

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2021

課題番号：17K07010

研究課題名(和文) 低エネルギー荷電粒子の核反応による誘導放射能の系統的測定とデータベース化

研究課題名(英文) Systematic measurement and database construction of residual activities induced by low energy charged particle

研究代表者

八島 浩 (Hiroshi, Yashima)

京都大学・複合原子力科学研究所・助教

研究者番号：40378972

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：加速器施設の廃止措置において、発生する廃棄物中の生成放射能評価が必要となる。最近では、計算で放射化量とその範囲を見積もり、実測値でその妥当性を確認することが求められている。そこで本研究では、放射化断面積データベースに最新の知見を反映させるとともに計算コードの精度向上に資する知見を得ることを目的として重イオン入射による照射実験を行い、核子当たり数10MeV以下の重イオン入射による誘導放射能の系統的実験データの取得及び取得した実験結果を用いて断面積データライブラリの評価値や計算コードの計算値の妥当性確認を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

加速器施設の廃止措置において、発生する廃棄物中の生成放射能評価が必要となる。最近では、計算で放射化量とその範囲を見積もり、実測値でその妥当性を確認することが求められているが、特に重イオン入射反応については実験データが乏しく断面積データライブラリや計算コードも十分に検証されていない。本研究で得られた重イオン入射反応についての系統的測定結果や断面積データライブラリや計算コードの妥当性確認結果は放射化断面積のデータベースを整備する上で有用であると考えられる。

研究成果の概要(英文)：The decommissioning of old accelerator facilities requires activation cross section data to estimate the residual activities induced in the accelerator components. But experimental data of activation cross section are very scarce for low energy (lower than several tens MeV) heavy ions which were required for decommissioning of accelerator facilities such as tandem accelerator and cyclotron. We therefore irradiated heavy ions onto a Cu target to obtain experimental data of residual radioactivities for low energy heavy ions. The obtained experimental data were compared with evaluated results of database and calculated results of calculation code. The present results will be useful as benchmark data to evaluate nuclear data, investigate the accuracy of calculation codes.

研究分野：原子力学

キーワード：誘導放射能 放射化断面積

## 1. 研究開始当初の背景

加速器施設は原子核物理、RI 生成、材料研究、物質及び生命科学、医療応用等、様々な分野で利用されており大規模なものから小規模なものまで様々な加速器施設が稼働している。日本アイソトープ協会の放射線利用統計によると 2001 年 3 月末時点で 1,144 台だった日本の加速器施設が 2015 年 3 月末時点では 1,652 台と約 1.5 倍に増加している。[1]このように加速器施設の利用が進展していく一方で役割を終えた施設及び老朽化した施設については廃止措置を行わなくてはならない。加速器施設の廃止措置においては発生する廃棄物中の生成放射能評価が必要となる。最近では、計算で放射化量とその範囲を見積もり、実測値でその妥当性を確認することが求められている。

生成放射能計算においては放射化断面積データベースが必要となるが、低エネルギー(核子当たり数 10MeV 以下)重イオン入射によって生成する放射化断面積については放射化評価計算コード IRACM[2] 中に整備されている断面積データライブラリ(ACSELAM Library)[3]位しかない。ACSELAM Library には核反応計算コード ALICE-F[4]を用いて計算された放射化断面積データが格納されている。核反応計算コードや断面積データライブラリは実験データによってその妥当性を評価されるが低エネルギー重イオン入射に関しては実験データが乏しいため、検証が十分にはできていない状況である。

## 2. 研究の目的

そこで本研究では、重イオン入射による照射実験を行い、照射ターゲット中の放射性核種の励起関数の系統的測定を行い、核子当たり数 10MeV 以下の重イオン入射による誘導放射能の系統の実験データを取得する。取得した実験結果を用いて断面積データライブラリの評価値と比較することで、評価値の妥当性確認を行うとともに最新の計算コードを用いて放射化断面積計算を行い、放射化断面積データベースに最新の知見を反映させるとともに計算コードの精度向上に資する知見を得ることを目的としている。

