

JAERI-M
7016

炭化ホウ素・SBR混合中性子遮蔽材
の開発

1977年2月

皆川 宣明・宇田川 昂

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

炭化ホウ素・SBR混合中性子遮蔽材の開発

日本原子力研究所東海研究所物理部

皆川 宣明・宇田川 昂*

(1977年2月7日受理)

可撓性が高く、加工性の良い新熱中性子遮蔽材として、 B_4C 混入スチレン・ブタジエンゴム (SBR)を開発した。この試作品は機械的性質、中性子遮蔽能力、いずれにおいても充分満足できるものであることが明らかになり、実用化するものである。

*) 日本原子力研究所高崎研究所研究部

JAERI - M 7016

New Neutron-Shielding Material SBR admixed with B_4C

Nobuaki MINAKAWA and Akira UDAGAWA*

Division of Physics, Tokai, JAERI

(Received February 7, 1977)

Styrene-Butadiene-Rubber (SBR) admixed with similar quantity of B_4C powder has been developed for shielding of thermal neutrons. The material has both high flexibility and good workability. It is successfully used as part of the shielding for a neutron spectrometer.

*) Division of Research, Takasaki, JAERI

目 次

1. まえがき	1
2. 混合遮蔽材	3
2.1 混合剤の選定	3
2.2 SBRの性質	3
2.3 炭化ホウ素の性質	3
3. 製作法および物性値の測定法	4
3.1 混合遮蔽材の製作	4
3.2 機械的強度の測定	4
3.3 中性子吸収係数の測定	4
4. 結果と考察	7
4.1 炭化ホウ素の配合とその機械的性質	7
4.2 中性子遮蔽材としての考察	8
5. 結 論	10
6. 謝 辞	10

1. まえがき

原子炉やリニアックターゲットから出てくる中性子を利用しての実験は、物理・化学を始め多くの分野で行われている。特に物性物理の分野では、熱中性子ビームを利用し物質の結晶・磁気構造解析や格子振動・スピン波の測定など多岐にわたる研究が行われる。

このための測定装置としては、中性子回折装置・中性子分光器と呼ばれる装置が用いられている。測定装置の原理は、X線回折装置や原子核物理とよく似ている。特に単結晶を利用して、原子炉やリニアックターゲットから出される連続エネルギー分布を持つ中性子を単色化し、散乱中性子強度のエネルギーや散乱角依存性を測定する結晶型分光器や結晶型回折装置は、X線回折装置とよく似た構造をしているが、中性子とX線や電子線の特性の差異により遮蔽とその遮蔽重量を保持するための機構の規模には、大きな違いがある。

中性子は通常物質に対しては一般に吸収係数は小さい値である。(ただし表-①に見るよう特定のいくつかの元素については大きな吸収係数を持っている) それに対しX線や γ 線のような電磁波の吸収係数は物質の比重に比例する。原子炉やリニアックターゲットなどの中性子源からはマックスウェル分布をした中性子や γ 線が出てくる。測定すべき散乱中性子線強度は、X線回折装置などのX線強度に比べはるかに弱いため、実験の情報を持つ中性子線以外の中性子は極力避ける必要がある。実際実験中における中性子バックグラウンドは毎分1個以下におさえねばならず、遮蔽の重要性と複雑さはX線や電子線回折装置に比べはるかに大きい。

原子炉の炉心をつつむ遮蔽体は通常2~3m厚のホウ素入り重コンクリートが用いられる。重コンクリートの遮蔽にきく主成分は、水、ホウ素、鉄であり、水は速中性子を減速させ、減速した中性子を水およびホウ素等により吸収させる。また鉄はコンクリートの比重を増しこれより γ 線を減すいさせる。この様にいくつかの成分を組合せることにより原子炉からの放射線を遮蔽するのであるが、ビーム実験にあっては、原子炉遮蔽体に孔をあけ、中性子線や γ 線を外に導き出して利用するための孔の後方に原子炉遮蔽体と同等な遮蔽が必要となる。しかしながら炉室内空間の制限や実験の目的上、遮蔽体を乗せたまま回転させる必要がある部分に対する重量制限、精密加工を必要とする部分に対する材質の制限などのため、中性子分光器などの遮蔽材としては重コンクリートが最適の材料ではなく、多少費用はかさむにしても部分部分でより適当な材質が選ばれている。

遮蔽体はその装置の目的、形状、設置場所および中性子源を何にするかにより異なる。そして、遮蔽材の条件としては、少量で目的の量まで散乱・吸収ができ、目的に合った形状に成型加工が容易であり、中性子の散乱・吸収の際放出される2次放射線が実験に影響をおよぼさず、かつ人体に害の少ない物質であり、放射線性に優れ、経済的に安価である事が要求される。

特に良い加工性が必要な部分に対する遮蔽材として、 γ 線に対しては、鉛、鉄、ウランなどがあるが、中性子に対してはあまり適当なものがない。速中性子を減速させる材料としては、水、パラフィン、などの水素を含んだ物質が用いられ、吸収するための材料としては一般に、カドミ

ウム、ガドリニウム、ホウ素化合物（ホウ酸、ホウ砂、炭化ホウ素）リチウム化合物（フッ化リチウム等）が用いられる。カドミウムは、吸収係数も大きく加工性も比較的良いが、 $n-\gamma$ 反応により比較的強い γ 線の2次放出があり γ 線に対する遮蔽を考慮せねばならない。ホウ酸、ホウ砂は水に溶けると化学的に活性化され、金属容器等を腐蝕する欠点がある。炭化ホウ素（ B_4C ）は、ホウ素含有量も高く有効な材料であるが、 B_4C 単体はダイヤモンドに次ぐ硬度であり加工性は全く悪い。一般に市販されている形状は砂状粉末であり、容器等に入れて用いたり、高分子樹脂と混合成型して用いられるが、固化してから加工はまず不可能に近い。リチウム化合物も一般に粉末であり取扱いは同様である。したがって良く用いられる熱中性子遮蔽材はホウ酸パラフィンと呼ばれる、ホウ酸をパラフィン中に混入したものであるが、これも取扱いは簡単ではない。

なるべくホウ素やリチウムを多量に含み、しかも良い加工性を持たせた材料開発の試みとしては、古くはボラル板と呼ばれる、炭化ホウ素をアルミ板にはさみ込んで圧延したものがあるが、これは加工性があまり良くなく、またホウ素の分散の一様性も良くないので最近あまり用いられていない。最近ドイツで炭化ホウ素をウレタンゴムに分散させた材料が開発された。¹⁾この材料は加工性、取扱いの容易さなどの点で優れた材料であると思われるので、我々も同様な材料の開発を試みた。

我々は開発の目標をウレタンゴムの欠点とされている耐熱性、耐加水分解性、可燃性の改良と、イオウ加硫のほか適当な放射線下では使用中に放射線架橋により物性をさらに改善することが可能であることと同時に経済性も考慮してスチレン-ブタジエンゴム（SBR）を選んだ。

以下に B_4C 入りSBRの製造法、機械的強度、遮蔽特性について述べる。

2. 混合遮蔽材

2.1 混合剤の選定

ゴムは原料として可塑性物質であり、これを任意な形に成型加工した上で加硫あるいは放射線照射のような処理を施せば、短時間で容易に高弾性体になりうる。また、弾性ゴムの放射線による劣化は、中根²⁾、小出³⁾らの総説にあるように、抗張力、伸び率ともゴムの種類によらず10 Mr程度の放射線照射では変化しない。なかでも、その物理的性質の変化が最も少ないのは、ハイスチレンゴム（スチレン含有量50%以上のスチレンとブタジエンの共重合体）であるとされている。その結果を図-①に引用した。

2.2 SBRの性質

SBRとは、一般にブタジエンに23.5%のスチレンを共重合させたもので、Styrene Butadiene Rubberの略称である。従ってその化学構造は次式で示され、共重合率（23.5%）はSBRの物理特性および加工性などから選択されたものである。



SBRはそれ自身品種も多いが、大別して1700番代の油入りSBRと1500番代の油が入っていないSBRがある。油入りSBRとはナフテン系油または高芳香系油が25~37.5 phr (Parts per hundred parts of rubber)の割合で添加されているものをいう。いずれも現在主として乗用車などのタイヤに使用されているものであり、本実験には加工性に優れ、かつ引張強さ、引裂抵抗、耐摩耗性などの物理的性質が最も良好であるSBR #1500を使用した。

SBRの純ゴム加硫物は引張強さが弱く、そのままでは実用的価値はないが、強い補強性を持つ充てん剤（カーボンブラック）を加えると最高の物理的性質が得られる。また充てん剤を多量に加えても物理的性質が低下せず、伸びは改善されるのでゴム分の少ない安い製品ができるという特徴を備えている。各種ゴムについて純ゴム加硫物とカーボンブラック補強ゴムの機械的性質を表-②に示した。

