

炭化ホウ素 (B₄C) 樹脂板を用いた コンクリートの放射化抑制に関する検討

田中聖一朗^{*1}・奥野功一^{*1}

近年、中性子をプローブとした金属材料の結晶構造解析や文化財の非破壊検査、放射線治療の一種である BNCT (ホウ素中性子捕捉療法) など、様々な分野で中性子利用が拡大している。一方で、中性子が発生する加速器施設では、コンクリートの「放射化」による施設従事者の被曝や、施設廃止時における放射性廃棄物の処理費用の増大が問題となっている。

本研究では、炭化ホウ素 (B₄C) 樹脂板を用いた中性子遮蔽構造を考案し、その遮蔽性能やコンクリートに対する放射化抑制効果についてシミュレーション計算及び中性子照射実験により検証を行った。その結果、B₄C 樹脂板による放射化抑制性能の実証と本研究で考案した手法がコンクリートの放射化の抑制に有用であることが示された。

キーワード：中性子、コンクリート、放射化、炭化ホウ素 (B₄C)、シミュレーション

1. はじめに

中性子は、1932年にチャドウィックに (Chadwick) によって発見されて以来、様々な分野で研究が進められてきた。代表的なものとしては、中性子の高い物質透過力や軽元素に対する識別能力などの特徴を活かした金属材料の結晶構造解析や高分子材料開発などの産業分野での研究をはじめ、ホウ素中性子捕捉療法 (Boron Neutron Capture Therapy; BNCT) のような医学、日本刀などの文化財の調査といった考古学、植物中の水動態解析といった農学などでの利用が挙げられる。なかでも医学利用に代表される BNCT は、エネルギーの低い中性子とがん細胞・組織に集積するホウ素化合物の核反応を利用して、がん細胞をピンポイントで破壊する、身体への負担が少ない最先端の放射線がん治療法として近年、注目を集めている¹⁾。

一般的に、中性子を利用した研究には研究用原子炉や加速器中性子源が用いられるが、原子炉による BNCT の普及には限界があり、現在では病院設置型の加速器 BNCT システムの開発が進められている。

加速器施設では、中性子や加速粒子による原子核反応などで「放射化」の発生が想定される。放射化は、もともと放射能を持たない安定同位体が放射線を受けることで放射性同位体となる現象である。図-1はコンクリートの放射化のしくみを、⁵⁶Mnを例に図示したものである。コンクリート中に含まれる安定同位体である ⁵⁵Mn が中性子を吸収することで放射性同位体である ⁵⁶Mn に変化し、崩壊γ線を放出する様子を表している。放射化により生成

される放射性核種の多くは、寿命の短い短半減期核種であるが、長半減期核種も生成され、加速器の停止後も加速器装置や加速器室内のコンクリート等の建材に残留放射能が生じる²⁾。短半減期核種が、主に加速器の維持や保守作業における施設従事者の被曝の面で問題となるのに対して、長半減期核種は、施設廃止時に放射化したコンクリート等を放射性廃棄物として処分する必要から通常の廃棄物に比べて多大な廃棄コストが強いられる、という点で問題となる。今後、BNCTを始めとする粒子線がん治療施設の普及や使い勝手の良い小型加速器中性子源の開発を進めていくためには、これら放射化がもたらす課題を如何に克服していくかが重要となる。

そこで、本研究では BNCT を始めとする粒子線治療施設などの加速器施設における患者や施設従事者の被曝低減、施設廃止時の放射性廃棄物量を減らすことを目的に、炭化ホウ素 (B₄C) 樹脂板を用いたコンクリートの放射化抑制手法について検討を行った。

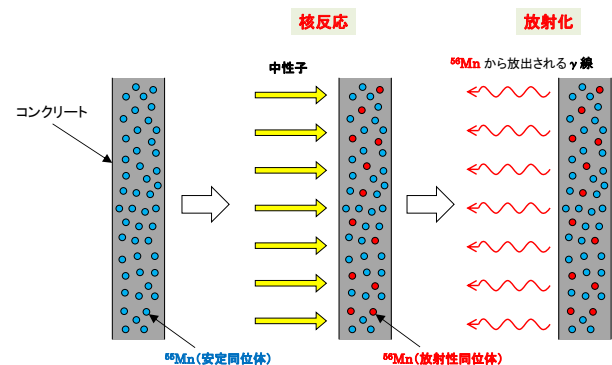


図-1 コンクリートの放射化のしくみ (例: ⁵⁶Mn)

