

(12)

PATENTSCHRIFT

(21) Anmeldenummer: 820/96

(51) Int.Cl.⁶ : **G21F 1/00**

(22) Anmeldetag: 8. 5.1996

(42) Beginn der Patentedauer: 15. 3.1999

(45) Ausgabetag: 25.11.1999

(56) Entgegenhaltungen:

SU 834772A DE 3607190A1 DE 2049570A **GB 2004406A**
DE 4131274A1 DE 3821684A1 DD 103081A **FR 2669142A1**

(73) Patentinhaber:

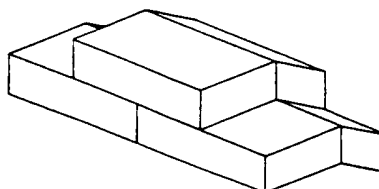
HASCIC WLADIMIR DR.
A-2346 MA. ENZERSDORF-SÜDSTADT, NIEDERÖSTERREICH

(54) STRAHLENSCHUTZMATERIAL MIT NEUTRONEN-ABSORBER

(57) Die vorliegende Erfindung betrifft ein Strahlenschutzmaterial mit durch ein anorganisches oder organisches Bindemittel oder Bindemittelgemisch gebundenen strahlenabsorbierenden Inhaltsstoffen, das enthält:

- a) 35-50 Gew.-% Bariumsulfat in Pulverform
- b) 10-45 Gew.-% Bornitrid in Pulverform
- c) 0-20 Gew.-% Aktivkohle
- d) 0-30 Gew.-% Graphit in Pulverform
- e) 0-10 Gew.-% Borcarbid B₂C in Pulverform.

Dabei fungiert Bariumsulfat insbesondere als Gammastrahlenabsorber, Bornitrid insbesondere als Neutronenabsorber. Das erfindungsgemäße Strahlenschutzmaterial ermöglicht bei geeigneter Zusammensetzung eine Reduktion der Neutronenstrahlung auf 12% (Probekörperdicke 2,2 cm). Das erfindungsgemäße Strahlenschutzmaterial kann, um eine bestmögliche Abschirmung zu erzielen, in Form überlappender Elemente vorliegen.



Die vorliegende Erfindung betrifft ein Strahlenschutzmaterial, das in der Lage ist, die Umgebung einer, insbesondere elektromagnetischen Strahlenquelle in besonders wirksamer Weise vor dem Durchtritt gesundheitsschädigender Strahlung zu schützen.

Eine Abschirmung gegen elektromagnetische Strahlungen, z.B. Alpha-, Beta-, Gamma- oder Neutronenstrahlen wird beim Arbeiten mit Röntgenapparaten, Radar- und anderen Mikrowellengeräten, Zyklotronen und anderen Teilchenbeschleunigern sowie Kernreaktoren benötigt.

Es sind verschiedene Strahlenschutzmaterialien bekannt geworden. Neben Blei wird z.B. auch Barytbe-
ton zu diesem Zweck verwendet. So beschreibt die SU 834 772 A Abschirmungen für Röntgenapparate, die
aus Barytsand und einem Binder aus Bariumhydroaluminat in einem Verhältnis 70-81 zu 19-30 hergestellt
wurden. Diese Materialien zeichnen sich durch eine hohe Festigkeit von 260-273 kg/cm² aus, die deutlich
über der von 50-80 kg/cm² der bisher für denselben Zweck verwendeten Mischungen auf Basis von
Zement, Kalk und Barytsand liegt. Der Abschirmungseffekt wird in diesem Dokument durch einen Stromfluß
nach der Bestrahlung bestimmt: Es wurden gemessen 19,5 A nach 3 sec für eine 5 mm dicke Abschir-
mung, 6 A nach 5 sec für eine 10 mm dicke Abschirmung und 16 A nach 10 sec für eine 10mmr dicke
Abschirmung. Die Materialien können in Schalen- oder Blockform vorliegen und mit einem dekorativen
weißen Finish ausgestattet sein.

