

Residual radioactivities induced in stainless steel and some aluminium alloys by an electron linear accelerator

K. Masumoto, O. Konno and M. Yagi
Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University

ABSTRACT

The purpose of this work is to compare characteristics of radioactivities induced in aluminium alloy and stainless steel by an electron linear accelerator. Then, some aluminium alloys and SUS 304 were irradiated by bremsstrahlung from 30 and 200 MeV electron beam. All results were normalized on condition of 1000 h - 100 μ A irradiation.

In case of 30 MeV irradiation, radioisotopes with long half-life (Cr-51, Mn-54 and Co-57) were induced from major constituents (Cr, Mn, Fe and Ni) in stainless steel. But, no intense radioisotopes from aluminium were observed. Total activities of aluminium alloys were dependent on the amount of minor constituents (Ti, Cr, Mn and Cu). The total activity of ANP 79 was about thouthandth as much as that of SUS 304.

In case of 200 MeV irradiation, total activity of SUS 304 was almost the same as the result of 30 MeV irradiation. By contrast, total activities of aluminium alloys were remarkably increased, because of the production of Na-24, Na-22 and Be-7 from aluminium. The total activity of ANP 79 became about hundredth as much as that of SUS 304 at one week after irradiation.

It can be concluded that the use of aluminium alloys as a substitute for stainless steel was very effective for the lowering of residual radioactivities in a duct and a flange of an electron linear accelerator.

1. 序

加速器が大型化し、出力・エネルギーともに向上するにつれて、真空チャンバなどに誘導される放射能の低減化が作業時の放射線被曝対策上重要な課題となっている。従来用いられてきたステンレス鋼に比べ、アルミニウムのような軽金属は放射性核種が生成しても半減期が短かく、誘導放射能も低いことからダクトやフランジの素材として有望視されてきた。そこで、高エネルギー物理学研究所において、アルミニウム合金製の超高真空システムが開発され、実用化の段階に達している。また、東北大学の次期計画でも採用が検討されている。そこで、本研究では電子加速器の真空容器材料としてアルミニウム合金を用いることが、誘導放射能の低減化にどの程度有効であるかを確かめるために、実際に、ステンレス鋼と数種のアルミニウム合金の照射実験を行なったので報告する。

2. 実験

(試料) ステンレス鋼としては、従来チャンバやフランジに用いられてきた SUS 304 を選んだ。また、アルミニウム合金としては、チャンバ材料に適した 5052 H3 と 6063 T6, フランジ材料に適した 2219 T87 と ANP 79 (7000 番相当) を選んだ。それぞれ板状のものを一辺 5 mm に切断 (重量は 50 ~ 100 mg) し、石英管に封入した。

(照射および測定) 照射は東北大学 300 MeV 電子ライナックで行なった。電子ビーム (エネルギー 30 及び 200 MeV, 平均電流約 100 μ A) を一たん空気中にとり出し、水冷式照射装置内の厚さ 2 mm の白金板で制動輻射に転換した。試料は白金板直後で 1 時間照射した。線スペクトルの測定は、Ge(Li) 半導体検出器にコンピューター付高分析器を接続して行なった。結果は、1000 時間の連続照

射した場合に試料1g中に生成する放射能として求めた。

3. 結果と考察

(30MeVおよび200MeV照射で生成する放射性核種とその主な反応)

電子加速器で生成する放射性核種の場合、電子線による直接的核反応よりも、物質中で発生する制動輻射によるものの寄与が大きいことが知られている。制動輻射は連続スペクトルであるため、200MeV照射では単一核子放出反応から核破碎反応にいたるまでの種々の核反応が観測される。同定された核種のうち比較的半減期の長いものとその主な核反応について表1に示した。30MeV照射では表の中で(α,n)反応のような単純な反応のみが観測される。

(30MeV照射による誘導放射能)

30MeV照射では、アルミニウム合金で14核種、SUS 304で9核種について解析した。SUS 304およびANP 79中に生成した誘導放射能の減衰曲線とそれぞれ図1および図2に示した。

SUS 304では構成元素のひとつであるクロムからの ^{51}Cr が最も強く、次にニッケルからの ^{57}Ni および ^{57}Co であった。 ^{51}Cr のため、残留放射能は1ヶ月間ほとんど減少しない。

