

重陽子加速器中性子源を用いた放射性同位元素製造 用長寿命C/Be複合中性子コンバータの開発

木原, 隆弘

九州大学大学院総合理工学府総合理工学専攻プラズマ・量子理工学メジャー

<https://hdl.handle.net/2324/7178674>

出版情報：九州大学, 2023, 修士, 修士
バージョン：
権利関係：



令和 5 年度
九州大学大学院 総合理工学府
総合理工学専攻
プラズマ・量子理工学メジャー

修 士 論 文

論文名

重陽子加速器中性子源を用いた放射性同位元素製造用
長寿命 C/Be 複合中性子コンバータの開発

氏 名

木原 隆弘

指導教員名

金 政浩 准教授

目次

第 1 章	序論.....	1
1.1	医療用放射性同位元素.....	1
1.1.1	検査用放射性同位元素	2
1.1.2	治療用放射性同位元素	4
1.1.3	セラノスティクス	5
1.2	放射性同位元素製造の現状.....	6
1.2.1	荷電粒子入射	7
1.2.2	加速器中性子源	8
1.3	中性子コンバータ	11
1.3.1	ブリスタリング	12
1.4	研究目的.....	13
第 2 章	中性子コンバータの設計.....	14
2.1	C/Be 複合コンバータの概要	14
2.1.1	ベリリウムコンバータ部の耐久性	14
2.1.2	炭素及びベリリウム厚の決定手法	15
第 3 章	中性子収量計測実験.....	17
3.1	実験施設の概要.....	17
3.1.1	東北大学 CYRIC	17
3.1.2	JAEA タンデム加速器	17
3.2	多重箔放射化法.....	18
3.2.1	アンフォールディング過程	19
3.2.2	アンフォールディングコード	19
3.2.3	応答関数	20
3.2.4	初期推定スペクトル	22
3.3	照射体系.....	23

3.4	ガンマ線計測.....	27
3.4.1	標準線源測定	28
3.4.2	エネルギー校正	30
3.4.3	ピーク検出効率	30
3.4.4	放射化量計測	31
第 4 章	結果・考察.....	32
4.1	複合コンバータの耐久性.....	32
4.2	実験結果.....	32
4.2.1	エネルギーキャリブレーション	32
4.2.2	光電ピーク検出効率	33
4.2.3	生成核種数	34
4.2.4	応答関数	39
4.2.5	DEURACS による中性子収量分布の比較	40
4.2.6	二重微分中性子収量分布	41
第 5 章	結論および今後の展望.....	50
5.1	結論.....	50
5.2	今後の展望.....	51
参考文献		52
謝辞		53

第1章 序論

この章では、医療分野で使用される放射性同位元素（Radio Isotope: RI）について検査用 RI、治療 RI に分けて紹介し、その製造方法と国内自給の現状について述べる。また、現在検討されている RI の製造手法についての問題点抽出を行い、本研究の目的について述べる。

1.1 医療用放射性同位元素

現在、日本では男性の 2 人に 1 人、女性の 3 人に 1 人はがんになるといわれており、がんは身近な病気となっている。生活習慣を見直すことでがんの約 6 割は予防が可能であると考えられているが、がんになる可能性をなくすことはできない。そのため、がんの早期発見・早期治療を行うことが重要である。医療用 RI を使用した画像診断は、図 1.1 に示すように年間 180 万件前後行われており高い需要がある [1]。また、治療用 RI についても図 1.2 に示すように年間 1 万件以上の治療が行われている。以下に医療分野で利用されている RI について詳細を示す。

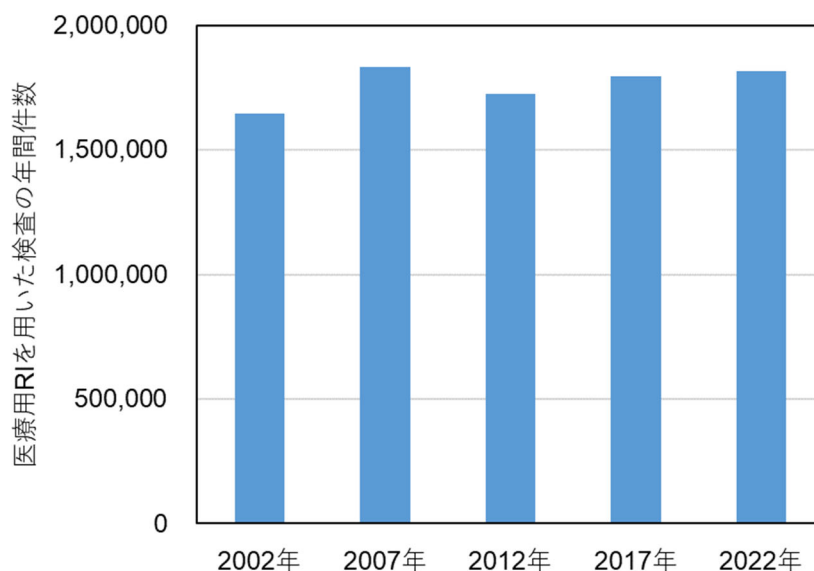


図 1.1 医療用 RI を用いた検査の年間件数の推移
(参考文献 [1]から数値を引用)

