

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2008-8656

(P2008-8656A)

(43) 公開日 平成20年1月17日(2008.1.17)

(51) Int. Cl.		F I		テーマコード (参考)
G 2 1 F	1/08	(2006.01)	G 2 1 F	1/08
G 2 1 F	3/00	(2006.01)	G 2 1 F	3/00
				N

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2006-176599 (P2006-176599)	(71) 出願人	504151365 大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構 茨城県つくば市大穂1番地1
(22) 出願日	平成18年6月27日 (2006.6.27)	(71) 出願人	000229173 日本タングステン株式会社 福岡県福岡市博多区美野島1丁目2番8号
		(74) 代理人	100082164 弁理士 小堀 益
		(74) 代理人	100105577 弁理士 堤 隆人
		(72) 発明者	稲垣 隆雄 茨城県つくば市倉掛741-15

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】放射線遮蔽材

(57) 【要約】

【課題】配合黒鉛の不均一分散による放射線遮蔽能の低下の問題を解消し、中性子線と線、X線の同時遮蔽能に加え、耐久性に優れた放射線遮蔽材を提供すること。

【解決手段】熱中性子捕獲断面積の大きなGdもしくはGdの酸化物、窒化物、ホウ化物、炭化物、酸窒化物、酸ホウ化物、炭酸化合物、窒ホウ化物、炭窒化物、炭ホウ化物、炭酸窒化物、酸ホウ窒化物、炭ホウ酸化合物、酸ホウ窒炭化物、またはこれらの複合化合物もしくは混合物のうち少なくとも一種の含有量が、0.2~40質量%であり、タングステンの含有量が50~97.8質量%であり、鉄等の結合材の含有量が2~10質量%となるような配合組成にして、これを焼結して放射線遮蔽材とする。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

GdもしくはGdの酸化物、窒化物、ホウ化物、炭化物、酸窒化物、酸ホウ化物、炭酸化物、窒ホウ化物、炭窒化物、炭ホウ化物、炭酸窒化物、酸ホウ窒化物、炭ホウ酸化物、酸ホウ窒炭化物、またはこれらの複合化合物もしくは混合物のうちの少なくとも一種とタングステンと結合材とからなる放射線遮蔽材。

【請求項 2】

結合材がFe、Ti、Cu、Ni、Cr、Coのうちの少なくとも1種からなる請求項1に記載の放射線遮蔽材。

【請求項 3】

GdもしくはGdの酸化物、窒化物、ホウ化物、炭化物、酸窒化物、酸ホウ化物、炭酸化物、窒ホウ化物、炭窒化物、炭ホウ化物、炭酸窒化物、酸ホウ窒化物、炭ホウ酸化物、酸ホウ窒炭化物、またはこれらの複合化合物もしくは混合物のうちの少なくとも一種の含有量が0.2~40質量%であり、タングステンの含有量が50~97.8質量%であり、結合材の含有量が2~10質量%である請求項1または請求項2に記載の放射線遮蔽材。

10

【請求項 4】

最表面が、Tiまたはステンレス鋼で被覆されている請求項1から請求項3のいずれかに記載の放射線遮蔽材。

【発明の詳細な説明】

20

【技術分野】

【0001】

本発明は、 γ 線、X線および中性子線を同時に遮蔽する放射線遮蔽材料に関するもので、放射線施設や、放射性廃棄物、核燃料、ラジオアイソトープ(RI)等の貯蔵、輸送容器及び関連機器等に使用される放射線遮蔽材料に関する。

【背景技術】

【0002】

γ 線およびX線の遮蔽には、どのような物質も質量減弱係数に大差はなく、密度の大きい物質の方が線減弱係数が大きくなり、遮蔽体の厚みが小さくて済むので、一般には鉛、タングステン、鉄、コンクリートなどが使われている。

30

【0003】

一方、物質中に照射された高速中性子は、物質中の原子との弾性散乱によりエネルギーを失い熱中性子となり、熱中性子は物質を構成する元素の原子核により捕獲される。そのため、中性子線の遮蔽には、一般的に水素を含有する水や高分子材料、Gd、B、C、Be等を含有する材料が遮蔽材として使用されている。

【0004】

熱中性子は熱中性子捕獲断面積の大きな原子核によるほど捕獲され易いが、この場合二次 γ 線が放出される場合があるので、中性子線遮蔽にはこの二次 γ 線の遮蔽も含めて考えなければならない。

