

中性子遮蔽用コンクリートの成分均一性評価に係る一考察

奥野功一^{*1}

近年、中性子を用いたナノ材料解析やホウ素中性子捕捉療法、非破壊検査など、中性子の利用が拡大している。これらの施設においてコンパクトな遮蔽壁を構築するため、中性子遮蔽用コンクリートが開発された。同コンクリートを遮蔽壁に用いる際、遮蔽に有効な成分が均一に混ざっているかどうかを確認することは非常に重要である。

本研究では、中性子ラジオグラフィを用いた熱中性子の透過画像を得ることにより、遮蔽に有効な成分が均一に混ざっているかどうかを確認する試みを行った。その結果、熱中性子の透過率は各深さでほぼ同一である事が確認でき、また遮蔽に有効な成分の混練量の推定ができる可能性も見出された。

キーワード：中性子，コンクリート，遮蔽，中性子ラジオグラフィ

1. 諸言

近年、中性子を用いた材料ナノ解析やホウ素中性子捕捉療法など、中性子の利用が拡大している。これらの施設において、コンパクトな遮蔽壁を構築するため、近年中性子遮蔽用コンクリートが開発された¹⁾。このコンクリートは普通コンクリートと同等の力学的強度、長期耐久性を持つと共に、遮蔽に有効な成分として約15wt%の結晶水を含む水分と約3wt%のホウ素成分を持つコンクリートである。このコンクリートを遮蔽壁に用いる際、遮蔽に有効な成分が均一に混ざっているかどうかを確認することは、遮蔽性能の品質保証の観点から非常に重要である。そこで、中性子の透過画像を取得する手法である中性子ラジオグラフィを用いて中性子の透過率を求める事により、遮蔽に有効な成分の均一性評価を試みると共に、コンクリートに含まれているホウ素成分の含有量の推定を試みた。近年、中性子ラジオグラフィを用いたコンクリートの研究として、普通コンクリートのひび割れの可視化が報告されている²⁾。この報告のように、中性子ラジオグラフィを用いたコンクリートの研究の多くは、コンクリート中の水分の可視化に係るものが多く、コンクリートに含まれる元素の均一性に係る報告は非常に少ない。

2. 中性子遮蔽コンクリート

中性子遮蔽コンクリートは、骨材に灰ほう石とかんらん岩を用いたコンクリートである¹⁾。灰ほう石はホウ素成分を含む天然岩石で、かんらん岩は水素成分を多く含む天然岩石である。両岩石とも多く安定的に生産されてい

る。これら岩石と普通セメントを用いて中性子遮蔽コンクリートが作られる。中性子遮蔽コンクリートの密度は、普通コンクリートと同等である。遮蔽のメカニズムは、水素の弾性散乱で中性子を減速させ、ホウ素が持つ非常に大きな捕獲断面積を利用して中性子を吸収するというメカニズムである。ホウ素の捕獲断面積は非常に大きいので、灰ほう石の含有量は10wt%もあれば十分であり、逆にこれ以上含有しても遮蔽性能の大きな向上は望めない。さらに、中性子遮蔽コンクリートは普通コンクリートより多くの鉄成分を持つ。そのため、高エネルギー領域の中性子に対しても普通コンクリートより良い減速特性を持つと考えられ、これらの事が合わさって遮蔽性能の向上が図られている。表-1に中性子遮蔽コンクリートと普通コンクリートの組成を示す。

3. 中性子ラジオグラフィ

中性子ラジオグラフィは、熱中性子を用いた非破壊の画像検査法である。機械内部や物質・植物内部における水分状況を調べるのに非常に有用であり、多くの研究が行われている。X線を用いた画像検査との違いは、X線の減弱は元素の原子番号に依存するが、中性子の減弱は原子番号には依存せず、元素毎に異なった振る舞いを示す。図-1は、熱中性子に対する各元素の減弱係数を示したものである³⁾。

中性子ビームをサンプルに照射し、サンプル後方に設置されたカメラにより白黒画像が取得される。この時、サンプル内の各元素の減弱係数の大小が、白黒画像の濃淡として反映される。水素やホウ素などの減弱係数の大きい元素は、画像内では濃く映る。そのため、X線画像では

*1 原子力部

見ることが出来ない水分を見ることが出来る。図-1に示すように、水素、リチウム、ホウ素など大きい減弱係数を持った元素は濃く映り、シリコン、カルシウム、酸素、アルミニウムなど減弱係数の小さい元素は薄くなるか、もしくは見えなくなる。