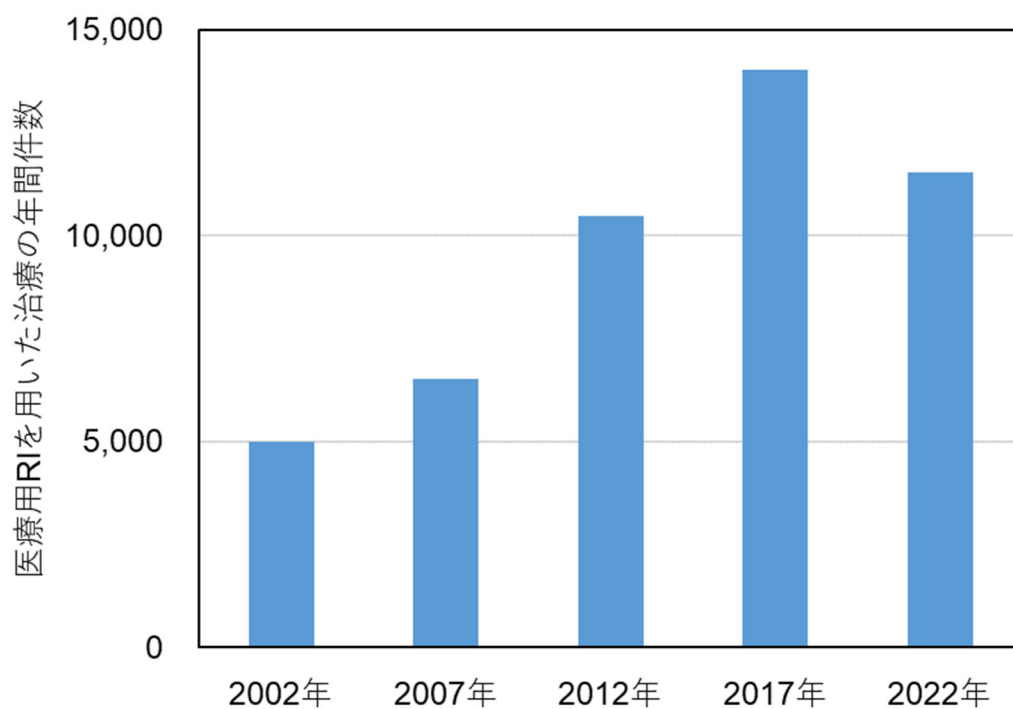


図 1.2 医療用 RI を用いた治療の年間件数の推移

(参考文献 [1] から数値を引用)

1.1.1 検査用放射性同位元素

放射性同位元素を利用したがんの画像診断には、Single Photon Emission Computed Tomography (SPECT) 検査、Positron Emission Tomography (PET) 検査がある。それらに使用される RI についての詳細を以下に示す。

- SPECT 用 RI

SPECT 検査で使われている核種の半減期と検査項目を

表 1.1 に示す。SPECT 検査で主に使われる核種は ^{99m}Tc (半減期約 6 時間) であり、 ^{99g}Tc (半減期 2.1×10^5 年) に遷移するとき γ 線を放出する。SPECT 検査では図 1.3 a) に示すように、患者に投与された RI から放出される γ 線を体の周りに設置したガンマカメラで検出することで脳機能の診断や、がんの検査を行うことができる。その際、検出器を被験者の周囲を回転させながら測定を行い、

測定結果を画像に再構成する。

- PET 用 RI

PET 検査で使われている核種の半減期と検査項目を表 1.2 に示す。PET 検査で主に使われる核種である ^{18}F （半減期 1.8 時間）はグルコースと結合させることで PET 薬剤 (^{18}F -FDG) となる。悪性腫瘍は糖を多く取り込むため、標識した薬剤に含まれるグルコースは悪性腫瘍に集まる。PET 検査は図 1.3 b) に示すように、がんが集積した RI から放出される 2 本の γ 線を検出器で同時に検出することで悪性腫瘍の部位を特定する。

表 1.1 SPECT 検査に用いられる代表的な核種とその特性

検査	核種	半減期	検査目的
SPECT	$^{99\text{m}}\text{Tc}$	360 分	骨、関節、リンパ節、腎臓、尿路、肺
	^{123}I	793 分	甲状腺、脳機能
	^{131}I	193 時間	甲状腺
	^{201}Tl	73 時間	腫瘍、炎症、心筋
	^{67}Ga	78 時間	腫瘍、炎症
	^{111}In	67 時間	髄液

表 1.2 PET 検査に用いられる代表的な核種とその特性

検査	核種	半減期	検査目的
PET	^{18}F	110 分	心機能、腫瘍、脳機能
	^{11}C	20 分	心筋、脳機能
	^{13}N	10 分	心筋血流量
	^{15}O	2 分	脳血流量

