B-03	C(1.08)	硝酸鉛(1.0) 硼酸 (2.0)	2.214	2.200	2.195	2.194	2.191	2.186	2.182	2.176
B-04	C(0.38) D(0.38)	鉛 (1.0) 硼酸 (2.0)	2.046	2.043	2.042	2.039	2.037	2.031	2.019	2.016
B-05	D(0.26)	鉛 (1.0) 硼酸 (1.0)	2.978	2.975	2.942	2.930	2.924	2.910	2.897	2.889

*本欄のモノマーは表6に示すものである。

こったため測定温度範囲は70℃以下とした。温度が高くなると膨張により密度が小さくなるが、表-9のB-02、B-03の場合はほぼ予定の密度が得られている。同じくB-01、B-04の場合は多少密度が小さめとなっているので、密度を2.2にするには硼酸鉛あるいは鉛の割合を増やす必要がある。しかし、これは遮蔽材としての必須条件ではないので以後の実験では変更を行わない。温度変化に伴う密度の変化量はB-03、B-04が小さい。B-04は比較的大きな密度変化をする。溶液の密度測定を行った結果、0℃から70℃の間で硬化を行えば、硬化の際の収縮も多少期待できるので、密度2.2は達成できると考えられる。また、表-9のB-05の結果から、密度が3程度のものの可能性も得られた。

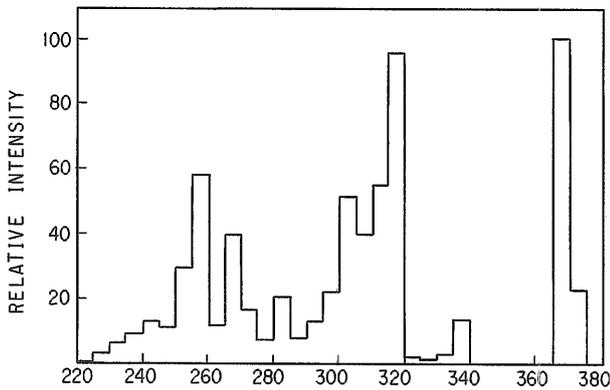
4.3 単官能基紫外線硬化モノマーによる遮蔽材の作成

3章の予備実験で明らかとなったように、多官能基モノマーより単官能基モノマーを用いてゲル化物を作成した方が作成しやすい。そこで、まず、単官能基紫外線硬化モノマーによる遮蔽材の作成を試みるため、単官能基モノマーの調査を行い、それぞれのモノマーについて含水素量を計算し、水素の含有量の大きなものを5種類選択した。選択した5種類のモノマーを表-10に示す。これらのモノマーの単位体積当たりの水素量は予備実験で最もよく用いたテトラヒドロフルフリルアクリレートに比べると23~31%多く、水の場合の90~96%程度になる。ここでは、鉛、硼素、及び水素以外の元素をできるだけ少なくするように、また前章の予備実験の結果を踏まえて15ケースの配合について遮蔽材の作成実験を行った。使用した紫外線照射装置は東芝製のトスキュア401である。照射した紫外線の波長は257~370nmで、その強度は照射試料の位置で70mW/cm²以上である。図-5に紫外線スペクトルを示す。表-11に各実験ごとのモル数換算での配合比、紫外線照射時間及び結果を示す。光開始剤としては表-7の1,3,4を使用した。この結果、全般的に見ると遮蔽材と

表-10 水素密度の大きな単官能基紫外線硬化モノマー

	化学名	分子式	分子量	比重 (g/cm ³)	水素密度 (/cm ³)
モノマーE	長鎖脂肪族アクリレート	C ₁₅ H ₂₈ O ₂	239	0.87	6.13 × 10 ²²
モノマーF	イソデシルメタアクリレート	C ₁₄ H ₂₈ O ₂	226	0.87	6.02 × 10 ²²
モノマーG	ラウリルアクリレート	C ₁₅ H ₂₈ O ₂	240	0.87	6.10 × 10 ²²
モノマーH	ステアリルアクリレート	C ₂₁ H ₄₀ O ₂	324	0.86	6.36 × 10 ²²
モノマーI	ステアリルメタアクリレート	C ₂₂ H ₄₂ O ₂	338	0.86	6.43 × 10 ²²

図-5 紫外線照射装置からの紫外線スペクトル



して硼酸鉛を用いた場合はいずれも良い硬化状態が得られなかったが、硝酸鉛と硼酸または鉛と硼酸を組合せると良い結果が得られる傾向にあることがわかった。イソデシルメタクリレート（モノマーF）を用いた場合は硬化が難しく、ゲル化しても不完全であった。従って、このモノマーはここで用いた混合材との組み合わせには適していないことが明らかとなった。また、良い結果が得られる場合は紫外線の照射時間が数分程度と短い傾向にある。なお、ステアリルメタクリレートは熱硬化を併せて考慮する必要がある。

4.4 多官能基紫外線硬化モノマーによる遮蔽材の作成

多官能基モノマーを用いた遮蔽材に作成については、系統的な組合せを行ってはいない。しかし、単官能基の場合と同様にモノマーの調査を行い、水素含有量の大きなものを4種類選択した。これを表-12に示す。これらの多官能基モノマーの水素密度はアルキル変性ジペンタエリスリトールトリアクリレートを除くと、表-10の単官能基の場合に比べて少ない。多官能基モノマーに対しては4種類の実験を行った。結果を表-13に示す。多官能基モノマーを用いた場合、紫外線照射によ

表-11 単官能基モノマーによるゲル化物作成結果

実験番号	モノマー* (1モル)	混合材 (モル数)	UV照射時間	結果
C-01	E	硼酸鉛 (1.9)	5分	紫外線照射するとひび割れが生じ、白色の粉末状皮膜となった。
C-02	E	鉛 (3.3) 硼酸 (6.6)	6分	黒色で柔軟性のある、均一なゲル化物が得られた。
C-03	E	硝酸鉛 (3.2) 硼酸 (6.4)	6分	淡黄色で柔軟性のある、均一なゲル化物が得られた。
C-04	F	硼酸鉛 (1.8)	5分	混合物は粉末状になり、紫外線照射しても硬化しない。
C-05	F	鉛 (3.1) 硼酸 (6.2)	10分	混合物は低粘度の液状であったが紫外線照射しても硬化しなかった。
C-06	F	硝酸鉛 (3.0) 硼酸 (6.0)	5分	淡黄色の硬化物が得られたが、未硬化モノマーが残り、ゲル化は不完全であった。
C-07	G	硼酸鉛 (2.0)	10分	混合物は粉末状になり、紫外線照射しても硬化しない。
C-08	G	鉛 (3.3) 硼酸 (6.6)	3分	黒色で柔軟性があり均一なゲル化物が得られた。
C-09	G	硝酸鉛 (3.2) 硼酸 (6.4)	3分	淡黄色で柔軟性があり均一なゲル化物が得られた。
C-10	H	硼酸鉛 (3.2)	10分	混合物は粉末状になり、紫外線照射しても硬化しない。
C-11	H	鉛 (4.7) 硼酸 (9.4)	6分	黒色で硬いゲル化物が得られた。ただし、多少未硬化モノマーが認められた。
C-12	H	硝酸鉛 (4.5) 硼酸 (9.0)	3分	淡黄色で硬い均一なゲル化物が得られた。
C-13	I	硼酸鉛 (3.3)	20分	混合物は粉末状になり、紫外線照射しても硬化しない。
C-14	I	鉛 (4.7) 硼酸 (9.4)	6分	黒色で硬い硬化物が得られた。ただし、一部は熱により硬化した可能性がある。
C-15	I	硝酸鉛 (4.5) 硼酸 (9.0)	3分	部分的に黄色い白色の硬化物が得られたが、ひび割れを生じた。

*本欄のモノマーE~Iは表10のモノマーに対応する。

る硬化時間は単官能基モノマーの場合に比べてかなり短い傾向にある。硬化物が硬いのは架橋が起こっているためである。しかし、硬化物が硬いこと、ゲル化に伴い収縮が起こること、硬化時間が短いこと等のため硬化物に割れが生じやすいことがわかった。4種類の実験ではD-01とD-04の結果が比較的良い。これらについては硬化度や照射条件等今後さらに調べる必要がある。

表-12 水素密度の大きな多官能基紫外線硬化モノマー

	化学名	分子式	分子量	比重 (g/cm ³)	水素密度 (/cm ³)
モノマーJ	アルキル変性ジペンタエリスリトールトリアクリレート	C ₃₁ H ₅₂ O ₁₀	584	1.15	6.17 × 10 ²²
モノマーK	ポリエチレングリコール #600ジアクリレート	C ₂₂ H ₄₂ O ₁₇	708	1.12	5.61 × 10 ²²
モノマーL	ポリプロピレングリコール #400ジアクリレート	C ₂₃ H ₄₀ O ₁₂	536	1.02	5.59 × 10 ²²
モノマーM	ポリプロピレングリコール #400ジメタクリレート	C ₂₅ H ₄₄ O ₁₂	536	1.01	5.63 × 10 ²²

表-13 多官能基モノマーによるゲル化物作成結果

実験番号	モノマー* (1モル)	混合材 (モル数)	UV照射時間	結果
D-01	J	鉛 (4.8) 硼酸 (9.7)	3分	黒色で硬い硬化物が得られた。
D-02	K	鉛 (6.2) 硼酸 (12.4)	12秒	黒色で硬い硬化物が得られたが、全面に大きな割れを生じた。
D-03	L	鉛 (6.2) 硼酸 (12.4)	30秒	黒色で硬い硬化物が得られたが、全面に大きな割れを生じた。
D-04	M	鉛 (5.7) 硼酸 (11.5)	9分	黒色で硬い硬化物が得られた。しかし、表面が多少ねばついている。

*本欄のモノマーは表12に示すものである。

4.5 積層化

紫外線は透過距離が短いため一回の紫外線照射で作成できるゲル化物の厚さは1~2mm程度のものである。しかし、実用的な遮蔽材としてはある程度厚い材料が必要である。紫外線硬化法を用いて厚い材料を作成するには、薄いゲル化物を積層化する方法が考えられる。すなわち、遮蔽材料、紫外線硬化モノマー及び光開始剤の混合分散液をビニールシート上にコーティングしたものに紫外線照射を行い、さらに、できあがったシート状のゲル状材料の上に混合分散液をコーティングし紫外線照射する行程を繰り返す。この方法でいくつかの材料の配合に対して紫外線硬化実験を行った。結果を表-14に示す。単官能基モノマーとの組み合わせでは、硝酸鉛と硼酸を混合した場合良い結果が得られている。鉛と硼酸を混合した場合は組み合わせるモノマーにより結果が異なり、ステアリルアクリレートとの組み合わせでは比較的良い結果が得られたが、その他の場合は必ずしも良い結果ではない。これらについては照射条件等の改善を図る等の検討が必要がある。多官能基モノマーの場合は実験番号E-15の場合良い結果が得られたが、その他の場合はいずれも収縮が大きいため良い結果は得られていない。E-16とE-17では単官能基モノマーの場合に比べ反応速度が早く、これが割れの原因ともなっている。従って、紫外線照射率を少なくすることなどにより反応速度を小さくして作成することを試みることも必要である。

4.6 高密度化

以上の遮蔽材は密度2.2となるよう作成した。しかし、中性子とガンマ線の混在場で使用する場合、ガンマ線の中性子に対する割合が大きな場合、密度のより大きなものが求められることが考えられる。そこで、密度が3程度になるように遮蔽材料と紫外線硬化モノマーの割合を変えてゲル化物の作成を行った。この場合、モノマーの割合が減るため硬化が難しくなる。従って、これまでの実験結果から、比較的硬化しやすい単官能基モノマーを使用した。結果を表-15に示すが、今回の

表-14 ゲル化物積層化実験結果

実験番号	モノマー* (モル数)	混合材 (モル数)	UV照射時間	結果
E-01	E(1.0)	鉛 (3.3) 硼酸 (6.6)	18分	黒色で柔軟性のあるゲル化物を得たが、適正な紫外線の照射率の範囲が狭い。
E-02	E(1.0)	鉛 (2.9) 硼酸 (4.4)	18分	混合材の量を減らすことにより、硬化特性の改善を試みたが、良い結果は得られなかった。
E-03	E(1.0)	硝酸鉛 (3.2) 硼酸 (6.4)	18分	淡黄色で密着性の良い柔軟性のあるゲル化物を得た。
E-04	E(1.0)	硝酸鉛 (2.8) 硼酸 (4.3)	18分	淡黄色で密着性の良い柔軟性のあるゲル化物を得た。
E-05	G(1.0)	鉛 (3.3) 硼酸 (6.6)	30分	黒色で表面が僅かに白色の極めて柔らかいゲル化物を得た。しかし、適正な紫外線照射率の範囲が狭い。
E-06	G(1.0)	鉛 (2.9) 硼酸 (4.4)	30分	混合材の量を減らすことにより、硬化特性の改善を試みたが、良い結果は得られなかった。
E-07	G(1.0)	硝酸鉛 (3.2) 硼酸 (6.4)	18分	黄白色で密着性が良好な柔軟性のあるゲル化物を得た。
E-08	G(1.0)	硝酸鉛 (2.9) 硼酸 (4.3)	18分	黄白色で密着性が良好な柔軟性のあるゲル化物を得た。
E-09	H(1.0)	鉛 (4.7) 硼酸 (9.4)	24分	表面が黄白色で全体が黒色の室温では硬く、また40℃では柔らかく弾力性のあるゲル化物が得られた。
E-10	H(1.0)	鉛 (4.0) 硼酸 (6.1)	24分	表面がごく一部白色で全体が黒色の室温では硬い固体を得たが、30℃以上では脆くなり、内部が一部未硬化であると推定される。
E-11	H(1.0)	硝酸鉛 (4.5) 硼酸 (9.0)	25分	淡黄色で硬く密着性の良いゲル化物が得られた。
E-12	H(1.0)	硝酸鉛 (3.9) 硼酸 (5.9)	25分	淡黄色で硬く密着性の良いゲル化物が得られた。
E-13	I(1.0)	鉛 (4.7) 硼酸 (9.4)	30分	黒色で硬い硬化物が得られた。ただし、一部は熱により硬化した可能性がある。

表-14 ゲル化物積層化実験結果 (続き)

実験番号	モノマー* (モル数)	混合材 (モル数)	UV照射時間	結果
E-14	I(1.0)	硝酸鉛 (4.6) 硼酸 (9.2)	30分	淡黄白色の硬い硬化物が得られた。ただし、一部は熱により硬化した可能性がある。塗布は80℃で行った。
E-15	J(1.0)	鉛 (4.8) 硼酸 (9.7)	18分	黒色で硬い硬化物が得られた。
E-16	K(1.0)	鉛 (6.2) 硼酸 (12.4)	1分	黒色で硬い硬化物が得られたが、紫外線照射による収縮が大きく全面に大きな割れを生じた。
E-17	L(1.0)	鉛 (6.2) 硼酸 (12.4)	3分	黒色で硬い硬化物が得られたが、紫外線照射による収縮が大きく全面に大きな割れを生じた。
E-18	M(1.0)	鉛 (5.7) 硼酸 (11.5)	45分	やや表面がねばねばした黒色で硬い硬化物が得られた。

*本欄のモノマーは表10、表12及び表13に示すものである。

実験では満足する結果は得られなかった。しかし、F-03~F-06の場合は反応が不均一に起こったことが不完全な硬化の原因と考えられるので、これらについて改良することにより密度3程度の遮蔽材作成の可能性は大きいと考えられる。

表-15 高密度遮蔽材作成結果

実験番号	モノマー* (モル数)	混合材 (モル数)	UV照射時間	結果
F-01	C (1.0)	硼酸鉛 (2.0)	10分	粉末状の硼酸鉛の割合が多いため、コーティングが難しく、硬化物は得られなかった。
F-02	C (0.18)	硝酸鉛 (1.0) 硼酸 (1.0)	10分	粉末状の硼酸鉛の割合が多いため、コーティングが難しく、硬化物は得られなかった。
F-03	D (0.26)	鉛 (1.0) 硼酸 (1.0)	65秒 (5分)**	黒色の柔軟性のあるゲル化物が得られた。しかし、積層化を試みると、各層の密着性が良くなかった。
F-04	E (1.0)	鉛 (6.4) 硼酸 (6.4)	3分 (18分)	未硬化物が多く、硬化物は脆く、膨れが見られた。
F-05	G (1.0)	鉛 (6.5) 硼酸 (6.5)	3分 (24分)	黒色で表面が一部白色の極めて柔らかいゲル化物を得た。しかし、ひび割れや膨れが認められることから、内部に未硬化部分が存在すると考えられる。
F-06	H (1.0)	鉛 (8.8) 硼酸 (8.8)	4分 (24分)	表面がごく一部白色で全体が黒色の室温では硬い固体が得られたが、モノマーの融点(30℃)以上では弾性はあるものの脆く内部は一部未硬化と考えられる。

*本欄のモノマーは表6、表10に示すものである。
**括弧内の時間は約1cmの厚さに積層化するため必要な照射時間

4.7 中性子吸収材の検討

本研究においては、これまで中性子吸収材として硼素を用いてきた。硼素の長所は放射化に関する問題が少ないことにある。しかし、中性子との反応によりヘリウムを発生するのでヘリウムガスがたまることにより物性的に問題が起こる可能性がある。そこで、水素と鉛の量に影響を与えず硼素の量を変化させやすい物質として炭化硼素、また他の中性子吸収材としてカドミウムの適用性を調べた。実験結果を表-16に示す。これについては表-14の多官能基モノマーの場合と同様に、反応速度をもう少し遅くすることを検討する必要がある。

4.8 高性能遮蔽材の元素密度

以上の実験において試作したいいくつかの遮蔽材につ

表-16 中性子吸収材の材料適合性実験結果

実験番号	モノマー* (モル数)	混合材 (モル数)	UV照射時間	結果
G-01	C (1.0)	鉛 (0.87) カドミウム (0.25)	26秒 (2分)**	黒色の硬化物が得られたが、ゲル化物の伸縮性が大きく、硬化皮膜にしわが多く発生したため、積層化が難しい。
G-02	C (1.0)	鉛 (1.0) 炭化硼素 (0.25)	26秒 (2分)	黒色の硬化物が得られたが、ゲル化物の伸縮性が大きく、硬化皮膜にしわが多く発生したため、積層化が難しい。
G-03	D (1.0)	鉛 (1.0) カドミウム (0.3)	26秒 (2分)	黒色の硬化物が得られたが、ゲル化物の伸縮性が大きく、硬化皮膜にしわが多く発生したため、積層化が難しい。
G-04	D (1.0)	鉛 (1.2) 炭化硼素 (0.3)	26秒 (2分)	黒色の硬化物が得られたが、ゲル化物の伸縮性が大きく、硬化皮膜にしわが多く発生したため、積層化が難しい。

*本欄のモノマーは表6に示したものである。
**括弧内の時間は約1cmの厚さに積層化するため必要な照射時間

いて、その遮蔽性能を調べるため元素密度を測定した。元素密度を決定する最もよい方法は化学的に組成分析を行うことであるが、ここでは試料の密度を測定し、試料の構成分子比率を用いて決定した。試料は吸水性があるので、空気置換体積を測定するのが望ましいが、今回は水中で体積測定を行った。すなわち、試料の表面に薄く油を塗布し、水中に設けた天秤の皿にのせ重量が安定したところで重量を測定し体積を求めた。このようにしていくつかの高性能遮蔽材に対して求めた元素組成と密度を表-17に示す。また、同表には参考のため水の元素組成と水の元素密度に対する各遮蔽材の元素密度の比も併せて示す。組成元素としては遮蔽性能の観点から意図した元素である水素、硼素及び鉛以外に炭素、酸素及び窒素を含む。ただし、窒素は原材料として硝酸鉛を用いた場合にのみ含まれる。密度に関しては、A-11とA-13の場合予定の密度よりやや小さいが、その他のものはいずれも2.18~2.31の範囲にある。水素密度は鉛と硼酸を原材料に用いた場合比較的高く、水の水素密度の70%以上になる。これに対して硝酸鉛を使用した場合は水素密度が相対的に低い。

4.9 温度特性

遮蔽材は周辺の温度が変化した場合、構成分子の分解や構造の変化等を起こし、その物性を変化させる可能性がある。遮蔽性能のみを考慮すれば、遮蔽材の元素組成に変化がなければ問題は無いが、化学変化が起これば通常組成元素が失われ、それは遮蔽性能の低下を意味するので重要な問題である。このような温度変化に伴う物性の変化は、例えば熱重量測定、ガスクロマトグラフィー、質量分析等により、材料の重量変化、発生するガスの成分、反応の種類等を分析することが