2.3 炭化ホウ素の性質

B₄Cはダイヤモンドに次ぐ硬度を持ち、超硬金属、高炭素鋼などの研摩材として使用されるが熱中性子吸収断面積が大きいため、原子炉材料等にも多く使用されている。市販されている形状は研摩用の目的で粉末状のものがほとんどであるが、必要に応じて種々の粒度のものが得られる。物理的性質を、表-③に示す。

3. 製作法および物性値の測定法

3.1 混合遮蔽材の製作

B₄CとSBRの混合、およびSBRと加硫に必要な全ての配合材との混合は、図-②に示す試験ロールを使用した。混合の順序は、先ず50~60℃のロール温度でSBRをロールに巻付けて素練りし、次いで配合剤を順次混合したのち最後にB₄Cの所定量を徐々に加えて良く分散させた。配合を終えたゴムはロールからはがし、所定の金型にはさみ込んで、図-③に示す熱プレスを用い、圧力50kg/cm²、温度140℃で30分間加硫した。本実験に用いた配合条件を、表-④に示した。

表-④に示した配合条件は、便宜上ホワイトカーボン等白色充てん剤を混合する場合の標準的条件であり、本来のカーボンブラック配合の条件とは若干異なる。しかし、中性子吸収係数の測定には差し支えないものであり、また、当面要求される機械的性質を備えた加硫ゴムが得られる。

カーボンブラック配合の条件といっても、その具体的内容は特に定まったものではなく、経験的な技術の差があるにすぎない。そこで、合成ゴム加硫技術上の諸問題を考慮した最終的段階では、配合、加硫など全て加工メーカーに依頼し、市販のカーボンブラック配合の条件で製作したが、この材料についても比較・検討を行った。

以上製作方法を述べたが、製作における問題点としては、B₄CそのものはSBRに対する補強効果がないため、別に強力な補強剤であるカーボンブラックの助けを借りてゴムの性質を落とすことなくB₄Cをいかに多く配合できるかである。これはB₄Cの含有量が中性子遮蔽材としての性質を主として支配するためである。この観点から今回製作した試料を、表-⑤(a)、(b)にまとめて示した。

3.2 機械的強度の測定

混合遮蔽材の機械的強度の測定を行なった。試験機は東洋ボールドウィン(株)製テンシロンUTM-Ⅲ型を用いた。試験片の寸法は厚さ約1mm、巾3mmのダンベル片で、引張速度500mm/minで行なった。

放射線劣化を調べる場合は、試験片を高崎研究所10万キュリーCo⁶⁰γ線源を用い、空气中、室温で線量率 5×10^5 r/hで所定時間照射したのち、これを直ちに測定した。

以上の測定から遮蔽材の応力-ひずみ曲線、破断強度および伸度、100%伸張時の応力を調べた。

3.3 中性子吸収係数の測定

中性子遮蔽の良し悪しの判断方法として、(1)式に示す全断面積を測定し、得られた σt により断面積の大小を比較すれば良いが、今回試作した混合遮蔽材にあつては配合物質中の元素種類が多く、また、完全な配合割合が不確なため $\sigma t \cdot N$ の項を μ として求める事とした。

$$I = I_0 \cdot e^{-\sigma t \cdot N \cdot l} = I_0 \cdot e^{-\mu \cdot l} \quad (1)$$

N : 1 cm^3 中の原子数

I_0 : 入射中性子数

I : 透過中性子数

l : 試料厚さ

ここで求められる情報は、方向性を持つ入射中性子が遮蔽材を通過するまでに中性子をどの程度はずせるかという値である。すなわち下表にあげたすべての吸収及び散乱を含んだ作用により、入射中性子が吸収および散乱され、最終的にどれだけの中性子が通過できるかという値である。

吸収散乱の種類

吸収	散乱
(n, γ) 反応	弾性散乱
(n, p) 反応	非弾性散乱
(n, α) 反応	共鳴散乱
(n, d) 反応	干渉性散乱
(n, 2n) 反応	強磁性散乱
(n, 分裂) 反応	常磁性散乱
	非弾性分子散乱
	中性子-電子散乱

磁気散乱

中性子の持つエネルギーにより吸収・散乱断面積が変るため当然 μ も変化する。そこで測定に当っては中性子のエネルギーが数種類必要となる。

JRR-3 に設置されている ND-1 型中性子回折装置は、原子炉内部から引き出されたマックスウェル分布を持つ中性子線の中からブラッグの法則を満足させて、必要なエネルギーの中性子を取り出すモノクロメーター部、取り出された単色中性子による試料の散乱を散乱角度分布で測定する部分、および、制御・計測系部分の三部分に大別出来る。今回の測定では測定精度を上げるため、図-④に示すように試料テーブル上に単結晶を置きダブルモノクロメーターとして使用した。この装置により得られる単色中性子は、原理的には原子炉から取り出されるマックスウェル分布中全てのエネルギーが可能であるが、使用する単色化用単結晶の面間格及び、装置の構造による振り角度などが有限なため、マックスウェル分布中のある範囲のエネルギーに限られる。

今回は、単色化単結晶として、黒鉛単結晶 (0002) 面を使用し S/N を改善する目的で、図-④中の第二単結晶に Ge (111) 面を使用し、この単結晶の組合せにより、 $E \approx 8.2 \text{ meV}$ ($\lambda \approx 1 \text{ \AA}$) 及び、 $E \approx 3.27 \text{ meV}$ ($\lambda \approx 0.5 \text{ \AA}$) を取出し測定を行った。また中性子回折装置や中性子分光器には、通常は計数管として BF_3 ガス計数管を使用するが、この計数管は特性上、速中性子に対する感度は悪く、いわゆるカドミカットオフと呼ばれる 0.6 eV 以上数 eV までの中性子に対しては相当の感度があり、熱中性子部分のみならずこの領域の中性子も実験に際してのバックグラウンドの原因となっているため、この領域における μ の測定も行った。まず入射中性子線強度 I_0 を測定する。その際中性子計数管の飽和や計測系の誤計数などが生じない程度に入射中性子線数を調整するため、中性子計数管前方に $100 \times 100 \times 1 \text{ mm}$ のカドミ板に $10 \times 10 \text{ mm}$ の

穴を開けたスリット板をビーム中心に設置し、統計誤差を少なくするため、各測定の間補正を省略するために、炭化ホウ素の含有量の最も多いNAE-4をカドミ板スリット後方に取付け数千カウントに到達する時間と同等のプリセット値を測定系に設定し I_0 の測定を行った。次に各試料を順次カドミ板スリット後方に取付け中性子線透過強度 I_1 の測定を行う。つづいてカドミ板スリット後方にスリット口径より大きな同厚のカドミ板を取付け透過してくる中性子線をエピサーマル中性子線強度 I_2 として測定した。この場合測定された強度は、カドミ板スリットのカドミ部分をも透過して来る中性子であるため、透過断面積としては $10 \times 10 \text{ mm}$ ではなく計数管前部有効面積約 19 cm^2 における強度となる。さらに、エピサーマル中性子における各試料の透過強度の測定として先のカドミ板の後方に各試料を順次取付け透過強度 I_3 の測定を行った。これらの測定方法を図-⑤に示した。

0.5および1 Aに対する μ 値を求めるに当って、 I_0 には目的の中性子線以外にエピサーマル中性子線も混入しているため、エピサーマル中性子線強度 I_2 の差引きを行い I_0' とし、また I_1 にもエピサーマルが混入しているため I_2 の差引きを行い I とし(2)式へ代入した。エピサーマル中性子に対する μ 値は、(3)式へ代入し0.65 meVにおける値とした。ND-1中性子回折装置におけるバックグラウンドは1分間1個程度と低く、約20秒の測定値から敢てバックグラウンドの差引きは行わなかった。厚さ l については、マイクロメーターにより数箇所を測定し平均厚さを求めて使用した。

$$e^{-\mu \cdot l} = \frac{I}{I_0} = \frac{I_1 - I_2}{I_0' - I_2} \quad (2)$$

$$e^{-\mu l} = \frac{I_3}{I_2} \quad (3)$$

4. 結果と考察

4.1 炭化ホウ素の配合とその機械的性質

B₄Cはダイヤモンドに次ぐ硬度を持ち、一般に研摩材としての用途があるため、ロール配合する場合、ロールの摩耗が懸念されたが、実験範囲内で特に目立つ損傷はなかった。また、B₄Cそのものはフィラーとしての補強効果がないため、カーボンブラックのような補強効果の高い充てん剤の助けを借りる必要があった。このことは、すでに示した表-②からも明らかである。

次にB₄Cの粒径の選択について述べる。これは加工面から見れば一般にフィラー粒径は小さいほど配合し易く、したがって配合量も増やせるので、当然のことながら遮蔽材としての性能は向上する。すなわち、すでに表-⑤に示したように、試料NAE-3、試料NAE-4に用いた微粒のB₄Cでは150 phrまで容易にロール配合できた。一方、粗粒(粒度範囲44~88 μ)のB₄Cでは、同じ方法で100 phr配合が比較的容易にできる限界であり、また、これ以上の配合は技術的なむずかしさが伴い、機械的性質も著るしく低下した。しかし、後述する中性子吸収測定の結果から、SBRに対し100 phrの配合で当面十分な性質を有することがわかったので、原価がやすく入手しやすい粗粒B₄Cを用いることが望ましい。(加工メーカーのテストでは100 phr以上の混合も充分可能とのことである。)