In der DE 3 607 190 A wird eine beidseits mit Karton abgedeckte Gipsstrahlenschutzplatte (gegen
Röntgen- oder ähnliche Strahlen) beschrieben, die Baryt und gegebenenfalls Bleioxid enthält. Der Barytan-
teil kann zwischen 15 und 40% schwanken. Eventuell kann eine oder auch beide der Karton-Stützsichten
noch mit einer Bleifolie kaschiert sein, um die Strahlenresorption zu verbessern.

Die DE 2 049 570 A beschreibt Abschirmelemente für Atomkernreaktoren, die nach Art von Setzsteinen
mit prismatischem Querschnitt ausgebildet sind und eine formstabile Außenschicht von etwa 10 mm Dicke
und eine sandartige Innenstruktur aus Bariumsulfatpulver aufweisen. Die Außenschicht besteht ebenfalls aus
mittels Wasserglas gebundenem Bariumsulfatpulver. Diese Elemente werden zu Wänden von 2-3 m Höhe
geschichtet und einer Strahlendosis von 20.000 bis 40.000 rad pro Stunde ausgesetzt.

Die GB 2 004 406 A beschreibt ein strahlenabsorbierendes Material, das aus in einem härtbaren Binder,
z.B. Zement, eingebetteten Aggregat aus Barium- oder Bleimineralien besteht. Insbesondere sind Baryt,
Cerussite, Anglesit und Galenit genannt. Vorzugsweise enthält das Material bis zu 20 Gewichtsprozent an
Aggregatpartikeln.

Die DE 4 131 274 A offenbart eine Kunststoffbahn, die in der Lage ist, Neutronenstrahlen zu
absorbieren. Zur Moderierung der Neutronen wird ein geeignetes Polymeres, z.B. Polyisobutylen eingestzt.
Ein erster Zuschlagstoff aus Schwermetallverbindungen, bevorzugt Braunstein, dient zur Absorption und
Streuung der Neutronen, ein zweiter Zuschlagstoff, z.B. Borcarbid, Gadoliniumoxid, Hafniumborid wirkt als
breitbandiger Neutronenabsorber für thermische Neutronen. Gegebenenfalls kann ein Gammastrahlen
absorbierender Zusatzstoff, wie Bariumsulfat, zugesetzt werden.

Die DE 3 821 684 A beschreibt einen Baustoff zur Herstellung von Schutzraumbauten in Form von
Mörtel oder Bausteinen, der Metallpartikel zur Abschirmung von Röntgen- und Gammastrahlen sowie
Graphit zum Schutz gegen Neutronenstrahlung enthält. Durch Zugabe von Schwerspat (Bariumsulfat)
und/oder Bor-Phosphorverbindungen kann die Strahlungsabsorption, im letzteren Fall besonders gegenüber
Neutronen verbessert werden. Auch in D2 ist die Verwendung von Bornitrid als Neutronenabsorber weder
erwähnt noch nahegelegt.

Die DD 103 081 A offenbart bitumenhaltige strahlenabsorbierende Dichtungsmassen, die Bariumsulfat
und organische Stoffe, wie Epoxidharze oder ungesättigte Polyesterharze, enthalten. Die DD-A weist auch
auf das Bekanntsein der Eignung von Borverbindungen als Neutronenabsorber hin.

Die FR 2 669 142 A offenbart ein hitzebeständiges Strahlenschutzmaterial, das Graphit als Neutronen-
bremsstoff, Gadoliniumoxid als Neutronenabsorber, Wolfram und/oder Wolframoxid als Gammastrahlenab-
sorber und Eisen als Bindemittel enthält. Die Inhaltsstoffe werden als Pulver gemischt und unter Druck über
dem Schmelzpunkt des Eisens geformt. Diese FR-A weist auch auf die Schädigung von Borcarbid als
Neutronenabsorber durch sein Aufblähen infolge der Entstehung von Helium hin.