【0005】

40

そこで、中性子線と γ 線、X線を同時に遮蔽する材料として、Gd、黒鉛などの中性子線遮蔽材と、鉛やタングステンなどの γ 線遮蔽材を複合させた材料が特許文献1および特許文献2に提案されている。

【0006】

すなわち、特許文献1には、黒鉛からなる中性子減速材と、酸化ガドリニウムからなる中性子吸収材と、タングステンおよび/または酸化タングステンからなる γ 線遮蔽材との混合物からなる原料粉末を鉄粉末と均一に混合して熔融状態の鉄をバインダー材として成形・加工した放射線遮蔽材が開示されている。

【0007】

また、特許文献2には、黒鉛、酸化ガドリニウム、タングステンおよび/または酸化タ

50

ングステンからなる原料粉末と、鉄粉末および/または鉛粉末を、体積率で夫々90～95%、10～5%に混合して加圧成形した半導体容器が開示されている。

【特許文献1】特公平8-27388号公報

【特許文献2】特許2877292号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

このGd、黒鉛などの中性子線遮蔽材と鉛やタングステンなどの線遮蔽材を複合させた材料は、中性子線と線、X線を同時に遮蔽する能力において優れたものではあるが、配合材料相互、とくに、配合黒鉛と他の配合成分との比重差のために、配合成分、とくに、黒鉛が材料中に均一に分散されず、また、密度が低くなるので、所期の放射線遮蔽能が十分に発揮されないという問題がある。

10

【0009】

本発明において解決すべき課題は、配合黒鉛の不均一分散による放射線遮蔽能の低下の問題を解消し、中性子線と線、X線の同時遮蔽能に加え、耐久性に優れた放射線遮蔽材を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明は、材質的に緻密化に悪影響をもたらす黒鉛を使用しなくとも、GdまたはGdの酸化物その他の化合物によって、黒鉛が有する中性子線、とくに、高速中性子線の遮蔽能を代替できるという知見に基づいて上記課題を解決した。これによって、従来、放射線遮蔽、とくに、高速中性子線の遮蔽に必須とされてきた黒鉛を使用しないことによって、黒鉛の使用による密度の低下が防止され、緻密で、中性子線と線、X線の同時遮蔽能に優れた放射線遮蔽材を得ることができる。

20

【0011】

上記GdまたはGdの酸化物の他にも、各種の窒化物、ホウ化物、炭化物、酸窒化物、酸ホウ化物、炭酸化物、窒ホウ化物、炭窒化物、炭ホウ化物、炭酸窒化物、酸ホウ窒化物、炭ホウ酸化物、酸ホウ窒炭化物、またはこれらの複合物化合物もしくは混合物のうちの少なくとも一種（以下、総称して「Gd含有物」という。）が使用でき、これに、タングステンと結合材とからなる材料を得ることにより、中性子線と線、X線を同時に遮蔽する確実な性能と耐久性を有する放射線遮蔽材を得ることができる。

30

【0012】

Gd含有物としては、Gdをそのまま添加して良いが、化学的に安定な酸化物や材料中に均一に分散することを助ける働きをするGdの酸化物、窒化物、ホウ化物、炭化物、酸窒化物、酸ホウ化物、炭酸化物、窒ホウ化物、炭窒化物、炭ホウ化物、炭酸窒化物、酸ホウ窒化物、炭ホウ酸化物、酸ホウ窒炭化物、またはこれらの複合物化合物もしくは混合物の形で添加すれば、放射線遮蔽材中にGd含有物が均一に分散し、中性子の遮蔽が確実にできる材料を得ることができる。とくに、Gdのホウ化物、炭化物は、中性子の減速、遮蔽の効果がGd単体より大きく、黒鉛やホウ素をGdに単体で添加した従来のものより、原料の混合分散が比重差により不均一とならず、中性子の遮蔽効果が向上する。放射線遮蔽材を薄い形状で用いる場合、とくにその性能が発揮される。Gdの酸ホウ化物等ホウ素を有する固溶体や炭窒化物等炭素を有する固溶体も同様の効果がある。

40

【0013】

本発明の放射線遮蔽材には、耐熱性や耐食性の結合材を用いるのが望ましく、具体的には、Fe、Ti、Cu、Ni、Cr、Coのうちの少なくとも1種または複数種を使用することが望ましい。その結合材の選択によっては400以上での使用が可能となる。また、上記結合材の複数種の選択により例えばステンレス合金のような耐食性の合金を形成すれば、耐食性が要求される環境に適した放射線遮蔽材を得ることができる。