粗粒B₄C 100 phrを配合した試料NAE-5の応力-ひずみ曲線を比較のため同様に加硫・成型したB₄Cを配合していないSBRの応力-ひずみ曲線とともに図-⑥に示した。

図-⑥はゴム状弾性を有する点型的な型で、やわらかく粘り強いことを示している。この図から切断時強度はB₄Cを配合した場合約1/2に低下していることがわかる。これはSBRマトリックスにB₄Cを配合してあることから、単位面積当りの応力低下として妥当であると考えられる。さらにこのことは、B₄Cが全くSBRに補強効果を与えておらず、単に物理的に分散していることを示唆している。一方、伸び率の低下は硬い大きな粒のB₄Cが延伸されるSBRマトリックスを切断するためであろう。

図-⑦は試料NAE-5にγ線を照射したときの強度劣化を示したものである。この場合、照射線量10 Mrで切断時強度が約30%低下しているが、その後は線量が増してもあまり変化しない。これは照射によりSBRの分子が切断すると同時に架橋して硬さを増していることによるものと解釈される。

以上の結果を考慮し、最後に合成ゴムの加工メーカーに製作を依頼した遮蔽材の物性を表-⑥に示した。この場合、カーボンブラックで加硫するときの配合条件に改め、さらに老化防止剤としてアルドール・α・ナフチルアミンを1 phr加えたことと、加工性の向上を計るため、合成ゴム100 phrの中に天然ゴム15 phrを加えた点でこれまでの結果と異なる。主成分の配合比はすでに表-⑤に示したように変らない。

しかし、表-⑥の結果はこれまでの結果と比較して、伸びが大きいのに対し、強度は小さい。これは配合および加硫条件が異なったため、これまでの結果にくらべれば加硫不足気味となっ

ているためであろう。28X30Aの配合および加硫条件を表一⑦に示した。

以上、混合遮蔽材製作の結果を配合の立場から述べたが、混合遮蔽材としてSBRとB₄Cの組合せは予想以上の好成績をおさめた。しかし、これらはあくまでも試作の域を出ていない。例えば、ゴムは天然ゴムでも合成ゴムでも放射線に対し架橋型に属する高分子材料である。それゆえ、イオウ加硫でなく放射線加硫することもできる^{2), 3)}。また、このような放射線化学作用をおよぼすのは熱中性子でなく、それに伴う速中性子とγ線である。したがって中性子遮蔽材の場合、加硫不足気味の方が材料として耐久性があり、好結果が期待できる。

一方、イオウ加硫の場合、加硫剤としてイオウのほか酸化亜鉛、ステアリン酸などの加硫助材、チアゾール、グアニジンなどの加硫剤のゴムに対する結合反応を助成促進するための促進剤をはじめとする数多くの配合剤が含まれるため、放射線による分解ガスの生成が一層複雑になると考えられる。このような観点からこの問題を解決する必要があるれば、やはり放射線加硫に最大のメリットを見い出すことができるであろう。従って、諸特性の向上を計るためには今後の研究に待つところが多いことを付記する。

4.2 中性子遮蔽材としての結果と考察

実験により求められた各エネルギーにおけるμ値を、表一⑧に示し、エネルギーに対するμの変化を知るために図一⑧にまとめた。NAE-1および、NAE-2については2A(約21meV) 2.5A(約13meV)の測定も行ったのでそれも記入しておく、また各試料についてμ値より減衰率を求め、図一⑨～⑪に示しておく。

中性子エネルギーに対するμ値の変化は、いずれの試料も、似通った曲線をえがいておりμ値の高い試料から、NAE-4、NAE-3、NAE-5、28X30A、NAE-2、NAE-1の順となっており、これは、B₄Cの混合比率の順でもあり、中性子に対するホウ素の作用が顕著であるといえる。

混合容量比が同一なNAE-3、NAE-5、28X30Aの間の差異は、NAE-3がNAE-5、28X30Aよりも使用したB₄C粒度が細かいため見かけ比重が大きく、B₄Cの量が多いためである。NAE-5、28X30Aの差は、28X30Aが架橋促進および、酸化防止などのために添加物が若干混合されているためのものと考えられる。

図一⑧で見ると、B₄C配合試料は、中性子エネルギーが高く成るにつれ下向きの曲線をえがくが、SBRのみの曲線は、平行ないしは若干上向きとなっておりSBRはエネルギーの高域で有効に作用しているといえる。

Cdと比べた場合、0.4eV以上の中性子エネルギーでは、試料の方が遮蔽能力が大きい、実際の装置での使用に当たっての効果を考えると、図一⑩に見るように、中性子エネルギー分析用単結晶、Azの位置でブラック反射された中性子だけを取り出し、残りの直進してきた中性子線を全て吸収する円筒状遮蔽体を取り付けるが、その遮蔽材にこの材料を使用した場合、Azの位置での最悪の状態での中性子線束は、E=82meVの場合、約 2×10^6 (n/cm²·sec)であり、20 (n/cm²·sec)程度まで落すには、μ値の最も低いNAE-1を使用して、1.37cm厚、最良であったNAE-4を使用して、0.7cm厚であり、約1cm厚の円筒を作れば良いこととなる、実際28X30Aの厚さを変えた試料で、どの程度の直径の円筒が可能か試してみたところ、

200×200×5mmの試料では約30mmφ, 230×350×10mmの試料では約60mmφ, 180×400×20mmの試料では約120mmφの円筒が製作可能である事が分った。また切断方法についても実際行って見たところ, 厚さ5mm程度までは, はさみで難無く切れる, 5mm以上の試料はカッターナイフで1~2度往復することで楽に切断が出来た。これらの試みから円筒の製作は容易に出来る。

この遮蔽材は使用場所によりSBRおよび炭化ホウ素の混合割合を変へたものを作り使用すれば有効的であり, 原子炉, リニアックをはじめ, 全ての中性子線を扱うところに有効な遮蔽材となるものと思う。

5. 結 論

今回製作したB₄C混合SBRは機械的性質、中性子遮蔽材としての性能のいずれにおいても予想した以上の性能を示すことが明かになった。ドイツのウレタンゴムの場合とは直接の比較を行っていないが、SBRでも充分必要な性能を示すことから、原研中性子回折研究室を始め、東大物性研、東北大学理学部などで中性子分光器の遮蔽の材料の一部として、加工メーカーに依頼、製作した材料を使用し、実用化されている。今後とも特殊遮蔽材としての用途は各方面に拡って行くことが予想される。

6. 謝 辞

本研究の最初から、報告のまとめにいたるまでに、物理部中性子回折研究室長 浜口由和主任研究員、高崎研究所 武久正昭主任研究員 貴家恒男研究員の各氏に多大の御指導御協力をいただいたことに深く感謝する。又一部実用化試料の作成にあたっては、株式会社金陽社技術部研究第二課 道口義男主任研究員、技術部次長前田守一両氏に多大の御協力をお願いした。併せて深く感謝する。

引用文献

- 1) P. Thomas : Private communication (Neutron Diffraction Newsletter, Feb. 4, 1974)
- 2) 中根孝, 小出武城 : 放射線高分子, 1) 1, 3 (1959)
- 3) 小出武城, 栗林 愿 : 高分子 8, 681 (1959)

5. 結 論

今回製作したB₄C混合SBRは機械的性質、中性子遮蔽材としての性能のいずれにおいても予想した以上の性能を示すことが明かになった。ドイツのウレタンゴムの場合とは直接の比較を行っていないが、SBRでも充分必要な性能を示すことから、原研中性子回折研究室を始め、東大物性研、東北大学理学部などで中性子分光器の遮蔽の材料の一部として、加工メーカーに依頼、製作した材料を使用し、実用化されている。今後とも特殊遮蔽材としての用途は各方面に拡って行くことが予想される。

6. 謝 辞

本研究の最初から、報告のまとめにいたるまでに、物理部中性子回折研究室長 浜口由和主任研究員、高崎研究所 武久正昭主任研究員 貴家恒男研究員の各氏に多大の御指導御協力をいただいたことに深く感謝する。又一部実用化試料の作成にあたっては、株式会社金陽社技術部研究第二課 道口義男主任研究員、技術部次長前田守一両氏に多大の御協力をお願いした。併せて深く感謝する。

引用文献

- 1) P. Thomas : Private communication (Neutron Diffraction Newsletter, Feb. 4, 1974)
- 2) 中根孝, 小出武城 : 放射線高分子, 1) 1, 3 (1959)
- 3) 小出武城, 栗林 愿 : 高分子 8, 681 (1959)

