

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 15 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2020

課題番号：17K00560

研究課題名(和文)大強度加速器施設の気体中に生成される放射性核種の存在状態と挙動の解明

研究課題名(英文) Behavior of gaseous radionuclides produced at the high-power accelerator facilities

研究代表者

別所 光太郎 (Bessho, Kotaro)

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・准教授

研究者番号：10300675

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)：大強度の加速器施設では、加速粒子線で照射される標的等に膨大な放射性核種が生成される。生成された放射性核種の一部は、加速器の運転中に固体や液体の標的材料物質から気相に移行することが明らかになっており、核種の挙動について調査した。大強度陽子加速器施設J-PARCにおいて、30GeV陽子で照射される金標的内に生成される多様な核種の一部が標的容器内のヘリウム気体に移行する過程と、3GeV陽子で照射される液体水銀標的内に生成されるトリチウムが液体水銀-気相-ステンレス製容器間で移行する過程を詳細に解析した。生成核種の気相への移行と気相中での挙動の特徴について、核種の存在形態を考慮して定量的に考察した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

大強度の加速器施設では、機器の異常等により標的やその容器等が損傷した場合、多量の放射性核種が施設内や周辺環境に拡散する重大事故につながる可能性を有し、これらの事象発生を確実に防止することが安全確保上重要である。本研究では、加速器施設において各種気体中に生成される放射性核種の生成過程、存在状態、挙動について調査し、その特徴を議論した。得られた知見は、異常監視用放射線モニタの高度化、緊急時の核種拡散防止設備の検討等に有益な指針を与えるものである。また、固体や液体中に核反応で生成された放射性核種が気相に移行するメカニズムと時間スケール等の理解において、基礎科学的観点からも重要な知見である。

研究成果の概要(英文)：At the high-power accelerator facilities, large amounts of various radionuclides are produced in the targets bombarded with high-energy particles. It was found that some radionuclides transfer from the solid/liquid target materials to the gaseous phase during the accelerator operations. Behavior of radionuclides in gaseous phase was studied. At the Japan Proton Accelerator Research Complex (J-PARC) facilities, we investigated (1) the transferring process of radionuclides from the gold target into the helium gas phase and (2) the transferring process of radionuclides between the liquid-mercury target material, gaseous phase, and stainless-steel vessels. Characteristic behavior of the radionuclides in gaseous phase was discussed by considering the chemical forms of radionuclides.

研究分野：分析化学

キーワード：加速器 放射性核種 化学種 気相

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

茨城県東海村の大強度陽子加速器施設 J-PARC に代表される、大強度の加速器施設では、高エネルギーの加速粒子で直接照射される標的やビーム窓等に多量の放射能が生成される。加速器施設を安全に運用するためには、異常等が発生した際にも、標的等に生成された放射能が施設外や環境中に放出されることを防止する対策をとることが重要である。J-PARC では、2013 年に発生した放射性物質漏えい事故¹⁾の後、標的等の重要機器の異常を迅速かつ高感度に検知する放射線モニタの導入²⁾や緊急時の対応手順の明確化等により、放射性核種の拡散防止に関わる対策をより確実なものとするための検討が進められた。

加速器施設におけるこれらの設備対策をさらに効果的に運用し、施設の安全対策をより確実なものとするためには、固体や液体の標的材料中に生成される放射性核種の存在状態と挙動を定量的に理解し、放射性核種の挙動予測を踏まえて適切な備えと対応をすることが重要であるが、本研究開始の段階では、加速器施設の運転により気相中に生成される放射性核種の存在状態や挙動に関わる基礎的知見は、ほとんど明らかにされていなかった。

2. 研究の目的

本研究は、固体や液体の標的材料への高エネルギー粒子線照射による核反応によって初期的に生成された放射性核種が、どのようなメカニズムにより、どのような時間スケールで気相に移行し、気相中でどのようにふるまうかを明らかにすることを目的としたものである。

