

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 5 月 29 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2016

課題番号：25790081

研究課題名(和文)高放射線場における放射性エアロゾルの生成起源とそのメカニズムの解明

研究課題名(英文)Production mechanism of radioactive aerosols in high radiation area

研究代表者

関本 俊 (Sekimoto, Shun)

京都大学・原子炉実験所・助教

研究者番号：10420407

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：高エネルギー(120 GeV)陽子で照射した種々の標的核(Co, Ni, Cu, Y, Au)において、軽核(Be-10, Al-26)の生成断面積を測定し、文献値と比較した。入射エネルギーが数GeV以上の場合、標的核の質量数が増すにつれて、Be-10の生成断面積は増加した。また入射エネルギーが数百MeVの場合、標的核の質量数が約80以下においては、その質量数が増すにつれ、Be-10とAl-26の生成断面積は減少し、標的核がYより重くなると、両者の生成断面積は増加に転ずる傾向が見られた。これらの傾向は、軽核の生成断面積に、結合エネルギーや標的核の原子核半径が関係することを示唆した。

研究成果の概要(英文)：The production cross sections of Be-10 and Al-26 produced from various target materials (Co, Ni, Cu, Y, Au) irradiated with 120 GeV protons and those of Be-10 from Cu, Y and Tb targets irradiated with 400 MeV protons were measured by accelerator mass spectrometry. Those of Be-10 and Al-26 obtained in this work are compared to the literature data, which are production cross sections of corresponding light nuclides produced from various target elements irradiated with 50 MeV-12 GeV protons. From the comparison, induced energy- and target mass number-dependence of production cross section of light nuclides were discussed and then, it was suggested that dependence of production cross sections of light nuclides on the target mass number is affected by the binding energy. The difference in the absolute values between production cross sections of Be-10 and Al-26 may depend on the impact parameter and the target nucleus stiffness.

研究分野：放射化学

キーワード：軽核 Be-10 Al-26 加速器質量分析

## 1. 研究開始当初の背景

運転中の加速器室内では、二次的に発生した中性子などの放射線により、放射性エアロゾルが生成される。この放射性エアロゾルの生成機構や粒径分布の情報は内部被ばく線量評価の観点から重要であり、これまでに放射性エアロゾルの種類、生成機構に関する研究やエアロゾル発生時の粒径分布、エアロゾルとガスの比率に関する研究が、ビームエネルギーが数 10~100 MeV 程度の加速器を用いてなされている。

研究代表者は、米国フェルミ国立加速器研究所 (FNAL) の反陽子ターゲットステーション (APO) において、超高エネルギー陽子による生成二次粒子線の物質内挙動解析に関する実験に参加する機会を得た。そこで予備実験として APO のターゲット室内より放射性エアロゾルを分級して捕集し、含まれる核種及び粒径の分析を行った (平成 22 年度に実施)。尚、APO では、ターゲットのインコネルに 120 GeV の陽子ビームを入射しており、ターゲット及び周辺の空気や構成物との核反応により多種の放射性核種が生成し、高濃度の放射性エアロゾルが生成される。

その結果、Be-7 等の 14 核種を検出し、それらの核種ごとに粒径分布及び幾何中央径を求めたところ、その中央径がこれまでに報告された低エネルギー加速器施設で得られた結果よりもほぼ 1 桁大きいこと、これらの核種の半減期と粒径に比例関係があること (図 1) がわかった。

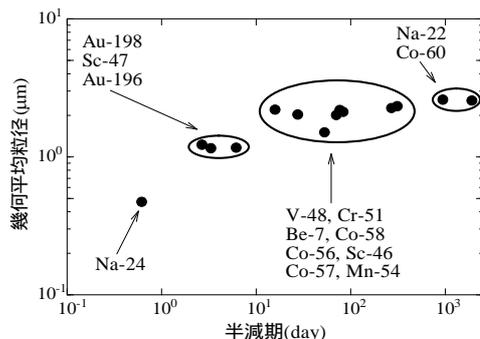


図 1 放射性エアロゾルの粒径とそれに含まれる放射性核種の半減期との関係

上記の結果は、これまでの低エネルギーの加速器施設での研究では見られなかった結果である。特に、従来の報告では数 10 nm 程度であったエアロゾルの中央径が 1 桁以上も大きい原因は、未解決である。予備実験においてなぜこのような結果が得られたのかの追究は、エアロゾルの生成機構とも関連して非常に重要な課題であるが、平成 23 年に APO は休止し、同様の追加実験は不可能である。

