

放射性核種の生成と放射線防護

1. はじめに

1.1. 加速器と放射化

高エネルギー加速器では、高エネルギーに加速した粒子ビームを様々な科学実験研究に用いている。ビームが物質に衝突すると、加速粒子は物質中の原子核と衝突して核反応を引き起こす。核反応により、様々な放射性核種が生成する。これを「放射化」と言う。また、核反応の結果、さらに二次的に粒子が発生して（以下この粒子を「二次粒子」と呼ぶ）、この二次粒子もまた周りにある物質中の原子核に衝突し、周辺物質を放射化する。二次粒子には透過力が高いものも含まれており、周りで作業する人が被曝しないように加速器は厚い遮蔽壁でおおわれている。放射線防護の観点からは

- (1) 加速器の放射化
- (2) 加速器の周りの物質の放射化
- (3) 二次粒子の遮蔽

が重要な項目として挙げられる。

1.2. KEKのEP1 ビームラインを例として

高エネルギー加速器研究機構(KEK)の 12GeV陽子加速器 EP1 ビームラインを例に説明する。Fig.1.1にEP1 ビームラインの平面図を示す。ビームラインは実験ホール建屋の中央付近に南北に渡って設置されている。EP1 ビームラインに到達する前に既に 12GeV まで加速された陽子は南から北（この図面では左から右）に向かって輸送される。

ビームラインには図中では小さな長方形で表現されたビーム収束等に用いる電磁石が多く並んでいる。ビーム輸送中には各所で意図しないビームロスが起こっており、ビームライン全体が放射化している。図中の白矢印の場所には標的が設置されており、陽子ビームを標的に衝突させて核反応を起こし、生成する二次粒子を研究に使用する。二次粒子は電磁石で実験ホールフロアに輸送されて物理実験に使用される。ビームライン周辺

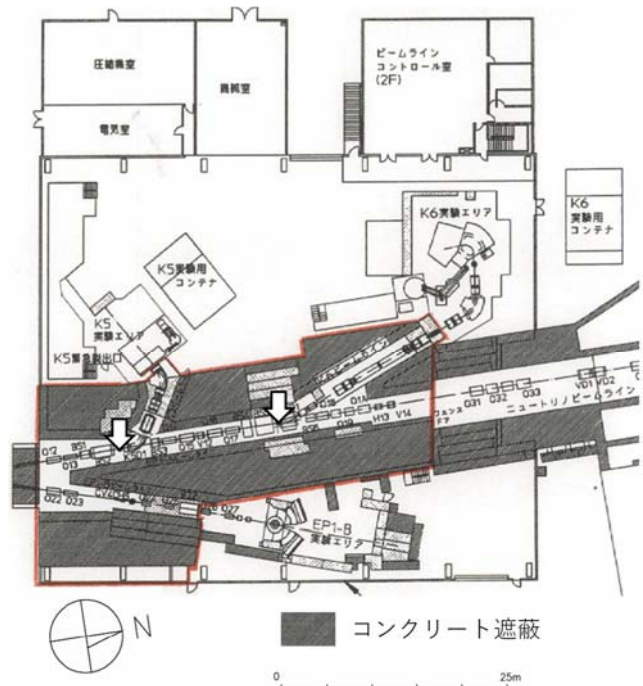


Fig. 1.1 KEKの12GeV陽子加速器EP1ビームラインの平面図 [1]

では二次粒子による線量が高く、ビームラインは6mものコンクリート遮蔽壁で囲まれている。この加速器を遮蔽壁で囲んだエリアを「加速器室」と言う。加速器運転中に人は加速器室に入ることにはできず、コンクリート遮蔽壁の外側の実験ホールフロアで作業する。

運転終了後は加速器室内にアクセスして加速器のメンテナンス等を行う。このとき、放射化した電磁石等からの外部被曝が問題となる。また、電磁石等の温度をコントロールするために使用している冷却水も放射化し、排水時には注意が必要である。加速器室には照明のために蛍光灯が取り付けられており、寿命がきた後の放射化した蛍光灯の廃棄物の問題がある。加速器が廃止されれば電磁石だけではなく、コンクリートなどの大量の遮蔽体も放射化した廃棄物として考えなければならない。本講座では、高エネルギー加速器における放射化の実態について実測データを示しながら解説する。また、二次粒子の遮蔽に関しても放射化利用して測定し、放射線防護に役立てている応用例を紹介する。

2. 放射性核種に関連する基礎用語

2.1. 核種に関連する用語

核種に関連する用語を説明する。

- (1) 核種：原子番号（陽子数）と質量数（核子数＝陽子数＋中性子数）で決まる原子種を言う。
- (2) 放射性核種：原子核から放射線が放出されて自発的に他の原子核に壊変する核種を言う。
- (3) 安定核種：安定であって他の核種に自発的に変換しない核種を言う。
- (4) 同位体：同一の元素に属し（同一の陽子数を持ち）、質量が異なる核種を言う。
- (5) 同重体：同一の質量数を持つ核種を言う。

2.2. 放射性核種の壊変様式

加速器施設の放射化で生成する放射性核種の壊変様式の内、重要なものは次の3つである。

- (1) β^- 壊変：
原子核の中から高速の電子が放出される壊変様式。中性子が一つ陽子になるので原子番号が一つ上の同重体に壊変する。 β^- 壊変の核種は同重体の安定核種より中性子の割合が多い。
- (2) β^+ 壊変：
原子核の中から高速の陽電子が放出される壊変様式。陽子が一つ中性子になるので原子番号が一つ下の同重体に壊変する。 β^+ 壊変の核種は同重体の安定核種より中性子の割合が少ない。軌道電子捕獲がともなわれることが多い。
- (3) 軌道電子捕獲：
核外電子が原子核に捕獲される壊変様式。

2.3. ガンマ遷移

原子核が高励起状態から低エネルギー状態に移るとき、その励起エネルギーをガンマ線と呼ばれる光子として放出する。この現象をガンマ遷移と言う。原子核が β 壊変などで壊変したときに、引き続きガンマ遷移を起こす放射性核種（以降「ガンマ線放出核種」と言う）があり、放出されるガンマ線は核種に固有である。したがって、一般に、ガンマ線のエネルギーがわかれば、どの放射性核種から放出された γ 線かが判別できる。加速器施設の放射化においては、ガンマ線放出核種は放射線防護上重要である。

2.4. 放射能と半減期

(1) 放射能：放射性核種が単位時間あたりに壊変する個数を言う。単位は、1秒間あたりの壊変数を表す「Bq」が使われる。

(2) 半減期：放射性核種が放射性壊変によって1/2になるまでの時間を言う。

2.5. ナトリウム-24を例とした説明

ナトリウム-24と言う核種を例にこれまでの説明を復習する。Fig.2.1にナトリウム-24の核種表記の仕方を示す。ナトリウムの元素記号は「Na」なので、Naと書く。その左肩に上付き文字で質量数を書く。下のようにハイフンで質量数をつなぐ表記でも良い。

ナトリウムは原子番号11なので、 ^{24}Na は、陽子数11、質量数24の核種であることがわかる。このとき中性子数も質量数から陽子数を引いて計算でき、13である。

^{24}Na は放射性核種である。同位体の ^{23}Na は安定核種である。 ^{24}Na は β^- 壊変して同重体である ^{24}Mg になる。 ^{24}Na は β^- 線以外にも壊変時にエネルギーが1369keVと2754keVの2本の固有のガンマ線を放出する。 ^{24}Mg は安定核種なのでこれ以上壊変しない。100Bqの ^{24}Na は1秒間に100個の ^{24}Na が壊変していることを表す。半減期は約15時間で、放射能は約15時間で1/2、約30時間で1/4、約45時間で1/8となる。

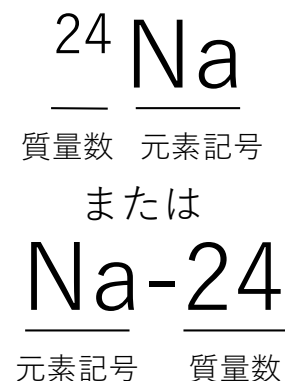


Fig. 2.1 核種ナトリウム-24の表記方法

3. 核反応

3.1. 陽子による核反応

高エネルギーの陽子が標的となる原子核に衝突すると核反応が起こる。入射エネルギーにより核反応の様相は変わり、Fig.3.1の図はその変化を良く説明している。Fig.3.1はビスマス標的に陽子を衝突させたときに起こる核反応により生成する核の質量数分布を表す。横軸は核反応後に生成した原子核の質量数を示し、縦軸は断面積（核反応の起こりやすさを表す量）を示す。

入射エネルギーが40MeVの時、核子数個が放出され、標的核である ^{209}Bi の極近くの質量数の核のみが生成する。

入射エネルギーが480MeVになると核内核子と衝突を繰り返して多数の核子をたたき出す。核内ではこの衝突が連鎖して起こる。これを核内カスケードと言う。核内カスケード後に熱平衡の状態となった励起状態の核から、核子や軽核が蒸発して脱励起する[3]。この一連の反応を「核破碎反応(spallation)」と言う。結果的に ^{209}Bi からやや離れた原子核が多く生成する。また、標的核のおおよそ半分の大きさの核も生成する。この場合は核内カスケード後に「核分裂(fission)」をしている。

入射エネルギーがさらに高くなり、3000MeVに達すると、さらにたたき出す核子の数が増えて、より小さな原子核の生成が増える。また、質量数30以下の小さなフラグメントが多く生成する「フラグメンテーション(fragmentation)」と呼ばれる現象が見られる。

3.2. 光子による核反応

光子による核反応（光核反応）は、初期過程が共鳴的に起こり、核反応の始まりが陽子の核反応と大きく異なる。Fig.3.2に入射光子のエネルギーに対する光核反応断面積の変化を示す。

低エネルギー側に原子核との共鳴を示す大きな断面積のピークが存在する。ピーク的位置は標的により変わり、重い核で12MeVから軽い核で24MeV付近である[5]。これは「巨大共鳴」と呼

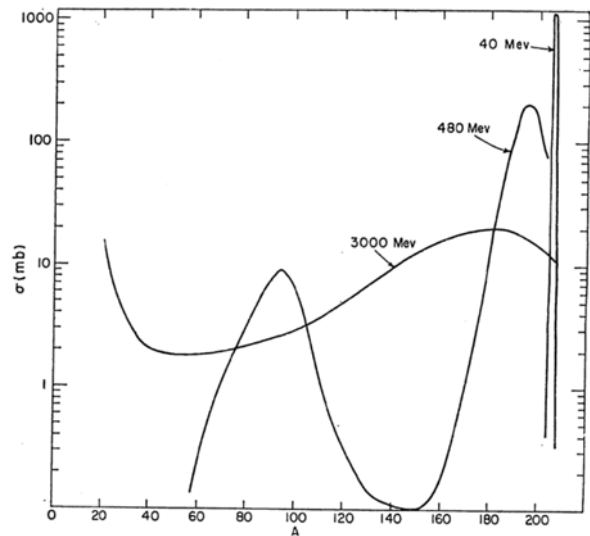


Fig. 3.1 ビスマス標的に陽子を衝突させたときに起こる核反応により生成する核の質量数分布 [2]

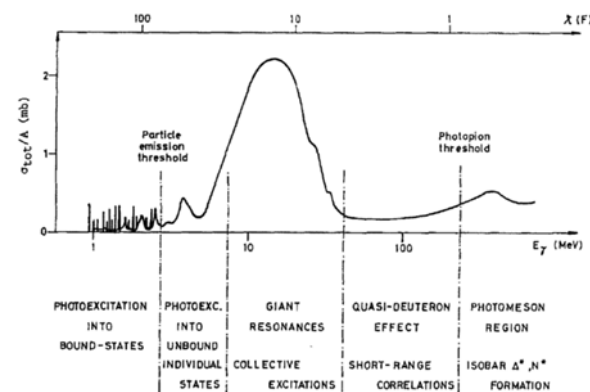


Fig. 3.2 光子のエネルギーに対する全光核反応断面積 [4]

ばれ、 (γ, n) 反応（中性子を一つだけ放出する反応）を大きな断面積で誘起する。

高エネルギー側に目を移すと数百 MeV に核子との共鳴を示すピークが見られる。これは(3,3)共鳴と呼ばれ、入射光子が核内核子の一つに共鳴吸収されて Δ 粒子に励起する反応である。 Δ 粒子はすぐに核子とパイ中間子に壊変し、核内カスケードに発展する。

光核反応は電子加速器の場合に重要である。電子は物質と衝突したときに、「制動放射線」と呼ばれる光子を生成する。制動放射線のエネルギースペクトルは入射電子エネルギーを最大とする連続となる。例として、Schiffの式[6]に基づいて計

算した 1000MeV 電子を薄い白金に照射したときに発生する制動放射線スペクトルを Fig.3.3 に示す。電子加速器では、電子ビームが物質と衝突したときに制動放射線が生成する。生成した制動放射線により光核反応が誘起される。