表一

Absorption of the elements for neutrons and X-rays

Element	Symbol	Atomic no.	Cross-section for true absorption $\sigma_a, 10^{-24} \text{ cm}^2$		Mass absorption coefficient $\mu/p, \text{ cm}^2/\text{g}$		Linear absorption coefficient of solid element $\mu, \text{ cm}^{-1}$		Cross-section for true absorption $\sigma_a, 10^{-24} \text{ cm}^2$		Mass absorption coefficient $\mu/p, \text{ cm}^2/\text{g}$		Linear absorption coefficient of solid element $\mu, \text{ cm}^{-1}$	
			Neutrons $\lambda = 1.08 \text{ \AA}$	X-rays $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$	Neutrons	X-rays	Neutrons	X-rays	Neutrons	X-rays	Neutrons $\lambda = 1.08 \text{ \AA}$	X-rays $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$	Neutrons	X-rays
Hydrogen	H ¹	1	0.19	0.0005	0.11	0.0001	4.0	36.400	0.023	207	0.28	2,630
Helium	He	2	0.0005	..	0.0001	36	30.600	0.20	223	2.0	2,340
Lithium	Li	3	40	..	3.5	..	1.87	..	2650	43.400	0.20	234	121	2,020
	Li ⁶	6	570	..	49	..	26	..	115	47.600	0.6	252	4.4	1,840
	Li ⁷	7	0.35	51.600	0.002	285	0.011	1,540
Beryllium	Be	4	0.005	..	0.0003	1.3	0.0005	2.3	3.2	56.900	0.016	284	0.10	1,910
Boron	B	5	490	..	24	3.1	60	7.7	2.7	60.600	0.013	289	0.081	1,860
Carbon	C	6	0.003	109	0.00015	5.5	0.0005	19.2	3.7	65.600	0.018	314	0.09	1,540
Nitrogen	N	7	1.1	196	0.048	8.5	18	71.000	0.083	330
Oxygen	O	8	0.0001	338	0.00001	12.7	17	75.900	0.077	347	0.15	660
Fluorine	F	9	0.006	547	0.0002	17.5	0.6	81.300	0.0027	359	0.010	1,260
Neon	Ne	10	0.2	819	0.008	24.6	5.3	86.500	0.023	378	0.14	2,340
Sodium	Na	11	0.28	1,170	0.007	30.9	0.007	30	0.48	94.100	0.0021	407	0.015	2,810
Magnesium	Mg	12	0.04	1,630	0.001	40.6	0.0017	70	6.7	97.800	0.029	422	0.19	2,740
Aluminum	Al	13	0.13	2,170	0.003	48.7	0.008	131	26	104.000	0.11	437	0.75	3,020
Silicon	Si	14	0.06	2,310	0.002	60.3	0.004	145
Phosphorus	P	15	0.09	3,730	0.002	73.0	0.004	146	11,700	115.800	47	467	380	3,870
Sulphur	S	16	0.28	4,820	0.0055	91.3	0.011	182	1,800	115.600	6	461
Chlorine	Cl	17	19.5	5,040	0.33	102	19,200	122.000	73	470
Argon	A	18	0.4	7,420	0.006	113	26	114.000	0.09	435
Potassium	K	19	1.2	9,230	0.018	143	0.016	125	535	124.000	2.0	462
Calcium	Ca	20	0.25	11,380	0.0037	172	0.0057	266	67	140	0.15	128
Scandium	Sc	21	19	13,800	0.25	185	0.75	555	100	160	0.36	133
Titanium	Ti	22	3.5	16,160	0.044	204	0.20	920	69	71	0.25	139
Vanadium	V	23	2.8	19,100	0.033	227	0.20	1,360	70	22	0.079	144
Chromium	Cr	24	1.8	22,200	0.021	259	0.15	1,840	65	65	0.22	151
Manganese	Mn	25	7.6	25,700	0.083	284	0.60	2,940	61	61	0.20	157	2.7	2,080
Iron	Fe	26	1.4	29,800	0.015	324	0.12	2,570	13	13	0.044	164	0.73	2,720
Cobalt	Co	27	21	34,300	0.21	354	1.87	3,160	11	11	0.036	171	0.70	3,300
Nickel	Ni	28	2.7	4,750	0.028	49.2	0.25	438	50	50	0.16	186	3.3	..
Copper	Cu	29	2.2	5,620	0.021	52.7	0.19	470	9	9	0.028	186	0.63	4,190
Zinc	Zn	30	0.6	6,350	0.0055	59.0	0.039	420	280	61,800	0.80	194	18	4,360
Gallium	Ga	31	1.8	7,310	0.015	63.3	0.059	420	5	66,000	0.02	205	0.38	4,400
Germanium	Ge	32	1.3	8,300	0.011	69.4	0.058	374	57	69,500	0.17	214	3.3	4,140
Arsenic	As	33	2.5	9,450	0.020	76.5	0.12	436	210	73,600	0.63	223	8.4	3,020
Selenium	Se	34	7.4	10,700	0.056	82.8	0.27	398	2.0	77,600	0.006	231	0.07	2,720
Bromine	Br	35	3.3	12,020	0.029	92.6	0.1	82,200	0.0063	241	0.003	2,720
Krypton	Kr	36	18	13,600	0.13	160	0.02	86,800	0.00006	253	0.0006	2,870
Rubidium	Rb	37	0.42	15,400	0.003	109	0.0044	167
Strontium	Sr	38	0.7	17,100	0.005	119	0.012	303	..	102,000	..	278
Yttrium	Y	39	0.83	19,000	0.006	129	0.031	710
Zirconium	Zr	40	0.10	21,200	0.006	143	0.0041	915	..	113,400	..	304
Niobium	Nb	41	0.63	23,400	0.004	153	0.034	1,290	300
Molybdenum	Mo	42	1.4	29,000	0.009	164	0.08	1,670	4.1	125,000	0.01	327	..	3,690
Technetium	Tc	43	2.1	136,000	0.005	352	..	6,600
Ruthenium	Ru	44	1.5	30,900	0.009	185	0.10	2,250
Rhodium	Rh	45	90	33,600	0.53	198	6.6	2,480

G. E. Bacon : Neutron Diffraction, (Oxford, London, 1962) 2nd ed, p 7

表-2 カーボンブラック補強ゴムの機械的性質

	純ゴム加硫物		カーボンブラック補強ゴム	
	引張強さ Kg/Cm ²	伸び %	引張強さ Kg/Cm ²	伸び %
天然ゴム	170 ~ 245	750 ~ 850	245 ~ 310	550 ~ 650
SBR	14 ~ 21	400 ~ 600	170 ~ 245	500 ~ 650
NBR	40 ~ 60	500 ~ 700	280 ~ 310	500 ~ 650
BR (乳化)	17	300	200	420

NBR : フタジエンとアクリロニトリルの共重合体で、その共重合組成は
広範囲のものがある。一般に耐油、耐熱性に優れている。

BR : 1-ブテンと少量のイソプレンとの共重合体で、電気絶縁性、耐
オゾン性、耐寒性に優れている。

表-3 B4Cの性質

ホウ素の理論的含有量 (Wt%)	78.3
密度 (g/cc)	2.5
溶融温度 (°C)	2350
結晶型	菱面体
硬度 (Kg/mm ²)	2800
圧壊強度 (Kg/Cm ²)	20000~21000
比熱 (Cal/g·C at 25°C)	0.23
熱伝導率 (Cal/Sec·Cm·°C)	0.1~0.3
熱膨張係数 (20~800°C)	4.5×10^{-6}
比抵抗 ($\Omega \cdot \text{Cm}$ at 20°C)	445×10^3
比抵抗 ($\Omega \cdot \text{Cm}$ at 500°C)	23×10^3

表-4 混合しゃへい材の配合と加硫条件

配合剤		配合量 (p h r)
1.	S B R	100
2.	ジエチレングリコール	3
3.	ステアリン酸	1
4.	ヘキサメチレンテトラミン	0.75
5.	ジフェニルグアニジン	1.5
6.	酸化亜鉛	1.5
7.	カーボンブラック	20
8.	2-メルカプトベンゾチアゾール	0.75
9.	硫黄	1.75
10.	B_4C	任意量

140 °C, 30分加硫

表-6 28X30Aの諸物性

	B_4C なし	B_4C 100phr
硬さ, (JIS A) 度	48	69
100%モジュラス, Kg/Cm^2	4	5
切断時強度, Kg/Cm^2	35	35
切断時伸び, %	900	680

表-5 a 混合しゃへい材の主成分 (phr)

試料番号	NAE-1	NAE-2	NAE-3	NAE-4	NAE-5	28X30A コントロール	28X30A ^a ,
SBR ^b ,	100	100	100	100	100	SBR 85 NR 15	SBR 85 NR 15
B ₄ C ^c ,	50	50	100	150	100	0	100
カーボン ブラック ^d ,	20	0	20	20	20	20	20