## 2. 研究の目的

(1) そこで本研究では、上記問題の解明を目指し、休止した APO とは別の 120 GeV 陽子ビームライン (M01) を用いて、新たに放射性エアロゾルの分析を行う。まず予備実験での

放射性エアロゾル中に確認された 14 核種の起源を明らかにする。これまでターゲットであったインコネルの構成物質であるクロム、鉄、ニッケル、ニオブ、モリブデンなどの純金属のターゲットに個別に 120 GeV の陽子ビームを照射し、ターゲット周辺に生成する放射性エアロゾルをサンプリングし、それに含まれる放射性核種の分析及びそれらの粒径分布の測定を行う。100 GeV をこえる超高エネルギー加速器を用いた実験は FNAL 以外では不可能である。新たなビームライン (M01) を用いて、実験手法を改良、統計精度を上げてデータを取得し、予備実験で得られた問題点及び放射性エアロゾルの生成機構の解明を目指す。しかし、平成 25 年度に上記の照射実験及びエアロゾルのサンプリングを実施したところ、以前の APO でのサンプリングのときほど、エアロゾルの収量が得られず、同様のサンプリングが困難であることがわかった。そこで、120 GeV の陽子ビームを照射した純金属のターゲット中に生成した軽核: Be-10, Al-26 の生成断面積の測定を行い、これまでに報告値の無い核データを新に得ることを目標とした。これらのデータは、核データ分野のみならず、加速器ターゲット室内の放射性エアロゾルの種類、量、粒径及びその成長速度に関する情報に、密接に関連することから、遮蔽分野及び内部被ばくの観点において、重要な知見になると考えられる。

(2) 放射性の Be-10, Al-26 は宇宙線生成核種と呼ばれ、その生成断面積は宇宙化学的にも重要である。宇宙空間を飛び交う様々なエネルギーの陽子や中性子による宇宙線と、隕石を構成する原子核との核破砕反応によって Be-10, Al-26 は生成し、これらは隕石中に高濃度で存在する。隕石が宇宙線にさらされていた履歴や、それに基づく隕石の分類を行うためには、隕石中の Be-10, Al-26 の量を正しく評価することが必要である。そこで本研究では、これらフラグメンテーション核種の生成断面積を、入射エネルギー、標的核依存性に関して広い領域において系統的に調べるに至った。

Be-10, Al-26 の生成断面積は、標的核の質量数が 12~60 の領域において、入射陽子のエネルギー ( $E_p$ ) が数百 MeV までの領域で多数報告されている。しかし標的核の質量数が 60 以上の領域についてはほとんど研究されておらず [1, 2]、また同様に、入射エネルギーに関しても数十 GeV 以上の領域はほとんど報告がない [3]。本研究では、標的核として中重核 (Al-27, Co-59, Ni-nat, Cu-nat, Y-89, Tb-159, Au-197)、入射エネルギーとして 400 MeV, 120 GeV を用いて、Be-10, Al-26 の生成断面積の測定を行った。さらに得られた測定結果と過去の報告例から、Be-10, Al-26 の生成断面積の入射エネルギー依存性、標的核依存性、に関して考察した。

### 3. 研究の方法

#### (1) 陽子照射

陽子照射は大阪大学核物理研究センターのリングサイクロトロン、および米国フェルミ国立加速器研究所の Meson test ビームラインで、それぞれ加速エネルギーが 400 MeV, 120 GeV の陽子ビームを用いて行った。400 MeV 陽子照射には Y-89, Tb-159 を標的として使い、それぞれの厚さ(mm)は 0.25, 0.025 である。また陽子ビームの強度は  $101.5 \pm 4.5$  nA であり、照射時間は 183.8 s である。120 GeV 陽子照射には Al-27, Co-59, Ni-nat, Cu-nat, Y-89, Au-197 を標的として使い、表 1 に示す条件で照射を行った。