試料番号	元 素 名							密度 (g/cm ³)	水に対する水素密度比
	H	B	Pb	C	O	N	S		
A-04	4.85+22	4.73+21	2.37+21	2.97+22	2.29+22	-	-	2.18	0.72
A-09	4.25+22	4.37+21	2.19+21	2.01+22	3.37+22	4.37+21	-	2.30	0.63
A-11	4.14+22	4.98+21	2.49+21	2.08+22	2.22+22	-	-	2.02	0.62
A-13	3.95+22	4.81+21	2.40+21	2.18+22	2.17+22	-	-	1.99	0.59
E-01	5.02+22	6.79+21	3.40+21	1.67+22	2.27+22	-	-	2.31	0.75
E-03	3.70+22	4.93+21	2.46+21	1.24+22	3.13+22	4.93+21	-	2.19	0.55
E-05	4.87+22	6.60+21	3.30+21	1.61+22	2.20+22	-	-	2.24	0.73
E-07	3.66+22	4.85+21	2.42+21	1.23+22	3.08+22	4.85+21	-	2.16	0.55
E-09	5.07+22	6.89+21	3.45+21	1.62+22	2.23+22	-	-	2.31	0.76
E-11	3.84+22	5.07+21	2.54+21	1.27+22	3.17+22	5.07+21	-	2.24	0.57
E-13	6.25+22	8.18+21	4.09+21	2.04+22	2.64+22	4.87+19	4.87+19	2.77	0.93
E-14	3.80+22	4.99+21	2.50+21	1.22+22	3.12+22	4.99+21	-	2.20	0.57
H ₂ O	6.70+22	-	-	-	3.35+22	-	-	1.00	-

* 4.85×10⁻²² と読む。

表-17 高性能遮蔽材の元素組成

表-18 高性能遮蔽材の温度特性

試料番号	80℃		100℃		150℃		200℃	
	Δw (%)	外観変化	Δw (%)	外観変化	Δw (%)	外観変化	Δw (%)	外観変化
E-01	-0.01	なし	-0.02	なし	-0.20	表面に白粒	-1.00	周辺僅かに黄色化、発煙
E-02	0.00	なし	-0.18	なし	-1.50	表面に白粒	-6.12	周辺茶色化
E-03	0.00	なし	-0.04	なし	-0.20	表面に白粒	-0.85	周辺僅かに黄色化
E-04	0.00	なし	-0.12	なし	-0.48	表面に白粒	-1.25	周辺僅かに黄色化
E-05	0.00	なし	-0.06	なし	-0.23	表面に白粒	-1.01	周辺僅かに黄色化、発煙
E-06	0.00	なし	-0.12	なし	-0.79	表面全体白色化	-2.55	周辺黄色化、発煙
E-07	0.00	なし	-0.05	なし	-0.42	表面に白粒	-0.54	周辺僅かに黄色化
E-08	0.00	なし	-0.05	なし	-0.42	表面に白粒、周辺黄色化	-1.43	周辺強く茶色化
E-09	0.00	なし	-0.03	なし	-0.08	表面に白粒	-0.41	周辺黄色化
E-10	0.00	なし	0.00	なし	-0.33	中央部白色化	-2.13	周辺黄色化、発煙
E-11	0.00	なし	-0.02	なし	-0.04	周辺少し茶色化	-1.18	周辺強く茶色化
E-12	0.00	なし	-0.02	なし	-0.28	表面に白粒	-1.20	周辺僅かに黄色化
E-15	0.00	なし	0.00	なし	-0.19	表面僅かに白化	-1.15	表面僅かに白化
E-16	0.00	なし	-0.18	なし	-1.21	表面強く白色化	-2.93	周辺黄色化、発煙
E-17	0.02	なし	-0.10	なし	-0.46	白色化	-2.06	周辺茶色化、焦げる
E-18	0.00	なし	-0.07	なし	-1.69	表面少し黄色化	-4.13	表面茶色化

*減量重量パーセント

できる。しかし、これらの分析を行うには測定装置の準備等が必要であるため、これは今後行うこととして、比較的簡単な方法であるが4.4の積層化実験で作成した遮蔽材の温度変化に伴う重量と外観変化を調べた。重量変化に関しては試料を恒温乾燥器にいれ、室温から80℃に加熱し、そこで10分保持した後重量を測定した。同じ試料に対し同様の操作を100℃、150℃、200℃まで加熱して行った。結果を表-18に示す。同表に示すように試料はいずれも100℃までは外観の変化はなく、減量重量もごく僅かである。100℃での減量は試料の表面に付着した物質、例えば未反応の紫外線硬化モノマー等、による可能性が高い。150℃になると明らかに外観が変化し、減量の大きさも100℃の場合に比べると大きくなっている。従って、100℃から150℃の間で何らかの化学変化が起きていることが予想される。200℃になるとさらに激しく化学変化が起きている。今回は離脱する物質や減量の時間的な変化等に関する詳細な測定は行っていないが、試作した遮蔽材は100℃までは温度変化に伴う元素組成の変化はなく、それ以上の温度では使用時間の制限が必要があると予想される。

5. 遮蔽材E-01の遮蔽性能と放射化

これまで試作した遮蔽材に対しては、その遮蔽性能や物性をより良いものとするため、物質の選択や硬化手法に関して最適化を行う必要がある。従って、試作した遮蔽材はまだ最終的なものではない。しかし、今後の研究のため、その遮蔽と放射化に関する性能を明らかにしておく必要がある。そこで、これまで試作品

表-19 遮蔽材の元素組成

核種名	E-01	普通コンクリート	鉄	水	ポリエチレン
H-1	5.02 +22 *	6.43 +21	—	6.692+22	7.90 +22
B-10	1.46 +21	—	—	—	—
B-11	5.33 +21	—	—	—	—
C-12	1.67 +22	—	—	—	3.95 +22
O-16	2.26 +22	3.95 +22	—	3.346+22	—
Na-23	—	1.13 +21	—	—	—
Mg-nat	—	8.40 +20	—	—	—
Al-27	—	3.23 +21	—	—	—
Si-nat	—	1.27 +22	—	—	—
K-nat	—	5.40 +20	—	—	—
Ca-nat	—	2.96 +21	—	—	—
Ti-nat	—	7.00 +19	—	—	—
Fe-nat	—	9.20 +20	8.466+22	—	—
Pb-nat	3.40 +21	—	—	—	—

* 5.02×10⁻²²と読む。

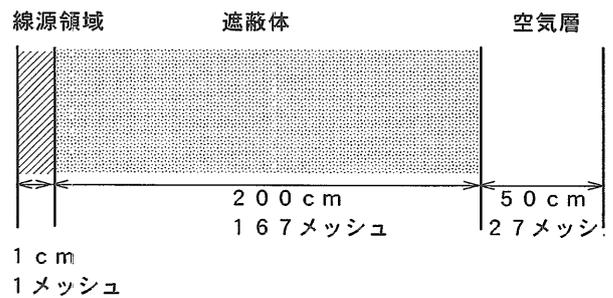


図-6 ANISN一次元計算モデル

のうち代表的なものとして表-17の番号E-01に対して遮蔽性能及び放射化の解析を行った。また、比較のため、普通コンクリート、鉄、水及びポリエチレンに対しても試料E-01と同じ条件で計算を行った。表-19に各遮蔽材に対して計算で使用した元素組成を示す。放射線輸送計算では中性子と一次及び二次ガンマ線を扱った。遮蔽計算は一次元Sn輸送計算コードANISN⁽⁵⁾で、また放射化計算はACT-4コードで行った。これらの計算コードはTHIDA-2コードシステム⁽⁶⁾に含まれているものを使用した。

5.1 遮蔽計算

遮蔽計算で使用した核データはTHIDA-2コード付属のGICX-40ライブラリー⁽⁷⁾(中性子42群、ガンマ線21

群)及びGROUPINライブラリー⁽⁶⁾(ガンマ線54群)である。図-6に計算体系を示す。体系は一次元平板形状である。線源領域は厚さ1cmの空気層とし、その中で線源の空間分布は一様である。図-6の左端では反射境界条件を指定した。線源は核分裂による中性子またはガンマ線である。核分裂当たりの中性子またはガンマ線の発生率は中性子が2.5個、ガンマ線が7.4個とした。中性子のエネルギースペクトルN(E)は

$$N(E) = 0.453 \times \exp(-1.036E) \times \sinh(2.29E)^{1/2} \quad (10)$$

で与えた。また、一次ガンマ線のスペクトルG(E)は即発ガンマ線を $8.0 \times \exp(-1.10E)$ で与え、また、短寿命核分裂生成物からのガンマ線を $6.0 \times \exp(-1.10E)$ で与えたので、合計で

$$G(E) = 14.0 \times \exp(-1.10E) \quad (11)$$

となる。図-6に示すように遮蔽体の厚さは200cmで、その後に50cmの空気層を設定した。計算は角度分点をS16、散乱断面積の近似をP5で実施し、フラックスの収束判定基準は 1.0×10^{-4} とした。空間メッシュは遮蔽体中で167メッシュ、空気層で27メッシュとした。線量当量率への変換係数はICRP51⁽⁸⁾に与えられている1cm深度線量当量率変換係数を使用した。ACT-4によ

る放射化計算ではTHIDA-2に組み込まれているデータライブラリーであるCHAINLIB⁽⁹⁾、CROSSLIB⁽⁹⁾及びGAMMALIB⁽⁹⁾を使用した。

5.2 計算結果と検討

(1) 中性子遮蔽性能

図-7～図-11に高性能遮蔽材E-01、コンクリート、ポリエチレン、水及び鉄の中での中性子エネルギースペクトルを示す。スペクトルの表示位置は線源領域に1点(図中MESH.1で示す)、遮蔽体前面から25cm間隔で2mまで8点(図中MESH.26からMESH.168または169で示す。)で合計9点である。まず、水素含有量の多いE-01,ポリエチレン、水のスペクトルを比較する。E-01のスペクトルで特徴的なのは低エネルギー部の値が極めて小さくなっている点である。これは硼素の吸収効果による。これに対してポリエチレン、水では熱群を除くとほぼ $1/E$ スペクトルであり、熱中性子の割合が大きい。10keV以上の領域ではE-01とポリエチレンのスペクトルがよく似ている。ただし、約8MeV以上でE-01の方がスペクトルが柔らかくなっている。これは鉛の非弾性散乱効果によるものであろう。水の場合はこれらのものに比べると $1/E$ 領域に対する高速領域の割合が高くなっている。この違いは炭素と酸

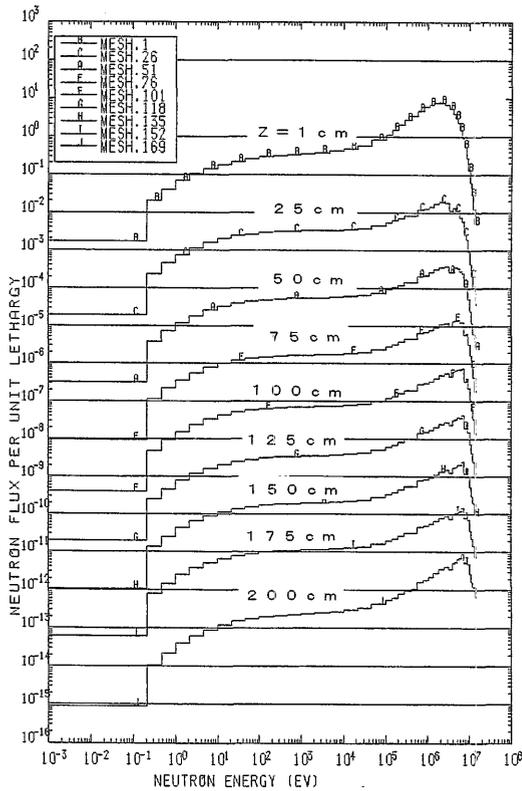


図-7 高性能遮蔽材E-01透過中性子スペクトル

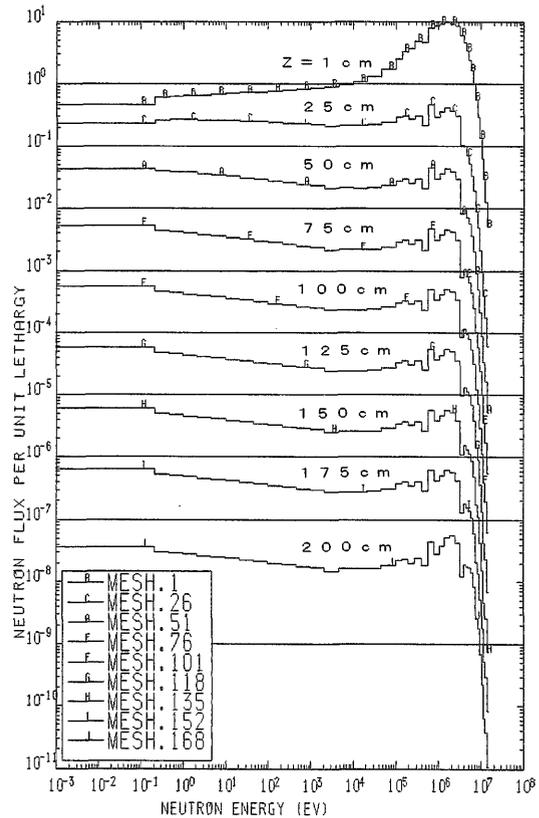


図-8 普通コンクリート透過中性子スペクトル

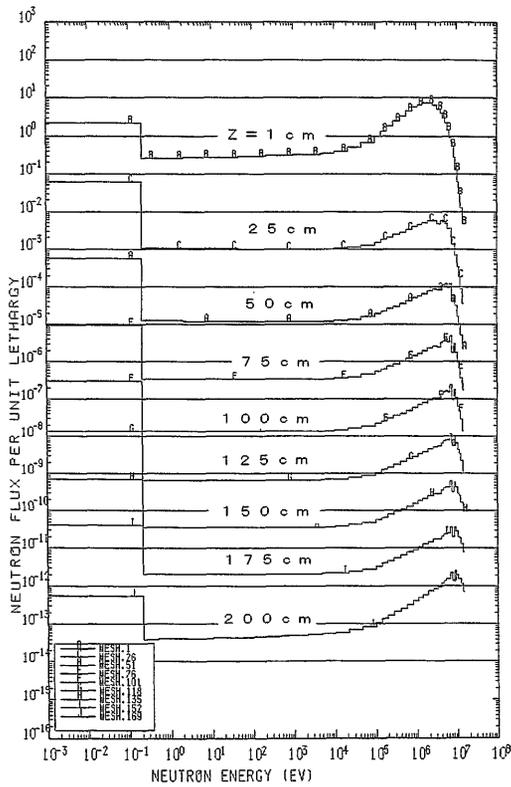


図-9 ポリエチレン透過中性子スペクトル

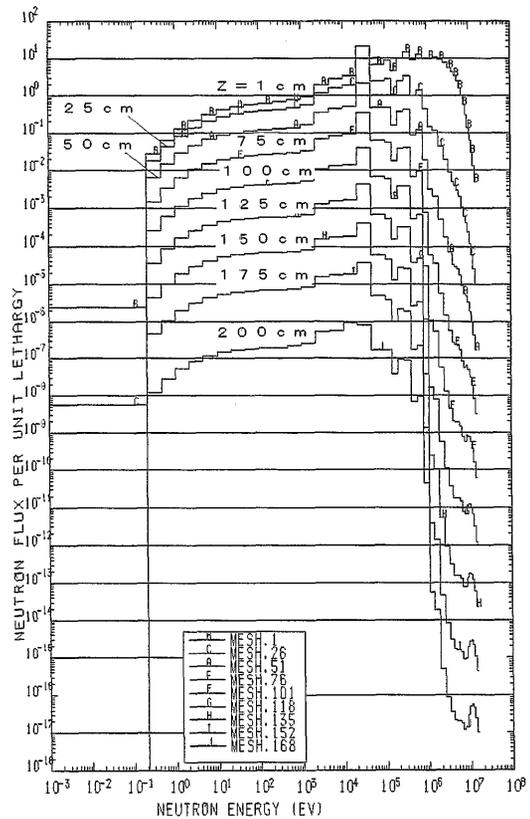


図-11 鉄遮蔽体透過中性子スペクトル

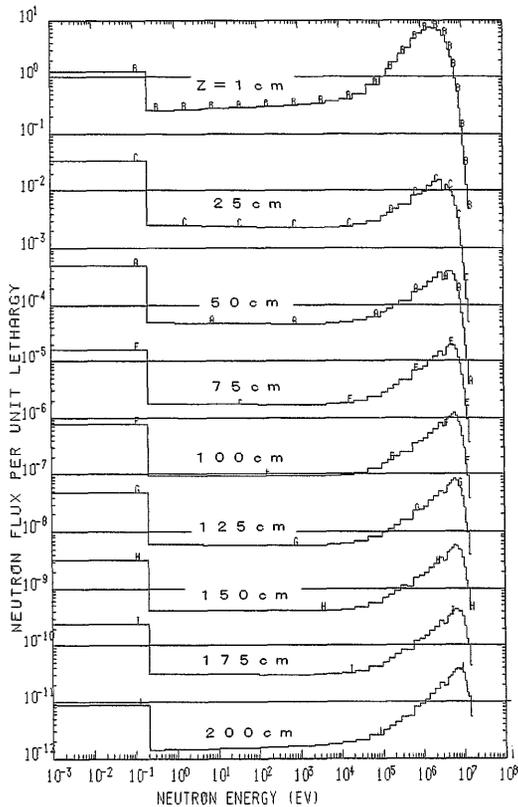


図-10 水遮蔽体透過中性子スペクトル

素の含有量の差によると考えられる。これらに比べるとコンクリートのスペクトルはかなり異なっている。E-01、ポリエチレン、水の場合、ある程度遮蔽体を透過すると高速領域のピークは約6MeVの辺りになるが、コンクリートではピークは約2MeV程度に下がる。また、コンクリートの場合は $1/E$ よりも低エネルギー側が高くなったスペクトルである。コンクリートは前3者に比べて水素量が桁違いに少ないこと、表-19に示されているように種々の核種が含まれていること等がこれらの差の原因となっている。一方、鉄のスペクトルは他の場合に比べ大幅に異なっている。スペクトルのピークは30keV辺りにあり、全体にスペクトルは低いエネルギー領域に寄っている。鉄の場合は熱中性子はほぼ吸収されているが、熱群から10keVの領域のスペクトルの形はE-01に似ている。鉄の場合、1MeV以下の減衰が少なくこのエネルギー領域で遮蔽性能が良くないことを示しているが、数MeV以上では減衰が極めて急であり、非弾性散乱が極めて効果的に働いていることが特徴的である。以上から明らかなことはE-01はそのスペクトルが低エネルギー領域で小さく、同領域の中性子を吸収することにより発生する二次ガンマ線並びに放射化の発生量を効果的に押さえる形をしており、遮蔽材として望ましい性質を持っていることである。