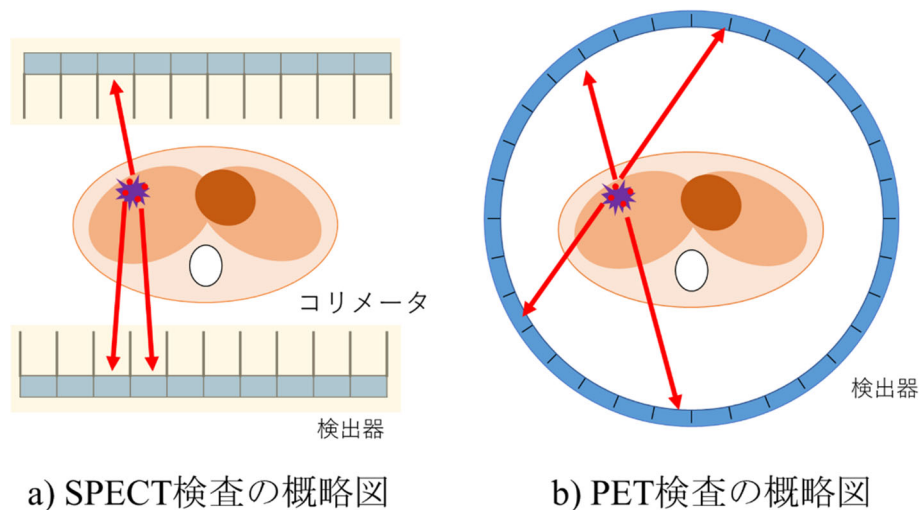


図 1.3 SPECT、PET の概略図

1.1.2 治療用放射性同位元素

医療用 RI は検査だけではなく、がんやその他の病気の治療にも利用されている。表 1.3 に核医学治療に主に使用される核種とその特性を示す。これらの核種について以下に詳細を示す。

i) 放射性ヨード

甲状腺はヨードを多く取り込むという性質を持っているため、放射性のヨードの入ったカプセル剤を服用することで甲状腺に放射性ヨードを選択的に取り込ませ、細胞を部分的に壊すことができる。この性質を利用して、放射性ヨードは甲状腺機能亢進症、甲状腺癌の治療に利用されている。

ii) ラジウム 233

^{223}Ra は骨転移のある去勢抵抗性前立腺がんの治療に用いられる。前立腺癌の骨転移が発生した場合、治療法の第一の選択肢としてホルモン療法が検討される。ホルモン療法の有効性は高いものの永久的に効果が持続するわけではなく、長期間ホルモン療法を続けると効果がなくなり男性ホルモンが低く抑えられているにも関わらず前立腺がんは増殖する。このような状態になった前立腺がんを

去勢抵抗性前立腺がんと呼ぶ。 ^{223}Ra は骨に集まりやすい性質があり、注射によって体内に取り込まれると代謝が活発になっている骨に転移したがん細胞に多く取り込まれる。そして、そこから放出されるアルファ線が、骨に転移した癌細胞の増殖を抑える効果を持つ。

表 1.3 核医学治療に用いられる代表的な核種とその特性

治療目的	核種	半減期	放出粒子
甲状腺機能亢進症 甲状腺癌	^{131}I	8 日	β^- 線
骨転移のある去勢抵抗性前立腺がん	^{223}Ra	11 日	α 線

1.1.3 セラノスティクス

セラノスティクスとはがんに集まりやすい薬剤に RI を標識し人体に投与することで、がんに集積した RI から放出される γ 線をもとに画像診断を行う一方で、RI から放出される荷電粒子を用いてがん細胞を攻撃し治療も同時に行う医療である。セラノスティクスで検討されている核種の組み合わせの例を表 1.4 に示す。治療と画像診断を同時に行うことで患部の特定や薬物動態、治療効果などを見積り患者ごとに治療計画を立てることで、個人の治療効果を最大化することができる。

表 1.4 セラノスティックスの RI の組み合わせ例

診断用 RI	治療用 RI
Na^{123}I (13.2 h, SPECT)	Na^{131}I (8.03 d, β 線)
^{68}Ga PSMA (1.13 h, PET)	^{177}Lu PSMA (6.65 d, β 線)
	^{225}Ac PSMA (10.0 d, α 線)
^{64}Cu SAR-bisPSMA (12.7 h, PET)	^{67}Cu SAR-bisPSMA (2.58 d, β 線)
$^{99\text{m}}\text{Tc}$ -MDP (6.00 h, SPECT)	$^{223}\text{RaCl}_2$ (11.4 d, α 線)
^{18}F -FDF (18.3 h, PET)	$^{89}\text{SrCl}_2$ (50.6 d, β 線)
$^{111}\text{In Cl}_3$ (2.80 d, SPECT)	^{90}Y イブリツモマブチウキセタン (2.67 d, β 線)

