

加速器の利用と放射線安全管理



榎本 和義
Masumoto Kazuyoshi

1. はじめに

この半世紀を振り返る機会をいただき、私の RI 歴の中で、RI 利用では加速器による放射化分析、放射線安全管理としては加速器施設の安全管理、解体、放射化に関するいくつかの思い出を振り返らせていただくことにした。

2. 放射化分析での開発研究

2.1 東北大学入学から化学教室 (1970~1980)

1970 年大学入学当時、公害病や、環境汚染問題が各地で起こっていた。大学では、安保、沖縄返還、授業料値上げ問題等でストライキが続いた。1972 年は留年となり、仲間と物理学の自主ゼミを開いたりした。丁度、公害防止管理者の第 1 回試験があり、水質第 1 種免状を取得することができた。

公害問題に関わることができればと、理学部 4 年 (1974) では、分析化学講座 (鈴木信男教授) に入り、示された卒論課題の中で、加藤豊明助教授指導の「光核反応収率の励起エネルギー依存性に関する分析化学的研究」を卒論研究に選んだ。学内共同利用施設の理学部附属原子核理学研究施設 (核理研、現: 電子光理学研究センター) には、大強度の 300 MeV 電子リニアックが設置されており、そこで光量子放射化分析 (PAA) による多元素同時定量法の開発研究を始めた。照射エネルギーの選択によって、目的の元素を高感度にしかも妨害反応が小さい条件で定量するため、周期律表を眺めつつ、様々な元素を照

射して、各元素の定量感度を求めたり、定量の妨害となる副反応の生成量を調べるため、電子加速エネルギーを 30 から 70 MeV まで変えて実験を行った。マシンタイムは限られており、大学院入試の時も、徹夜測定をしながらの受験となった。実験の都度、MCA のデータを印字し、大量のロール紙を段ボール箱に入れて持ち帰り、片対数用紙にスペクトルをプロットし、 γ 線ピークの核種を同定する作業を続けた。研究室唯一の Sony のプログラム電卓を独占し、ピーク面積計算や指数関数計算プログラムを作って光核反応収率を求めた。

博士前期課程 (1975-1976) では、化学分離の併用も検討した。環境試料中の Mg から生成し、強いコンプトンバックグラウンドの原因となる ^{24}Na を除去するため、照射試料を溶解後、共晶出法等による遷移金属元素の属分離を行うことで、定量感度や定量の迅速性の向上を図ることにした。各種 RI を電子加速器で製造し、必要に応じて無担体分離した。実験ではそれらの RI を混ぜて、それぞれの濃度の分かったマルチトレーサー溶液を調製し、溶液の pH を変化させながら、多元素同時に捕集条件を求めた。

博士後期課程 (1977-1978) では、機器的手法の検討も進めた。PAA で定量に利用する生成核種には、陽電子壊変核種が多いことから、NaI 検出器で 511 keV 消滅放射線を検出し、引き続き発生する γ 線を NaI 検出器に対して 90 度の位置に設置した Ge (Li) 検出器で同時計数し、定量する方法を検討した。その結果、 ^{24}Na の影響を受けずに Ni (^{57}Ni)、Co

(^{58}Co), As (^{74}As) 等が高感度に定量できることを示した。

宮城県沖地震(1978年6月12日)被災直前の教授会で、助手への採用が決まり、しばらくは地震による火災となった化学教室の復旧作業に明け暮れたが、幸いにして、測定室内で転倒した古い放射能測定用機器をすべて廃棄し、最新のGe(Li)検出器—MCAに更新することができた。

1977年に、青葉山キャンパスにサイクロトロンが設置され、理学部のRI中央実験室も片平キャンパスから移転し、学内共同利用施設のサイクロトロン・ラジオアイソトープセンターができた。RI製造コースやRI実験棟の整備に協力し、RI製造コースには、同時に多数の試料を照射するための回転式照射装置を製作した。装置は荷電粒子反応のThick Target Yield Curveを1回の照射で求めたり、荷電粒子放射化分析(CPAA)のために様々な環境試料等を同一条件で照射するのに大いに役立った。

1970年半ばから国立公害研(現:国立環境研)での環境標準試料の調製が始まり、その分析に協力した。しかし、天然物標準試料の量は限られ、保証値には誤差があり、定量したい元素の濃度が示されていないものもある。そこで、定量目的元素の濃度が正確に分かった合成標準試料の調製法の開発を進めた。生物体類似試料の場合には、アクリルアミドの共重合反応を利用して、生物体類似組成に目的元素を正確に均一にドーピングしたものを調製した。また、岩石類似試料の場合には、硝酸酸性の多元素混合溶液にテトラエチルオルソシリケートを混合し、酸加水分解反応を利用して、多元素を高純度シリカゲル中にドーピングしたものを調製した。