*1 原子力部

2. 炭化ホウ素 (B₄C) 樹脂板

中性子は、そのエネルギー（速度）によって冷中性子、熱中性子、熱外中性子、高速中性子の4つに分類される。これは、中性子と物質の相互作用の性質が中性子のエネルギーに大きく依存するためである。このうち、コンクリートなどの放射化に最も大きく寄与するのは熱中性子領域以下の中性子である。従って、コンクリートの放射化を抑えるには、コンクリートに照射される熱中性子量を如何に低減できるかが鍵となる。

ところで、中性子の遮蔽において最も重要な役割を担うものの一つにホウ素 10 (¹⁰B) がある。ホウ素のうち ¹⁰B の天然存在比は約 20%ほどであるが、熱中性子に対して、中性子吸収断面積（反応確率）が非常に大きいことが知られている。炭化ホウ素 (B₄C) は、ホウ素を豊富に含有する、化学的に非常に安定で、ホウ素化合物の中では比較的手が容易な物質である。熱中性子吸収材として、B₄C をエポキシ樹脂などの材質と混ぜて、硬化板として成型させたものが炭化ホウ素樹脂板（以下、B₄C 樹脂板）である。図-2 に、B₄C 樹脂板の外観を示す。この B₄C 樹脂板をコンクリート壁前方（照射口側）に設置することにより、樹脂板が熱中性子成分を吸収し、コンクリートに照射される熱中性子量が低減され、コンクリートの放射化を抑える効果が期待できる。しかし、全ての中性子を B₄C 樹脂板が吸収できるわけではなく、吸収されなかった中性子は樹脂板の背面へと透過していく。この時、コンクリート壁が B₄C 樹脂板に接触していると、透過した中性子がコンクリート壁に直接的に吸収されることになり、放射化の抑制効果は限定的となる。また、樹脂板がコンクリート壁に直貼りである場合、結露等による樹脂板への影響が問題となる。本研究では、建設コスト節約の観点から B₄C 樹脂板の厚さを増すことなく、より効果的にコンクリート壁の放射化を抑えるために、コンクリート壁と樹脂板との間に所定の距離を確保した中性子遮蔽構造を考案し

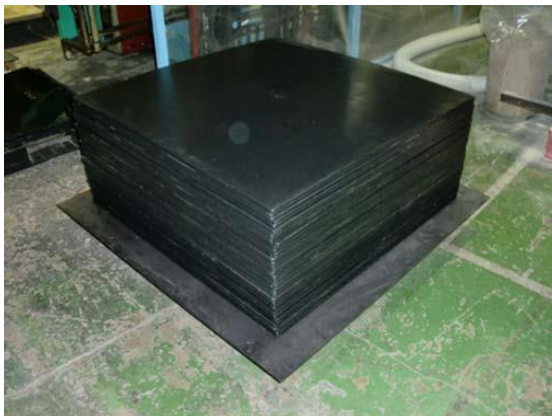


図-2 炭化ホウ素 (B₄C) 樹脂板

た（図-3 参照）。

B₄C 樹脂板を透過した中性子は、樹脂板から離れるほどその線量が低下する。そのため、コンクリート壁と樹脂板との間に所定の距離を確保することで、中性子がコンクリートに与える影響をさらに低減させる効果が期待できる。