J-PARC は世界最高強度の陽子ビームを利用する高エネルギー加速器・実験施設であり、モデルケースとして、J-PARC 施設内の気相中において放射性核種の生成とその特徴について調査する取り組みは、様々な加速器施設において気相に生成される放射性核種が関与する事象を理解するために有効なアプローチとなるものと考えられる。

3. 研究の方法

本研究では、(1) J-PARC ハドロン実験施設における、金標的監視用ヘリウムガス中に生成される放射性核種の挙動解析、および(2) J-PARC 物質・生命学実験施設(MLF)における、水銀標的中に生成されるトリチウムのステンレス容器への吸着及び気相への移行挙動の解析について、検討を行った。各実験施設において、標的内における放射性核種の生成、気相への放射性核種の移行、気相における核種の存在状態と挙動等について議論するため、放射能測定、シミュレーション計算、化学種予測等の方法により総合的に検討した。

また、(1)(2)の検討の結果から明らかになった、加速器施設内の気相における放射性核種の挙動等に関わる基礎的知見を踏まえ、(3) 加速器施設における放射性物質漏えい事象等を想定した緊急時対応手順の明確化、緊急時対応訓練、安全教育等の取組みを進め、国内外の加速器施設との情報交流等の活動にも取り組んだ。

4. 研究成果

(1) J-PARC ハドロン実験施設における、金標的監視用ヘリウムガス中に生成される放射性核種の挙動解析

J-PARC ハドロン実験施設の二次粒子生成用金標的は、ヘリウムガス(80~90 kPa)を充填した標的容器内に設置され、30 GeV 陽子ビームに対する断面(横 15 mm × 縦 12 mm) × ビーム軸方向の長さ 66 mm の形状で、水冷された銅製台座上に固定されている。陽子ビームはチタン合金製の入射窓(厚さ 2 mm)から標的容器に入射し、金標的に照射された後、出射窓(厚さ 4 mm)を通過して、最終的にビームダンプへ輸送される。ビーム窓の除熱は、主に、循環ヘリウムガスへの放熱により行われる。

同施設では、2013 年 5 月の放射性物質漏えい事故¹⁾を踏まえ、万一標的損傷等の異常が発生した場合にもそれを迅速に検知するため、ビーム標的の容器を経由して循環するヘリウムガス中の放射能レベルを連続監視するシステム(図 1)を 2015 年から稼働している。²⁾ヘリウムガスの循環経路に組み込まれた Ge 半導体検出器によるガンマ線スペクトル測定の結果から、金標的に陽子ビームが照射された状態では、循環ヘリウムガス中に様々な放射性核種が極微量ながらもビーム強度に依存した濃度で定常的に生成され、検出されることが分かっていた。²⁾これらの核種は、標的やビーム窓等の固体材料中に初期的に生成された後に、ヘリウム気体に移行して検出されているものと考えられる。様々なビーム強度条件において、循環ヘリウム気体中に観測される放射性核種の種類と濃度を解析し、金標的及びビーム窓内における放射性核種の生成、固体材料から気相への放射性核種の移行の各プロセスについて、核種毎に特徴を調べた。

ビーム強度 50 kW の陽子ビームの連続運転中に観測されたガンマ線スペクトル³⁾には、消滅放射線(511 keV)、および C-10, N-16, O-14, O-19, O-20, F-20, Ne-23, Ne-24, Na-24 (Ne-24 娘), S-37, Ar-41, Au-192 (Hg-192 娘), Hg-191m, Hg-192, Hg-193m, Hg-195, Hg-195m 等に帰属される多数のピークが観測された。消滅放射線に対応する核種としては、ビームを停止した直後に測定したピーク強度の減衰解析から、C-11, N-13, F-18 等が候補の核種と推測された。これらの同定された放射性核種はいずれも、陽子線の照射による核反応で金標的またはチタン合金製ビーム窓に生成されることが、粒子輸送モンカルロシミュレーションコード PHITS⁴⁾を用いた計算により示された。ただし、金標的の内では Au-196, Au-198, Au-194 等、チタン合金製ビーム窓内では Sc-44, Sc-47, K-42 等の核種が主要な核種として生成されると見積もられたが、これらの核種は循環ヘリウム気体中からは検出されなかった。以上の結果は、固体内に生成された多様な核種のうちで、揮発性の高い化学種を生成すると予想される C, N, O, F, Ne, Ar, S, Hg 等の核種が選択的に気相に移行していることを示すと解釈される。

