

## 電子線形加速器を用いた医療用 RI 製造システムの検討

### CONSIDERATION OF MEDICAL RADIOISOTOPE PRODUCTION SYSTEM USING AN ELECTRON LINEAR ACCELERATOR

柏木茂<sup>#, A)</sup>, 菊永英寿<sup>A)</sup>, 塚田暁<sup>A)</sup>, 高橋健<sup>A)</sup>, 三浦禎雄<sup>A)</sup>, 南部健一<sup>A)</sup>, 長澤育郎<sup>A)</sup>, 鹿又健<sup>A)</sup>, 日出富士雄<sup>A)</sup>,  
武藤俊哉<sup>A)</sup>, 浜広幸<sup>A)</sup>, 野田秀作<sup>B)</sup>, 井村亮太<sup>B)</sup>, 井田博之<sup>B)</sup>, 大浦泰嗣<sup>C)</sup>  
Shigeru Kashiwagi<sup>#, A)</sup>, Hidetoshi Kukunaga<sup>A)</sup>, Ken Takahashi<sup>A)</sup>, Sadao Miura<sup>A)</sup>, Ken-ichi Nanbu<sup>A)</sup>, Ikuro Nagasawa<sup>A)</sup>,  
Ken Kanomata<sup>A)</sup>, Fujio Hinode<sup>A)</sup>, Toshiya Muto<sup>A)</sup>, Hiroyuki Hama<sup>A)</sup>, Syusaku Noda<sup>B)</sup>, Ryota Imura<sup>B)</sup>, Hiroyuki Ida<sup>B)</sup>,  
Yasuji Oura<sup>C)</sup>

<sup>A)</sup> Research Center for Electron Photon Science, Tohoku University

<sup>B)</sup> JFE Engineering Corporation

<sup>C)</sup> Tokyo Metropolitan University

#### Abstract

We are conducting research and development on medical radioactive isotopes (RI) production using an electron linear accelerator at Research Center for Electron Photon Science (ELPH), Tohoku University. In this research, we investigate on Mo-99 production based on high power electron linac using  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$  reaction. The excitation function of photonuclear reactions ( $\gamma, n$ ) of Mo-99 have been measured using the high power electron linear accelerator. The experimental results were compared with past of the experimental data and the yield of  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$  reaction was estimated from the excitation function using PHITS code. High power electron linear accelerator is designed based on data of our basic research. The high power electron linac with energy of 30 MeV and output power of 40 kW will be described in this presentation.

#### 1. はじめに

核医学検査に最も多く利用されているテクネチウム同位体 (Tc-99m) の供給が、2010 年頃に危機的状況に陥った。日本では、テクネチウムの親核種である Mo-99 を 100% 海外からの輸入に頼っていたため、その最大の供給元であるカナダの原子炉が停止し、一時は供給量が通常の半分以下にまで激減してしまった。オランダなど他の原子炉の緊急増産によって、供給はなんとか保たれたが、このときテクネチウムの供給問題が浮き彫りになった。テクネチウム (Tc-99m) は親核種のモリブデン (Mo-99) からミルキング法で製造されるが、日本では Mo-99 の海外からの供給が滞ると、テクネチウム製品が全国で不足するという事態になる[1]。この供給不足の問題以降、Mo-99 の製造には様々な代替法が提案・検討されてきている[2]。その中の一つが、電子加速器を用いた  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$  反応を使う方法である。この反応を用いた製造では比放射能 (Mo-99/全 Mo 元素量) が低いため、従来の化学分離法が使用できないなどの問題もあり、幾つかの技術開発が必要であることがわかっている。しかし、電子加速器を用いた Mo-99 製造は、他の代替法に比べ単位時間あたりの製造量が多く、核燃料を使わないといったメリットもあり、幾つかある Mo-99 製造法の中では非常に有望な方法だと考えられる。

こうした背景から、東北大学電子光理学研究センターでは、国内最大級の出力をもつ大電流電子線形加速器を用いた医療用 RI 製造に関する共同開発研究を行なっている。これまでに、 $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)$  励起関数の検証実験[3]