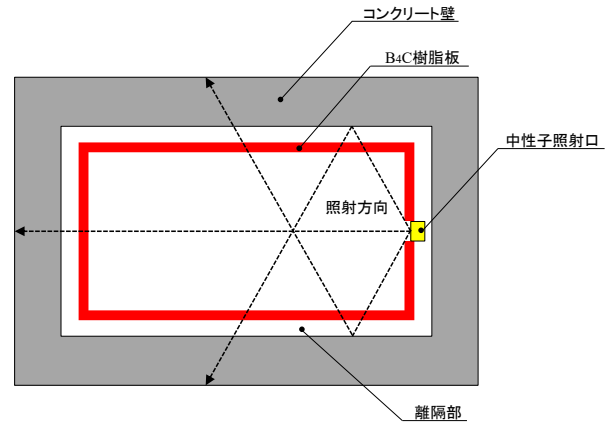


図-3 B₄C 樹脂板を用いた中性子遮蔽構造

3. 中性子遮蔽解析

B₄C 樹脂板をコンクリート壁から離して設置することにより、コンクリート壁に入射する中性子がどの程度低減されるかを、BNCT 施設をモデルとしたシミュレーション計算により評価した。

3.1 シミュレーション計算条件

シミュレーション計算にはモンテカルロ法を用いた粒子・重イオン輸送計算コードである PHITS 2.88 (Particle and Heavy Ion Transport code System)³⁾ を用いた。モンテカルロ法は乱数を用いた計算手法であり、確率・統計的な現象についてのシミュレーション手段として広く用いられている。PHITS による放射線輸送計算では、核反応モデルや核データ等を用いることにより、任意形状の3次元体系内における様々な放射線挙動（エネルギーの減衰、散乱、吸収等）を模擬することが可能である。核データには JENDL-4.0⁴⁾ を使用した。計算対象は BNCT 施設とし、図-4 のような計算モデルを用いた。B₄C 樹脂板（厚さ：10mm）を中性子照射室内にコンクリート壁体及び天井から 30cm 離して設置した場合（樹脂板有り）と、何も設置しない場合（樹脂板無し）とで照射室内の線量及び熱中性子束分布の計算を行った。コンクリートの壁厚は 2.5m、ビームラインの高さは床面から 1.5m、ビームポート径は φ15cm とした。また、ビームポート下流には水ファントムを設置し、遮蔽扉はポリエチレン、鉄などの遮蔽材から成る積層構造とした。

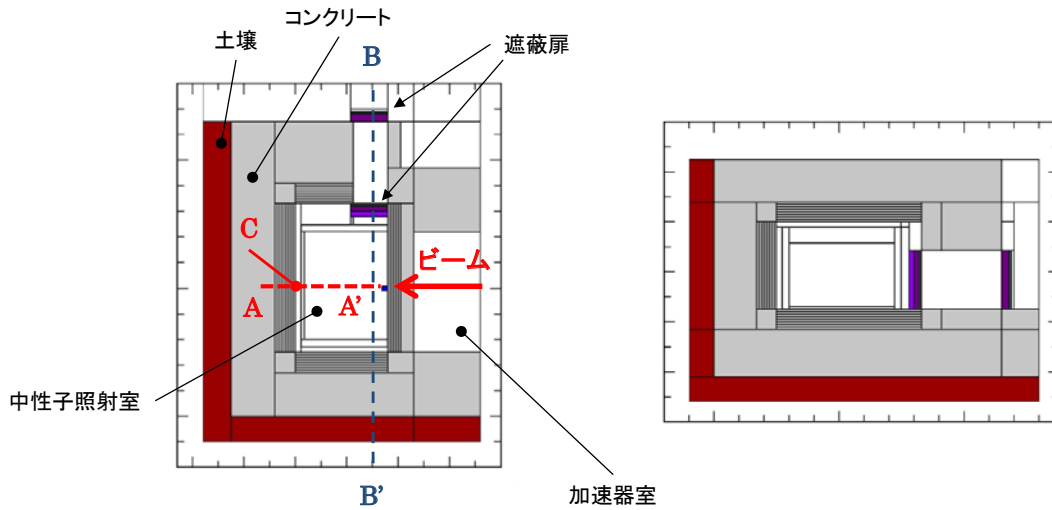


図-4 計算モデル (左図：平面図, 右図：BB' における断面図)