さらに定量的な解析のため、本システムの循環ヘリウム気体に対する Ge 半導体検出器の検出効率曲線を決定し、ビーム運転中に観測されたガンマ線ピークの計数率から、循環ヘリウム気体相全体における各放射性核種の存在量を見積もった。一方、30 GeV 陽子の照射に伴う金標的およびチタン合金製ビーム窓での放射性核種の生成量を PHITS コードにより計算した。ガンマ線スペクトルの解析により求めた気体中の各放射性核種の存在量と、固体中の核種生成量の計算値を比較することで、固体中の生成量に対する気相への移行割合を核種毎に算出した。

代表的な検出核種についての、ヘリウム気体への移行割合の概要を、以下に示す。

固体（金標的 + ビーム窓）中の核種生成量に対するヘリウム気体への移行割合

C-10, N-16, O-14, O-19, O-20, Ne-23, Ar-41 : $4 \sim 6 \times 10^{-4}$

F-20 : 3×10^{-5} ; S-37 : 9×10^{-5}

Hg-191m, Hg-192, Hg-193m, Hg-195, Hg-195m : $3 \sim 12 \times 10^{-5}$

C-10, N-16, O-14, O-19, O-20, Ne-23, Ar-41 については、気相への移行割合が類似した値を示すことが明らかになった。この結果は、常温でも気体状化学種を形成しやすいと推測される C, N, O, Ne, Ar 元素の核種が、固体（金標的、ビーム窓）から気相へ移行する割合は元素及び核種によらず類似していることを示しており、興味深い。一方、F-20, S-37 については、気相への移行割合が上記の核種に比べて小さな値となった。この特徴については、F 及び S 核種の一部が、固体表面でフッ化物や硫化物等の固体状化学種を形成して、気相へ脱離しにくくなっていることに対応する可能性が考えられ、さらに検討と考察に取り組んでいる。

また、Hg 核種の気相への移行割合も、C, N, O, Ne, Ar 核種の 1/20 ~ 1/4 程度の値となった。ハドロン実験施設への陽子ビーム運転中における標的の温度は、部位により異なるが、50 kW ビーム運転時には、1 ショットごとに 80 ~ 360 程度の範囲で変動することが分かっている。ここで、金属水銀の沸点が 357 (1 atm) であることを考慮すると、金の表面近傍に存在する Hg 核種のうちの一部のみが気化して気相に移行するものと予想され、この特徴に由来して、Hg 核種の気相への移行割合が比較的小さな値を示したものと現段階では考えている。ビーム運転中の標的温度はビーム強度に直接関係するが、気相への Hg 核種の移行割合も、標的の温度が高くなる（ビーム強度が大きくなる）ほど顕著に増大することからも、Hg 核種では蒸気圧（気相への移行しやすさ）の温度依存性が、気相への移行過程に大きな影響を与えているものと考えられる。³⁾

以上のように、固体の金標的内に生成された放射性核種の気相への移行の特徴は、生成された放射性核種の化学形態と密接に関係していることが強く示唆された。得られた知見は、ハドロン実験施設の標的異常監視システムのより有効な運用法の検討や、金標的や標的容器、ビーム窓等の各重要機器のいくつかの異なる種類の異常現象を監視するために注目すべきガンマ線ピークを選択などにおいても有益である。

