

令和 5 年 6 月 14 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2022

課題番号：17K00549

研究課題名(和文) 高エネルギー加速器施設における高温条件下の放射性核種の飛散挙動の解明

研究課題名(英文) Dispersion behavior of radioactive nuclides in high temperature in high-energy accelerator facilities

研究代表者

沖 雄一 (Oki, Yuichi)

京都大学・複合原子力科学研究所・准教授

研究者番号：40204094

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：高エネルギー陽子加速器施設のターゲット金属溶融事故などでは、以前のJ-PARC事故のようにターゲット中に放射化により生成していた多種類の放射性核種が空気中に放出され、環境中に漏洩する危険がある。ターゲット溶融により放出される放射性エアロゾルの生成機構は理解が進んでいない。本研究は、実際の放射化金属などを試料とする溶融実験などを行い、捕集した放射性エアロゾル粒子の粒径分析等により、生成挙動の解明を目指すものである。そのためにエアロゾル捕集に特化した高温炉を開発した。Na-22のような低沸点核種においてターゲット金属とは異なる粒径分布となるものがあり、生成機構の違いが見られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、2011年の福島第一原発事故の記憶も薄れていない2013年に高エネルギー加速器施設のJ-PARCで起きた放射化したターゲットの溶融事故から着想を得たもので、両者は事故としては規模が桁違いに異なるものの、Uやターゲット金属が溶融して内部に生成していた多種類の放射性核種が環境中に放出された点で共通している。本研究では、高エネルギー加速器施設での金属の放射化に焦点をあて、実際に放射化した金属などを溶融させて発生する放射性エアロゾルなどの挙動を調べるものである。結果は加速器の溶融事故のみならず福島第一原発事故の解明にも役立つことが期待される。

研究成果の概要(英文)：Target melting accidents, such as the J-PARC accident in 2013, could occur again by mishandling of a high-intensity beam. Various radionuclides will be released from a molten radioactive target in the accidents in high energy accelerator facilities. The characteristics of the released radionuclides were very important to estimate both external and internal doses. In this work, melting experiments of radioactive metal samples were conducted to clarify formation behavior of radioactive aerosol particles. The size difference between non-radioactive and radionuclide-bearing aerosol particles gives us useful information on the formation behavior. A high-frequency induction heating furnace dedicated to aerosol collection was developed to perform the melting experiments.

研究分野：加速器放射線防護

キーワード：放射性エアロゾル 高エネルギー陽子加速器 溶融事故 放射化金属 粒径分布 飛散挙動 加速器放射線安全

1. 研究開始当初の背景

高エネルギー加速器施設における放射化と J-PARC 事故

高エネルギー加速器施設においては、高エネルギーのハドロン粒子による核破砕反応により放射化した金属材料中には非常に多種類の放射性核種が生成している。それらの多くは、金属材料とは元素が異なり、物理・化学的性質が大きく異なっているため材料が加熱溶融した際の挙動が予測しにくい。2011年の福島第一原子力発電所(FDNPP)の事故の記憶がまだ鮮明な2013年に高エネルギー陽子加速器施設 J-PARC においてターゲット溶融事故が起き、放射化した Au ターゲットが陽子ビームにより加熱されて溶融した。ターゲットは部分的には約 3,000°C に達したと考えられ、Au の同位体から ^{22}Na に至る多くの放射性核種がターゲットからエアロゾルまたはガスとして環境中に放出された。放出の規模は FDNPP 事故に比べると桁違いに小さかったが、多種類の放射性核種を含む金属が溶融して核種の放出に至るといった共通の特徴があった。

溶融事故で放出される放射性核種の研究

高エネルギー加速器で放射化された金属の溶融により生成するエアロゾル粒子の性質については、放射化材料・機器の修理改造等のために行う小規模の溶断作業などでの研究例はあるが、溶融事故を想定して研究されたものはなかった。これらの放射性核種などの性質や生成挙動の研究は、放出時には作業者および公衆の外部被ばく・内部被ばくの原因となるにも関わらずほとんど行われていなかったと言ってよい。