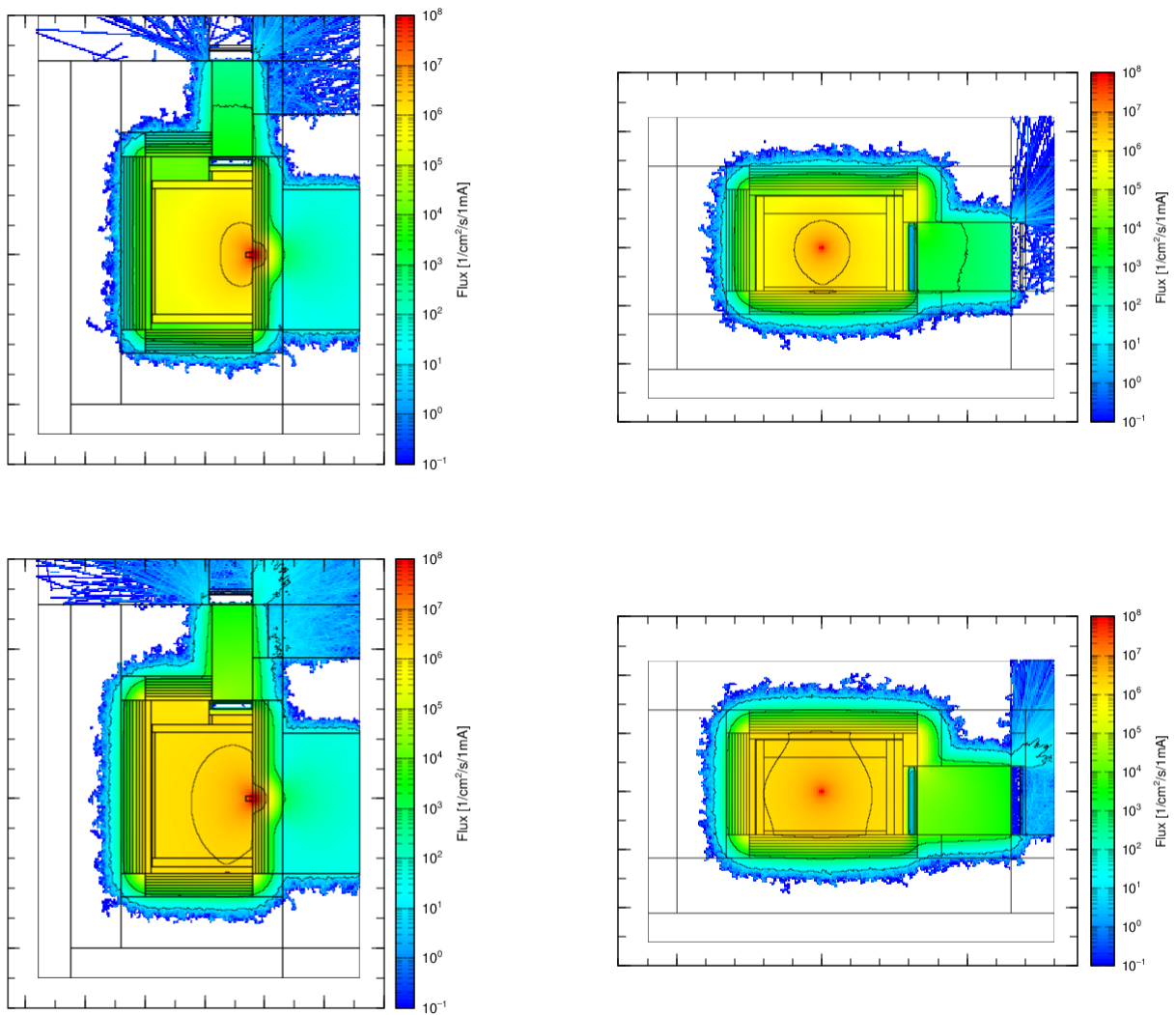


図-5 中性子照射室内の熱中性子束分布 (上図： B_4C 樹脂板有り, 下図： B_4C 樹脂板無し)