表 1 120 GeV 陽子の照射条件

標的核	厚さ (mm)	ビーム電流 (proton / sec)	照射時間 (sec)
<sup>27</sup> Al	0.03	$1.12 \times 10^9$	3000
<sup>59</sup> Co	0.1	$6.35 \times 10^8$	16200
natNi	0.2	$1.20 \times 10^9$	10500
natCu	0.03	$8.84 \times 10^8$	11100
<sup>89</sup> Y	1.0	$1.33 \times 10^9$	15900
<sup>197</sup> Au	0.03	$1.11 \times 10^9$	12900

#### (2) Be, Al の化学分離

Al, Co, Ni 試料は塩酸に、Cu, Y, Tb 試料は硝酸に、Au 試料は 30 %塩酸と 60 %硝酸の 6:1 の混合溶液に溶かした。次にそれぞれの溶液にキャリアとして、Be キャリア(Be-9:  $1.32 \times 10^{19}$  atom)、Al キャリア(Al-27:  $1.12 \times 10^{19}$  atom) を添加した。なお Al 試料に関しては Be キャリアのみ加えた。Ni, Y, Tb 試料溶液にはシュウ酸を滴下し、Ni, Y, Tb をシュウ酸塩として沈殿除去した。Co, Cu, Au 試料溶液は陰イオン交換カラムによって、Co, Cu, Au を樹脂に吸着させて試料溶液から除去した。続いて陽イオン交換樹脂、1.0 M, 1.5 M 塩酸を用いて、陽イオン交換カラムによって Be<sup>2+</sup>, Al<sup>3+</sup> を分離した。なお Al 試料は塩酸に溶解後、特別な操作をせずに陽イオン交換カラムに添加した。

Be, Al 溶液の pH を 1.0 M アンモニア水を用いて約 8 に調整し、生成した白色ゲル状の Be(OH)<sub>2</sub>, Al(OH)<sub>3</sub> を沈殿回収した後、これを milli-Q 水で洗浄した。Be に関しては、得られた固体を電子レンジ坩堝に入れ、850 °C で 6 分 30 秒間焼成し、BeO とした。また Al に関しては、得られた固体を電気炉に入れ、900 °C で 1 時間焼成し、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> とした。

#### (3) 加速器質量分析および生成断面積の算出

単離した BeO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> における同位体比(Be-10 / Be-9, Al-26 / Al-27) を、東京大学タンデム加速器研究施設の加速器質量分析(AMS) によって測定した。

加速器質量分析とはタンデム加速器を用いた質量分析法であり、極めて稀な存在度の同位体とその元素の安定同位体との比を高感度で測定することが出来る。BeO を用いて、Be の同位体比を求める場合を例に、図 2 に加速器質量分析の原理を示した。

