



技術小論

放射線遮蔽用複合材料の創製

井上 賢紀 立辺 和明 鶴飼 重治
野村 茂雄 鹿倉 栄 加納 茂機*

大洗工学センター燃料材料開発部
* 技術開発部

資料番号: 78-4

Creation of Composite Materials for Radiation Shielding Application

Masaki Inoue Kazuaki Tatebe Shigeharu Ukai
Shigao Nomura Sakae Shikakura Shigeki Kano*
(Fuels and Materials Division, O-arai Engineering Center
* Technology Development Division, ditto)

原子力関連施設では大量の放射線遮蔽体が使用されており、コンクリート製の大型セルに代表されるように、それらの体積・重量が施設・機器に占める割合は非常に大きい。

そこで、放射線遮蔽体の軽量・コンパクト化とともに用途の拡大を図るため、遮蔽性能、耐熱性および成形・加工性に優れた「高性能遮蔽材」を新素材の創製を主要研究目標としたフロンティア材料研究の一環として開始した。そこでは、中性子あるいはγ線の遮蔽性能や耐熱性に優れた各種材料成分の組合せおよびその配合率を遮蔽計算コードにより求める最適材料設計を行い、任意の形状への一体成形の可能な粉末冶金法による複合材料の創製とその基本製造プロセスの研究開発を行った。

1. はじめに

原子力関連施設等では多数の放射線遮蔽体が使用されており、中性子遮蔽には B_4C 、ポリマー等が、γ線遮蔽には主として鉛が用いられ、中性子とγ線の同時遮蔽には両者の単純な積層材や構造用材料としてのコンクリート等が併用されている。これらの従来材料には高温強度、化学的安定性、成形加工性等に問題点がある。また、遮蔽体が実際に曝される放射線環境では放射線の種類（中性子線、γ線）、強さ、スペクトルが異なっており、こうした面から成分の組合せ、配合率の最適化（最適成分設計）が行われている例は少ない。このため、遮蔽体が施設・機器の構成要素に占める体積、重量はかなり大きなものになっている。

そこで、遮蔽体の合理化による施設・機器の軽量・コンパクト化および機能の向上を図るため、耐熱性、成形・加工性にも優れた「高性能遮蔽材の創製」をフロンティア材料研究の一環として昭和63年度から開始した。初年度は、文献調査により内外の遮蔽材料の開発動向、遮蔽材料成分の調査を行い、

中性子およびγ線の遮蔽性能に優れ、耐熱性を有する複合材料の最適成分設計を行った。続く平成元年度から材料設計および製造プロセスの開発に着手した。

これらの結果、材料設計に基づく遮蔽材料組成に適切なバインダー材を用いて、構造用材料として必要な機械的安定性および耐熱性を与え、各種の放射線環境（種類、強さ）で遮蔽性能を維持しつつ任意の形状への一体成形・加工を可能にする粉末冶金法による複合材料の創製および基本製造プロセスの開発を行うことができた。特に、黒鉛、 B_4C 、ガドリニア等の非金属系材料と鉛、タングステン等の金属系材料が均一に分布した複合材料として一体成形するため、遮蔽能力の低下を最小限に留めながら必要な強度や靱性を発揮できるバインダー材および製造条件の選定が大きなポイントとなった。

本稿では、原子炉、再処理施設、核燃料製造施設等の広範な原子力分野での適用を目的として開発した放射線遮蔽用複合材料の材料設計手法、基本製造プロセス、製造した成形材の特性等について報告する。

表1 各種遮蔽材成分の特徴

	成分	中性子減速能力	中性子吸収能力	γ 遮蔽能力	耐熱性	耐酸化性
遮蔽材	金属水素化物	◎	△	×	×	△
	BeO	○	○	×	○	○
	C	○	×	×	○	×
	Fe	△	×	○	○	△
	B ₄ C	○	○	×	○	△
	EuB ₆	△	○	×	○	△
	Gd	×	○	○	○	△
	Gd ₂ O ₃	×	○	○	○	○
	W	×	×	○	○	△