3.2 計算結果及び考察

中性子照射室内及びコンクリート壁中における熱中性子線束分布の計算結果を図-5に示す。図内の等高線は、内側から 2×10^6 , 10^3 , 10 (n/cm²/sec/mA) である。照射口から入射する中性子成分は、主に熱外中性子であるが、水ファントムにより熱中性子に減速される。減速された中性子が室内全体にほぼ均一に広がっている様子が解る。図-6に中性子照射口における全線量(中性子線量とγ線量の合算)を1とした時のビームライン上(図-4中のAA')における室内線量の減衰率を示す。照射口から距離が離れるにつれて、室内線量は減衰していくが、B₄C樹脂板が有る場合と無い場合とでその減衰の仕方は大きく異なる。コンクリート壁表面に照射された中性子はコンクリート壁中を透過するものもあれば、コンクリート壁表面によって反射され、照射室内にとどまるものもある。樹脂板有りの場合では、B₄Cにより中性子が吸収されることで、コンクリート壁によって反射される中性子量を低減することができ、これが室内線量の減衰効果に大きく寄与しているものと考えられる。また、B₄C樹脂板の透過後において線量の減少勾配が大きくなることから、樹脂板から離れるほど中性子の線量が著しく低下することが解る。コンクリート壁表面における線量は、樹脂板有りの場合では樹脂板無しの場合と比較して約1/8まで低下した。

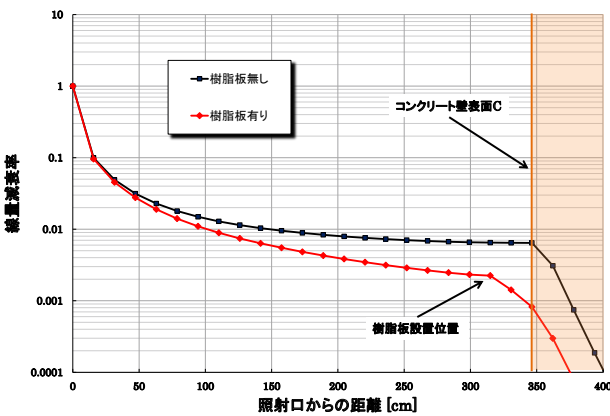


図-6 ビームライン上における室内線量の減衰

図-7にビームライン上のコンクリート壁表面(図-4中のC点)における中性子のエネルギースペクトルを示す。B₄C樹脂板の遮蔽効果により、コンクリート表面に照射される中性子のうち、放射化の原因となる熱中性子成分(熱中性子の上限エネルギー: 0.5eV)が大幅に低減されていることが解る。B₄C樹脂板有りの場合では樹脂板無しの場合と比較して、コンクリート壁表面に入射する熱中性子量は約1/613まで低下した。B₄C樹脂板の熱中性子に対する遮蔽能力が非常に高いことが解る。

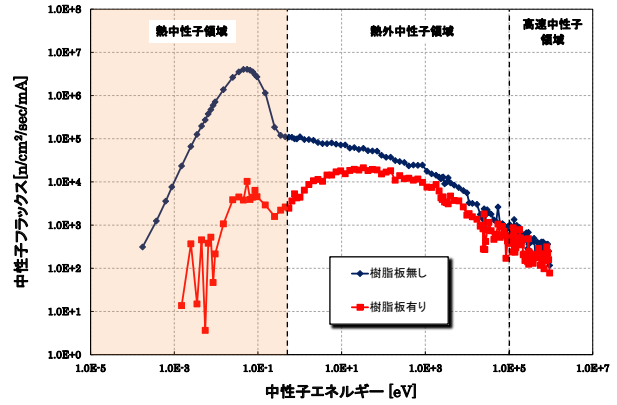


図-7 コンクリート表面における中性子スペクトル

4. 放射化特性試験

B₄C樹脂板によるコンクリートの放射化抑制性能の実証及びコンクリートとB₄C樹脂板の間に離隔が有る場合と無い場合とでの放射化抑制効果の比較を行い、本研究で考案した中性子遮蔽構造がコンクリートの放射化抑制に有用であるかを検証することを目的に、模擬試験体を作成し、加速器中性子源を用いて中性子多量照射条件での放射化特性試験を行った。