- a, : 金陽社の試作製品番号で、老化防止剤として、アルドール- α -ナフチルアミン 1phrを含むほか、天然ゴム15phrを配合。
- b, : 28X30Aは、ニッポール#1502、そのたは、JSR#1500。
- c, : NAE-3,NAE-4は、極微粒ボロンカーバイド (デンカボロンNoF2) そのたは、粗粒ボロンカーバイド (デンカボロンNoS1)
- d, : 28X30Aは、東海電極 (株) のシストSOでFEF級、そのたはISAF級。

表-5 (b) しゃへい材の主要構成元素

		NAE-1	NAE-5	NAE-4
配合比 phr	SBR	100	100	100
	B ₄ C	50	100	150
	Carbon Black	20	20	20
含有元素 の割合 Wt%	Carbon	70.9	59.8	52.7
	Hydrogen	6.1	4.7	3.8
	Boron	23.0	35.6	43.5
原子数 $\times 10^{22}/gr$	Carbon	3.56	3.00	2.65
	Hydrogen	3.67	2.83	2.29
	Boron	1.28	1.99	2.43

表-7 28X30Aの配合および加硫

配合剤	配合量 phr
SBR	85
NR	15
硫黄	2
ステアリン酸	1
酸化亜鉛	5
アルドール- α -ナフチルアミン	1
カーボンブラック	20
ジベンゾチアジルジサルフィド	1

加硫条件 160°C 30分

表-8 中性子散乱吸収係数 (μ 値) 単位 cm^{-1}

試料番号 \rightarrow	NAE-1	NAE-2	NAE-3	NAE-4	NAE-5	SBR	28X30A	カドミ
1 Å \rightarrow 82 mev	8.4	8.9	13.4	16.5	12.6	2.1	11.8	120
0.5 Å \rightarrow 327 mev	4.9	5.1	7.2	8.8	7.3	1.4	6.7	13
\rightarrow 650 mev	2.8	3.1	4.6	5.5	4.5	1.3	4.3	—

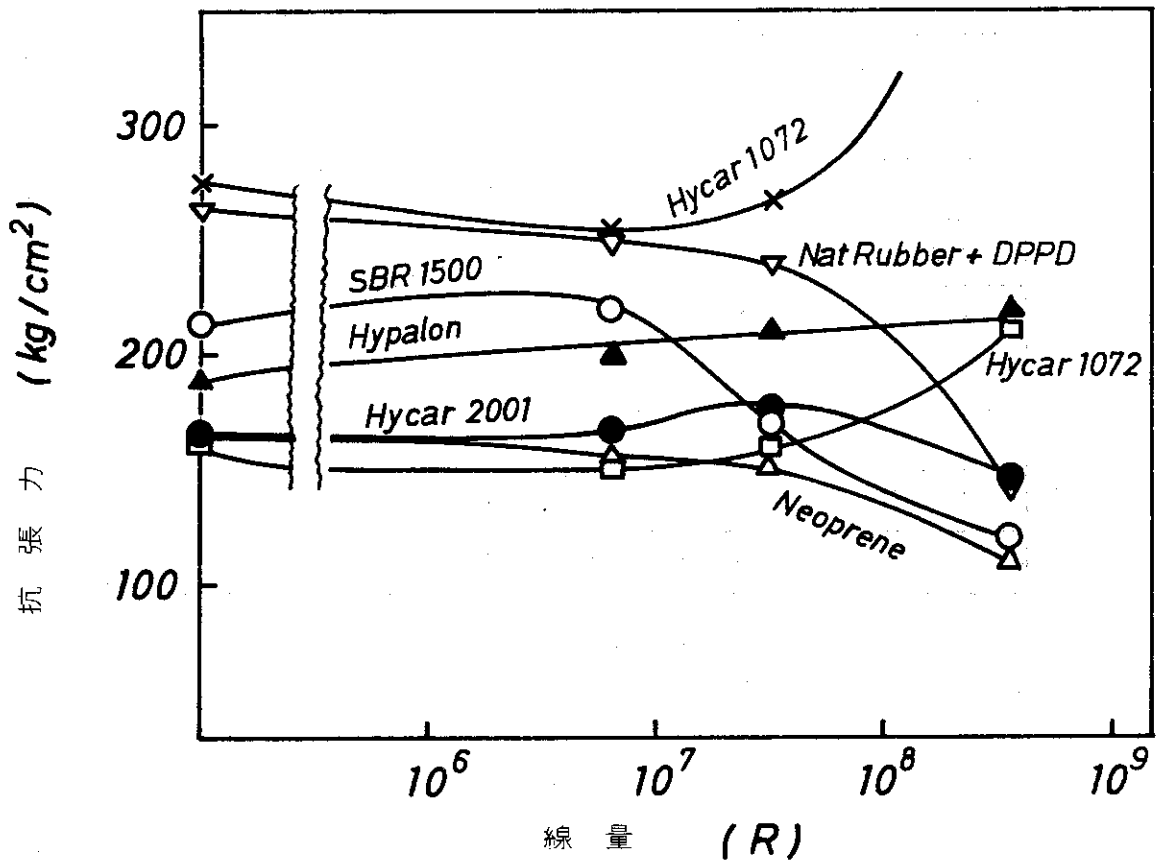


図-1 各種合成ゴム加硫物のγ線照射による抗張力の変化

中根,小出:放射線高分子,1,3 (1959)より

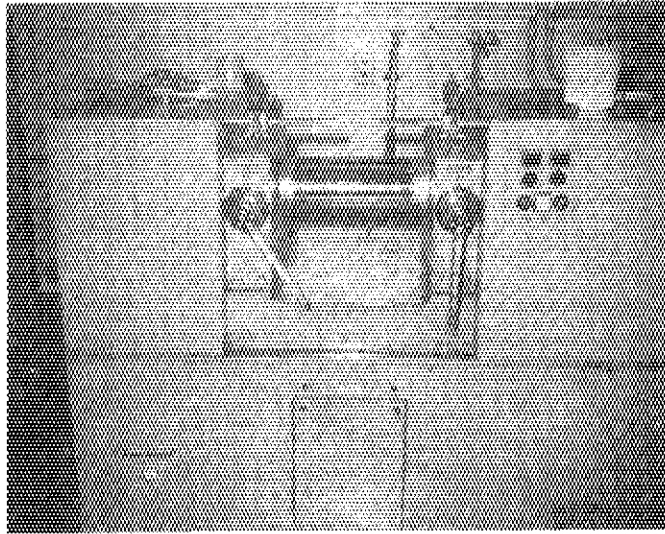


図-2 試験ロール

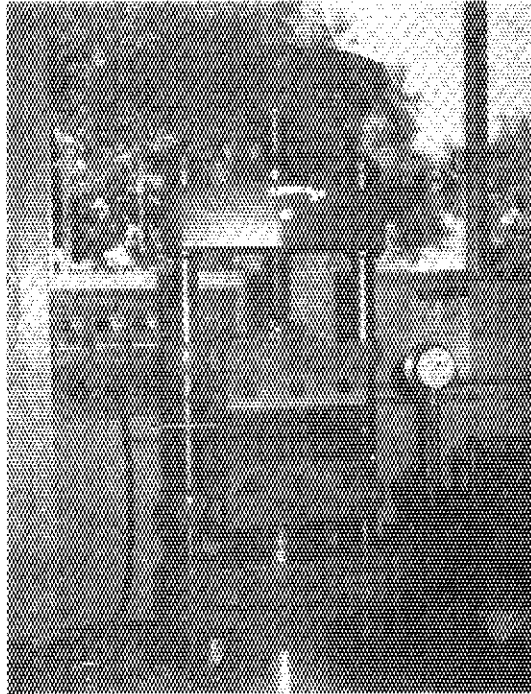
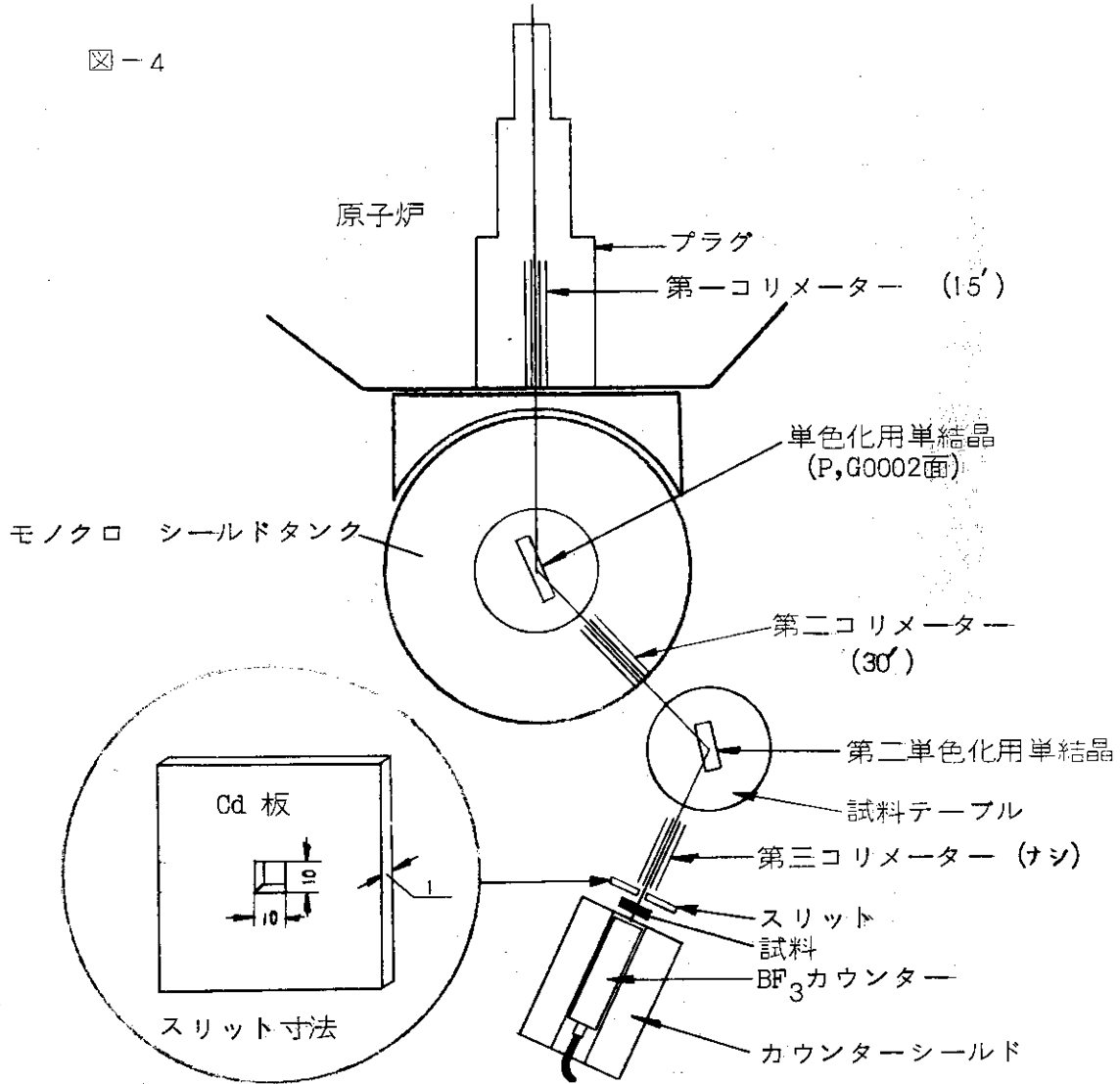