◎：非常に優れる

○：優れる

△：やや劣る

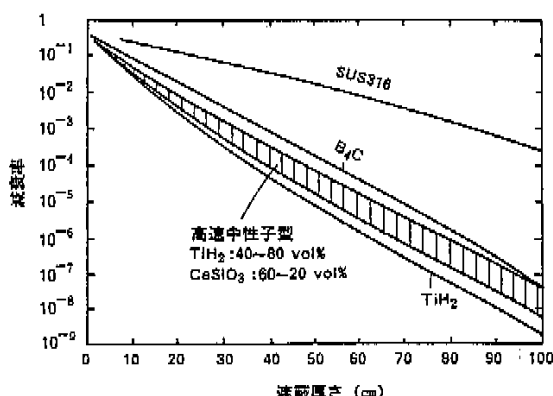
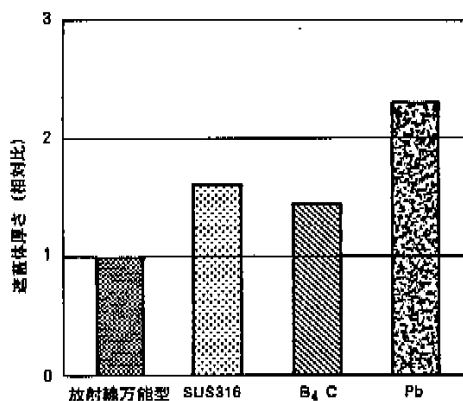
×：劣る

2. 材料設計

(1) 材料設計

遮蔽性能に優れ、耐熱性を有する遮蔽材料を製造するためには、高温での物理的・化学的安定性に優れる遮蔽材料成分を選定する必要がある。各種の遮蔽材料について、中性子と γ 線に対する遮蔽能力、耐熱性、耐酸化性について整理した結果を表1に示す。遮蔽性能の観点から、表1に示した成分に対して原子力施設での放射線環境（放射線の種類、スペクトルおよび強さ）下で最も効果的な遮蔽能力が得られる遮蔽材料の成分を選定し、同時に、遮蔽体への成形・加工性、耐熱性を考慮した最適な遮蔽材料設計を行った。

ここで、放射線環境を中性子・ γ 線の複合照射環境、高速中性子照射環境、熱中性子照射環境の3種類に区分して、それぞれに有効な遮蔽材料を「放射線万能型」、「高速中性子型」、「熱中性子型」と呼ぶことにする。これらの成分選定は以下のように行った。

図1 高速中性子型の中性子遮蔽能力
(線源：核分裂スペクトルの中性子源)

ただし、放射線万能型は中性子線・ γ 線複合照射環境用で C-Gd₂O₃-W-Fe の成分からなる。
中性子源：核分裂スペクトルの高速中性子
 γ 線源：⁶⁰Co

図2 必要な遮蔽体厚さによる比較

① 放射線万能型

γ 線に対する遮蔽能力は密度の大きい元素が優れているのに対し、中性子遮蔽性能に関しては原子番号が小さい元素または中性子吸収断面積が大きい元素が優れている。したがって、中性子と γ 線の同時遮蔽に有効な遮蔽材料として、中性子減速性能に優れる黒鉛、中性子吸収性能に優れる酸化ガドリニウム、 γ 線遮蔽性能に優れるタングステンを採用し、これらを成形して機械的強度を持たせるためのバインダー材として鉄を選定した。

② 高速中性子型

図1は、炭化ほう素、SUS316、金属水素化物として水素化チタンの高速中性子に対する遮蔽性能を遮蔽計算コードによる減衰計算をもとに比較した結果を示す。金属水素化物は高速中性子に対する優れた遮蔽能力を有しているが、成形・加工性が劣る。そこで、金属水素化物に比較的低原子番号で成形・加工性に優れた珪酸カルシウムをバインダー材として組み合わせた材料を選定した。