4.1 材料及び方法

試験体は、コンクリート供試体を2つ重ねて、その上にB₄C樹脂板(厚さ:10mm)を載せたものとした。供試体は同一のコンクリートブロックから採取したものである。表-1に実験に使用したB₄C樹脂板の組成を、表-2にコンクリートの組成を示す。

表-1 B₄C樹脂板の成分組成 [wt%]

B	C	H	N	O
23.0	51.0	5.7	1.1	10.0

表-2 コンクリートの成分組成 [wt%]

CaO	MgO	Fe ₂ O ₃	MnO	Al ₂ O ₃
7.99	0.70	1.47	0.03	4.68
P ₂ O ₅	TiO ₂	SiO ₂	Na ₂ O	K ₂ O
0.10	0.17	33.30	0.92	0.99
SO ₃	CaCO ₃	C		
0.29	46.00	1未満		

B₄C樹脂板の設置方法によって下記の3種類の試料を用意した。

- A) コンクリート供試体上にB₄C樹脂板を直載せしたもの
- B) コンクリート供試体とB₄C樹脂板の間に30cmの離隔を設けたもの
- C) コンクリート供試体のみ(何も載せない)

各コンクリート試料（二段重ねのコンクリート供試体のうち上段）の寸法及び質量を表-3に示す。同じコンクリートブロックから採取したコアではあるものの、各試料で密度に若干のバラツキがあることがわかる。

表-3 各コンクリート試料の諸元

試料名	A	B	C
樹脂板の設置方法	直載せ	30cmの離隔	無
直径(mm)	44	45	44
高さ(mm)	51	49	50
質量(g)	183.3	174.9	173.6
密度(g/cm ³)	2.36	2.24	2.28

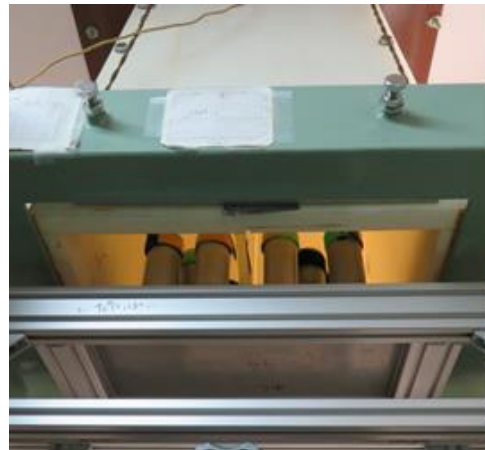


図-9 中性子照射状況

4.2 中性子照射実験

作成した試験体に加速器中性子源を用いて中性子を照射し、放射化試験を行った。図-8に加速器で発生させた中性子が試料に照射されるまでの模式図を、図-9に中性子の照射状況を示す。3種類の試験体をビーム中心付近に設置し、中性子の4時間同時照射を行った。中性子を試料に照射させるにあたり、散乱中性子等の影響を避けるために、試料の底面及び周囲を熱中性子吸収材のCd（カドミウム）で覆い、各試験体の真上からのみ中性子が照射されるようにした。また同時に、カドミウムで挟んだ金箔にも照射を行い、カドミ比の測定を行った。金箔照射の結果から算出した熱中性子フラックスは、 1.2×10^5 (n/cm²/sec) であった。