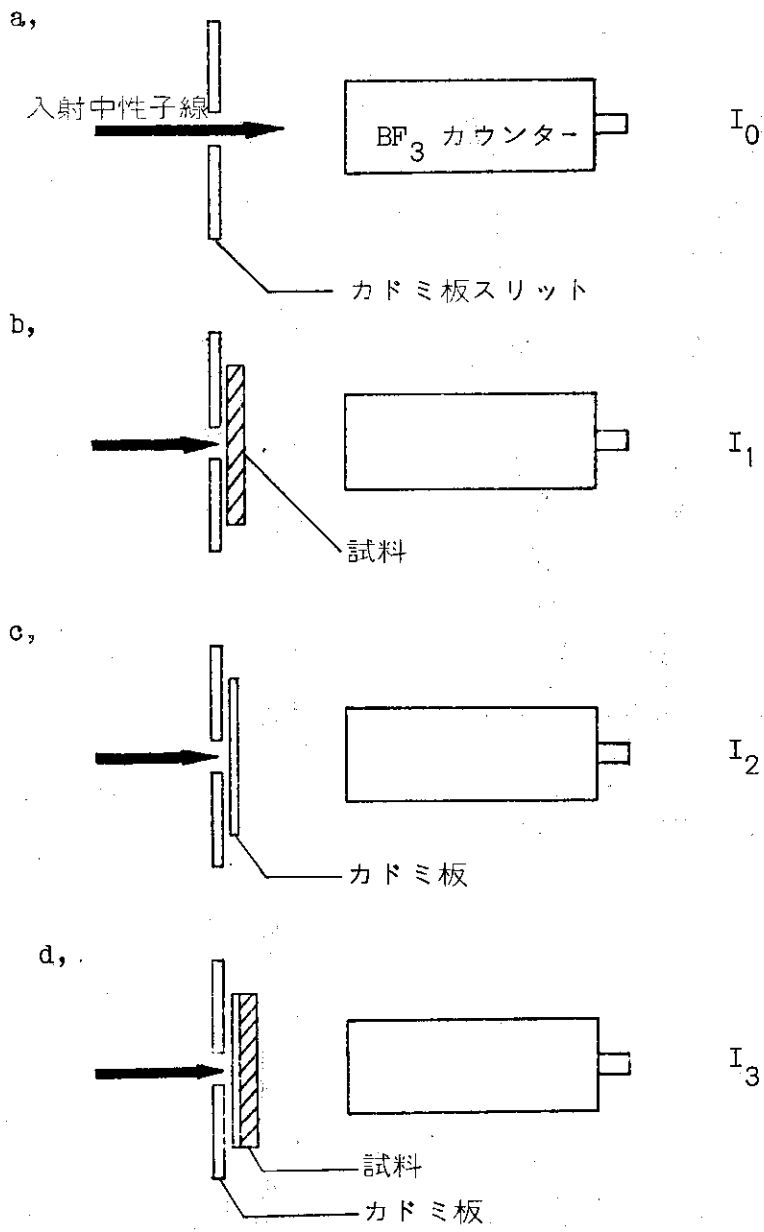
図-3 熱プレス

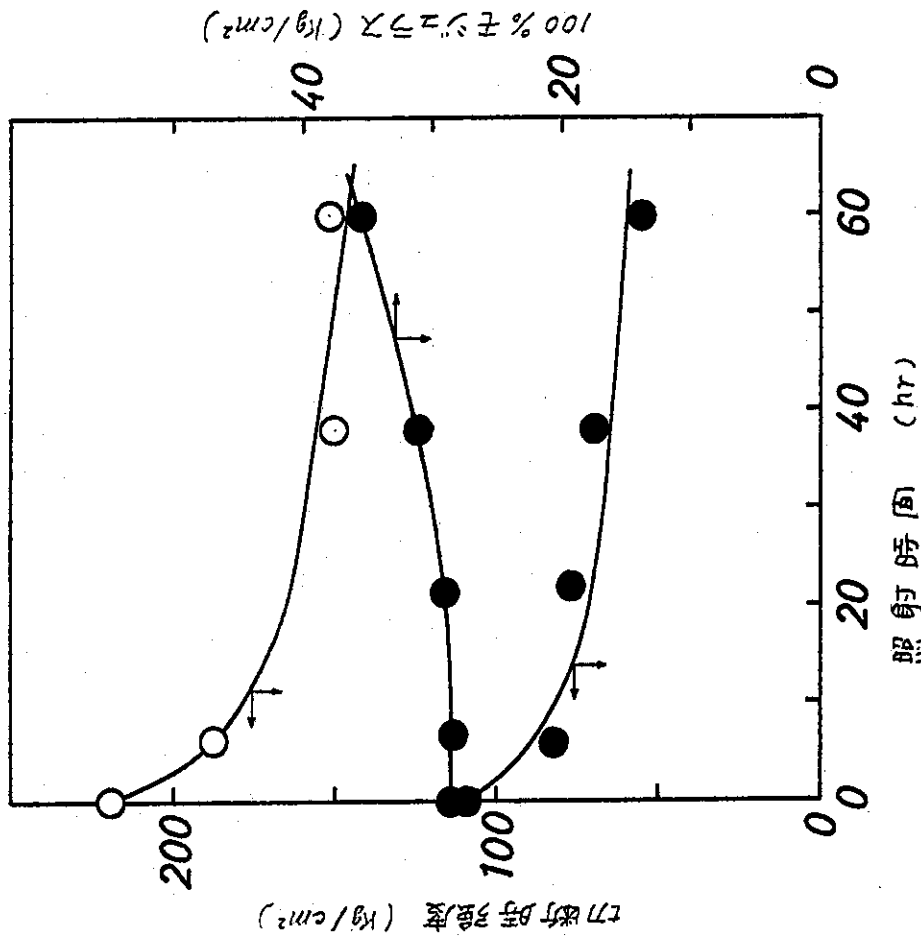
図-4



- コリメーター : 中性子線の方向を一様にする。第一コリメーターに15°、第二コリメーターに30°、第三コリメーターはなし、
- 単色化用単結晶 : プラグ反射を満足するための単結晶。
第一単結晶として、パイロリテック グラファイト (0002) 面の反射を使用。
第二単結晶として、0.5Åの時 Cu (111) 面反射を、1Åの時 Ge (111) 面反射を使用
- スリット : 入射線束の調整を行なうもので、試料寸法より小さく I₀の測定時にカウンターが、飽和しない様な寸法に選定する、材質はCd板を使用。
- カウンター : 中性子線用カウンターとして、フロント エンド 型の BF₃カウンターを使用。