1.2 放射性同位元素製造の現状

1.1 節で示したように医療分野において RI は広く用いられている。表 1.5 に医療応用されている代表的な RI とその製造方法、入手方法を示す。表 1.5 からわかるように供給を輸入に頼っている RI が多く存在している。これらの RI は半減期により使用期限が定められており、長期間ストックしておくことができない。そのため、製造施設である原子炉の老朽化による点検や天候の影響により空輸に乱れなどの影響により RI の供給が滞る危険性がある [2]。このような点から医療応用 RI を国内生産する取り組みが多く行われている [3]。日本における RI の製造方法としては荷電粒子入射、中性子入射反応を利用した二種類の方法がある。

表 1.5 医療用 RI の主な製造方法と供給方法

供給方法	核種	用途	製造方法
国内製造	^{18}F	診断	加速器
	^{64}Cu	国内未承認	加速器
	^{67}Ga	診断	加速器
	^{111}In	診断	加速器
	^{123}I	診断	加速器
	^{201}Tl	診断	加速器
輸入	^{90}Y	治療	ジェネレータ
	$^{99}\text{Mo} (^{99\text{m}}\text{Tc})$	診断	原子炉
	^{131}I	治療 / 診断	原子炉
	^{177}Lu	治療	原子炉
	^{223}Ra	治療	ジェネレータ
	^{225}Ac	国内未承認	ジェネレータ
			加速器 原子炉

1.2.1 荷電粒子入射

荷電粒子入射による製造手法の概要図を図 1. に示す。荷電粒子入射反応を利用した手法は、加速器で加速した陽子を原料となる素材に照射することで陽子入射反応を起こし目的となる RI を生成する。RI 製造において化学分離の難易度を考慮して、ターゲットの素材は金属でなく酸化物を用いることが望ましい。しかし、荷電粒子入射による製造手法では入射粒子である陽子の飛程は短くターゲットの表面付近でしか反応を起こさないため酸化物では十分な生産量を確保できない。そのため、ターゲットに酸化物ではなく金属を使う必要がある。また、陽子ターゲットには製

造量を増加させるため、高価な同位体濃縮試料を使用することが多い。実際に $^{64}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{64}\text{Cu}$ 反応を利用した手法では、 ^{64}Ni の天然存在比が 0.9%であるため原料となる試料が非常に高価であり、照射後にターゲットを化学分離することで未反応の試料を回収し再利用する必要がある。このように、荷電粒子入射反応では生成量に限界があること、照射試料が高価になってしまうなどの大量製造における難点がある。

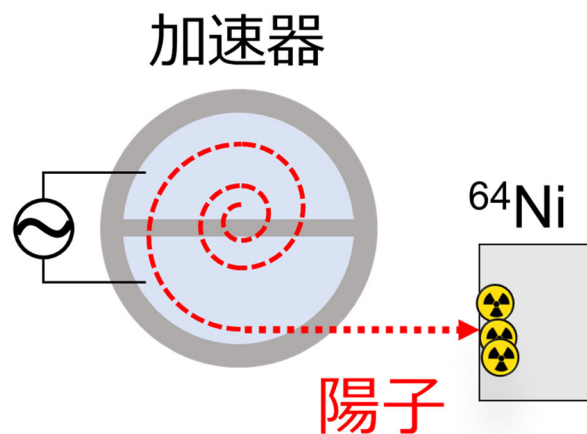


図 1.4 荷電粒子入射反応による製造手法の概略図

1.2.2 加速器中性子源

加速器中性子源を用いた手法は、加速器から得られる中性子を原料となる物質に照射することで反応を起こし目的の RI を製造する手法である。加速器中性子源による製造方法は、入射粒子である中性子が非荷電粒子であるため透過力が高く照射試料中のターゲットの全体で反応を起こすことができるため大量製造に向いている。加速器を用いて中性子を生成する手法として主に、陽子入射反応、核破碎中性子源、重陽子入射反応が挙げられる。

- 陽子入射反応による加速器中性子源 [4]

この手法は、中性子を使用したがん治療であるホウ素中性子捕捉療法(Boron Neutron Capture Therapy: BNCT)でよく使われる手法である。加速器で加速した陽子を厚い ${}^7\text{Li}$ 、 ${}^9\text{Be}$ に照射し(p,n)反応によって得られた高速中性子を減速材で減速することで熱・熱外中性子を得る。得られた熱中性子は、がん細胞に取り込まれた中性子吸収反応断面積の大きいホウ素 10 (${}^{10}\text{B}$) と (n,α)反応をおこし、放出されたアルファ線ががん細胞を攻撃する。この治療法は、脳神経膠芽腫などの難治性の腫瘍の治療への応用が期待されている。

- 大強度の陽子・重陽子ビームによる核破砕中性子源 [5]

核破砕中性子源は GeV 領域の高エネルギー陽子、重陽子をターゲットに入射することで核破砕反応を起こし、それによって複数の中性子が放出される。この手法で得られる中性子は高エネルギーかつ高強度であるという特徴がある。しかし、RI 製造において、高エネルギーの中性子は副生成物を多く生成するため、この手法は RI 製造には不適である。