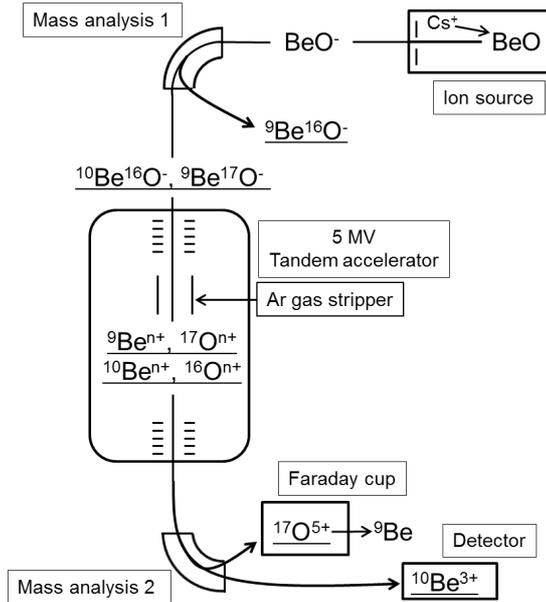


図 2 加速器質量分析(AMS)について

まず BeO が Cs<sup>+</sup>によってスパッタされ、一価の負イオン BeO<sup>-</sup>が生じる。これが低エネルギー側質量分析系 1 (分析電磁石 + 静電偏向器) に導かれ、質量数、電荷、エネルギーに応じて選別される。続いて加速器内で、負イオンが加速されるとともに、電子がはぎ取られ、正イオンに変換される。この時 BeO は Be と O に分解する。正イオンは加速器内で再度加速された後、高エネルギー側質量分析系 2 (分析電磁石 + 静電偏向器) へ導かれる。低エネルギー側質量分析系 1 と同様に、正イオンは質量数、エネルギー、電荷に応じて選別される。ここでは <sup>10</sup>Be<sup>3+</sup>と <sup>17</sup>O<sup>5+</sup>を選別し、それぞれの量を検出器とファラデーカップで測定する。得られた値から、荷電変換効率、酸素同位体比 (<sup>16</sup>O: <sup>17</sup>O) を用いて、試料中の Be の同位体比 (<sup>10</sup>Be / <sup>9</sup>Be) が算出できる。得られた同位体比と添加したキャリア量(<sup>9</sup>Be, <sup>27</sup>Al の量) により、生成した Be-10, Al-26 の原子数(N) を求め、以下の式で生成断面積 (E) [b], (1 b = 10<sup>-24</sup>cm<sup>2</sup>) を算出した。

$$(E) = \ln x / N$$

ここで N (atom) は生成核の原子数、I (atom) は入射粒子数、n (atom / cm<sup>3</sup>) は標的核の密度、x (cm) は標的核の厚さを表す。

### 4. 研究成果

(1) Be-10, Al-26 の生成断面積の測定結果 得られた生成断面積の結果を表 2-3 に示す。

表2 生成断面積の測定結果(120 GeV 陽子)

核反応	生成断面積(mb)
$^{59}\text{Co}(p, x)^{10}\text{Be}$	$4.37 \pm 0.31$
$^{\text{nat}}\text{Ni}(p, x)^{10}\text{Be}$	$2.82 \pm 0.17$
$^{\text{nat}}\text{Cu}(p, x)^{10}\text{Be}$	$5.81 \pm 0.53$
$^{89}\text{Y}(p, x)^{10}\text{Be}$	$8.74 \pm 0.29$
$^{197}\text{Au}(p, x)^{10}\text{Be}$	$54.7 \pm 3.6$
$^{59}\text{Co}(p, x)^{26}\text{Al}$	$1.64 \pm 0.31$
$^{\text{nat}}\text{Ni}(p, x)^{26}\text{Al}$	$2.60 \pm 0.19$
$^{\text{nat}}\text{Cu}(p, x)^{26}\text{Al}$	$0.92 \pm 0.27$
$^{89}\text{Y}(p, x)^{26}\text{Al}$	$0.83 \pm 0.05$
$^{197}\text{Au}(p, x)^{26}\text{Al}$	$1.68 \pm 0.47$

表3 生成断面積の測定結果(400 MeV 陽子)

核反応	生成断面積(mb)
$^{89}\text{Y}(p, x)^{10}\text{Be}$	$0.22 \pm 0.01$
$^{159}\text{Tb}(p, x)^{10}\text{Be}$	$0.43 \pm 0.04$
$^{89}\text{Y}(p, x)^{26}\text{Al}$	$0.12 \pm 0.06$

(2) Be-10, Al-26 の生成断面積の標的核依存性、照射エネルギー依存性

本研究の結果と文献値[1-9]を用いて、Be-10 の生成断面積を標的核の質量数(A)に対してプロットした(図3)。入射エネルギーが数 GeV 以上の場合、そのエネルギーに依らず、標的核の質量数が増すにつれて生成断面積も増加する傾向が見られた。原子核半径はその原子核の質量数に依存することから、Be-10 の生成断面積も原子核半径に依存していることが示唆された。一方、入射エネルギーが数百 MeV の場合、標的核が炭素(A = 12)からニッケル(A = 58-64)にかけて、その質量数が増すにつれて生成断面積は減少し、標的核がイットリウム(A = 89)より重くなると、その質量数が増すにつれて生成断面積は増加に転ずる傾向が見られた。

同様に、本研究結果と文献値[1-3, 6, 8, 10]を用いて、Al-26 の生成断面積を標的核の質量数に対してプロットした(図4)。生成核が Al-26 の場合、標的核がアルミニウム(A = 27)から亜鉛(A = 64-70)にかけて、質量数が増すにつれて生成断面積は減少し、標的核がイットリウム(A = 89)より重くなると、質量数が増すにつれて生成断面積が増大する傾向が見られた。この傾向は入射エネルギーが数百 MeV における Be-10 の生成断面積の傾向と似ているが、Be-10 の場合と異なり、入射エネルギーが数十 GeV 以上においても、Al-26 の生成断面積は減少から増加に転ずる同様の傾向を示した。この傾向から Al-26 の生成

