

60 MeV 電子加速器を用いた光核反応による放射性同位体製造のための 照射システムの評価

EVALUATION OF THE IRRADIATION SYSTEM FOR RADIOACTIVE ISOTOPE PRODUCTION VIA PHOTONUCLEAR REACTION USING A 60 MEV ELECTRON LINAC

高橋 健^{#, A)}, 菊永英寿^{A)}, 塚田 暁^{A)}, 武藤俊哉^{A)}, 柏木 茂^{A)},
須田利美^{A)}, 南部 健一^{A)}, 長澤 育郎^{A)}, 日出 富士雄^{A)}, 濱 広幸^{A)}
Ken Takahashi^{#, A)}, Hidetoshi Kikunaga^{A)}, Kyo Tsukada^{A)}, Toshiya Muto^{A)}, Shigeru Kashiwagi^{A)},
Toshimi Suda^{A)}, Kenichi Nanbu^{A)}, Ikuro Nagasawa^{A)}, Fujio Hinode^{A)}, and Hiroyuki Hama^{A)}
^{A)} Research Center for Electron Photon Science (ELPH), Tohoku University

Abstract

We have produced radioactive isotope (RI) via photonuclear reaction using a 60-MeV electron linac at Research Center for Electron Photon Science, Tohoku University. Although electron accelerator based RI production is practiced in many facility, beam parameters and irradiation condition such as converter material and distance between converter and target are unique in each facility. We have studied the size and divergence of bremsstrahlung γ -ray at our target position, and estimated the photon flux of our irradiation system employing equivalent quanta in yield. This paper reports these parameters of our irradiation system.

1. はじめに

東北大学電子光物理学研究センターでは電子ビームを用いた光核反応による放射性同位体製造を行っている。チタン箔を通して大気中に取り出した電子ビームをタンングステンや白金に入射して生成した制動放射線を標的に照射する[1][2]。課題として照射効率の向上や照射室内の放射化軽減、標的への熱負荷低減が求められている。しかし、照射効率は装置依存性が高いため、照射システム全体の高度化を図るには、電子ビームパラメータや現在使用しているコンバータと標的の構成で制動放射線の特徴を十分に把握する必要がある。その第一歩としてビーム軸上に設置したニッケル箔標的を照射して、 $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$ で生成した標的中の ^{57}Ni 放射能強度分布を測定した。測定したプロファイルから、標的上での空間的なサイズや制動放射線の角度広がりを評価した。ま

た、照射位置での制動放射線を定量的に評価するため、照射をよく再現した GENAT4 を用いて光子当量 (equivalent quanta) に換算したフラックスを導出した。

2. 60 MeV 大強度電子加速器

電子ビームを 80 kV 電子銃から 300pps で引き出した後、プリバンチャー、バンチャー、1m 加速器管 8 本で、最大 60 MeV まで加速する。ビームエネルギーは 10 MeV から 60 MeV の間で調整が可能である。加速後はビーム診断部と 90° ビーム偏向部を経て、照射室にビームを輸送する(Fig.1)。これまで RI 製造で最も利用の多い 50 MeV の運転パラメータで Q-Scan 法を用いた測定からビームエミッタンスはおおよそ 80π mm-mrad と求められている[3]。

3. ^{57}Ni 放射能強度分布計測

3.1 RI 製造用照射システム

RI 製造で用いる照射システムでは、厚み 2 mm のコンバータと石英管に封入した標的を冷却水が循環するステンレス容器内に配置している(Fig.2)。コンバータと標的の距離は 3 cm としている。標的ポートの上流には、照射中のビーム照射位置モニタ用の厚み 0.5 mm の BeO スクリーンとビームを真空容器から大気に取り出すフランジに取り付けた厚み 50 μm のチタン箔で構成している。

3.2 プロファイル測定用照射システム

巨大共鳴のエネルギー領域に光核反応断面積を持つニッケルを標的に用いた(Fig.3)。プロファイル測定用のシステムは RI 製造時の制動放射線空間プロファイルを再現するため、コンバータと標的を同様の位置に配置した(Fig.4)。ニッケル箔の厚みは 10 μm で、角度広がり

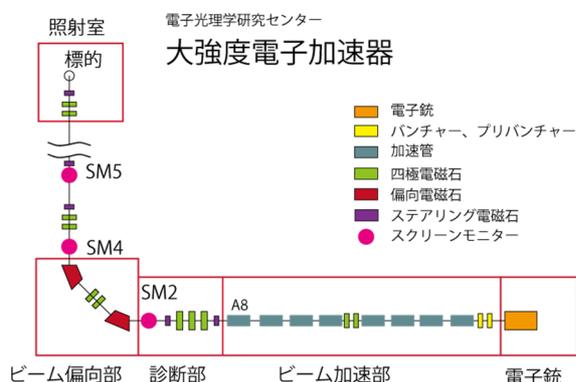


Figure 1: A scheme of 60 MeV electron linac.