図-12～図-16に高性能遮蔽材E-01、コンクリート、ポリエチレン、水、鉄の中での中性子線量当量率分布を示す。この中で核分裂中性子に対して最も遮蔽性能

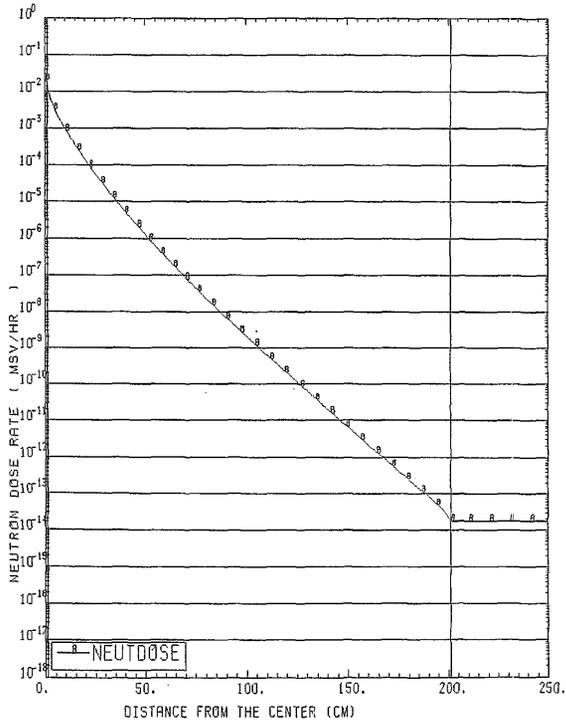


図-12 高性能遮蔽材E-01透過中性子線量当量率分布

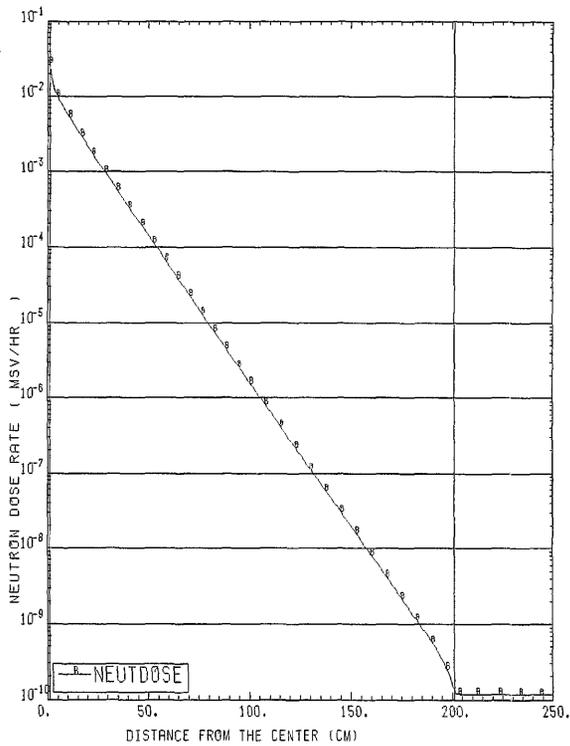


図-13 普通コンクリート透過中性子線量当量率分布

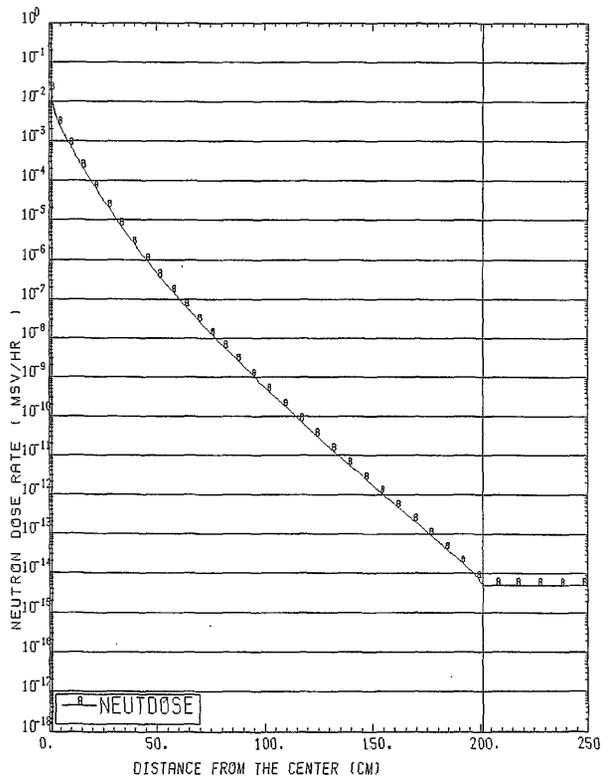


図-14 ポリエチレン透過中性子線量当量率分布

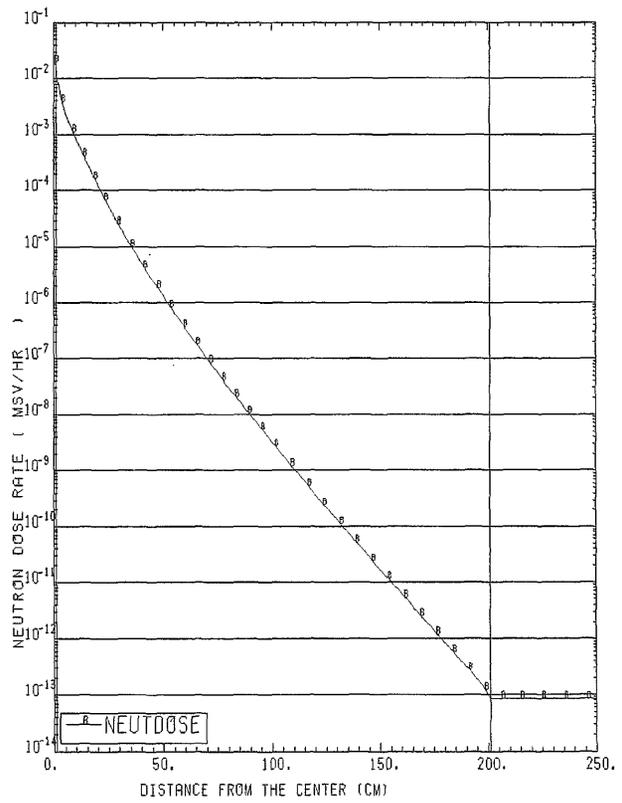


図-15 水遮蔽体透過中性子線量当量率分布

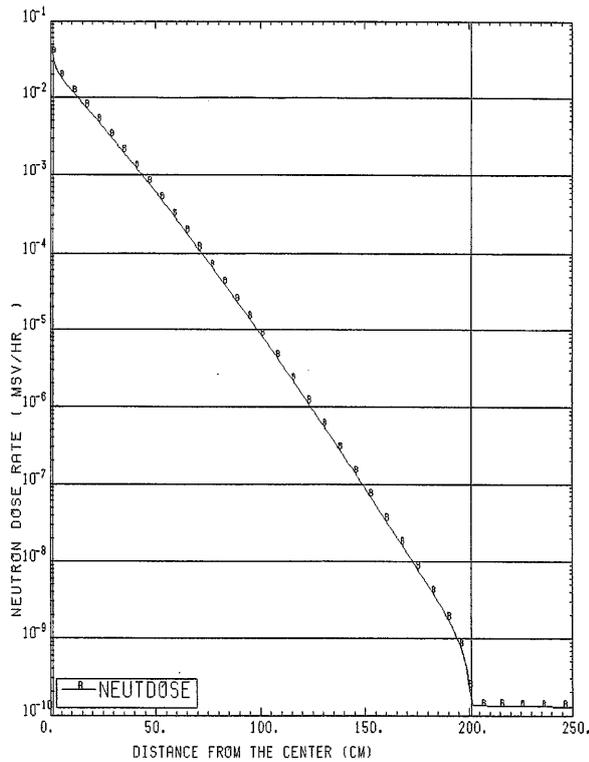


図-16 鉄遮蔽体透過中性子線量当量率分布

が良いのはポリエチレンで次いでE-01、水、コンクリート、鉄の順になる。2mの厚さでのE-01の線量当量率を1とすると、ポリエチレンは約0.3、水は4、コンクリートは 6.6×10^3 、鉄は 7.2×10^3 となる。高性能遮蔽材は単に中性子だけでなくガンマ線の遮蔽も考慮して作成した。このため、表-19に示されるように水素の含有量はポリエチレンや水に比べてかなり少ない。それにもかかわらず、水よりも遮蔽性能がよく、また、最も中性子遮蔽効果の大きな物質とされているポリエチレンに近い遮蔽性能を持っている。これは高エネルギーでは水素と鉛がまた低エネルギーでは水素と硼素が効果的に機能した結果である。

(2) 二次ガンマ線の発生と遮蔽性能

高性能遮蔽材E-01、コンクリート、ポリエチレン、水、鉄の中での二次ガンマ線のエネルギースペクトルを図-17～図-21に、また、これらの物質中の二次ガンマ線の線量当量率分布をまとめて図-22に示す。スペクトルの表示位置は中性子エネルギースペクトルの場合と同様に線源領域に1点、遮蔽体前面から25cm間隔で2mまで8点で合計9点である。二次ガンマ線は一般的にエネルギーが高いため透過力が強く問題となる。二次ガンマ線は遮蔽体の中で主に低速中性子が吸収されて発生し、透過していくのであるが、発生に関して重要なのはそのエネルギーと発生量であり、透過に関しては物質の遮蔽性能である。透過の観点からスペクトルとしては1MeV以上のものが重要である。各物質の

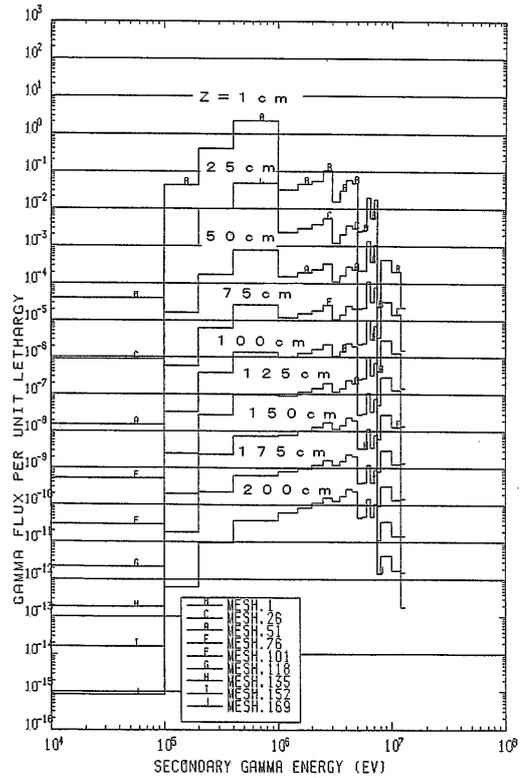


図-17 高性能遮蔽材E-01における二次ガンマ線エネルギースペクトル

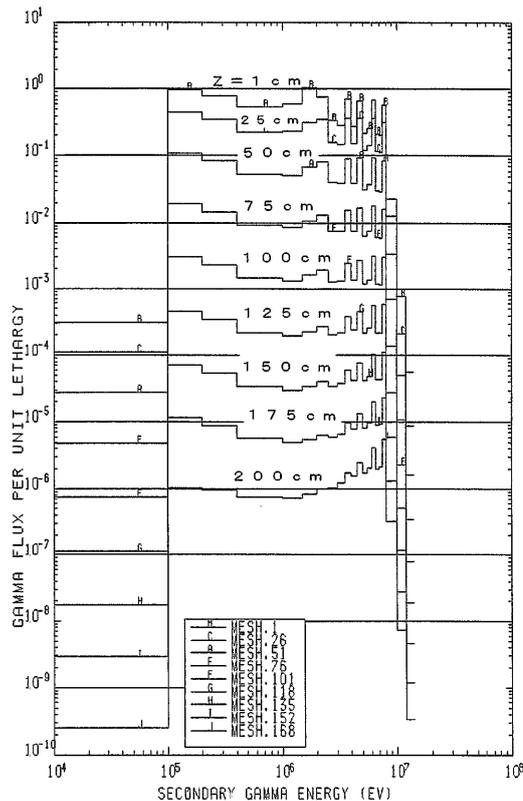


図-18 普通コンクリートにおける二次ガンマ線エネルギースペクトル

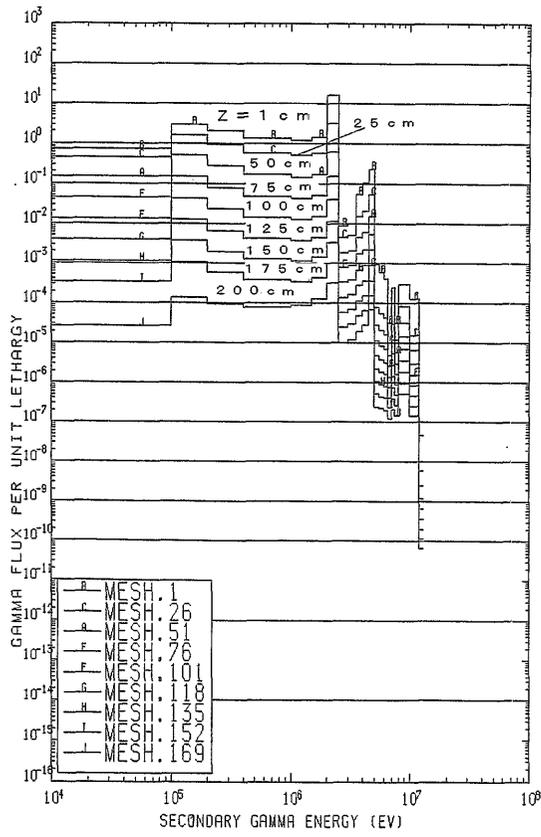


図-19 ポリエチレンにおける二次ガンマ線エネルギースペクトル

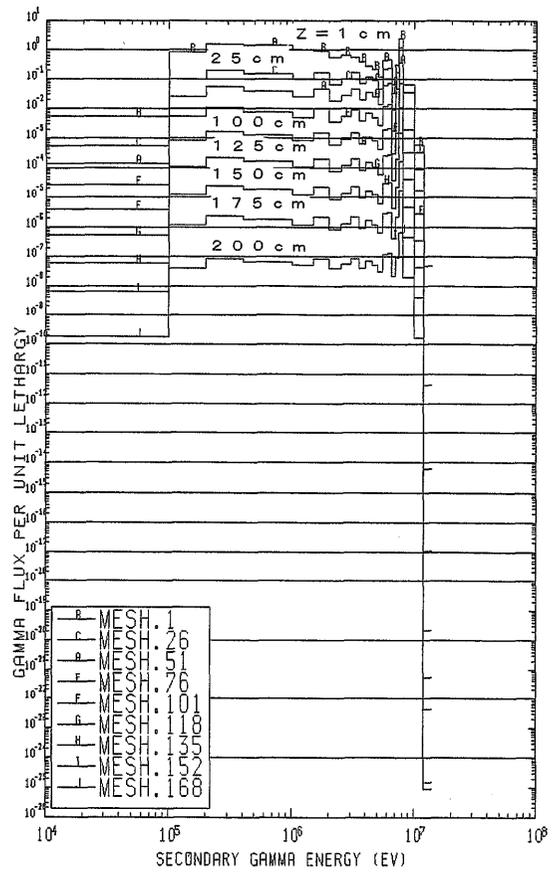


図-21 鉄遮蔽体における二次ガンマ線エネルギースペクトル

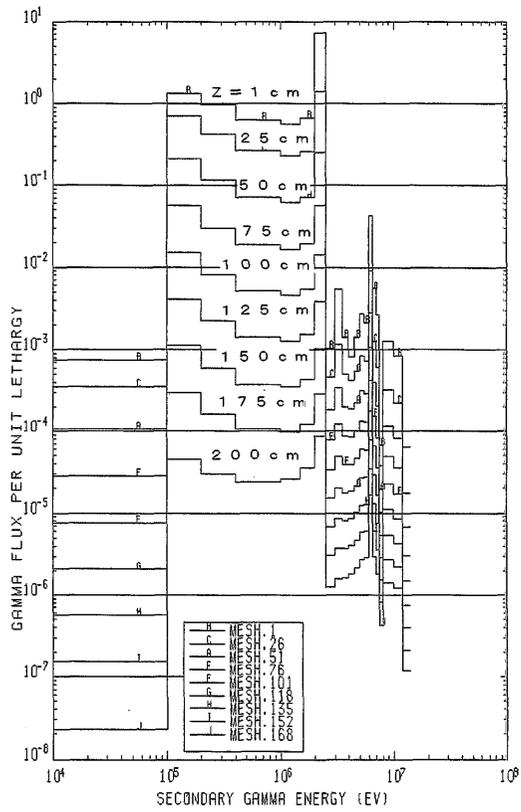


図-20 水遮蔽体における二次ガンマ線エネルギースペクトル

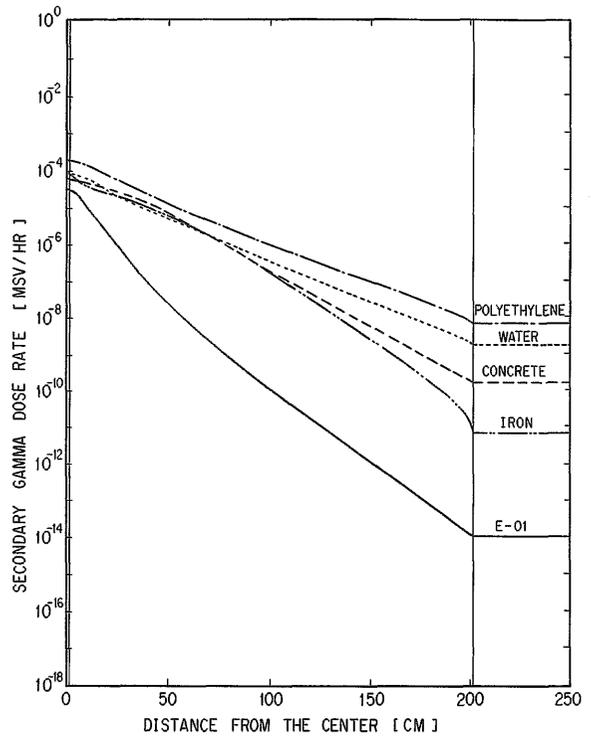


図-22 二次ガンマ線線量当量率分布の比較

第一メッシュのエネルギースペクトルを見れば、発生するガンマ線のエネルギーと発生量がおおよそわかる。5つの物質ではコンクリートと鉄が8MeV近辺の高いエネルギーのガンマ線を発生し、その量も多いことがわかる。水素を多く含む物質は2.2MeVの水素の捕獲ガンマ線を多く放出する。水素の捕獲ガンマ線はエネルギーがそれほど高くないのでコンクリートや鉄の二次ガンマ線に比べると問題は多少緩和されるが明らかにポリエチレンと水の場合はこのエネルギーでのガンマ線が突出している。しかし、同じように水素を多く含むE-01ではこのガンマ線は顕著に現れていない。これはE-01の中では硼素の吸収効果のため低エネルギー中性子が少なく、水素の捕獲反応量が少ないことによる。図-22の線量当量率分布には分布がE-01のものとの他の物質のものとの2つのグループに分かれていることが示されている。遮蔽体入口の線量当量率からE-01では二次ガンマ線の発生量そのものが他の物質に比べて低いことがわかる。また、線量当量率の減衰率がE-01の場合、他と比較して圧倒的に大きいことが示されている。ポリエチレンと水の場合、減衰率は小さく2mで4桁程度しか減衰していない。これらの物質ではガンマ線発生の原因となる中性子の減衰率は極めて大きいことから主に遮蔽体入口部で発生したガンマ線が透過してきたと考えられる。この場合、発生するガンマ線のエネルギーはそれほど高くないが、材料の密度が小さいため減衰が小さいと考えられる。すなわち、減衰傾向は二次ガンマ線に対する遮蔽材料の遮蔽性能から決定されている。これに対して鉄の場合はその遮蔽性能を考えるとかなり緩やかに減衰している。中性子の減衰率と比較すると2mで約2桁程度減衰が少ないだけである。従って、鉄の場合は各評価点の線量当量率は評価点のかなり近傍で発生したガンマ線により決定されるといえる。コンクリートの場合も減衰は緩やかである。現象としては上記の2つの現象の中間的なことが推定される。これらに比べると高性能遮蔽材E-01の場合は二次ガンマの減衰率は大きく、2mのところでの線量当量率は中性子によるものより小さい。2mの点での中性子線量当量率に対する二次ガンマ線のその比はE-01が約0.5であるのに対しコンクリートは約1.4、ポリエチレンは約 1.4×10^6 、水は約 2.2×10^4 、鉄は約 5.8×10^2 である。中性子及び二次ガンマ線の絶対量と減衰率を考えると、通常の場合ではポリエチレンと水では二次ガンマ線が線量率を決定する。高性能遮蔽材やコンクリートの場合は二次ガンマ線の全体の線量当量率に占める割合は大きくないが、その存在については一応考慮する必要がある。鉄の場合は熱中性子が吸収される結果、発生量自体が少なく、二次ガンマ線は問題にならない。

(3) 核分裂ガンマ線に対する遮蔽効果

高性能遮蔽材E-01、コンクリート、ポリエチレンの

中の核分裂ガンマ線透過エネルギースペクトルを図-23～図-25に、また、透過ガンマ線線量当量率分布を図-26に示す。スペクトルの表示位置については二次ガンマ線の場合と同様である。核分裂により放出されるガンマ線は5.1の式(11)で表されるエネルギースペクトルを持つが、透過エネルギースペクトルで見ると、透過とともにスペクトルにピークが現れ、そのピークが少しずつ高エネルギー側にずれていくのがわかる。E-01とコンクリートを比べるとコンクリートの方がより高エネルギー側にピークがずれていく。例えば200cmの点ではE-01の場合約3.5MeVに、コンクリートの場合約5MeVにそれぞれピークがある。このように実効エネルギーが高くなるので図-26に示されるようにコンクリートの方が減衰が緩やかとなる。1MeV以下の低エネルギー側では物質によりスペクトルが大きく異なる。コンクリートやポリエチレンでは低エネルギー側が $1/E$ に近いスペクトルとなっているが、硼素を含むE-01では硼素により低エネルギー成分が吸収され少ない。高性能遮蔽材E-01とコンクリートは同じ密度であるが、以上の理由により2mの点でE-01の線量当量率はコンクリートの約 $1/50$ となる。ポリエチレンの場合は密度が小さいので遮蔽効果は小さい。