- 重陽子加速器中性子源 [6]

- D-D および D-T 核融合反応中性子源 [7]

この手法は、加速器で重陽子を加速し重陽子または三重水素に入射することで核融合反応を起こし中性子を得る手法である。核融合反応は、以下の式で表される。



これらの反応によって発生する中性子は核反応の Q 値によってエネルギーが決まっており、強い単色性を持つという特徴がある。

- (d,n)反応を用いた中性子源

重陽子を厚い Li、C、Be などの中性子コンバータに照射することで起こる(d,n)反応によって生成される中性子を利用する。この手法の概要図を図 1.5 に示す。重陽子は陽子 1 個と中性子 1 個が弱く結びついている構造をしており、加速器で加速された重陽子をターゲットに照射すると重陽子が標的の原子核との相互作用で容易に分解し高強度の中性子を放出する。この手法によって得られる中性子収量分布(Thick-Target Neutron Yield: TTNY) は入射重陽子エネルギーの半分程度の位置にピークを持つ。これは、重陽子が標的核と相互作用し陽子と中性子に弾性的に（標的原子核を励起することなく）分解される弾性分解反応と非弾性分解反応によるものである。このピーク構造は、入射重陽子エネルギーによりある程度調整することができる。

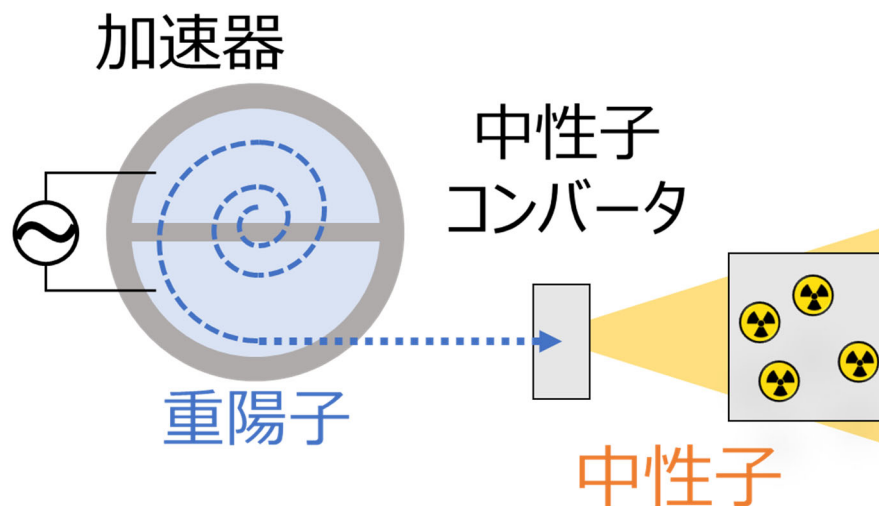


図 1.5 重陽子加速器中性子源の概略図

これらの加速器中性子源の内、主に RI 製造への応用が検討されているのは(d,n)反応を用いた重陽子加速器中性子源である [8] [9] [10]。一方で荷電粒子から中性子を生成する中性子コンバータは高強度の荷電粒子の照射に長時間曝されるため、高い耐久性が求められる。このことから、加速器中性子源の中性子コンバータについて様々な研究が行われている。

1.3 中性子コンバータ

加速器中性子源において中性子コンバータは中性子収量や設備のライフサイクルを決める重要な要素である。中性子コンバータとなる元素の候補として主に検討されている元素とその特徴を以下に示す。

- Li : C, Be よりも中性子収量が大きいものの、単体の Li は他の物質と反応しやすく不安定である。特に水と反応して火災を起こすことがあるため取り扱いが難しい。
- Be : C より中性子収量が大きいものの、長時間重陽子を照射するとブリストリングという現象により破損が生じる。ブリストリングについては次項で詳細を示す。
- C : Be, Li に比べ中性子収量が小さいものの、ブリストリングや熱による破損も発生しにくく扱いが容易である。

1.3.1 ブリスタリング

ブリスタリングとは図 1.6 に示すように、入射重陽子が飛程付近で停止しコンバータ内部に蓄積することで膨張し破損が生じる現象である。このブリスタリングによる破損を抑制することでコンバータを長寿命化することができ、コストの削減や放射性廃棄物の減少を実現することができる。