図--5 測定方法

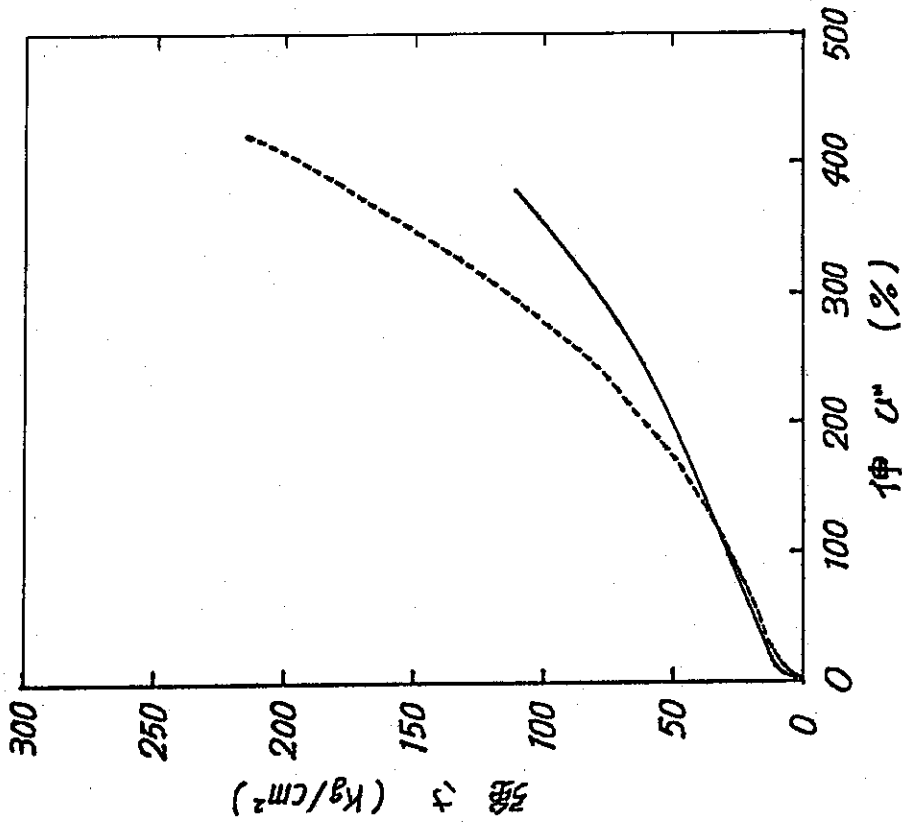




図一七 B₄Cを100phr配合して加硫したSBRの耐放射線性

空气中室温γ線照射、線量率 5×10⁵ r/hr

- : B₄C 100phr を配合したSBR (試料 NAE-5)
- : B₄Cを含まない加硫SBR



図一六 B₄Cを100phr配合して加硫したSBRの応力-ひずみ曲線

(試料NAE-5)

- : B₄Cを100phr配合した加硫SBR
- - - : B₄Cを含まない加硫SBR

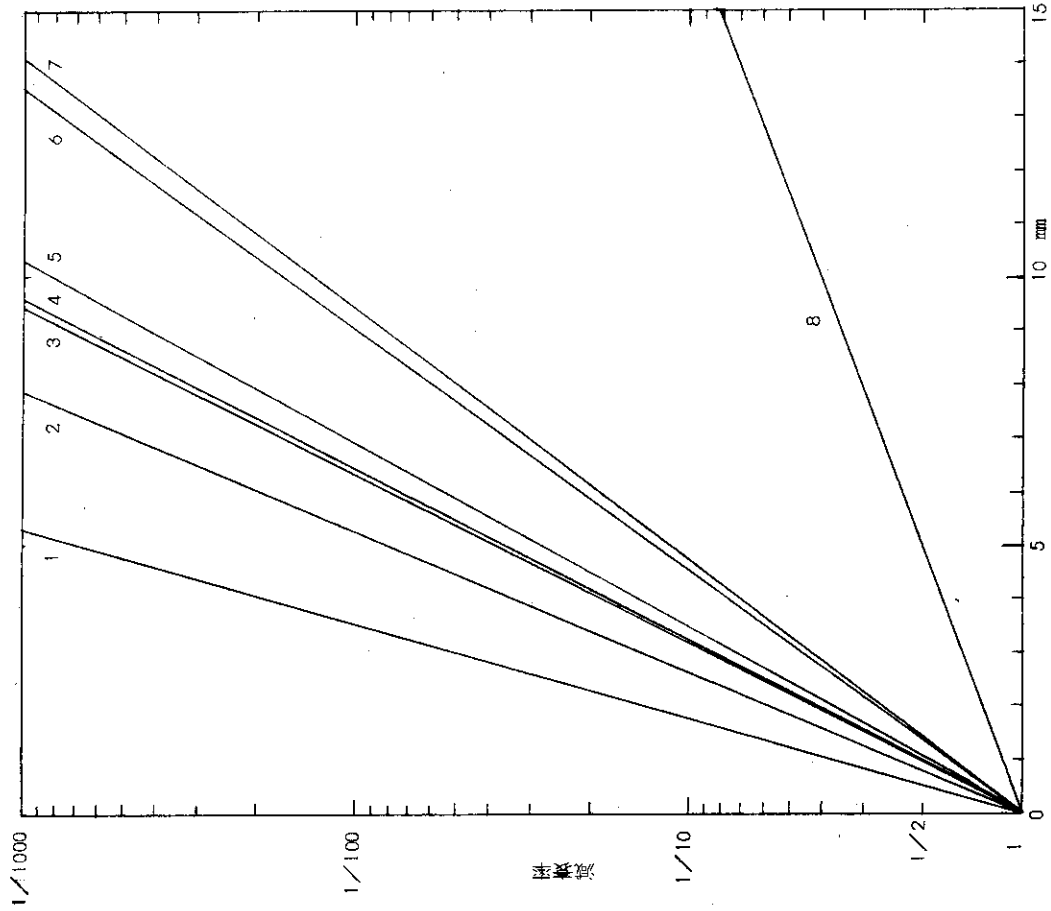


図-9 0.5Å における減衰
 厚さ
 1.) カドミ 2.) NAE-4 3.) NAE-3
 4.) NAE-5 5.) 2BX30A 6.) NAE-2
 7.) NAE-1 8.) SBR