今後も、化学種の同定や化学平衡を考慮した解析などを含めたより定量的な解析や、将来の新たな標的システムを想定した検討などの取組みも含め、気相中放射性核種の測定データの継続的な取得と解析を継続する。

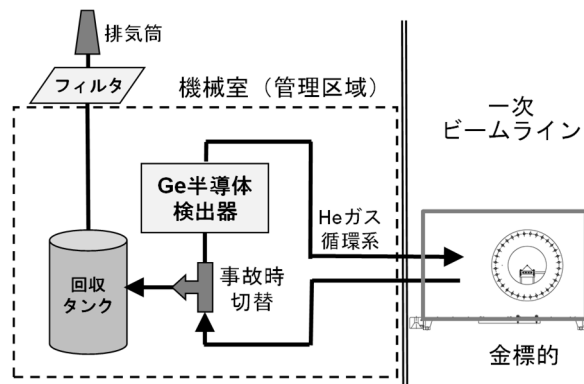


図1 J-PRAC ハドロン実験施設における標的ガス循環系放射線モニタシステムの概念図

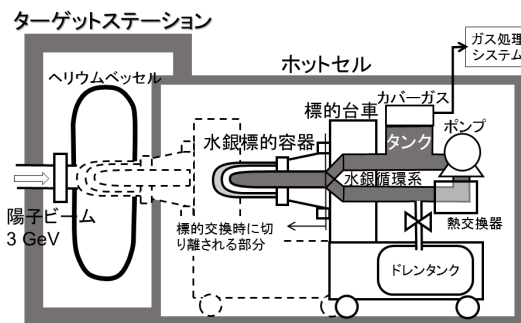
(2) J-PARC 物質・生命学実験施設 (MLF) における、水銀標的中に生成されるトリチウムのステンレス容器への吸着及び気相への移行挙動の解析

J-PARC 物質・生命学実験施設 (MLF) では、水銀を標的とする核破砕中性子源の運用を行っている。図 2 に MLF の水銀標的システムの概要を示す。水銀を内包する標的容器 (ステンレス製) は、放射線損傷等の観点から定期的な交換が必要となる。以下では、標的容器の交換作業時に観測されたトリチウム ($H-3(T)$) の放出挙動を中心に報告する。

検討では、放射性ガスの測定データや、水銀標的容器 (ステンレス製) 交換時の放射性ガスの室内モニタリングデータ等を調べ、放射性希ガス及びトリチウムの挙動について議論した。⁵⁾

1. 標的容器交換作業の概要

交換作業の事前準備として、系内のカバーガス (ヘリウム) をガス処理システムへ回収、循環系内の水銀をドレンタンクへ移動、ヘリウムガスによる循環系内浄化 (浄化に使ったガスはガス処理システムで回収) を実施した。これらの事前準備の後に、一連の標的容器交換作業を行った。標的容器は高汚染・高放射化物であることから、交換作業はホットセル内ですべて遠隔で実施した。



2. 交換作業時のトリチウム放出

一連の標的容器交換作業時に、ホットセル内の放射能濃度測定を実施したところ、トリチウム濃度の顕著な上昇が見られた。これは、ビーム運転時に水銀中で核破砕生成物として生成されたトリチウムの相当量が標的容器や配管等のステンレス材料に吸着され、標的交換作業のために循環系が開放された際に、ホットセル内空気中の水分子 (H_2O) との同位体交換により、HTO として気相に放出されたものと考えられる。

図 3 には、標的容器の先端部を放射線損傷評価目的の試験片として切り出した際に観測された、ホットセル内空気中のトリチウム濃度の時間変化を示す。観測された濃度変化は、ステンレスの表面近傍に存在するトリチウムが拡散により容器表面に到達し、空気中の水分子との同位体交換で気相に放出されるモデルを仮定することで、概ね説明できることが分かった。このような特徴は本研究で初めて明らかになったものであり、液体水銀標的を使用する施設の放射線安全管理上、重要な知見である。

