

加速器施設における冷却水試料の分析

沖 雄一、別所光太郎¹、長田直之²、柴田誠一、世良耕一郎³

京都大学原子炉実験所
590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2-1010

¹高エネルギー加速器研究機構
305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

²京都大学工学研究科
615-8530 京都市西京区京都大学桂

³岩手医科大学サイクロトロンセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢字留が森 348-58

1. 緒言

加速器施設においては、放射化に伴う空気、水(特にターゲットやマグネット等の冷却水)の管理が必要であるが、最近の加速ビームの高エネルギー、大強度化により、その適切な管理の重要性が増してきている。加速器冷却水の配管は加速器運転に伴い、高線量の放射線に曝される。高エネルギー加速器においては、冷却水の放射化および放射化した冷却水配管からの溶出により、マグネットやターゲットの冷却水中に多種類の放射性核種が認められる。これらの放射性核種の濃度は一般に高エネルギー、大強度となるほど高くなる可能性があり、高エネルギー加速器におけるこれらの放射性核種の水中での挙動、または配管からの溶出挙動の解明は、放射線防護の観点から非常に有益である。

一方、高線量の放射線が照射される配管からは、放射性核種ばかりでなく、マクロ量の金属元素が溶出し、冷却水の水質悪化、イオン交換樹脂などへの沈着をもたらしている。たとえば J-PARC の冷却水システムのストレーナーでは、褐色のクラッド状の析出物が捕集されることがあり、注意深い管理を要する。この物質は、X線分析により酸化銅(CuO または Cu₂O)であることが確認されており、冷却水配管系の銅が使用されている箇所からの溶出と考えられる。また高エネルギー加速器研究機構の 12GeV 陽子シンクロトロン電磁石冷却水を限外ろ過により粒径分画し、各分画試料中の金属元素の濃度と ⁷Be の濃度をそれぞれ定量したところ、図 1 に示すような結果となった。⁷Be と銅の粒径分布には相関があり、⁷Be の多くはコロイド状の銅粒子と挙動を共にしていると推定できる。水中粒子成分の電子顕微鏡観察や化学組成分析からコロイド物質の主成分が電磁石コイルに由来する酸化銅微粒子であり、放射性の ⁷Be が非放射性的酸化銅コロイド上に吸着されていることが明らかになった¹⁾。このように、配管系からのマクロ量の金属元素の溶出挙動と、溶出した金属の粒子径、化学形などの水中での状態は、冷却水の維持に関わる加速器安全および水中放射性核種の挙動に関わる放射線安全の双方から必要な情報である。

我々は以上のような観点から、放射線場における冷却水配管系からの放射性核種や金属元素の溶出挙動を研究するため、加速器や⁶⁰Co照射施設を用いて金属容器等に水を封入した模擬冷却水配管試料に対し種々の放射線を照射し、金属元素の溶出を測定している。本報では予備的な結果ではあるが、電子ライナックで行った溶出実験の結果について報告する。また、加速器冷却水の多元素分析に PIXE 法を適用することを試み、これも予備的な検討と言えるが、実際の加速器冷却水の分析を行ったので報告する。

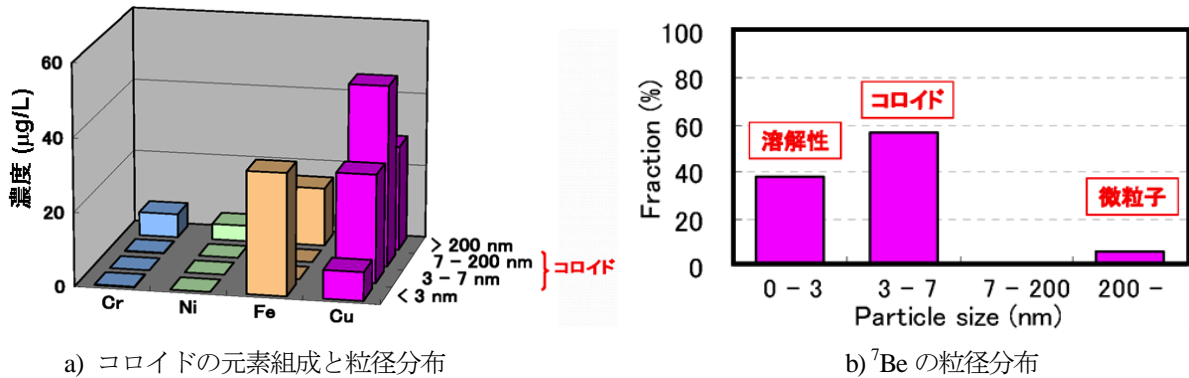


図1 12 GeV 陽子シンクロトロンにおける電磁石冷却水中の金属元素および⁷Beの粒径分布

2. 電子ライナックを用いた溶出実験

今回は照射時の加速器室内線量が高いことから電子ライナックを選び、模擬冷却水試料の照射実験を行った。京都大学原子炉実験所内の46 MeV電子ライナックのターゲット室内に図2に示すように模擬冷却水試料を設置し主に制動放射線による放射線照射を行った。模擬冷却水試料は、Cu、Fe、またはAlで作製した模擬配管に純水を満たしたもので、ターゲット後方(0°方向)とターゲット下(90°方向)に設置した。ビーム条件は、電子の加速エネルギーが33 MeV、ビーム電流が約100 µAであり、照射時間は4時間とした。電子ビームはTaのターゲットに照射され、ターゲット内で全停止し、主に前方に制動放射線を、等方的に中性子を放出する。

