非自己遮蔽型サイクロترون設置施設における 法改正に基づく放射化物の除染の試み

小宮 勲¹ 梅津芳幸¹ 藤淵俊王² 中村和正³ 馬場眞吾⁴ 本田 浩⁴

論文受付
2015 年 11 月 17 日

論文受理
2016 年 7 月 27 日

Code No. 633

¹ 九州大学病院医療技術部放射線部門

² 九州大学大学院医学研究院保健学部門医用量子線科学分野

³ 浜松医科大学放射線腫瘍学講座

⁴ 九州大学大学院医学研究院臨床放射線科学分野

緒 言

医療機関における小型サイクロترونは、ポジトロン放出核種製造のため、わが国で約 150 台が稼働¹⁾している。当施設のサイクロترونは、1983 年に設置した非自己遮蔽型(BC1710: 日本製鋼社製)で、装置老朽化のため 2009 年 6 月に運転を停止した。

停止後、約 5 年が経過した 2014 年にサイクロترون本体を含むサイクロترون設置施設を廃棄するための諸手続きを経験した。廃棄にあたり、法令に基づいた放射化物の選別、放射化による汚染状況の確認方法、汚染範囲の評価、除染範囲の決定、除染後の確認方法についてまとめる。

Decontamination of the Activation Product Based on a Legal Revision of the Cyclotron Vault Room on the Non-self-shield Compact Medical Cyclotron

Isao Komiya,^{1*} Yoshiyuki Umezu,¹ Toshioh Fujibuchi,² Kazumasa Nakamura,³ Shingo Baba,⁴ and Hiroshi Honda⁴

¹ Division of Radiology, Department of Medical Technology, Kyushu University Hospital

² Division of Medical Quantum Science, Department of Health Sciences, Faculty of Medical Sciences, Graduate School of Medical Sciences, Kyushu University

³ Department of Radiation Oncology, Hamamatsu University School of Medicine

⁴ Department of Clinical Radiology, Graduate School of Medical Sciences, Kyushu University

Received November 17, 2015; Revision accepted July 27, 2016

Code No. 633

Summary

The non-self-shield compact medical cyclotron and the cyclotron vault room were in operation for 27 years. They have now been decommissioned. We efficiently implemented a technique to identify an activation product in the cyclotron vault room. Firstly, the distribution of radioactive concentrations in the concrete of the cyclotron vault room was estimated by calculation from the record of the cyclotron operation. Secondly, the comparison of calculated results with an actual measurement was performed using a NaI scintillation survey meter and a high-purity germanium detector. The calculated values were overestimated as compared to the values measured using the NaI scintillation survey meter and the high-purity germanium detector. However, it could limit the decontamination area. By simulating the activation range, we were able to minimize the concrete core sampling. Finally, the appropriate range of radioactivated area in the cyclotron vault room was decontaminated based on the results of the calculation. After decontamination, the radioactive concentration was below the detection limit value in all areas inside the cyclotron vault room. By these procedures, the decommissioning process of the cyclotron vault room was more efficiently performed.

Key words: compact medical cyclotron, non-self-shield, radioactive waste, decontamination, radioactive concentration

*Proceeding author

Table 1 The PET isotopes' nuclear reactions and the record of operations⁴⁾

Nuclear reaction	Number of Operations per year (n/year)	Beam time per year (h/year)	Average beam current (μA)
$^{14}\text{N}(\text{p}, \alpha)^{11}\text{C}$	23.6	12.0	34.1
$^{16}\text{O}(\text{p}, \alpha)^{13}\text{N}$	0.9	0.2	3.7
$^{14}\text{N}(\text{d}, \text{n})^{15}\text{O}$	125.8	88.5	12.3
$^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n})^{18}\text{F}$	29.3	46.6	36.4
$^{20}\text{Ne}(\text{d}, \alpha)^{18}\text{F}$	57.8	60.5	25.7
Total	237.4	207.8	20.7

1. 方法

サイクロترون本体および周辺機器は、放射化している可能性が高く、放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律(障害防止法)の改正²⁾に基づき、放射性廃棄物は許可廃棄業者である公益社団法人日本アイソトープ協会に引き渡す(放射性廃棄物として廃棄)こととした³⁾。