アルミニウム合金では、主成分のアルミニウムから光核反応により生成する核種は無視できる程度である。生成量は少ないが、光中性子による2次反応($^{27}\text{Al}(n,d)^{26}\text{Na}$)で ^{26}Na が生成する。一般に、微量成分であるチタン・クロム・マンガンのおよび銅などから生成する核種のほうが全残留放射能に占める割合は高かった。ANP 79では生成量は ^{26}Na , ^{47}Sc , ^{59}Mn の順であった。しかし、5052では ^{51}Cr が $300\mu\text{Ci}$ 程度生成するなど、微量成分の種類や量によって残留放射能の強さは大きく影響を受けることがわかった。

(200MeV照射による誘導放射能)

アルミニウム合金で21核種、SUS 304で14核種の解析を行なった。これは30MeVの場合の核種数の1.5倍である。SUS 304とANP 79の場合の減衰曲線を図3と4に示した。

表1. 200MeV照射で生成する放射性核種と主な核反応。

Nuclide	Half-life	Nuclear reaction
^{26}Na	53.3 d	Spallation product from Al and light elements
^{24}Mg	2.602 y	$^{24}\text{Mg}(\gamma, n)^{23}\text{Mg}$, $^{24}\text{Mg}(\gamma, p)^{23}\text{Al}$
^{26}Mg	15.02 h	$^{26}\text{Mg}(\gamma, p)^{25}\text{Mg}$, $^{26}\text{Mg}(\gamma, n)^{25}\text{Mg}$
^{27}Al	2.44 d	$^{27}\text{Al}(\gamma, p)^{26}\text{Si}$, $^{27}\text{Al}(\gamma, n)^{26}\text{Al}$
^{46}Ti	83.8 d	$^{46}\text{Ti}(\gamma, p)^{45}\text{Ti}$, $^{46}\text{Ti}(\gamma, n)^{45}\text{Ti}$
^{47}Ti	3.42 d	$^{47}\text{Ti}(\gamma, p)^{46}\text{Ti}$, $^{47}\text{Ti}(\gamma, n)^{46}\text{Ti}$
^{48}Ti	43.7 h	$^{48}\text{Ti}(\gamma, p)^{47}\text{Ti}$, $^{48}\text{Ti}(\gamma, n)^{47}\text{Ti}$
^{49}Ti	15.976 d	$^{49}\text{Ti}(\gamma, p)^{48}\text{Ti}$, $^{49}\text{Ti}(\gamma, n)^{48}\text{Ti}$
^{50}Ti	21.56 h	$^{50}\text{Ti}(\gamma, p)^{49}\text{Ti}$, $^{50}\text{Ti}(\gamma, n)^{49}\text{Ti}$
^{51}Ti	27.70 d	$^{51}\text{Ti}(\gamma, p)^{50}\text{Ti}$, $^{51}\text{Ti}(\gamma, n)^{50}\text{Ti}$
^{52}Ti	5.59 d	$^{52}\text{Ti}(\gamma, p)^{51}\text{Ti}$, $^{52}\text{Ti}(\gamma, n)^{51}\text{Ti}$
^{54}Mn	312 d	$^{54}\text{Mn}(\gamma, p)^{53}\text{Mn}$, $^{54}\text{Mn}(\gamma, n)^{53}\text{Mn}$
^{55}Mn	8.26 h	$^{55}\text{Mn}(\gamma, p)^{54}\text{Mn}$, $^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$
^{56}Fe	44.6 d	$^{56}\text{Fe}(\gamma, p)^{55}\text{Fe}$, $^{56}\text{Fe}(\gamma, n)^{55}\text{Fe}$
^{57}Fe	78.8 d	$^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Fe}$, $^{57}\text{Fe}(\gamma, n)^{56}\text{Fe}$
^{58}Fe	271 d	$^{58}\text{Fe}(\gamma, p)^{57}\text{Fe}$, $^{58}\text{Fe}(\gamma, n)^{57}\text{Fe}$
^{59}Fe	70.6 d	$^{59}\text{Fe}(\gamma, p)^{58}\text{Fe}$, $^{59}\text{Fe}(\gamma, n)^{58}\text{Fe}$
^{60}Fe	5.271 y	$^{60}\text{Fe}(\gamma, p)^{59}\text{Fe}$, $^{60}\text{Fe}(\gamma, n)^{59}\text{Fe}$
^{61}Ni	6.10 d	$^{61}\text{Ni}(\gamma, p)^{60}\text{Ni}$, $^{61}\text{Ni}(\gamma, n)^{60}\text{Ni}$
^{57}Ni	36.0 h	$^{57}\text{Ni}(\gamma, p)^{56}\text{Ni}$, $^{57}\text{Ni}(\gamma, n)^{56}\text{Ni}$
^{64}Cu	12.70 h	$^{64}\text{Cu}(\gamma, p)^{63}\text{Cu}$, $^{64}\text{Cu}(\gamma, n)^{63}\text{Cu}$
^{65}Cu	61.9 h	$^{65}\text{Cu}(\gamma, p)^{64}\text{Cu}$, $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$
^{67}Cu	78.3 h	$^{67}\text{Cu}(\gamma, p)^{66}\text{Cu}$, $^{67}\text{Cu}(\gamma, n)^{66}\text{Cu}$
^{68}Zn	78.4 h	$^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Zn}$, $^{68}\text{Zn}(\gamma, n)^{67}\text{Zn}$
