

cERLにおけるRI製造、電子線照射ラインの建設と照射試験報告

CONSTRUCTION AND FIRST BEAM TEST OF THE NEW INDUSTRIAL APPLICATION BEAMLINE AT cERL IN KEK FOR THE RI PRODUCTION AND ELECTRON BEAM IRRADIATION

森川 祐[#], 原田 健太郎, 山本 将博, 芳賀 開一, 萩原 雅之, 東 直, 本田 洋介, 本田 融,
保住 弥紹, 神谷 幸秀, 河田 洋, 小林 幸則, 松村 宏, 満田 史織, 三浦 太一, 宮島 司,
長橋 進也, 中村 典雄, 濁川 和幸, 野上 隆史, 帯名 崇, 加藤 龍好, 下ヶ橋 秀典,
阪井 寛志, 島田 美帆, 多田野 幹人, 高井 良太, 高木 宏之, 田中 織雅, 谷本 育律,
豊田 晃弘, 内山 隆司, 上田 明, 梅森 健成, 吉田 剛, 舟橋 義聖

Yu Morikawa, Kentaro Harada, Masahiro Yamamoto, Kaiichi Haga, Masayuki Hagiwara,
Nao Higashi, Yosuke Honda, Tohru Honda, Mitsugu Hosumi, Yukihide Kamiya, Hiroshi Kawata,
Yukinori Kobayashi, Hiroshi Matsumura, Chikaori Mitsuda, Taichi Miura, Tsukasa Miyajima,
Shinya Nagahashi, Norio Nakamura, Kazuyuki Nigorikawa, Takashi Nogami, Takashi Obina,
Ryukou Kato, Hidenori Sagehashi, Hiroshi Sakai, Miho Shimada, Mikito Tadano, Ryota Takai,
Hiroyuki Takaki, Olga Tanaka, Yasunori Tanimoto, Akihiro Toyoda, Takashi Uchiyama,
Akira Ueda, Kensei Umemori, Go Yoshida, Yoshisato Funahashi
High Energy Accelerator Research Organization, Japan

Abstract

A new beam line for the electron beam irradiation is constructed at the cERL (compact Energy Recovery Linac) in KEK. The new beam line is used for the industrial applications; Mo99 production for the nuclear medicine and the asphalt modification for the infrastructure sustainability. The construction was finished in March 2019. In April, we passed the facility inspection of the Nuclear Regulation Authority and the preliminary tests with the vacant targets are conducted. We made the first irradiation experiments in June. In this paper, we show the design of the new beam line and the results of the first irradiation experiments.

1. はじめに

cERL (compact Energy Recovery LINAC)は電子ビームを超伝導線形加速器で加速、周回部で周回させ、再び同じ線形加速器で減速し、そこでエネルギーを回収して次のビームの加速に使うという、エネルギー回収型線形加速器[1, 2]である。近年、超伝導電子線形加速器の産業応用や利用拡大が世界的に進められており、KEKでは、cERLの超伝導線形加速器を利用して、産業利用目的の電子線照射ビームラインを建設した。超伝導電子線形加速器には、大電流の連続パルス(CW)ビームを発生できるという、他の加速器にない特徴があり、新しく建設したビームラインでは、まず、核医学に使われる^{99m}Tcの原料となるRIである⁹⁹Moの製造と、アスファルトの改質、再生の為の理化学実験を行うことにした。

⁹⁹Moは半減期66時間で⁹⁹Tcに崩壊するが、その一部は準安定状態^{99m}Tcとなる。^{99m}Tcを化学的に合成した薬剤が患者に投与されると、^{99m}Tcは半減期6時間で安定状態になる時に141 keVのX線を出し、そのX線で患部の画像診断等が可能になる。日本で使われるRI製剤の大半を占める⁹⁹Moだが、現在は100%輸入に頼っており、国内製造はされていない。老朽化した海外の原子炉で高濃縮ウランの核分裂によって製造されたも