や光子輸送コード PHITS による Mo-99 製造量の予想などを行なった。現在、ビーム実験から得られた基礎データをもとに、大強度電子線形加速器の設計および高い RI 生成効率を実現するための照射ターゲットシステムの検討を行なっている。本学会では、検討中の電子加速器システムの構成について報告する。

#### 2. $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ 光核反応

電子加速器を用いた Mo-99 製造では、先に述べた様に  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$  の光核反応を利用する。Mo-99 を大量に生産するためには、核反応確率の大きいエネルギーである 10~20 MeV の光子を大量に電子ビームを使い発生させる必要がある。また、Mo-99 の生成量を見積もるためには、電子ビームによって生成される光子の

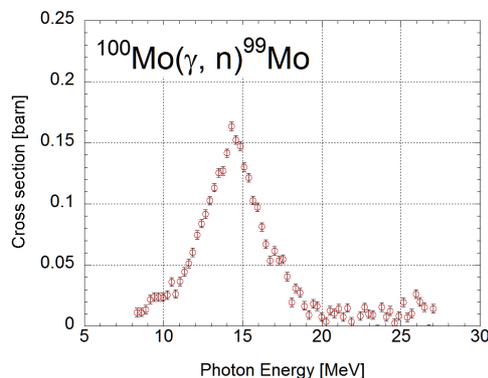


Figure 1: Excitation function of  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$  reaction.

<sup>#</sup> kashiwagi@lns.tohoku.ac.jp

スペクトル[4]と  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)$  の励起関数が必要となる。光子のスペクトルは GEANT や PHITS などの計算コードにより求めることができる。 $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)$  の励起関数については、1974 年に H. Beil らが測定したデータがあり、Fig. 1 に National Nuclear Data Center に掲載されている  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$  反応の励起関数を示す[5-7]。しかし、Beil らの測定以降、反応断面積の系統的な測定はほとんど行われていないため、我々は  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$  反応の励起関数の検証実験を実施した。その結果、実験値と文献値の良い一致がみられた[3]。

次に、Mo-99 の製造量を極めて単純な系を仮定して評価した。30, 40, 50 MeV の電子が Mo-100 金属ブロックの中で全てのエネルギーを失ったときに得られる Mo-99 の放射能を PHITS により求めた (Fig. 2)。このとき求まる放射能は電子加速器で得られる Mo-99 の最大量であり、ターゲット照射装置を検討するときの目安となる。赤丸印が 1 kW、1 時間あたりの放射能 (ビームパワー: 一定)、青丸印がビーム電流 20  $\mu\text{A}$ 、1 時間あたりの放射能 (電流値: 一定) である。当然ながら、エネルギーが高い電子ビームの方が反応確率の高い 10~20 MeV の光子を多く生成することができるので、作られる Mo-99 放射能も多い。一方で、光子エネルギーが高くなると副反応生成物が増えるといった問題が考えられ、またビームエネルギーを十分に受け止めるために多くのターゲットが必要になるため、Mo-99 から Tc-99m を生成するための化学分離が煩雑になるといった懸念もある。

### 3. Mo-99 製造用電子線形加速器

Mo-99 製造用の電子加速器システムについて検討を行なった。前節で、エネルギーが高い電子加速器の方が、多くの放射能が得られることを示した (Fig. 2)。しかし、実際の RI 製造を考える場合には、システムの規模やその信頼性を十分に考慮する必要がある。ここでの検討では、ビームパワー: 40 kW の電子加速器システムを 1 つの RF ユニットで構成できるかを、加速効率を 1 つの指標にして検討する (Fig. 3)。また、平均電流の大きな大強度電子加速器システムを構築する場合、常伝導加速器と超伝導加速器の二つの選択肢が考えられるが、加速器システムの信頼性やメンテナンス性、技術の成熟度などから、今回は常伝導の加速器システムを想定し検討し

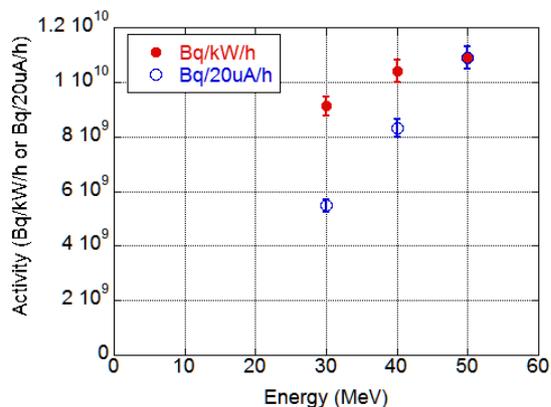


Figure 2: Relation between activity and beam energy.

