



高エネルギー陽子加速器の冷却水中の放射性核種の挙動



松村 宏

Matsumura Hiroshi
(高エネルギー加速器研究機構)

1 はじめに

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。ギガ電子ボルト (GeV) を超える高エネルギーに陽子を加速する加速器では、陽子ビームが物質に衝突したときに起こる主に核破砕反応 (標的となった原子核が破砕される反応) によって、実に様々な放射性核種を生成する (放射化)。直接陽子ビームが衝突しなくても、陽子ビームが衝突したところで核破砕核反応により生成した二次粒子が、周りの物質に衝突して核反応を起こして放射化する。つまり、高エネルギー加速器の周辺ではあらゆるものが高エネルギー粒子により放射化するのである。

機器を冷却する水 (冷却水) やそれが流れている配管等も放射化する。水の構成元素である酸素の原子核が破砕されて ${}^7\text{Be}$ や ${}^3\text{H}$ 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砕されて放射化する。金属中で生成した放射性核種は、核破砕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。本稿では、高エネルギー加速器の冷却

水中の放射性核種の挙動に関する研究により、これまでに明らかになったことを紹介する。

2 冷却水から放射性核種が完全に除去できない?

冷却水中から放射性核種を除去するには、化学的に除去する必要がある。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。そして、同時にイオン交換樹脂に放射性核種が吸着し、“イオン交換樹脂塔が放射性核種の除去にも十分役立っている”と考えてきた。

しかし、この考えを揺るがす現象が観測される。2005年まで高エネルギー加速器研究機構 (KEK) には 12 GeV 陽子シンクロトロン (12 GeV-PS) が稼働していた。この加速器の電磁石の冷却水システムにもイオン交換樹脂塔が設置されていた。運転終了後、冷却水をイオン交換樹脂塔に通し続けても、主要放射性核種である ${}^7\text{Be}$ が、ある濃度よりも減少しないという現象が観測されたのである¹⁾。

冷却水は、放射性核種の放射能濃度が法令の排水放射能濃度限度以下であれば排水することができる。当時、12 GeV-PS では、冷却水中の放射能濃度は排水可能な濃度になっており問題はなかったが、現代の流れである加速器の高強度化の中では近い将

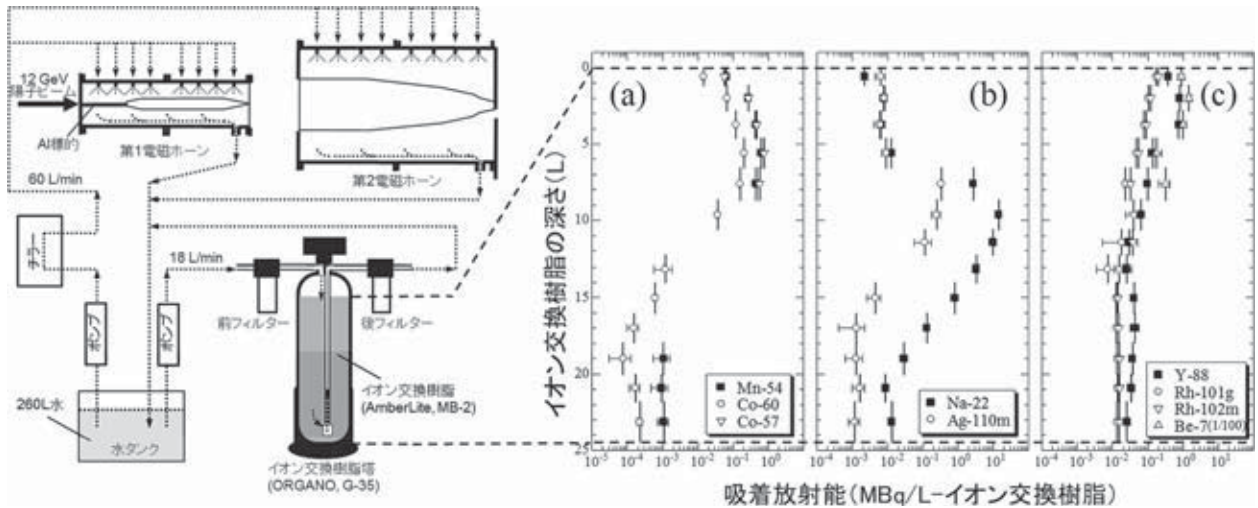


図1 高エネルギー加速器研究機構のK2K標的&電磁ホーン冷却水システム(左)とイオン交換樹脂塔の放射性核種の運転終了時の放射能の深度分布(右)(文献2)の図を使って作成
一つのイオン交換樹脂塔内に(a)(b)(c)の異なる3つの分布パターンが見つかった

来問題になると考えられ、冷却水中の放射性核種の挙動を明らかにする必要がでてきた。

3 冷却水中の一部放射性核種のイオン交換樹脂への弱い吸着

イオン交換樹脂塔で放射性核種を冷却水から完全に除去できない現象を解明するために、イオン交換樹脂塔内部の放射性核種の種類と分布がどうなっているかを調べることにした。幸運なことに、KEKの12 GeV-PSでは、つくば-神岡間・長基線ニュートリノ振動実験(K2K実験)のためのK2K標的&電磁ホーンが役目を終えて2年半を経過していた。短半減期の放射性核種は消滅しているが、この装置の冷却水システム(図1左参照)のイオン交換樹脂塔からイオン交換樹脂を取り出し、吸着していた放射性核種の種類と放射能を調べた²⁾。