(4) 放射化

放射化は遮蔽材を構成する核種が主に低エネルギー

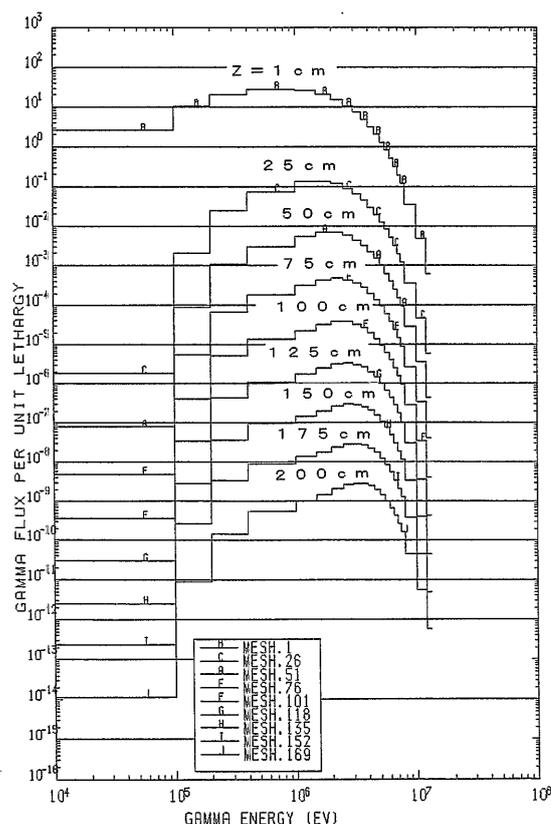


図-23 高性能遮蔽材E-01透過一次ガンマ線エネルギースペクトル

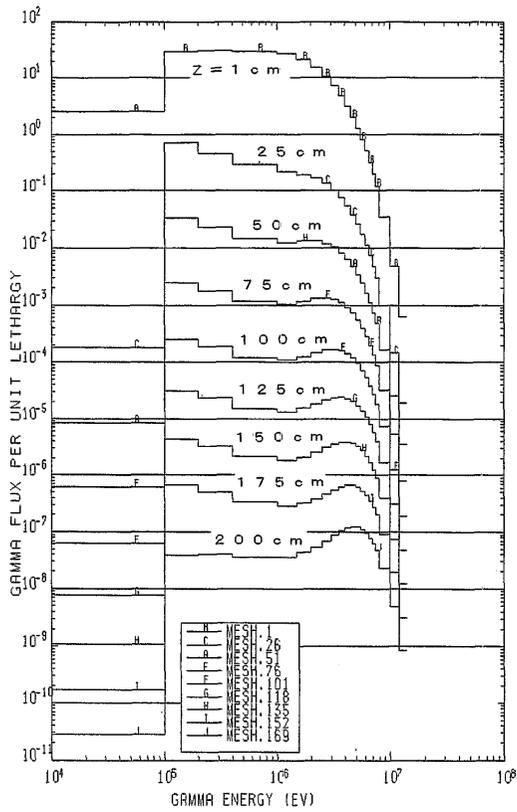


図-24 普通コンクリート透過一次ガンマ線エネルギースペクトル

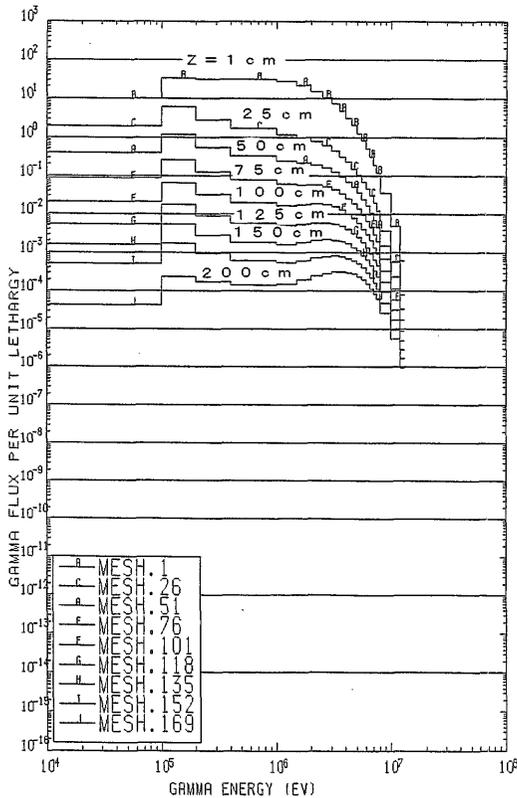


図-25 ポリエチレン透過一次ガンマ線エネルギースペクトル

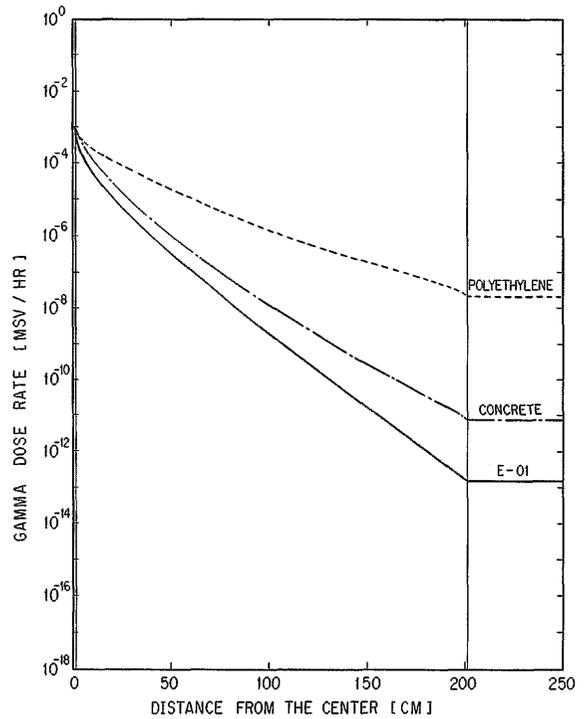


図-26 一次ガンマ線線量当量率分布の比較

の中子線を捕獲反応により吸収することにより不安定な放射性同位元素に変換されることにより生じる。放射化に関する評価で重要なのは原子炉停止後等の作業の際の被曝の線源としての強度であり、また、遮蔽材の処理処分の際の全放射線量である。前者に関しては中性子照射後一定の時間を経過した後（作業時）におけるガンマ線を放出する核種が重要となる。また、後者に関しては照射後ある程度長時間冷却した後の全放射線量が重要である。各放射化核種の発生量は中性子スペクトルに依存するので、遮蔽内の位置によって放射線の相対強度は変化する。従って、放射能の評価は遮蔽体の各位置で詳細に行う必要があるが、ここでは放射化の定性的な傾向を調べるため遮蔽体入口からある程度内側の中性子スペクトルが安定した位置で検討を行う。

核分裂中性子線源を高性能遮蔽材E-01、コンクリート、ポリエチレン、水、鉄遮蔽体前面に置き1年間照射した後、照射後時間依存の放射能を図-27～図-31に示す。放射能計算位置は遮蔽体入口から約50cmの点である。図-27のE-01の場合、放射能として主に寄与するのは²⁰⁹Pb、²⁰³Pb、²⁰³Hg、¹⁰Be、¹⁴Cである。このうち²⁰⁹Pb、¹⁰Be、¹⁴Cは崩壊の際ガンマ線を放出しない、いわゆるベータ崩壊のみをおこす。通常被曝に係わるものは²⁰³Pbと²⁰³Hgである。これらはいずれも崩壊毎に0.28MeVと遮蔽の観点からは低めのエネルギーのガンマ線を放出する。²⁰³Pbは半減期が52時間で照射後2週間程度の期間においてガンマ線源として重要である。

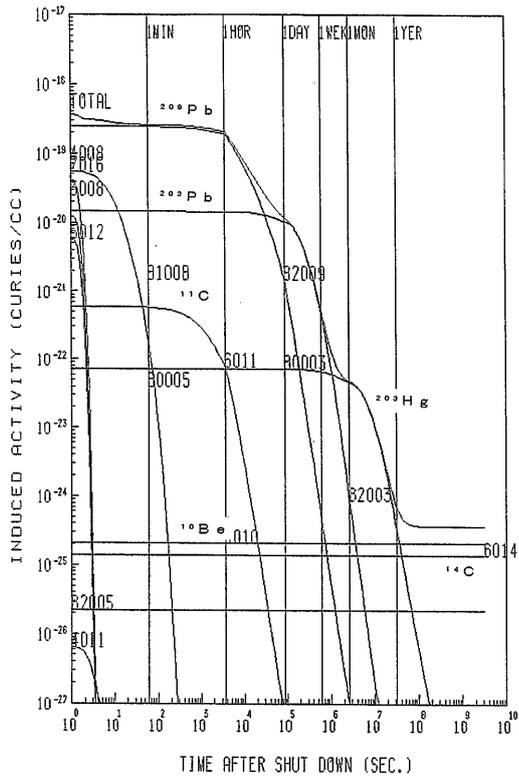


図-27 高性能遮蔽材E-01の50cm透過位置での時間依存放射能

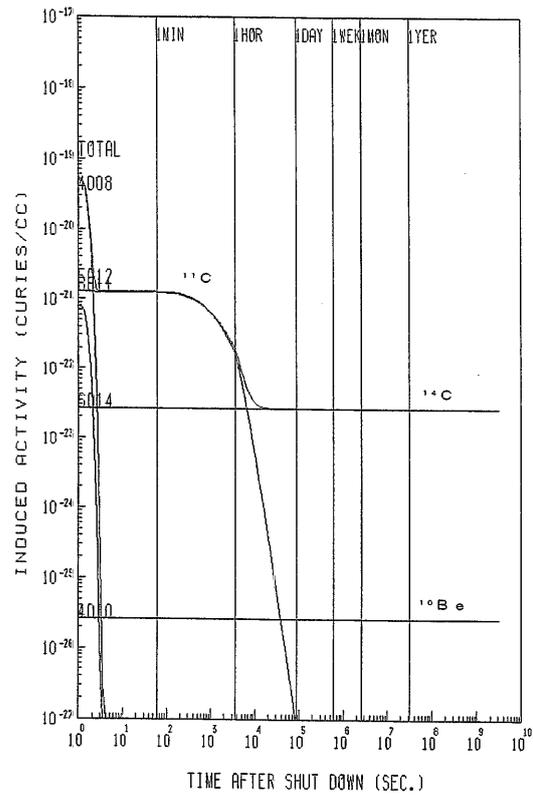


図-29 ポリエチレン50cm透過位置での時間依存放射能

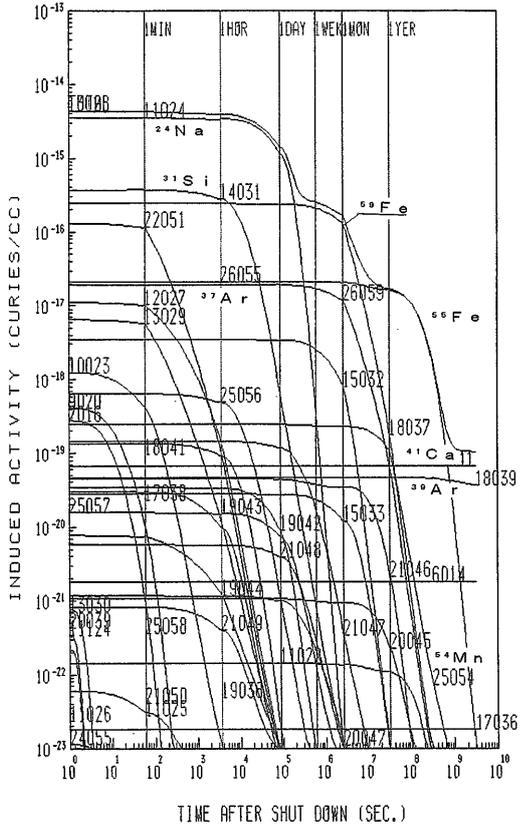


図-28 普通コンクリートの50cm透過位置での時間依存放射能

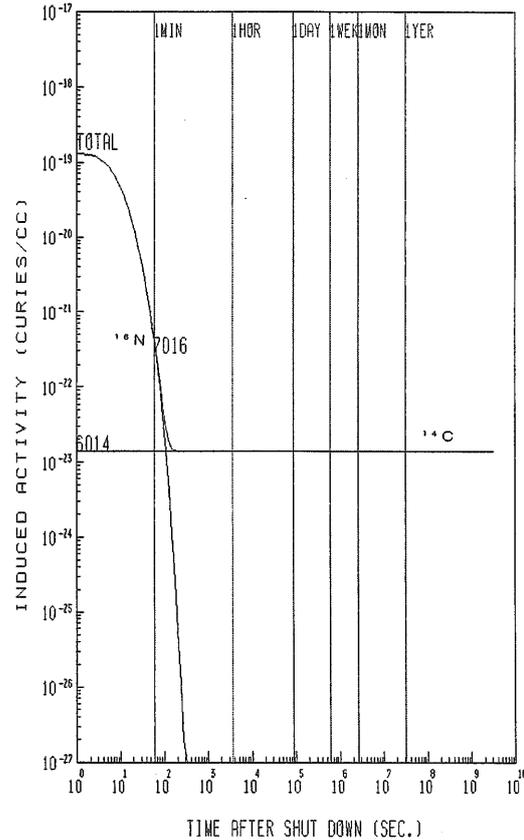


図-30 水遮蔽体50cm透過位置での時間依存放射能

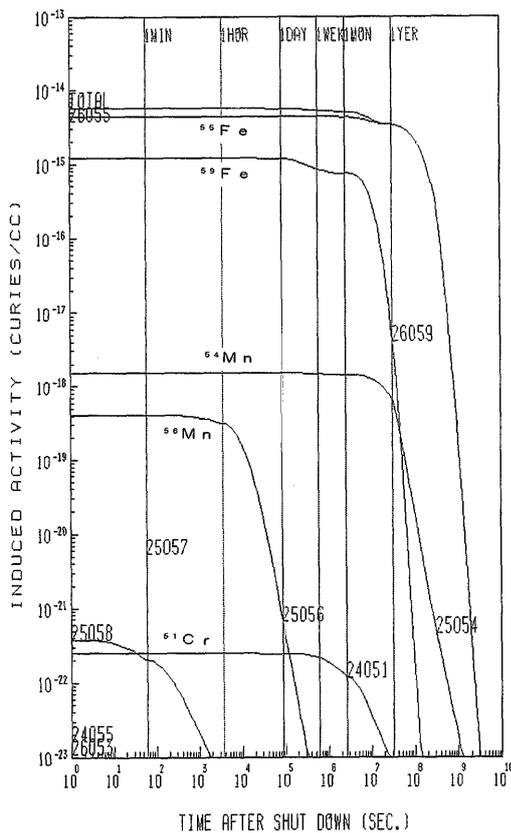


図-31 鉄遮蔽体50cm透過位置での時間依存放射能

その後は半減期が約45日の ^{203}Hg が重要となる。放射能としては照射後1日位までは半減期3.2時間の ^{209}Pb を考慮せねばならないが、その後はガンマ線源の場合と同じく ^{203}Pb と ^{203}Hg が支配的となる。照射後一年以上となると ^{10}Be 、 ^{14}C の他に ^{205}Pb も考慮する必要があるが、 ^{205}Pb が特性X線を出すくらいでガンマ線源としては極めて弱い。これらの3つの核種の半減期はそれぞれ 2.5×10^6 年、 5.6×10^3 年、及び 5×10^7 年である。図-28のコンクリートの場合は放射能核種の数が多く複雑である。しかし、主な核種は ^{24}Na 、 ^{59}Fe 、 ^{55}Fe 、 ^{41}Ca 、 ^{39}Ar 、 ^{54}Mn 等である。このうち、主なガンマ線源は ^{24}Na 、 ^{59}Fe 、 ^{54}Mn である。照射後数日までは半減期が15時間の ^{24}Na と半減期が45.1日の ^{59}Fe が重要である。数日を過ぎると ^{59}Fe が優勢になり、その後1年ぐらいで半減期291日の ^{54}Mn がきいてくる。放射能としては数ヶ月後には ^{59}Fe が10年以降は ^{41}Ca と ^{39}Ar がきく。図-29と図-30のポリエチレンと水の場合は照射後しばらくするとベータ崩壊をする ^{14}C が主な放射能となる。水の場合は照射直後に半減期7.4秒で6.13MeVの高エネルギーガンマ線を出す ^{16}N が重要である。図-31の鉄の場合は半減期が約3年の ^{59}Fe 、約45日の ^{59}Fe 、及び ^{54}Mn が主なものである。 ^{59}Fe は放射能としては多いが崩壊の際には低エネルギーの特性X線のみを放出する。

次に、高性能遮蔽材E-01の放射能を他の物質と比較

する。ただし、放射能単位は省略する。まず、ガンマ線源として照射後1日で比較する。この場合、ポリエチレンと水はベータ崩壊核種のみでガンマ線源としての放射能は無視できるほど少ないので比較から除く。E-01、コンクリート、鉄の放射能はそれぞれ 1.0×10^{-20} 、 1.6×10^{-15} 、及び 1.0×10^{-15} であり、E-01の放射能はコンクリートの $1/1.6 \times 10^5$ 、鉄の $1/10^5$ である。さらに、放出されるガンマ線のエネルギーを考えると被曝量はこれらの比率より小さくなる。次に1年後の全放射能を比較する。この場合、E-01、コンクリート、ポリエチレン、水、鉄の放射能はそれぞれ 3.3×10^{-25} 、 2×10^{-17} 、 1×10^{-19} 、 2.5×10^{-23} 、 3.2×10^{-15} となりE-01が最も少ない。すなわち、E-01の放射能はコンクリートの $1/6 \times 10^7$ 、鉄の $1/10^{10}$ であり、ポリエチレンの $1/3 \times 10^5$ 、水の $1/75$ である。

以上のように高性能遮蔽材は一般的な遮蔽材と比較して放射化量が極めて少ないことが明らかとなった。この理由としては遮蔽材の構成元素の主なものが放射化しにくい水素、鉛、硼素であることと遮蔽材の中では中性子スペクトルの低エネルギー部が少ないことによる。このように本遮蔽材は放射化物による被曝の低減や廃棄処分の際の環境汚染の観点から極めて優れた遮蔽材であるといえる。

6. まとめ

高性能遮蔽材の開発に関する研究では中性子及びガンマ線双方に対して良い遮蔽性能を有する遮蔽材の開発を試みた。遮蔽材を構成する元素としては、高エネルギー中性子に対する非弾性散乱、中高エネルギー中性子に対する弾性散乱、低放射化及び二次ガンマ線発生量低減のための低エネルギー中性子の吸収、一次、二次ガンマ線の遮蔽、さらには価格を考慮した結果、鉛、水素、硼素を選択した。次にこれらの元素から液体遮蔽材の作成を試みたが良い結果は得られなかった。しかし、これに関しては今後さらに検討する価値があると考えられる。材料を固めて遮蔽材を作る方法としては紫外線硬化法を選んだ。高水素含有物である紫外線硬化モノマーと鉛及び硼素化合物を混合し、紫外線を照射することにより厚さ約1mmの中性子及びガンマ線の双方に対して良い遮蔽性能を持つ遮蔽材を作成することができた。紫外線硬化法では紫外線の透過厚さの関係から一度の照射により厚い遮蔽材を作成することは難しいが、いくつかの原材料の組合せにおいては照射方法を工夫し、厚さ1mmのものを積層化することにより約1cm程度の厚い遮蔽材を作成することができた。遮蔽性能は例えば一般的な普通コンクリートと比較すると核分裂線源に対し一次、二次ガンマ線及び中性子を含めて普通コンクリートの約半分の厚さで同じ遮蔽効果を示し、極めて優れていることが明らかとなった。また、放射化も極めて少なく核分裂線源で1年

間照射した場合、線源から50cm透過位置において普通コンクリートに比べ照射後1日で約 $1/10^5$ 、照射後1年で約 $1/10^8$ であった。また、これらの遮蔽材は室温から100度までは温度変化に伴う、重量及び外観変化がほとんど無いことを明らかとした。さらに、多官能基モノマーを用いた方が耐熱性が良いことも確かめた。本研究では水素の含有量及び硬化のしやすさから1官能基の紫外線硬化モノマーを中心に実験を行ったが、今後の研究では多官能基モノマーについて、さらに検討をする必要がある。また、温度特性については温度変化に伴う重量変化、発生ガスの種類と量、水素量の変化等について詳しく検討する必要がある。その他、機械的特性、耐放射線性等についても研究する必要がある。原材料に関して本研究では経験的に選択したが、最適元素選択を行うためのファジー理論による最適化計算プログラム⁽¹⁰⁾等により理論的に最適な原材料構成を決定する必要がある。

一方、高性能遮蔽材の利用の観点から、ここで作成した高性能遮蔽材の遮蔽性能を評価し、補償遮蔽設計への適用を試みた。すなわち、試作した材料の一つを用いて代表的な遮蔽欠損部である2回屈曲円筒ダクトとオフセット状円環ギャップに対して補償遮蔽設計を試み、その評価を二次元及び三次元放射線輸送計算により行った。その結果、本研究で開発した遮蔽材は補償遮蔽材として十分効果があることを明らかとした。しかしながら、補償遮蔽設計法の確立までは至らなかった。この点については今後さらに研究を続ける予定である。

参考文献

1. 日本造船研究協会 「実用原子力船の設計に係る検討(その1)」調査報告書、(1993)。
2. Hodge N. and Sowden R. G., "Neutron-Shield Materials," *Nucleonics* 19[11], 159 (1961).
3. 加藤 清視「紫外線硬化システム」(株)総合技術センター (1989)。
4. 日本原子力学会「ガンマ線遮蔽設計ハンドブック」(1988)。
5. Engle W. W. Jr., "A Users Manual for ANISN, A One Dimensional Discrete Ordinates Transport Code with Anisotropic Scattering," K-1963, (1967).
6. Seki, Y., et al., "THIDA-2: An Advanced Code System for Calculation of Transmutation, Activation, Decay Heat and Dose Rate," JAERI 1301, (1986).
7. Seki Y. and Iida H., "Coupled 42-Group Neutron and 21-Group Gamma-Ray Cross Section Sets for Fusion Reactor Calculations," JAERI-M 8818, (1980).
8. 日本アイソトープ協会「体外放射線に対する防護

のためのデータ」(1987)。

9. Seki, Y., et al., "Graphical Representation of Transmutation and Decay Chain Data, Transmutation Cross Section and Delayed Gamma Emission Data," JAERI-M 1280, (1982).
10. Kanai, Y., et al., "Optimal Selection for Shielding Materials by Using Fuzzy Linear Programming Method," Second Int. FLINS Workshop on Intelligent Systems and Soft Computing for Nucl. Sci. and Industry (1996).