断面積と入射エネルギーが数百 MeV の場合の Be-10 の生成断面積は、標的核の質量数が 60 ~ 80 付近で極小値をとることが示唆された。一般に、質量数が 60 ~ 80 付近で核子あたりの結合エネルギーは最も大きく、最も安定な原子核であることが知られている。生成断面積の極小値と、結合エネルギーが最大値を示す質量数がほぼ一致しており、このことは Al-26 の生成断面積と入射エネルギーが数百 MeV の場合の Be-10 の生成断面積が、結合エネルギーの影響を受けている可能性を示唆している。ただし、これらをさらに検討するためには、標的核の破壊され方を詳細に見積もることができる分子動力学に基づいた理論的な計算を用いて、本実験結果を解釈する必要がある。

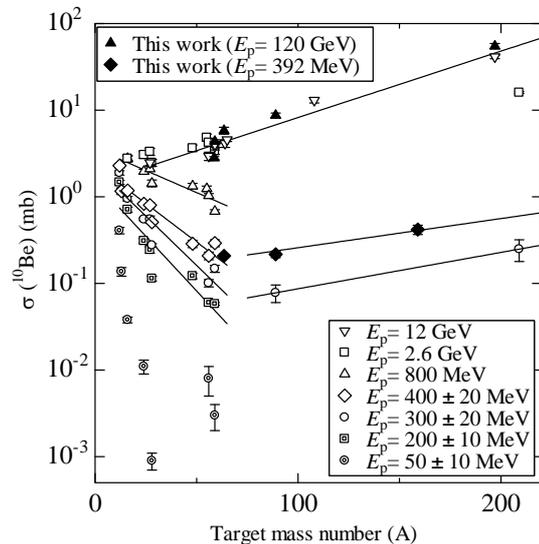


図3 標的核の質量数と Be-10 の生成断面積

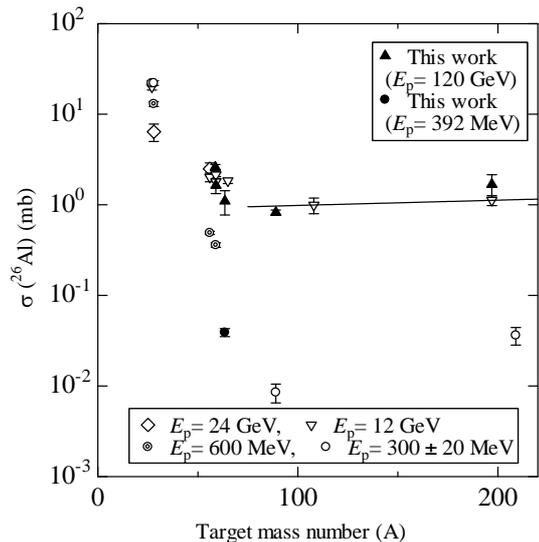


図4 標的核の質量数と Al-26 の生成断面積

(3) 本研究で新たに Be-10 に関して7つの生成断面積を、Al-26 に関して6つの生成断面積を測定した。Be-10 に関して、入射エネルギーが数 GeV 以上の場合、標的核の質量数が増すにつれて生成断面積も増加する傾向が見られた。また Al-26 の生成断面積と入射

エネルギーが数百 MeV の場合の Be-10 の生成断面積は、標的核の質量数が 80 程度以下において、その質量数が増すにつれて生成断面積は減少し、標的核がイットリウム(A = 89)より重くなると、その質量数が増すにつれて生成断面積は増加に転ずる傾向が見られた。これらの傾向から、本研究では、求められた軽核の生成断面積に結合エネルギーや標的核の原子核半径が関連していることが示唆された。