[#] ken_takahashi@lns.tohoku.ac.jp

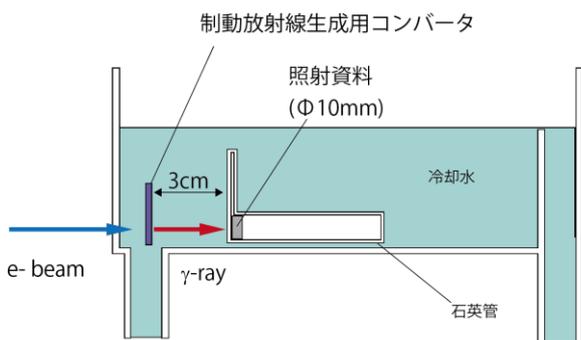


Figure 2: A scheme of current irradiation system.

を測定するために同じニッケル箔を標的の前後 3 cm の位置にも取り付けた。コンバータ以外からの制動放射線を低減するために、照射中のビーム位置モニター用ベリリアスクリーンは外している。レール上を動く台車の上にコンバータとニッケルを設置して、ビーム軸上に挿入する構成とした。

3.3 ビーム調整と⁵⁷Ni線源の作成

照射前に標的の位置でビームサイズが最も小さくなるように調整を行った。調整後、BeO スクリーンを外して、プロファイル測定用照射システムをビーム軸上に挿入して照射を行った。コンバータの冷却を考慮して、ビームエネルギー50 MeV、平均電流41.6 μA で75分照射した (Table 1)。

Table 1: Experiment Parameters

電子ビーム	
エネルギー	50 MeV
平均電流	41.6 μA
ピーク電流	100 mA
ビーム繰り返し	100 pps
パルス幅	4 μs
規格化エミッタンス	80π mm·mrad
ニッケル箔標的	
ターゲット	⁵⁸ Ni
形状	Foil
厚み	10 μm
存在比	68%
放射性同位元素	⁵⁷ Ni
半減期	35.6 h
タングステンコンバータ	
厚み	2 mm
密度	19.25 g/cm ³

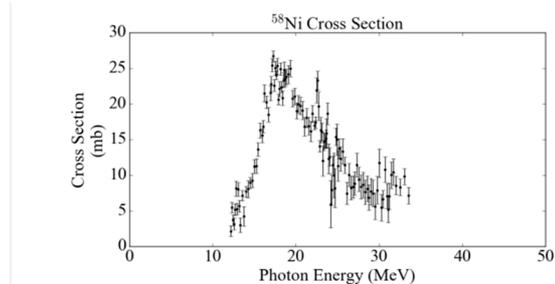


Figure 3: ⁵⁸Ni (γ, n) cross section in giant resonance region [4].

3.4 ⁵⁷Ni放射能強度測定

Ge 検出器を用いて ⁵⁷Ni 放射能強度を測定した[5]。空間的な強度分布を得るために、ニッケル箔を格子状に切り出してそれぞれの放射能強度を測定した。⁵⁷Ni の1377.63 keV γ線の放出確率は81.7%、同γ線の検出効率率は0.175%である。

箔片それぞれの放射能強度を足し合わせて元のニッケル箔について放射能強度を求め、コンバータ手前に設置したニッケル箔#1で91 kBq、コンバータ下流のニッケル箔はコンバータに近い箔から順に1.74, 1.79, 1.78 MBqであった。

4. 制動放射線の特性

4.1 空間分布のサイズと制動放射線の発散角

切り出した箔片の放射能測定から水平と垂直方向の空間分布を導出した。コンバータ直後でσ = 2.35, 2.00 mm、RI製造時の標的位置で3.85, 3.61 mm、コンバータの6 cm下流で5.69, 4.94 mmであった。3枚の強度分布のサイズから得られた制動放射線の発散角はそれぞれ54 mrad (水平)、49 mrad (垂直)であった。