液体水銀中でのビーム照射によるトリチウムの生成から、容器材料への吸収、さらに気相への放出までの物理的及び化学的プロセスの解明とともに、外的環境 (気温・湿度や容器材料の表面状態等) が放出挙動に及ぼす影響の解析などを、さらに継続している。

図 2 J-PARC MLF の水銀標的システムの概念図
水銀標的容器、水銀循環系 (ポンプ、タンク、熱交換器等) で構成され、可動式台車上に設置されている。ビーム運転時、台車は点線の位置にあり、標的容器はヘリウムベッセル内に位置する。標的容器の交換作業を行う際は、事前に水銀から発生した放射性ガスをガス処理システムで回収した上で、系内の水銀を台車下部のドレンタンクに移送し、循環系内を空にする。台車を後退させ、遠隔操作により、矢印で示す部位を切り離し、新しい容器を装着する。

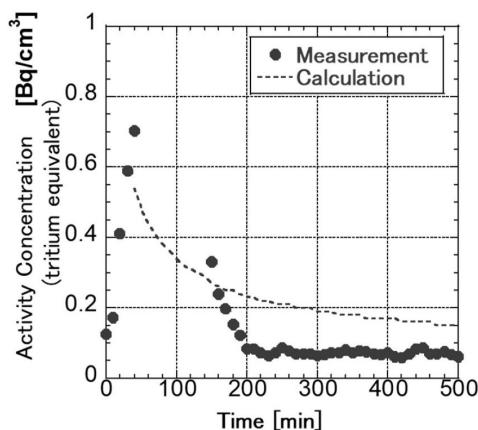


図 3 標的容器の先端部を試験片として切り出した際に観測された、ホットセル内空気中のトリチウム濃度の時間変化⁵⁾

(3) 加速器施設における放射性物質漏えい事象等を想定した緊急時対応手順の明確化、緊急時対応訓練、安全教育等の取組み

本研究 (1) (2) の検討で明らかになった加速器施設内で生成される放射性核種の気相中での挙動に関わる知見は、加速器施設で想定される気相を通じた放射性物質の施設外への漏えい等の事象を防止するための安全対策の向上に有益な指針を与えるものである。J-PARC では、加速器施設内における放射性物質の漏えい等を想定した緊急時対応手順を明確化し、各施設ごと

の特徴を踏まえた緊急時の対応指針・手順を定め、関係者に周知のための教育を実施している。また、これらの対応をより確実なものとするための緊急時対応訓練や、関連する情報やルール周知のための安全教育（e-ラーニング）等にも取り組んでいる。

本研究課題においても、これらの加速器施設における気体への放射性物質の漏えい事象等の緊急時の対応に関わる取組みを、国内外で行われた研究会等を通じ他の研究機関とも共有し、議論する活動を進めた。

< 引用文献 >

- 1) M. Baba, Radioactive Material Leak Incident at the Hadron Experimental Facility of J-PARC, *JPS Conference Proceedings*, **8** (2015) 051006
- 2) R. Muto et al., Monitoring System for the Gold Target by Radiation Detectors in Hadron Experimental Facility at J-PARC, *EPJ Web of Conferences*, **153** (2017) 07004
- 3) K. Bessho et al., Analysis of Radionuclides in Helium Gas Circulating Through the Target Chamber at the J-PARC Hadron Experimental Facility, *JPS Conference Proceedings*, **33** (2021) 011143
- 4) T. Sato et al., Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **55** (2018) 684
- 5) Y. Kasugai et al., Behavior of Tritium Release from a Stainless Vessel of the Mercury Target as a Spallation Neutron Source, *JPS Conference Proceedings*, **33** (2021) 011144