照射後限外ろ過を行い、0~3、3~7、7~16、16~200 nm、および200 nm以上の5つの粒径範囲に分画した後、ICP発光分析等により金属元素濃度を定量した。図3に結果を示す。

総溶出濃度は、CuがAl、Feよりも10倍程度高く、粒径分布は、CuとAlは3 nm以下と200 nm以上が大部分を占めることがわかった。Feでは0°方向は、粒径が大きいほど高濃度となるが、90°方向は各分画で同程度であった。試料位置の効果としては0°方向の方が90°方向に比べて溶出量が大きく、大きなコロイドを作る傾向があった。放射線照射により金属の水への溶出とコロイド生成が促進されたと考えられる。

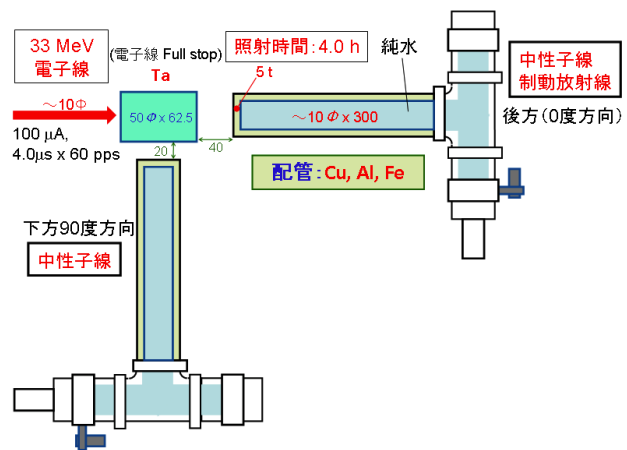


図2 電子ライナックでの模擬冷却水試料の照射実験

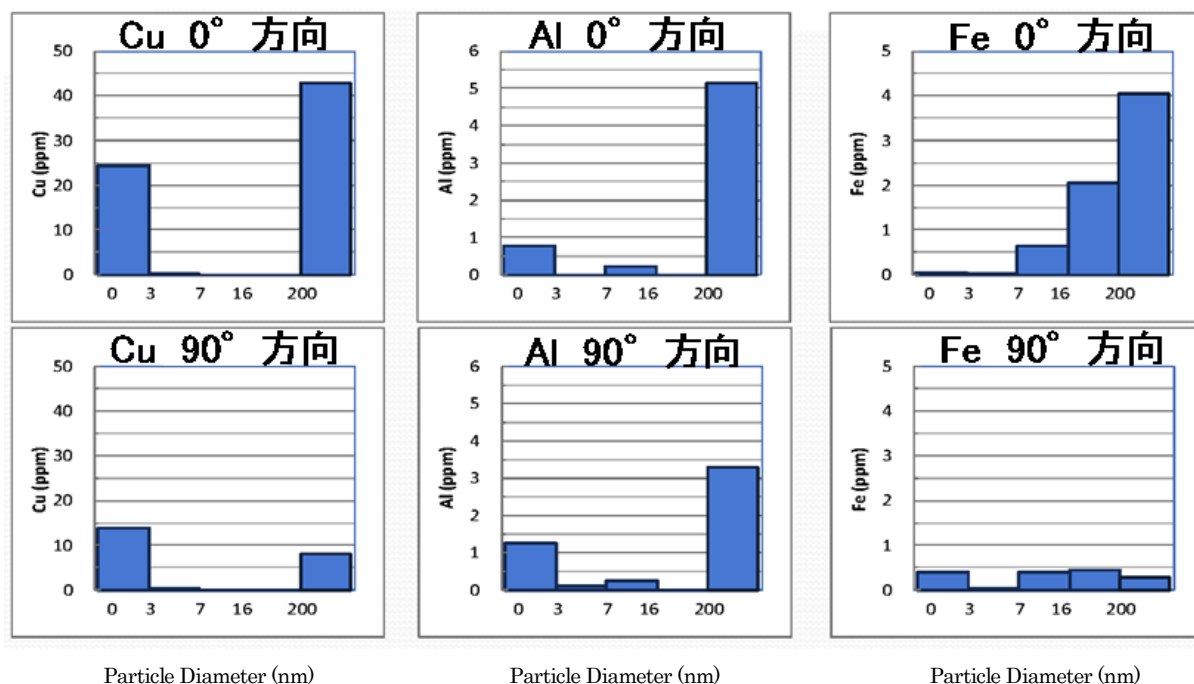


図3 電子ライナックにおける溶出金属元素の粒径分布

3. 加速器冷却水の元素分析へのPIXE法の適用(予備的検討)