Die vorliegende Erfindung hat sich zum Ziel gesetzt, ein Strahlenschutzmaterial bereitzustellen, das die
Nachteile des Standes der Technik vermeidet und gegen alle Formen elektromagnetischer Strahlungen
ausgezeichnet wirksam ist und insbesondere auch sehr guten Schutz gegen Neutronenstrahlen bietet.
Dabei soll das Material gut und einfach verarbeitbar, und daraus hergestellte Elemente sollen gut und
ungefährlich handhabbar sein.

Es sollte auch ein Strahlenschutzmaterial bereitgestellt werden, das zur besonders effektiven Neutro-
nenabsorption befähigt ist und diesbezüglich den Stand der Technik übertrifft.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch ein Strahlenschutzmaterial gelöst, das aus durch ein
vorzugsweise anorganisches Bindemittel gebundenen strahlenabsorbierenden Inhaltsstoffen besteht und

folgende Zusammensetzung enthält:

- a) 35-50 Gew.-% Bariumsulfat in Pulverform
- b) 10-45 Gew.-% Bornitrid
- c) 0-15 Gew.-% Aktivkohle
- d) 0-30 Gew.-% Graphit
- e) 0-10 Gew.-% Borcarbid B_4C .

Durch diese Zusammensetzung wird gewährleistet, daß nicht nur eine gute Abschirmung gegen radioaktive Strahlen, insbesondere Gammastrahlen erzielt wird, sondern auch gegenüber Neutronenstrahlen.

Während zur Abschirmung gegen Gammastrahlen das spezifische Gewicht des Materials von großer Bedeutung ist, weshalb Blei- und Bariumverbindungen sich hierzu besonders eignen, sind diese Materialien gegenüber Neutronen als Abschirmung nicht effektiv. Beispielsweise beträgt $d_{1/2}$ (= die Probendicke, die erforderlich ist, um die Gammastrahlung von Cobalt-60 zu halbieren, wenn zylindrische Probekörper mit einem Durchmesser von 10 cm und einer Dicke von 2-3 cm verwendet werden):

- für Blei ($G_{sp} = 11,3 \text{ g/cm}^3$): 1,01 cm;
- für Eisen ($G_{sp} = 7,8 \text{ g/cm}^3$): 1,67cm;
- für normalen Beton ($G_{sp} = 2,35 \text{ g/cm}^3$): 4,1 cm.

Demgegenüber liegt $d_{1/2}$ bei dem erfindungsgemäßen Strahlenschutzmaterial, das vorzugsweise ein spezifisches Gewicht von 1,5-2,7 g/cm^3 aufweist, zwischen 2,5 und 4,5, vorzugsweise zwischen 2,5 und 4, insbesondere zwischen 3 und 3,5 cm.

Zur Bestimmung der Neutronenabsorption wird eine Ra/Be-Nuklidquelle mit einer maximalen Energie von 11 MeV (größte Energiedichte zwischen 3-7 MeV) verwendet. Solche Neutronenstrahlen gehen durch eine 60 cm dicke Bleiabschirmung ungebremst durch. Dasselbe gilt auch für Eisen.

Im Gegensatz dazu sind die erfindungsgemäßen Strahlungsschutzmaterialien in der Lage, eine ganz erhebliche Neutronenabsorption zu erzielen. Die folgenden Experimente wurden an Proben der angegebenen Dicke durchgeführt, die Neutronenabsorption wurde dann auf 10 cm Probendicke hochgerechnet. Als Maß der Neutronenabsorption wurde der Faktor $100 \times I_0/I$ (%) bestimmt, der angibt, wieviel Prozent der auftretenden Strahlung I_0 die Probe mit der Intensität I passiert hat.