2.2 原子核理学研究施設以降(1981~)

1981年1月に、原子核理学研究施設に配置換えとなった。そこで、博士論文の研究内容を再検討し、定量法の開発を行うことにした。PAAでは個々の分析試料に照射された線量を正確に見積もる事が必要であり、正確な定量法としては、標準物質を必要としない定量法が望ましく、以下の3種の定量法について系統的に評価した。(a)濃縮同位体を加える方法(安定同位体希釈法)、(b)試料に含まれない元素を加えて、それを内基準とする方法(内基準法)、更に(c)定量目的元素を分析試料に標準添加し、

試料内の主要な元素を内標準として、生成放射能の比から定量する方法(標準添加内標準法)に整理し、それらの定量手法と特徴を明らかにすると共に、生物試料、環境試料、工業材料のPAA、CPAAに適用した。(a)は質量分析での分析手法であるが、放射化分析も同位体分析が可能である。そこで、濃縮同位体を加えると、同じ元素から生成する複数の放射性核種の生成比が変化することを定量に利用したものである。(b)は、試料内の照射線量を求めるための元素を分析試料と比較標準試料に均一に一定量加え、生成した放射性核種と定量目的元素から生成する核種の放射能比を分析試料と比較標準試料で求めて定量する方法である。(c)は、分析試料そのものに、複数の定量目的元素をそれぞれ一定量添加したものを調製し、添加しない分析試料と共に照射し、試料に含まれているが定量しない元素を内標準とするものである。

同時に、様々な分野の利用者が放射化分析を容易に使えるようにするため、測定、解析、定量の自動化を進めた。測定では、1984年にアーム型ロボットで測定試料を自動的に交換し、測定中は試料を一定位置でホールドするといった簡単な仕組みを作った。その後、保有する数社のMCA及び接続されたプリンタ、ディスクドライブ等は、メーカーを意識することなく、すべてマウスを使って、同じ画面操作で制御できるようにし、共同利用者への講習の手間を省いた。1980年代後半にLANが使えるようになると、プログラム等をサーバーで管理し、更に東北大学情報ネットワークを使って離れたキャンパスへ測定情報を提供できるようにした。

非鉄金属や半導体中の微量不純物である軽元素定量の希望があり、PAAではフッ素(^{18}F)の水蒸気蒸留分離法を検討し、非鉄金属や岩石中のフッ素の定量を行った。また、高感度な炭素分析を実現するため、鉄鋼試料に含まれる炭素から生成する ^{11}C をゴールドイメージ炉によって加熱して $^{11}\text{CO}_2$ として迅速分離し、フローインジェクション法によるモノエタノールアミン溶液への連続抽出、抽出液をフローセルに流し、BGO検出器による同時計数による511 keV消滅放射線を検出するシステムを作った。CPAAによる極微量窒素の定量では、 ^{14}N (p, α) ^{11}C 反応を利用し、シリコン中の窒素の分析法の標準化(電子情報技術産業協会規格JEITA EM-3512

として制定)を行った。

電子加速器は、核理研だけでなく、京都大学原子炉実験所の KUR-LINAC も利用した。また、サイクロトロンは東京大学原子核研究所 (KEK 田無分室) の SF サイクロトロン、NTT 東海研究所のベビーサイクロトロン、JRIA の仁科記念サイクロトロンセンターも利用した。

3. 加速器施設の放射線安全管理

3.1 東北大学理学部原子核理学研究施設 (1981~1996)

1981 年 1 月に核理研に配置換えとなり、放射線取扱主任者に選任され、加速器施設の放射線安全管理にも関わることになった。同時に、共同利用サービス、実験室や放射線管理設備の維持管理を行うと共に、放射線管理実務の合理化を進めた。従事者や RI 等の記録のデータベース化、カードとタッチパネルによる入退室登録、IC カードによる解錠等今となっては当たり前のものであるが、当時は先駆的なものであった。