1000MeV 電子を薄い白金に照射して生成した制動放射線を金標的に照射し、起こった光核反応により生成した核の質量数の分布を調べた結果 [7]を Fig.3.4 に示す。巨大共鳴により、 ^{197}Au から一つ中性子が放出されてできる ^{196}Au が高い確率で生成している。核破碎や核分裂は(3, 3)共鳴で起こり、その生成核の分布は Fig. 3.1 の陽子 480MeV の分布と酷似している。(3, 3)共鳴の反応エネルギーを考えると核内カスケード後の反応は陽子を入射したときと似ていると言える。

3.3. 中性子による核反応

エネルギーが高くなれば陽子による核反応とは大きく違わない。中性子の場合に重要なのは 0~1keV のエネルギーの低い中性子で、クーロン障壁の影響がないため、大きな断面積を持つ中性子捕獲反応 ((n, γ) 反応) が起こる。加速器施設

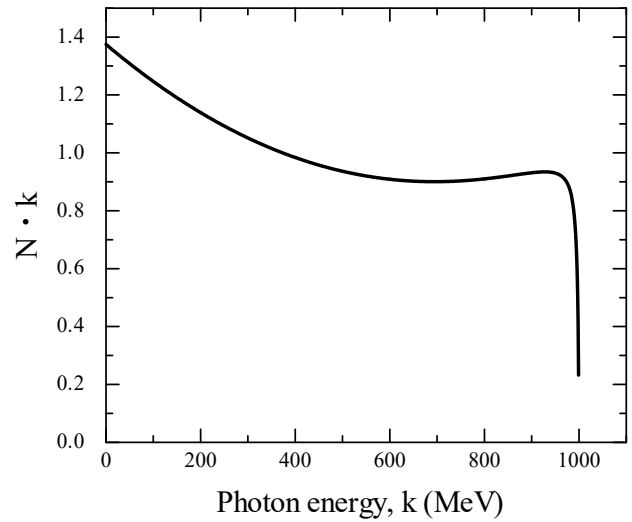


Fig. 3.3 Schiff の式[6]に基づいて計算した 1000MeV 電子を薄い白金に照射したときに発生する制動放射線スペクトル

では二次粒子として生成した中性子が物質を透過中に減速され、中性子捕獲反応で放射性核種を生成する。代表的なものとして、コンクリート中で起こる $^{151}\text{Eu}(n, \gamma)^{152}\text{Eu}$ 反応がある。

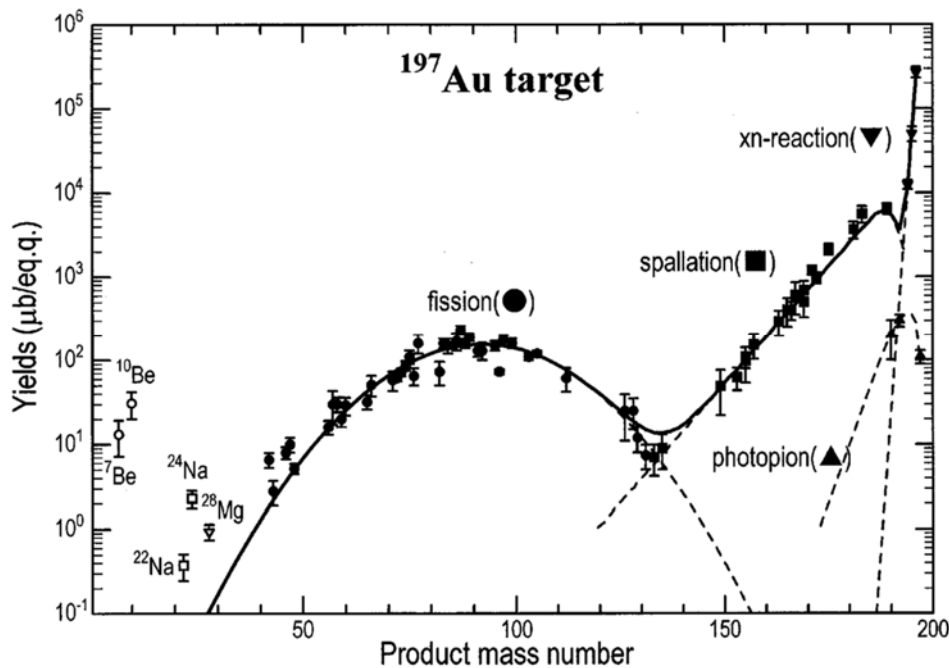


Fig. 3.4 1000MeV 電子の制動放射線による金の核反応生成核の生成率の質量数分布 [7]

4. ガンマ線検出器

4.1. 加速器施設でのガンマ線測定

加速器施設の放射化による生成放射性核種の内、放射線管理上重要なものは、主にガンマ線放出核種である。ガンマ線測定には、ガンマ線放出核種が核種に固有のガンマ線を放出することから、核種分析のためにはガンマ線のエネルギースペクトルを測定できる検出器が有効である。特に、エネルギー分解能が高い LaBr_3 シンチレーション検出器やゲルマニウム半導体検出器が用いられる。加速器室に持ち込んで直接測定するポータブルタイプと環境からの放射線を鉛で遮蔽して試料を遮蔽体内に設置して測定する据え置きタイプがある。用途によって使い分けをする。



Fig. 4.1 LaBr_3 シンチレーション検出器

4.2. LaBr_3 シンチレーション検出器

Fig.4.1 に LaBr_3 シンチレーション検出器の写真を示す。エネルギー分解能は、ゲルマニウム半導体検出器には及ばないが従来使われていた NaI シンチレーション検出器よりも良い。ゲルマニウム半導体検出器のように液体窒素による冷却が必要ないので、使いたいときにすぐに使用できる。加速器施設のビームラインに持ち込む検出器としては大変使い勝手が良い。



Fig. 4.2 ポータブルゲルマニウム半導体検出器

4.3. ゲルマニウム半導体検出器

Fig.4.2 にポータブルゲルマニウム半導体検出器の写真を示す。エネルギー分解能が高く、核種の同定を行うには最も適している。しかしながら、液体窒素を入れるデュアールがあり、加速器室に持ち込んで手で持ち続けるにはやや重い。液体窒素を補給してから使用できるまでに時間がかかり、突発的な測定対応には不向きである。また、線量が高い場では正常に動作しない欠点もある。

Fig.4.3 に低レベル放射能測定用ゲルマニウム半導体検出器の写真を示す。放射能レベルの低い放射化した試料を測定する場合は、写真のように鉛の遮蔽体で環境からの放射線を遮蔽してバックグラウンドを下げて測定する。一般にゲルマニウム半導体検出器は単独で使用する。



Fig. 4.3 低レベル放射能測定用
ゲルマニウム半導体検出器

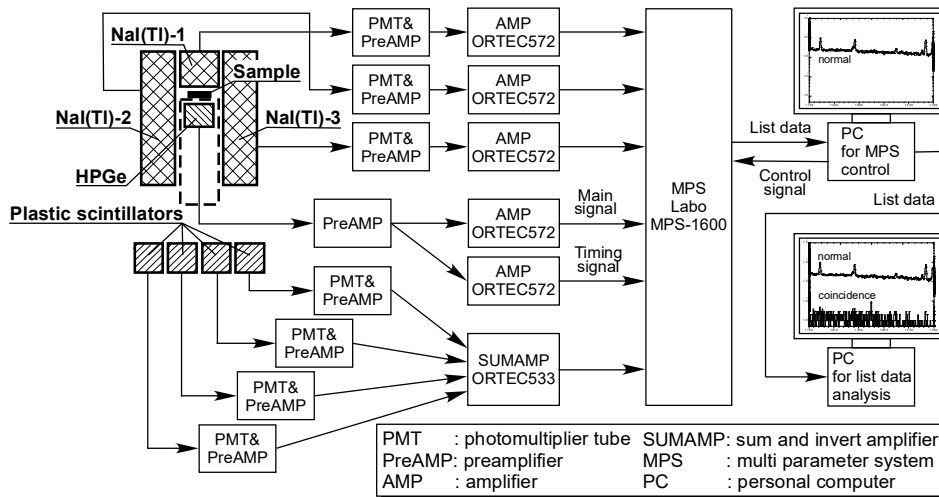


Fig. 4.4 KEK の低レベル放射能測定用ゲルマニウム半導体検出器のシステム図 [8]

KEKにあるゲルマニウム半導体の内の1台 (Fig.4.3の写真的検出器)は、3台のNaIシンチレーション検出器と4台のプラスチックシンチレーション検出器を組み合わせ、より低レベルの放射能の試料の測定を可能にしている [8]。Fig. 4.4に示すようにゲルマニウム半導体検出器を囲むように3台のNaIシンチレーション検出器が配置されている。実際に測定したガンマ線スペクトル図を Fig.4.5に示す。(a)~(c)の各図の上側が単独で測定されたスペクトル、下側がNaIシンチレーション検出器との同時計数されたシグナルとの解析により抽出されたスペクトルである。バックグラウンドに隠れて検出できていなかったガンマ線ピークが抽出後のスペクトルでは測定できている。以降で紹介する測定データのいくつかは、この測定法で得ることができた。

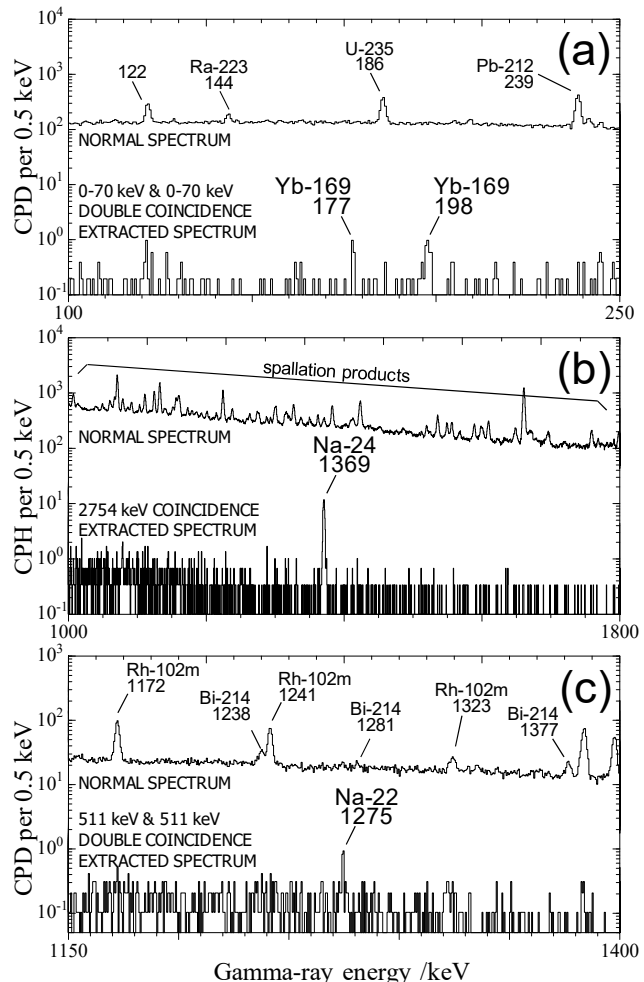


Fig. 4.5 KEK の低レベル放射能測定用ゲルマニウム半導体検出器で測定したスペクトル例 [8]

5. 加速器の放射化

5.1. 二次粒子の生成

加速器において、直接ビームが当たる場所は限られる。加速器施設全体を考えると広範囲に広がる二次粒子による放射化がむしろ重要である。

Fig.5.1 と Fig.5.2 に KEK の 12GeV 陽子加速器のニュートリノターゲットステーション内の 9 か所における二次粒子のスペクトルを示す[9]。全方向に渡って核反応を引き起こすことができる高エネルギーの二次粒子（陽子、中性子、パイ中間子）が到達している。また、前方になるほど（この場合は 9 番に向かって）エネルギーの高い粒子が到達し、激しい反応を起こすことがわかる。

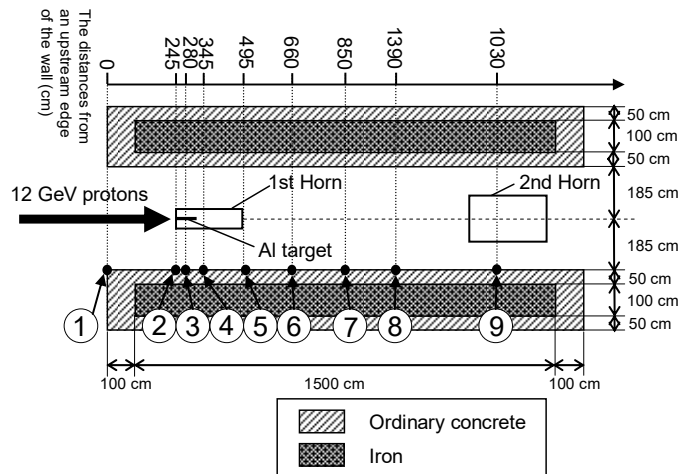


Fig. 5.1 KEK の 12GeV 陽子加速器
ニュートリノターゲットステーション平面図 [9]
丸囲み数字は、Fig. 5.2 のスペクトルの
右上方の数字に対応