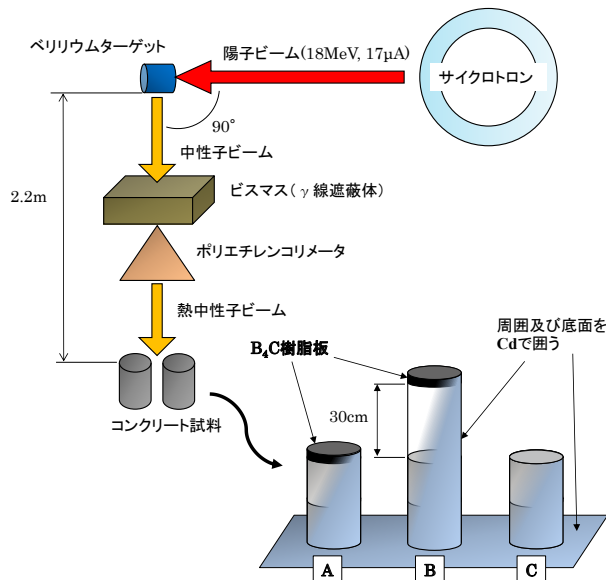


図-8 試験体への中性子照射状況模式図

4.3 放射化したコンクリートの測定

中性子照射後、Ge（ゲルマニウム）半導体検出器を用いて、放射化した各コンクリート試料から放出されるγ線のエネルギースペクトルの測定を行った。取得したスペクトルの解析を行い、各コンクリート試料に生成した主

な被曝の原因となる短半減期核種²⁾である²⁴Na（半減期：14.96時間）と⁵⁶Mn（半減期：2.579時間）の生成量の評価及び比較を行った。

4.4 実験結果及び考察

図-10にゲルマニウム検出器を用いて測定した各コンクリート試料A, B, C（上段）からのγ線スペクトルを示す。各試料ともに放射化により生成した放射性核種である²⁴Naの1369keVピーク、⁵⁶Mnの847keVピークと1811keVピークを確認することができる。

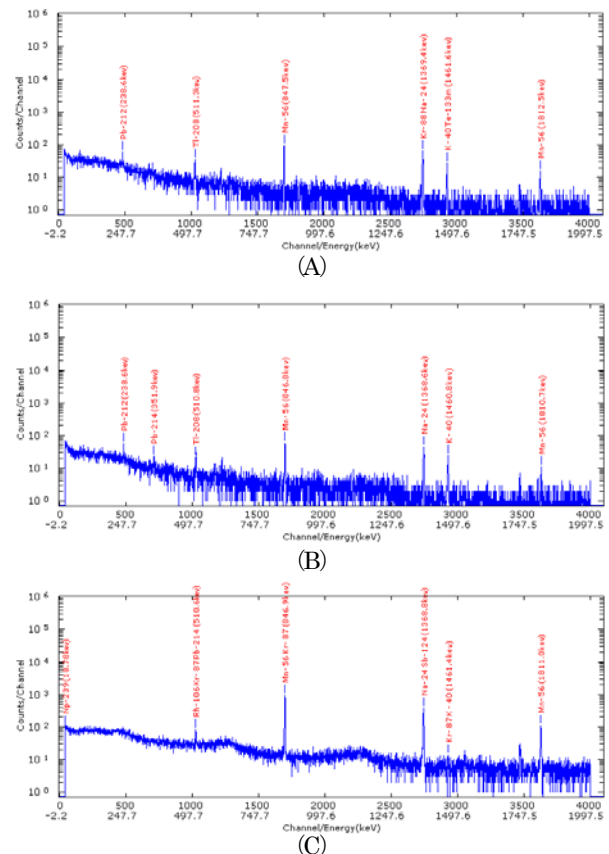


図-10 各コンクリート試料のγ線スペクトル

表-4 に取得した γ 線スペクトルから解析を行った ^{24}Na と ^{56}Mn の生成量を、図-11に生成量を比較したグラフを示す。時間の経過による減衰効果を考慮し、照射直後に減衰補正して解析を行った。解析結果から、 B_4C 樹脂板とコンクリート試料の間に30cmの隔離を設けた場合では、樹脂板無しの場合と比較して、 ^{24}Na と ^{56}Mn の生成量はともに約97%が低減された。また、隔離30cmを設けた場合では設けない場合と比較して、 ^{24}Na の生成量で約18.8%、 ^{56}Mn の生成量で約23.3%が低減された。実験に使用したコンクリート試料は同じ種類ではあるものの、試料毎に密度や組成にバラツキがある点を考慮しても、 B_4C 樹脂板のコンクリートに対する非常に高い放射化抑制性能を確認することができた。また、コンクリートと B_4C 樹脂板の間に隔離を設けることで、さらなる放射化抑制効果が得られることも確認することができた。