付録A 高分子系高性能遮蔽材の補償遮蔽設計への適用

高性能遮蔽材を遮蔽設計に自由に利用できればその効果は極めて大きいはずである。しかしながら、実際の遮蔽設計においては遮蔽材の耐熱性等の物性、放射線分解等の耐放射線性、構造材としての強度、経済性等を考慮しなければならないため必ずしも遮蔽性能や放射化の点でよい材料が使用されるとはいえない。ここで開発した高性能遮蔽材を実際に利用できるようにするには今後さらなる遮蔽性能の向上を図ると同時に物性や耐放射線性の向上及び定量的評価を行い、遮蔽材としての特性並びに適用限界を明らかにしていく必要がある。これまで行った物性評価などからは適用に関して次のことがいえる。すなわち、(1)あまり高温では使用できない。その限界は恐らく100~200℃の間にくることが予測される、(2)構造材としての強度は期待できない、(3)強度の極めて大きな放射線場では使用が難しい、等である。これらのことから高性能遮蔽材を適用できる対象は限られてくるが、その適用の代表的な例としては複雑形状遮蔽欠損部の補償遮蔽が考えられる。複雑形状部の補償遮蔽では上記(1)から(3)の制限は問題にならない場合が多いと考えられる。現状ではストリーミングに対する設計計算精度は悪く、その精度は遮蔽欠損部形状に依存する⁽¹⁾。遮蔽壁の中に欠損部が存在すると当然壁の外側での線量率は増大する。この原因は欠損部による実効的遮蔽厚の減少により透過線が増大すること及び欠損部に沿った放射線のストリーミングが発生することにある。欠損部による透過線の増大は、遮蔽厚の減少を補償する様な遮蔽効果の高い物質を遮蔽壁の中の透過経路に設けることができれば防ぐことができる。一方、ストリーミングは欠損部を屈曲させる等により減らすことができるが補償遮蔽を用いればより効果的に減少させることができる。ストリーミング放射線は欠損部に沿って飛行し欠損部を構成する壁に衝突する。ここで放射線はこの遮蔽壁の中へと透過し、壁の中で散乱されることにより欠損部の中へ反射される。ストリーミングではこのような現象が繰り返される。そこで欠損部を

取り巻くように一定の厚さの高性能遮蔽材を配置すればストリーミング放射線を低減させることができると考えられる。このように、欠損部補償遮蔽設計法によれば放射線の主要な漏洩経路に効果的な局所遮蔽を施すことにより欠損部が存在することによる線量率の増大を抑え、欠損部のある場合と無い場合で遮蔽壁外側での線量率を同程度にすることができる。放射線遮蔽設計において遮蔽体を貫通するダクト等の遮蔽欠損部からの放射線ストリーミングは、放射線作業従事者の被曝量の増大、及び放射線を減らすための追加遮蔽の設置に伴う遮蔽体の増加及び遮蔽構造の複雑化という2つの問題の原因となる。欠損部補償遮蔽設計法によりこの問題を解決することができれば被曝量の低減化、遮蔽の軽量・小型化、経済性の向上につながる。

ここでは補償遮蔽材として高性能遮蔽材E-01を用いた代表的な遮蔽欠損部である2回屈曲円筒ダクトと段付き円環ダクトに対して補償遮蔽設計を試み、その評価を二次元輸送計算コードDOT3.5⁽²⁾及びモンテカルロ計算コードMCNP4A⁽³⁾により行った。評価は一次、二次ガンマ線及び中性子全体に対し、配管等による遮蔽欠損効果及び配管に沿ったストリーミング効果を含めて行った。対象とする線源は核分裂線源で遮蔽壁の前面に一様に分布するとした。従って、核分裂中性子、核分裂ガンマ線及び二次ガンマ線を考慮する必要がある。補償遮蔽材としては中性子のみを考慮すればポリエチレンのような高含水素物質でもよく、またガンマ線のみを考えれば鉄や鉛のような重い物質でよい。しかし、中性子とガンマ線を同時に考慮し、さらに二次ガンマ線も含めれば本研究で開発中の高性能遮蔽材のようなものが適していることが明らかである。補償遮蔽設計を行う遮蔽欠損は密度2.2で厚さ1mの普通コンクリート製遮蔽壁に設けた。コンクリートの元素組成は表-19に示すものと同じとした。

A. 1 2回90度屈曲円筒ダクト

ここで扱う遮蔽欠損は換気ダクト等に代表される2回90度屈曲円筒ダクトである。ダクトの口径は20cm、第1脚部と第3脚部の長さはそれぞれ50cmで、第2脚部の長さは1mとした。図-A.1に屈曲円筒ダクトの体系を示す。

(1) 補償遮蔽材の配置

遮蔽欠損として重要なのは明らかに第1脚目と第3脚目である。そこでまず第1脚目を独立に取り出し、それに対する補償遮蔽を考える。補償遮蔽体を配置する位置はダクト周り及びダクトの後部遮蔽体中である。ダクト周りに補償遮蔽を施せばダクトを斜めによぎる放射線や後部の遮蔽を回り込んでくる放射線を減らせるので、かなりの効果が期待できる。しかし、ダクト周りの補償遮蔽の効果は推定しにくいので今回はこれを

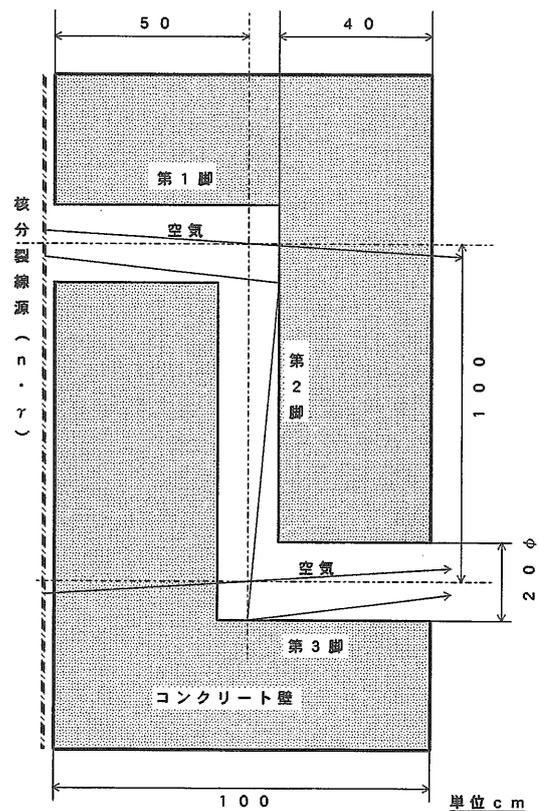


図-A.1 2回屈曲円筒ダクト体系

行わない。従って、補償遮蔽はダクト後部のみに置く。第1脚ダクトによる遮蔽欠損部の長さは60cmなので補償遮蔽材の最大の厚さは40cmとなる。しかし、高性能遮蔽材の遮蔽効果は約40cm厚でコンクリート80cm厚に相当すること、また、ダクト内で多少の減衰が見込めることから補償遮蔽材の厚さを最大の40cmとすれば十分な遮蔽を行える可能性がある。従って、補償遮蔽材の厚さは40cmとした。ダクト中心軸方向で補償遮蔽材の厚さが40cmで十分であると仮定すると、ダクト軸に対し斜めに入射しダクトの側壁を通る放射線に対しては補償遮蔽材とコンクリートを併せて実効的にコンクリートの厚さで80cmの遮蔽があればよいことになる。補償遮蔽材の半径を30cmとすれば、ダクトをよぎる放射線のほぼ全てのものが実効的に80cm以上のコンクリートを透過することになる。以上より補償遮蔽材の寸法は半径30cm、厚さ40cmとした。第3脚に対しても同様に考えた。第2脚に対しては補償遮蔽材を配置するための空間的な余裕があるので安全側にダクト前後に厚さ20cmの補償遮蔽材を施した。このようにすると補償遮蔽材を配置した体系は図-A.2、図-A.3のようになる。

(2) DOT3.5による解析

計算にはTHIDA-2コードシステムのDOT3.5コードを使用した。断面積ライブラリーはGICX40を用いた。

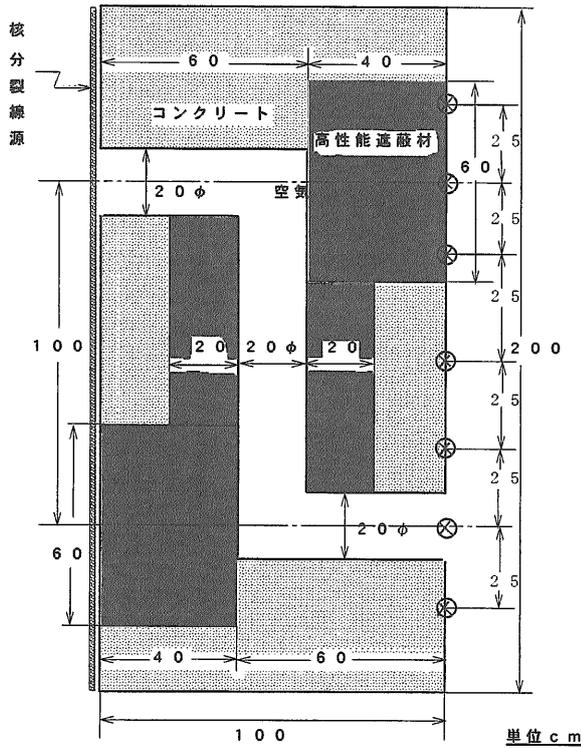


図-A.2 2回屈曲円筒ダクト補償遮蔽体配置と寸法及びMCNP計算点

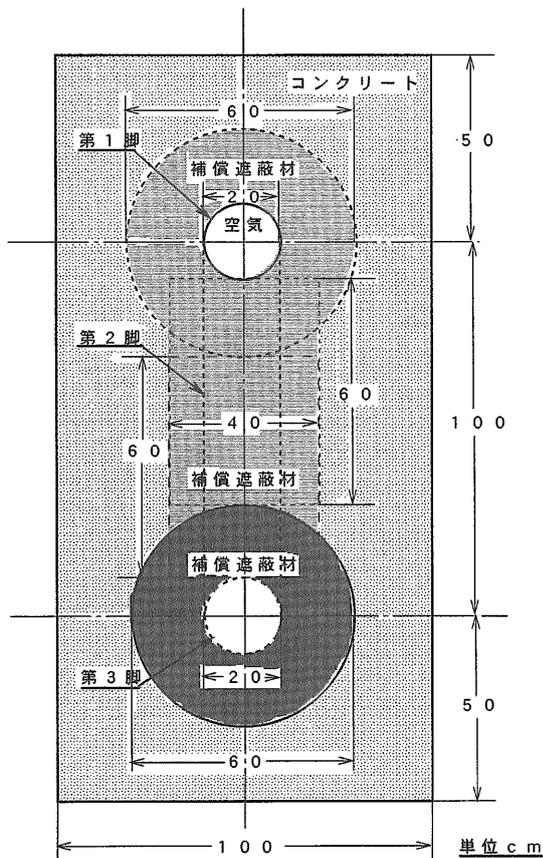


図-A.3 2回屈曲円筒ダクト補償遮蔽体配置と寸法

角度分点はS48、散乱断面積のルジャンドル展開項数はP5とした。空間メッシュは全体に1~2cmとした。エネルギー群数は中性子42群、ガンマ線21群である。線源における中性子及びガンマ線発生数は核分裂当たりそれぞれ2.5個及び7.5個とした。DOTは二次元輸送コードなので屈曲ダクト全体の効果を1度に計算することができない。しかし、すでに述べたように、2回屈曲ダクトの場合、遮蔽欠損効果は第1脚と第3脚が特に重要である。従って、DOTの計算ではこれらの部位に対してのみ、それぞれ独立に、計算を行った。DOTの計算では体系をR-Z座標系で表示し、コンクリート壁体系の全体の大きさはR方向に1m、Z方向に1mとした。R方向を有限にすることによる効果は少ないことが望ましいが計算時間の関係からこのようにした。そこで、体系のR方向に関する有限効果を見るため、まず、DOTによる二次元透過計算と無限体系に対応するANISNコードによる一次元透過計算を比較した。直径2m、長さ1mの円柱状コンクリート体系の中心軸上の中性子束分布をANISNの結果とともに図-A.4に示す。ただし、ANISNの計算はすでに高性能遮蔽材の遮蔽性能に関する比較計算として実施したもので遮蔽の厚さは2mである。透過距離が1mに近づくとDOTの結果がANISNの結果より低くなっているが、これはDOTの場合はANISNの場合に比べ1m後方の遮蔽体からの反射がないからである。この点を除くと両者は良く一致している。また、DOTの計算は、図-A.5に示したようにR=0cmとR=50.5cmのZ方向の中性子束分布は多少の差は見られるもののほぼ一致していること、及び図-

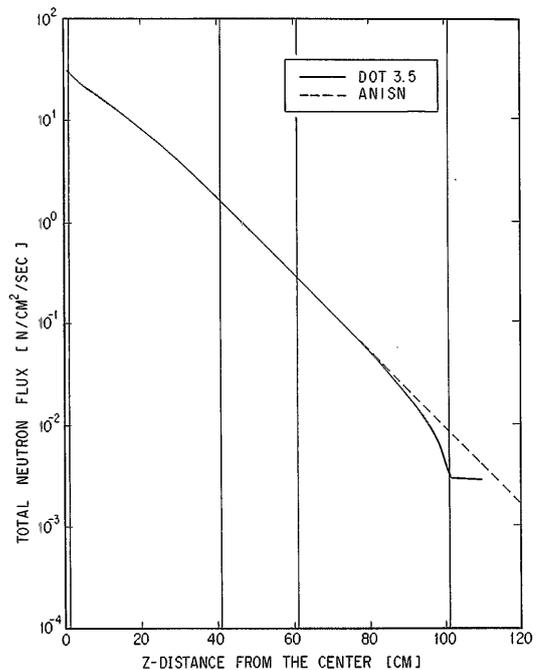


図-A.4 DOTとANISNによる透過計算結果の比較

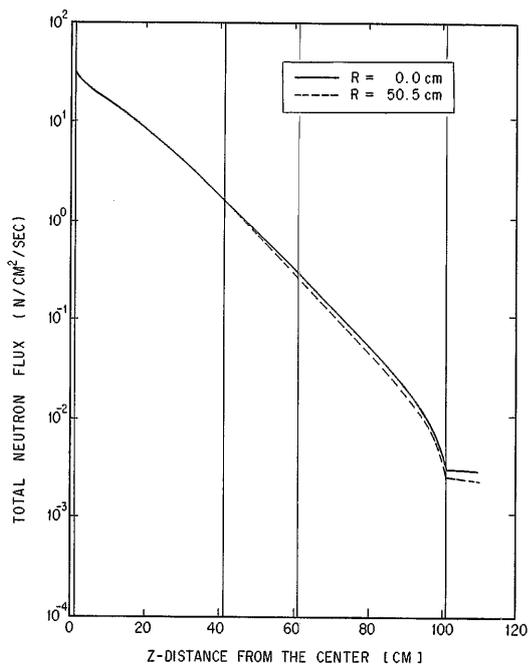


図-A.5 半径0cmと約50cmでのDOTによる軸方向中性子束分布の比較

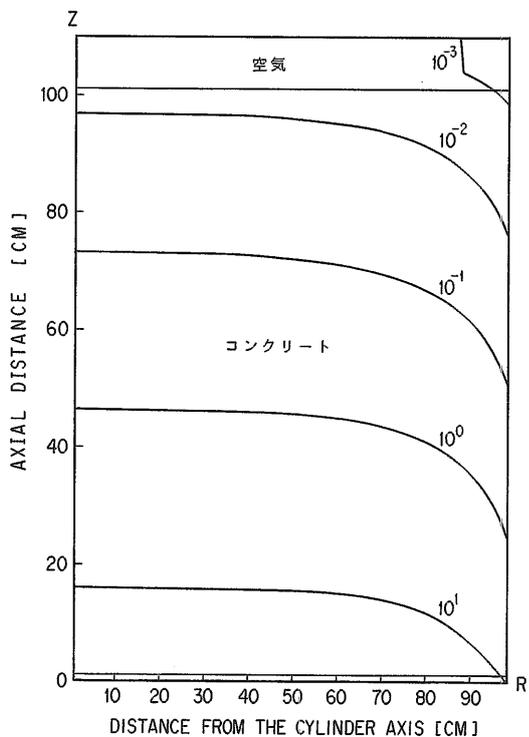


図-A.6 コンクリート遮蔽体内中性子束等高線図

A.6の中性子束の等高線図から見られるRが50cm以内の中心軸近辺での平坦な分布から、遮蔽壁が無限平板コンクリート中のダクトと等価な結果を与えるといえ

(104)

る。すなわち、DOTの計算ではR方向に有限の体系を解いたがストリーミングに関してはその効果は無視できるといえる。さらに、ANISN計算の信頼性は高いので、ここで行ったDOTの計算は体系選択のみならず他のパラメータの選択を含めて信頼できると考えられる。図-A.7及び図-A.8にそれぞれ補償遮蔽が無い場合とある場合の第1脚部の計算体系を示す。また、図-A.9及び図-A.10に第3脚部に対する同様の計算体系図を示す。

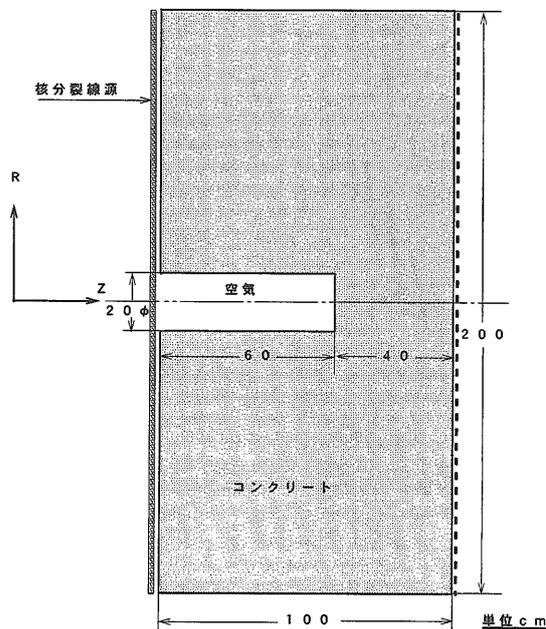


図-A.7 補償遮蔽体のない第1脚部のDOT計算体系

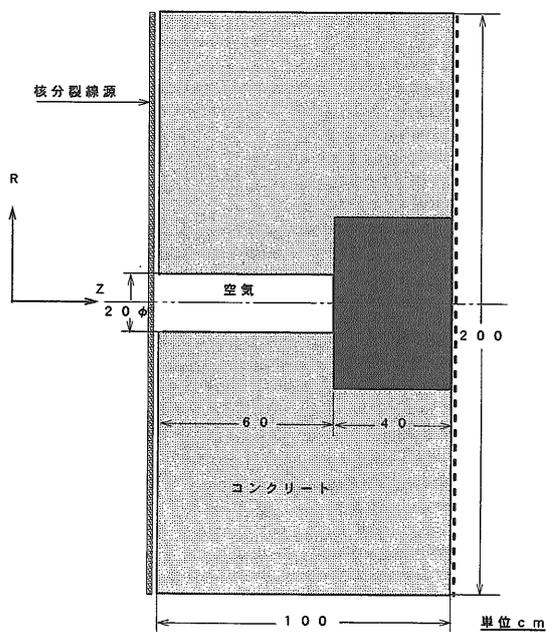


図-A.8 補償遮蔽体を配置した第1脚部のDOT計算体系

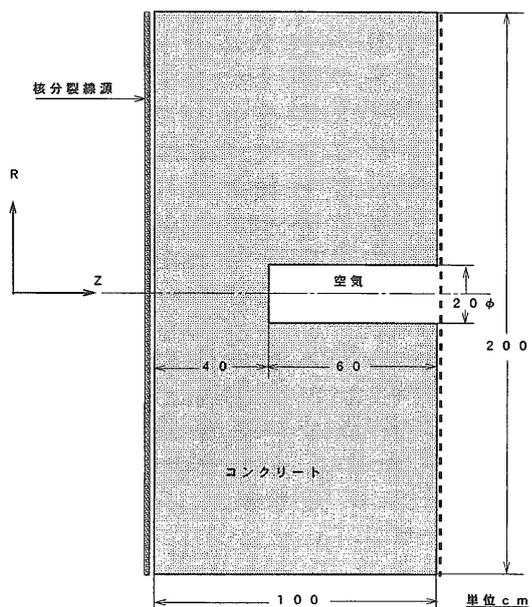


図-A.9 補償遮蔽体のない第3脚部のDOT計算体系

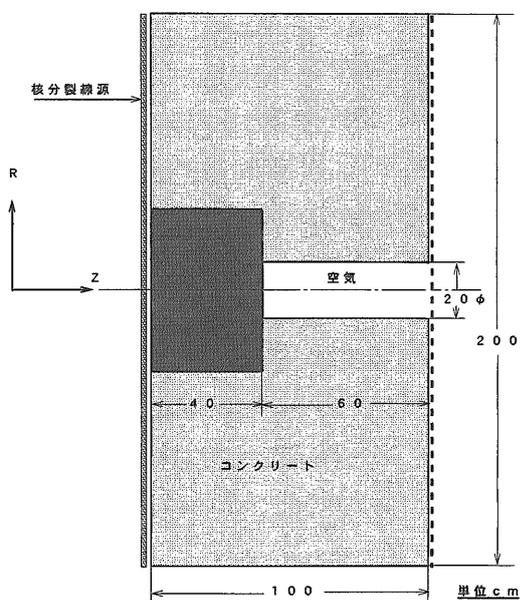


図-A.10 補償遮蔽体を配置した第3脚部のDOT計算体系

(3) MCNP4Aによる解析

図-A.2、図-A.11及び図-A.12に計算体系及び計算点を示す。図-A.2には体系全体の遮蔽体配置と遮蔽壁後部の計算点を示す。図-A.11は第2脚部の断面図である。この部分で補償遮蔽は配管直径方向へ40cm施した。計算点は配管の中心と両端部に対応する点とした。図-A.12はコンクリート壁後部から見た計算点の配置を示したものである。計算点は全部で9点で、そのうち第1脚と第3脚後部のものはそれぞれ配管の中心と中心より上下に25cmの点をとった。検出器の種類としてはポ

