中性子遮蔽用 LiF タイルとシート

神 田 啓 治*

(1977年 11月29日 受理)

Lithium Fluoride Tile and Sheet for Neutron Shield

By Keiji KANDA

As shielding materials for thermal neutrons, LiF tile and LiF sheet have been manufactured, which produce little secondary γ -rays by neutron captures. Lithium fluoride tiles in ceramics are made by sintering. The standard sizes are of $50 \times 50 \times 10$ and $100 \times 100 \times 10$ mm³ for natural Li, and of $25 \times 25 \times 2$ and $50 \times 50 \times 2$ mm³ for enriched Li. The density of the tiles is more than 95% of the theoretical density for preventing tritium release due to ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{T}$ reactions.

Flexible LiF sheets using enriched LiF powder are made by the hot press method, of which standard sizes are $30 \times 30 \times 0.5$ and $60 \times 90 \times 0.5$ cm³. The neutron shielding effects of both the materials were measured by the use of the KUR heavy water facility. The LiF tile has already been used for a shielding material and also for a mock material of FLiBe at several research institutes in Japan.

KEYWORDS: ceramics, sheets, sintering, hot press, neutron shield, capture gamma, tritium, shielding materials, gamma radiation, thermal neutrons, leaks, Lithium fluorides, preparation, shielding

I. はじめに

熱・熱外中性子の遮蔽材は、古くから Cd 板、パラフィンなどが主に使われてきた。脳腫瘍の中性子捕獲療法¹⁾においてすら、患部の最終的な絞り(中性子コリメータ)に Cd 板が使われていた。この療法は、正常な組織を破壊しないで腫瘍部のみを選択的に治すことが、他の療法に比べて最も大きい長所であるのに、全身被曝を避けるために使われるコリメータから捕獲 γ 線が発生したのではこの長所が生かされ難い。第1図(次ページ)は長径 10 cm のコリメータを置いた後方での(γ 線/中性子)の割合を、 $1 \text{ rad} = 1.36 \times 10^9 n$ で換算した実験値が示してある。Cd がいかに多くの捕獲 γ 線を発生するかがわかると思うし、その後使われるようになったボロンもやはりあまりよいコリメータとはいえない。中性子線に γ 線が混入すると治療の選択性が悪くなり、特に深部の腫瘍ではその影響が大きい²⁾。そこで、炉心および構成材から発生する 1 次 γ 線は、Bi 散乱体法によって除去するという研究とともに、コリメータによる 2 次 γ 線の発生を抑えるためのコリメ

ータ用中性子遮蔽材を開発することにした。

II. Li の 特 性

中性子吸収断面積が大きくて捕獲 γ 線を発生しない核種としては、 ${}^6\text{Li}$ が最良と思われる。第1表に代表的な Li 化合物が示してあるが、

- (1) Li 密度の大きいもの
- (2) 化合物から発生する捕獲 γ 線が少ないもの
- (3) 安定していること
- (4) 取扱い・上毒性の少ないもの

などの観点から、LiF に着目して研究を進めることにした。ちなみに LiF は金属 Li よりも密度が大きい。最初 LiF を Al やステンレス鋼の被覆ケースに入れて使ってみたが、第1図に示すようにケースからの捕獲 γ 線が多くて Li の特長が生かしきれないことがわかった。そこで LiF だけを固める方法として、焼結法による LiF のタイル化および合成樹脂の中に LiF を混入させる LiF シートの 2 つの方法にとりあえざるを絞

* 京都大学原子炉実験所 (Res. Reactor Inst., Kyoto Univ.)