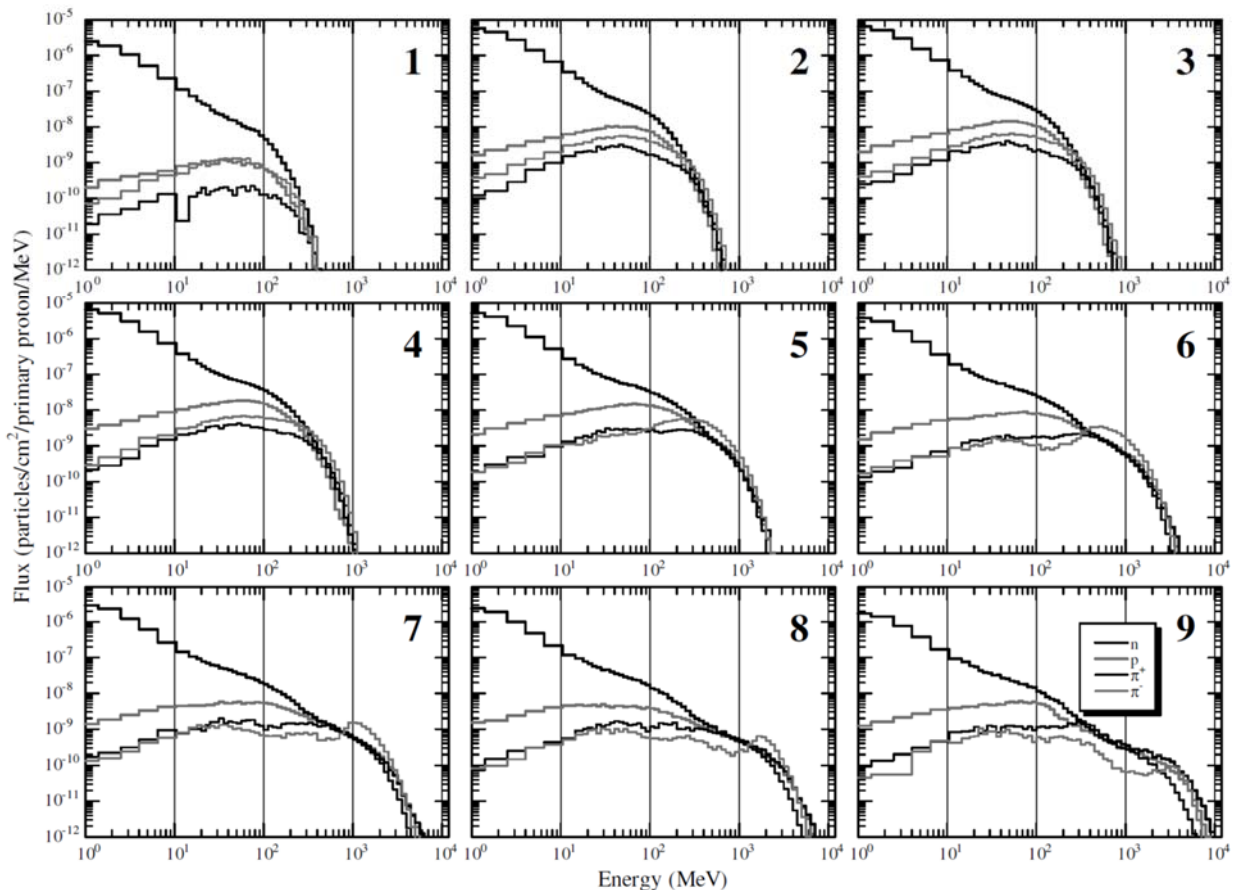


Fig. 5.2 KEK の 12GeV 陽子加速器ニュートリノターゲットステーションの
内壁における二次粒子のエネルギースペクトル [9]
右上方の数字は Fig. 5.1 の丸囲み数字位置に対応

5.2. ビームラインの放射化の実際

実際のビームラインの放射化の例を、12GeV 陽子加速器 EP1 ビームラインを例に紹介する。Fig.5.3 に運転を停止した翌日の EP1 ビームラインの電磁石等の表面線量率の測定結果を示す。数字は mSv/h 単位の線量率で、放射化の度合いと対応する。

黒矢印の位置に 2 つの標的があり、それぞれ標的表面上で 170mSv/h と 150mSv/h と非常に高い線量率を観測している。この図ではビームの進行方向は左から右であり、ビームの進行方向に対して標的の奥側の電磁石もまた強く放射化して高い線量率を示している。

また、ビームライン全体で放射化が見られる。これはビーム輸送中に意図せず起こるビームロスが各所であることを示しており、必ずしも標的だけを二次粒子の発生源として考えれば良いというわけではないことがわかる。

ビームラインで生成した二次粒子は、遮蔽体であるコンクリート壁、電磁石を冷却する水、加速器室の照明器具等も放射化する。これらは 6 章以降に解説する。

5.3. 電磁石の放射化

ビームラインには多くの電磁石があり、それら電磁石は二次粒子により放射化する。Fig.5.4 及び Fig.5.5 に KEK の 12GeV 陽子加速器で使用歴のある電磁石の表面線量率を測定した結果の例を示す。ビームに近いビームダクト周辺の表面線量率が高く、強く放射化していることを示す。電磁石側面も放射化しており、二次粒子が鉄を透過して放射化を起こしていることがわかる。5.1 節で示した通り、二次粒子の生成方向は前方に強くなるため、上下流で放射化の度合いが異なる。

電磁石の場合は、放射化で生成する主要な放射性核種は ^{54}Mn (半減期 312.3 日) と ^{60}Co (半減期 5.2714 年) である。電磁石は鉄が主な素材であり、 ^{54}Mn は鉄の核破砕反応で、 ^{60}Co は不純物のコバルトの熱中性子捕獲反応により生成すると考えられる。

EP1 ビームラインは 2005 年にシャットダウンしている。シャットダウン当初は一般に ^{54}Mn の放射能が ^{60}Co の放射能よりも高かったが、10 年以上経った現在では ^{60}Co の放射能の方が高い。 ^{60}Co は半減期が長いので減衰には時間を要する。

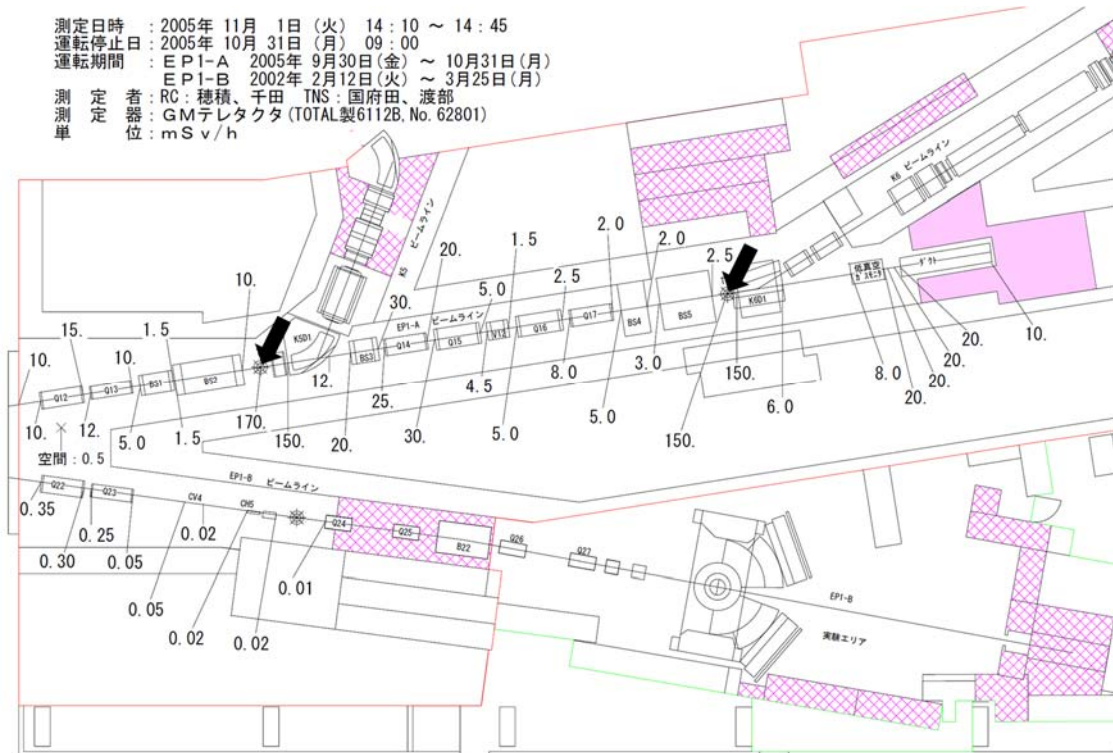


Fig. 5.3 KEK の 12GeV 陽子加速器 EP1 ビームラインにおける
 運転終了翌日の線量測定結果の例
 黒矢印は標的を示す

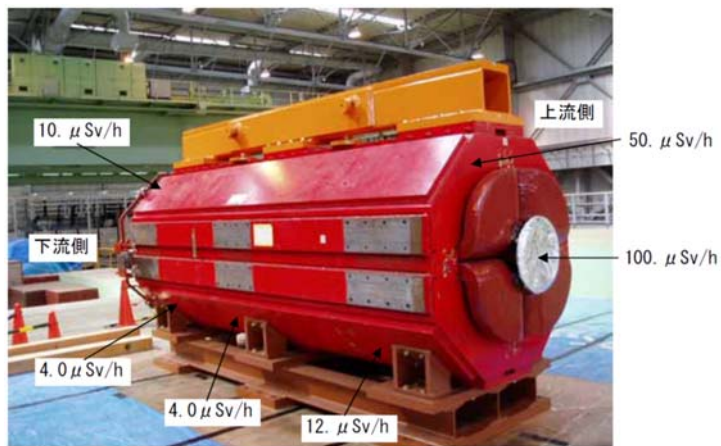


Fig. 5.4 KEK の 12GeV 陽子加速器の電磁石の表面線量率の測定結果例 1

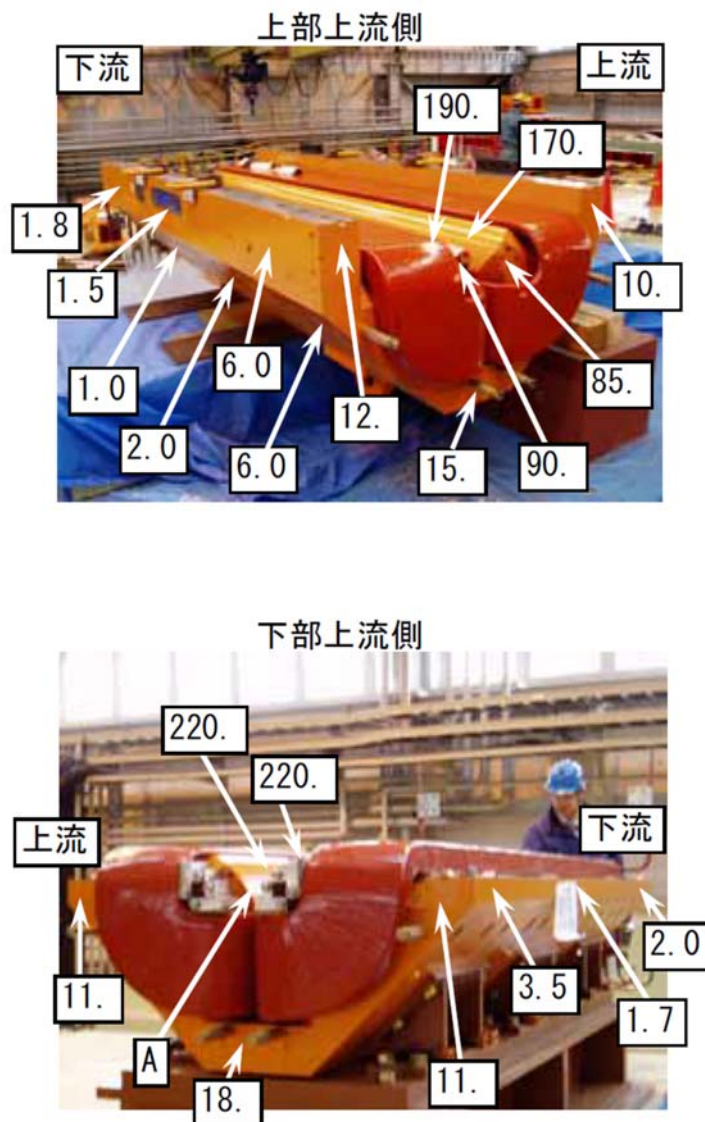


Fig. 5.5 KEK の 12GeV 陽子加速器の電磁石の表面線量率の測定結果例 2

6. 遮蔽コンクリートの放射化

加速器は運転中に発生する放射線を遮蔽するために鉄やコンクリートで遮蔽されている。また、遮蔽を兼ねた加速器室の壁は一般にコンクリート造である。コンクリートは発生した二次粒子で放射化するが、その表面線量率は高くなり、加速器室へ人が立ち入る時に、放射化コンクリートからの放射線で外部被曝が問題になることは