【0014】

また、Gd含有物の含有量が0.2～40質量%、タングステンの含有量が50～97

50

・ 8 質量%であり、結合材の含有量が 2 ~ 10 質量%であるような組成にしてより密度の大きい構成にすれば、 γ 線、X線遮蔽効果が向上する。また、熱中性子捕獲断面積の大きな元素またはこのような元素を多く含む物質ほど中性子線遮蔽に効果があるため、これらを兼ね備えた無機物質を用いるか、組み合わせることによって、一層優れた放射線遮蔽材の製造が可能である。

【0015】

Gd含有物の含有量が 0.2 質量%より少ないと、中性子線の遮蔽効果が低下する。Gd含有物の含有量が 40 質量%より多いと、 γ 線、X線の遮蔽効果が低下する。また、タングステンの含有量は 50 質量%より少ないと、 γ 線、X線の遮蔽効果が十分でなく、97.8 質量%より多いと、中性子線の遮蔽が十分でないばかりか焼結しにくくなる。また結合材の含有量については、2 質量%未満であると、1500 以下での焼結が十分でなく、曲げや引っ張りに耐えられる材料が得られない。また、10 質量%より多いと、 γ 線、X線の遮蔽効率が悪いので材料を厚くして用いる必要がある。

10

【0016】

また、焼結後の本発明の放射線遮蔽材の密度は 10 以上であることが望ましい。この値未満では、 γ 線、X線遮蔽能が鉛より劣り、 γ 線、X線、中性子線の同時遮蔽能を得るには、材料自体を厚くして用いなければならず、実用的でないからである。

【0017】

さらに、本発明の放射線遮蔽材の表面に、Ti やステンレス鋼をめっき、溶射、イオンプレーティング、蒸着等により被覆すれば、耐食性が向上し各種環境で長期間、放射線遮蔽材として使用が可能になる。

20

【発明の効果】

【0018】

本発明の放射線遮蔽材は γ 線、X線および中性子線の同時遮蔽能が、従来の鉄や鉛をバインダー材として黒鉛、酸化ガドリニウム、タングステンおよび/または酸化タングステンを含有する焼結体からなる放射線遮蔽材よりも優れ、耐久性にも優れている。

【0019】

また、原料の配合割合を本発明の割合に設定することにより、最適な放射線遮蔽材の設計が可能で、使用上十分な機械的強度および耐熱性を持たせた放射線遮蔽材の製造が可能である。

30

【0020】

さらに、Ti またはステンレス鋼で、本発明の放射線遮蔽材の表面を被覆すれば、耐食性が向上し様々な環境で使用できる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0021】

本発明の放射線遮蔽材は、次のような方法で製造することができる。

【0022】

まず、タングステン粉末と Gg 含有物の粉末と Fe、Ti、Cu、Ni、Cr、Co のうちの少なくとも 1 種からなる粉末をボールミル混合機やアトライターやらいかい機などで均一に混合する。均一に混合できれば、その他の混合方法を用いてもよい。

40

【0023】

次に混合した粉末を篩いにかけて、粗大粒子径の粉末は粉碎し、再度篩いにかけて、平均粒子径を 1 ~ 30 μm に調整後、プレス機の金型に充填し 20 ~ 200 MPa の圧力でプレス成形し、非酸化性雰囲気中で 1200 ~ 1700 にて焼結を行うと本発明の放射線遮蔽材を得ることができる。または、上記粒径を調整した原料粉末をホットプレス装置のカーボン製の型に充填し、1 ~ 20 MPa の圧力で 850 ~ 1300 の温度範囲にてホットプレスを行うと本発明の放射線遮蔽材を得ることができる。

【0024】

焼結時には、結合材である Fe、Ti、Cu、Ni、Cr、Co のうちの少なくとも 1 種は、一度液化して、タングステン粒子と Gd 含有物粒子をつなぐ結合材としての役割を

50

果たす。

【0025】

得られた焼結体を適宜機械加工、放電加工等を行えば所望の形状の本発明の放射線遮蔽材を得ることができる。

【0026】

以下実施例により詳細に本発明を説明する。なお、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0027】

遮蔽能の試験は、各放射線の線量当量率を1/10にする各試験材の厚さ(1/10価層)を求め、それによって評価を行なった。試験には中性子線源として ^{252}Cf を、線源として ^{60}Co を用いた。