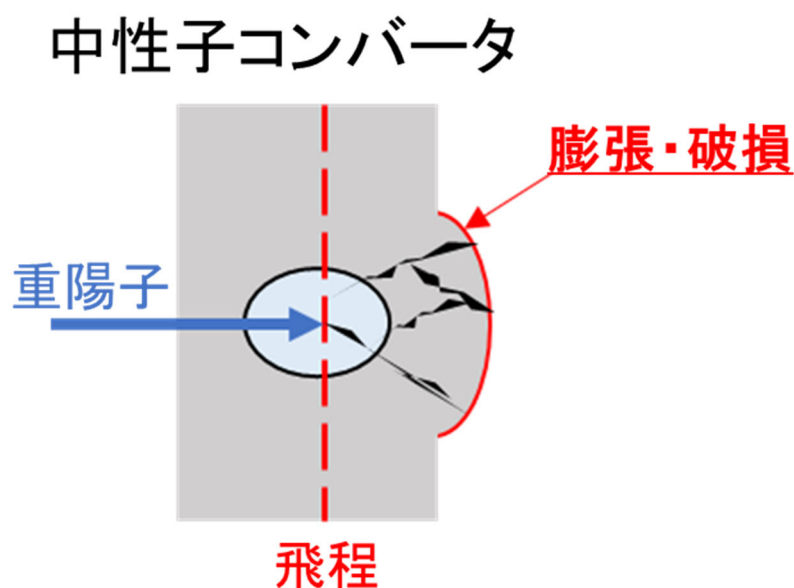


図 1.6 ブリスタリングの概要図

加速器中性子源の中性子コンバータの内、最も研究が盛んに行われているのは BNCT で利用される(p,n)反応を利用した中性子コンバータである。これらの研究においてブリスタリングと廃熱性能について盛んに議論が行われており、中性子収量を増やすために Be や Li 化合物が、廃熱性能やブリスタリングを抑制するために Cu などの金属を用いた様々なコンバータが開発されている [11] [12]。一方で医療用 RI 製造の分野では照射体系の開発は進んでおらず、ブリスタリングが発生しにくい C が中性子コンバータとして主に検討されてきた。

1.4 研究目的

これまで述べてきたように、ブリストリングが発生しにくい C が中性子コンバータの主流になっている。しかし、Be を用いることができれば製造量を増加できる。そこで、本研究ではブリストリングを抑制しつつ製造を維持できる中性子コンバータの開発を行うことを目的とする。また、新たに開発したコンバータの中性子収量を測定し、従来のコンバータと比較し性能調査を行うことを目的とする。

第2章 中性子コンバータの設計

2.1 C/Be 複合コンバータの概要

本研究では Be の照射による破損の原因であるブリストリングという現象に着目し、Be を使用することで C と比較して中性子収量を高めつつブリストリングの発生を抑制することができる C/Be 複合コンバータの設計を行った。このコンバータは重陽子が入射してくる上流側に Be、下流側に C を設置する構造となっている。上流側の Be は直接過程により高エネルギーかつ高収量の中性子を、下流側の C は貫通してきた重陽子を吸収しつつ統計崩壊過程による低エネルギーの中性子を生成する。

2.1.1 ベリリウムコンバータ部の耐久性

この項では、本研究における Be コンバータ部の耐久性について定義を述べる。入射重陽子の飛程のばらつきがガウス分布に従うと仮定すると、Be 内部に蓄積する重陽子数の確率密度は以下の式で表すことができる。

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (2-1)$$

ここで x は入射位置からの距離、 μ は入射重陽子の平均飛程、 σ は飛程のばらつきの標準偏差を示している。また図 2.1 に示すように、 μ, σ は入射重陽子エネルギー E_d によって一意に決まる値であり、SRIM コード [13] を使って導出した。コンバータの耐久性 D を、単位体積当たりの重陽子密度の最大値 ρ_{max} に反比例すると仮定し以下の式で定義する。