^{69}Zn		$^{69}\text{Zn}(\gamma, p)^{68}\text{Zn}$, $^{69}\text{Zn}(\gamma, n)^{68}\text{Zn}$
^{70}Zn		$^{70}\text{Zn}(\gamma, p)^{69}\text{Zn}$, $^{70}\text{Zn}(\gamma, n)^{69}\text{Zn}$
^{71}Ga		$^{71}\text{Ga}(\gamma, p)^{70}\text{Ga}$, $^{71}\text{Ga}(\gamma, n)^{70}\text{Ga}$
^{72}Ga		$^{72}\text{Ga}(\gamma, p)^{71}\text{Ga}$, $^{72}\text{Ga}(\gamma, n)^{71}\text{Ga}$
^{73}Ge		$^{73}\text{Ge}(\gamma, p)^{72}\text{Ge}$, $^{73}\text{Ge}(\gamma, n)^{72}\text{Ge}$
^{74}Ge		$^{74}\text{Ge}(\gamma, p)^{73}\text{Ge}$, $^{74}\text{Ge}(\gamma, n)^{73}\text{Ge}$
^{75}Ge		$^{75}\text{Ge}(\gamma, p)^{74}\text{Ge}$, $^{75}\text{Ge}(\gamma, n)^{74}\text{Ge}$
^{76}Ge		$^{76}\text{Ge}(\gamma, p)^{75}\text{Ge}$, $^{76}\text{Ge}(\gamma, n)^{75}\text{Ge}$
^{77}Ge		$^{77}\text{Ge}(\gamma, p)^{76}\text{Ge}$, $^{77}\text{Ge}(\gamma, n)^{76}\text{Ge}$
^{78}Ge		$^{78}\text{Ge}(\gamma, p)^{77}\text{Ge}$, $^{78}\text{Ge}(\gamma, n)^{77}\text{Ge}$
^{79}Br		$^{79}\text{Br}(\gamma, p)^{78}\text{Br}$, $^{79}\text{Br}(\gamma, n)^{78}\text{Br}$
^{80}Br		$^{80}\text{Br}(\gamma, p)^{79}\text{Br}$, $^{80}\text{Br}(\gamma, n)^{79}\text{Br}$
^{81}Br		$^{81}\text{Br}(\gamma, p)^{80}\text{Br}$, $^{81}\text{Br}(\gamma, n)^{80}\text{Br}$
^{82}Br		$^{82}\text{Br}(\gamma, p)^{81}\text{Br}$, $^{82}\text{Br}(\gamma, n)^{81}\text{Br}$
^{83}Br		$^{83}\text{Br}(\gamma, p)^{82}\text{Br}$, $^{83}\text{Br}(\gamma, n)^{82}\text{Br}$
^{84}Br		$^{84}\text{Br}(\gamma, p)^{83}\text{Br}$, $^{84}\text{Br}(\gamma, n)^{83}\text{Br}$
^{85}Br		$^{85}\text{Br}(\gamma, p)^{84}\text{Br}$, $^{85}\text{Br}(\gamma, n)^{84}\text{Br}$
^{86}Br		$^{86}\text{Br}(\gamma, p)^{85}\text{Br}$, $^{86}\text{Br}(\gamma, n)^{85}\text{Br}$
^{87}Br		$^{87}\text{Br}(\gamma, p)^{86}\text{Br}$, $^{87}\text{Br}(\gamma, n)^{86}\text{Br}$
^{88}Br		$^{88}\text{Br}(\gamma, p)^{87}\text{Br}$, $^{88}\text{Br}(\gamma, n)^{87}\text{Br}$
^{89}Br		$^{89}\text{Br}(\gamma, p)^{88}\text{Br}$, $^{89}\text{Br}(\gamma, n)^{88}\text{Br}$
^{90}Br		$^{90}\text{Br}(\gamma, p)^{89}\text{Br}$, $^{90}\text{Br}(\gamma, n)^{89}\text{Br}$
^{91}Br		$^{91}\text{Br}(\gamma, p)^{90}\text{Br}$, $^{91}\text{Br}(\gamma, n)^{90}\text{Br}$
^{92}Br		$^{92}\text{Br}(\gamma, p)^{91}\text{Br}$, $^{92}\text{Br}(\gamma, n)^{91}\text{Br}$
^{93}Br		$^{93}\text{Br}(\gamma, p)^{92}\text{Br}$, $^{93}\text{Br}(\gamma, n)^{92}\text{Br}$
^{94}Br		$^{94}\text{Br}(\gamma, p)^{93}\text{Br}$, $^{94}\text{Br}(\gamma, n)^{93}\text{Br}$
^{95}Br		$^{95}\text{Br}(\gamma, p)^{94}\text{Br}$, $^{95}\text{Br}(\gamma, n)^{94}\text{Br}$
^{96}Br		$^{96}\text{Br}(\gamma, p)^{95}\text{Br}$, $^{96}\text{Br}(\gamma, n)^{95}\text{Br}$
^{97}Br		$^{97}\text{Br}(\gamma, p)^{96}\text{Br}$, $^{97}\text{Br}(\gamma, n)^{96}\text{Br}$
^{98}Br		$^{98}\text{Br}(\gamma, p)^{97}\text{Br}$, $^{98}\text{Br}(\gamma, n)^{97}\text{Br}$
^{99}Br		$^{99}\text{Br}(\gamma, p)^{98}\text{Br}$, $^{99}\text{Br}(\gamma, n)^{98}\text{Br}$
^{100}Br		$^{100}\text{Br}(\gamma, p)^{99}\text{Br}$, $^{100}\text{Br}(\gamma, n)^{99}\text{Br}$