サイクロترون室の床、壁、天井面のコンクリートにおける放射化による汚染の評価および除染の手順を次のとおりとした。

- ① 計算による放射能濃度分布を求め、放射化による汚染範囲の決定
- ② 床、壁、天井面の汚染範囲評価のため、校正されたNaIシンチレーションサーベイメータ(TCS-172B:日立アロカメディカル株式会社製)による各面の計数率の測定
- ③ 深さ方向の汚染範囲評価のため、コンクリートをコア抜きしたサンプルを高純度ゲルマニウム(high purity: HP-Ge)半導体検出器(GMX25P4: セイコー・イーजीアンドジー株式会社製)で放射能濃度を測定
- ④ ②と③の結果より①の計算結果の妥当性を確認し、安全側に除染範囲を決定
- ⑤ 決定した除染範囲を除去し放射性廃棄物として廃棄
- ⑥ 除染されたコンクリート面を含め全面をサーベイメータで測定

上記の作業により、汚染除去を確認した。

ここで、汚染範囲の決定における判断基準は、障害防止法改定の事務連絡²⁾にて、放射化物の範囲について「放射化物として取り扱うか否かの判断は、放射性汚染物の確認制度の導入に伴って告示として規定した放射能濃度及びその設定の考え方が参考となる」とあり、これらも参考にして汚染範囲を除去すれば、残ったコンクリートに汚染がないということ、つまり当施設ではサーベイメータで検出限界以下となることを採用した。

以下、詳細について示す。

1-1 計算による放射能濃度の算出と汚染範囲の決定

運転履歴をもとに中性子発生量を推定し、サイクロترون室の床、壁、天井面のコンクリートの放射能濃度を算出し、汚染範囲を決定した。

ここで、運転履歴として、サイクロترونの運転期間は、1983年3月から2009年6月の27年3カ月であった。加速エネルギーは、陽子17 MeV、重陽子10 MeVである。使用した加速粒子と核反応、1年あたりの運転回数、運転時間、平均ビーム電流など運転状況の詳細⁴⁾をTable 1に示す。

1-1-1 中性子発生量の推定

放射化によるコンクリートの放射能濃度を計算するには、サイクロترونの中性子発生量が必要となる。非自己遮蔽型サイクロترونの熱中性子フルエンス率は運転中において、ターゲットボックス内で $10^7 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、ターゲットボックス外の近傍で $10^6 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、サイクロترون周辺部の通常運転状況下で $10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 程度と予想される^{5~8)}。当該サイクロترونは運転停止し、運転時の熱中性子フルエンス率を測定できないため、後述の放射能濃度の計算式を検証するために、当施設で事前にコンクリートをコア抜きして測定した放射能濃度⁴⁾と計算値を比較し、熱中性子フルエンス率を推定し決定した。

1-1-2 コンクリート中の放射能濃度の推定

コンクリート中の放射能濃度の評価にあたり、下記の手順で計算した。

生成対象核種として、 ^{60}Co 、 ^{152}Eu 、 ^{134}Cs 、 ^{46}Sc 、 ^3H が挙げられるが、運転停止後5年経過している場合、後述の放射能濃度の計算式にて、これらのうち ^{134}Cs 、 ^{46}Sc 、 ^3H は、放射化の寄与は合計しても5%未満となったため、 ^{60}Co 、 ^{152}Eu の2核種を対象^{9,10)}とした。これらの放射化が起こる核反応は $^{59}\text{Co}(\text{n}, \gamma)^{60}\text{Co}$ 、 $^{151}\text{Eu}(\text{n}, \gamma)^{152}\text{Eu}$ である。

下記の式(1)により、コンクリート中の放射能濃度

を計算した。

$$A=N \times f \times \sigma \times S \quad \cdots \cdots (1)$$

ここで、A：放射能濃度(Bq/g)、N：原子数(g^{-1})、f：熱中性子フルエンス率($cm^{-2}s^{-1}$)、 σ ：熱中性子捕獲反応断面積(cm^2)、S：飽和係数である。

飽和係数Sは、長期間運転する場合、最初にできた放射能も減衰していくための補正であり、下記の式(2)より計算した。

$$S=1-\exp(-\lambda \times t) \quad \cdots \cdots (2)$$

ここで、 λ ：壊変定数(s^{-1})、t：運転期間(s)である。

コンクリート中のCo、Euの濃度は、一般的に公開されているデータ⁹⁾を参考にし、それぞれ12 ppm、0.73 ppmとした。

$^{59}Co(n, \gamma)^{60}Co$ 、 $^{151}Eu(n, \gamma)^{152}Eu$ の熱中性子捕獲反応断面積¹⁰⁾は、それぞれ37.18 barn、5900 barnとした。