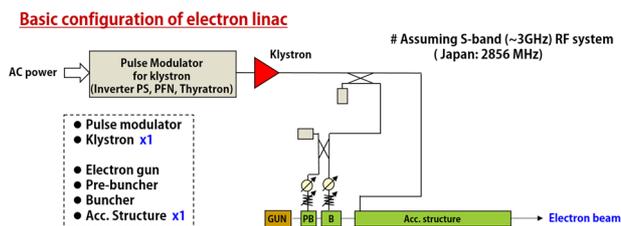


Figure 3: Basic configuration of electron linac.

た。また、加速に用いる RF 周波数についても、メンテナンス性、コスト面から国内外で最も普及している S バンドを採用する事とした。

#### 3.1 電子加速器の基本構成

電子線形加速器の基本構成を Fig. 3 に示す。商用の電力は、PFN 回路 (Pulse Forming Network circuit) などによって構成されるパルス変調電源 (クライストロンモジュレータ) により、クライストロンに印加するための高圧パルスへ変換される。次に、クライストロンにより小電力の RF パルスは数 10 メガワットまで増幅され、加速器システムへと供給される。加速器ビームラインは、電子ビーム源である電子銃、ビームを時間方向に圧縮するバンチャーシステム (PB: プリバンチャ, B: バンチャー)、加速管で構成される。クライストロンからの大電力 RF パルスは、導波管を介してバンチャーシステムおよび加速管に供給され、主にビーム加速によって消費される。

電子ビームパワー:  $P$  は、加速電圧:  $V_a$  (ビームエネルギー) と平均電流:  $I_{ave}$  の積により表すことができる。

$$P[\text{W}] = V_a[\text{V}] \times I_{ave}[\text{A}] = V_a[\text{V}] \times I_p[\text{A}] \times T_B[\text{s}] \times f_{rep}[\text{Hz}] \quad (1)$$

ここで、 $f_{rep}$ ,  $T_B$ ,  $I_p$  はビーム及び RF パルスの繰り返し周波数、電子ビームのパルス幅、ピーク電流値である。常伝導加速器では一般にパルス運転であるため、ビームパワーを大きくするためには、ビームのピーク電流を増やすのはもちろんであるが、デューティファクタ (=  $T_B \times f_{rep}$ ) を大きくする必要がある。ビームの繰り返し周波数を上げ、ビームパルス幅 ( $T_B$ ) を延ばすことが大きなビームパワーを得るためには有効である。ちなみに、電子光理学研究センターの大強度電子線形加速器では、2 台の高周波源と 8 本の 1 m 加速管を使い、平均電流が 120  $[\mu\text{A}]$  (= 135  $[\text{mA}] \times 3[\mu\text{s}] \times 300[\text{Hz}]$ )、ビームエネルギー: 50 MeV のとき、電子ビームパワーが約 6 kW である。このときのデューティは 0.1% である。

#### 3.2 ビーム加速とビームローディング

次に、ビーム加速とビームローディングについて述べる。加速管は進行波型の定加速勾配型 (CG: constant gradient) とし、加速管パラメータは、それぞれ  $\tau = 0.57$ ,  $r_0 = 60[\text{M}\Omega]$ ,  $t_f = 830[\text{ns}]$ ,  $L_{st} = 3.0[\text{m}]$  を仮定する。これらのパラメータは、既存の CG 加速管の一般的な値である。加速管におけるビーム加速電圧は式(2)、(3)から、ビームローディング電圧は式(4)、(5)から得られる[8]。ここで、 $I_p$  は電子ビームのピーク電流値であり、1 バンチャあ