表-1 元素組成分析結果

中性子遮蔽コンクリート (wt%)				
SiO ₂	H ₂ O	MgO	MnO	Al ₂ O ₃
33.1	14.8	29.1	0.09	1.54
CaO	SO ₃	Cl	Cs	Na ₂ O
11	0.38	0.016	< 0.01	0.05
TiO ₂	B ₂ O ₃	P ₂ O ₅	Eu	CoO
0.07	2.61	0.11	< 0.01	< 0.01
Fe ₂ O ₃	K ₂ O	Ig-loss	Density	
6.23	0.06	13.6	2.2 g/cm ³	

普通コンクリート (wt%)				
SiO ₂	H ₂ O	MgO	MnO	Al ₂ O ₃
57.7	6.04	1.31	0.08	10.5
CaO	Cs	Na ₂ O	K ₂ O	TiO ₂
14.5	<0.01	2.29	0.86	0.39
Fe ₂ O ₃	Eu	Co	Density	
3.47	<0.01	<0.01	2.2 g/cm ³	

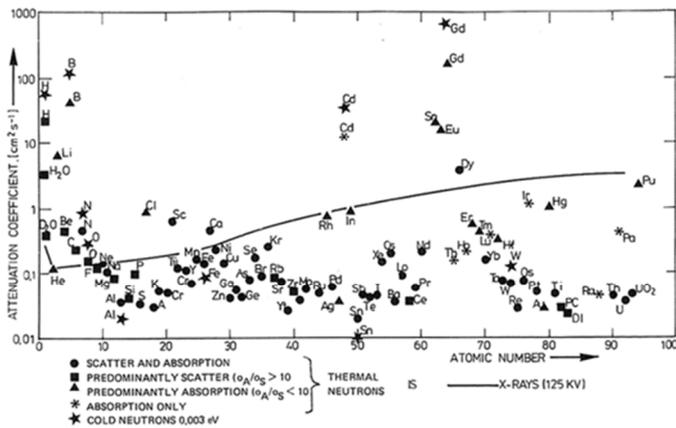


図-1 熱中性子に対する各元素の減弱係数³⁾

中性子ラジオグラフィで用いる熱中性子ビームは、原子炉や加速器中性子源で得られる。日本原子力研究開発機構のJRR-3M研究用原子炉に設置されている熱中性子ラジオグラフィ装置 (TNRF) のスペックを表-2に、実験体系を図-2に示す。

図-2において、JRR-3Mからの中性子ビームが試験体に照射される。蛍光コンバーター (Fluorescent converter) は、シンチレータにGdもしくは⁶Liを含有したものである。シンチレータからの光はミラーで反射させ、C-CCDカメラにより画像を取得する。

表-2 TNRFのスペック

Thermal neutron flux	1.2×10 ⁸ (n/cm ² sec)
Irradiation area	255mmW ×305 mmH
Resolution of cold-CCD	100 μm/pixel
Fluorescent converter	Li-loaded ZnS scintillator

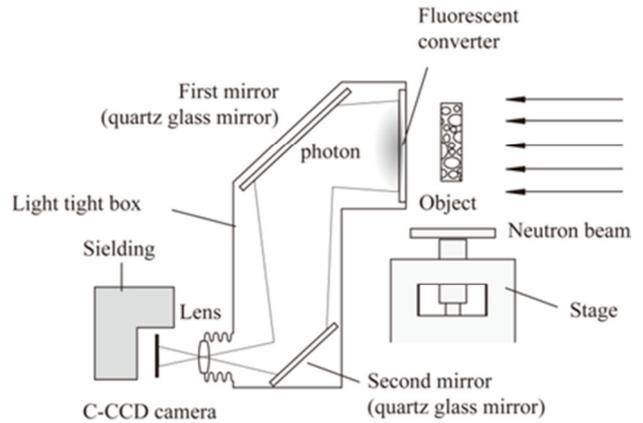


図-2 TNRFの実験体系²⁾

4. 実験

試験体に普通コンクリートと中性子遮蔽コンクリートを用い、中性子ラジオグラフィ画像を取得した。使用した中性子遮蔽コンクリートは、大強度陽子加速器施設 (J-PARC) のビームラインに使用したものと同一のものである。試料は、100mmφのコンクリートコアを1枚当たり20mm厚づつ切り出し、コンクリートコア表面から80mm深さまでを実験に供した (図-3)。均一性評価において各試料は、図-2に示すTNRFの蛍光コンバーターの前にセットして撮影を行った。実験風景を図-4に示す。