1-1-1で得られた熱中性子フルエンス率は運転時の値であり、過去の使用記録によるとサイクロトロンは1年間あたり平均207.8時間運転していたことから、 $1.3 \times 10^6 \times (207.8/365/24) = 3.08 \times 10^4 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の熱中性子フルエンス率で常に熱中性子を発生しているものとして計算した。

中性子の発生源として、サイクロトロン本体の放射化をサーベイメータで評価したところ、ターゲットのほか、ターゲットへのビームポート、磁気チャンネル、デフレクタで放射化がみられたことから、これらを考慮した。ヨーク自体が中性子の遮蔽体となることも考慮し、ターゲットからの中性子発生量に対する各部位の中性子発生割合をターゲットへのビームポートで5%、磁気チャンネルで8%、デフレクタで25%とそれぞれ推定した。これらは本体内部の計数率をサーベイメータで測定し、その結果より推定したものである。またターゲットからの中性子の指向性やターゲット付近の周辺機器との散乱を考慮し、中性子源をビーム進行方向に100 cm拡張した。

サイクロトロン室の床、壁、天井面のコンクリート表面での熱中性子フルエンス分布は、これらの中性子発生源から距離の逆二乗則に従って減弱し、サイクロトロン室内に広がるものとして計算した。

また、ビーム進行方向の壁の手前には厚さ20 cmの中性子遮蔽壁(ポリエチレン)が配置されていた。そのため、遮蔽体のあった部分の裏側は熱中性子フルエンス率が表側の1/10に減弱するものと推定して計算した。

これまでの文献^{11~13)}や報告より、表面から10 cm程度までは濃度はほとんど変わらず、以深では放射能

濃度は指数関数的に低下する。ここで、深さ方向の減衰割合は、これらの文献や測定値を参考にし、表面から10 cmのピークを1とすると、20 cmで0.7、30 cmで0.3として計算した。

これらの放射能濃度の算出においては、サイクロトロン本体、その他の周辺機器による遮蔽効果は考慮していない。

1-2 サーベイメータ、HP-Ge半導体検出器による計算結果の検証

1-2-1 NaIシンチレーションサーベイメータを用いた間接法による計数率の測定

コンクリートの床、壁、天井面の放射化による汚染状況を評価するため、サイクロトロン室の床面を30 cm間隔、壁面と天井面を50 cmあるいは70 cm間隔で区画し、任意の測定点を設定した。また、サーベイメータの検出器を測定点に密着させ測定した。測定点以外の周囲からの放射線の影響を受けにくくするために、区画周囲に高さ10 cm、厚さ5 cmの鉛ブロックを配置し測定した。

測定結果を下記の式(3)より算出した検出限界値(3 σ 法)と比較した。

$$N_d = \frac{K}{2} \times \left\{ \frac{K}{t} + \sqrt{\left(\frac{K}{t} \right)^2 + 4 \times N_b \times \left(\frac{1}{t} + \frac{1}{t_b} \right)} \right\} \quad \cdots \cdots (3)$$

N_d ：検出限界計数率(cps)

N_b ：バックグラウンドの計数率(cps)

K：信頼の水準によって決定される定数(K=3とする)

t：試料の測定時間(s)

t_b ：バックグラウンドの測定時間(s)

時定数 τ (s)を用いる場合は $t=2\tau$ 、 $t_b=2\tau$ とする

1-2-2 HP-Ge半導体検出器を用いた直接法による放射能濃度の測定

コンクリートの深さ方向の放射化による汚染状況を評価するため、計算による放射能濃度分布の結果を参考に測定箇所を決めた。コンクリートコアは深さ45 cm×直径4 cm ϕ を取り、深さ10 cm(7~13 cm)、深さ20 cm(17~23 cm)、深さ30 cm(27~33 cm)、深さ40 cm(37~43 cm)のコンクリートサンプル(U-8容器)を作成し、HP-Ge半導体検出器でそれぞれ3600秒間測定した。

1-3 除染範囲の決定

計算より求めた汚染範囲が安全側に評価されていることの確認は、サーベイメータおよびHP-Ge半導体検出器の測定結果が計算結果より過大評価されている

Fig. 1 The development diagram of the cyclotron vault room.