少ない。しかしながら、コンクリートの放射化は加速器施設を廃止するとき問題になる。加速器室を廃止する際にコンクリート壁が基準値よりも放射化していれば放射性廃棄物としての取り扱いが必要となる。

日本の様々な種類の加速器の加速器室のコンクリート壁中の放射性核種の分布が調べられた [10]。Fig.6.1~Fig.6.4 に加速器室のコンクリート

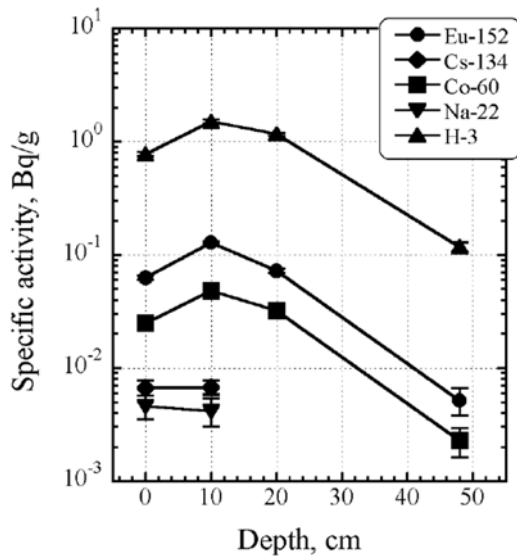


Fig. 6.1 東京大 SF サイクロトロン
の加速器室のコンクリート壁中の
放射能濃度の深度分布 [10]

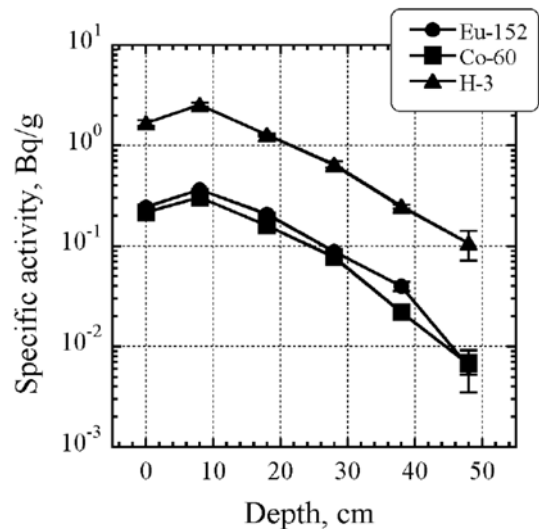


Fig. 6.3 東北大 300MeV 電子ライナック
の加速器室のコンクリート壁中の
放射能濃度の深度分布 [10]

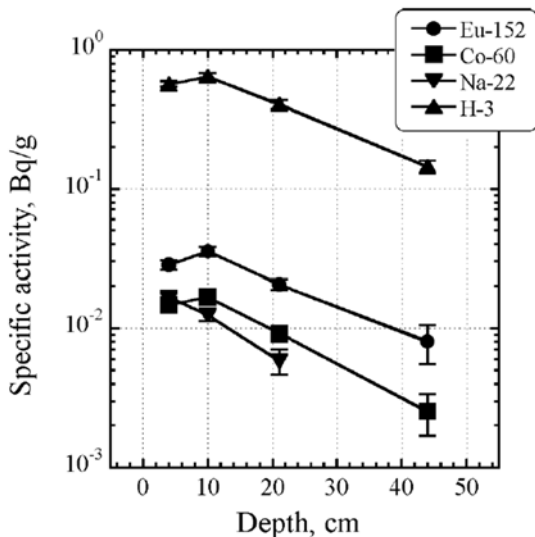


Fig. 6.2 東京大核研 1.3GeV 電子シンクロトロン
の加速器室のコンクリート壁中の
放射能濃度の深度分布 [10]

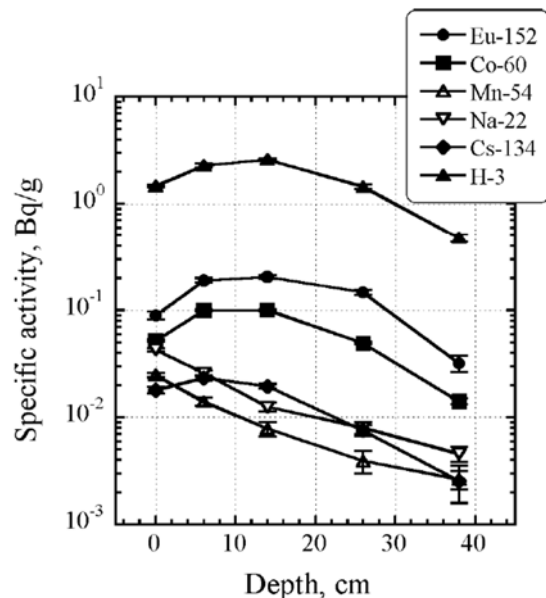


Fig. 6.4 大阪大 AVF サイクロトロン
の加速器室のコンクリート壁中の
放射能濃度の深度分布 [10]

壁中の放射性核種の放射能濃度の深度分布を示す。放射能濃度の高い核種は ^3H (半減期 12.33 年), ^{152}Eu (半減期 13.542 年), ^{60}Co (半減期 5.2714 年), ^{134}Cs (半減期 2.062 年), ^{22}Na (半減期 2.6019 年) である。放射能は表面から約 10cm まで増加し、それ以深では減少に転ずる傾向にある。ケイ素の核破砕により生成する ^{22}Na 以外は熱中性子捕獲反応で生成する核種である。 ^3H は他の放射性核種よりも一桁放射能濃度が高い。 ^3H は $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ 反応で生成し、この断面積が高いためである。

KEK の北カウンターホールには 2005 年にシャットダウンした 12GeV 陽子加速器 EP1 ビームラインがあった。EP1 ビームラインには 2 箇所に標的が設置されていて、この標的が大きなビームロス点になっていた。運転時に標的で発生する二次粒子の遮蔽のために 6m もの鉄とコンクリート

を組み合わせた遮蔽で加速器室が作られており、シャットダウン後の遮蔽体の解体のため、放射性核種の分布を調査することになった[11]。

Fig.6.5 に EP1 ビームラインのコンクリート壁中の放射性核種の放射能濃度の深度分布の例を示す。6m もあるコンクリート全体に渡って放射性核種が検出された。高エネルギーの二次粒子が多く発生するこの施設では、 ^{22}Na (半減期 2.6019 年) や ^{54}Mn (半減期 13.542 年) の核破砕反応による生成核種が高い放射能で生成していた。特に Fig.6.6 に示したように ^{22}Na の放射能の割合が非常に大きいことがわかった。シャットダウンから 10 年以上経ち、現在ではガンマ線放出核種の中で ^{152}Eu が最も高い放射能の核種となっている。依然として放射能濃度が高く、遮蔽体の解体の目途は立っていない。

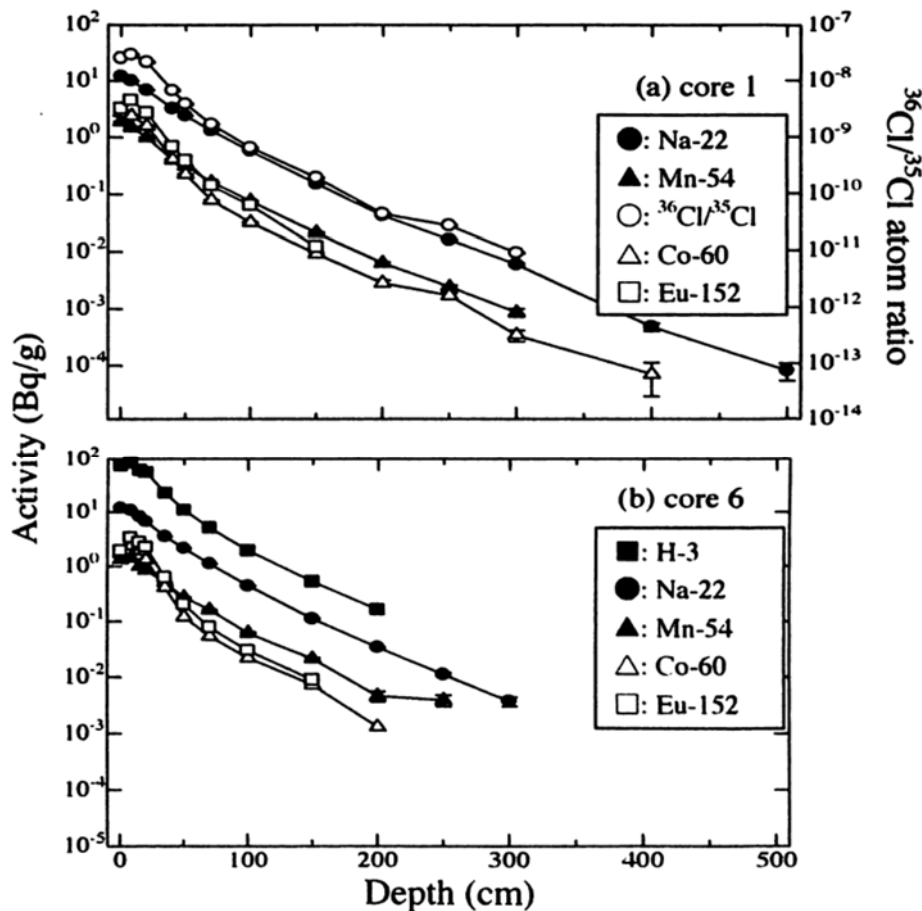


Fig. 6.5 KEK の 12GeV 陽子加速器 EP1 ビームラインの加速器室のコンクリート壁中の放射能濃度の深度分布 [11]

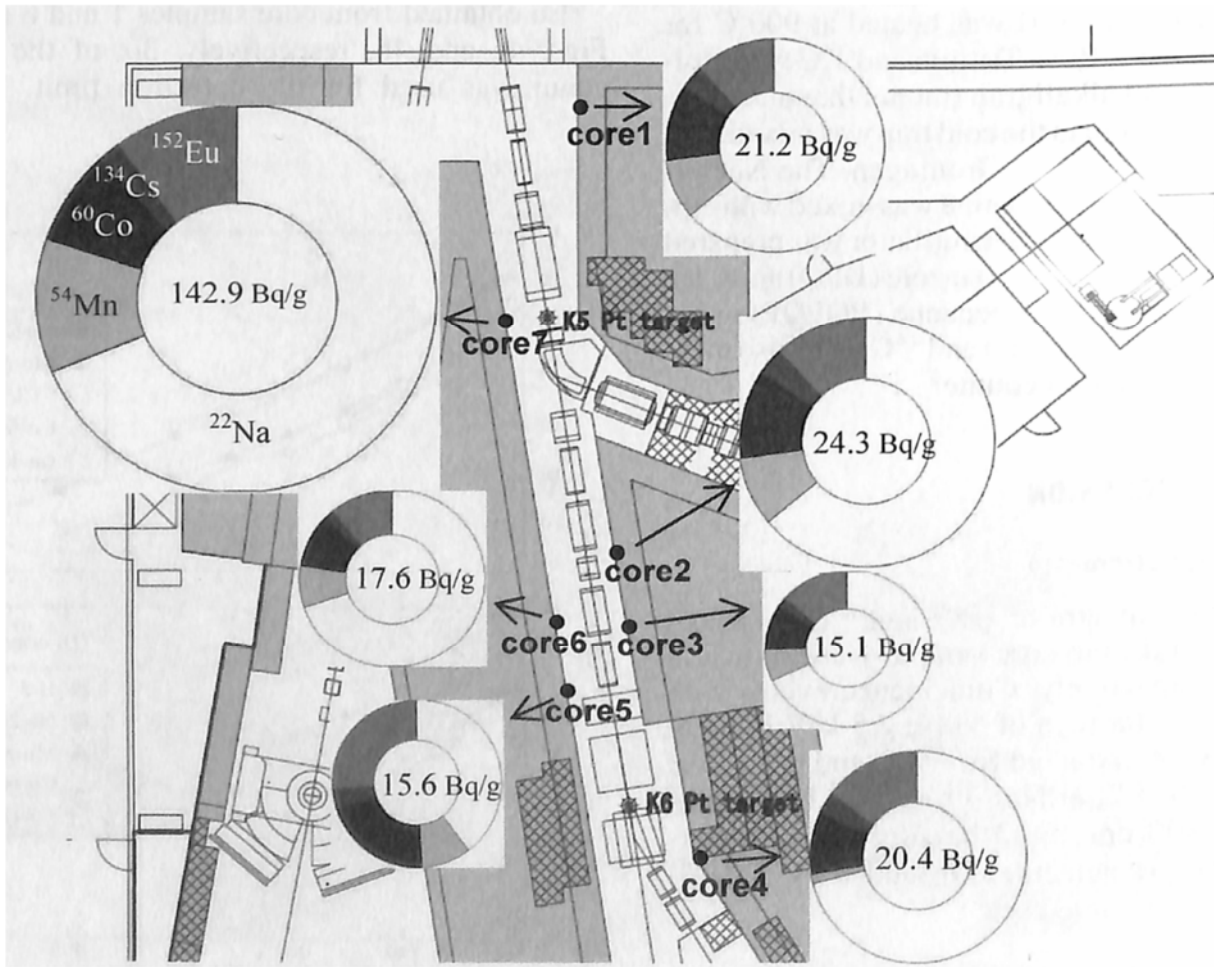


Fig. 6.6 12GeV 陽子加速器 EP1 の加速器室のコンクリート壁表面中のガンマ線放出核種の放射能の割合 [11]