表-4 各コンクリート試料に生成した放射性核種量

試料	測定時間 (秒)	放射能(Bq/g)	
		^{24}Na (1369keV)	^{56}Mn (847keV)
A(隔離無し)	3600	0.133	0.202
B(隔離30cm)	3600	0.108	0.155
C(B_4C 板無し)	900	3.13	4.56

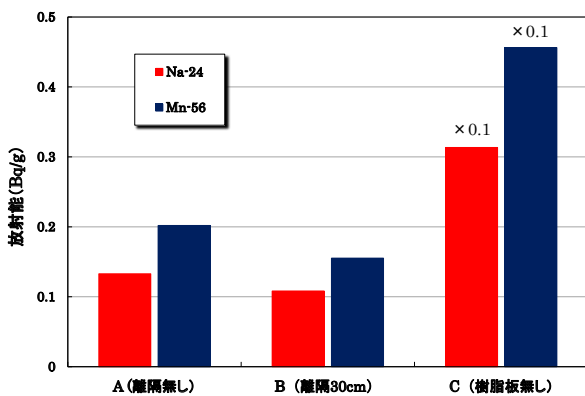


図-11 各コンクリート試料に生成した ^{24}Na と ^{56}Mn の比較

5. まとめ

PHITSによる計算の結果、 B_4C 樹脂板を中性子照射室内の壁及び天井から所定の距離を確保して設置することにより、 B_4C 樹脂板による中性子の遮蔽効果(熱中性子の吸収)に加えて、樹脂板透過後の中性子の距離による減衰効果が得られることが解った。計算結果では、 B_4C 樹脂板の透過後において線量の減衰が大きくなることから、樹脂板とコンクリート壁間の距離を極力確保することで、中性子がコンクリートに与える影響をさらに低減させる効果が期待できる。また、中性子照射実験の結果、 B_4C 樹脂板とコンクリート試料の間に所定の距離を設けた場合では、樹脂板無しの場合と比較して、 ^{24}Na と ^{56}Mn の生成量はともに約97%が低減された。隔離を設けた場合では設けない場合と比較して、 ^{24}Na の生成量で約18.8%、 ^{56}Mn の生成量で約23.3%が低減された。今後、長半減期核種の生成量に関して、計算や実験等による検証が必要ではあるものの、 B_4C 樹脂板による放射化抑制性能の実証と本研究で考案した手法がコンクリートの放射化の抑制に有用であることが示された。

参考文献

- 1) 古林徹：中性子捕捉療法の実状と将来展望 -放射線医学物理学の視点-, 日本放射線技術学会雑誌, 56巻, 6号, pp. 780-791, 2000
- 2) 中村尚司：放射線物理と加速器安全の工学第二版, 地人書館, p. 417, 2001
- 3) T. Sato, K. Niita, N. Matsuda, S. Hashimoto, Y. Iwamoto, S. Noda, T. Ogawa, H. Iwase, H. Nakashima, T. Fukahori, K. Okumura, T. Kai, S. Chiba, T. Furuta and L. Sihver: Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS, Version 2.52, J. Nucl. Sci. Technol. 50:9, pp. 913-923, 2013
- 4) K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka, T. Ohsawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, J. Katakura: "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering", J. Nucl. Sci. Technol. 48(1), p. 1-30, 2011

Study on a Low-activation Method for Concrete with the Use of B_4C -loaded Epoxy Resin Board

Seiichiro TANAKA, Koichi OKUNO

Recently, neutrons have been studied for application in various fields such as structural analysis of crystals, non-destructive analysis of cultural properties, and boron neutron capture therapy. However, activation of concrete in accelerator facilities has caused the problem whereby radiation workers are exposed to radiation and the disposal cost of radioactive waste will increase at the time of abolition of these facilities. In order to resolve these problems, in this study, a neutron-shielding structure with the use of B_4C -loaded epoxy resin board was devised, and the shielding performance of the board and the low activation effect on the concrete of the structure were verified by simulated calculation and neutron irradiation testing. The results showed the usability of the structure with the use of the board for low activation of concrete.