2. 研究の目的

本研究は以上のことを念頭に置き、高エネルギー加速器内で放射化した金属試料を高温炉内で溶融させて、発生するエアロゾル粒子の分析を行い、エアロゾル生成過程に関する情報を得ることを目的とするものである。このために本実験では、金属溶融とエアロゾル粒子の捕集に適する高温炉システムの開発も行う。このシステムを用いて制御された高温条件を実現し、放射化させた金属などの金属試料を用いた溶融実験を行って、発生する放射性エアロゾル等を捕集する。具体的には以下のように粒子の粒径別分析などを行う。

各種の放射化金属試料を種々の温度条件で溶融し、生成する放射性エアロゾルの放射能基準の粒径分布を核種別に測定する。元素の粒径分布(非放射性粒子の粒径分布)と比較し、放射性核種のエアロゾル粒子への付着などの生成機構に関する貴重な情報を得る。

3. 研究の方法

本研究では、まず金属溶融とエアロゾル捕集を同時に行う高温炉システムの開発を行い、次に実際の金属試料(放射化物を含む)に対して溶融実験を行った。

高温炉システムの開発

エアロゾル捕集に特化し、2,000°C 程度の溶融実験が行える高温炉システムの開発を行った。高温炉は種々あるが、高温時に内部に気流を通すことができるなど、エアロゾル捕集に適した条件を満たすものは少ない。本研究では、高周波誘導加熱炉とエアロゾルの粒径別捕集のためのカスケードインパクトを組み合わせたシステムを開発した。高周波誘導加熱炉は、ごく短時間で 2,000°C 程度の高温は達成できるため非常に有利であるが、反面、誘導加熱された金属などからは、一般に高濃度の微粒子が発生しエアロゾル実験の妨げとなる。本研究では、その微粒子発生抑制法についても検討した。

加熱炉は、出力 20 kW で縦型石英管炉(直径 10 cm)にカスケードインパクトが接続された構造とした。炉体は、上下に水冷フランジを有し、炉の中央部にカーボンるつぼがアルミナ材料の支柱などに支持されて置かれている。るつぼは、高さ 50mm、外径 45mm の平底・円筒形状で、外周と底面を断熱材で覆ったものを用いた。本システムではるつぼ自体が高周波誘導加熱により加熱される。断熱材は加熱効率を高めると同時に、石英管炉体の内面劣化を防ぐために使用した。断

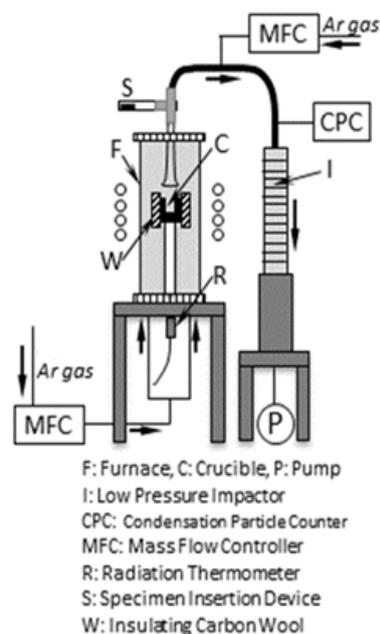


Fig. 1 High Frequency Induction Furnace System

熱材は、るつぼの外周と底面部を覆う円筒状のカーボンウール(フェルト)であり、外周と底面部のカーボンウールをカーボン紐によって縫合した形状となっている。カーボンるつぼ、カーボンウールおよびカーボン紐は、いずれも超高純度処理がされたものを用いた。るつぼの温度制御は下部フランジ中央の温度計挿入口からファイバー型放射温度計を用いて行った。

るつぼから発生したエアロゾルは、高純度アルゴンガスによりエアロゾル捕集部へ送られる。炉体から捕集部までのエアロゾル輸送の配管は 2 つに分岐し、それぞれバルブを介して凝縮核カウンタ(Condensation Particle Counter、CPC)とカスケードインパクトとに接続されている。高周波炉は急速な昇温が可能であるが、熱衝撃によるるつぼ支持部等の破損を防ぐため、昇温と冷却は段階的に行った。るつぼへの試料の導入は、あらかじめ試料を炉体上部のガラス管の試料挿入部に入れておき、目的温度に達してから、外部からネオジウム磁石により押し出し棒を移動させてるつぼ内に落下させる方式とした。