のを輸入しているが、新しいRI製造用の原子炉の建設は海外でも難しく、今後長期にわたる安定供給には不安が残る。そこで、超伝導加速器を使って⁹⁹Moを商用に大量製造、供給するのが本研究の最終目的である。常伝導加速器を使った少量の製造は日本[3, 4]でも海外[5-8]でも行われているが、我々はまず、超伝導加速器の特長を生かした大量商用製造施設の設計を目指し、cERLで基礎データの測定を行うことにした。

電子線照射ビームラインおよび実験は株式会社アクセルレータ[9]の出資による委託研究である。先方の要請により、ビームラインではRI製造だけではなく、アスファルトの改質、再生の為の理化学実験も行われることになった。アメリカの研究[10]によると、舗装されて長期間使用され、劣化したアスファルトに電子線を照射すると、アスファルトを再生することができ、再舗装を省くことができる可能性がある。ただし、その詳細や原理は明らかにされていない。そこで、我々はKEKのマルチ量子ビームによる物質評価という特長を活かし、電子線照射したアスファルトの物性変化を調べる研究を行うこととした。

2. 新ビームラインの設計と建設

電子線照射ビームラインはcERLの北直線部の延長線上に建設された(Fig. 1, Fig. 2)。⁹⁹Moの製造には、現状のcERLの定格エネルギーである約20 MeVの電子を使う。天然のモリブデンに約10%含まれている同位体

[#] yumori@post.kek.jp

^{100}Mo に約 14 MeV のガンマ線を照射すると、原子核の巨大共鳴反応により、中性子が 1 個放出され、 ^{99}Mo となる。それを $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ と書く。電子はコンバータと呼ばれる金属に衝突してガンマ線を出す。今回はターゲットとして使う天然の金属モリブデン自身がコンバータとして働く。現在の cERL の運転エネルギーである約 20 MeV の電子ビームは 14 MeV のガンマ線発生には十分なエネルギーなので、RI 製造時の最大エネルギーは 20 MeV とした。一方、アスファルトの場合、電子ビームのエネルギーはアスファルト内の電子線の到達深度を決める。工業的測定用の試料や実際の道路を想定し、進行方向の深さ約 2cm まで電子線を照射することが必要であるので、理化学実験時の電子ビームの最大エネルギーは 10 MeV とした。なお、両者とも最大電流値は 10 μA である。

RI 製造施設は通常、非密封 RI 取扱施設となり、冷却水や空調、施設の隔離など、厳重な放射線防護体制の為に、インフラの大規模、高価な改修が必要となる。今回の場合、加速器室内で RI の密封を解く必要はなく、さ

らに、製造は基礎データ取得が目的であるために、ごく少量である。そこで、製造する RI の密封を保証し、かつ、水および空気放射化を規定の閾値の 1/10 以下に抑えることで、加速器室内を非密封 RI 取扱施設とせず、いわば“密封 RI 製造”施設として照射ビームラインが設計された。製造した RI の開封、測定は、機構内に既存の非密封 RI 取扱施設である、RI 試料測定棟でのみ行われる。ターゲットは金属製のカプセル内に密封され、そのカプセルごと、照射時も輸送時も、真空チェンバー内に封入することで、二重の密封機構を構築した。加速器室全体を照射室と定義し、ターゲットを設置した照射部の床と壁には液体染み込み防止のためのエポキシ塗装を行い、万が一の時に備えて加速器室空調には HEPA (High Efficiency Particulate Air) フィルタを設置した。一方、理化学実験のための 10 MeV 電子ビーム照射では、ほぼ放射化は起こらず、通常の加速器運転時の防護体制で十分である。

cERL の北直線部端にある、周回部の第一主偏向電磁石には、もともとビームライン延長線上に空洞のアライメントの為にレーザーポートが設置されており、今回はそこに新しいビームラインを接続することにした。偏向電磁石真空ダクトをアンテナチェンバー的に区切っている仕切り穴が最少アパーチャ(横 3 cm、縦 1 cm)で、ここではビームを縦に絞る必要がある。ビームのエネルギーはこの偏向電磁石を ON にしてエネルギー分析を行うことで決定し、その後 OFF にしてステアリングコイルで消磁を行ってビームを照射部に取り出す。