高出力の加速器施設では放射化の問題が重要になってくるが、そこでは放射化分析の経験が大いに役立った。放射化物を測定することで様々な情報が得られる。すなわち、(1) 反応の種類 (どのような粒子、エネルギーで生じたのか)、(2) ロスの割合 (どこで起きたのか)、(3) 照射履歴 (放射化された時期や期間を知る)、(4) 構造材料、不純物 (どのような元素が用いられているか)、更には (5) 核種の挙動 (空気や水で生成した核種はどのように拡がるか、表面汚染、エアロゾル、コロイドの生成) 等も見えてくる。そうすると、加速器の運転管理として、(a) ビームロス発生と原因除去 (設計、ビームハンドリング)、(b) モニタリングの手法やメンテナンスの指針、(c) 加速器構成材料選択や設計製作に活かすことにつながってくる。最終的には、(d) 解体時の放射性廃棄物の発生量の低減にもつながってくる。

アルミニウムの溶接や押し出し加工技術が進み、ビーム輸送パイプのアルミ化が検討されてきた。アルミニウム合金は、微量の金属成分を添加して、強度を上げる等の改善がなされている。しかし、成分によって放射化の程度も異なるため、エネルギーを

変えて照射し、放射化低減の効果を詳細に検討した (1984 年 軽金属学会論文賞受賞)。

1994 年に、1.2 GeV- ストレッチャーブースタの建設が認められ、第二実験室内に設置されてきた世界で最初の 150 MeV パルスビームストレッチャー (SSTR) とこれも世界で最初の加速器による本格的なパルス中性子実験設備を 1995 年に解体することになった。コンクリート遮蔽体 (ND トーチカ) の解体準備のためのコンクリートの放射化状況の調査を進めた。利用停止後、遮蔽体を中性子発生用 W ターゲットを中心に 5 方向に向かってコア抜きし、コンクリート中に生成する核種の角度分布と生成放射能の 1/10 価層を求めた。また、コンクリート中の元素を放射化分析によって求め、中性子反応及び光核反応の寄与を検討した。遮蔽体の内側の放射化している部分を先に撤去することは困難であることから、外側からコンクリートの放射化を測定しながら、静的破碎によって粉塵の発生を抑えるようにして非放射化の部分を切り出して、放射化が認められる直前で、グリーンハウスを設営して、放射化部分の解体を行うことにした。また、発生する放射化コンクリートを 200 L ドラム缶に収納し保管するため、中性子飛行トンネルの一部 (30 m) を仕切って保管廃棄設備とした。

3.2 高エネルギー加速器研究機構田無分室 (1997~2000)

1997 年 1 月に東北大から東京大学原子核研究所へ異動した。1997 年 4 月に高エネルギー加速器研究機構 (KEK) 田無分室として改組され、柴田徳思先生がつくばに移られ、放射線取扱主任者、放射線管理室長となり、改組に伴う放射線障害予防規程の改正等を行った。田無分室の 1.3 GeV 電子シンクロトロン (ES)、直線加速装置 (E アレナ)、重イオン蓄積リング (TARN-II)、空芯 β 線分析器 (空芯 β) 等、東京大学原子核科学研究センター (CNS) の SF サイクロトロン等、東京大学物性研の放射光リング (INS-SOR) の放射線管理をすべて KEK 田無分室で行うこととなった。

SF サイクロトロンの稼働中に加速器室内の中性子放射化の程度を調査することにした。加速器室内に設置した多数の金箔を回収した後、該当する平面図の設置箇所にはりつけ、イメージングプレート

(IP)と重ね、イメージリーダで各所に設置した金箔中の¹⁹⁸Auの放射能を一度に測定するという手法を開発し、室内の熱中性子の空間分布を可視化できるようにした(2003年放射線安全管理学会最優秀論文賞受賞)。また、ポータブルGe検出器を用いてES内の電磁石やビームダクト等の放射化状況の調査を進めた。1998年に出された放射化物の管理に関する課長通達をもとに、放射化物の管理の方針を立て、内規や放射化物取扱マニュアルの整備も行った。

1999年9月から開始した加速器の廃止作業は1年で終了した。RI実験室は、あらかじめ様々な物品の片づけを済ませていたので、加速器施設が終了してから簡単に終わる予定でいたところ、管理区域外の埋設土管の周辺部に¹³⁷Csの汚染が見つかった。貯留槽から濃度限度以下として確認後、排水してきたものであるが、敷地内の土管の継ぎ目から拡がり、周辺土壌に¹³⁷Csが長年にわたって蓄積したものと推定された。直ちに、大学、放射線規制室等に報告し、除染を開始したが、広範囲の掘削作業を写真週刊誌にヘリコプターから撮影され、報道されることになった。¹³⁷Csはいつまでも土壌にとどまり続けるものであるということを知った次第である。