かどうかで判断し、その上で、床、壁、天井面方向と深さ方向で除染範囲を決定した。

1-4 放射化物の除去後の確認

放射化物を除去した後、サイクロトロン室の床、壁、天井面を、1-2-1と同様の区画にて、サーベイメータを使用し、検出器を測定点に密着させ測定した。バックグラウンドを下げるために、検出器専用の厚さ1 cmの鉛シールド(プローブ用遮蔽体, OTA-110505: 株式会社千代田テクノル製)を使用し測定した。

測定結果を1-2-1と同様に算出した検出限界値と比較した。

2. 結果

2-1 計算による放射能濃度の算出と汚染範囲の決定

2-1-1 中性子発生量の推定

サイクロトロン室のコンクリートの放射化評価において、ターゲットボックス外(ターゲットから床方向に向って120 cmの位置)での熱中性子フルエンス率を $1.3 \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ と推定した。今回の結果は文献値^{5~8)}とほぼ同等の値であり、推定が妥当とすると判

A : The sum of radioactive concentrations ^{60}Co and ^{152}Eu (Bq/g)

Fig. 2 The calculated radioactive concentration map of the floor (depth: 0-10 cm).

断した。

2-1-2 コンクリート中の放射能濃度の計算結果

放射能濃度分布については、床、壁Aから壁D、天井をFig. 1のように設定し、30 cm間隔の評価点で放射能濃度を算出し分布図を作成した。放射能濃度は2014年10月時点における計算値である。Fig. 2に床面、Fig. 3に壁A面における深さ0~10 cmの放射能濃度分布図を示す。なお、壁B~D面、天井面においては壁A面と同様の放射能濃度分布を呈した。

床面においては、深さ方向の評価として、深さ20 cm (Fig. 4)、深さ30 cm (Fig. 5)の位置での放射能濃度分布図を示す。

計算結果では、床面の一部が放射化されており、壁、天井面は放射化されていないと判断した。

計算による放射能濃度分布より、汚染範囲は、床面において本体ターゲット直下をほぼ中心に縦3.0 m×横2.7 mとした。また、深さ方向については30 cmまでを汚染範囲とした。

□ A < 0.08

A : The sum of radioactive concentrations ^{60}Co and ^{152}Eu (Bq/g)

Fig. 3 The calculated radioactive concentration map of the wall (depth: 0-10 cm).

□ A < 0.08

■ 0.08 ≤ A < 0.10

A : The sum of radioactive concentrations ^{60}Co and ^{152}Eu (Bq/g)

Fig. 4 The calculated radioactive concentration map of the floor (depth: 20 cm).

□ A < 0.08

A : The sum of radioactive concentrations ^{60}Co and ^{152}Eu (Bq/g)

Fig. 5 The calculated radioactive concentration map of the floor (depth: 30 cm).

2-2 サーベイメータ, HP-Ge 半導体検出器による計算結果の検証

2-2-1 NaI シンチレーションサーベイメータによる計数率の測定結果

サーベイメータによる測定結果を, 床面を Fig. 6, 壁, 天井面を Fig. 7 に示す. 床面に関してはターゲット付近が高値を示し周囲に行くにつれて値が低くなる傾向があった. また, 壁, 天井面ではわずかに検出限界値を超える点が複数みられた.

2-2-2 HP-Ge 半導体検出器による放射能濃度の測定結果

コンクリートのコア抜き箇所は計算による放射化濃度分布の結果を参考に 15 カ所 (Fig. 8) とした. ここで, 区画番号 E-11 と J-11 については, 十分な深さのコア抜きができず, 深さ 10 cm のデータのみである. 各測定ポイントの核種ごとの放射能濃度とその合計を Table 2 に示す. ターゲット付近は高値を示し, ターゲットから離れるにつれて値が低くなる傾向があった. また, すべてのポイントで長半減期核種である ^{60}Co と ^{152}Eu のみが検出され, ^{134}Cs , ^{46}Sc , ^3H 等は検出されなかった.