空洞の暗電流が下流に到達するのを防ぐ為、エネルギー回収運転時に使われる取り出しシケインを ON にし、周回ビームと同様に、ビームが局所バンパを作るようにして運転を行った。照射部には 2 台の偏向電磁石が設置されていて、それぞれ 16° ビームを曲げる。この電流値で、RI 製造モードと理化学実験モードそれぞれに対する最大ビームエネルギーのインターロックをかけた。

ビーム電流値は電子銃電源の電流値、入射部のフェラデーカップ(FC)、照射部ダンプの FC で測定される。ターゲットありの場合はターゲットで電子が失われ、照射部 FC は使えないため、途中の BPM 等を較正し、それでも測定を行う。これらを組み合わせ、最大電流値の瞬時および積分値のインターロックをかけた。

放射線申請上の RI 製造の最大量は、 ^{99}Mo および $^{99\text{m}}\text{Tc}$ がそれぞれ 100 MBq/day、2 GBq/month、8 GBq/year である。RI 試料測定棟についても同量の受け入れ取り扱いができるように変更申請が行われた。RI 製造のシミュレーションは CERN で開発された、高エネルギー粒子反応のモンテカルロ法シミュレーションコード FLUKA[11]を使って行った。現在の cERL の定格である 17.5 MeV、10 μA の電子ビームで製造される ^{99}Mo の最大量はおよそ 30 MBq/hour と推定される。ただし、1 kBq 程度あれば、ゲルマニウム検出器を使った核種の同定や生成量の計算には十分であり、その為には、およそ数 μA で数分間照射すればよいことになる。

3. ターゲット系

ターゲット部分の設計詳細は発表[12]で述べられているので、ここでは、概略のみを示す。ターゲットを密閉状

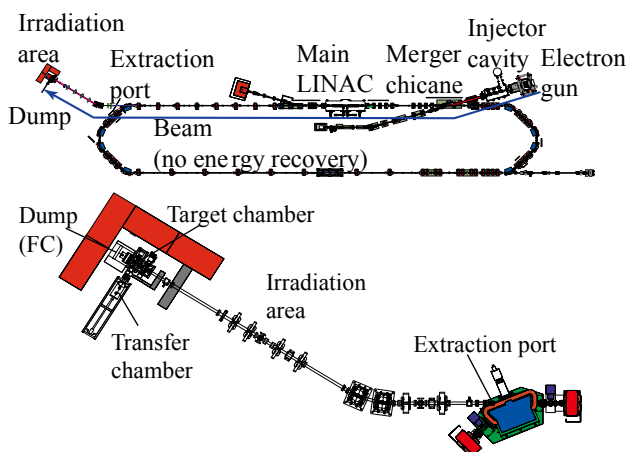


Figure 1: Layout of cERL and the irradiation area.

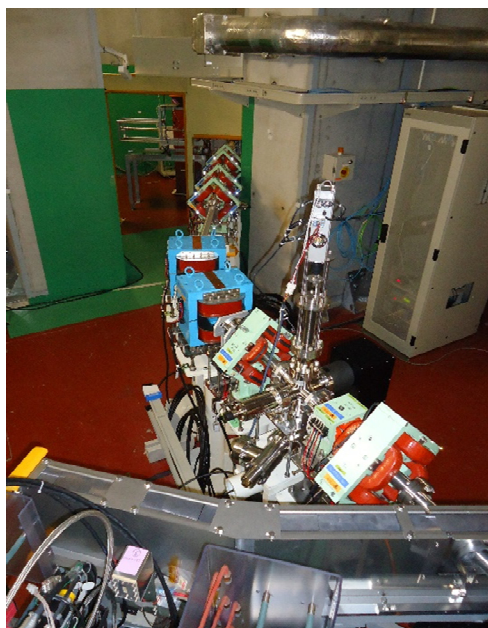


Figure 2: Picture of the new beamline.