表1にイオン交換樹脂塔から検出された放射性核種とその運転終了時に換算した放射能の一覧を示す。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²²Na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と銀メッキが由来の⁵⁴Mn, ⁵⁷Co, ⁶⁰Co, ⁸⁸Y, ^{101g}Rh, ^{102m}Rh, ^{110m}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

表1 高エネルギー加速器研究機構の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の一覧(文献2)に基づいて作成)

核種	半減期	放射能	推定主要起源物質
⁷ Be	53.29 d	0.7 GBq	冷却水
²² Na	2.0919 y	57 MBq	標的と電磁ホーンのアルミニウム
⁵⁴ Mn	312.3 d	3.7 MBq	銅メッキ
⁵⁷ Co	271.79 d	4.2 MBq	
⁶⁰ Co	5.2714 y	1.2 MBq	
⁸⁸ Y	106.65 d	4.2 MBq	銀メッキ
^{101g} Rh	3.3 y	0.9 MBq	
^{102m} Rh	2.9 y	1.1 MBq	
^{110m} Ag	249.79 d	1.5 MBq	

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。

次に、図1右にイオン交換樹脂塔内の放射性核種の放射能の深度分布を示す。イオン交換樹脂塔内での深度分布には3つのパターンがあることが分かった。(a)のパターンは1個の、(b)のパターンは2個のイオンの吸着バンドとして説明できた。一方、(c)のパターンはイオン樹脂塔全体に分布し、放射性核種のイオン交換樹脂への弱い吸着を示唆している。ここで、⁷Beを含む一部放射性核種は、コロイド形成しているのではないかと予想に至った。

4 冷却水中の放射性核種の多様性

米国立フェルミ加速器研究所 (FNAL) の 120 GeV 陽子加速器には様々な冷却水システムが存在し、ここで冷却水中の放射性核種の本格的な調査に取り組んだ³⁻⁵⁾。表 2 に示す反陽子生成ターゲットステーション (Pbar) と NuMI と呼ばれるニュートリノ生成ビームラインで稼働している 8 つの冷却水システムを調査対象とした。イオン交換樹脂塔の有無、冷却水と接している物質、水量等が異なる冷却水システムであり、様々な条件での冷却水について調べることができた。

まず高強度放射線場で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。中には、冷却水システム (e) の ⁸²Br、冷却水システム (g) と (h) の ^{182m}Re と ¹⁸¹Re 等の何が起源なのかわからない核種も検出さ

れている。検出された放射性核種の数と放射能濃度は、イオン交換樹脂塔の有無でも大きく差が出ている。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。

しかしながら、ここでも ⁷Be の不完全な除去が観測された。表 2 の “⁷Be の水中残留率” は、全 ⁷Be の内のどれだけが冷却水中に存在していたかを示す。イオン交換樹脂塔を有する場合でも、水中に残る ⁷Be がとても低い割合ではあるが、いずれの冷却水システムでも検出され、0.01% 程度残っていることがわかった。また、イオン交換樹脂塔を有しない冷却水システムにおいても、約 95% は冷却水中からなくなっている。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。

表 2 米国立フェルミ加速器研究所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 (文献 4) に基づいて作成 (2010 年 12 月または 2011 年 9 月採水試料)

冷却水システム名	イオン交換樹脂塔	高強度放射線場で冷却水と接触している物質	冷却水中の検出放射性核種 [上段] 及び放射能濃度 (Bq/cm ³) [下段]							⁷ Be の水中残留率
(a) NuMI, Target	有	ステンレス, ろう付け物質, ステンレス (外側配管)	³ H 2.69 k	⁷ Be 3.8	²⁴ Na 0.03	⁵² Mn 0.005	⁵⁴ Mn 0.005	⁶⁰ Co 0.003		0.02%
(b) NuMI, Magnetic horn 1	有	ステンレス, アルミニウム合金, ステンレス (外側配管)	³ H 11.3 k	³⁹ Cl 2.8 k	²⁴ Na 0.026 k	⁷ Be 0.017 k	³⁸ S 0.0118 k	²⁸ Mg 0.9	²² Na 0.04	0.02%
(c) NuMI, Magnetic horn 2	有	ステンレス, アルミニウム合金, ステンレス (外側配管)	³ H 1.97 k	³⁹ Cl 1.07 k	³⁸ S 3.1	²⁴ Na 1.9	⁷ Be 0.33	²⁸ Mg 0.09	²² Na 0.006	0.003%
(d) NuMI, Decay pipe	有	銅	³ H 3.96 k	⁷ Be 1.6	⁵² Mn 0.010	⁵⁸ Co 0.008	⁵⁴ Mn 0.004			0.06%
(e) NuMI, Hadron absorber	有	アルミニウム	³ H 7.40 k	⁷ Be 3.5	²⁴ Na 0.21	⁸² Br 0.063				0.06%
(f) Pbar, Collection lens	有	銅, チタン合金 (レンズ表面), ステンレス (外側配管)	³ H 9.18 k	⁷ Be 1.8						0.008%
(g) Pbar, Pulse magnet and collimator	無	銅	³ H 25.2 k	⁷ Be 6.1 k	⁵⁸ Co 1.18 k	⁵⁷ Co 0.93 k	⁵⁴ Mn 0.48 k	⁶⁰ Co 0.35 k	⁵⁶ Co 0.21 k	4%
			⁶⁵ Zn 0.096 k	⁵² Mn 0.094 k	²⁴ Na 0.090 k	⁴³ K 0.09 k	²² Na 0.028 k	^{182m} Re 2.1	¹⁸¹ Re 2.0	
(h) Pbar, Beam absorber	無	銅	³ H 18.5 k	⁷ Be 6.5 k	⁵⁷ Co 0.60 k	⁵⁸ Co 0.53 k	⁵⁴ Mn 0.41 k	⁶⁰ Co 0.34 k	⁵⁶ Co 0.094 k	5%
			⁴³ K 0.059 k	²⁴ Na 0.054 k	⁵² Mn 0.042 k	²² Na 0.033 k	⁶⁵ Zn 0.025 k	^{182m} Re 1.4	¹⁸¹ Re 1.4	