第1図 コリメータ物質によるγ線/熱中性子の比

第1表 Li化合物の特性

化合物	分子量	密度 (g/cm ³)	Liの重量 (g/cm ³)	融点 (°C)	沸点 (°C)
Li ₂ O	29.88	2.01	0.953	1,700	—
LiH	7.95	0.82	0.716	668	—
LiF	25.94	2.64	0.706	842	1676
Li	6.94	0.534	0.534	176	1317
Li ₂ CO ₃	73.89	2.11	0.396	618	1200

ることにした。

結論から先にいうと、両者とも一応開発に成功して実用の段階に入ってきた。前者は密度が大きいので、空間的に制限があるところでは有効であり、かつ ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{T}$ 反応で生じる T をタイル内に封入することが可能であるが、思うように形を変えることができないという欠点がある。一方後者は、長期間放射線にさらされない限り充分フレキシブルであり、ナイフで自由な形に切ることができるという長所がある。したがって、両者をうまく組み合わせれば、中性子コリメータに限らず各種の中性子遮蔽材として広く利用することが可能である。

Ⅲ. LiF タイル

1. 製造法

フッ化物のタイル化はほとんど前例がないらしく、

データが何もないのでもっぱら試行錯誤で仕事を進めて行った。当面、①機械的に安定したタイルにすること、②Tをできるだけ封じ込めること、③製造の歩止りをよくすること、などに主眼をおいた。

製造工程は第2図に示すとおりである。天然 Li を使う場合は原料が Li_2CO_3 の形で輸入されたが、まず ${}^6\text{Li}$ と ${}^7\text{Li}$ の同位体元素の比率をその都度東京工大の垣花秀武教授に依頼して分析して頂き、 ${}^6\text{Li}$ が天然存在比(7.4~7.5%)どおりであることを確かめてから次の工程に入ることにした。本焼成の前に仮焼が必要な理由は、LiF 粉末の中に少量混入している Li_2SiF_6 が 400~500°C くらいの温度で LiF と SiF_4 に分解して発泡の原因になるから、あらかじめ SiF_4 をとばしておくためである。仮焼、バインダ、焼成温度曲線などには種々の工夫が凝らしてある。

第2図 LiF タイルの製造工程

濃縮 LiF を原料とする場合は、95% ${}^6\text{Li}$ 濃縮の LiF 粉末を輸入して天然の場合と同じ工程で製造したが、原料が非常に高価なので、切断研削加工の段階での損失を最小にするように焼成中の変形を抑える工夫をした。

2. 焼成温度と密度

セラミックスの密度は、焼成前ペレットの密度、焼成温度、焼成時間などに依存するが、プレス条件を同じにして第3図のような焼成曲線で焼成したときの焼成温

第3図 LiF タイルの焼成曲線

写真1 各種焼成温度による LiF タイルの走査型電子顕微鏡写真(×3,000)

度と密度との関係を第2表に示す。また、これらの走査型電子顕微鏡による3,000倍の写真が写真1に示してある。焼成温度が高くなるに従って焼きしまりがよくなっていることがわかる。750°Cで焼成したものを標準品としている。

第2表 焼成温度と密度

焼成温度(°C)	550	575	600	650	750
密度†(g/cm³)	1.92	2.01	2.25	2.48	2.52
相対密度(%)	72.7	76.2	85.5	94.0	95.5
吸水率(%)	13.9	11.4	6.6	0.19	0.01

† 密度は嵩比重を表わす(乾燥重量/(飽水重量-水中懸垂重量))

3. トリチウムの放出と密度との関係

京大原子炉 KUR の重水熱中性子設備で各種の試料を照射した後に、第4図で示すような装置を使ってト

第4図 漏洩トリチウム測定装置概要

リチウムの放出量を測定した。理論密度の93%以上になるとトリチウムの放出が小さく抑えられることがわかる(第5図参照)。しかし、いくら密度を上げて、表面から出るトリチウムがあるので、放出率をゼロにすることは難しい。

第5図 LiF タイルの密度による漏洩トリチウムの変化 (エタノールトラップ)

現在、タイルを高温にしたときのトリチウムの放出率の実験を重ねているが、詳細は文献⁽⁴⁾⁽⁵⁾に譲ることにする。これまでのところ 300°C までは放出が全く認められず、550~700°C あたりではほぼ全量が放出されるようである。