7. 照明器具の放射化

7.1. 加速器施設における照明器具の現状

加速器施設内には、加速器室内を照らす証明器具として蛍光灯が設置されている。蛍光灯は数年で寿命がきて、切れる都度新品との交換を行う。蛍光灯は加速器運転中に二次粒子にさらされて、二次粒子の強度によっては放射化される。よって、使用済みの蛍光灯は放射性廃棄物となることがある。放射化した蛍光灯を RI 協会が廃棄物として引き取りを行わないために事業所で蓄積されて行く。大きな加速器施設では蛍光灯の数が大量となり、その分廃棄物の蓄積量も大きい。放射化の軽減、代替え物の検討が課題となっている。

7.2. 照明器具の放射化及び耐久性の試験

蛍光灯には普通形と3波長形があり、使われている物質が異なる。また、近年、蛍光灯に比べて長寿命で低消費電力である発光ダイオード(LED)照明が普及してきている。廃棄物の減容を考えたときにどの照明を選択するのが有利であるのかを検討しておく必要があった。そこで、二次粒子強度の比較的高い4つの異なる加速器室内で各種蛍光灯及びLED照明を二次粒子にさらし、放射化と照明としての耐久性を調べる実験が行われた[12]。

Table 7.1 にこの実験で使われた蛍光灯及びLED照明の一覧を示す。同じメーカーでも光源色の色温度が異なる製品が出ているので、同じメーカーで様々な型番のものが用意された。蛍光灯及びLED照明中に生成した放射性核種とその放射能の測定結果を Fig.7.1 に示す。放射能は照射終了後25日後の値である。照射は Fig.7.1 の(a), (b), (c) が米国フェルミ加速器研究所(FNAL)の120GeV陽子加速器の施設において行われた。(d) は獨協医科大サイクロトロンで、18MeV陽子運転中に加速器室内において二次粒子を照射した。

二次粒子照射25日後において、普通形蛍光灯と3波長形蛍光灯の共通の生成核種として ^{124}Sb (半減期60.20日)が強い放射能で検出された。これはガラスに含まれる ^{123}Sb の熱中性子捕獲によ

Table 7.1 二次粒子照射試験を行った蛍光灯とLED照明の一覧[12]

Lamp type	Model name	Color temperature	Manufacture
Fluorescent lamp (normal)	F15T8/CW	4100 K	General Electric
	F15T8/KB	3000 K	General Electric
	F15T8/PL/AQ	3100 K	General Electric
	FL10D	6500 K	MEO*
	FL10N	5000 K	MEO*
	FL10W	4200 K	MEO*
Fluorescent lamp (three-wavelength)	FL10EX-N TT	5000 K	MEO*
	FL10EX-D TT	6700 K	MEO*
	FL10ENXF	5800 K	MEO*
	FL10EDXF	8000 K	MEO*
LED lamp	LTL-10W	4600 K	OnWave Corp.
	LTL-10L	3000 K	OnWave Corp.
	EH33-T78	5500-6000 K	e-half Co., Ltd
	MWT-10SMD-CL	6500-7000 K	BLUE WING Inc.

*MITSUBISHI ELECTRIC OSRAM Ltd.

り生成する。普通形蛍光灯の場合はこの ^{124}Sb が主な放射性核種であるが、3波長形では他の核種がさらに強い放射能で検出されている。 ^{152}Eu (半減期13.542年)と ^{160}Tb (半減期72.3日)である。3波長形蛍光灯には希土類元素の蛍光体が使われており、 ^{151}Eu と ^{159}Tb の熱中性子捕獲反応により生成する。特に半減期の長い ^{152}Eu の生成は、保管中の放射能減衰も期待できない。

Fig.7.1 の(c)の加速器室では高エネルギーの二次粒子が他の加速器室よりも多い。ガラスに含まれる酸素とケイ素の原子核の核破碎反応で ^7Be (半減期53.29日)と ^{22}Na (半減期2.6019年)が生成している。放射化には光源色の色温度による大きな違いは見られなかった。これらから蛍光灯については、普通形の方が3波長形よりも放射化という観点では優れているという結果が得られた。

LED照明の場合は、生成する放射性核種が蛍光灯と異なっている。また、製品による違いも見られる。生成するのは半減期が1年よりも短い放射性核種がほとんどであり、蛍光灯よりも生成放射能が低く、放射化の観点ではLED照明は蛍光灯を凌駕する。しかしながら、点灯試験では照射後のほとんどの蛍光灯が正常に点灯したにもかか

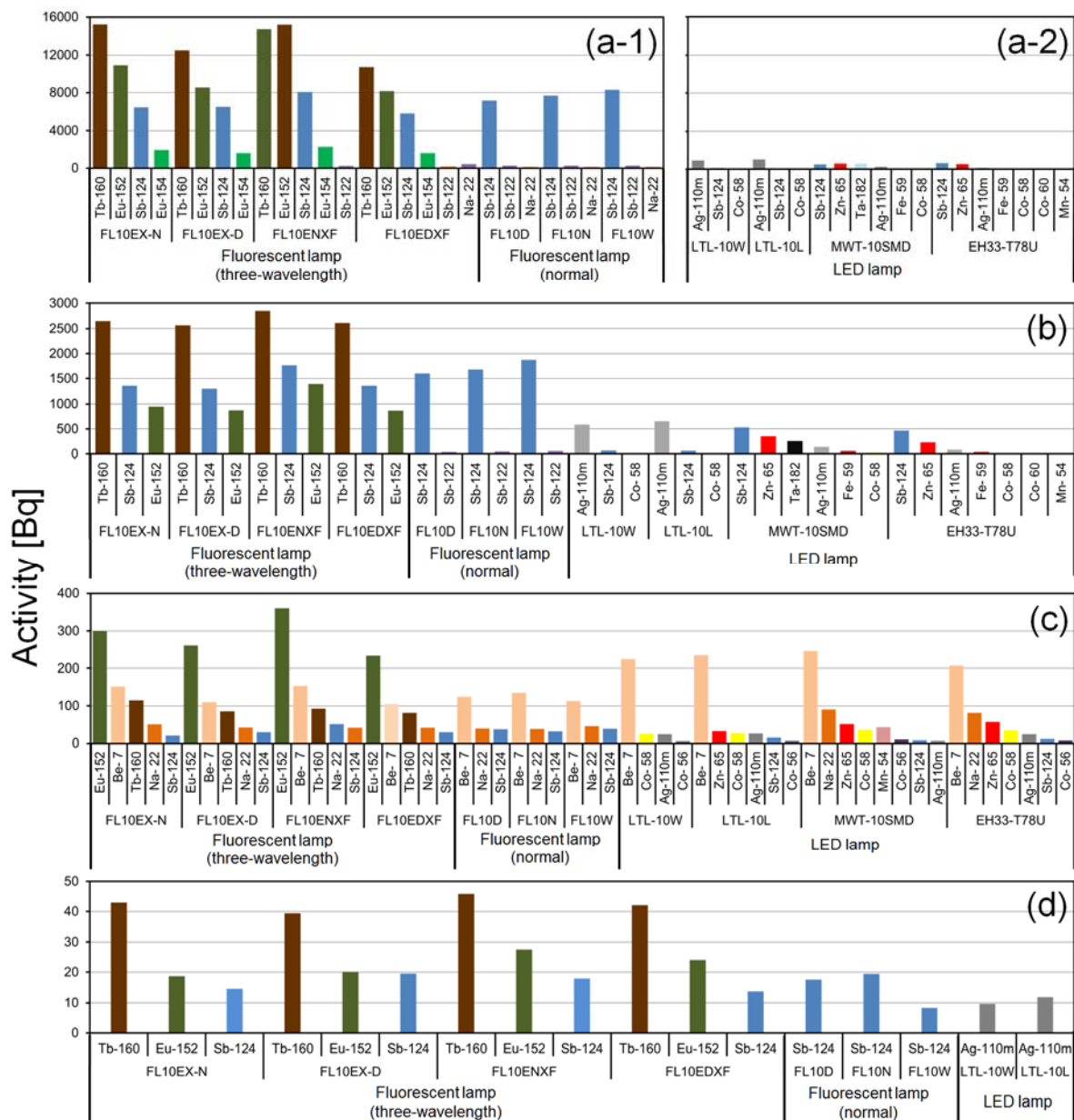


Fig. 7.1 加速器室において二次粒子を照射した蛍光灯及びLED 照明中に生成した放射性核種とその放射能 [12]

放射能は照射終了 25 日後の値。

照射場所は, (a): 米国 FNAL NuMI Hadron absorber 横,

(b): 米国 FNAL Main injector ビームライン横,

(c): 米国 FNAL NuMI Alcove-1,

(d): 獨協医科大サイクロトロン室。蛍光灯の詳細は Table 7.1 を参照。

ならず, 多くの LED 照明では, 点灯しなかったり異常が見られたりした。熱・熱外中性子フルエンスが $9.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ を超えると放射線の影響による異常が見られた。これらから, LED 照明は加

速器室で使用するには不向きであり, 普通形蛍光灯が最も適していると結論される。しかしながら, 今後, 社会的に蛍光灯の使用が困難になるため, 照明に関してさらなる検討が必要である。

8. 冷却水中の放射性核種

8.1. 冷却水中の放射性核種の管理の重要性

高エネルギー陽子加速器では、ビームを収束・誘導するための電磁石や粒子を発生させる標的など様々な機器が取り付けられている。これらの機器は、発熱するために、循環水で冷却して温度をコントロールしている。Fig.8.1 に高エネルギー加速器の機器の冷却水配管の例を写真中の白矢印で示す。加速器運転中はこれら配管を通して常時水が循環している。

機器近くでビームロスが起これると二次粒子が発生し、水やそれが流れている配管等が放射化する。水の構成元素である酸素の原子核が破碎されて 7Be やトリチウムなどの放射性核種が生成し、また、配管等では銅など金属の原子核が破碎されて放射化する。金属中で生成した放射性核種は、核破碎反応での生成時に運動エネルギーを得ていて、水と接する金属の極表面では水中に放出される。また、金属中にとどまっていたとしても、長期的には腐食により水中に溶け出すことになる。結果として、冷却水中には様々な放射性核種が存在することになる。冷却水は定期的に排水する。しかしながら、放射能濃度が基準値よりも高いと排水できない。したがって、冷却水中の比較的半減期の長い放射性核種の除去は、放射線管理上、重要な事項の一つである。近年、高エネルギー化や高強度化が進む加速器施設において、冷却水中の放射性核種のコントロールはますます重要になってきている。

8.2. イオン交換樹脂塔による放射性核種の除去

一般的に、冷却水の化学的純度を高く保持するために、冷却水システムにはイオン交換樹脂塔が設置されている。冷却水をイオン交換樹脂塔に通し、イオンをイオン交換樹脂に吸着させることで純度を高く保っている。Fig.8.2 にイオン交換樹脂塔でのイオンの吸着除去の概念図を示す。イオン交換樹脂塔に冷却水を通すときに、冷却水中に存在する放射性核種もイオン交換樹脂に吸着させて除去することも同時に期待している。



12-GeV p Acc., Transport magnets (KEK, Japan)



12-GeV p Acc., Magnetic horns (KEK, Japan)



120-GeV p Acc., Collection lens (Fermilab, USA)

Fig. 8.1 高エネルギー加速器の機器の冷却水配管の例 (白矢印)

加速器の冷却水システムの例として、Fig.8.3にKEKのニュートリノビームラインのK2K標的&電磁ホーン冷却水システムを示す。タンクからの水を2つの電磁ホーンに分岐して送り、循環させて冷却に使用する。この冷却水システムはイオン交換樹脂塔を通る経路も有しており、イオン交換樹脂塔に冷却水を通すことで化学的純度を保つことと放射性核種の除去を行う。