微粒子発生抑制法の検討

炉内ができるだけ清浄な条件で加熱実験を行うために、あらかじめるつぼが空の状態での融融実験を行う温度まで加熱し、発生する微粒子の濃度の最小化を試みた。炉内でのエアロゾル濃度を CPC でモニターしながら融融実験の温度まで昇温しエアロゾル濃度の減少を測定した。具体的にはまず断熱材(カーボンウール)で覆ったるつぼを、真空とした加熱炉内で段階的に約 2,000°Cまで加熱し一定時間そのまま保持した。その後真空を維持したまま室温まで冷却した後、炉内にキャリアガスとして高純度アルゴンガスを、マスフローコントローラにより炉内流速を 5 L/min に調整して導入した。炉内を通過したアルゴンガスを微小粒子計数用の CPC に導き、るつぼ等から発生するエアロゾル粒子の個数濃度の経時変化を測定した。この状態でアルゴンガスを流しながら段階的に融融実験の温度まで昇温した後、エアロゾル濃度が減少するまでそのまま温度を維持した。濃度測定にあたっては、必要に応じて希釈器を用いた。

融融試料からのエアロゾルの発生と捕集

高エネルギー陽子加速器内で得られた放射化金属(粒状または細片状)などを試料として上記の加熱炉システムで融融実験を行い、発生したエアロゾル粒子を粒径別に捕集した。低融点の金属を中心に Al、Au などの金属試料を融融実験に供した。

アルゴン気流中でるつぼを約 1,800°Cまで加熱し、エアロゾル濃度がほぼエアロゾルフリーに確認した後、炉体下流の流路を切り替え、アルゴンガスをエアロゾル捕集部(カスケードインパクト)に導いた。炉内を通過したアルゴンガスは希釈されてインパクトの規定流量とされ、希釈によりほぼ室温まで冷却されてからインパクトへ導入された。この状態で、試料挿入部から金属試料 3~4g をるつぼ内に落下させ、試料の融融に伴い発生したエアロゾル(ヒューム)を約 30 分間インパクトで捕集した。カスケードインパクトは多段の粒径分画ステージを有し、各ステージの捕集材に粒径範囲別にエアロゾル粒子が捕集される。使用したのは、直接配管系に接続することが容易ないわゆるジャッキアップ型の低圧カスケードインパクトであり、捕集材の交換時に全体を分解する必要がなく、各ステージを横に引き出せる特徴があり、迅速な捕集材の交換が可能である。各ステージの捕集材とバックアップフィルタには共にテフロンバインダーフィルタを用いた。フィルタ上に捕集されたエアロゾルの定量には、少量で秤量できない場合は放射化分析を用いた。

4. 研究成果

高温炉システムの開発

まず、エアロゾル捕集に適した高周波誘導加熱炉システムの開発について述べる。炉体の昇温性能としてはエアロゾル捕集時のアルゴン気流下での加熱という条件で、2,100°Cまでの安定した加熱を達成した。また、物質の誘導加熱時の微粒子の発生は、発生法としても使われるくらいよく知られたものであり、実験時に、炉内にはエアロゾル実験を妨害するほどの高濃度の微粒子(エアロゾル粒子)が存在しているおそれがあった。予備実験の結果、不純物 ppb レベル以下の超高純度カーボンるつぼを用いても、個数濃度が 10^7 個/cm³以上の微粒子の発生が炉内で見られた。このため、実際に試料加熱を行う前にその濃度を大幅に減少させる必要があり、上述したように前処理としてるつぼの空焼きを、るつぼとカーボン断熱材を炉内の正規の位置に設置した上で行った。空焼きは真空中、および高純度アルゴン気流中でそれぞれ数時間行い、アルゴン気流中の加熱時には CPC により炉内のエアロゾル個数濃度の減少をモニターした。加熱温度は基本的に融融実験の際の温度とした。加熱中は、少しずつエアロゾル濃度の減少が見られたが、時折スパイク状に高濃度の粒子を放出するという濃度変化を繰り返しながら、個数濃度は減少した。加熱時間と最終的に到達した濃度には、るつぼの個体差が若干あったが、最終的な濃度は $10\sim 100$ 個/cm³となり、エアロゾルフリーに近い炉内環境が得られたとした。この温度条件のまま、上述のように試料をるつぼ内に投下し、融融実験を開始した。