## 3. 研究の方法

照射実験は放射線医学総合研究所サイクロトロン C6 コースで行った。系統的な実験データを取得するためにヘリウム粒子、炭素粒子、窒素粒子、酸素粒子、ネオン粒子を照射した。加速器施設においてよく使用される銅箔を重ねてターゲットとした。入射粒子の飛程及びエネルギー損失から銅箔の厚さと枚数を決定した。ヘリウム粒子照射実験では入射粒子のエネルギー及び粒子数を確認するためのモニタ箔を銅試料に挿入した。短半減期核種測定のための短時間照射(数 10 分)、長半減期核種測定のための長時間照射(数時間)の 2 回、ターゲットに照射した。照射実験では、ターゲットからの電流信号をカレントインテグレータに入力し、照射粒子数を求めた。また、カレントインテグレータの出力を Multi channel Scaler で記録することで照射中のビーム強度変動を補正した。照射終了後、高純度 Ge 検出器を用いて照射されたサンプルから放出されるガンマ線を測定し、得られたガンマ線スペクトルからサンプルに生成した核種の生成断面積を求めた。SRIM コード[1]で計算された阻止能を用いて入射イオンのターゲット内でのエネルギー損失を補正することで励起関数を導出した。

## 4. 研究成果

図 1(a)(b)にヘリウム粒子入射によって生成した放射性核種の励起関数の例として  ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(\alpha, X){}^{51}\text{Cr}$  反応及び  ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha, X){}^{66}\text{Ga}$  反応の結果を他の実験値[5-11]や IAEA がまとめている標準断面積[12]、TENDL-2017 データライブラリ[13]の結果とともに載せている。本結果は他の実験値や IAEA 標準断面積とよく一致しており、本研究方法で正確な断面積データが測定できていることを示している。また、TENDL-2017 データライブラリの結果は  ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(\alpha, X){}^{51}\text{Cr}$  反応については本研究の結果や他の結果とよく合っているが  ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha, X){}^{66}\text{Ga}$  反応についてはエネルギーによっては本研究の結果や他の結果と合わない部分も見られた。

図 1(c)-(h)に炭素粒子、窒素粒子、酸素粒子、ネオン粒子入射によって銅に生成した放射性核種の励起関数の例として  ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(N, X){}^{73}\text{Se}$  反応、 ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(C, X){}^{71}\text{As}$  反応、 ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(O, X){}^{69}\text{Ge}$  反応、 ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{Ne}, X){}^{65}\text{Zn}$  反応、 ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(O, X){}^{60}\text{Co}$  反応、 ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(N, X){}^{58}\text{Co}$  反応の結果を ACSELAM Library 及び PACE4 計算コード[14,15]の計算結果とともに示す。本研究では 1 つの入射粒子に対して異なる入射エネルギーで照射実験を行ったがお互いの結果はよく一致していた。 ${}^{73}\text{Se}$ ,  ${}^{71}\text{As}$ ,  ${}^{69}\text{Ge}$  のようなターゲット核種の銅よりも重い生成核種の励起関数はしきいエネルギー付近にピークを持ち入射エネルギーの増加とともに断面積が減少していた。一方で  ${}^{65}\text{Zn}$ ,  ${}^{60}\text{Co}$ ,  ${}^{58}\text{Co}$  のようなターゲット核種の銅と同じぐらいもしくは軽い生成核種の励起関数は入射エネルギーの増加とともに

に断面積も増加していた。ACSELAM Library の評価値は様々な反応に関して実験で得られた励起関数と異なる場所が見られた。一方で PACE4 計算コードの計算値は一部の反応について実験で得られた励起関数との違いが見られたが全体的には実験値を良く再現していた。