A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N	O	P	Q	R	
16	16	18	19	19	19	18	17	18	14	24	23	11	9	10	10	11	12	1
13	11	20	22	22	25	25	25	25	24	25	23	10	10	9	10	10	14	2
13	18	24	22	23	27	27	28	26	23	25	23	10	8	10	10	10	19	
14	19	22	22	25	28	30	29	30	28	25	25	10	10	10	11	9	17	4
13	19	22	25	29	31	33	35	32	29	26	26	22	22	22	19	22	17	5
13	14	23	22	26	33	36	37	32	30	26	23	21	23	23	22	19	17	6
13	11	20	20	27	32	40	40	35	30	28	23	24	23	23	22	20	18	7
15	19	24	17	18	27	41	37	21	15	27	26	23	22	20	21	23	18	8
14	17	23	26	23	24	20	33	21	18	29	23	23	22	21	22	20	17	9
12	16	21	23	23	26	23	25	24	25	21	20	17	17	15	15	15	19	10
13	16	22	25	24	26	19	24	21	22	23	21	21	19	19	16	15	19	11
10	16	22	22	24	27	14	14	25	20	14	13	23	22	22	21	14	18	12
13	17	19	20	22	21	24	27	24	16	24	23	22	21	21	19	14	16	13
11	16	21	22	20	24	24	24	21	16	23	22	22	22	20	20	15	16	14
11	14	20	19	21	21	19	21	24	14	22	21	21	22	20	19	14	17	15
10	13	14	11	12	14	14	14	11	15	21	22	24	21	23	21	17	18	16
15	14	13	15	15	17	16	16	14	14	22	22	22	21	21	21	14	11	17
18	22	20	18	18	19	21	20	15	12	19	22	21	20	20	19	16	11	18
18	20	21	20	20	20	21	21	12	15	14	14	15	14	15	14	17	13	19

Detection limit value : 22 cps

count rate (cps)

Points over detection limit value

Radioactive contamination area on the basis of the results of the calculation

Fig. 6 Count rates measured using a NaI scintillation survey meter of the floor.

○ Sampling points

Radioactive contamination area on the basis of the results of the calculation

Fig. 8 The development diagram and the sampling points of the floor using a high-purity germanium detector.

これらの測定結果は、計算結果を超えることはなく、深さ方向については深さ 30 cm を超えては検出限界値未満であり放射化されていないと判断した。

Detection limit value : 13 cps

count rate (cps)

Points over detection limit value

Fig. 7 Count rates measured result using a NaI scintillation survey meter on the walls and the ceiling.

2-3 除染範囲の決定

2-1 にて決定した汚染範囲である、床面において本体ターゲット直下をほぼ中心に縦 3.0 m×横 2.7 m、深さ方向については 30 cm は、2-2-1 および 2-2-2 の結果から計算による汚染範囲が適正であると判断し、上記の範囲を除染範囲とした(Fig. 9)。

2-4 放射化物の除去後の確認

2-3 で決定した除染範囲で放射化によるコンクリートの汚染物を除去した後の床面の測定結果を Fig. 10、壁、天井面の測定結果を Fig. 11 に示す。測定結果はすべて検出限界値以下であった。

3. 考 察

放射性物質や放射線に関して国民の関心が高い現在、放射化により汚染された物質を安全に廃棄することは重要である。

今回、廃棄対象の非自己遮蔽型サイクロトロンおよび周辺機器、サイクロトロン室のコンクリート等の廃

Table 2 Radioactive concentration result using a high-purity germanium detector of the floor