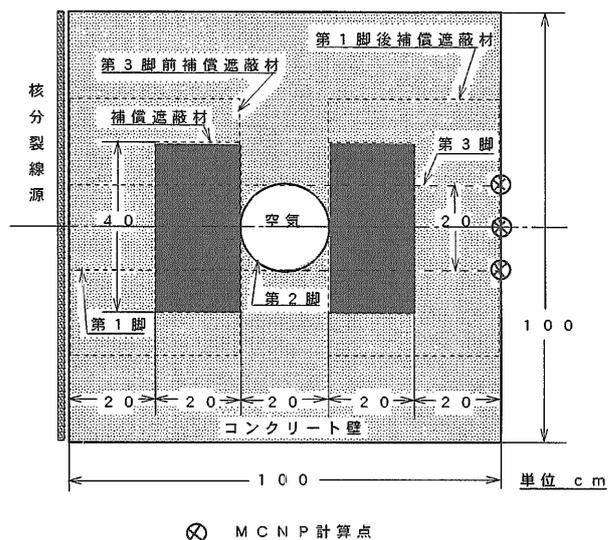


図-A.11 第2脚部補償遮蔽体の配置と寸法及びMCNP計算点

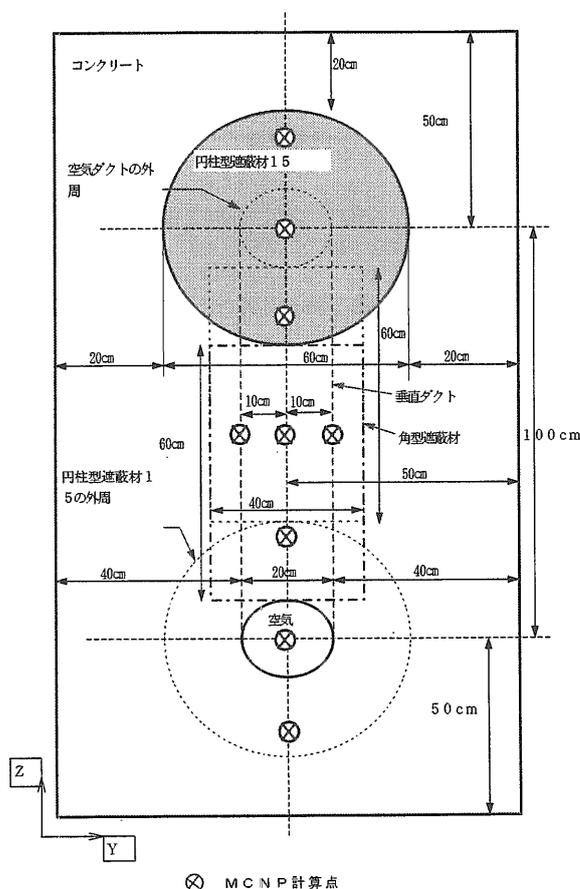


図-A.12 補償遮蔽体付き2回屈曲円筒ダクトに対するMCNP計算体系とコンクリート壁背面上の計算点

イントディテクターを選んだ。分散低減のためにウェイトウインドも使用した。核定数ライブラリーは公開

コードに添付のMCNP用ライブラリーである。

(4) 計算結果

以下に第1脚部に関するDOTの結果を示す。図-A.13に補償遮蔽体がある場合の中心軸上の線量率分布をダクトのないコンクリート壁中の減衰と比較して示す。

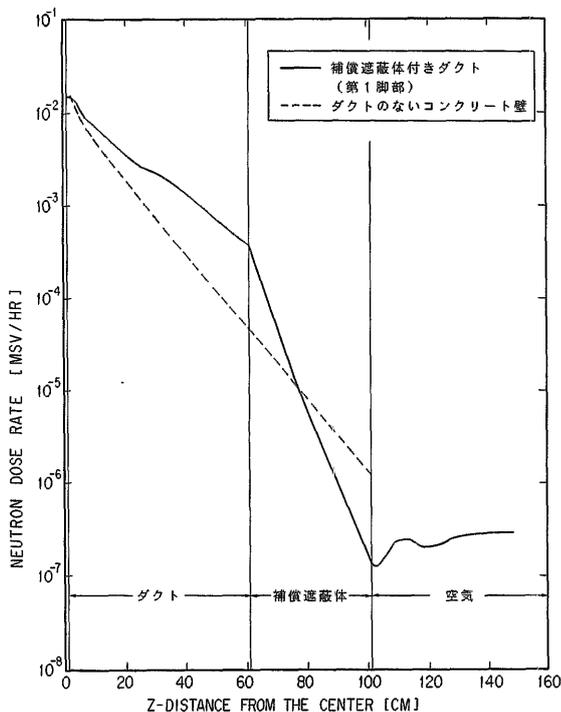


図-A.13 屈曲ダクト第1脚後部に配置した高性能遮蔽材E-01の効果

中性子線量率はダクトの終端部においてダクトのない場合より約1桁高くなっているが補償遮蔽遮蔽材の中で急激に減衰し、壁の外側では逆に1桁位低くなっている。図-A.14には中心軸付近よりダクト後部の補償遮蔽体の外側の方が線量率が高くなっていく様子が線量率の等高線により示されている。図-A.15、図-A.16にそれぞれ二次ガンマ線及び一次ガンマ線の線量率等高線を示す。二次ガンマ線の場合は中性子が線源となっているので中性子の場合と同様に中心軸付近の減衰より外側の減衰がややゆるやかに、すなわちダクト後部では外側で線量率が高くなっている。しかし、一次ガンマ線の場合は中心軸の付近の透過量が多いことが示されている。ただし、その絶対量は中性子や二次ガンマ線より小さい。一次ガンマ線の計算では第一角度分点の方向にレイ・エフェクト (Ray-effect) が見られる。しかし、その影響は小さく計算全体の信頼性の点では問題はないと考えられる。図-A.17に以上のDOTの結果並びにモンテカルロ計算の結果を遮蔽壁の後部でのR方向の分布として示す。同図に示してあるデータは中性子線量当量率に関しては欠損部のないコンクリー

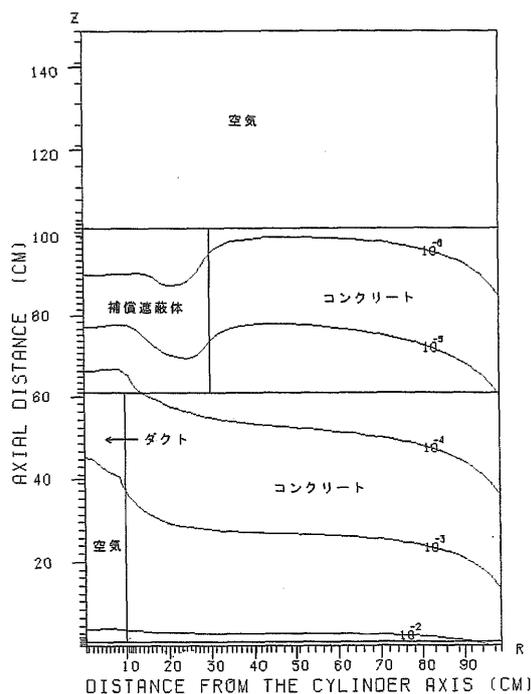


図-A.14 補償遮蔽付き屈曲ダクト第1脚部周辺の中性子線量当量率分布

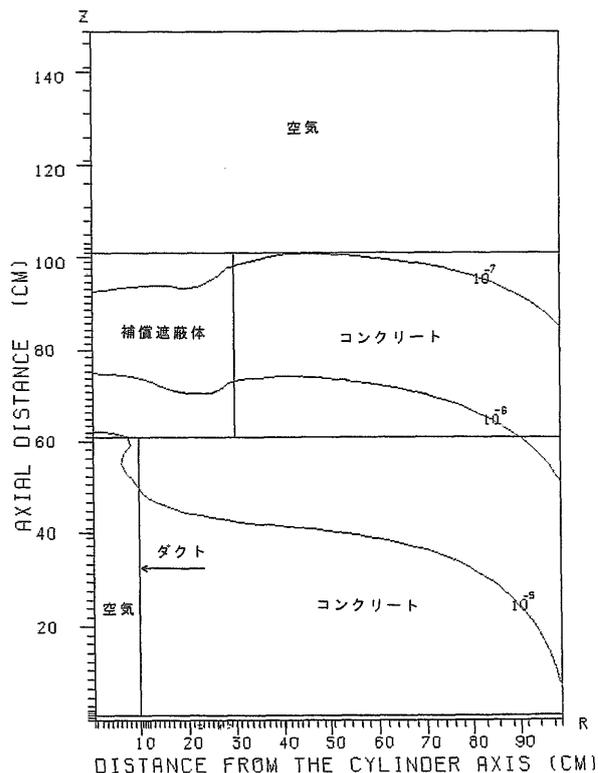


図-A.15 補償遮蔽付き屈曲ダクト第1脚部周辺の二次ガンマ線量当量率分布

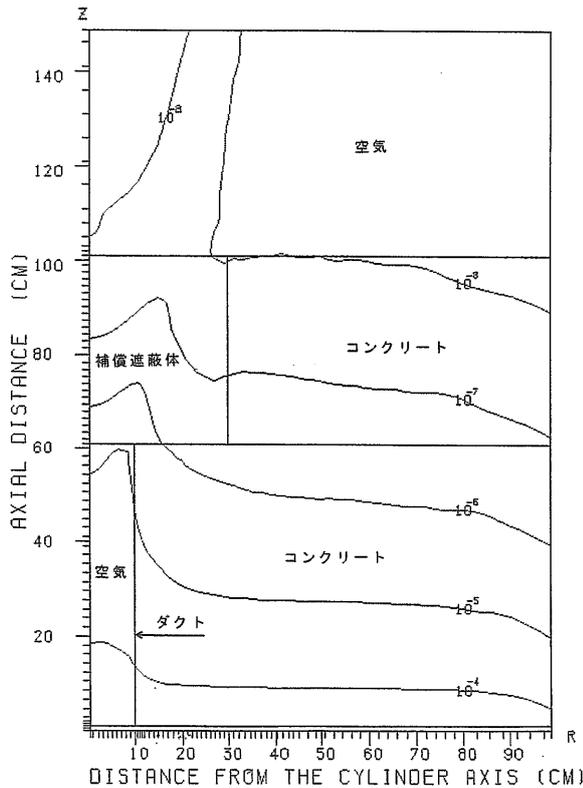


図-A.16 補償遮蔽付き屈曲ダクト第1脚部周辺の一次ガンマ線量当量率分布

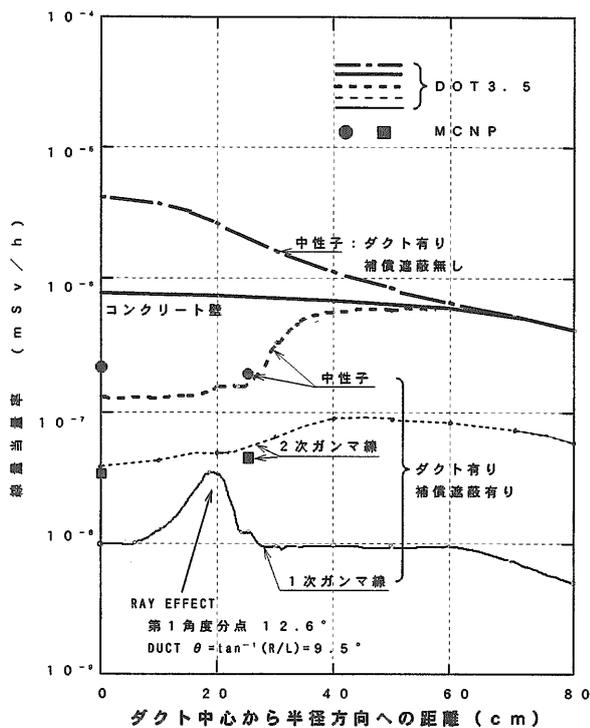


図-A.17 第1脚部遮蔽壁後部での半径方向線量当量率分布の比較

ト壁の場合、ダクトのある壁で補償遮蔽を施さない場合、及びダクトのある壁で補償遮蔽を施した場合である。また、二次ガンマ線と一次ガンマ線の線量当量率に関しては補償遮蔽を施した場合について示してある。補償遮蔽を施した場合について中性子と二次ガンマ線線量当量率に関してはモンテカルロ計算の結果を示した。第1脚部のダクトについては補償遮蔽が無い場合遮蔽壁後部の線量当量率はダクトの無いコンクリート壁の場合と比較して最大5倍程度増加し、また半径方向にはダクト軸から50~60cmまで影響がある。しかし、第1脚ダクトに補償遮蔽を施すとダクトがない壁だけの場合の線量当量率の1/6程度になる。二次ガンマ線の線量当量率はダクトの無いところでは中性子の約1/7、ダクトの後部では約1/3と少ない。一次ガンマ線の場合は今回の補償遮蔽によってはダクトの効果を完全には打ち消すことはできなかったが、その絶対量は二次ガンマ線よりも少ない。すなわち、一次、二次ガンマ線を合わせてもガンマ線の寄与は中性子に比べて少なく、問題とはならない程度である。以上から、第1脚部に対しては補償遮蔽効果は十分あることが明らかとなった。なお、モンテカルロ計算とDOTの結果はダクト軸上で中性子の結果に多少の差が見られるが、その他の場合は良く一致している。一方、ダクトの第3脚軸方向の遮蔽条件は第1脚軸方向より厳しくなる。まず、ダクトを通して第1脚目後部の遮蔽体へ入射する中性子は局所的であり、遮蔽体の中での広がりによる減衰効果が期待できるが、第3脚部前部の遮蔽体中ではこのような減衰効果はない。また、第1脚と第3脚ダクト中での中性子の減衰はダクトに入射する中性子角度束の前方性が第3脚の方が高いと考えられるので、第3脚ダクト中の減衰の方が少ないといえる。さらに、第3脚部では第1脚部、第2脚部を通してのストリーミング放射線も加わってくる。従って、第3脚部後部の線量当量率は第1脚部後部より大きくなる。第3脚ダクトの場合の結果をまとめたものを図-A.18に示すが、以上のような理由によりダクトがあるとダクトが無い場合に比べ20倍程度線量当量率が高くなり、半径方向への影響も大きい。従って、第3脚ダクトの前に40cmの補償遮蔽を付けると線量当量率を約1/8にするが、それでも壁のみの場合に比べ線量当量率は、ダクトの切り口面積程度の領域においてではあるが、約2.5倍大きな結果となった。しかし、図-A.19の中性子線量当量率等高線より明らかなように第3脚の場合、補償遮蔽体の外側を回り込み配管に入射する成分があることがわかるので、配管の側壁の周囲に補償遮蔽を施すことにより、このような中性子を遮蔽し、さらに線量を下げることが可能であるといえる。図-A.18には中性子に関するモンテカルロ計算結果も示してある。モンテカルロ計算には第1脚から第3脚の配管に沿ったストリーミング成分が含まれているが、その

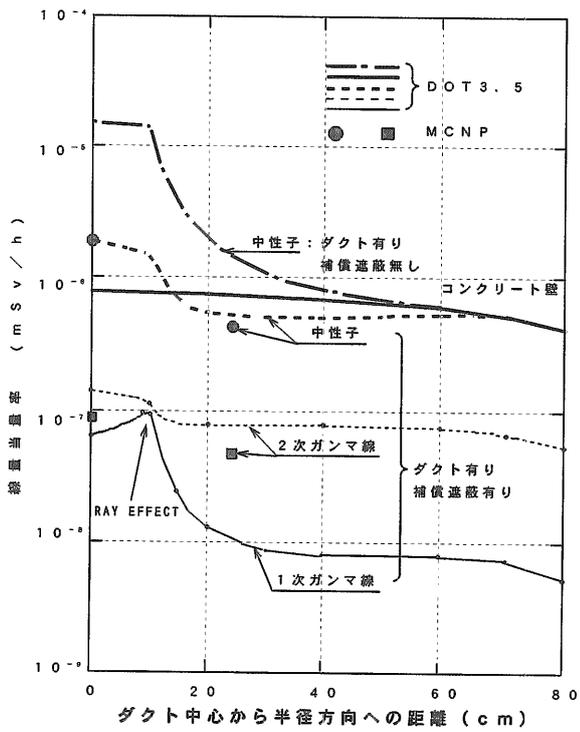


図-A.18 第3脚部遮蔽壁後部での半径方向線量当量率分布の比較

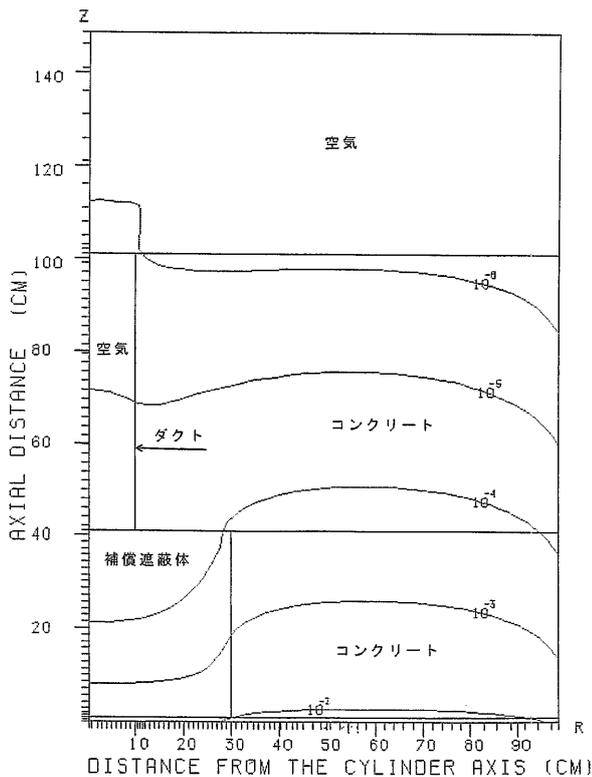


図-A.19 補償遮蔽付き屈曲ダクト第3脚部周辺の中性子線量当量率分布

成分が含まれないDOTの結果とほぼ一致している。従って、ストリーミング成分は極少ないといえる。図-A.20には遮蔽壁背面に沿ったモンテカルロ計算の結果を示す。計算点は図に①から⑦で示した壁直後の点で

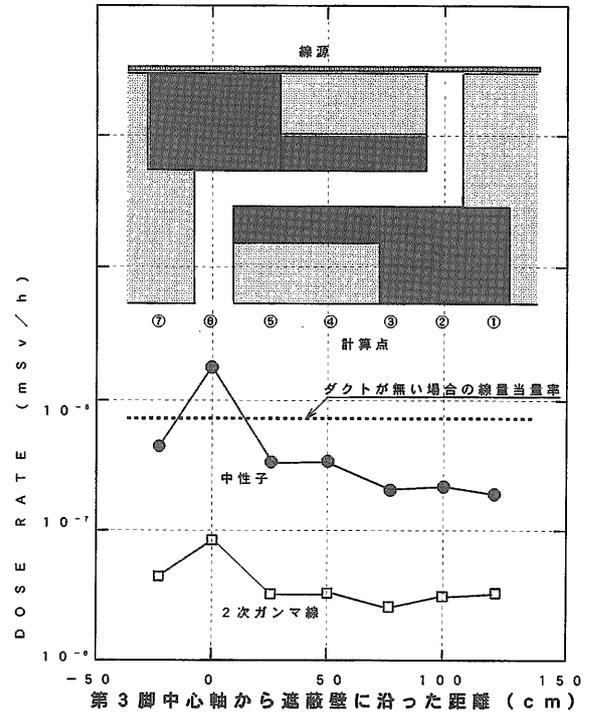


図-A.20 補償遮蔽付き屈曲円筒ダクト遮蔽壁背面での線量当量率分布

ある。第3脚部の出口を除くとダクトによる遮蔽欠損効果は補償遮蔽により打ち消されていることがわかる。またこれらの点に関しては補償遮蔽をもう少し減らすことが可能である。第3脚目については補償遮蔽が少し足りない結果となっているが、第1脚目の補償遮蔽は少し削れるので、第1脚目を例えば数cm長くし、その分第3脚を短くすることにより前部の補償遮蔽体を厚くする方法も考えられる。

A.2 オフセット状円環ギャップ

ここで扱う遮蔽欠損は段付きプラグ等の周囲に存在するようなオフセット状円環ギャップである。ギャップ幅は3cm、内側と外側の円環の内径はそれぞれ25cm及び38cm、長さはともに50cmとした。図-A.21に円環ギャップの体系を示す。これに対して補償遮蔽体を配置した体系を図-A.22に示す。本体系は二次元円筒座標で正確に表示できるのでDOTによる計算のみを実施した。計算条件等は屈曲円筒ダクトの場合と同じである。結果を図-A.23に示す。中性子の場合、ギャップがないコンクリート壁の場合に比べ中心部で線量当量率が1/10近くまで下がっている。半径が38cmから41cm