$$D = \frac{k}{\rho_{max}} \quad (2-2)$$

ここで k は定数である。

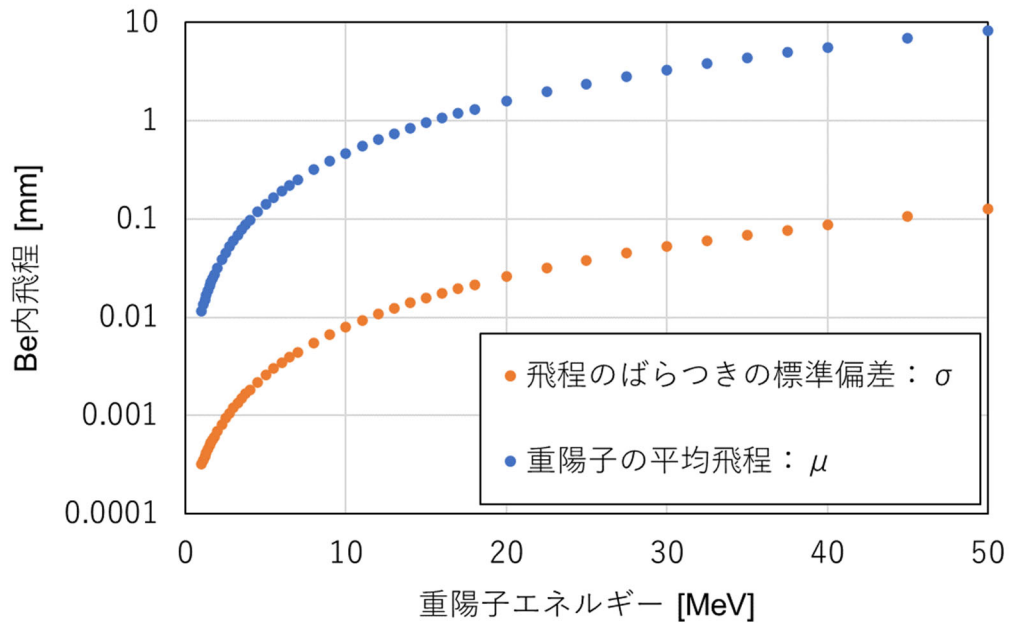


図 2.1 SRIM コードにより導出した入射重陽子エネルギーによる
Be 内の平均飛程と飛程のばらつきの標準偏差の変化

2.1.2 炭素及びベリリウム厚の決定手法

(2-2)式において Be コンバータ部の厚みを $\mu - n\sigma$ 以下とすると、Be コンバータに蓄積する重陽子の割合は $n\sigma$ 信頼区間外の半分となるため、複合コンバータの耐久性は以下の式で表される。

$$D = \frac{k}{f(\mu - n\sigma)} \quad (2-3)$$

ここで n はユーザーが任意に決定できる値であり、 n の値が大きくなるほど寿命が長くなる。コンバータ厚の機械加工における精度が選択可能な寿命の上限値を与えるが、本研究の範囲を超えるため踏み込まない。

本研究では $n = 3$ とし Be コンバータ部の厚みを決定した。この時、図 2.2 に示すように入射した重陽子の 99.87% が貫通し C 内に蓄積する設計となる。また、C の厚みは貫通してきた重陽子が C 内部で止まるのに十分な厚みとした。

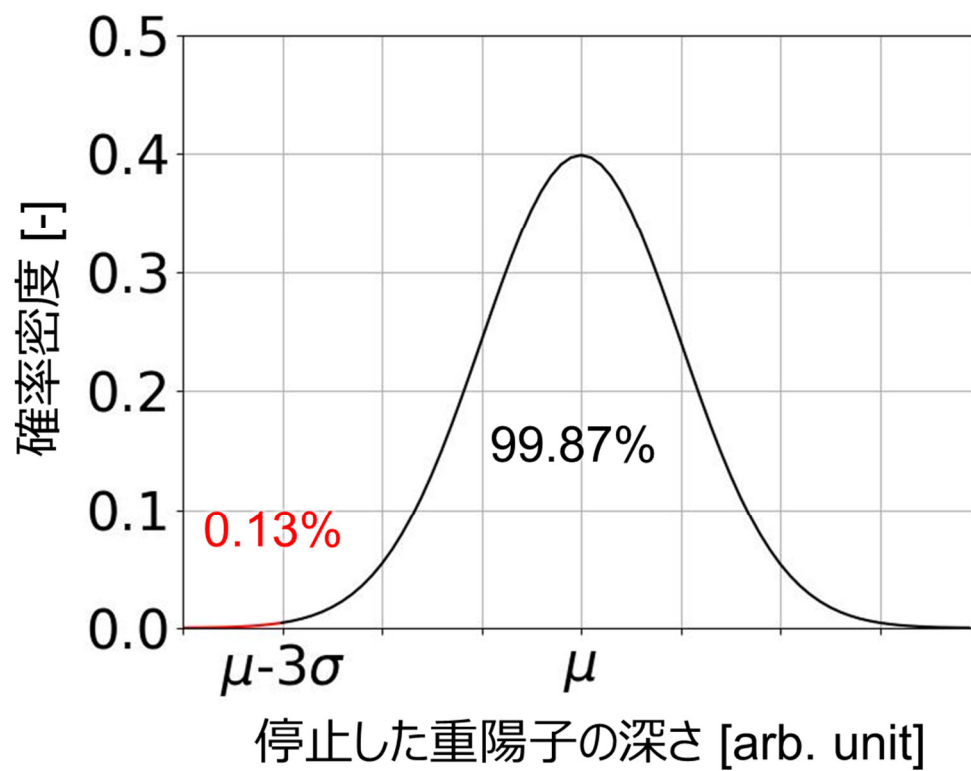


図 2.2 コンバータの Be 内部で停止する重陽子数の確率密度分布

第3章 中性子収量計測実験

3.1 実験施設の概要

重陽子入射による中性子収量の系統的なデータ取得するために東北大学の Cyclotron and Radioisotope Center (CYRIC) にて、C, Be 単体コンバータの重陽子入射による中性子収量の計測実験を行った。また、第2章において設計した C/Be 複合コンバータの性能を調査するために Japan Atomic Energy Agency (JAEA)のタンデム加速器にて C/Be 複合コンバータの重陽子入射による中性子収量の計測実験を行った。いずれも用いた計測手法は多重箔放射化法である。

3.1.1 東北大学 CYRIC

東北大学 CYRIC において 930 型 AVF サイクロトロンを使用して実験を行った。930 型サイクロトロンは、住友重機工業株式会社製の加速器であり、陽子、重陽子、 α 粒子などのイオンを加速することができる。この加速器は重陽子を 10-50MeV まです加速することが可能である。今回の実験では 30 MeV に加速した重陽子を C 単体、Be 単体コンバータにそれぞれ照射して中性子を生成させた。