Location	Depth	Radioactive concentration (Bq/g)		
		⁶⁰ Co	¹⁵² Eu	Total
D-3	10 cm (7~13 cm)	1.40E-2	2.92E-2	4.32E-2
	20 cm (17~23 cm)	7.18E-3	2.48E-2	3.20E-2
	30 cm (27~33 cm)	LOD	LOD	LOD
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
D-7	10 cm (7~13 cm)	1.75E-2	3.87E-2	5.62E-2
	20 cm (17~23 cm)	1.23E-2	1.98E-2	3.21E-2
	30 cm (27~33 cm)	8.06E-3	1.34E-2	2.15E-2
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
D-10	10 cm (7~13 cm)	1.38E-2	3.34E-2	4.72E-2
	20 cm (17~23 cm)	LOD	2.39E-2	2.39E-2
	30 cm (27~33 cm)	LOD	LOD	LOD
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
E-5	10 cm (7~13 cm)	5.83E-2	1.02E-1	1.60E-1
	20 cm (17~23 cm)	2.05E-2	3.10E-2	5.15E-2
	30 cm (27~33 cm)	9.09E-3	2.43E-2	3.34E-2
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
G-3	10 cm (7~13 cm)	3.78E-2	7.10E-2	1.09E-1
	20 cm (17~23 cm)	2.03E-2	2.65E-2	4.68E-2
	30 cm (27~33 cm)	LOD	LOD	LOD
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
G-5	10 cm (7~13 cm)	5.39E-2	8.16E-2	1.36E-1
	20 cm (17~23 cm)	1.67E-2	4.42E-2	6.09E-2
	30 cm (27~33 cm)	9.76E-3	1.93E-2	2.91E-2
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
G-7	10 cm (7~13 cm)	6.01E-2	1.00E-1	1.60E-1
	20 cm (17~23 cm)	3.22E-2	6.03E-2	9.25E-2
	30 cm (27~33 cm)	1.09E-2	1.71E-2	2.80E-2
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
G-10	10 cm (7~13 cm)	5.83E-2	1.02E-1	1.60E-1
	20 cm (17~23 cm)	4.03E-2	7.01E-2	1.10E-1
	30 cm (27~33 cm)	1.90E-2	2.95E-2	4.85E-2
	40 cm (37~43 cm)	LOD	1.93E-2	1.93E-2
J-5	10 cm (7~13 cm)	4.62E-2	5.42E-2	1.00E-1
	20 cm (17~23 cm)	1.74E-2	2.19E-2	3.93E-2
	30 cm (27~33 cm)	7.53E-3	LOD	7.53E-3
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
J-7	10 cm (7~13 cm)	4.97E-2	8.06E-2	1.30E-1
	20 cm (17~23 cm)	1.26E-2	2.90E-2	4.16E-2
	30 cm (27~33 cm)	LOD	LOD	LOD
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
K-9	10 cm (7~13 cm)	3.20E-2	5.76E-2	8.96E-2
	20 cm (17~23 cm)	LOD	1.42E-2	1.42E-2
	30 cm (27~33 cm)	LOD	LOD	LOD
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
L-3	10 cm (7~13 cm)	1.34E-2	2.66E-2	4.00E-2
	20 cm (17~23 cm)	7.32E-3	1.48E-2	2.21E-2
	30 cm (27~33 cm)	LOD	LOD	LOD
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
L-7	10 cm (7~13 cm)	1.32E-2	2.84E-2	4.16E-2
	20 cm (17~23 cm)	LOD	7.78E-3	7.78E-3
	30 cm (27~33 cm)	LOD	LOD	LOD
	40 cm (37~43 cm)	LOD	LOD	LOD
E-11	10 cm (7~13 cm)	1.60E-2	2.47E-2	4.07E-2
	—	—	—	—
	—	—	—	—
J-11	10 cm (7~13 cm)	3.20E-2	8.04E-2	1.12E-1
	—	—	—	—
	—	—	—	—

LOD: Limit of detection

Fig. 9 The development diagram of the decontamination area on the basis of the results of the calculation.

棄については障害防止法改正後、前例がないため、事前に十分な検討を行い慎重に進めた。

最初に、サイクロترون本体および周辺機器とサイクロترون室の2通りに分けて検討した。サイクロترون本体および周辺機器は、障害防止法により、原則として放射化物とするところがある。ただし、信頼できる実測データ、計算結果等により放射化物として取り扱う必要がないことが確認できたものについては放射化物としないことができるとあるため、汚染範囲を同定することも考えたが、当施設では困難であると判断し、すべて放射性廃棄物として廃棄した¹⁾。

サイクロترون室については、すべてのコンクリー

トを放射性廃棄物として廃棄するには、膨大な量の放射性廃棄物となるため、放射化により汚染された部分だけを放射性廃棄物として廃棄することとした。そのため、汚染の範囲を確認し、安全側に除去する必要がある。

汚染範囲については、計算により放射能濃度を算出して放射化の範囲を決定し、その結果の妥当性を、サーベイメータによる計数率の測定およびHP-Ge半導体検出器による放射能濃度の測定で確認した。測定結果により、計算結果が安全側に評価されていることを確認した。これらの結果をもとに除染範囲を決定し、放射性廃棄物として廃棄した。除染後に、再度