図-3 コンクリート試料

なお、遮蔽に有効な成分量の推定のために使用した中性子ラジオグラフィ装置は、TNRFではなく加速器中性子源を利用した中性子ラジオグラフィ装置を使用した。



図-4 実験風景

試料を透過する中性子の強度は下式で示される⁴⁾。

$$I = I_0 \exp(-\Sigma_t t)$$

ここで、 Σ は巨視的断面積、 t は試料厚さ、 I は試料透過後の中性子強度、 I_0 は試料透過前の中性子強度である。

5. 実験結果

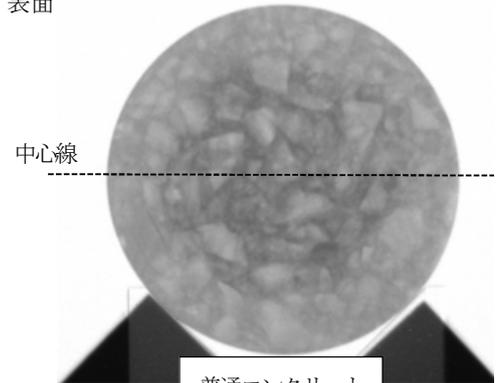
5.1 均一性評価

取得した中性子ラジオグラフィ画像を図-5に示す。図-5において、中性子強度は前述のとおり白黒のコントラストとして現れる。この画像をデジタル画像処理し、試料無しの場合における中性子ラジオグラフィ画像と比較することにより、透過率のグラフを書くことが出来る。図-6に図-5に示す中心線位置における透過率のグラフを示す。透過率1.00は、遮蔽体無し（試験体無し）を表し、透過率0.00は完全に遮蔽されている状態を表す。

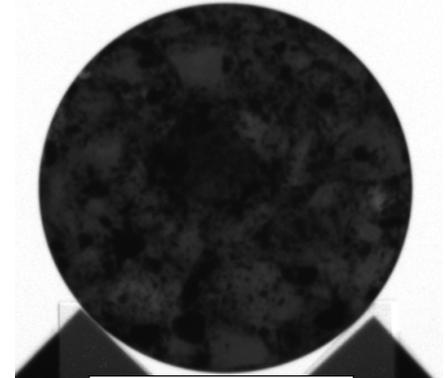
図-5より、普通コンクリートに比べ中性子遮蔽コンクリートの中性子ラジオグラフィ画像の方がより黒化度が高いことから、中性子遮蔽コンクリートの方が熱中性子遮蔽性能が高い事が解る。なお、コンクリート下の三角形の部分は試料の台座である。図-6より、中心線位置における中性子遮蔽コンクリートの透過率は、粗骨材に伴う揺れが見られるが各位置とも±0.10の範囲に収まり、均一性がほぼ保たれていると考えられる。なお、普通コンクリートにおいて、中心部の熱中性子透過率が端部より下がっているのは、図-5を見ると試料中心部の黒化度が端部より高いことから、試料中心部の水分量が端部より多いためと考えられる。

また比較のため、灰ほう石とエポキシ樹脂を混合した樹脂系中性子遮蔽材料⁵⁾に対する中性子ラジオグラフィ画像の取得も行った。図-7に当該材料の中性子ラジオグラフィ画像と透過率を示す。