Beispiel 1:

- a) 35 Gew.teile Bariumsulfat
- b) 40 Gew.teile Bornitrid
- c) 15 Gew.teile Aktivkohle

Als Binder werden 40 Gew.teile Aluminiumphosphat eingesetzt.

Die Ingredienzien werden gemischt, in eine Form gefüllt und die Mischung bei 100 atü gepreßt, ausgetrocknet und bei 150 °C 30 Minuten lang ausgehärtet.

An einem Probekörper wird das Verhältnis I_0/I gemessen. Daraus ergab sich, abhängig von der Dicke des Probekörpers, folgende Reduktion der Neutronenstrahlung nach dem Durchgang durch den Probekörper (und hochgerechnet auf eine Probekörperdicke von 10 cm):

- Probekörperdicke: 2,4 cm; Reduktion auf 14,3%;
- Probekörperdicke: 2,6 cm; Reduktion auf 16,7%.

Beispiel 2:

- a) 35 Gew.teile Bariumsulfat
- b) 40 Gew.teile Bornitrid
- c) 15 Gew.teile Graphit

Als Binder werden 40 Gew.teile Aluminiumphosphat eingesetzt.

Bei einer Probekörperdicke von 2,2 cm wurde eine Reduktion der Neutronenstrahlung auf 12,0% gemessen (wie in Beispiel 1).

Beispiel 3:

- a) 40 Gew.teile Bariumsulfat
- b) 40 Gew.teile Bornitrid
- c) 15 Gew.teile Aktivkohle
- d) 20 Gew.teile Borsäure

Als Binder werden 20 Gew.teile Natronwasserglas eingesetzt.

Bei einer Probekörperdicke von 2,9 cm wurde eine Reduktion der Neutronenstrahlung auf 26,7% gemessen (wie in Beispiel 1).

Gute Ergebnisse bezüglich der Neutronenabsorption wurden auch mit bis zu 10 Gew.-% Bornitrid erzielt (Reduktion der Neutronenstrahlung auf unter etwa 30%).

5 Eine einfache und kostengünstige Verarbeitung des erfindungsgemäßen Strahlenschutzmaterials ist möglich, wenn das/die Bindemittel anorganisch ist/sind. Insbesondere können als anorganische Bindemittel ein Silikat- und/oder Silikat-Aluminat-Binder verwendet werden. Wasserglas, insbesondere Natronwasserglas zeichnet sich durch wirtschaftliche und verfahrensmäßige Vorteile aus und ermöglicht auch gute mechanische und thermische Eigenschaften.

10 Gute Härtungseigenschaften werden erzielt, wenn dem Silikat- oder Silikat/Aluminatbinder Polyphosphat als Härter zugesetzt wird.

Günstige Verarbeitungs- und Produkteigenschaften sind auch bei Verwendung eines Aluminiumphosphat-Binder erreichbar.

Es ist jedoch auch möglich, organische Bindemittel, beispielsweise Harnstoff- oder Melaminharze einzusetzen.

Vorteilhaft auf das Ausmaß der Neutronenabsorption wirkt sich auch die zusätzliche Zugabe von Borsäure, vorzugsweise in Kristallform aus.

Ein ausgewogenes Verhältnis der Absorption von Gamma- und Neutronenstrahlen kann erzielt werden, wenn das Strahlenschutzmaterial einen Bariumsulfatgehalt zwischen 40 und 47 Gew.-%, vorzugsweise 20 zwischen 43 und 45 Gew.% hat.

Folgende Zusammensetzungen haben sich hinsichtlich der gestellten Aufgabe als zweckmäßige Kompromisse bewährt:

Zusammensetzung A:

25

- a) 35-50 Gew.-% Bariumsulfat in Pulverform
- b) 15-30 Gew.-% Bornitrid in Pulverform
- c) 5-15 Gew.-% Aktivkohle
- d) 5-30 Gew.-% Graphit in Pulverform
- 30 e) 5-10 Gew.-% Borcarbid B_4C in Pulverform.