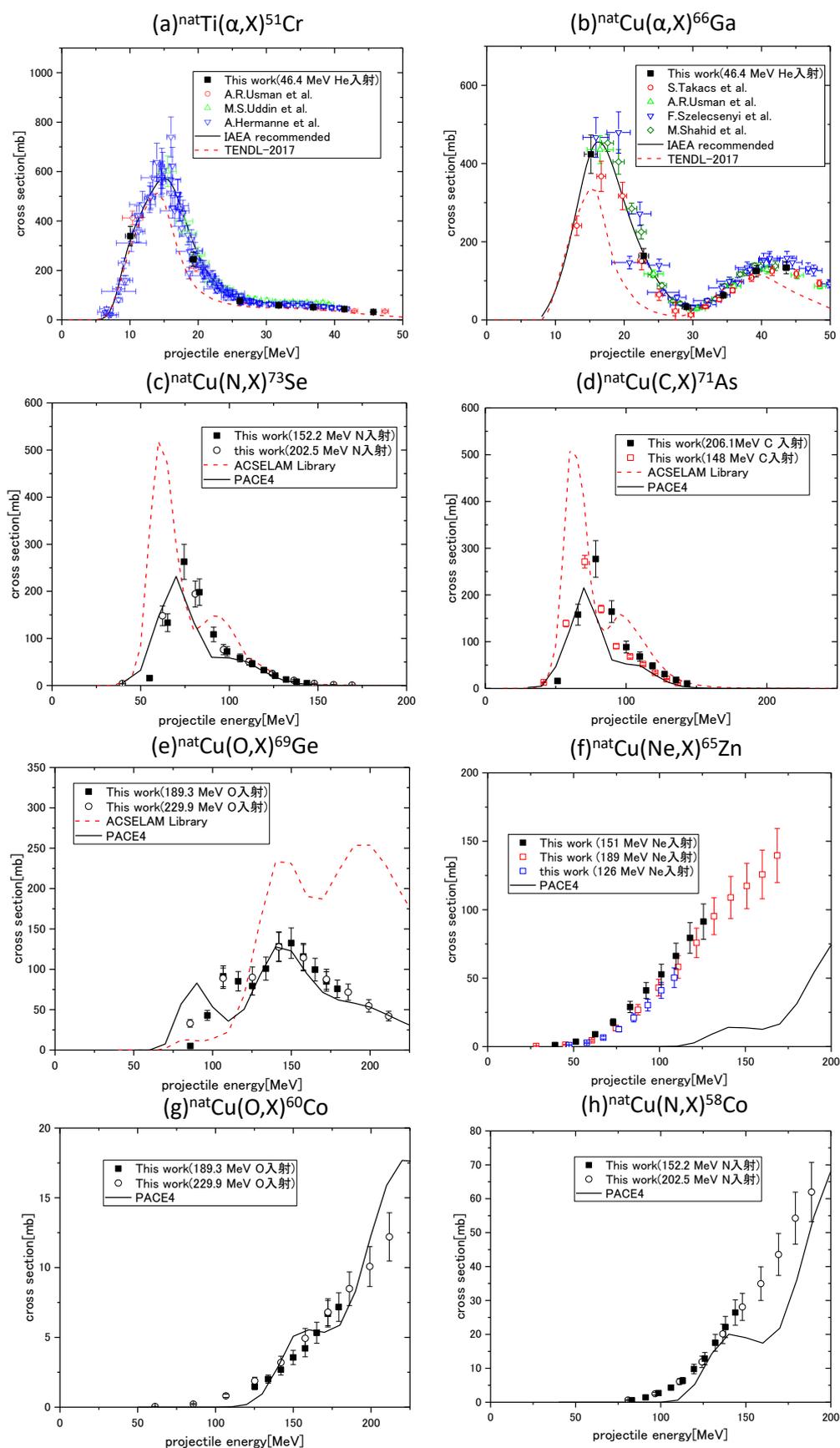


図1 重イオン入射によって生成した放射性核種の励起関数

参考文献

[1] 日本アイソトープ協会ホームページ 放射線利用統計

<http://www.jrias.or.jp/report/cat/101.html>

- [2] 田中進他、IRACM:イオン及び中性子による生成放射能の計算コードシステム、JAERI-Data/Code 97-019(1997)
- [3] <http://wwwndc.jaea.go.jp/ftpnd/sae/acl.html>
- [4] T. Fukahori et al., Proc. of the Specialists' Meeting on High Energy Nuclear Data, Tokai, October 3-4, 1991, JAERI-M 92-039, pp. 114-122 (1992)
- [5] A.R. Usman et al: Excitation functions of alpha particles induced nuclear reactions on natural titanium in the energy range of 10.4-50.2 MeV. Nucl. Instrum. Methods B399, 34-47(2017).
- [6] M.S.Uddin et al.: Excitation functions of alpha particle induced reactions on natTi up to 40 MeV. Nucl. Instrum. Methods B380, 15-19(2016).
- [7] A.Hermanne et al.: Excitation functions of nuclear reactions induced by alpha particles up to 42 MeV on natTi for monitoring purposes and TLA. Nucl. Instrum. Methods B152, 187-201(1999).
- [8] S. Takacs et al.: Crosschecking of alpha particle monitor reactions up to 50 MeV. Nucl. Instrum. Methods B397, 33-38(2017).
- [9] A.R.Usman et al,: Production cross-sections of radionuclides from  $\alpha$ -induced reactions on natural copper up to 50MeV. Appl. Radiat. Isotopes 114, 104-113(2016).
- [10] F. Szelecsenyi et al.: Alpha beam monitoring via natCu + alpha processes in the energy range from 40 to 60 MeV. Nucl. Instrum. Methods B184, 589-596(2001).
- [11] M. Shahid et al.: Measurement of excitation functions in alpha induced reactions on natCu. Nucl. Instrum. Methods B358, 160-167(2015).
- [12] F. Tarkanyi et al.: Charged particle cross-section database for medical radioisotope production: diagnostic radioisotopes and monitor reactions, IAEA-TECDOC-1211(2001).
- [13] A. J. Koning et al.: Modern nuclear data evaluation with the TALYS code system. Nucl. Data Sheets, 113, 2841-2934(2012).
- [14] A. Gavron, "Statistical model calculations in heavy ion reactions", Phys. Rev. C 21, 230(1980).
- [15] O.B.Tarasov and D.Bazin, "LISE++: Radioactive beam production with in-flight separators", Nucl. Instr. And Meth. B 266, 4657(2008).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yashima Hiroshi, Hagiwara Masayuki, Sanami Toshiya, Yonai Shunsuke	4. 巻 254