③ 熱中性子型

酸化ガドリニウムは熱中性子遮蔽（吸収）能力に最も優れ、耐酸化性、耐熱性も有するが、金属水素化物と同様、成形・加工性が劣る。そこで、酸化ガドリニウムの成形体を得るためのバインダー材としてほう素を含有する陶磁器原料を採用した。

(2) 遮蔽性能評価例

ここで選定した放射線万能型の遮蔽材料について、核分裂スペクトルの中性子（高速中性子）と⁶⁰Co- γ 線が重畳した放射線環境下での遮蔽性能を従来

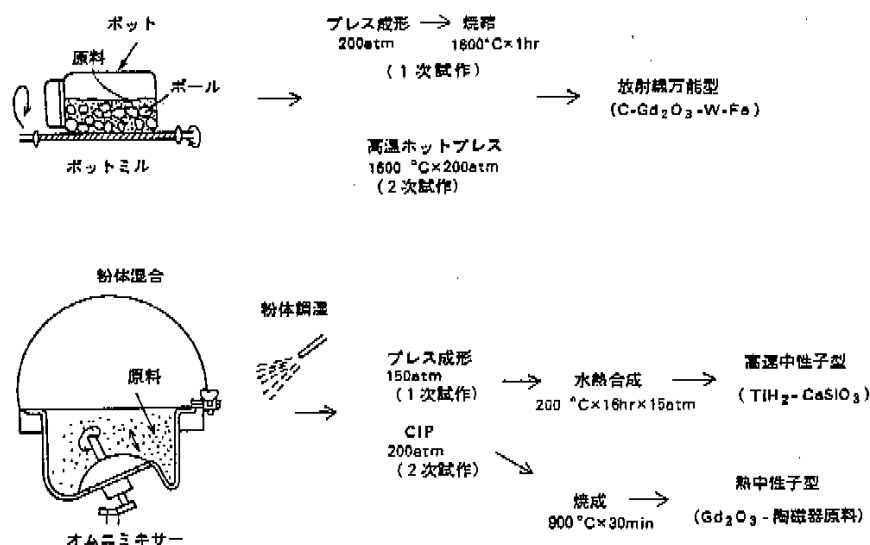


図3 製造プロセス

材のSUS316、炭化ほう素および鉛と遮蔽計算コードによる減衰計算をもとに比較した結果を図2に示す。図では必要な減衰率を得るための遮蔽厚さを、放射線万能型のそれを1とした相対値で示している。放射線万能型が優れた遮蔽性能を発揮する要因は、選定材料が中性子とγ線をバランスよく遮蔽できることにある。炭化ほう素ならびにSUS316は中性子遮蔽性能に優れるが密度が小さくγ線遮蔽性能に劣り、鉛はγ線遮蔽には優れるが中性子遮蔽は劣ることによる。

3. 製造プロセスの開発

材料設計で求めた最適成分系を持った成形材を試作するため、粉末冶金法による製造プロセスの開発

を行った。試作試験は、材料設計により選定した表2に示す成分と配合率について実施した。ここで、バインダー材の体積率はできるだけ低いことが望ましいが、試作試験としての位置づけから広範囲に設定した。各タイプの製造プロセスの概要を図3に示す。

(1) 放射線万能型

原料およびバインダー材をポットミルにより乾式で混合した後、プレス成形と焼結により成形体を試作した。焼結温度はバインダー材である鉄の融点以上で液相焼結することにより、有害な気孔の発生を抑えた。さらに、成形材の理論密度比を向上させることを目的に、高温ホットプレスによる改善も試みた。

(2) 高速中性子型・熱中性子型

オムニミキサーにより原料粉末を混合後、調湿し、金型に充填して圧粉を行った。続いて、各種の加熱条件下で固化させた。圧粉工程において、プレス成形を用いた場合の理論密度比は50%程度と低かった。図4は、プレス成形圧力による試作材の密度の依存性をもとめたものであり、プレス成形のみでは理論密度比の向上に限界があることがわかる。そこで、CIP（冷間静水圧プレス）を採用し、理論密度比の改善を図った。