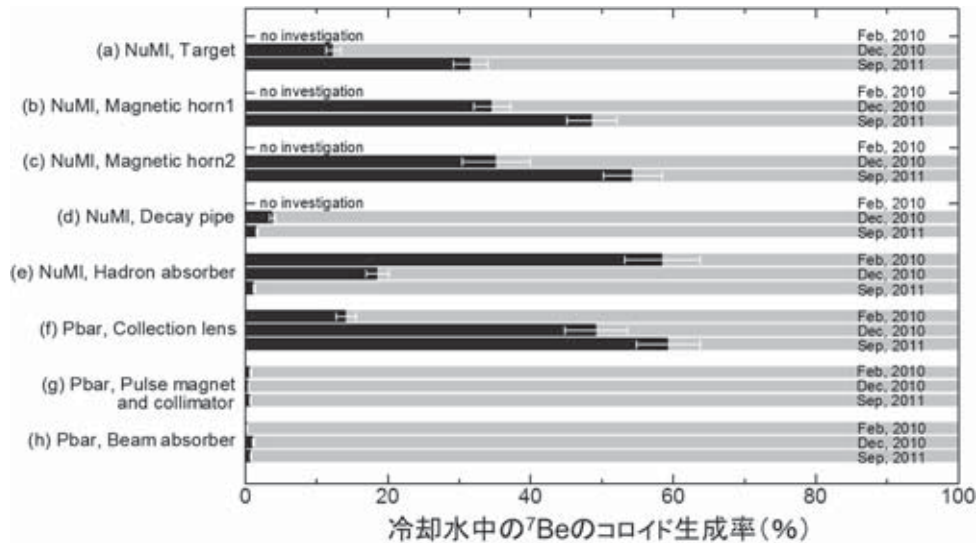


図2 米国立フェルミ加速器研究所の様々な冷却水システムにおける冷却水中の⁷Beのコロイド（3 nm 以上）率の比較（文献4）より

5 冷却水中の放射性核種の残留の原因はコロイド生成

さらにFNALで採水した冷却水について調べたところ、3~16 nmの小さなサイズのプラスに帯電した放射性コロイドが生成していることが分かった。⁷Beのコロイド率を調べた結果を図2に示す。イオン交換樹脂塔を有する冷却水システム(a)~(f)では明らかにコロイド率が高く、約50%にも達する高さである。一方で、イオン交換樹脂塔を有しない冷却水システム(g)と(h)ではコロイド率が極めて小さい。これらの関係は、イオンがイオン交換樹脂に吸着して除去される一方で、コロイドがイオン交換樹脂に対して弱い吸着力であるために冷却水から完全に除去されていないとして説明ができる。

6 典型的な放射性核種の挙動のまとめ

- (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3~16 nm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。

7 おわりに

高エネルギー加速器の冷却水からの放射性核種の除去に対して、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、コロイド生成の抑制にはどうすれば良いかなど、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ハドロン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。

【謝辞】

本研究は、KEKの放射線科学センターのメンバーと行いました。また、FNALでは、JASMINプロジェクトとして、日米のJASMINメンバーと研究を行いました。感謝申し上げます。

参考文献

- 1) Bessho K. *et al.*, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, **303**, 1719-1725 (2015)
- 2) Matsumura H. *et al.*, Nuclear Technology, **168**, 979-983 (2009)
- 3) Matsumura H. *et al.*, Progress in Nuclear Science and Technology, **4**, 372-375 (2014)
- 4) Matsumura H. *et al.*, Transactions of the American Nuclear Society **112**, 13-18 (2015)
- 5) Matsumura H. *et al.*, Progress in Nuclear Science and Technology, **3**, 127-130 (2012)