2. 論文標題 Excitation Function Measurements of Alpha-Induced Reaction on Natural Copper and Titanium Up To 46 MeV	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Springer Proceedings in Physics	6. 最初と最後の頁 251 ~ 253
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/978-3-030-58082-7_32	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 H. Yashima et al.
2. 発表標題 Excitation functions for neon-induced reactions on copper up to 180 MeV
3. 学会等名 the 2nd International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistry (RANC 2019). (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Yashima et al.
2. 発表標題 Induced activity measurements in Cu target for Ne and C ions
3. 学会等名 the 3rd International Conference on Dosimetry and its Applications (ICDA-3) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Yashima et al.
2. 発表標題 MEASUREMENTS OF THE ALPHA-INDUCED ACTIVATION CROSS SECTIONS FOR CU
3. 学会等名 11th Methods and Application of Radioanalytical Chemistry (MARC-XI) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Yashima et al.
2. 発表標題 Excitation function measurements of alpha-induced reaction on natural copper and titanium up to 46 MeV
3. 学会等名 6th International Workshop on Compound-Nuclear Reactions and Related Topic (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 八島浩他
2. 発表標題 炭素イオン入射による銅ターゲット中の誘導放射能分布の測定
3. 学会等名 日本原子力学会2018年春の年会
4. 発表年 2018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	萩原 雅之  (Hagiwara Masayuki)  (10450363)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究 所 放射光科学研究センター・併任  (82502)	

	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
連携 研究者	米内 俊祐  (Yonai Shunsuke)  (00415431)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・放射線医学総 合研究所 加速器工学部・チームリーダー(定常)  (82502)	
連携 研究者	涌井 崇志  (Wakui Takashi)  (70359644)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・放射線医学総 合研究所 加速器工学部・室長  (82502)	

6. 研究組織（つづき）

	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
連携研究者	佐波 俊哉  (Sanami Toshiya)  (90321538)	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