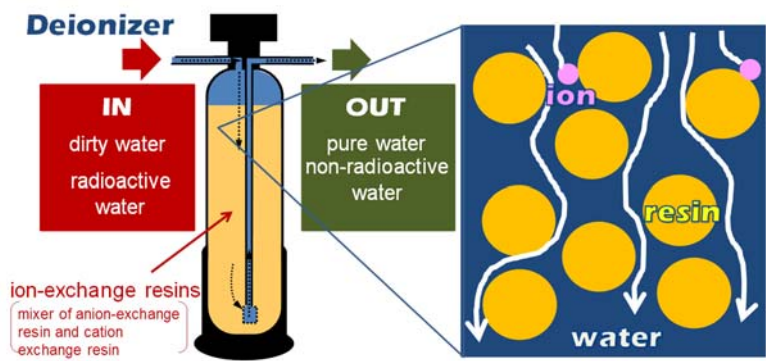


Fig. 8.2 イオン交換樹脂塔でのイオンの吸着除去の概念図

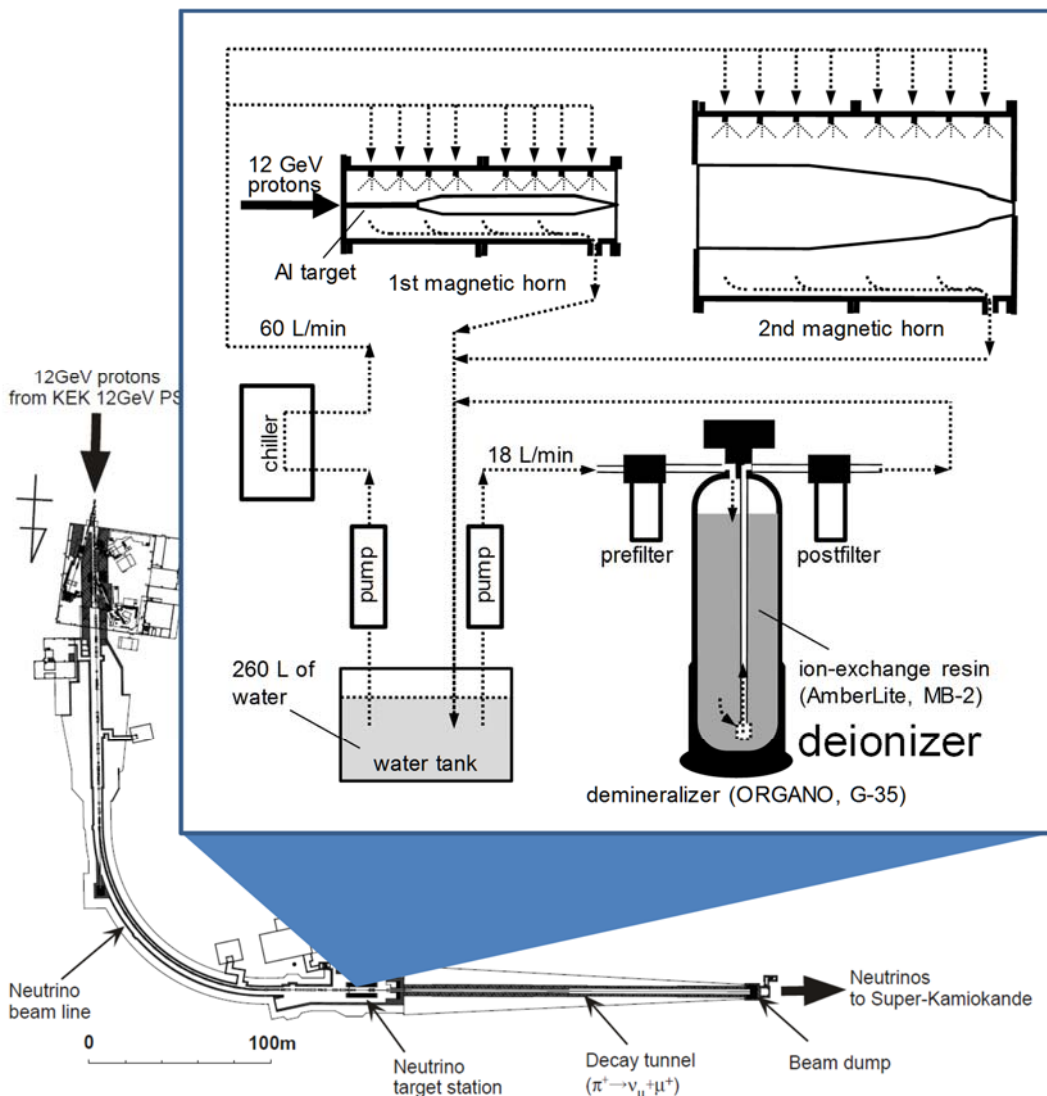


Fig. 8.3 KEKのニュートリノビームラインにおけるK2K標的&電磁ホーンの冷却水システム[13]

K2K プロジェクト終了してから 2 年半後に、K2K 標的&電磁ホーン冷却水システムのイオン交換樹脂塔に吸着していた放射性核種とその放射能を調査した[13]。結果の一覧を Table 8.1 に示す。放射能は運転終了時の値に換算してある。調査時には既に 2 年半経過しているために短半減期の核種は検出されていない。水分子中の酸素の核破砕で生成する ^7Be の放射能が最も高く、標的と電磁ホーンの主素材であるアルミニウム合金由来の ^{22}Na が次いで高い。その他、予想していなかったことであるがマイナー物質である銅メッキ由来の ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{60}Co と銀メッキが由来の ^{88}Y , $^{101\text{g}}\text{Rh}$, $^{102\text{m}}\text{Rh}$, $^{110\text{m}}\text{Ag}$ が高い放射能で検出された。この多種類の放射性核種の検出は、冷却水中の放射能抑制には、冷却水と接する物質にも細心の注意が必要であることを示しており、この結果は、のちの K2K 実験のパワーアップ版である T2K 実験の冷却水システムに生かされた。

一方で放射性核種の除去が完全ではないという証拠も見つかった。Fig.8.4 に K2K 標的&ホーン冷却水システムのイオン交換樹脂塔における放射性核種の吸着分布を示す。大きく分けて 3 つ

Table 8.1 K2K 標的&ホーン冷却水システムのイオン交換樹脂塔に吸着していた放射性核種とその放射能 [13]

Nuclide	Half-life	Activity
Be-7	53.29 d	0.7 GBq
Na-22	2.0919 y	57 MBq
Mn-54	312.3 d	3.7 MBq
Co-57	271.79 d	4.2 MBq
Co-60	5.2714 y	1.2 MBq
Y-88	106.65 d	4.2 MBq
Rh-101g	3.3 y	0.9 MBq
Rh-102m	2.9 y	1.1 MBq
Ag-110m	249.79 d	1.5 MBq

のパターンがあることがわかった。(a)と(b)の分布は、イオンの吸着を示すバンド構造を示したが、(c)はイオン交換樹脂塔全体に分布し、吸着が不完全で流れてしまっていることがわかる。

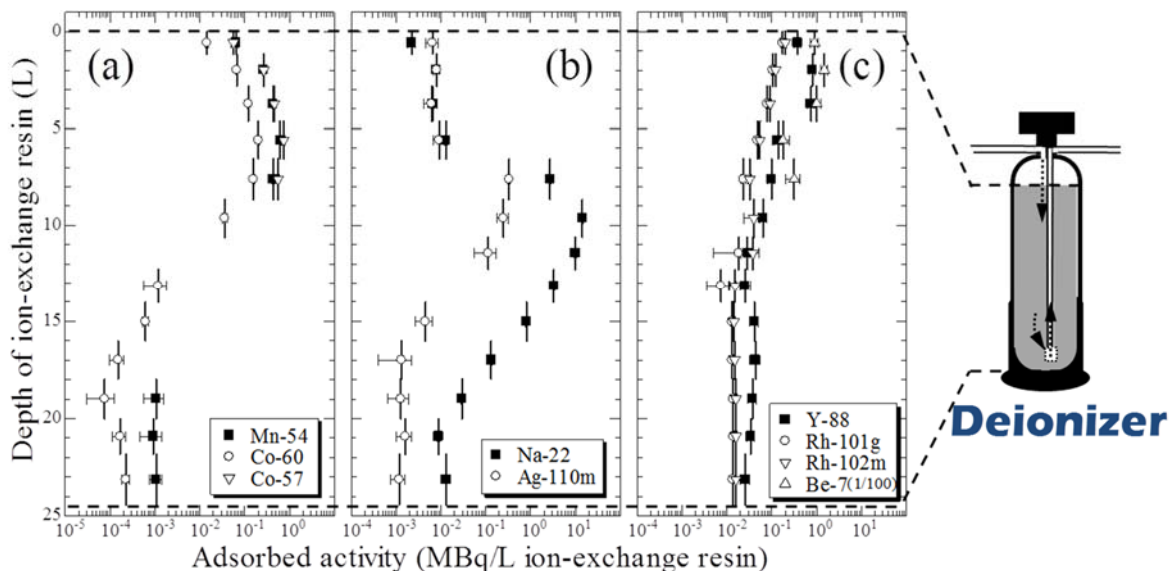


Fig. 8.4 K2K 標的&ホーン冷却水システムのイオン交換樹脂塔における放射性核種の吸着分布[13]

8.3. 冷却水中の放射性核種

米国 FNAL において、120GeV 陽子加速器の冷却水中の放射性核種の調査が行われた[14, 15]。調査された冷却水システムを Fig. 8.5 に示す。これらは、イオン交換樹脂塔の有無、冷却水と接している物質、水量等、条件が異なる 8 つの冷却水システムである。運転終了直後に採水し、水中の放射能濃度が測定された。

Table 8.2 に冷却水中に検出された放射性核種とその放射能濃度を示す。冷却水と接している物質の種類により冷却水中に検出された放射性核種の種類に大きな違いが見られた。 ^{82}Br , $^{182\text{m}}\text{Re}$, ^{181}Re 等、起源の推測できない放射性核種も検出された。イオン交換樹脂塔を有する冷却水システム(a)~(f)の冷却水では検出された放射性核種の数も放射能濃度もイオン交換樹脂塔を有しない冷却水システム(g)と(h)より少なく、イオン交換樹脂への吸着除去効果が見えている。

放射能濃度を考えると、最も放射線管理上重要となるのは水の酸素が核破砕して生成する ^7Be である。Fig.8.6 に冷却水システム間の ^7Be の放射能濃度の比較を示す。イオン交換樹脂塔を有する冷却水システム(a)~(f)で ^7Be の除去効果により、

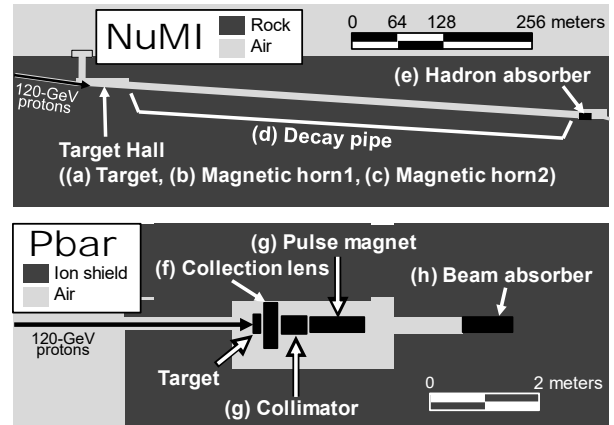


Fig. 8.5 米国 FNAL で調査した冷却水システム [14]

放射能濃度がイオン交換樹脂塔を有しない(g)と(h)よりも低いことがわかる。Table 8.2 の ^7Be 残留率を見ると、冷却水システム(g)と(h)において約 5%であり、これはイオン交換樹脂塔を有しなくても約 95%は冷却水中からなくなっていることを示している。こちらは配管等の内壁にかなりの割合で吸着しているものと考えられる。より重要なのはイオン交換樹脂塔を有する冷却水システム(a)~(f)で 0.01%のオーダーで不完全除去のために ^7Be が残留していることである。

Table 8.2 米国 FNAL の冷却水システムの特徴と検出核種、放射能濃度、 ^7Be の水中残留率 (2010 年 12 月または 2011 年 9 月採水試料) [14]

SystemName	Deionizer	Water Contact Materials	Detected Radionuclides and specific activities (Bq/cm ³)*							Residual Rate of ^7Be *	
			^1H	^7Be	^{24}Na	^{52}Mn	^{54}Mn	^{60}Co			
(a) NuMI, Target	Yes	Different grades of stainless steel and brazing material, 305L stainless steel pipe (outside)	2.69k	3.8	0.03	0.005	0.005	0.003		0.02%	
(b) NuMI, Magnetic horn 1	Yes	Nickel coating and anodization should keep water away from 6061 Al alloy horn, 305L stainless steel pipe (outside)	11.3k	2.8k	0.026k	0.017k	0.0118k	0.9	0.04	0.02%	
(c) NuMI, Magnetic horn 2	Yes	Nickel coating and anodization should keep water away from 6061 Al alloy horn, 305L stainless steel pipe (outside)	1.97k	1.07k	3.1	1.9	0.33	0.09	0.006	0.003%	
(d) NuMI, Decay pipe	Yes	Soft copper (on decay pipe), Type K hard copper pipe (outside)	3.96k	1.6	0.010	0.008	0.004			0.06%	
(e) NuMI, Hadron absorber	Yes	Al tube (absorber module)	7.40k	3.5	0.21	0.063				0.06%	
(f) Pbar, Collection lens	Yes	Cu pipe, stainless steel pipe (outside), Ti alloy (lens surface)	9.18k	1.8						0.008%	
(g) Pbar, Pulse magnet and collimator	No	Cu pipe	^1H	^7Be	^{55}Co	^{57}Co	^{54}Mn	^{60}Co	^{56}Co		4%
			25.2k	6.1k	1.18k	0.93k	0.48k	0.35k	0.21k		
			^{65}Zn	^{52}Mn	^{24}Na	^{45}K	^{22}Na	$^{182\text{m}}\text{Re}$	^{181}Re		
			0.096k	0.094k	0.090k	0.09k	0.028k	2.1	2.0		
(h) Pbar, Beam absorber	No	Cu pipe	^1H	^7Be	^{55}Co	^{57}Co	^{54}Mn	^{60}Co	^{56}Co		5%
			18.5k	6.5k	0.60k	0.53k	0.41k	0.34k	0.094k		
			^{45}K	^{24}Na	^{52}Mn	^{22}Na	^{65}Zn	$^{182\text{m}}\text{Re}$	^{181}Re		
			0.059k	0.054k	0.042k	0.033k	0.025k	1.4	1.4		