態にする為、試料はアルミのカプセル(Fig. 3)に封入する。アルミは銅などに比べて放射化しにくく、また、熱伝導率も十分に高い。カプセルに封入できる試料の最大外径は直径 38 mm、長さ 80 mm である。カプセルは輸送時は輸送チャンバー内に、照射時は加速器ビームライン上に設置された照射チャンバー内に設置され、それぞれのチャンバーは真空状態になっている。輸送チャンバーは照射チャンバーの脇に取り付けることができ(Fig. 4)、連結部分を真空にした上でゲートバルブを開けると、両者をつなげることができる。カプセルは長いロッドに取り付けられていて、外からロッドを出し入れすることで、真空容器の中でカプセルを移動させることができる。照射チャンバー内でロッド先のネジ機構を回してロッドをカプセルから取り外せば、ロッドを引き抜き、輸送チャンバーを外すことができる。輸送チャンバーはビームラインに対して 90°、すなわち真横から出し入れされる為、ビーム照射方向に合わせるにはカプセルを 90° 回転させる必要がある。カプセルを載せるステージは、水冷付きの銅ブロックで作られている。下部ステージを回転させてカプセルをビーム方向に向けた後、上から同じ水冷付きの銅ブロックで押さえ付け、きちんと接触冷却がとれた段階で、電子ビーム照射可能となる。

カプセルは 8 角柱形状で、冷却の為、斜面で面接触がとれるようになっている。上下の水平面に比べて斜面は製作誤差と据え付け誤差があっても押しつけることで安定した接触が可能である。今回の照射では最大 200 W のビームパワーがカプセルに与えられるが、試作機による事前のテストでは 800 W でも問題はなかった。

照射室はクリーンルームではないので、ターゲットの出し入れには、どうしても真真空の汚染が伴う。cERLビームラ

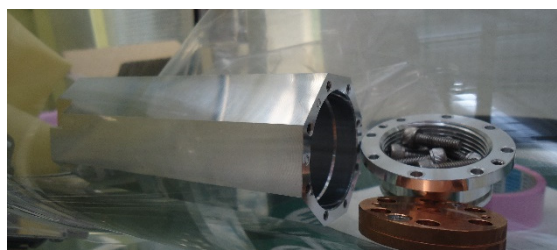


Figure 3: Picture of the target capsule.

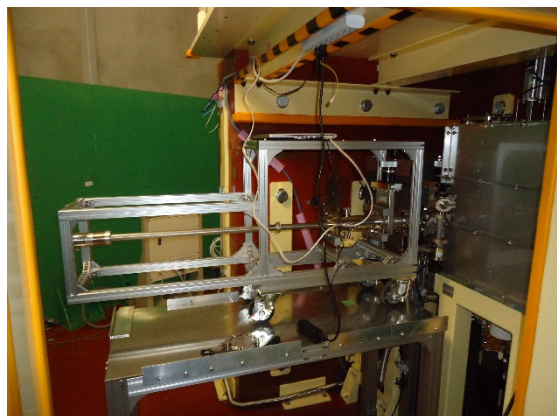


Figure 4: Transfer chamber with insertion rod attached to the target chamber.

インにゴミ等が入らないようにし、超伝導空洞を保護する為、照射チャンバーは 0.5 mm 厚のベリリウム窓で真真空的に切り離された。シミュレーションからは、細いままのビームや大電荷のパルス運転であっても窓の耐久性に問題はないことが示されている。

4. ビームライン立上試験

照射ビームラインは 2018 年 7 月頃より建設を開始し、2019 年 3 月に完了した。4 月 5 日より試験運転を開始し、12 日に施設検査、17 日付で合格となった。4 月中は機器の較正やビーム調整手法の確立、空のターゲットに対する照射試験が行われた。5 月には一旦運転を休止し、加速器シールド内空調に HEPA フィルタを取り付ける工事が行われ、その後、6 月に実際の RI 製造及び理化学実験が行われた。cERL は今年度、合計 4 ヶ月間の運転が予定されており、4 月、6 月の次は、10 月に運転が予定されている。

4 月の試験時、空のターゲットカプセルに対して長時間の照射試験を行った際、カプセル裏蓋の密閉に使われていた耐放射線 O リングが劣化し、問題となった。シミュレーションの結果、カプセルが空の場合、電子ビームはアルミが厚いカプセル裏蓋で損失し、O リング付近に放射線が集中することが分かった。許容量 2 MGy の O リングに対し、約 1.6 MGy の放射線が照射されたと推定される。カプセル内にターゲットが入っていれば電子ビームはそこで損失する為、O リングはほとんど放射線に晒されない。6 月の運転では、最初に O リングの安全試験が行われ、実際にカプセルに中身が入った状態であれば問題ないことが確認された。また、O リングを使用しない、金属ガasket 封止のカプセルも製作され、試験照射が行われた。