(1) 表面

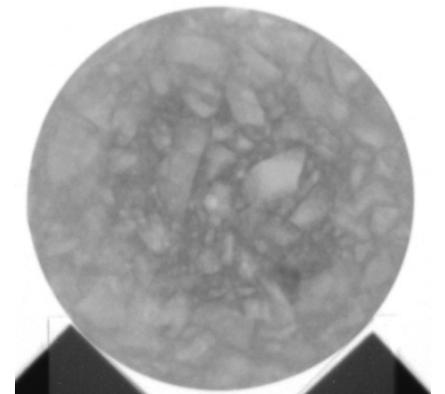


普通コンクリート

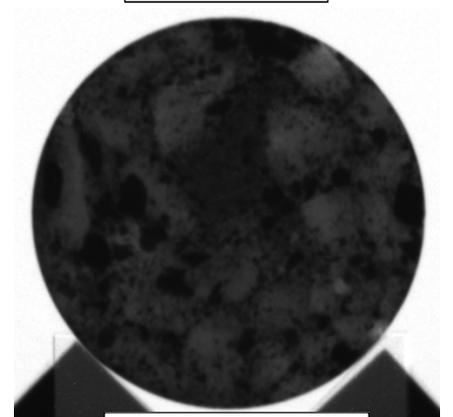


中性子遮蔽コンクリート

(2) 深さ 80mm



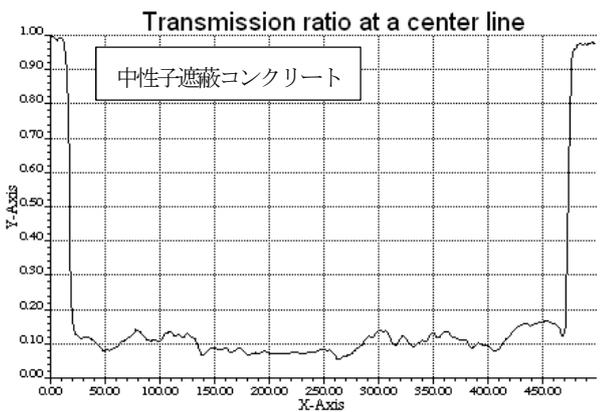
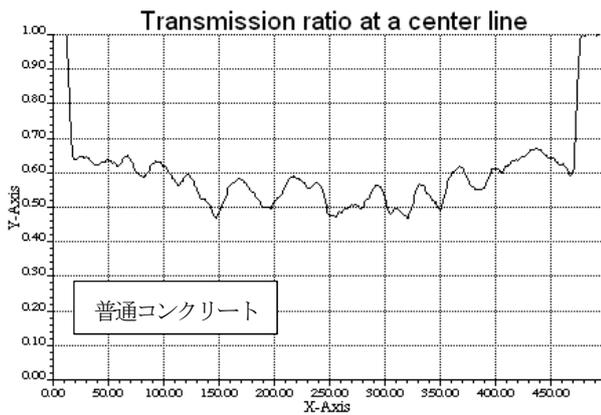
普通コンクリート



中性子遮蔽コンクリート

図-5 各コンクリートの中性子ラジオグラフィ画像

(1) 表面



(2) 深さ 80mm

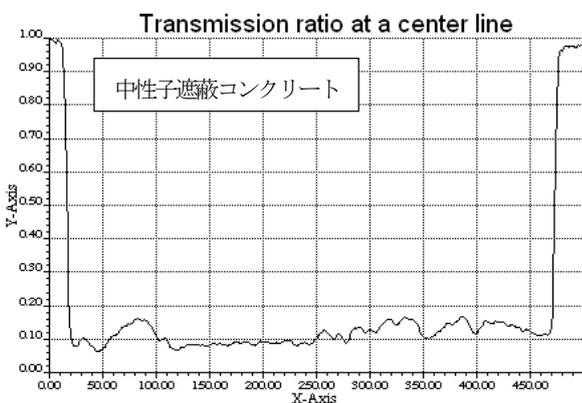
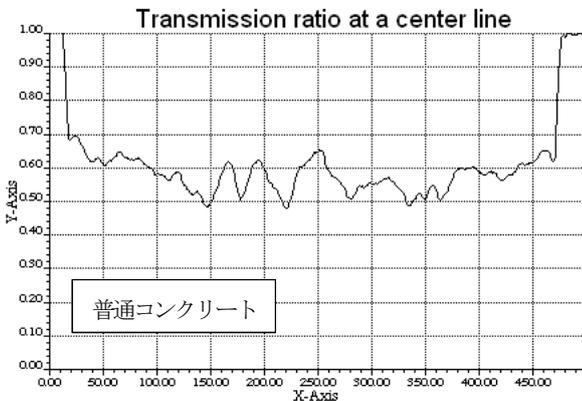
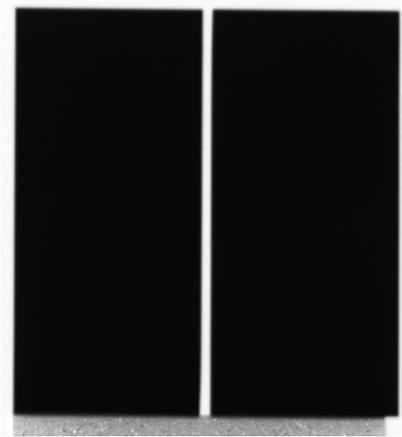
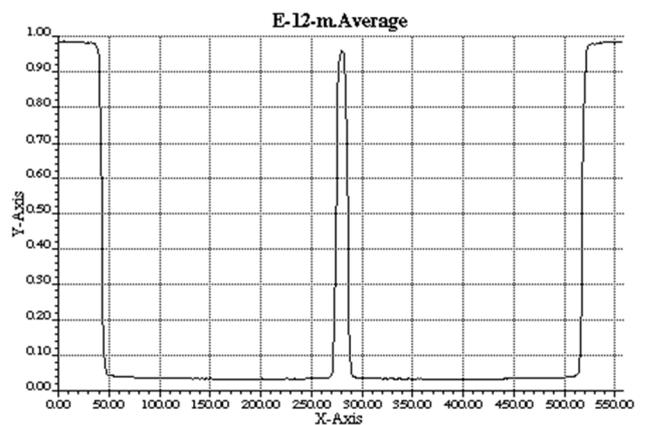