放射化金属溶融実験とエアロゾルの粒径分析

以下では、放射化した Al 試料について溶融実験を行った時の結果について述べる。加熱温度は 1,850°C であり、試料挿入部から細片状の Al 試料を投下した直後から高濃度のエアロゾルの発生が認められた。試料投下直後のるつぼ温度(るつぼの底面を放射温度計で計測したもの)の低下は 30~40°C あったが、30 秒程度で 1,850°C まで復帰した。

Al の重量基準の粒径分布と放射性核種の放射能基準の粒径分布を求めた。重量基準の粒径分布では、インパクタの各捕集ステージのフィルタとバックアップフィルタを秤量し、捕集前後の差から捕集された Al の重量を算出した。空気中の加熱ではないので捕集重量をそのまま Al の重量とした。放射能は Ge 半導体検出器により測定した。放射化時の Al 試料には ^{22}Na と ^7Be が認められたが、本実験では、高い飛散率を持つと推定される ^{22}Na の放射能に基づく粒径分布(すなわち ^{22}Na を含有するエアロゾル粒子の粒径分布)のみを算出した。以下、一部予備的結果も含まれるが、粒径分布(空気力学的粒径)は次のようになった。Al の粒径は約 1.5 μm にピークを持つ分布が得られた。インパクタのバックアップフィルタに捕集された小粒径のエアロゾル粒子(空気換算で <60 nm)は全量の 0.5% に過ぎなかった。それに対して ^{22}Na では 60 nm 未満のものは 35% に達した。Al についてはバックアップフィルタ(<60 nm)に捕集されていたのは全量の 0.5% に過ぎなかったが、 ^{22}Na では 35% に達した。また 60 nm より大きい粒子については、 ^{22}Na は Al より粒径が小さく、0.3~0.4 μm にピークを持つ分布となった。すなわち ^{22}Na を含む粒子については 2 つの生成機構があり、おそらく加熱のごく初期に飛散する粒径の小さいものと、Al の粒子が生成する過程で粒子に取り込まれるものの存在が示唆される。Al だけで形成される粒子と、 ^{22}Na を含む粒子の粒径が異なることは Al が蒸発して凝縮する過程で ^{22}Na が均一に取り込まれて粒子を形成していないことを示している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 沖雄一, 三浦太一, 豊田晃弘, 西川功一, 中村一, 松村宏, 吉田剛, 榎本和義
2. 発表標題 高周波炉システムを用いた溶融した放射化金属試料からのエアロゾル捕集
3. 学会等名 第22回「環境放射能」研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 沖雄一, 三浦太一, 松村宏, 吉田剛, 豊田晃弘, 榎本和義
2. 発表標題 高周波炉システムを用いた放射化金属試料からのエアロゾル発生と粒径別捕集
3. 学会等名 第21回「環境放射能」研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 沖雄一, 三浦太一, 豊田晃弘, 中村一, 松村宏, 吉田剛, 榎本和義
2. 発表標題 溶融した加速器放射化物から発生するエアロゾルの捕集
3. 学会等名 第24回「環境放射能」研究会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

以下、国内学会査読ありプロシーディングス(「環境放射能」研究会)

沖雄一, 三浦太一, 松村宏, 吉田剛, 豊田晃弘, 榎本和義, "高周波炉システムを用いた放射化金属試料からのエアロゾル発生と粒径別捕集", KEK Proceedings, 2020-4, 46-49 (2020).

沖雄一, 三浦太一, 豊田晃弘, 西川功一, 中村一, 松村宏, 吉田剛, 榎本和義, "高周波炉システムを用いた溶融した放射化金属試料からのエアロゾル捕集", KEK Proceedings, 2021-2, 25-29 (2021).

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	松村 宏 (Matsumura Hiroshi) (30328661)	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・放射線科学センター・教授 (82118)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関