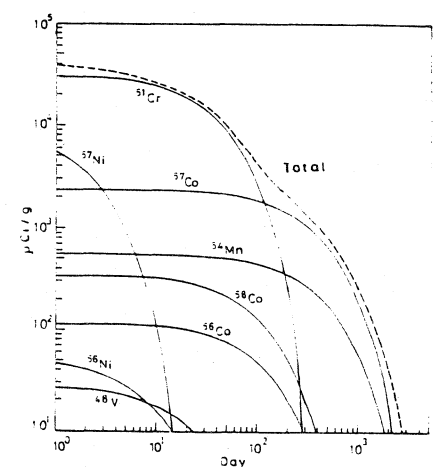


図1. SUS 304中に生成した放射能の減衰曲線 (30MeV, 1000時間照射)

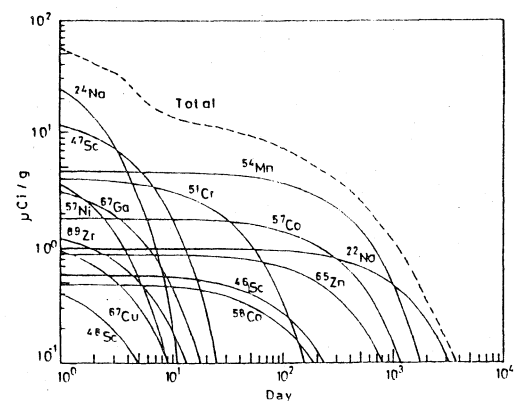


図2. ANP 79中に生成した放射能の減衰曲線 (30MeV, 1000時間照射)

SUS 304では、(r,n)反応により生成する ^{51}Cr や ^{57}Ni の生成量は30 MeVの場合とほとんど差がなく、 ^{48}V 、 ^{52}Mn および ^{54}Mn などの γ 光子放出反応に起因する核種で生成量の増加がみられた。全放射能の減衰傾向は30 MeVの場合に類似していた。