Zusammensetzung B:

35

- a) 40-45 Gew.-% Bariumsulfat in Pulverform
- b) 15-20 Gew.-% Bornitrid in Pulverform
- c) 8-12 Gew.-% Aktivkohle
- d) 10-25 Gew.-% Graphit in Pulverform
- e) 5-8 Gew.-% Borcarbid B_4C in Pulverform.

40

Zusammensetzung C:

- a) 40-50 Gew.-% Bariumsulfat in Pulverform
- b) 10-15 Gew.-% Bornitrid in Pulverform
- c) 5-10 Gew.-% Aktivkohle
- 45 d) 40-50 Gew.-% Borsäure crist.

Wenn das spezifische Gewicht G_{sp} des gehärteten Strahlenschutzmaterials zwischen 1,5-2,7 g/cm³ liegt, können neben der guten Strahlenabsorption auch gute bauphysikalische Eigenschaften erzielt werden.

Um eine flexible Gestaltungsmöglichkeit für Abschirmungswände zu gewährleisten, ist es zweckmäßig, wenn das Strahlenschutzmaterial in Form von überlappenden Elementen vorliegt. Dabei werden diese 50 Elemente (oder Ziegel) nach der zu erwartenden Strahlenenergie in der Stärke von 10 bis 30 cm aufgebaut. Bei einer Dicke von 30 cm pro Stück wird ein Gewicht von etwa 10 kg erreicht (abhängig von Mauerdicke und spezifischem Gewicht). Die Länge des Elements ist variabel und kann z.B. von 20 cm (bei Wandstärke 30 cm) bis 50 cm (bei einer Wandstärke von 10 cm) betragen. Es ist auch möglich für sehr starke Strahlungsenergien zwei oder mehrere Wände nebeneinander aufzubauen, eventuell mit einer Barytfüllung 55 zwischen den Wänden.

Die Elemente können lose verlegt oder zusammengeklebt werden. Als Kleber wird vorzugsweise Mörtel auf Barytbasis oder auch ein Kunststoffadhesiv verwendet.

Die bevorzugt dachartige Form der Elemente kann den Figuren 1 bis 4 entnommen werden. Das dort dargestellte Element hat eine Länge zwischen 27-30 cm und eine Breite (gemessen am Grundriß) von 30 cm. Die Dicke der Wandung beträgt etwa 5 cm. Am Grundriß gemessen schließen die zwei am Giebel verbundenen Wandteile miteinander einen stumpfen Winkel von 150°-160° ein.

- 5 Aus Figur 1 ist erkennbar, daß der Neigungswinkel (α) der den dachartigen Giebel bildenden Flächen gegenüber einer horizontalen Grundfläche etwa 20° beträgt. Figur 2 stellt einen Blick auf zwei einander teilweise überlappende Elemente von vorne oben dar. Die Figuren 3 und 4 zeigen die versetzte Anordnung dreier Elemente, wobei aus Figur 4 erkennbar ist, daß die Stirnseiten der beiden "Dachhälften" des Giebels nicht fluchtend ausgebildet sind, sondern **einen Winkel** miteinander einschließen. Dabei entsteht an der
- 10 einen Seite des Elements gleichsam eine **Spitze**, die in die dazu komplementär ausgebildete pfeilförmige Ausnehmung des Folgeelements ragen kann.

Für den Wandaufbau wird die unterste und oberste Ziegelreihe mit Hilfe von Ziegel-Einlegekeilen aufgebaut, die universell verwendet werden und **nach Bedarf**, z.B. mit einer Winkelschleifmaschine (Steinscheibe) zurechtgeschnitten werden. Diese Keile können die in den Figuren 5 (unterer Keil) und 6 (oberer Keil)

15 gezeigte Gestaltung aufweisen.

Die Elemente können zur strahlendichten **Verlegung** auch mit randseitigen Abstufungen zur Überlappung mit den Nachbarelementen versehen sein.