2000年9月に¹³⁷Csの除染が終了し、最終の汚染検査を行うことになり、室内の拭き取り検査を実施したところ、今度は床壁から³Hの汚染が見つかった。原因は、以前、³Hをウラン吸蔵させた線源を保管していた時に生じた汚染のようで、貯蔵室のピット内が大量の³Hで汚染しており、¹³⁷Csの除染作業の際に、³Hが室内に拡散したためであった。³Hの汚染は最深で床下3.5mに達しており、貯蔵室周辺を解体して、大きなテントハウスを設営して、地下の汚染土壌の撤去を行った。その後、更地後の放射能測定を行い、2001年に除染工事が完了した。

3.3 高エネルギー加速器研究機構(2001~)

東海村にJ-PARCの建設が始まり、つくばの12 GeV陽子シンクロトロン(PS)や中性子散乱実験施設(KENS)の共同利用を終えることになった。PSの最後の実験として、KENSのコンクリート遮蔽体内での中性子の空間分布を放射化箔を用いて調べたり、PS運転中に発生する室内の放射性エアロゾルによる汚染調査を行った。運転終了後は、北カ

ウンターホールのコンクリート遮蔽体の放射化調査を進めた。

加速器室内に発生する放射性エアロゾルは、機器表面等に付着する。拭き取ったろ紙をGe検出器で測定すると⁷Beが検出されたが、IPで測定すると、2週間で減衰するβ核種が主であり、³²Pの生成が示唆された。高エネルギーの中性子によって、室内空気中のArからの核破砕反応で生成したものが付着したと推定された。

また、放射線障害防止法に加速器放射化物の規制やクリアランス制度を取り入れるための文科省からの委託調査を2006年度以降行い、その後、空気や水の放射化や廃止措置の進め方等について、2017年度まで調査は継続された。医療用直線加速装置、PET薬剤製造用サイクロトロン、粒子線治療用加速器を始め全国各地の加速器施設での調査を行い、中性子測定や放射化実験等を実施したが、放射線発生装置の規制に関して、放射線規制室での検討に役立てたと考えている。

4. 東日本大震災での取り組み

2011年3月11日の東日本大震災に引き続く東京電力福島第一原子力発電所で発生した事故後は、つくばでの放射性エアロゾルの測定等を継続してきた。また、放射線審議会委員、放射線安全管理学会会長、放射線主任者部会関東支部長として活動すると共に、文科省、厚労省、環境省、福島県等からの要請による様々な測定支援活動を行ってきた。特に、大気中放射能の測定を国立環境研との協力で進めながら、福島県の農業総合センター、内水面水産試験場、林業研究センターに協力し、様々な試料の測定に取り組んできた。測定値は一人歩きすることになる。放射能の正しい測定値を求めるためには、常に、試料採取、調製、測定、解析について注意深い検討が不可欠であると痛感している。

5. 最後に

放射化分析研究では定量手法の開発を念頭において研究を進めてきた。すなわち、(1) 定量の精度、正確さを追求すること、(2) 測定、解析にいたるステップを自動化すること、(3) 他の分析手法では定

量が難しい元素，特に軽元素の定量法の開発を進めることであった。

加速器の放射線安全管理では加速エネルギー，出力の向上と多目的利用の拡大で，「放射化」という課題がクローズアップされ，いかに放射化を低減させるかが重要だと考えてきた。筆者にとって，“Activation Analysis”は放射化によって元素分析することから，放射化を通して過去を読み解き，将来を見通すための手法へと変わってきた。また，隕石と遮蔽体の放射化，大気上層と加速器室内の空気の放射化は似ており，加速器施設での放射化の研究は宇宙や地球の環境科学とも結びつくと思っている。若い方々に，放射能を測ることに関心を持っていたらと考えている。

今回お名前を書かなかったが，多くの方々にお世話になりながら無事に勤めてこられたことをここで

感謝したい。

以下の拙文もご覧いただければ幸いです。

参考文献

- 1) “放射能と加速器にかかわって”，*Proc. 16th Workshop on Environmental Radioactivity*, KEK (2015)
<https://lib-extopc.kek.jp/preprints/PDF/2015/1525/1525004.pdf>
- 2) “たかが管理されど管理：加速器の利用と放射線安全管理業務を振り返って”，*FBNews*, **472** (2016)
<https://www.c-technol.co.jp/cms/wp-content/uploads/2014/04/FBN472web.pdf>

(高エネルギー加速器研究機構 共通基盤研究施設
放射線科学センター)