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Kotaro Bessho, Masayuki Hagiwara, Hiroaki Watanabe, Koichi Nishikawa, Ruri Kurasaki, Ryotaro Muto, Yoshimi Kasugai, Kiwamu Saito, and Hirohito Yamazaki	4. 巻 33
2. 論文標題 Analysis of radionuclides in helium gas circulating through the target chamber at the J-PARC Hadron Experimental Facility	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 011143-1 ~ 6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSCP.33.011143	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Yoshimi Kasugai, Koichi Sato, Kazutoshi Takahashi, Yukihiro Miyamoto, Tetsuya Kai, Masahide Harada, Katsuhiro Haga, and Hiroshi Takada	4. 巻 33
2. 論文標題 Behavior of tritium release from a stainless vessel of the mercury target as a spallation neutron source	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 011144-1 ~ 6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSCP.33.011144	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Kotaro Bessho, Yukihiro Miyamoto, Yoshihiro Nakane, Yoshimi Kasugai, Tetsuro Ishii
2. 発表標題 Activities for fostering safety culture in J-PARC
3. 学会等名 15th International Congress of the International Radiation Protection Association（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kotaro Bessho, Masayuki Hagiwara, Hiroaki Watanabe, Koichi Nishikawa, Ruri Kurasaki, Ryotaro Muto, Yoshimi Kasugai, Kiwamu Saito, and Hirohito Yamazaki
2. 発表標題 Behavior of gaseous radionuclides produced in the gold target at the J-PARC Hadron Experimental Facility
3. 学会等名 The 3rd J-PARC Symposium (J-PARC2019)（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yoshimi Kasugai, Koichi Sato, Kazutoshi Takahashi, Yukihiro Miyamoto, Tetsuya Kai, Masahide Harada, Katsuhiro Haga, and Hiroshi Takada
2. 発表標題 Behavior of tritium release from a stainless vessel of the mercury target as a spallation neutron source
3. 学会等名 The 3rd J-PARC Symposium (J-PARC2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yoshihiro Nakane, Kotaro Bessho, Yukihiro Miyamoto, and Tetsuro Ishii
2. 発表標題 Activities of Safety Promotion and Safety Management System in J-PARC
3. 学会等名 International Technical Safety Forum 2019 (ITSF 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 別所光太郎, 萩原雅之, 渡辺丈晃, 西川功一, 倉崎るり, 武藤亮太郎, 齋藤究, 春日井好己
2. 発表標題 J-PARC ハドロン実験施設の金標的監視用ガス中放射能とPHITS/DCHAIN-SPによる固体標的中生成放射能計算結果の比較
3. 学会等名 第14回PHITS研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 春日井好己, 佐藤浩一, 高橋一智, 宮本幸博, 甲斐哲也, 原田正英, 羽賀勝洋, 高田弘
2. 発表標題 水銀を使った核破碎中性子源標的容器からのトリチウム放出挙動
3. 学会等名 日本原子力学会「2018秋の大会」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 別所光太郎、萩原雅之、渡辺丈晃、西川功一、倉崎るり、武藤亮太郎、齋藤究、春日井好己
2. 発表標題 J-PARCハドロン実験施設の金標的監視用ガス中放射能の解析 (2) ~ ガス中放射能の観測値とシミュレーション計算結果の比較 ~
3. 学会等名 第19回「環境放射能」研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kotaro Bessho, Yasuhiro Makida, Mifuyu Ukai, Ken-ichi Kasuya
2. 発表標題 Safety guidelines on liquid hydrogen target systems for particle and nuclear physics experiments at J-PARC
3. 学会等名 International Technical Safety Forum 2017 (ITSF 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	春日井 好己 (Kasugai Yoshimi) (40354724)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究 部門 J - P A R C センター・リーダー (82110)	
研究 分担者	中根 佳弘 (Nakane Yoshihiro) (00354762)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究 部門 J - P A R C センター・リーダー (82110)	

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
---------	---------