たりの電荷量とバンチ間隔により  $I_p = eN_b/t_{sp}$  と書き表すことができる ( $N_b$ : 1 つのバンチに含まれる電子数、 $t_{sp}$  は S-band の 1 周期に相当するので約 350 ps)。

$$V_a(t) = \sqrt{\frac{L_{st}r_0P_0}{(1-e^{-2\tau})}} \left(1 - e^{-2\tau\frac{t}{t_f}}\right) \quad t \leq t_f \quad (2)$$

$$= \sqrt{L_{st}r_0P_0(1-e^{-2\tau})} \quad t \geq t_f \quad (3)$$

$$V_b(t) = \frac{L_{st}r_0I_p}{2} \left( \frac{2\tau e^{-2\tau}}{1-e^{-2\tau}} \cdot \frac{t}{t_f} - \frac{1-e^{-2\tau\frac{t}{t_f}}}{1-e^{-2\tau}} \right) \quad t \leq t_f \quad (4)$$

$$= \frac{L_{st}r_0I_p}{2} \left( \frac{2\tau e^{-2\tau}}{1-e^{-2\tau}} - 1 \right) \quad t \geq t_f \quad (5)$$

Figure 4 は、 $P_0 = 15$  [MW],  $I_p = 300$  [mA] のときの、加

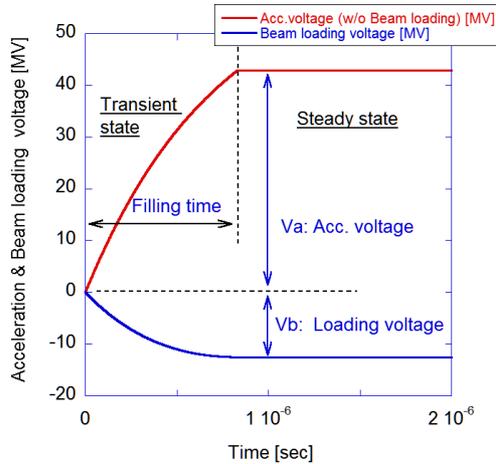


Figure 4: Accelerating voltage and beam loading voltage.

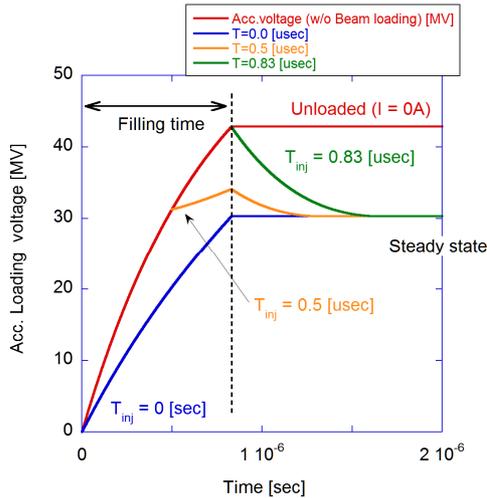


Figure 5: Accelerating voltage with beam loading for different injection timing.

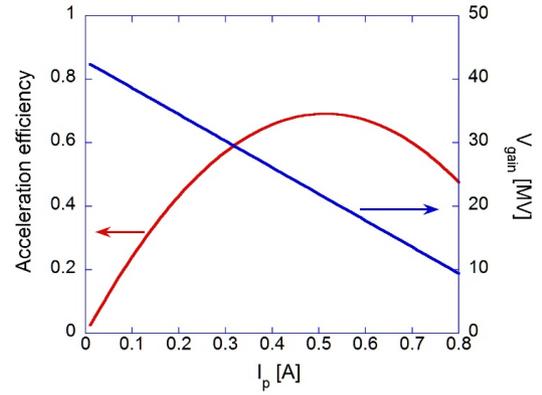


Figure 6: Acceleration efficiency and energy gain as function of peak beam current.