京都大学原子炉実験所内の種々の加速器冷却水をサンプリングし、限外ろ過を行って粒径別に分画した。幾つかの粒径範囲に分ける場合、ろ過膜上の残渣を直接元素分析できれば、減算による誤差の増加を避けることができる。このためまず、直接照射ホルダーに貼り付けた限外ろ過膜試料のPIXE法による分析を試みた。結果はSiの含量が高すぎ、他の元素の定量は困難であった。限外ろ過膜の支持体としてガラス繊維ろ紙が使用されていることが推定された。支持体からろ過膜のみを剥離することはできないため、ろ過膜を直接分析するのは困難であることがわかった。以下では、PIXE分析試料としてろ液の方を用いた。

以下に46 MeV電子ライナックのターゲット冷却水を限外ろ過し、PIXE分析した例を示す。分析は、日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンターのPIXE分析装置により行った。ろ液試料に内部標準としてIn標準溶液を添加した後、照射ホルダーのバックリングフィルム(Prolene®フィルム)上に滴下し、乾燥したものを照射試料とした。

定量結果を粒径範囲別に図4に示す。冷却水中にはFe, Cu, Znが認められ3 nm以下の粒径範囲(溶解性)で最も濃度が高く、Cuが約400 ppm、Znが約200 ppmに達した。

通常、冷却水中の金属濃度は高くても数10 ppmであり、定量結果は非常に高濃度であった。CuとZnは真鍮の成分であるが、後日調査の結果、冷却水系の線量が高い部分に真鍮製のカップリングが使用されていたことが判明した。これをステンレス鋼のものと交換したところ、CuとZnの濃度は減少した。今回の結果は、放射線場において

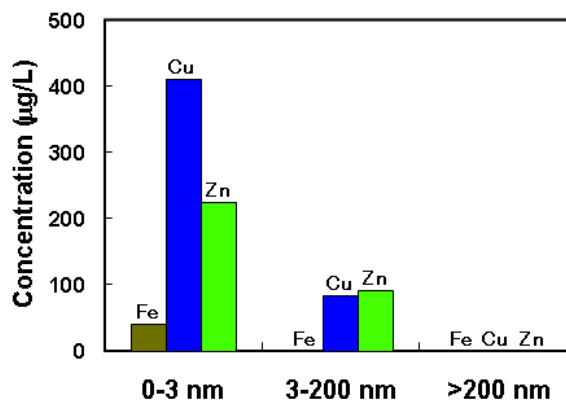


図4 電子ライナックターゲット冷却水における元素濃度の粒径分布

金属部材からの溶出が起きること、および日常的な冷却水中の元素濃度の監視が、加速器の安全管理に直接役立つことを示している。

4. まとめ

大強度/高エネルギー加速器の冷却水中における放射性核種、および溶出した金属元素の挙動は放射線安全・加速器安全の確保に不可欠の情報である。 ^7Be などの放射性核種は、冷却水中に溶出して生成する金属コロイド粒子等に取り込まれると考えられる。

今回、模擬冷却水試料への照射実験を行い、配管系の金属材料である Cu、Al、Fe 等の溶出濃度や水中の粒径などの予備的結果を得ることができた。配管系金属の加速器冷却水への溶出およびコロイドの生成は、放射線場において促進される。また、加速器冷却水の粒径別元素分析に PIXE 法を適用し、日常的な冷却水の元素濃度測定の重要性を示した。

参考文献

- 1) 別所ら, 第 51 回放射線化学討論会, 3O-03 (2008)

Analysis of cooling water samples in accelerator facilities

Y. Oki, K. Bessho¹, N. Osada², S. Shibata and K. Sera³

Research Reactor Institute, Kyoto University
Kumatori, Sennan-gun, Osaka 590-0494, Japan

¹High Energy Accelerator Research Organization (KEK)
Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan

²Graduate School of Engineering, Kyoto University
Kyoto daigaku-Katsura, Nishikyo-ku, Kyoto 615-8530, Japan

³Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0173, Japan

Abstract

It is very important that the cooling water system for accelerator components such as magnets and targets is maintained safely in high energy accelerator facilities. Dissolution of metallic elements and radioactive nuclides into the cooling water may be much enhanced in high dose radiation fields in high energy accelerator facilities. In this work, the concentration of the metallic elements in the cooling water collected just after the beam stoppage was determined in order to clarify the dissolution behavior of the metallic elements from the cooling water system in radiation fields. The measurement was carried out in an electron linear accelerator facility. The PIXE method was attempted to be applied to the cooling water measurement.