Patentansprüche

20

1. Strahlenschutzmaterial zur Absorption von Gammastrahlen und Neutronen mit durch ein Bindemittel oder Bindemittelgemische gebundenen strahlenabsorbierenden Inhaltsstoffen unter Verwendung von Bariumsulfat **dadurch gekennzeichnet**, daß es enthält:
 - a) 35-50 Gew.-% Bariumsulfat in Pulverform
 - 25 b) 10-45 Gew.-% Bornitrid in Pulverform
 - c) 0-20 Gew.-% Aktivkohle
 - d) 0-30 Gew.-% Graphit in Pulverform
 - e) 0-10 Gew.-% Borcarbid B_4C in Pulverform.
- 30 2. Strahlenschutzmaterial nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß das/die Bindemittel anorganisch ist/sind.
3. Strahlenschutzmaterial nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet**, daß als anorganisches Bindemittel ein Silikat- und/oder Silikat-Aluminat-Binder verwendet wird.
- 35 4. Strahlenschutzmaterial nach Anspruch 3, **dadurch gekennzeichnet**, daß als Silikatbinder Wasserglas verwendet wird.
5. Strahlenschutzmaterial nach Anspruch 3 oder 4, **dadurch gekennzeichnet**, daß dem Bindemittel Polyphosphat als Härter zugesetzt wird.
- 40 6. Strahlenschutzmaterial nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet**, daß als Bindemittel ein Aluminiumphosphat-Binder verwendet wird.
- 45 7. Strahlenschutzmaterial nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß das/die Bindemittel organisch ist/sind.
8. Strahlenschutzmaterial nach Anspruch 7, **dadurch gekennzeichnet**, daß das/die organischen Bindemittel Harnstoff- oder Melaminharze ist/sind.
- 50 9. Strahlenschutzmaterial nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, daß es zusätzlich Borsäure, vorzugsweise in Kristallform enthält.
10. Strahlenschutzmaterial nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, daß
- 55 der Bariumsulfatgehalt zwischen 40 und 47 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 43 und 45 Gew.-% liegt.
11. Strahlenschutzmaterial nach einem der vorhergehenden Ansprüche, gekennzeichnet durch folgende Zusammensetzung:

- a) 35-50 Gew.-% Bariumsulfat in Pulverform
- b) 15-30 Gew.-% Bornitrid in Pulverform
- c) 5-15 Gew.-% Aktivkohle
- d) 5-30 Gew.-% Graphit in Pulverform
- e) 5-10 Gew.-% Borcarbid B_4C in Pulverform.

5

12. Strahlenschutzmaterial nach einem der vorhergehenden Ansprüche, gekennzeichnet durch folgende Zusammensetzung:

10

- a) 40-45 Gew.-% Bariumsulfat in Pulverform
- b) 15-20 Gew.-% Bornitrid in Pulverform
- c) 8-12 Gew.-% Aktivkohle
- d) 10-25 Gew.-% Graphit in Pulverform
- e) 5-8 Gew.-% Borcarbid B_4C in Pulverform.

15

13. Strahlenschutzmaterial nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, daß es ein spezifisches Gewicht G_{sp} von 1,5-2,7 g/cm³ aufweist.

20

14. Strahlenschutzmaterial nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, daß es in Form von überlappenden Elementen vorliegt.

15. Strahlenschutzmaterial nach Anspruch 14, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Elemente dachförmig ausgebildet sind mit randseitigen Abstufungen zur Überlappung mit den Nachbarelementen.