4. 標準 LiF タイルの特性

現在標準品として使われている LiF タイルの特性をまとめると、第 3 表のようになる。

第 3 表 LiF タイルの標準特性

	天然 LiF タイル	濃縮 LiF タイル
化学組成†(%)	LiF 96	LiF 97
⁶ Li 存在比(%)	7.4	95
標準寸法(mm)	50×50×10 100×100×10	25×25×2 50×50×2
密度(g/cm ³)	2.5	2.4
相対密度(%)	95	
耐圧強度(kg/cm ²)	2500	
抗折力(kg/cm ²)	700	
表面粗度(μ)	R _{max} 6	

† 主な不純物: SiO₂, Al₂O₃

IV. LiF シート

LiF タイルは、密度が大きく、安定しているなどの利点があっても、小さく切って使うわけにはいかない。医療照射の場合、患者の患部のまわりをカバーしたり、ベッドの金具に巻きつけたりするには不適當である(中性子が当たるところに金属部が露出していると、捕獲γ線が出たり、金属が放射化するのを、カバーする必要がある)。

そこで、非常に長時間使用できることを要求しないで、とりあえず①充分フレキシブルであること、②熱中性子を 1~2 桁落とすことができること、③取扱いやすいこと、などを目標にいわゆるフレキシブルシートを作ることにした。

幾通りかの製法を試みた後、現在ではエチレン酢酸ビニール共重合体の粉末と LiF 粉末を混ぜ合わせた上でホットプレスする方法を採用している。プレスの圧力は約 50 kg/cm² で、温度は 115~120°C である。加圧時間は予熱、冷却を含めて約 35min である。

LiF の含有率は 10, 20, 30, 40% の 4 通りのものを作っているが、40% 以上になると粒子の混り方が不均質になるし、可撓性も悪くなってくる。また 40% の場合でも、シートの表面に LiF 粉末が露出してザラザラし

た感じになるので、必要に応じて両面に約 0.3mm の同じ共重合体粉末で被覆している。この場合も、可撓性には影響ない。

シートの標準サイズとしては、30×30×0.5 cm³ のものを作っているが、それ以上の大きさのものも可能である。シートはナイフで簡単に切れるし、切った後で元の形に戻しても粘着度がよいので隙間があくようなことはない。ただ、長時間強い放射線にさらしておくくと着色し、可撓性も粘着度も落ちるので気を付けたい。

天然 Li を使った LiF シートは中性子の遮蔽能力があまりよくないので、シートの場合はもっぱら濃縮 LiF を使っている。濃縮 ⁶Li は輸出入の規制が厳しく、1 kg 以上購入する場合は研究目的、使い方まで具体的に説明したものを提出しなければならず、さらに審査その他で購入まで約 1 年間かかるのが現状である。

LiF シートと同じような方法で、B₄C 粉末を混ぜ合わせた B₄C シートも製作している。ボロンは Li と同じく吸収断面積が 1/v 特性を持っているが、濃縮 LiF に比べて遙かに安価である。Cd は熱中性子を遮蔽できても、熱外中性子はよく透過するので、熱外中性子を含む中性子遮蔽に適していない。性質は LiF シートとほぼ同じである。ただ B₄C シートは、類似品がアメリカで市販されているので、われわれが初めてではないと思われる。なお、アメリカの製法がわれわれのものと同じかどうかは不明である。

V. 熱中性子遮蔽能力

放射線に対する物質の遮蔽能力を考える場合、着目の仕方によって能力評価は大きく変わる。一般的に遮蔽を考える場合、中性子とγ線は切り離して考えない方がよいが、状況によって①中性子だけ、②γ線だけ、③中性子とγ線の両方、の 3 つの場合がある。当然ながら中性子とγ線のエネルギーの影響は無視できない。ここでは熱中性子だけに絞って考えることにする。

熱中性子の透過率は平均断面積のデータから計算によっても評価できるが、KUR 重水熱中性子設備のマックスウェル分布を持つ標準熱中性子場⁽⁶⁾を用いて測定した実験値を第 4 表に示す。測定は面状中性子に対する遮蔽効果を金箔の放射化法によって行なった。ビーム状中性子に対する遮蔽効果は、当然この表の値よりもよいことになる。