今後、入射するビームパラメータと生成した制動放射線の関係をより明らかにしていく。

4.2 標的への照射効率

通常、RI製造に使われるコンバータから3 cm下流の放射能強度分布がビームに対して軸対称と仮定して、±3σの範囲で積分した。水平の空間分布から中心Φ1 cmの範囲の放射能強度は全体のおよそ57%と求められ

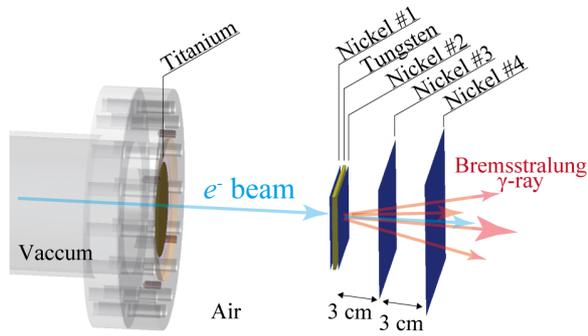


Figure 4: A scheme of irradiation system for this profile measurement.

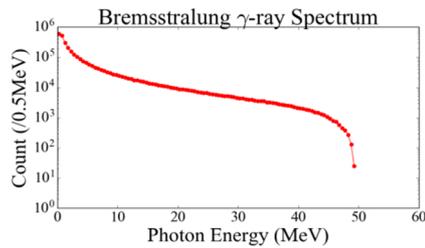


Figure 5: Spectrum of Bremsstrahlung γ -ray by GEANT4 simulation.

た。

5. 光子束

5.1 生成放射エネルギー

生成された放射能の見積もりには制動放射線のスペクトルと (γ, n) 反応の励起関数が必要である。今、照射終了時の生成放射エネルギーを A_0 、ターゲット原子数を N_t 、ビーム電流を N_e 、ビームエネルギーを E_0 、制動放射線のエネルギーを k 、照射効率を ε 、制動放射線の強度係数を f 、規格化された制動放射線のスペクトルを $\varphi(k, E_0)$ 、励起関数を $\sigma(k)$ 、壊変定数を λ 、照射時間を t 、生成収率を $Y(E_0)$ とした時、生成放射エネルギー A_0 は

$$A_0 = \varepsilon N_t N_e f \int_0^{E_0} \varphi(k, E_0) \sigma(k) dk \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1)$$

$$= \varepsilon N_t N_e f Y(E_0) (1 - e^{-\lambda t}) \quad (2)$$

と表せる。ここでは φ は

$$(1/E_0) \int_0^{E_0} k \cdot \varphi(k, E_0) dk = 1 \quad (3)$$

として規格化した (Equivalent quanta)。

5.2 ^{57}Ni 生成放射エネルギー (GEANT4)

プロファイル測定と同様のジオメトリで GEANT4 のシミュレーションを行った。GEANT4 は ^{57}Ni 放射能強度分布計測を通して得られた空間分布をよく再現していた[6]。シミュレーションで得られた制動放射線スペクトルを Fig.5 に示す。ニッケル箔#3 の位置で、入射電子 100 万個あたりの制動放射線による ^{57}Ni 生成量と、virtual photon flux による ^{57}Ni 生成量を Fig.6 に示す。Virtual photon は制動放射線と比べて生成への寄与が十分小さい。

Table 1 の条件を考慮すると、シミュレーションより予想される生成放射エネルギーは 1.86 MBq であり、3.4 で実測した放射エネルギー 1.79 MBq とよく合うことから、GEANT4 は照射をよく再現していると考えられる。

5.3 光子束

ビームエネルギー 50 MeV、タングステン厚み 2 mm、 ^{58}Ni 標的のとき、Fig.5 のスペクトラムと(3)式から $f = 0.33$ と求められた。当センターの RI 製造で利用の多いビーム

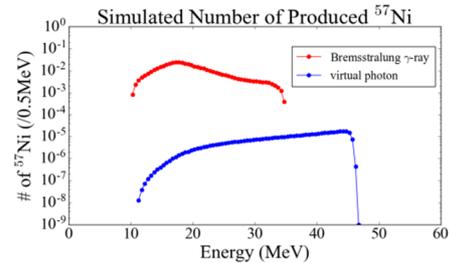


Figure 6: Simulated number of produced ^{57}Ni at nickel foil #3 by Bremsstrahlung γ -ray (red) and by virtual photon (blue). Simulated number of electron is 1 million.