速管 1 本あたりの加速電圧およびビームローディング電圧である。また、RF パルスを加速管に入射する時間を  $t = 0$  とし、RF パルスに対するビームの入射タイミングを変化させた場合のビームのエネルギー利得は Fig. 5 の様になる。ビームを入射してからフィリングタイムまでの過渡状態ではビームのエネルギー拡がり大きく、定常状態になるとエネルギーが一定となる。エネルギー拡がりをどこまで許容するかといったことはあるが、電子ビームを RF パルスが加速管に供給されるのと同じタイミングで入射したとき、フィリングタイム以降のビームエネルギーは一定となり、このエネルギー幅の狭い電子ビームを RI 製造に利用することができる。RF のパルス幅を  $T_{RF}$  とした場合、エネルギーの揃った電子ビームが得られる最大時間幅 ( $T_B$ ) は、 $T_{RF} - t_f$  となる。電子ビームの平均電流  $I_{ave} (= I_p \times (T_{RF} - t_f) \times f_{rep})$  を上げるためには、パルスの繰り返し周波数を上げると同時に、RF パルス幅を加速管のフィリングタイムよりも十分長く延ばすことが必要不可欠である。

### 3.3 加速効率

RF パワーからビームパワーへの変換効率を、 $V_a$ : 無負荷の加速電圧、 $V_b$ : 定常状態時のビームローディング電圧 ( $V_b(t_f)$ )、 $I_{ave}$ : ビーム平均電流、 $P_{ave}$ : 平均の RF 電力を使い、加速効率として式(6)で定義する。ここで、式(5)より  $V_b \leq 0$  である。

$$\eta_A = \frac{I_{ave}(V_a + V_b)}{P_{ave}} \quad t \geq t_f \quad (6)$$

$V_b$  はビーム電流に比例するため、式(6)はビーム電流の 2 次関数となる。Figure 6 にビーム電流に対する加速効率とエネルギー利得を示す。このとき、加速管への高周波の入力パワーは 15 MW(peak)、RF パルス幅は 15  $\mu$ s、繰り返しは 200 Hz とした(デューティ: 0.3%)。エネルギー利得は、ビーム電流の増加に伴いビームローディングにより減少し、加速効率 ( $\eta_A$ ) は、ビーム電流が約 0.55[A] のときに最大値 0.7 程度となる。この加速効率が最大とな

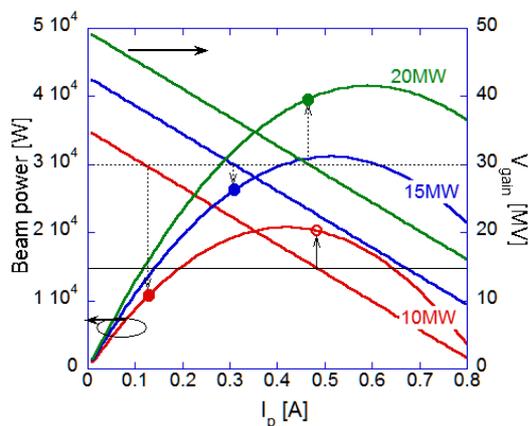


Figure 7: Beam power and energy gain as function of peak beam current.

る電流値は、加速管パラメータおよび RF 入力パワーによって決まる。また、加速効率の最大値は、入力パワーには依存せず加速管パラメータと RF のデューティーファクタにより決まる。

次に、加速管への入力電力を変えたときのビーム電流に対する電子ビームパワーとエネルギー利得の関係を Fig. 7 に示す。ここで、RF デューティーサイクルはこれまでと同じ 0.3 % とした ( $T_{RF} \times f_{rep} = 15[\mu s] \times 200[\text{Hz}]$ )。エネルギーを 30 MeV とした場合 (Fig. 7 中の点線)、加速管への入力パワーが 10 MW, 15 MW, 20 MW のときに、約 10.1 kW, 26.0 kW, 39.5 kW の電子ビーム出力が得られる。また、そのときの加速効率はそれぞれ約 34 %, 58 %, 66 % となる。これより、3 m 加速管への入力パワーが 20 MW、デューティー 0.3 % で RF を供給することにより、Fig. 3 に示した 1 つの RF ユニットでエネルギー 30 MeV、出力が約 40 kW の電子ビームを生成することが可能である。また、RF 入力パワーを 20 MW に固定し、電子ビームのエネルギーを 40 MeV に上げる場合、加速効率 ( $\eta_A = 0.43$ ) が下がるため、電子ビームの出力は 26 kW と大きく減少する。RF 入力パワーが 20 MW のとき、ビームパワーの最大値は約 42 kW、そのときのエネルギーは約 25 MeV となる。