Hiezu 3 Blatt Zeichnungen

25

30

35

40

45

50

55

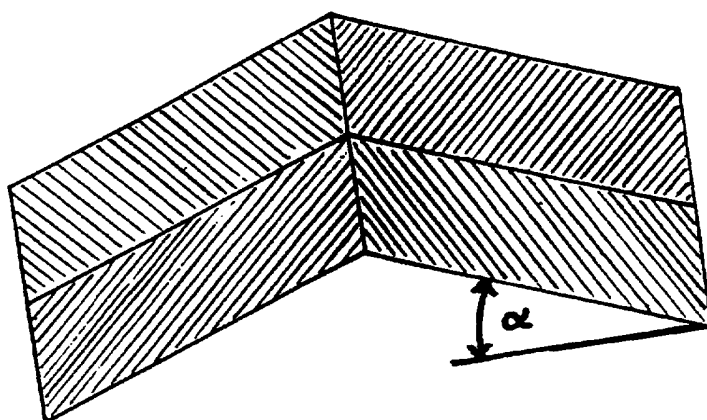


Fig 1

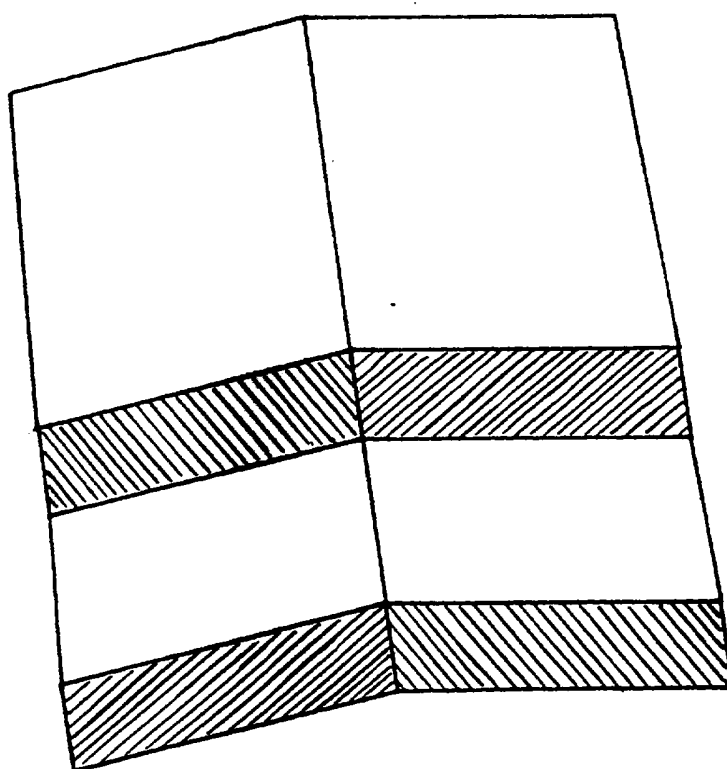


Fig 2