エネルギー 50 MeV、平均電流 120 μA で照射したとき、十分大きい標的に対して光子束は $N_e f = 2.4\text{E}14[\text{eq.} \cdot \text{s}^{-1}]$ と求められる。

5.4 照射システムの評価

(2)式においてビームエネルギー、ビーム電流、標的核種、照射時間は任意の値であり、RI 製造施設から照射効率 ε を提供されることで、利用者は生成放射エネルギーを見積もることができる。当センター RI 製造システムで標準的な構成として、コンバータ 3 cm 下流に $\Phi 1$ cm の標的を置いた場合、照射効率 ε が 57%であることから $1.4\text{E}14[\text{eq.} \cdot \text{s}^{-1}]$ と求められた。

今回、実験およびシミュレーションの比較から ε, f を求めることができた。この ε, f が照射セットアップ固有の値、すなわちどの核反応でも共通の値であれば、 $Y(E_0)$ のデータから当センターでの生成放射エネルギーを簡単に見積もることができる。今後、別の標的を用いて、この見積もりが妥当かどうか確認する予定である。

6. まとめ

東北大学電子光理学研究センターでは 60 MeV 電子加速器を用いた光核反応による RI 製造を行っている。照射システムを高度化するために ^{57}Ni 放射能強度分布計測を通して測定したコンバータ下流 3 cm の標的上での制動放射線の空間的なサイズは $\sigma = 3.85$ mm (水平)、 $\sigma = 3.61$ mm (垂直)、角度広がり は 54 mrad (水平)、49 mrad (垂直)であった。照射位置で標的 $\Phi 1$ cm に対する空間的な照射効率は 57%と求められ、光子束はおおよそ $1.4\text{E}14[\text{eq.} \cdot \text{s}^{-1}]$ であった。

ビームエネルギー 50 MeV、タングステン厚み 2 mm、 ^{58}Ni 標的のとき、強度係数は $f = 0.33$ と求められた。今後、巨大共鳴領域に光核反応断面積を持つ安定同位体の内、RI 製造で需要のある Mo や安定同位体が単一で扱いが容易な Co や Au の照射を行い、さらに検討を進める予定である[7][8][9]。

参考文献

- [1] Kikunaga H., “制動放射線照射で製造できる RI”, 東北大学電子光理学研究センター研究会「大強度電子ビームとその応用利用」, Mar. 16-17, 2015.
- [2] Kashiwagi S., “大強度電子加速器と RI 製造”, 東北大学電子光理学研究センター研究会「大強度電子ビームとその応用利用」, Mar. 16-17, 2015.

- [3] Takahashi K., Kashiwagi S., Hinode F., *et al.*, Proceedings of the 12th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan. August 5-7, 2015, Tsuruga, Japan. PASJ2015 WEP004.
- [4] Fultz S.C., Alvarez R.A., Berman B.L., and Meyer P., Photoneutron cross sections of ^{58}Ni and ^{60}Ni , Phys. Rev. C 10 608
- [5] ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー; <http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No7.pdf>
- [6] Takahashi K., Kikunaga H., Tsukada K., *et al.*, Proceedings of IPAC2016, Busan, Korea, TUPOW011.
- [7] Beil H., Bergere R., Carlos P., Lepretre A., De Miniac A., Veysiere A., A study of the photoneutron contribution to the giant dipole resonance in doubly even Mo isotopes, Nucl. Phys. A227 (1974) 427-449.
- [8] Alvarez R.A., Berman B.L., Faul D.D., Lewis F.H. Jr., and Meyer P., Photoneutron cross sections for ^{55}Mn and ^{59}Co , Phys. Rev. C 20 128.
- [9] Varlamov V.V., Ishkhanov B.S., Orlin V.N., Troshchiev S. Yu., New data for the $^{197}\text{Au}(\gamma, nX)$ and $^{197}\text{Au}(\gamma, 2nX)$ reaction cross sections, Physics, 2010, Vol. 74, No. 6, pp. 842-849.