実際の加速器運転を考える場合、バンチャー部への RF 供給や導波管ロスを考える必要があるため、加速管へ 20 MW の RF パワー (ピーク) を供給するためには、クライストロン出力は約 25 MW 程度必要である (5 MW の電力がバンチャー系と導波管損失により消費されると仮定)。このとき、デューティー: 0.3 % とした場合、クライストロンの RF 出力電力 (平均) は 75 kW となる。現在、このような高い平均電力の S バンドクライストロンは存在しないため、コレクターや RF 出力窓の改造のために開発期間が必要である [9]。また、コレクター損失などを考えると、平均出力 75 kW は 1 台のクライストロンから発生できる RF 電力の限界と考えてよい。つまり、1 つの RF ユニット (クライストロンと加速管が各 1 本) で構築できる電子リナックの出力限界の目安が、ビームエネルギー 30 MeV、

ビームパワー 40 kW だと考えることができる。

ユニット数を増やすと加速器建設コストや維持費がかかることが懸念されるが、ここで RF ユニートを 2 つにした場合について考えてみる。3 m 加速管に入力する電力ピークを 10 MW に抑えビーム電流を約 480 mA としたとき、加速管 1 本当りのエネルギー利得は 15 MeV、加速管 2 本で 30 MeV となる。RF パルスのデューティーを 0.3 % とすると、ビームパワー約 40.6 kW (= 20.3[kW] × 2)、加速効率約 68 % となる (Fig. 7 中の実線)。ユニット数を増やすことにより 1 台あたりのクライストロンの出力パワーを下げるができるので、クライストロンの大幅改造も必要がなくなり、開発期間の大幅な削減が期待できる。出力パワーのピークが 20 MW から 10 MW に下がることによって、クライストロンの動作電圧も 200 kV 以下にできるため、クライストロンモジュレータの小型化を図ることができる。また、オプションとしてクライストロンの出力パワーを 10MW よりも上げることににより、電子ビームエネルギーを上げ電子ビーム出力も増やすことが可能である。

#### 4. まとめ

Mo-99 製造用の電子加速器について、加速効率を一つの指標としてシステムの検討を行なった。1 つの RF ユニットで構成される電子リナックで生成できる電子ビームの最大出力は、エネルギー 30 MeV で 40 kW である。また、ビームパワーを一定としエネルギーを 30 MeV よりも上げるには、クライストロンの出力電力の制限から RF ユニット数を複数にする必要があることが今回の検討から分かった。ユニット数を増やすことにより加速器の建設コストや維持費の上昇が考えられるが、クライストロン 1 本当りの出力電力を下げるができるため、クライストロンモジュレータのコンパクト化やクライストロンの開発期間の削減ができるといったメリットもある。

最終的な Mo-99 製造用の電子加速器を設計するためには、ターゲット材質、化学処理過程 (モリブデンの再生率など) も考慮した照射ターゲットシステムの設計・開発を行なう必要がある。ターゲット材質や照射システムが決まることで、最適なビームエネルギーも明確になり、コスト面を含めた詳細な加速器設計に取り掛かることができる。今後は、ターゲット材質選択のための RI 製造実験、ターゲットシステムの試験製作およびその性能評価を実施する予定である。

#### 参考文献

- [1] アイトーブ等流通統計 2017; <https://www.jrias.or.jp/report/pdf/ryutsutoukei2017.pdf>
- [2] 井上登美夫, RADIOISOTOPE 62 (2013) 667.
- [3] 野田秀作 他, 第 15 回日本加速器学会年会, THP122.
- [4] Bull. Fac. Eng. Hokkaido Univ. 66, 63-73 (1973).
- [5] H. Beil et al., Nuclear Physics A 227 (1974) 427.
- [6] P. Carlos et al., Nuclear Physics A 219 (1974) 61.
- [7] NNDC web site; <https://www.nndc.bnl.gov/>
- [8] S. Kashiwagi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 5617-5622.
- [9] Y. Ookubo, private communication.