5. 照射実験と結果

照射試験の為の cERL の立上げ、ビーム調整の詳細については発表[13]で詳しく述べられている。

6 月の RI 製造試験の目的は、 ^{99}Mo 生成の電子エネルギー依存性の測定、同時に生成される不純物の確認、金属標的内のガンマ線分布の測定である。エネルギー依存性及び不純物の測定の為には、直径 3.5 cm、1 mm 厚+9 mm 厚の金属モリブデンディスクを 7 セット重ねた標的に対し、11.5, 13.5, 15.5, 17.5, 19.5 MeV で電子線を照射し、1 mm 厚のディスクをゲルマニウム検出器で測定した。この測定で、深さ方向に対する生成率の変化も知ることができ、また、同じ試料を IP (Imaging Plate) で測定することで、電子線に対し断面方向のガンマ線分布についても測定できた。ガンマ線分布測定の為には、直径 35 mm 長さ 70 mm の円柱を中央に 1 mm 厚(幅 35 mm x 長さ 70 mm)のプレートが残るように縦に 3 分割した試料に対し、11.5, 17.5 MeV で照射を行い、中央の 1 mm 厚の板を IP で測定した。6 月に実際に行った RI 製造試験のパラメータを Table 1 に、試料の例を Fig. 5 に示す。

^{99}Mo 生成時に ^{93}Mo が大量に生成される可能性を示唆する文献もあったが、大量に生成されず、問題はなかった(輸送時の追加の遮蔽は必要にならなかった)。照射直後には ^{91}Mo が生成されたが、半減期 15.5 分なので、抽出試験のために多めに製造する場合には、しば

Table 1: Parameters of RI Production Experiment

試料形状	ディスク					プレート	
	6/20	6/19	6/18	6/12	6/26	6/21	6/14
照射日	6/20	6/19	6/18	6/12	6/26	6/21	6/14
電子運動量 [MeV/c]	11.5	13.5	15.5	17.5	19.5	11.5	17.5
設定電流値 [μA]	8	1	1	1	1	8	1
実照射時間 [秒]	670	518	215	123	118	625	100
積分照射電荷量 (実測) [μC]	5420.5	568.9	239.1	129.8	122.6	5339.4	129.4
^{99}Mo 製造量 (計算値) [kBq]	42.8	41.2	69.3	93.5	148.3	42.7	93.2

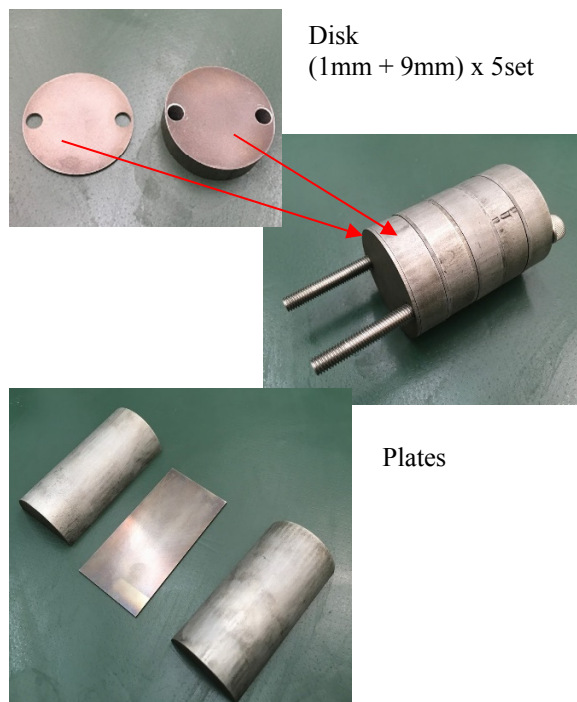


Figure 5: Molybdenum Samples.