第4表 各種遮蔽材の熱中性子透過率

物質	厚さ (mm)	透過率 (測定値)	備 考
LiF タイル			
天然 Li	10	2.51×10^{-2}	^6Li の天然存在比 7.4~7.5%
濃縮 Li	2	1.53×10^{-3}	^6Li 濃縮度 95~96%
フレキシブルシート(含有率)			
^6LiF 40%	5	7.30×10^{-3}	^6Li 濃縮度 95~96%
30	5	1.82×10^{-2}	
20	5	5.38×10^{-2}	
10	5	1.70×10^{-1}	
B_4C 40%	5	2.69×10^{-4}	^{10}B の天然存在比 19~20%
30	5	3.48×10^{-3}	
20	5	1.36×10^{-2}	
10	5	7.46×10^{-2}	

VII. おわりに

以上、捕獲 γ 線の発生を嫌う実験・装置のための遮蔽材にはLiFタイルやシートがいかに優れているかについて述べたが、 γ 線を気にしない場合は、やはりボロンシートやCd板を使う方が安価でありかつ使いやすい。また、 γ 線が邪魔になる場合でも空間的に充分余裕がある場合は、Li化合物をボール箱に詰めて重ね合わせるだけでも充分効果がある。

濃縮Liは、原料が高価な上に輸入手続が複雑であり入手するまで相当時間がかかるので、特殊な目的以外には勧められない。もっとも、大量に製品として出回るようになれば話は別である。

現在までのところ、LiFタイルや濃縮LiFシートは、京大炉のほか東大炉、武蔵工大炉などに大いに利用されているが、外国からの問合せも相当あるので、今後使用範囲が広がることが期待される。例えば、核融合炉ブランケット用のFLiBeの模擬物質としても、

東京大学や日本原子力研究所などで使われている。

外国からの問合せでは、中性子照射室全体をLiFタイルで内張する計画があるという。 γ 線のバックグラウンドが気になる中性子検出器にLiFシートで巻くことにも有効である。

さらに、現在は濃縮Liを含む繊維を開発中である。これだと最終的には織物状にできるので、 ^6Li 含有率さえ上げることさえ可能なら、さらに用途が拡げられる。現在はイオン交換法に基づいて ^6Li を取り込ませているので、含有率に制限がある。この研究は、東京工大原子炉工学研の岡本真実助教授を中心に共同研究を進めている。

本研究に当っては、京大原子炉実験所の古林徹氏の全面的協力を得た。トリチウム放出率の測定には、同じく岡本賢一氏の協力を得た。また、タイルの開発には日本化学陶業㈱の竹内稔開発部長らの、シートの開発には住友ベークライト㈱の越田俊郎研究部長らの協力を得た。ここに謹んで感謝したい。

本研究は、すべて文部省科学研究費補助金(No.958042およびNo.188015他)によって行われたものである。

— 参 考 文 献 —

- (1) 神田啓治：医療用中性子場の開発，本誌，17，[11]，582 (1975)。
- (2) KANDA, K., et al.: Elimination of gamma rays from a thermal neutron field for medical and biological irradiation purposes, "Biomedical Dosimetry", 205, IAEA-SM-193/68, (1975), IAEA.
- (3) KANDA, K., et al.: Thermal neutron standard field with a Maxwellian distribution using the KUR heavy water facility, Nucl. Instrum. Methods, in print.
- (4) KANDA, K., et al.: Lithium fluoride tile as shielding material without production of gamma rays in neutron absorption, To be published.
- (5) 古林 徹, 他: フッ化リチウムのトリチウム保持性の測定, KURRI-TR に投稿予定。

正 誤 表 (Errata)

Vol. 19, No. 9 (1977)

p. 566 第1表中の新型転換炉のPu装荷量

誤

399

を

正

440