A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N	O	P	Q	R
9	11	10	10	10	10	10	11	10	11	11	10	7	7	6	6	5	9
9	10	10	10	11	11	11	11	11	12	12	10	6	6	5	6	5	10
9	11	11	9	9	9	9	9	9	9	9	9	6	5	5	5	5	8
10	10	9	9	9	9	10	9	8	8	9	9	5	6	6	6	5	9
10	10	11	9	9	9	9	10	9	10	9	9	11	10	8	8	11	10
9	9	10	8	8	9	9	8	8	9	9	8	10	9	10	10	10	9
10	11	10	8	9	9	8	10	9	9	9	9	11	10	10	9	10	9
10	10	10	9	8	9	9	9	9	8	9	8	11	10	10	9	10	9
10	10	10	9	9	9	10	9	10	9	9	9	10	11	11	11	10	9
9	11	11	8	8	8	9	10	9	9	9	9	10	10	10	9	9	10
9	11	11	9	9	9	8	9	8	9	9	9	10	10	9	9	9	11
9	9	10	9	9	9	9	8	9	8	9	9	11	10	10	9	9	10
9	9	9	10	11	12	12	12	12	12	11	11	10	10	10	10	9	10
9	9	11	11	10	11	10	12	11	12	10	11	10	10	10	9	9	10
8	11	10	9	10	11	10	9	10	11	11	11	10	10	9	10	8	9
10	8	9	9	9	10	9	9	9	10	10	10	10	11	10	9	9	10
10	11	10	10	9	10	10	10	9	10	10	11	10	10	9	8	9	9
10	9	9	10	11	10	10	11	9	9	11	11	11	10	9	9	8	8
9	9	9	9	10	10	9	10	11	8	8	10	9	10	10	9	9	19

Detection limit value : 12 cps

count rate (cps)

The area after decontamination

Fig. 10 Count rates measured using a NaI scintillation survey meter of the floor after decontamination.

サーベイメータで測定し、すべての場所で検出限界値以下であることを確認した。汚染範囲は適切に除染できた。

計算による放射能濃度分布の評価方法は、サイクロトロン運転履歴、過去の文献、コンクリートのコア抜きデータのデータを参考に中性子の発生量を推定し、放射化による放射能濃度の分布を作成した。

中性子量の発生については、サイクロトロンが既に停止していたため中性子発生量を推定したが、停止前に実測¹⁴⁾することでより正確な結果が得られると考える。また、モンテカルロ等による計算評価^{8,11)}も行われているが、今回は基本的な計算式¹⁵⁾を用い、必要な数値を文献等から参照し算出した。これらの計算手法を検証するために、コンクリートのコア抜きによる放射能濃度の測定結果が有効であった。モンテカルロ等の方法では、連続的な結果が得られるが、今回の方法で連続的な結果を得るためには評価点を多くする必要があり、結果、作業が煩雑になるのも事実である。

次に、サーベイメータで床、壁、天井面を直接測定した結果、放射化による生成対象核種のうちの⁶⁰Coのγ線エネルギーは高いため測定エリア外の放射線の影響を受けたが、計算による結果とほぼ同様の傾向がみられた。

サーベイメータによる測定では、除染前は、放射化

Detection limit value : 12 cps

count rate (cps)

The area after decontamination

Fig. 11 Count rates measured using a NaI scintillation survey meter of the walls and the ceiling after decontamination.

の可能性の低い壁、天井面で検出限界を超える箇所があり、これは周囲からの放射線の影響が測定値を過大評価させると考えた。しかし、周囲のからの放射線を完全に遮蔽して測定することは不可能であるため、今回は、後述のコア抜き箇所の決定等の参考とした。

更に、計算で高値を示した15カ所からコンクリートを採取しHP-Ge半導体検出器で測定した。これらの測定結果より、計算による評価が安全側であったと判断できた。また、30 cmより深くなると検出限界値以下であることが確認された。HP-Ge半導体検出器を用いることで深さ方向の汚染評価が可能であった。

コンクリートをコア抜きしてHP-Ge半導体検出器で測定する方法は、正確に放射能濃度を評価できるが、コア抜きした部分のみの評価にとどまり、詳細な放射能濃度分布を作成するためには、サンプル数を増やす必要がある。作業時間等を考慮すると現実的ではない。そこで、今回は計算結果を確認できる最小限の箇所の測定にとどめた。

除染後の評価は、サーベイメータによる方法で実施

したが、すべて検出限界値以下であることが確認できた。

放射性廃棄物をできる限り減らすためにも、正確な計算による評価が有効である。更に、サーベイメータや HP-Ge 半導体検出器で測定することで計算結果がより安全側に立った評価であることを確認することが重要である。

最後に、今後もサイクロترون本体およびその設置施設を廃止する施設は増加すると考えられる。廃止決定前に十分な事前準備を行うことが重要であり、施設ごとに最適な評価は必要となるが、今回の放射化による汚染の評価には中性子発生量の把握が重要となり、サイクロترونが稼働中に実測することができるものである。当施設では、運転停止していたため実測できなかった。そのため、この中性子発生量は文献等をもとに推定し決定した。この作業では推定の域を超えないことも事実である。放射線治療装置においては、関連学会の検討により放射化物の管理に関する学会標準¹⁶⁾が出されている。サイクロترونにおいても同じように、その方法など情報共有できる環境が整うこ