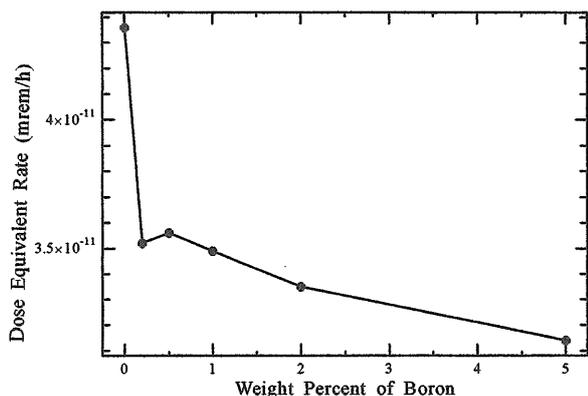


図-A.21 オフセット状円環ギャップ体系

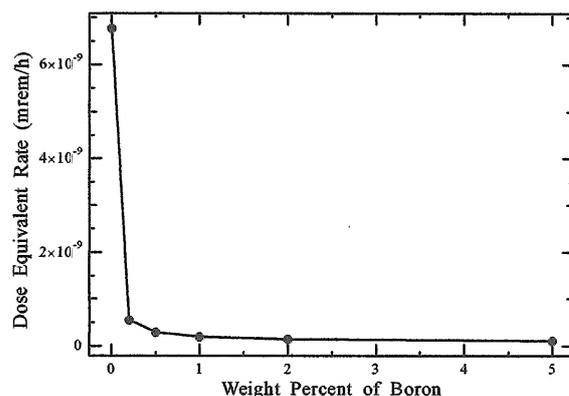


図-A.24 補償遮蔽付きフセット状円環ギャップ周辺の中性子線量当量率分布

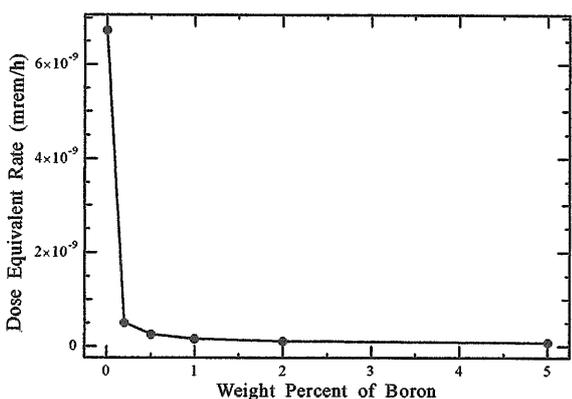


図-A.22 オフセット状円環ギャップ補償遮蔽体配置と寸法

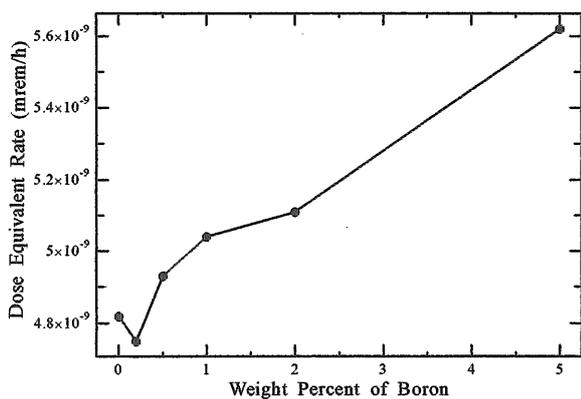


図-A.23 遮蔽壁後部での半径方向線量当量率分布の比較

までのところに外側のギャップが存在するが、そこで線量当量率分布に小さなピークがあるがその外側に向かってほぼ平坦な分布をしている。一方、中性子が物質と反応することにより発生する二次ガンマ線の線量当量率分布は中性子と同様な分布をしている。一次ガンマ線も二次ガンマ線とほぼ同様な分布で絶対値も近い。図-A.24、図-A.25、及び図-A.26に中性子、二次ガン

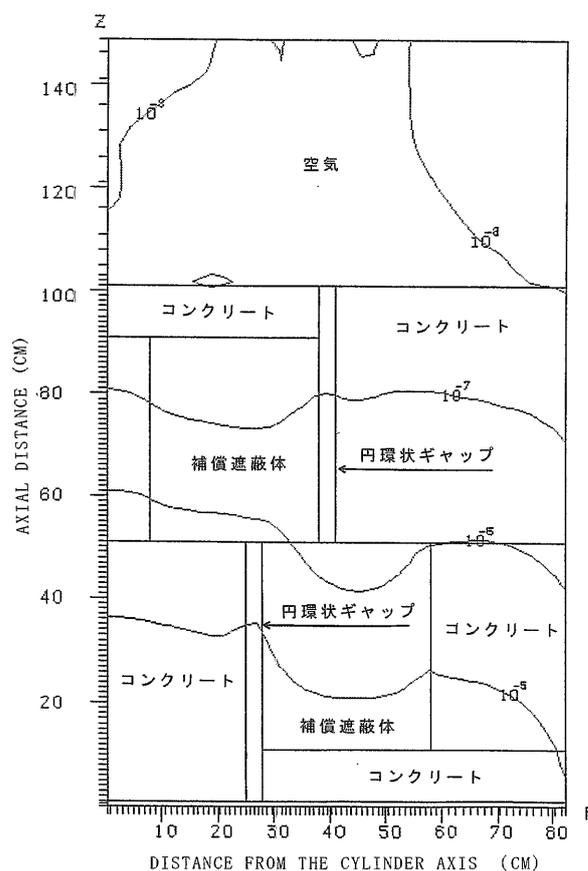


図-A.25 補償遮蔽付きフセット状円環ギャップ周辺の二次ガンマ線量当量率分布

マ線、及び一次ガンマ線の線量当量率の等高線をそれぞれ示す。中性子と二次ガンマ線の場合、二段目のギャップの前にある補償遮蔽材の中での線量率が周囲より減衰している。このため、二段目のギャップに入射する放射線量が少なく、ギャップに沿ったストリーミングと相殺していることがわかる。一次ガンマ線の場合はこのような効果は小さく従って二段目のギャップ

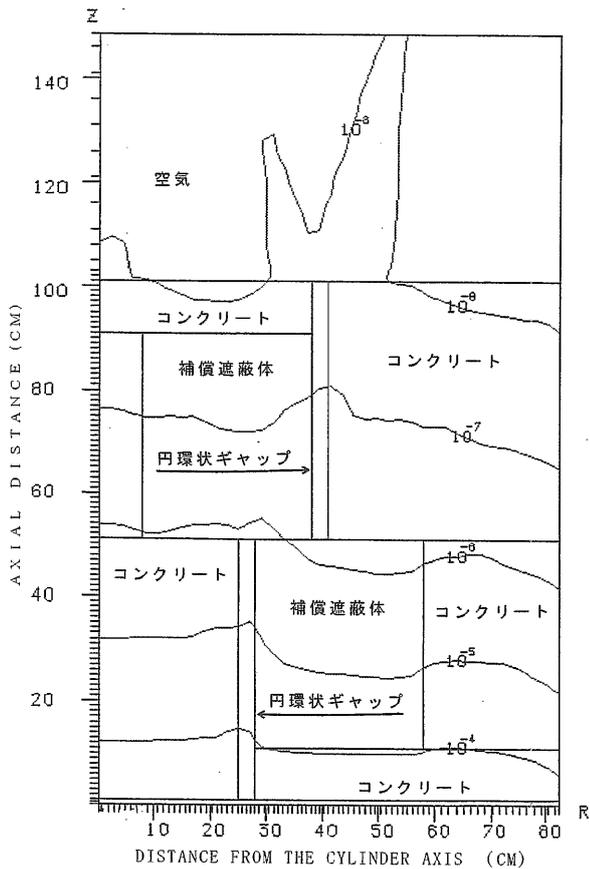


図-A.26 補償遮蔽付きフセット状円環ギャップ周辺の一次ガンマ線量当量率分布

からのストリーミングがはっきりと見える。しかし、絶対量は少ない。以上のように円環ギャップの場合は十分過ぎる補償遮蔽が施されていることが確認できた。最適な補償遮蔽については今後検討する必要がある。

付録B 硼素含有割合の遮蔽性能への影響

2章の「元素の選択と元素比率の決定」で述べたように本研究においては低エネルギーから高エネルギーの中性子に対し高含水素物質を、高エネルギー中性子及びガンマ線に対する重い物質として鉛化合物、低エネルギー吸収材として天然硼素化合物を選んだ。そして、これらの物質の混合割合は材料の密度を2.2とすること及び硼素の含有量を5重量%とすることから決定した。密度を2.2とすると鉛の割合はほぼ決定される。しかし、硼素の5重量%という量が適切な量かどうかは明らかではない。そこで、輸送計算コードANISNを用いて硼素の含有量の遮蔽性能に及ぼす影響を計算した。体系は一次元で厚さ2mの遮蔽体とし、遮蔽体の前面に核分裂面線源を置いた。硼素の重量%は0.0、0.2、0.5、1.0、2.0、5.0%と変化させた。遮蔽材の密度は2.2と一定値である。遮蔽材の元素密度は表-B.1に示す通

表-B・1 硼素濃度を变化させた材料の元素密度 (/cm³)

元素	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5	No. 6
H	5.04×10^{22}	5.04×10^{22}	5.02×10^{22}	5.00×10^{22}	4.95×10^{22}	4.80×10^{22}
P b	3.42×10^{21}	3.42×10^{21}	3.40×10^{21}	3.38×10^{21}	3.35×10^{21}	3.25×10^{21}
C	1.68×10^{22}	1.68×10^{22}	1.67×10^{22}	1.66×10^{22}	1.65×10^{22}	1.60×10^{22}
O	2.27×10^{22}	2.27×10^{22}	2.26×10^{22}	2.25×10^{22}	2.23×10^{22}	2.16×10^{22}
B	0.00	2.45×10^{20}	6.12×10^{20}	1.22×10^{21}	2.46×10^{21}	6.13×10^{21}
Bの重量%	0.0	0.2	0.5	1.0	2.0	5.0

りである。それぞれの遮蔽材をNo.1からNo.6で表す。当然のことではあるが、硼素の濃度が増すとともにその他の元素の濃度は小さくなる。計算における角度分点等のパラメータの取り方は本文の5章に示したものと同じである。なお、本計算においては線量はmrem/h単位で表されている。これは旧単位であり、使用したANISNに組み込まれている線量への換算係数による。しかし、硼素濃度の最適値を調べる上では特に支障はないのでこのまま用いた。図-B.1に中性子の線量率の遮蔽体中での減衰曲線を示す。硼素の含まれない材料No.1の場合が他の場合に比べて多少高い線量当量率を示すが、硼素が含まれている場合はいずれもほぼ同じ線量当量率を示す。すなわち、硼素が全くないと低エネルギー中性子が増加し、そのため線量当量率が増す。しかし、硼素が0.2重量%以上では硼素量に変化してもその効果はあまり変化しない。図-B.2に二次ガンマ線の線量率の遮蔽体中での減衰曲線を示す。硼素量の変化に伴い線量当量率の明らかな変化が見られる。特に、硼素の重量%が0と0.2の間で大きな変化をしている。図-B.3に一次ガンマ線の線量率の遮蔽体中での減衰曲線を示す。この場合は、図からは変化がほとんど見られない。すなわち、線量当量率は比重によって決められている。図-B.4に中性子と二次ガンマ線の線量率の和を示す。これは線源が中性子のみの場合の線量当量率分布に対応する。図-B.5に中性子と一次、二次ガンマ線の線量率の和を示す。これは線源が核分裂線源の場合の線量当量率分布に対応する。これらについての詳細を以下に示す。図-B.6から図-B.10に遮蔽体前面から1cmの位置における中性子、二次ガンマ線、一次ガンマ線、中性子と二次ガンマ線の和、及び中性子と一次、二次ガンマ線の和に対応する線量当量率を硼素の重量%の関数としてそれぞれ示す。図-B.11から図-B.30には遮蔽体前面から50、100、150、200cmの各位置における同様の図を示す。また表-B.1に以上の結果を数値で示す。これらの図表は今後硼素の量の最適値を決定する上で有用であると考えられるので示した。以上のデータから結論されるのは硼素含有量の最適値は線源条件と遮蔽体の厚さで異なるということである。例えば、核分裂線源の場合遮蔽体が薄い中性子が支配的で、従って図-B.6に示されるように最適値は0.2から1%の間の任意の値となる。厚さが

表-B 2 硼素濃度を变化させた遮蔽材料中における
中性子、二次ガンマ線、及び一次ガンマ線線量
当量率計算値 (mrem/h)

	Distance from the Source (cm)				
	1	50	100	150	200
Weight Percent of Boron = 0.0					
Neutron	2.53×10^0	5.05×10^{-05}	1.88×10^{-08}	4.36×10^{-11}	1.10×10^{-13}
Secondary Gamma Rays	9.25×10^{-03}	9.00×10^{-05}	6.88×10^{-07}	6.73×10^{-09}	7.42×10^{-11}
Primary Gamma Rays	4.10×10^{-02}	2.62×10^{-05}	3.12×10^{-07}	4.82×10^{-09}	7.56×10^{-11}
Weight Percent of Boron = 0.2					
Neutron	2.43×10^0	1.74×10^{-05}	1.35×10^{-08}	3.52×10^{-11}	9.86×10^{-14}
Secondary Gamma Rays	3.50×10^{-03}	6.52×10^{-06}	4.97×10^{-08}	5.15×10^{-10}	6.12×10^{-12}
Primary Gamma Rays	4.10×10^{-02}	2.60×10^{-05}	3.09×10^{-07}	4.75×10^{-09}	7.38×10^{-11}
Weight Percent of Boron = 0.5					
Neutron	2.42×10^0	1.74×10^{-05}	1.36×10^{-08}	3.56×10^{-11}	1.00×10^{-13}
Secondary Gamma Rays	3.18×10^{-03}	3.21×10^{-06}	2.34×10^{-08}	2.59×10^{-10}	3.33×10^{-12}
Primary Gamma Rays	4.10×10^{-02}	2.64×10^{-05}	3.17×10^{-07}	4.93×10^{-09}	7.78×10^{-11}
Weight Percent of Boron = 1.0					
Neutron	2.42×10^0	1.73×10^{-05}	1.35×10^{-08}	3.49×10^{-11}	9.76×10^{-14}
Secondary Gamma Rays	3.10×10^{-03}	2.04×10^{-06}	1.39×10^{-08}	1.65×10^{-10}	2.28×10^{-12}
Primary Gamma Rays	4.10×10^{-02}	2.66×10^{-05}	3.21×10^{-07}	5.04×10^{-09}	7.99×10^{-11}
Weight Percent of Boron = 2.0					
Neutron	2.42×10^0	1.72×10^{-05}	1.32×10^{-08}	3.35×10^{-11}	9.18×10^{-14}
Secondary Gamma Rays	3.10×10^{-03}	1.40×10^{-06}	8.64×10^{-09}	1.10×10^{-10}	1.66×10^{-12}
Primary Gamma Rays	4.10×10^{-02}	2.67×10^{-05}	3.24×10^{-07}	5.11×10^{-09}	8.14×10^{-11}
Weight Percent of Boron = 5.0					
Neutron	2.43×10^0	1.76×10^{-05}	1.29×10^{-08}	3.14×10^{-11}	8.21×10^{-14}
Secondary Gamma Rays	3.21×10^{-03}	1.06×10^{-06}	5.72×10^{-09}	8.39×10^{-11}	1.41×10^{-12}
Primary Gamma Rays	4.10×10^{-02}	2.76×10^{-05}	3.44×10^{-07}	5.62×10^{-09}	9.25×10^{-11}

50cm以上になると一次ガンマ線が最もきいてくる。一次ガンマ線のみならば最適値は0.2%である。しかし、遮蔽体の厚さが50cm程度ならば中性子による線量も無視できないので結局全体としては図-B.15のように0.2%以上で線量率の変化はほとんどないという結果となる。遮蔽体の厚さが100cm以上となると一次ガンマ線が支配的となる。従って最適値は0.2%となる。ただし、硼素含有量が変化しても密度が一定に保たれているので一次ガンマ線の変化自体あまり大きくはない。以上から、核分裂線源の場合、遮蔽体が150cm以下であれば硼素含有量が0.2から5%の間で変化しても線量当量率の変化は小さい。すなわち、硼素は0.2重量%程度含まれれば十分である。線源が中性子のみならば0.5重量%程度必要であろう。