4. 試作材の特性評価

試作した成形材の外観写真を図5に示す。試作材

表2 試作試験成分およびその配合率 (vol%)

タイプ	中性子遮蔽材			γ線遮蔽材 W	バインダー材		
	中性子減速材		中性子吸収材 Gd ₂ O ₃		鉄型 カルシウム	陶磁器 [*] 原料	Fe
	C	TiH ₂					
放射線 万能型	70		10	10			10
	60		20	10			10
	50		30	10			10
高速 中性子型		40			60		
		60			40		
		80			20		
熱 中性子型			40			60	
			60			40	
			80			20	

* 陶磁器原料成分: SiO₂・Al₂O₃・B₂O₃

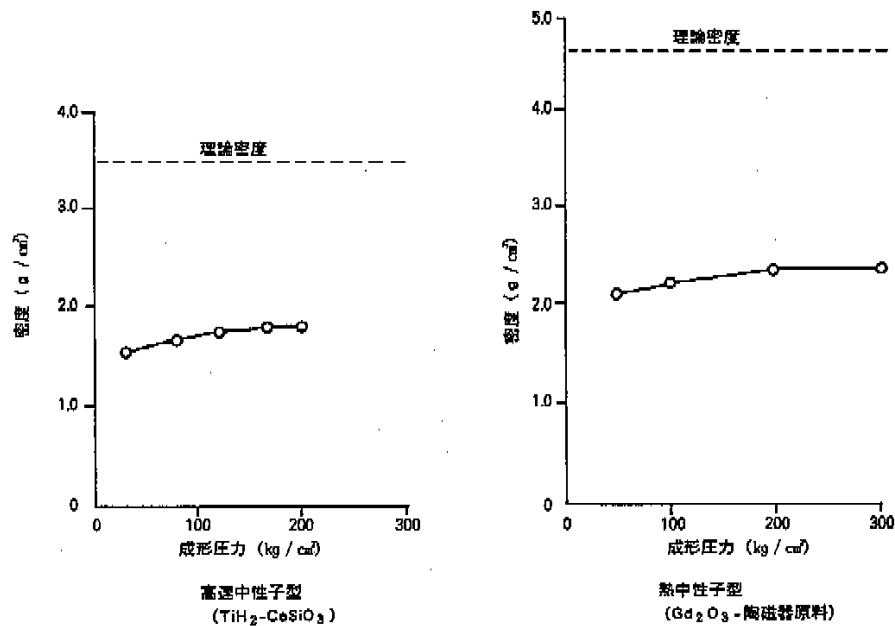


図4 成形圧力による試作材密度への影響

の特性を評価するため、密度測定、組織観察、曲げ強度試験、ブリネル硬さ測定等の物性値を取得した。また、700℃×10時間の高温加熱後に同様の評価試験を行い、耐熱性の評価を行った。以上の評価試験結果を表3にまとめて示す。

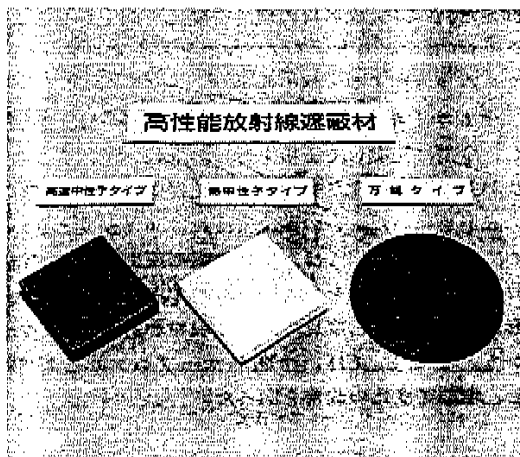


図5 試作材の外観写真

(1) 密度測定結果

放射線万能型では真密度材を得ることができ、高温ホットプレスによりバインダー材を液相状態として原料粉末の混合体を成形する手法の有効性が示された。また、冷却時の熱応力の発生による割れ等の問題も冷却時間を長くすることで解消された。