とを望み、当施設での経験が活かせるよう協力することを惜しまない。

4. 結 語

今回、非自己遮蔽型サイクロترونおよび周辺機器、サイクロترون室の廃棄にあたり、本体および周辺機器はすべて放射性廃棄物として処理した。また、サイクロترون室のコンクリートに関しては、計算による評価にて汚染範囲を決定し、サーベイメータ等による実測によりその妥当性を検証した後に除去した。更に、除去後にサーベイメータによる測定を実施し、すべて検出限界以下であることを確認し、適切に除染できた。

謝 辞

今回のサイクロترونの廃棄にあたり当院の医療管理係の方々にご協力、ご支援をしていただきました。皆様に心より感謝いたします。

参考文献

- 1) 公益社団法人日本アイソトープ協会. 放射線利用統計 2012. http://www.jrias.or.jp/e/pdf/the_use_of_radiation_2012.pdf (cited 2015 April 9).
- 2) 文部科学省科学技術・学術政策局 原子力安全課放射線規制室. 放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律の一部を改正する法律並びに関係政令、省令及び告示の施行について. 平成 24 年 3 月.
- 3) 堀次元気, 渡邊 浩, 藤淵俊王, 他. PET 核種製造用サイクロترون利用に伴う放射化物の管理について. 日放技学誌 2014; 70(3): 287-297.
- 4) Fujibuchi T, Nohtomi A, Baba S, et al. Distribution of residual long-lived radioactivity in the inner concrete walls of a compact medical cyclotron vault room. *Ann Nucl Med* 2015; 29(1): 84-90.
- 5) 緒方良至, 石樽信人, 望月真吾, 他. PET サイクロترون設置室内外の中性子束. 日本放射線安全管理学会誌 2008; 7(1): 35-40.
- 6) Fujibuchi T, Yamaguchi I, Kasahara T, et al. Measurement of thermal neutron fluence distribution with use of ²³Na radioactivation around a medical compact cyclotron. *Radiol Phys Technol* 2009; 2(2): 159-165.
- 7) F Fernandez, K Amgarou, C Domingo, et al. Neutron Spectrometry in a PET Cyclotron with a Bonner Sphere System. *Radiat Prot Dosimetry* 2007; 126(1-4): 371-375.
- 8) Méndez R, Iñiguez MP, Martí-Climent JM, et al. Study of the neutron field in the vicinity of an unshielded PET cyclotron. *Phys Med Biol* 2005; 50(21): 5141-5152.
- 9) 公益財団法人原子力安全技術センター. 構造物元素組成データ (Table 12, Table 13). https://www.nustec.or.jp/anzenjisho/introduction/gal_4.html#12 (cited 2015 April 9).
- 10) 公益財団法人日本アイソトープ協会. 天然同位体存在度および熱中性子断面積. アイソトープ手帳 第 11 版. 丸善出版, 東京, 2011: 112-123.
- 11) Martínez-Serrano JJ, Díez de los Ríos A. Prediction of neutron induced radioactivity in the concrete walls of a PET cyclotron vault room with MCNPX. *Med Phys* 2010; 37(11): 6015-6021.
- 12) Yamaguchi I, Kasahara K, Fujibuchi T, et al. Radiation safety management of residual long-lived radioactivity distributed in an inner concrete wall of a medical cyclotron room. *Radiation Protection Dosimetry* 2011; 146(1-3): 167-169.
- 13) 木村健一, 石川敏夫, 山寺 亮, 他. サイクロترون建屋コンクリートの放射化測定. *Radioisotopes* 1992; 41: 213-217.
- 14) Ogata Y, Ishigure N, Mochizuki S, et al. Distribution of thermal neutron flux around a PET cyclotron. *Health Phys* 2011; 100 Suppl 2: S60-66.
- 15) 公益財団法人日本アイソトープ協会. 主要公式集. アイソトープ手帳 第 11 版. 丸善出版, 東京, 2011: 4-5.
- 16) 阿部容久, 大山正哉, 藤淵俊王, 他. 放射線治療装置における放射化物の管理に関する学会標準 初版 (平成 26 年 4 月 14 日). http://www.jart.jp/news/tclj8k00000000we0-att/linac_standard_260414.pdf (cited 2015 October 9).

問合せ先

〒812-8582 福岡市東区馬出 3-1-1
九州大学病院医療技術部放射線部門 小宮 勲