10

【実施例1】

【0028】

結合材として平均粒子径1 μm の純鉄を用い、それに中性子吸収材として平均粒子径1 μm の Gd_2O_3 粒子を用い、線遮蔽材として平均粒子径145 μm のタングステン粉末を用い、それぞれ表1に示す配合割合に従って配合し、ボールミル混合機で4時間均一になるまで混合した。

【0029】

次に混合した粉末を#500、#1000の順にステンレス製網の篩いにかけて、粗大粒子径の粉末は粉碎し、再度篩いにかけて、平均粒子径を1~30 μm に調整後、プレス機の金型に充填し20~200MPaの圧力でプレス成形し15×15×(1.5~2.5)cmの形状のプレス成形体を得た、そしてこれを水素雰囲気中で1200~1700の温度範囲で焼結を行い、平面研削盤で成形し10×10×(1~2)cmの形状の本発明の放射線遮蔽材を作製した。同様にして、上記粒径を調整した原料粉末をホットプレス装置のカーボン製の型に充填し、1~20MPaの圧力で850~1300の温度範囲でホットプレスを行うことによっても本発明の放射線遮蔽材を得ることができた。

20

【0030】

そして、得られた本発明の放射線遮蔽材について、その密度および遮蔽能を測定した。なお、比較例として、従来の黒鉛を含むW-Gd₂O₃-Fe-C系材料のうち50質量%W-20質量%Gd₂O₃-20質量%Fe-10質量%C、ニッケル、タングステン、鉛、エポキシ樹脂、ポリエチレン、コンクリート、炭素鋼(SS41)についても同様の測定を行なった。結果を表1に示す。

30

【表 1】

区分	No.	組成(質量%)			密度 (g/cm^3)	1/10値層(cm)	
		Gd ₂ O ₃	W	Fe		中性子	γ線
実施例	1	0.1	97.9	2.0	18.71	30	3
	2	0.2	97.8	2.0	18.66	10	3
	3	0.2	89.8	10	16.79	10	3
	4	0.2	88.8	11	16.58	10	3
	5	1	97	2	18.28	2	3
	6	1.1	97	1.9	未焼結	-	-
	7	1	89	10	16.48	2	3
	8	20	78	2	12.33	0.1	5
	9	20	74	6	11.89	0.1	5
	10	20	70	10	11.48	0.1	5
	11	40	58	2	9.18	0.05	6
	12	40	54	6	8.94	0.05	6
	13	40	50	10	8.70	0.05	6
	14	41	49	10	未焼結	-	-
		15	50W-20Gd ₂ O ₃ -20Fe-10C			6.93	0.1
比較例	16	ニッケル			8.90	115	8
	17	タンゲステン			19.3	53	3
	18	鉛			11.3	65	5
	19	エポキシ樹脂			1.35	16	33
	20	ポリエチレン			0.92	23	92
	21	コンクリート			2.10	57	36
	22	炭素鋼(SS41)			7.86	130	9

10

20

30

40

50

【0031】

表 1 より、本発明の放射線遮蔽材は、中性子線および γ 線 (X 線を含む) 共に実用的な厚さで遮蔽することができることがわかる。

【0032】

ただし、実施例 No. 1 からわかるように、Gd₂O₃ の含有量が 0.2 質量% 未満になると中性子遮蔽能が低下するので、Gd₂O₃ の含有量は 0.2 質量% 以上が望ましいことがわかる。また、実施例 No. 14 からわかるように、Gd₂O₃ の含有量が 40 質量% を超えると未焼結の状態となる場合があるので、Gd₂O₃ の含有量は 0.2 質量% 以上 40 質量% 以下が望ましいことがわかる。

【0033】

また、実施例 No. 6 からわかるように、Fe の含有量が 2.0 質量% 未満になると未焼結の状態になり放射線遮蔽材として使用することができない場合があるので、結合材の含有量は 2.0 質量% 以上が望ましいことがわかる。ただし、結合材の量が 10 質量% を超えると密度が低下して、γ 線 (X 線を含む) を遮蔽する能力が低下するので、結合材の含有量は 2.0 質量% 以上 10 質量% 以下とすることが望ましい。

【0034】

さらに、実施例 No. 1 からわかるように、W の量が 97.8 質量% を超えると中性子遮蔽能力が低下するので、W の含有量は 97.8 質量% 以下とすることが望ましい。また、実施例 No. 14 からわかるように、W の量が 50 質量% 未満になると未焼結となる場合があるので、W の含有量は、50 質量% 以上 97.8 質量% 以下が望ましいことがわかる。