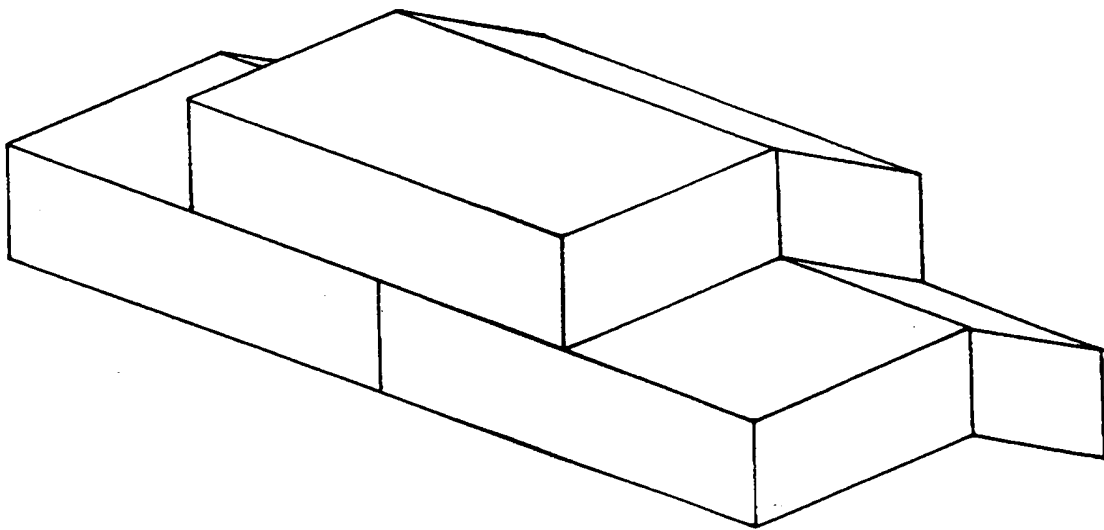


Fig 3

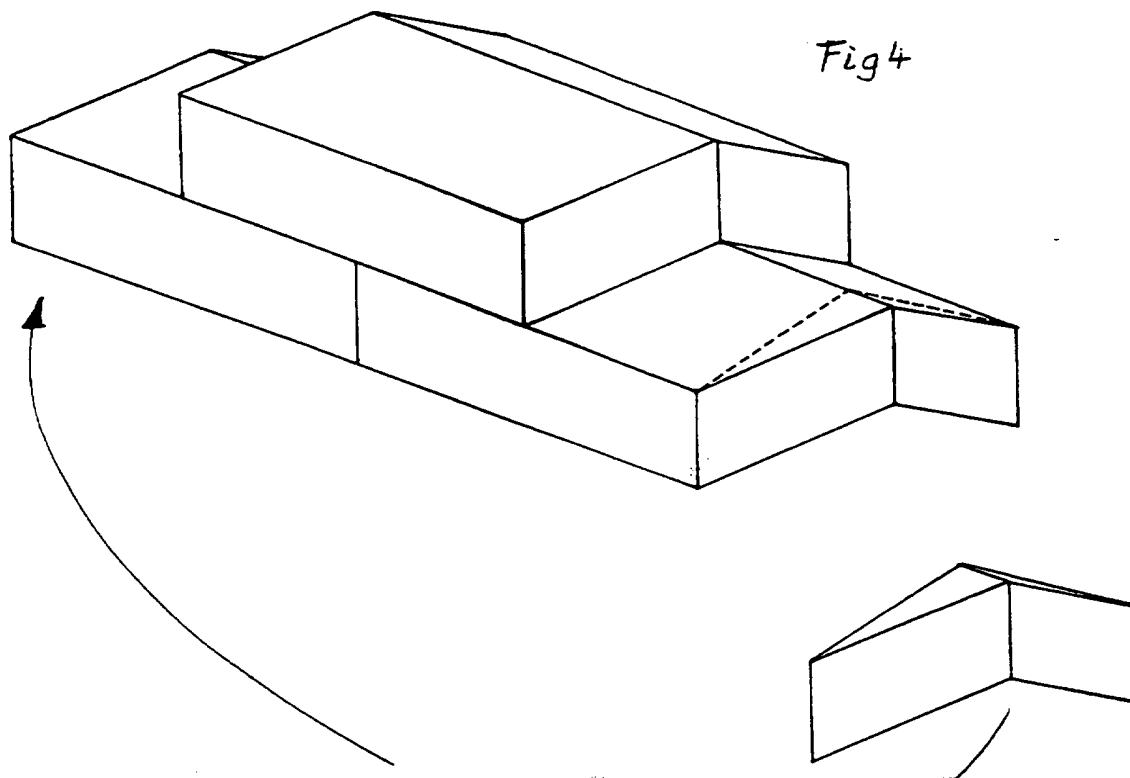
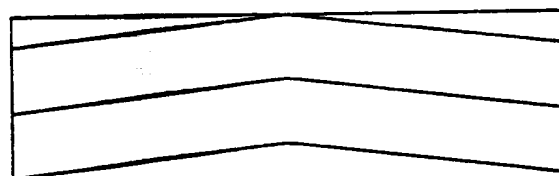


Fig. 5



Keile unten

Fig. 6



Keile oben