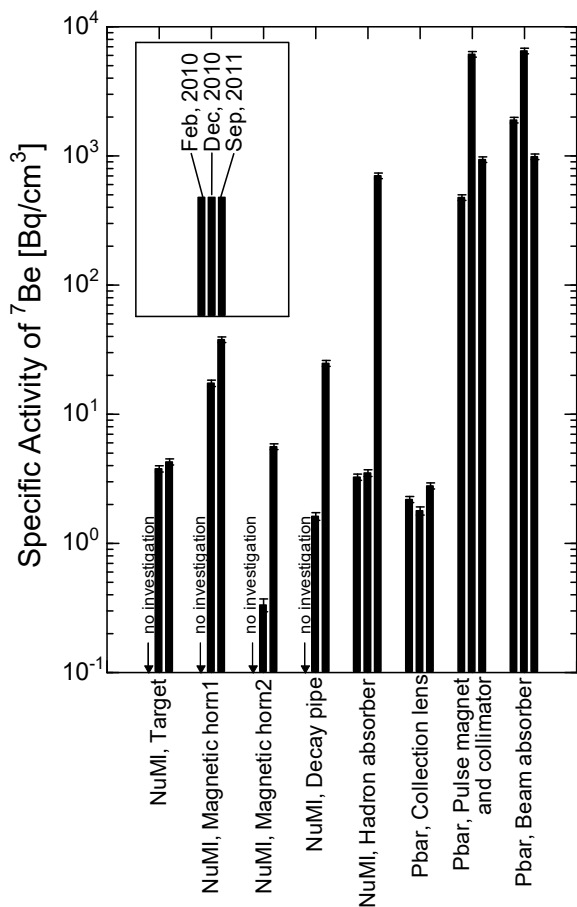


Fig. 8.6 米国 FNAL の冷却水中の ⁷Be 放射能濃度の比較 [15]

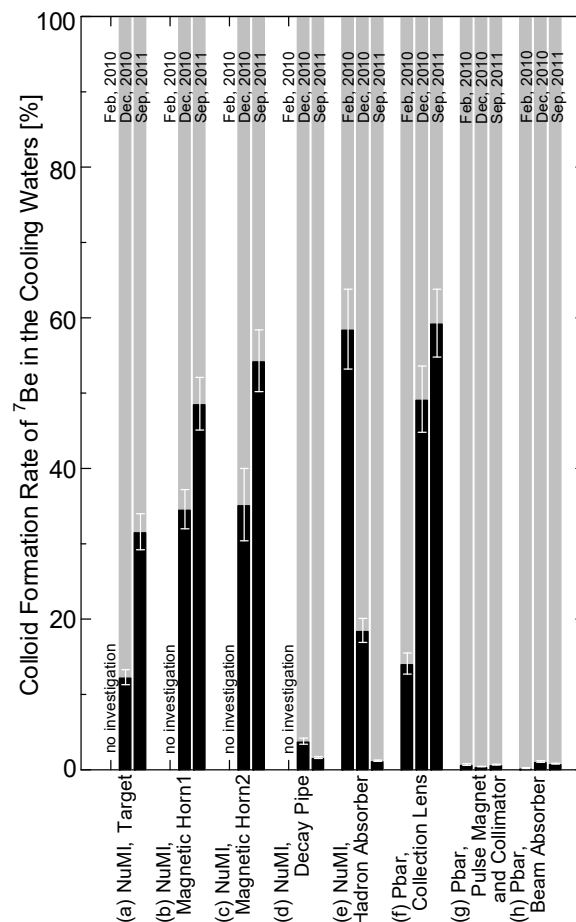


Fig. 8.7 米国 FNAL の冷却水中の ⁷Be のコロイド率の比較 [15]

Fig.8.7 に示すように、イオン交換樹脂塔を有する冷却水システム(a)~(f)で ⁷Be の高いコロイド率が観測された[15]。高いもので 50%を超える。プラスに荷電したナノメートルサイズのコロイドにより、イオン交換樹脂への吸着力が落ちていると結論付けた。

8.4. わかったことのまとめ

- (1) 様々な放射性核種が水や接する金属の核反応により生成し、金属からは腐食よりも基本的に核反応の反跳により水中に放出される。
- (2) 大部分は配管内壁に吸着するかイオン交換樹脂塔を通過時にイオン交換樹脂に吸着して除去される。

(3) 一部は 3~16nm のプラスに荷電した放射性コロイドを生成し、イオン交換樹脂に吸着されずに冷却水中に残る。⁷Be の場合は約 0.01%である。

イオン交換樹脂塔による放射性核種の完全除去にはコロイド生成が妨害になっていることが明らかになった。しかしながら、その対応方法など、まだ研究しなければならない課題が残されている。今後ますます高強度化が進む加速器の施設ではコロイド生成の可能性を十分考慮したうえで、冷却水システムを構築することが肝要である。

9. 放射化を利用した放射線測定の実用例

9.1. ビームロスの見積もり

KEK ではエネルギー回収リニアック(ERL)放射光源に必要な技術を実証するためのコンパクト ERL の開発を行っている。この加速器は大電流の電子加速器(エネルギー20MeV)であるため、発生する放射線を低くするために、ビーム輸送中のビームロスを低く抑える必要がある。現在は1mA 運転を達成し、10mA 運転を目指している[16]。この場合、概ね0.01%以下のビーム損失率にする必要がある。これを達成するには、ビームロスがどこでどれだけ起こっているかを明らかにしなければならない。しかしながら、直接線量を検出する検出器では、長いビームライン上に細かく配置することができず、ビームロスポイントがはっきりとしない。そこで、多く設置可能な金の放射化を使ってビームロスの場所を特定した[17]。

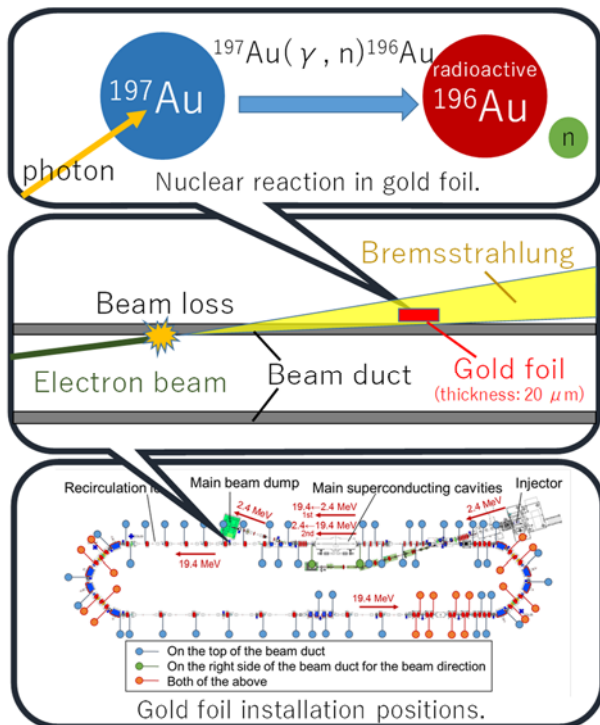


Fig. 9.1 電子ビームのロスによる金の放射化の概念図

Fig.9.1 に電子ビームのロスによる金の放射化の概念図を示す。ビーム輸送中にビームダクトにビームの一部が衝突し、ビームロスが起こる。するとビームダクトでは制動放射線が生成し、制動放射線は主に電子の進行方向に向かう。制動放射線にさらされた金の中では巨大共鳴により光子が吸収されて中性子放出反応が起こる。結果的に半減期 6.183 日の ^{196}Au が生成する。生成した ^{196}Au の相対放射能を見ればビームロスをした場所を特定できる。

約100か所に設置した金の放射能を一つ一つゲルマニウム半導体検出器で測定するには ^{196}Au の減衰を考えると時間が足りない。あらかじめ ^{196}Au しか生成していないことをゲルマニウム半導体検出器で確認しておき、イメージングプレー

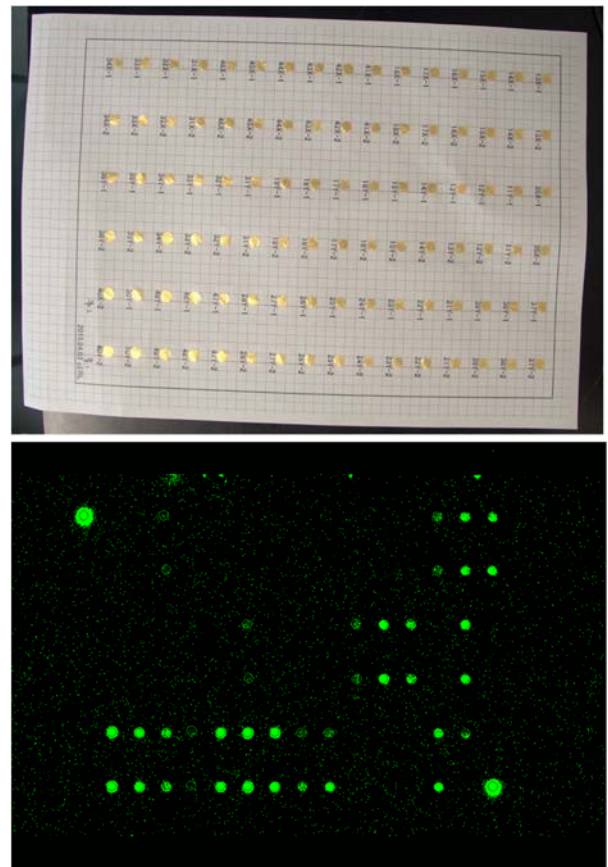


Fig. 9.2 コンパクト ERL のビームダクト上に設置した金箔を台紙に貼ったもの (上) とそのイメージングプレートによる測定画像 (下)

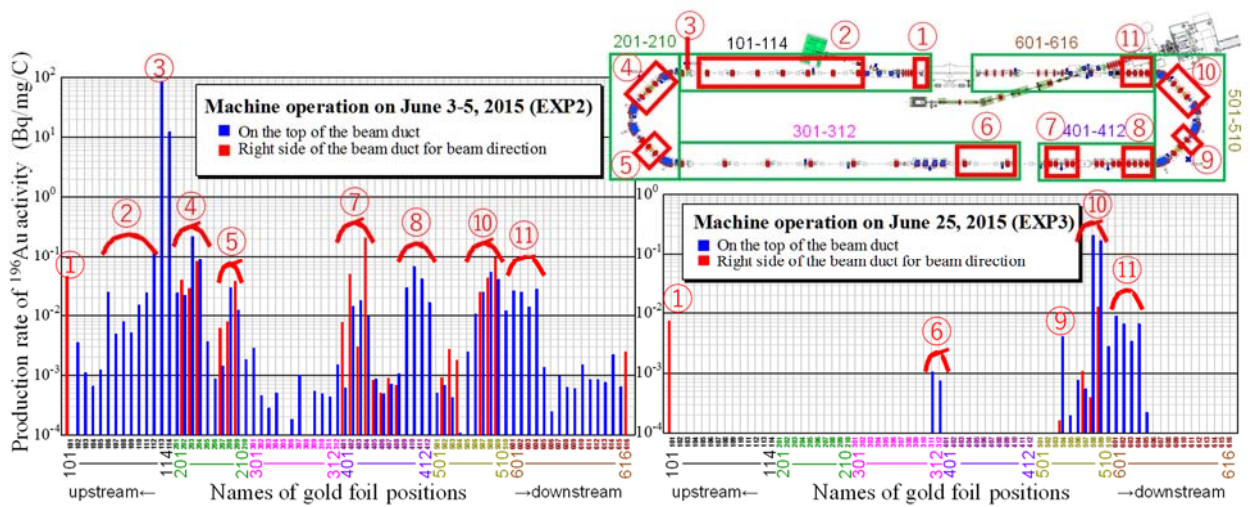


Fig. 9.3 コンパクト ERL に設置した金箔中に生成した ^{196}Au の輸送したビームクーロン数に対する放射能 [17]

トを用いて相対放射能を一度に測定する方法を採用した。イメージングプレートによる ^{196}Au の測定画像を Fig.9.2 に示す。明るく光って見えるところほど放射能が強いことを示し、実際には測定値を輝尽性発光(PSL)強度値として得ることができる。