高速度中性子型および熱中性子型については、CIP法を適用することにより密度の向上が図られたものの、理論密度に対してそれぞれ73%、56%程度であった。真密度材が得られなかった原因は、走査型電子顕微鏡観察の結果、粉末の成形時に行う調湿による水分の揮発経路が気孔となること、粉末形状が破片状であることによる焼結性の低下に起因していると考えられ、今後とも改良していく必要がある。

表3 評価試験結果

タイプ	成分	試作材密度 g/cm³		曲げ強度 kg/cm²	ブリネル 硬さ	高温加熱後(700℃)	
		1次試作	2次試作 (理論密度比%)			寸法変化 %	外観
放射線 万能型	C-Gd ₂ O ₃ - W-Fe	5.1	6.4(100)	843	40	0	一部粉末化
高 速 中 性 子 型	TiH ₂ - CeSiO ₃	2.0	2.6(73)	80	12	+3.7	良好
熱 中 性 子 型	Gd ₂ O ₃ - 陶磁器原料	2.6	3.6(56)	96	9	0	良好

(2) 機械的強度

試作材の曲げ強度、ブリネル硬さは十分は機械的強度を有することを示している。放射線万能型については、バインダー材の体積を10vol%に固定したものの、金属基であるため他より高い値が得られている。一方、高速中性子型、熱中性子型は原料、バインダー材ともにセラミック系原料を採用していることから、アルミナ等に近い十分な機械的強度になっている。

(3) 耐熱性

高温加熱後の寸法安定性は概ね良好であり、著しい強度低下、重量変化は認められなかった。しかし、外観検査結果によると、放射線万能型については成分同士の反応による若干の粉末化、熱膨張差によるマイクロクラックの発生が認められた。

以上のように、機械的強度および高温での安定性のある成形材を実現する基本的な製造プロセスを確立することができた。現在、理論密度比と耐熱性の改善を中心に製造プロセスの改良を中心とした開発を進めている。今後は、試作材の中性子、 γ 線による遮蔽実験を行い、実機放射線環境下での遮蔽性能を確認するとともに、照射試験により照射下での安定性を把握する予定である。

5. おわりに

放射線遮蔽が必要なあらゆる分野への適用が可能

な高性能遮蔽材を創製するための研究開発を昭和63年度から進めてきた。その結果、各種の中性子遮蔽材料成分と γ 線遮蔽材料成分の中から、実際の放射線照射環境に応じた最適な原料成分の組合せと配合率を選定する材料設計手法を確立した。同時に、材料設計により求めた材料組成に対して適切なバインダー材と組合せることにより構造用材料としての機械的安定性および耐熱性を与え、任意の形状への成形・加工を可能にする粉末冶金法による基本製造プロセスの開発を行った。その結果、材料設計と粉末冶金法の組合せによる新しい概念の放射線複合材料を創製することができ、工業的生産に対する技術的見通しも得ることができた。

これらの成果は、遮蔽材料に関する物性値等のデータベースの拡充、バインダー材の開発、製造プロセスの改善をさらに進めることにより、原子炉、再処理施設、核燃料製造工場、輸送容器等の広範な原子力分野における放射線遮蔽体の高性能化および合理化に有効な手段となりえるものである。

参考文献

- 1) 井上ら：特願平2-303186号「耐熱放射線遮蔽材」
- 2) 井上ら：特願平2-303186号「ガドリニウム系熱中性子遮蔽材」
- 3) 井上ら：特願平2-303187号「ほう素化合物系中性子遮蔽材」
- 4) 井上ら：特願平2-267757号「放射線遮蔽材」
- 5) 井上ら：特願平2-267756号「耐熱高速中性子遮蔽材」