図-6 中心線位置における各コンクリートの熱中性子透過率



中性子ラジオグラフィ画像



熱中性子透過率

図-7 樹脂系中性子遮蔽材の中性子ラジオグラフィ画像と熱中性子透過率

樹脂系中性子遮蔽材料は、灰ほう石の紛体をエポキシ樹脂に混ぜており B_2O_3 の含有量も 30.4wt% と高いため、画像全体が黒化している。熱中性子透過率においては、紛体を混ぜているため図-6 で見られた粗骨材に伴う揺れが見られずおり、ほぼ一定の透過率を示している事から、非常に均一性が高い事が解る。

5.2 ホウ素成分の推定

中性子ラジオグラフィ画像は、熱中性子透過率により黒化度が変化することから、画像をデジタル処理する事によりコンクリート中におけるホウ素成分の含有量の推定が可能であるのではないかと考え、解析を試みた。

まず初めに検量線に準じたものを得るため、ホウ素濃度が既知のコンクリートに対する中性子ラジオグラフィ画像を取得した。使用したコンクリートは、灰ほう石 5%、灰ほう石 10%、炭化ホウ素 (B_2C) を 3%、炭化ホウ素 (B_4C) を 6% を混ぜたコンクリートである。図-8 に取得した中性子ラジオグラフィ画像を示す。

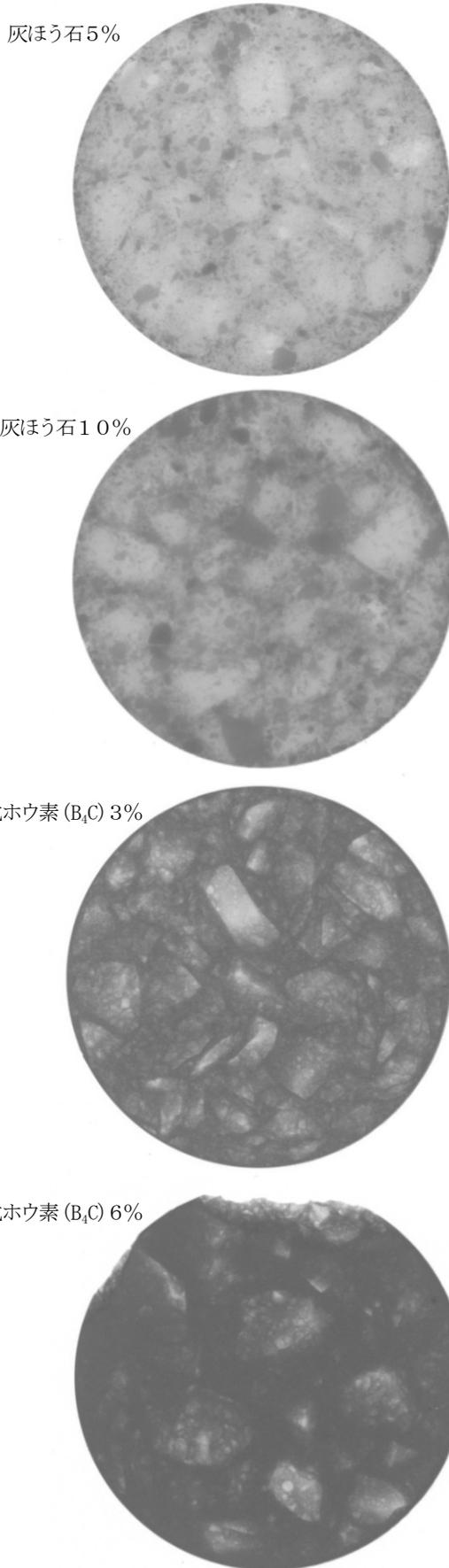


図-8 各濃度における中性子ラジオグラフィ画像

図-8の画像から求めた各画像全体に対するピクセル値分布のピーク値と、混合したそれぞれのホウ素原子数との関係を図-9に示す。相関の決定係数 R^2 は 0.893 である。