得られた金中の ^{196}Au 放射能の値の例を Fig.9.3 に示した。左側のグラフでは輸送したビームクーロン数に対する ^{196}Au の放射能の値を見ると、多くの場所で大きなビームロスが起こっていることが明らかである。その後、このデータを基にしてビーム制御の改善を行った。改善後に再度測定した右の結果では、大幅にビームロスが減っていることが確認できた。また、ビームロスをしている場所も特定でき、この結果を基に天井上の線量率測定とシミュレーション計算を組み合わせる最終的には Fig.9.4 のようにビームロス 0.01%以下を達成していることを確認できた。光核反応の巨大共鳴を利用した金の放射化が、ビームロスの見積もりを可能にし、コンパクト ERL の電流増強に大きく貢献した。

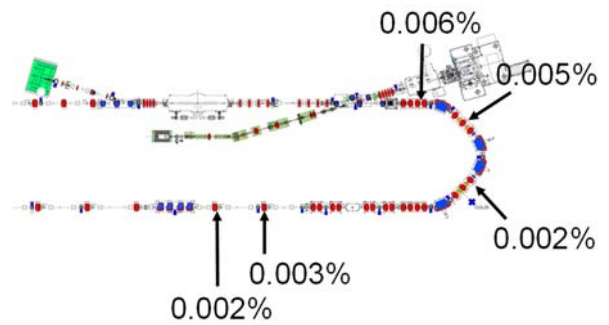


Fig. 9.4 得られたコンパクト ERL のビームロス割合の例 [17]
2015年6月25日の運転 (EXP3, ビーム電流 $51.2\ \mu\text{A}$)

9.2. 加速器施設の迷路における中性子減弱測定

次も金の放射化を利用した測定について紹介する。同じ金の放射化であるが、利用する核反応は中性子捕獲反応であり、前節の中性子放出反応とは反対である。

高エネルギー加速器施設の出入口は、Fig.9.5 に示した KEK の 12GeV 陽子加速器ニュートリノビームラインの出入口のように複数回屈折した迷路構造をとることがある。中性子を効率的に減弱させるための構造である。コンピュータの発達した現代では、加速器施設の設計段階で、迷路での中性子の減弱能力をシミュレーションで行うことが多い。コンピュータシミュレーションがどれだけ正確に再現できるかを確認しておく必要がある。そこで、ニュートリノビームラインの迷路出入口において、中性子の減弱を測定し、MARS15 コードと呼ばれる粒子輸送計算コードでの再現性を確認する実験が行われた[18]。

断面積と放射線測定の感度を考慮して、金の中性子捕獲反応が利用された。迷路に多くの金箔を設置し、加速器運転後、 $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応により生成した ^{198}Au (半減期 2.69517 日) の放射能をイメージングプレートで測定した。得られた中性子減弱の様子を Fig.9.6 に示す。迷路全体に渡り放射化が感度良く測定でき、中性子の減弱の様子を詳細に得ることができた。この実験からは、迷路中のケーブルラックや扉などの物質が中性子の減弱に影響すること、これらの物質を入力して計算コードでシミュレーションすることで中性子の減弱を非常に良く再現することが確認できた。

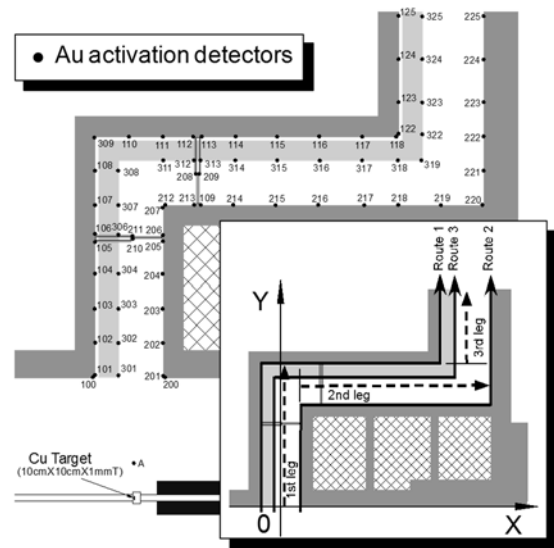


Fig. 9.5 KEK の 12GeV 陽子加速器ニュートリノビームラインの出入迷路図と放射化測定のための金の設置場所 [18]

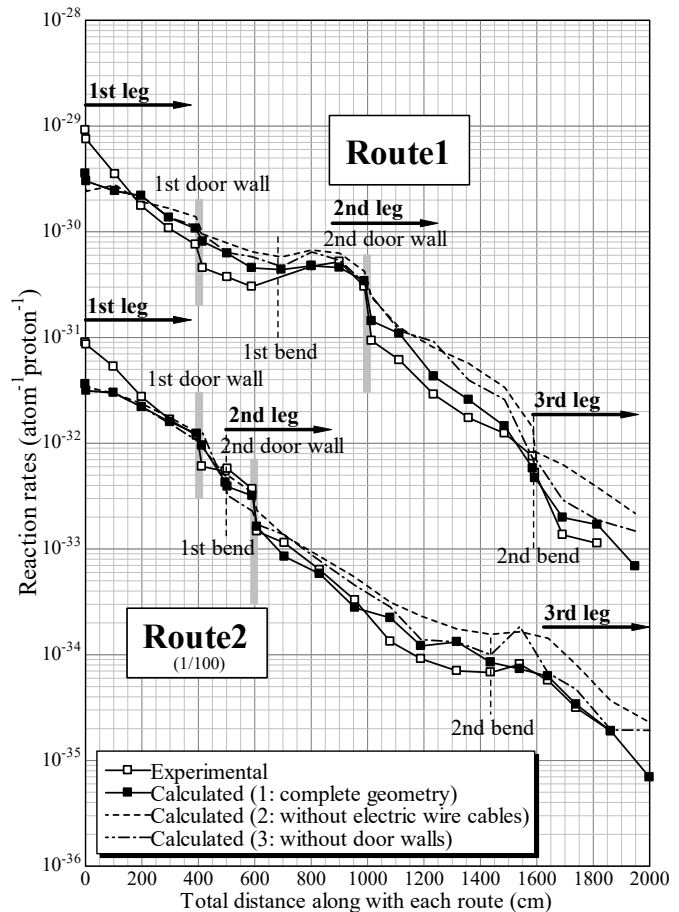


Fig. 9.6 KEK の 12GeV 陽子加速器ニュートリノビームラインの出入迷路における中性子の減弱の様子 [18]

9.3. 高エネルギー加速器施設の遮蔽実験

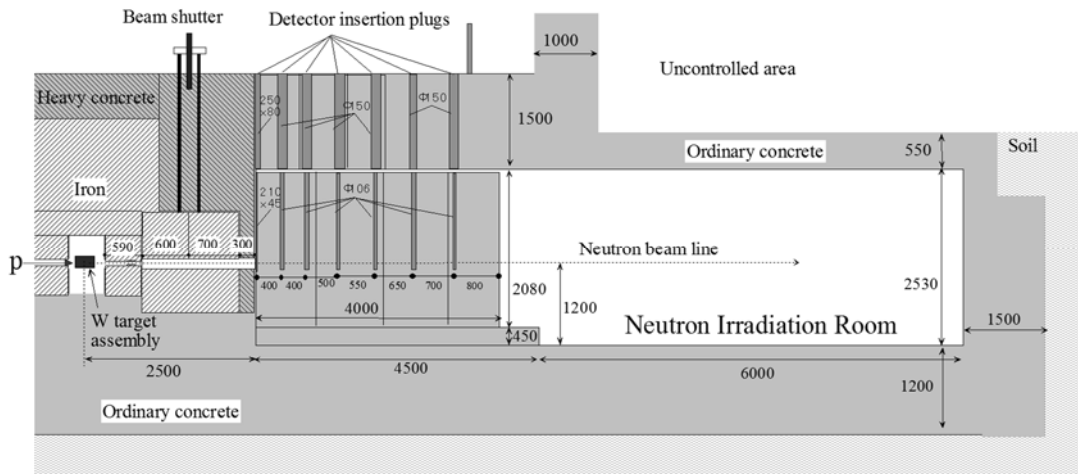


Fig. 9.7 KEKの500MeV陽子加速器中性子ビームコースの断面図と遮蔽実験の試料挿入口の配置 [19]

最後の例も金の放射化を利用した測定を紹介する。高エネルギー加速器では高エネルギーの二次粒子が生成し、遮蔽体中の透過力も高い。この高エネルギー粒子の遮蔽体中の減弱データもまた放射線防護上重要な情報である。遮蔽体中では直接粒子を検出する機器を設置するスペースはない。設置スペースを大きく必要としない放射化法が適している。

例として KEK の 500MeV 陽子加速器中性子ビームコース(KENS)で行われたコンクリート遮蔽体の遮蔽実験を紹介する。実験体系を Fig.9.7 に示す。この測定には金の放射化を利用した。遮蔽体中に挿入した金をビーム運転後に回収して、生成した放射性核種の生成率をゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した[19]。本測定では、核破砕生成核である ^{196}Au , ^{194}Au , ^{192}Au , ^{188}Pt , ^{189}Ir , ^{185}Os , ^{183}Re , ^{181}Re , ^{175}Hf を測定した。結果を Fig.9.8 に示す。エネルギーの高い粒子である程、核子を多くたたき出すことから、生成核の質量数の小さくなるにつれてエネルギーの高い粒子を間接的に測定していることになる。エネルギーの高い粒子のコンクリート中の減弱に対する計算コードの再現性の高さが確認できた。

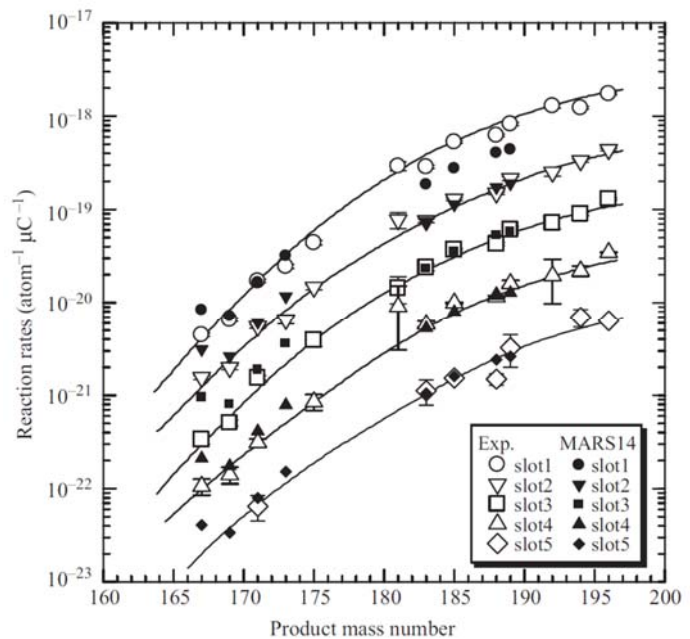


Fig. 9.8 KEKの500MeV陽子加速器中性子ビームコースの0度方向のコンクリート遮蔽体中の金に生成した核の生成率の質量数に対する分布 [19]

参考文献

- [1] 松村宏ら, KEK Internal 2005-1.
- [2] Miller and Hudis, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **9**, 159 (1959).
- [3] R. Serber, *Physical Review*, **72**, 1114-1115 (1947).
- [4] D.J.S. Findlay, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **50** 314-320 (1990).
- [5] F. Jallu et al., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **155**, 373-381 (1999).
- [6] L. I. Schiff, *Physical Review*, **83**, 252-253 (1951).
- [7] H. Matsumura et al., *Radiochimica Acta*, **88**, 313-328 (2000).
- [8] H. Matsumura et al., *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **278**, 733-738 (2008).
- [9] H. Matsumura et al., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **256**, 591-598 (2007).
- [10] Q. B. Wang et al., *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 587-592 (2004).
- [11] N. Kinoshita et al., *Nuclear Technology*, **168**, 694-699 (2009).
- [12] A. Toyoda et al., *Progress in Nuclear Science and Technology*, **4**, 384-387 (2014).
- [13] H. Matsumura et al., *Nuclear Technology*, **168**, 979-983 (2009).
- [14] H. Matsumura et al., *Progress in Nuclear Science and Technology*, **4**, 372-375 (2014).
- [15] H. Matsumura et al., *Transactions of the American Nuclear Society*, **112**; 13-18 (2015).
- [16] T. Obina et al., "Recent Developments and Operational Status of the Compact ERL at KEK," *Proceedings of IPAC2016, Busan, Korea, May 8-13, 2016*.
- [17] H. Matsumura et al., "Beam Loss Estimation by Measurement of Secondarily Produced Photons under High Average-current Operations of Compact ERL in KEK," *Proceedings of IPAC2016, Busan, Korea, May 8-13, 2016*.
- [18] H. Matsumura et al., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **266**, 3647-3655 (2008).
- [19] H. Matsumura et al., *Radiation Protection Dosimetry*, **116**, 1-5 (2005).