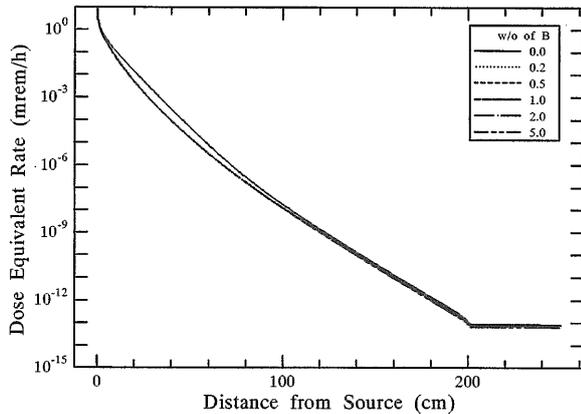


図-B.1 中性子線量当量率分布の比較

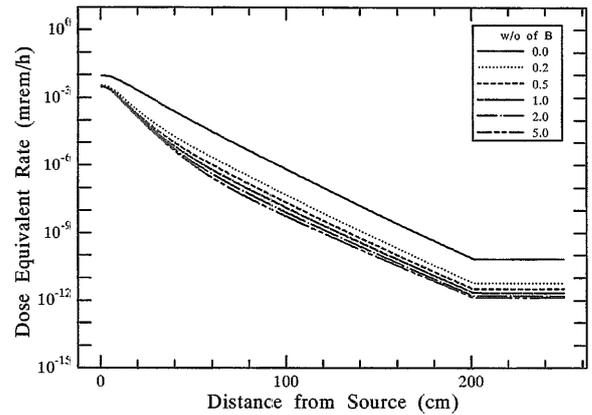


図-B.2 二次ガンマ線線量当量率分布の比較

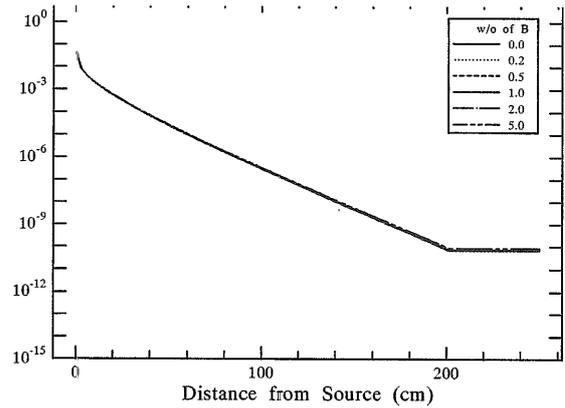


図-B.3 一次ガンマ線線量当量率分布の比較

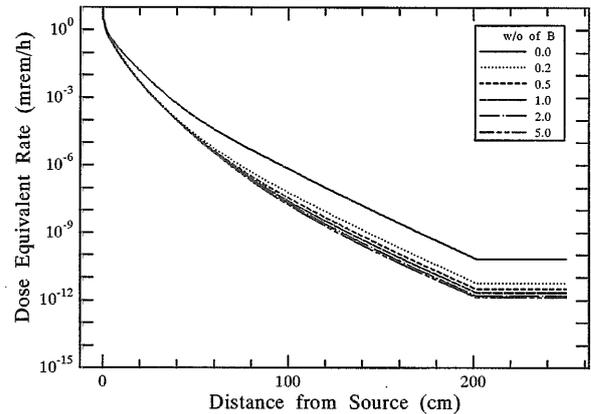


図-B.4 中性子と二次ガンマ線合計の線量当量率分布の比較

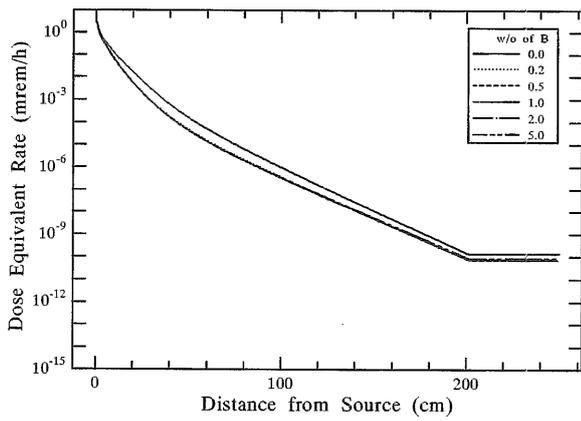


図-B.5 中性子と一次、二次ガンマ線合計の線量当量率分布の比較

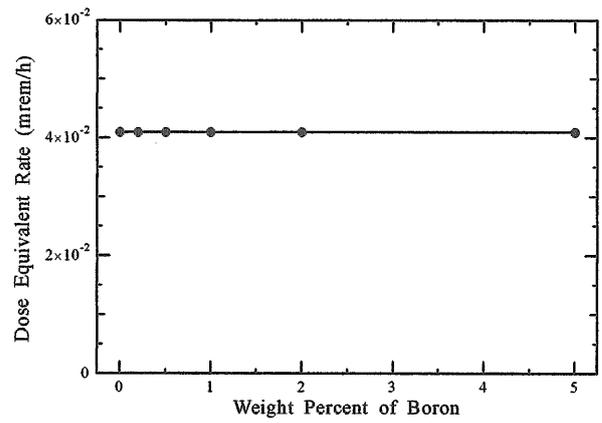


図-B.8 厚さ1cmでの一次ガンマ線線量当量率の硼素濃度依存性

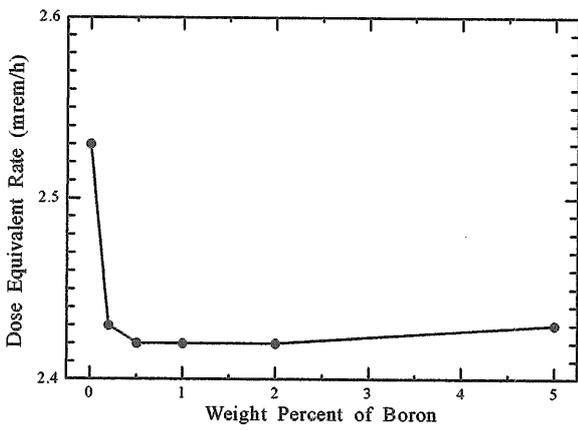


図-B.6 厚さ1cmでの中性子線量当量率の硼素濃度依存性

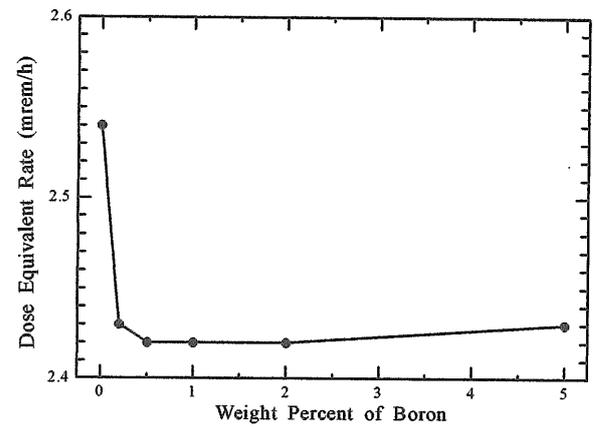


図-B.9 厚さ1cmでの中性子と二次ガンマ線合計線量当量率の硼素濃度依存性

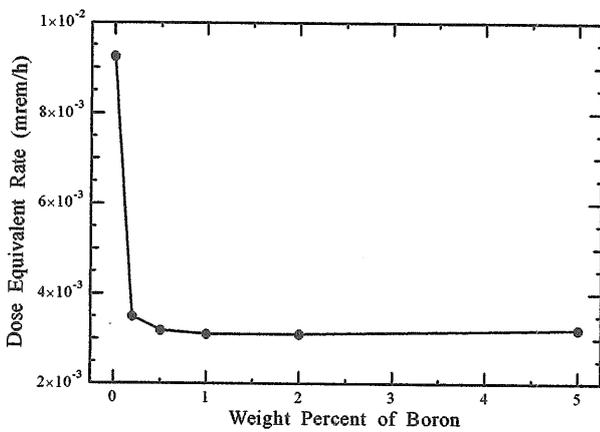


図-B.7 厚さ1cmでの二次ガンマ線線量当量率の硼素濃度依存性

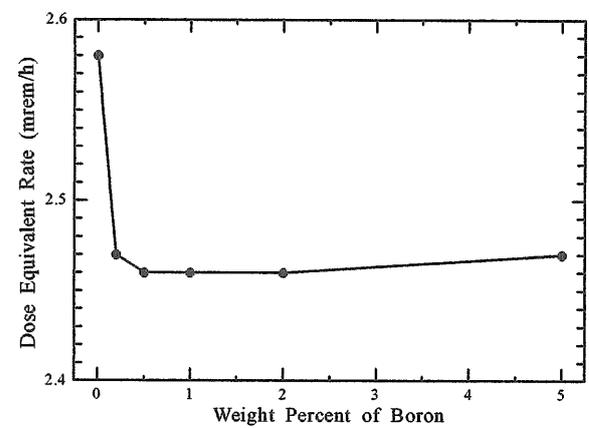


図-B.10 厚さ1cmでの中性子と一次、二次ガンマ線合計線量当量率の硼素濃度依存性

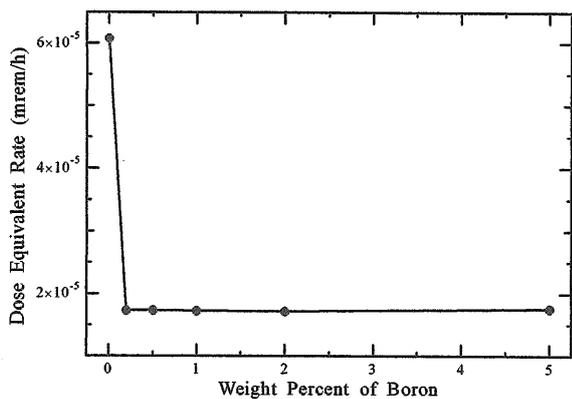


図-B.11 厚さ50cmでの中性子線量当量率の硼素濃度依存性

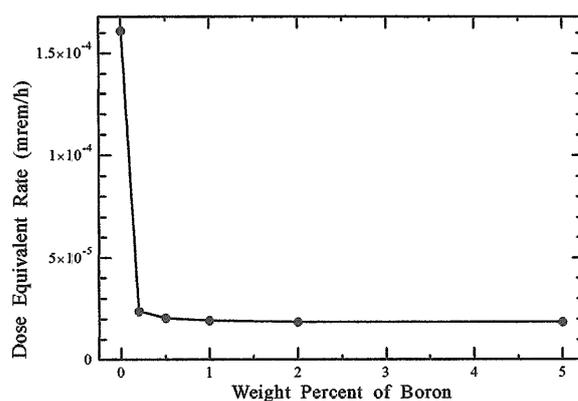


図-B.14 厚さ50cmでの中性子と二次ガンマ線合計線量当量率の硼素濃度依存性

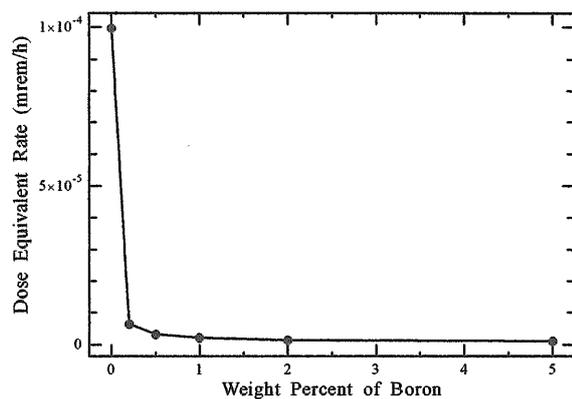


図-B.12 厚さ50cmでの二次ガンマ線線量当量率の硼素濃度依存性

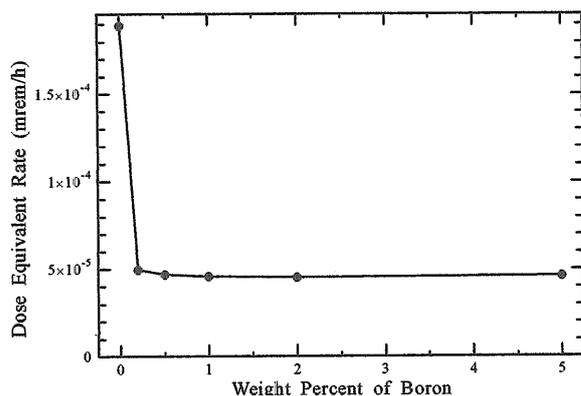


図-B.15 厚さ50cmでの中性子と一次、二次ガンマ線合計線量当量率の硼素濃度依存性

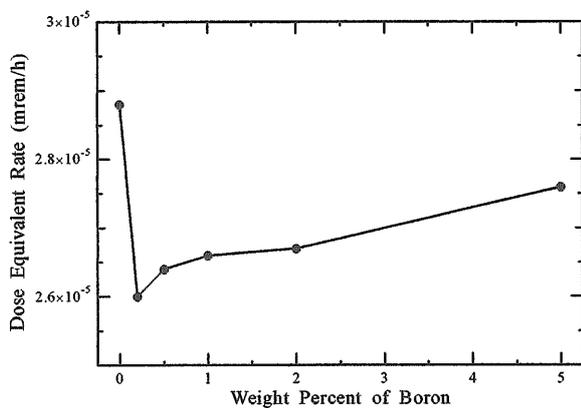


図-B.13 厚さ50cmでの一次ガンマ線線量当量率の硼素濃度依存性

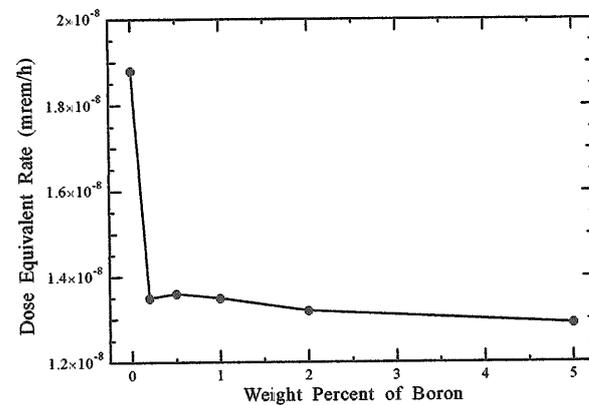


図-B.16 厚さ100cmでの中性子線量当量率の硼素濃度依存性

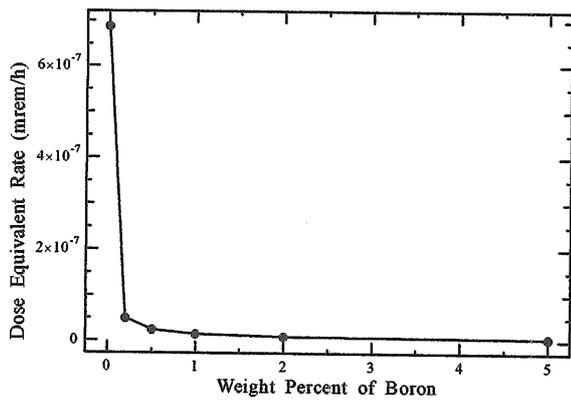


図-B.17 厚さ100cmでの二次ガンマ線線量当量率の硼素濃度依存性

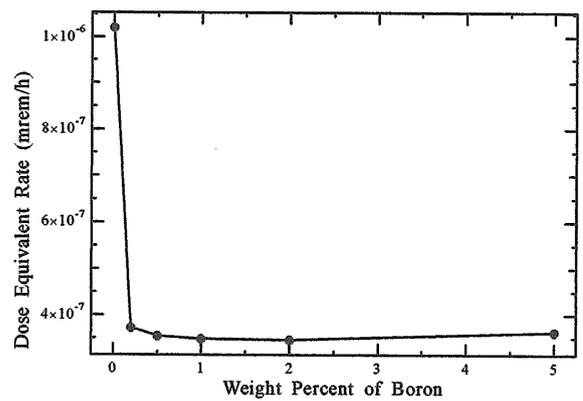


図-B.20 厚さ100cmでの中性子と一次、二次ガンマ線合計線量当量率の硼素濃度依存性

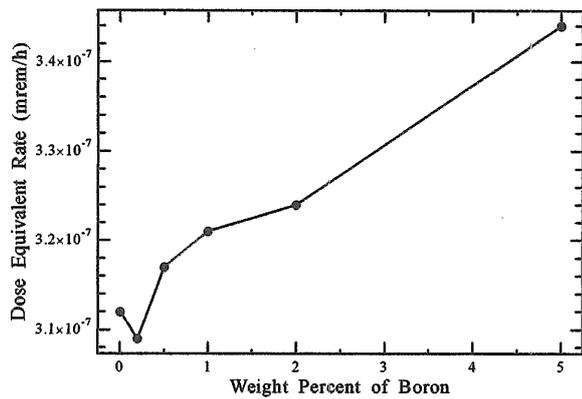


図-B.18 厚さ100cmでの一次ガンマ線線量当量率の硼素濃度依存性

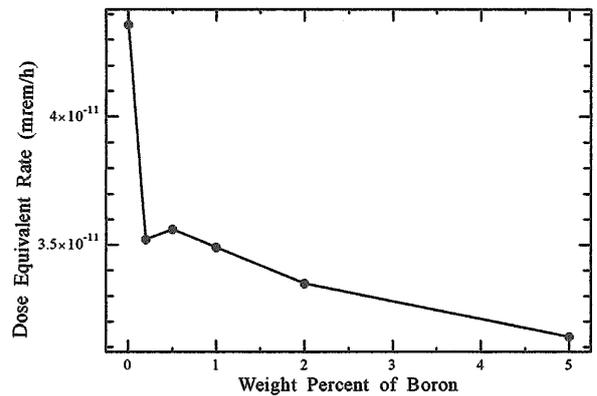


図-B.21 厚さ150cmでの中性子線量当量率の硼素濃度依存性

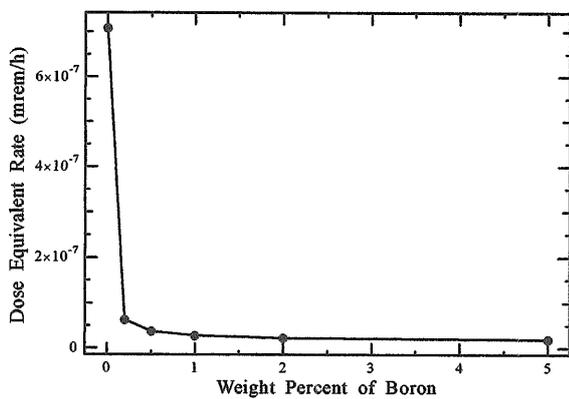


図-B.19 厚さ100cmでの中性子と二次ガンマ線合計線量当量率の硼素濃度依存性

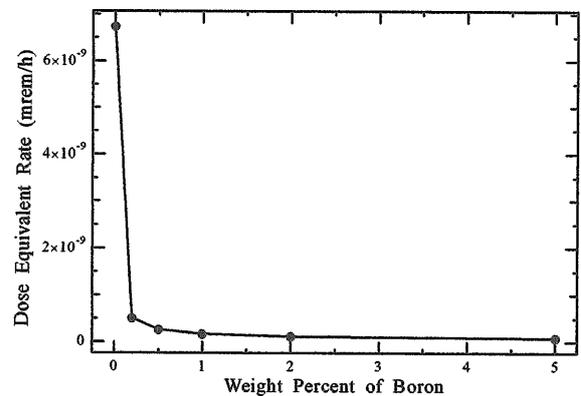


図-B.22 厚さ150cmでの二次ガンマ線線量当量率の硼素濃度依存性

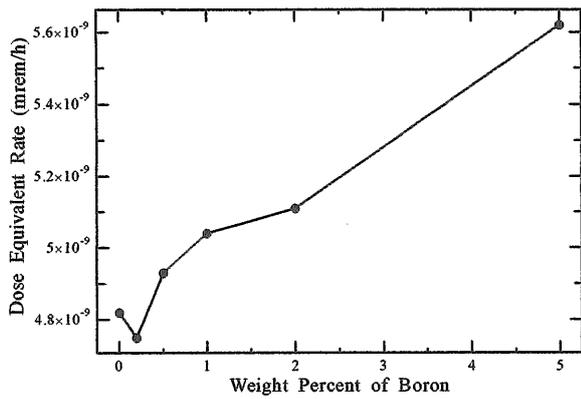


図-B.23 厚さ150cmでの一次ガンマ線線量当量率の硼素濃度依存性

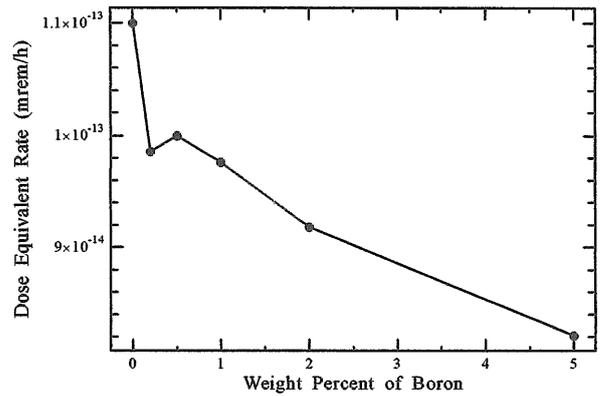


図-B.26 厚さ200cmでの中性子線量当量率の硼素濃度依存性

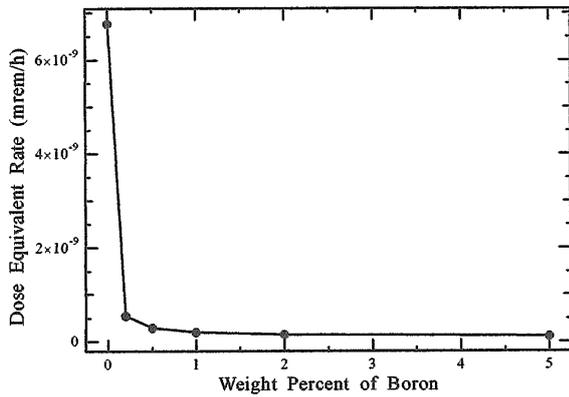


図-B.24 厚さ150cmでの中性子と二次ガンマ線合計線量当量率の硼素濃度依存性

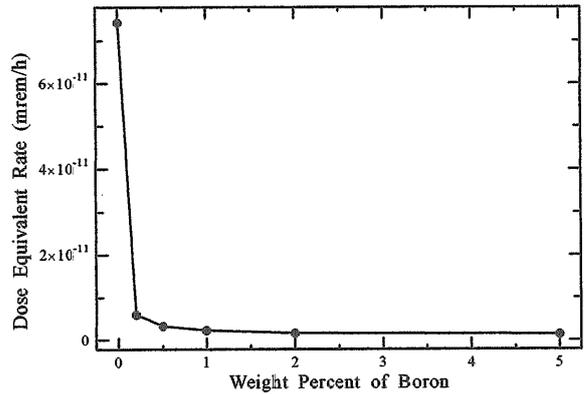


図-B.27 厚さ200cmでの二次ガンマ線線量当量率の硼素濃度依存性

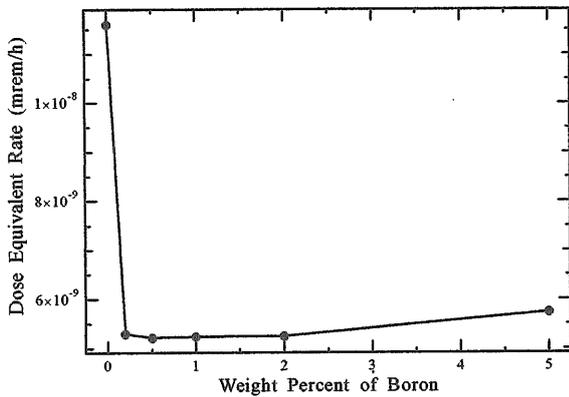


図-B.25 厚さ150cmでの中性子と一次、二次ガンマ線合計線量当量率の硼素濃度依存性

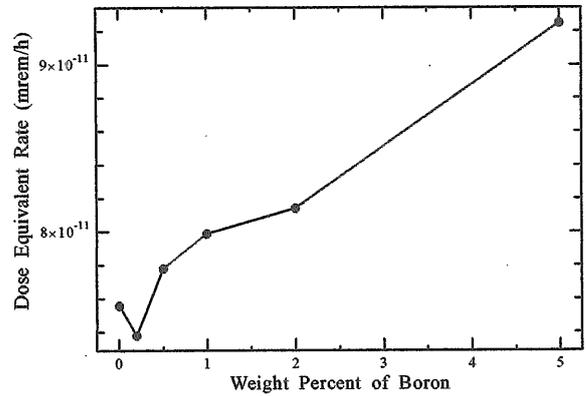


図-B.28 厚さ200cmでの一次ガンマ線線量当量率の硼素濃度依存性

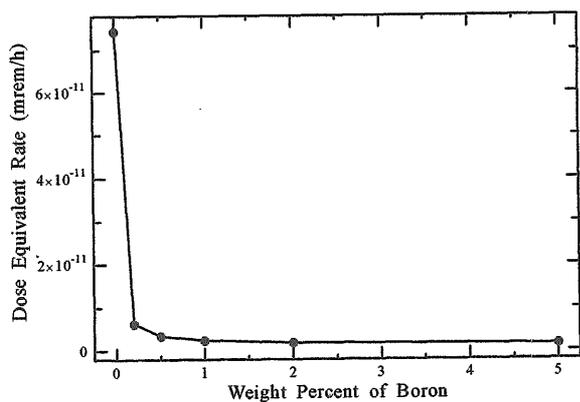


図-B.29 厚さ200cmでの中性子と二次ガンマ線合計線量当量率の硼素濃度依存性

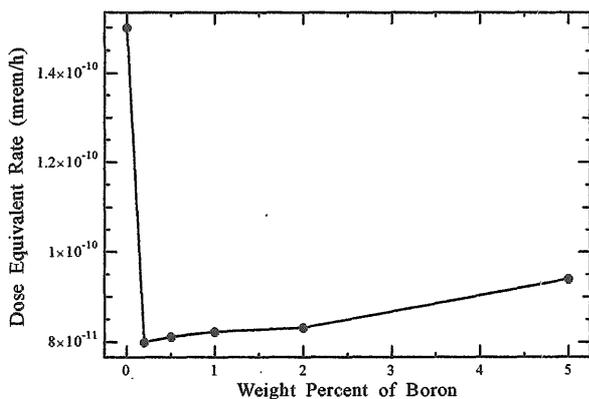


図-B.30 厚さ200cmでの中性子と一次、二次ガンマ線合計線量当量率の硼素濃度依存性

参考文献

1. 三浦 俊正、頼経 勉、平尾 好弘、「複雑形状部遮蔽設計法における放射線ストリーミング簡易計算法」JEARI-Tech 97-052 (1997).
2. Rhodes W. A. and Mynatt F. R., "The DOT-III Two-Dimensional Discrete Ordinates Transport Code," ORNL-TM-4280, (1973).
3. Briesmeister J. F., Ed., "MCNP-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4A," LA-12625, (1993).