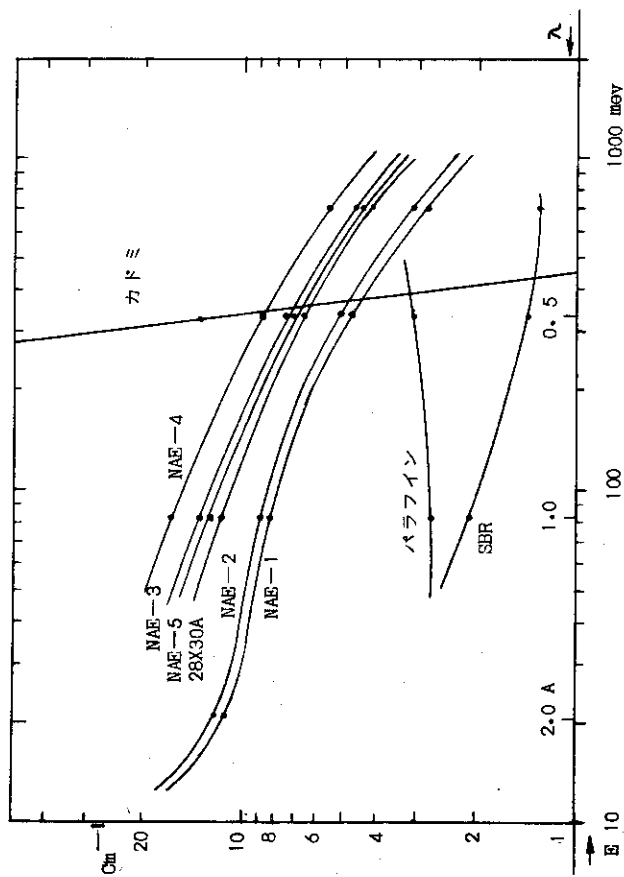


図-8 中性子阻止能特性

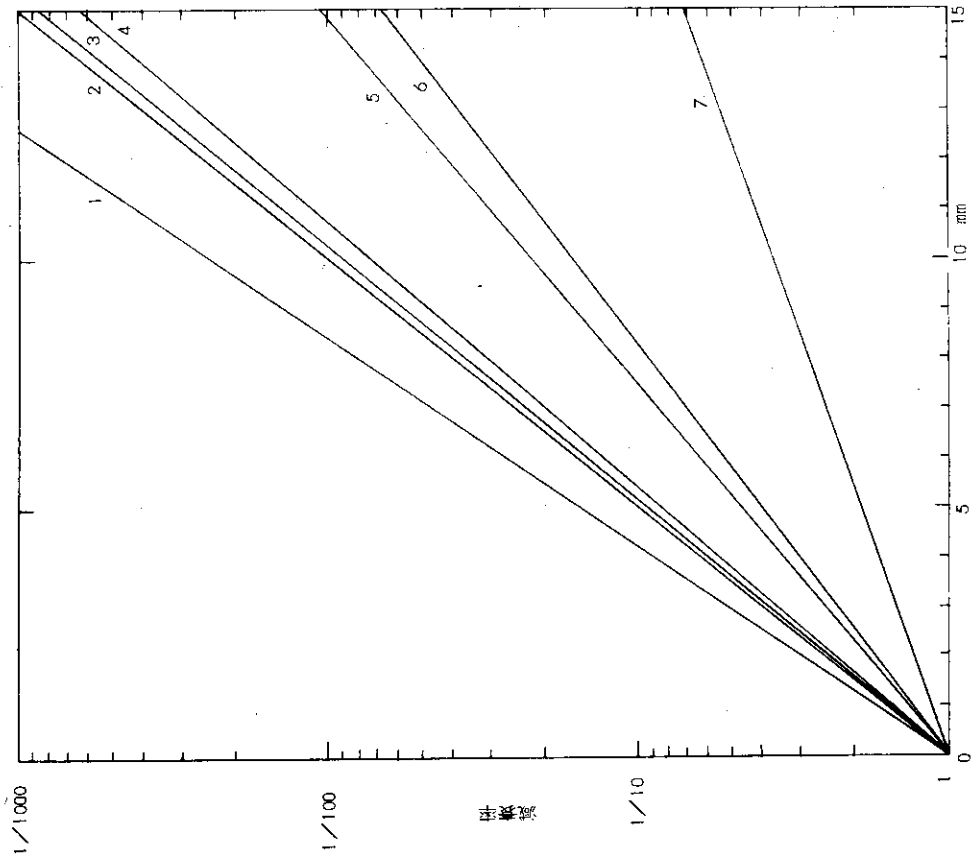


図-11 カドミカットオフ付近 ($E \approx 650 \text{ mev}$) での減衰
 1.) NAE-4 2.) NAE-3 3.) NAE-5 4.) 2BX30A
 5.) NAE-2 6.) NAE-1 7.) SBR

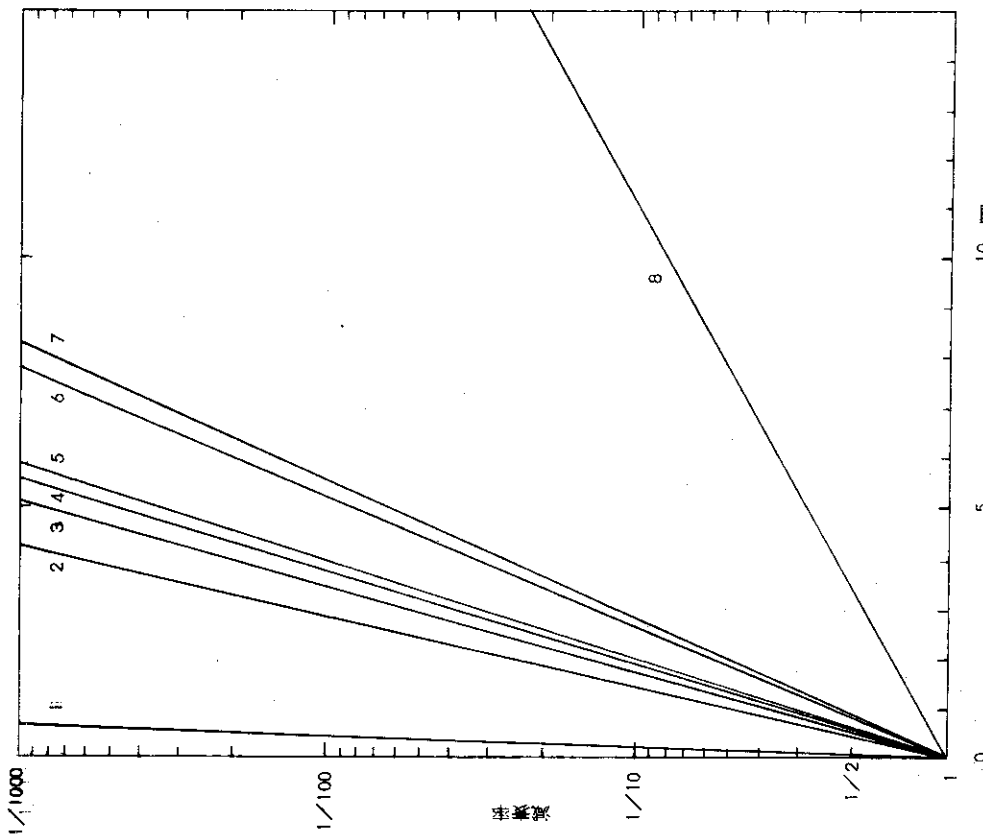


図-10 1Åにおける減衰
 1.) カドミ 2.) NAE-4 3.) NAE-3
 4.) NAE-5 5.) 2BX30A 6.) NAE-2
 7.) NAE-1 8.) SBR

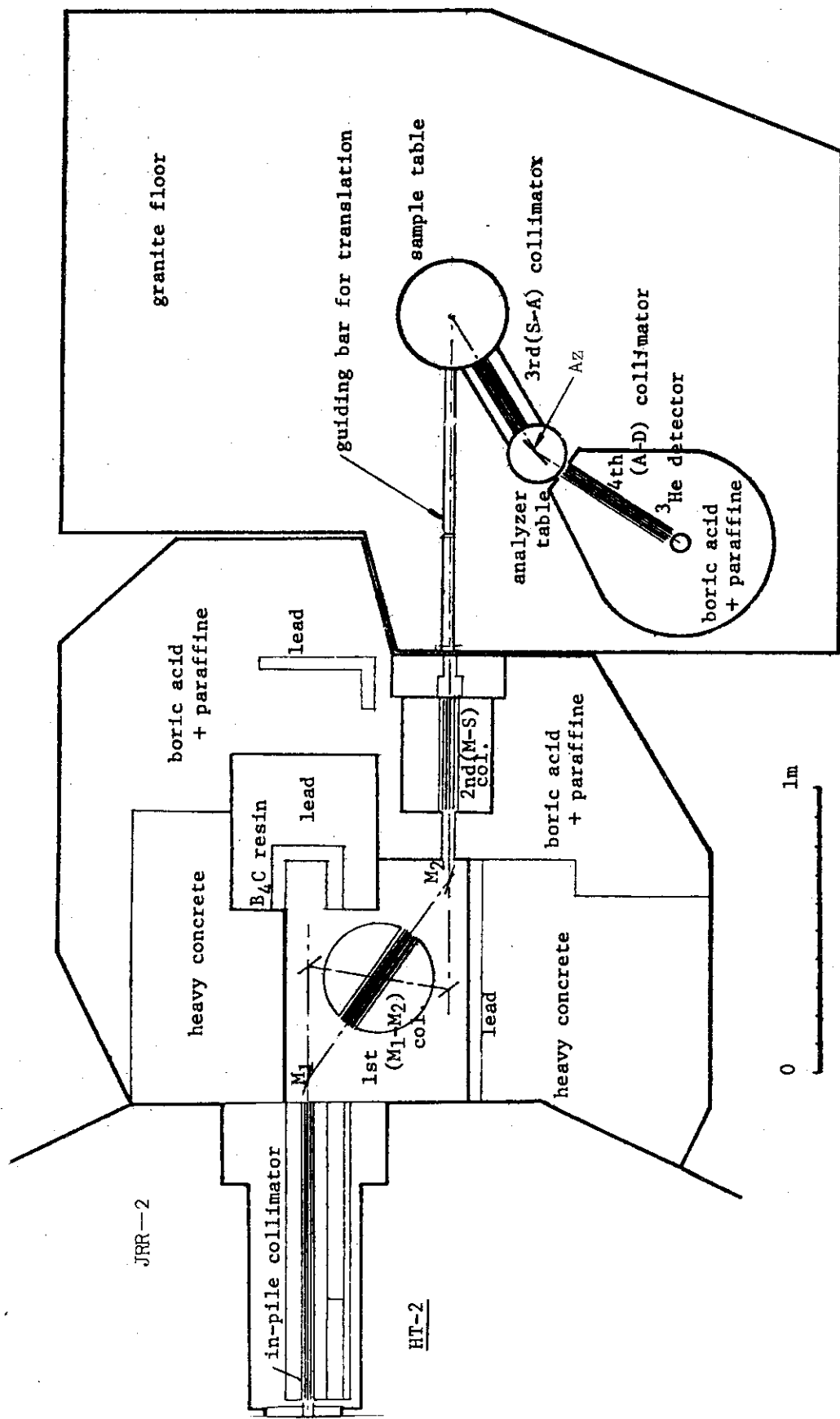


図-12 DMNS ダブルモノクロメーター型中性子分光器