【0035】

本発明の放射線遮蔽材は、No. 1 の実施例を除き、比較例 No. 19 のエポキシ樹脂

より優れた中性子線遮蔽能を有しており、なお且つその密度の増加により線遮蔽能も増しており、線、X線遮蔽能と中性子線遮蔽能を高性能に兼ね備えるものである。

【0036】

比較例No. 15のW-Gd₂O₃-Fe-C系材料は、中性子遮蔽能は優れているが、黒鉛を含有するので密度が低下し、黒鉛の材料中の分散が比重差のため不均一となり、線遮蔽能は本発明の放射線遮蔽材の線遮蔽能の1/4より小さい結果となった。

【0037】

他の比較例であるニッケル、タングステン、鉛、エポキシ樹脂、ポリエチレン、コンクリート、炭素鋼(S S 4 1)と比較しても線遮蔽能、中性子線遮蔽能を総合的に評価した場合、いずれの実施例もその優位性が明らかに認められる。

10

【実施例2】

【0038】

実施例1と同様にして、Gd₂O₃の代わりにGdもしくはGdの窒化物(GdN)、ホウ化物(Gd₂B₄)、炭化物(Gd₄C₃)、酸窒化物(Gd(ON))、酸ホウ化物(Gd(BO))、炭酸化物(Gd₂(CO))、窒ホウ化物(Gd(BN))、炭窒化物(Gd(CN))、炭ホウ化物(Gd(CB))、炭酸窒化物(Gd(CON))、酸ホウ窒化物(Gd(OBN))、炭ホウ酸化物(Gd(CBO))、酸ホウ窒炭化物(Gd(OBNC))、またはこれらの複合化合物(Gdの酸化物を含む)もしくは混合物(Gdの酸化物を含む)のうち少なくとも一種以上の粉末を用いたが、実施例1と同様の結果となった。

20

【0039】

ここで、Gd(ON)はGd₂O₃とGdNとの固溶体、Gd(BO)はGd₂B₄とGd₂O₃との固溶体、Gd₂(CO)はGd₄C₃とGd₂O₃との固溶体、Gd(BN)はGd₂B₄とGdNとの固溶体、Gd(CN)はGd₄C₃とGdNとの固溶体、Gd(BN)はGd₂B₄とGdNとの固溶体、Gd(CB)はGd₄C₃とGd₂B₄との固溶体、Gd(CON)はGd₄C₃とGd₂O₃とGdNとの固溶体、Gd(OBN)はGd₂O₃とGd₂B₄とGdNとの固溶体、Gd(CBO)はGd₄C₃とGd₂B₄とGd₂O₃との固溶体、Gd(OBNC)はGd₂O₃とGd₂B₄とGdNとGd₄C₃との固溶体である。また複合化合物とは、上記したCd化合物の複合化合物である。混合物とは、これらが単に混合されたものである。Gd単体の状態で添加するより、化合物の形で添加する方が、分散が均一になり、化学的にも安定であるので望ましい。

30

【実施例3】

【0040】

実施例1と同様にして、結合材をFeからTi、Cu、Ni、Cr、Coのうちの1種または複数種(Feを含む)、例えば、5質量%Feを3質量%Fe-2質量%Ni等に変更しても同様の結果となった。前記添加物のほか、Mo、N等を別途添加して合成したFe-12Ni-17Cr-2.5Mo-0.15N等のステンレス鋼となるような組成の結合材を用いると耐食性が向上する。

【実施例4】

【0041】

実施例1と同じ試料の最表面に、Tiを500μmアーキオンプレATINGした試料について実施例1と同様の実験を海水が噴霧される条件で行ったが、腐食もなく長期間の使用に耐えることができることがわかった。被覆していない試料は、表面から腐食が進行して、被覆したものの耐用年数の1/20以下の寿命となった。同様にステンレス鋼(SUS304、SUS316L等)で被覆した試料についても同様の結果となった。

40

【産業上の利用可能性】

【0042】

本発明の放射線遮蔽材は、放射線施設や原子力発電所防護壁、放射性廃棄物、核燃料、ラジオアイソトープ(RI)等の貯蔵、輸送容器および関連機器、医療用放射線防護衣、医療用アイソトープ注射器およびプランジャー、放射線遮蔽衝立、放射線遮蔽用パッキン

50

等に使用することができる。

フロントページの続き

- (72)発明者 岡本 哲也
福岡県福岡市博多区美野島1丁目2番8号 日本タングステン株式会社内
- (72)発明者 内田 雄介
福岡県福岡市博多区美野島1丁目2番8号 日本タングステン株式会社内