原子核反応は、標的核と入射粒子の組み合わせによって様々な反応が起こる。また、同じ入射粒子でも、そのエネルギーによって起こる反応も多様である。たとえば軽い陽子のような入射粒子の場合、重い原子核である U-235 や Pu-239 等の標的核に融合すると複合核をつくり、二つの破片になる核分裂反応が起こる。入射荷電粒子のエネルギーが数百 MeV を超えるような高エネルギー核反応においては、その入射粒子によって標的核が破壊され、多数の粒子が放出し、多種類の原子核が生成する。このような反応を核破砕反応と呼ぶ。核破砕反応では標的核近傍の質量数をもつ原子核が多く生成し、標的核との質量数の差が大きい原子核ほど生成量は少なくなる。核破砕反応には、主に質量数が 30 以下の核破片が放出される反応過程であるフラグメンテーション過程が知られている。この過程は軽核放出に系統的な反応機構をもつと考えられているが、未だにその反応機構は明らかになっていない部分が多い。フラグメンテーション過程の反応機構を理解するためには、Be-10 や Al-26 のような軽核の生成断面積について、その入射粒子のエネルギー、標的核依存性を詳しく調べることが必要である。従って、本研究で得られたそれらの生成断面積のデータは、フラグメンテーション過程の反応機構の理解に役に立つことが期待される。

#### <引用文献>

- S. Sekimoto et al., Nucl. Instrum. Methods B. 2013, 294, 475.  
D. Schumann et al., J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. 2011, 38, 065103.  
S. Shibata et al., Phys. Rev. C. 1993, 48, 2617.  
K. J. Kim et al., Nucl. Instrum. Methods B. 2002, 196, 239.  
R. Michel et al., Nucl. Instrum. Methods B. 1997, 129, 153.  
J. M. Sisterson et al., Nucl. Instrum. Methods B. 1997, 123, 324.  
Th. Schiekkel et al., Nucl. Instrum. Methods B. 1996, 114, 91.  
J. M. Sisterson et al., AIP Conf. Proc. 1996, 392, 811.  
R. Michel et al., Nucl. Instrum. Methods B. 1995, 103, 183.  
R. Michel et al., Analyst, 1989, 114,

287.

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

##### [雑誌論文](計 8 件)

- S. Okumura, S. Sekimoto, H. Yashima  
ら 28 名, 掲載されている順番は 2 番目,  
Measurements of Cross Sections for  
Production of Light Nuclides by 120 GeV  
Proton Bombardment of Au, JAEA-Conf,  
査読有、2015-003 (2016) 165-171  
(doi:10.11484/jaea-conf-2015-003)  
S. Sekimoto, S. Okumura, H. Yashima  
ら 30 名, 掲載されている順番は 1 番目,  
Measurements of production cross  
sections of Be-10 and Al-26 by 120 GeV  
and 392 MeV proton bombardment of Y-89,  
Tb-159, and Cu-nat targets, Nuclear  
Instruments and Methods in Physics  
Research B, 査読有、361 (2015) 685-688  
(doi:10.1016/j.nimb.2015.08.001)  
H. Matsumura, S. Sekimoto, H. Yashima  
ら 15 名, 掲載されている順番は 2 番目,  
Radionuclides in the Cooling Water  
Systems for the NuMI Beamline and the  
Antiproton Production Target Station  
at Fermilab, Progress in Nuclear  
Science and Technology, 査読有、4  
(2014) 372-375  
(doi: 10.15669/pnst.4.372)

##### [学会発表](計 5 件)

- Sekimoto et al., "Measurement of  
cross sections for production of light  
nuclides by 120 GeV and 400 MeV proton  
bombardment of Y" 13<sup>th</sup> Accelerator Mass  
Spectrometry (AMS-13) 2014/8/24-29,  
Aix en Provence (France).  
奥村慎太郎、関本俊、他、「120 GeV、400  
MeV 陽子と Y による軽核の核反応断面積  
の測定」2014 日本放射化学会年会・第  
58 回放射化学討論会 2014/9/11-13、名  
古屋大学(愛知県・名古屋市)  
Sekimoto et al., "Measurements of  
production cross sections of Be-10 and  
Al-26 by 120 GeV proton bombardment of  
Ni-nat, Co-59 and Au-197 targets" 9<sup>th</sup>  
International Conference on Nuclear  
and Radiochemistry 2016/8/28-9/2,  
Helsinki (Finland).

##### [図書](計 0 件)

##### [産業財産権]

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/IPA/achievements.txt>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

関本 俊 (SEKIMOTO Shun)  
京都大学原子炉実験所・助教  
研究者番号：10420407

### (2) 研究分担者

無し ( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

無し ( )

研究者番号：

### (4) 研究協力者

奥村 慎太郎 (OKUMURA Shintaro)  
大槻 勤 (OHTSUKI Tsutomu)  
八島 浩 (YASHIMA Hiroshi)