らく時間において(例えば照射の翌日などに)カプセルを取り出せば問題はなさそうということが分かった。

電子線で ^{99}Mo を生成する利点は、不純物の少なさにある。Figure 6 に、今回の照射実験で得られた核種ごとの生成収率のエネルギー依存性を示す。20 MeV 程度の電子線の場合は不純物となる他の核種がほとんど生成されないことが示され、製薬材料としても放射性廃棄物の観点からも望ましいことが示された。

本研究プロジェクトの最終目的は、国内で ^{99}Mo を供給する為に、商用で大量生成が可能な実機を設計することにある。現在の日本の需要はおよそ 350 TBq/year と推測され、およそ 1 日に 1 TBq 製造できると日本全国の需要を満たすことができる。本試験の結果、19.5 MeV、10 mA で 40 mm 厚の天然金属モリブデンターゲットを使用すると、24 時間連続運転で 0.81 TBq/day の製造が可能と推測される。加速器を 2 台用いれば、1 日約 1.6 TBq となる。また、 ^{100}Mo だけを抽出したエンリッチターゲットを用いると、収量は約 10 倍に増大するので、その場合は加速器 1 台だけでも十分な余裕があり、商用に輸出が可

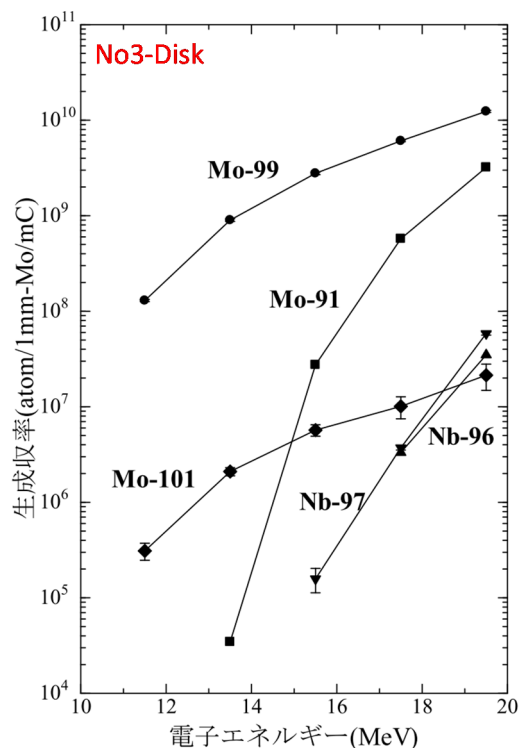


Figure 6: Energy Dependence of RI production.

能になる可能性もある。

一方、アスファルトへの電子線照射であるが、アスファルトターゲットへの事前の加熱試験時、ヒーターで 200W を加えたところ、加圧、膨張によって試料の漏出が生じた。そのままの方式で電子線照射を行うと、照射チャンバーの窓が破損したり、真空系や空洞が汚染される可能性を完全に否定できなかった為、今回は少量のアスファルト試料に対し、0.2 μA で 556 秒間電子線を照射することで、必要量の 1/4 である約 50 kGy の照射を行った。試料は直径 16 mm 深さ 5 mm の金属カップに入れられ、圧力抜きをついた抑え治具で固定されて、カプセル内に入れられる。この条件であれば温度上昇は 10 $^{\circ}\text{C}$ 以下、膨張や放射線による脱ガスなどを配慮してもカプセル内の圧力はほとんど上がる可能性がないと推測された。実際の試料を Fig. 7 に示す。劣化のないストレートアスファルト、改質アスファルトの 2 種類に対して照射を行った。

その後、PF リング BL10C で照射済み試料の X 線小

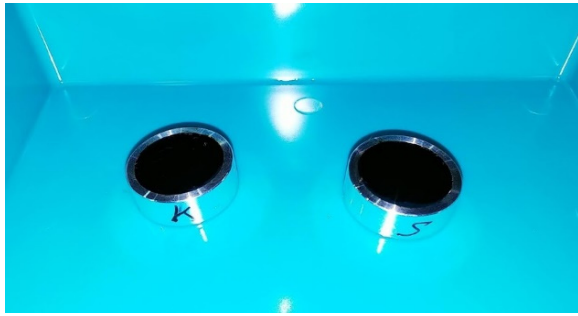


Figure 7: Asphalt Samples.