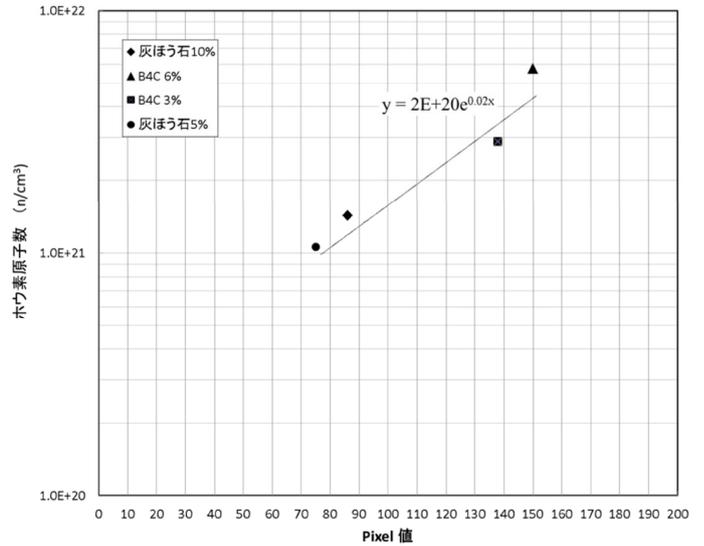


図-9 ホウ素原子数とピクセル値との関係

図-9に示す相関式を用いて求めた各コンクリートのホウ素成分の推定値と実際の分析値との結果を表-3に示す。

表-3 相関式から求めた推定値と分析値の比較

	B ₂ O ₃ 分析値	推定値	推定値/分析値
灰ぼう石5%	2.79	2.35	0.84
灰ぼう石10%	3.76	2.93	0.78

	B ₄ C分析値	推定値	推定値/分析値
炭化ホウ素 3%	3	3.29	1.10
炭化ホウ素 6%	6	4.19	0.70

未知試料に対する推定値との比較は今後の課題であるが、30%程度の差で推定できる可能性があると考えられる。

6. 結論

中性子ラジオグラフィを用いて、コンクリート内の遮蔽性能の均一性評価に関する試みと、ホウ素成分の推定に関する試みを行った。今回、J-PARCで使ったコンクリートを利用して均一性評価を試みた結果、遮蔽に有効な成分の分布はほぼ均一である事が判った。ホウ素成分の推定に関する試みについては、標準試料の数を増やせば推定精度が向上すると考えられるが、その手法については今後の課題である。

謝辞:本研究を実施するに当たり, 日本原子力研究開発機構の飯倉寛氏(現 文部科学省)には画像撮影やデータ処理について大変お世話になりました。ここに感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) Koichi Okuno, Masayoshi Kawai, Hitoshi Yamada, Development of Novel Neutron Shielding Concrete, Nuclear Technology, Vol. 168: 545-552(2009)
- 2) Manabu Kanematsu, Ippei Maruyama, Takafumi Noguchi, Hiroshi Iikura, Visualization of water penetration into concrete through cracks by neutron radiography, Proc. of International Seminar on durability and lifecycle evaluation of concrete structures, 69-76(2006)
- 3) J.C. Domanus, Neutron Radiography Handbook, D. Reidel Publ. Co., Dordrecht, (1981)
- 4) M.R.Hawkesworth, Neutron Radiography: Equipment and Methods, Atomic Energy Review, Vol.15 (2): 169-220(1977)
- 5) Koichi Okuno, Neutron Shielding Materilas based on Colemanite and Epoxy Resin, Radiation Protection Dosimetry, Vol. 115, No 1-4, pp. 258-261(2005)
- 6) Koichi Okuno, Hiroshi Likura, Homogeneity tests on neutron shield concrete, Nuclear Science and Techniques, 25, S010604(2014)

A Tentative Test for Homogeneity and Boron Contents of Neutron Shield Concrete

Koichi OKUNO

In recent years, neutrons have been studied for applications in fields such as material analysis and boron neutron capture therapy. In order to create a compact shield for these facilities, a type of concrete able to shield against neutrons has been developed. In order to ensure adequate shielding performance, it is important to verify the homogeneity of the concrete. In this research, neutron radiography images of the concrete were taken and the transmission ratio of the thermal neutrons and boron contents were tentatively estimated. The results showed that the transmission ratio of the concrete was almost the same at the center, and also found that it was possible to estimate the boron content.