アルミニウム合金では、主成分であるアルミニウムからの ^{24}Na 、 ^{22}Na および ^7Be の生成が顕著であり、全放射能の減衰傾向もそれらに添ったものとなった。照射後1週間までは ^{24}Na の減衰に添って約1桁減衰するが、その後数年間は ^{22}Na の存在のためにほとんど変化しない。

(アルミニウム合金とステンレス鋼中の誘導放射能の減衰特性の比較)

図5. は30 MeV照射でのSUS 304とANP 79の誘導放射能総量の経時変化を示したものである。1ヶ月以内では、ANP 79の放射能はSUS 304の $1/1000$ であり、作業被曝を低く抑えることが示している。

200 MeVの場合について図6. に示した。SUS 304, ANP 79に加えて、 ^{51}Cr の生成量の約5052、 ^{54}Mn 、 ^{56}Co の生成量の約2219もあわせて示した。1日後ではアルミニウム合金の方がSUS 304よりも1桁低く、1週間後ではSUS 304に対し、ANP 79が約 $1/100$ 、5052が約 $1/30$ 、2219はそれらの中間の値を示した。通常の作業は加速器停止後約1~2週間程度の期間に行なわれることが多いが、この時期は、SUS

とアルミニウム合金の放射能の差が最もひろく時期に対応している。アルミニウム合金はステンレス鋼に比べ比重が約 $1/3$ であり、単位体積あたりと比較するとその差は更に倍ひろくことになる。文献によれば200 MeV以上で ^{24}Na や ^{22}Na の生成に急激な増加はみられず、1 GeVでも200 MeVの生成量の2倍以下で、減衰特性はほとんど変わらないと予想される。

以上により、アルミニウム合金の採用は、被曝線量の低減化に有効であることが確かめられた。

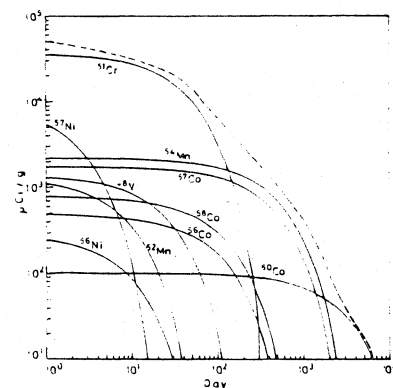


図3. SUS 304中に生成した放射能の減衰曲線 (200 MeV, 1000時間照射)

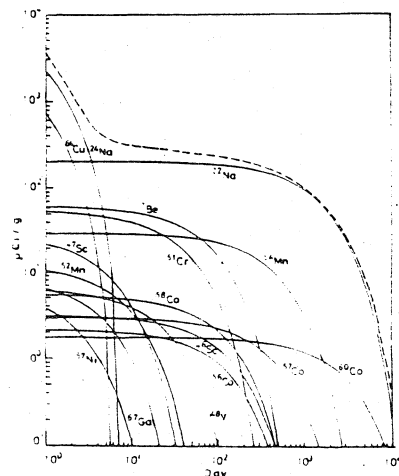


図4. ANP 79中に生成した放射能の減衰曲線 (200 MeV, 1000時間照射)

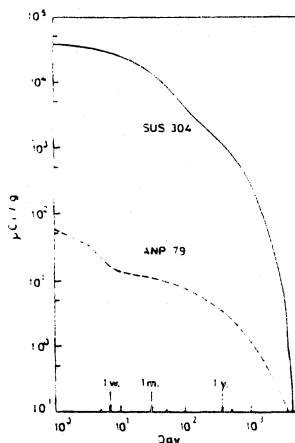


図5. SUS 304とANP 79の放射能総量の減衰曲線 (30 MeV, 1000時間照射)

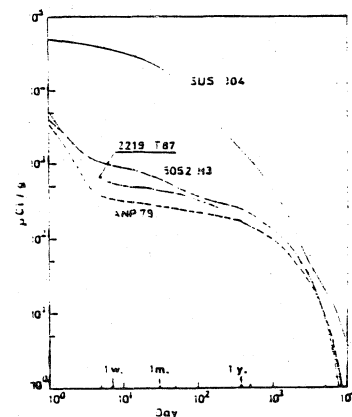


図6. SUS 304とアルミニウム合金 (2219Tl, 5052Mn, 5052Fe)の放射能総量の減衰曲線 (200 MeV, 1000時間照射)