角散乱測定が行われ、50 kGy の照射でもストレートアスファルトに関しては有意な変化がありそうだという感触を得た。今後、TIA かけはし[14]を活用し、他研究機関と共同で化学分析を進める予定である。

6. 今後の展望

医療用 RI 製造のための基礎実験、アスファルト改質、再生などの産業利用を目的に、cERL に電子線照射ビームラインが建設された。2019 年 6 月より、実際の ^{99}Mo 製造、アスファルトへの照射実験が行われている。 ^{99}Mo に関しては今後は金属モリブデンの溶解、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 抽出試験を RI 試料測定棟で行う予定である。また、製造核種を増やすことも検討中である。アスファルトに関しては、針入度測定、軟化点測定などの工業的特性測定のためには今の 4~5 倍の量の試料が必要である。安全に実験が行えることを最優先に、カプセルや治具の改善、追加の事前試験などを行う予定である。

謝辞

照射ビームラインの建設及び運転は株式会社アクセラレータが出資する委託研究として行われた。また、RI 製造は千代田テクノと、アスファルト改質実験は東亜道路工業との協同研究である。ターゲット系の設計、製作、事前試験は KEK 機械工作センター、製造後の RI の放射線測定は放射線科学研究センターの協力無しにはできなかった。アスファルト小角散乱では PF 測定器の高木秀彰氏、清水伸隆氏にお世話になった。出資者、共同研究者、協力者の皆様にお礼を申し上げます。

参考文献

- [1] R.Hajima, N.Nakamura, S.Sakanaka and Y.Kobayashi, "Design Study of the Compact ERL", KEK-Report 2007-7, in Japanese, 2007.
- [2] 加藤 龍好 *et al.*, "KEK コンパクト ERL の現状", in these proceedings, FSP1006.
- [3] S.Kashiwagi *et al.*, "Consideration of Medical Isotope Production System Using an Electron Linear Accelerator", Proc. of PASJ2018, pp.1206-1209, 2018.
- [4] S.Sekimoto *et al.*, "Separation and purification of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ from ^{99}Mo produced by electron linear accelerator", J. Radioanal. Nucl. Chem., 311, pp.1361-1366, 2017.
- [5] K.Mang'era *et al.*, "Processing and evaluation of linear accelerator-produced $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ in Canada", J. Radioanal. Nucl. Chem., 305, pp.79-85, 2015.
- [6] P. Tkac *et al.*, "Chemical Processing Activities for ^{99}Mo

production by (γ, n) and (n, γ) reactions using enriched ^{100}Mo and ^{98}Mo targets", Conference paper of Mo-99 2015 Topical Meeting on Molybdenum-99 Technological Development, Boston, 2015.

- [7] G.E.Dale, "Recent Activities at Los Alamos National Laboratory Supporting Domestic Production of ^{99}Mo ", Presentation slides of 2016 ^{99}Mo Topical Meeting, St. Louis, 2016.
- [8] A.V.Sabel'nikov *et al.*, "Preparation of ^{99}Mo and $^{99\text{m}}\text{Tc}$ by $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)$ Photonuclear Reaction on an Electron Accelerator, MT-25 Microtron", Radiochemistry, 48, pp.191-194, 2006.
- [9] <https://www.accelerator-inc.com/>
- [10] T.K.Kroc and R.D.Kephart, "Industrial Accelerators - Beyond Transformers and Cyclotrons, More Power", FERMILAB-CONF-15-131-AD, 2015.
- [11] Alfredo Ferrari, Paola R. Sala, Albert Fasso, Johannes Ranfit, FLUKA: A multi-particle transport code, Version 2011-2x, CERN.
- [12] 森川祐 *et al.*, "cERL 電子線照射部における標的冷却システムの開発", in these proceedings, WEPH017
- [13] 東直 *et al.*, "cERL 照射ビームラインのコミッションング", in these proceedings, FROH09
- [14] 研究代表 高木秀彰, "電子線の照射によるアスファルト高性能化のための調査", TIA かけはし 2019, <https://www.tia-nano.jp/page/page000403.html>