3.1.2 JAEA タンデム加速器

JAEA において National Electrostatics Corporation 製 20UR 型タンデム加速器を使用して C/Be 複合コンバータの性能調査を行った。タンデム加速器とは、ペレットチェーンなどに電荷を載せて高電圧端子に運ぶことで高電圧を発生させてイオンを加速する装置である。その際、電子ストリッパで加速イオンの電荷を負から正に変換することで一つの高電圧で二回加速することが出来る加速器をタンデム加速器という。この加速器の各イオンビームの最大エネルギーと最大ビーム強度を表 3.1 に示す。今回の実験では、それぞれ異なる重陽子エネルギーに対応できるように Be 厚みの異なる 2 種類（それぞれ 1.5 mm および 3.2 mm）の C/Be コンバータを作成した。それぞれの Be の厚みから、前章で述べたように 99.87%の入射粒子が貫

通するような重陽子エネルギーを求めると、19.9 MeV と 30.4 MeV となる。そこで、今回はこのエネルギーまで加速した重陽子による中性子収量の測定を行った。

表 3.1 タンデム加速器の各種イオンビームの最大エネルギーと最大ビーム強度

イオン種	エネルギー [MeV]	ビーム強度 [μA]
陽子	34	1
陽子	17	5
重陽子	34	1
重陽子	17	5
ヘリウム	40	1
リチウム	80	1
ベリリウム	80	1
ホウ素	110	1
炭素	120	2
炭素より重い すべての安定核元素	核子当たり 10 MeV	2
炭素、炭素より 重いすべての安定核元素	核子当たり 1.5 MeV	20

3.2 多重箔放射化法

中性子の計測方法には多重箔放射化法、多減速材付中性子検出器、有機液体シンチレーター検出器などいくつか選択肢がある。

多重箔放射化法は中性子と物質の相互作用によって放射化された物質の放射能から間接的に中性子スペクトルを導出する手法である。この際、放射化させる物質に異なる種類の金属箔を複数使用することで様々な反応断面積を持った反応が

起きる。放射化された核種から放出される γ 線を計測することで、様々な核種の放射核種生成量を導出することができる。本研究では、高純度ゲルマニウム (High Purity Germanium: HPGe) 検出器を用いて γ 線計測を行った。以下の項では核種生成量から TTNy を導出する手法について詳しく説明する。

3.2.1 アンフォールディング過程

中性子入射反応による核種生成量は以下の式を用いて導出することが出来る。

$$\begin{pmatrix} N_1 \\ N_2 \\ \vdots \\ N_i \\ \vdots \\ N_n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R_{1,E_1} & R_{1,E_2} & \cdots & R_{1,E_j} & \cdots & R_{1,E_m} \\ R_{2,E_1} & R_{2,E_2} & \cdots & R_{2,E_j} & \cdots & R_{2,E_m} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & & \vdots \\ R_{i,E_1} & R_{i,E_2} & \cdots & R_{i,E_j} & \cdots & R_{i,E_m} \\ \vdots & \vdots & & \vdots & \ddots & \vdots \\ R_{n,E_1} & R_{n,E_2} & \cdots & R_{n,E_j} & \cdots & R_{n,E_m} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_{E_1} \\ \phi_{E_2} \\ \vdots \\ \phi_{E_j} \\ \vdots \\ \phi_{E_m} \end{pmatrix} \quad (3-1)$$

ここで N_i は反応 i によって生成された核種生成数、 $R(i, E_j)$ は中性子エネルギー群 j における反応 i の応答関数を、 ϕ_{E_j} は中性子エネルギー群 j における TTNy を示す。多重箔放射化法では式の ϕ_{E_j} について解くことになる。この問題は放射化反応数 i が中性子エネルギー群 j よりも少ないため解析的に ϕ_{E_j} を導出することができず、このような問題を劣決定問題と呼ばれる。アンフォールディング法はこのような劣決定問題を解く手法であり解が無数に存在するため、無数の解から妥当な解を得る必要がある。

3.2.2 アンフォールディングコード

劣決定問題における妥当な解を得るために様々なアンフォールディングコードが開発されてきたが、今回の研究では、多重箔放射化法で最もよく使われる逐次近似法を用いた GRAVEL コード [13]を使用した。以下に GRAVEL コードでの数値解析について説明する。

GRAVEL コードの入力値として、核種生成量 N 、応答関数 R 、初期推定スペクト

ル ϕ_j^0 が与えられる。これらの値から以下の式を用いて重み係数 W_{ij}^{k-1} が計算される。

$$W_{ij}^{k-1} = \frac{R_{i,j} \phi_j^{k-1}}{\sum_i^{j_{max}} R_{i,j'} \phi_{j'}^{k-1}} \cdot \frac{N_i^2}{\Delta N_i^2} \quad (3-2)$$

ここで ϕ_j^{k-1} は繰り返し回数が $k-1$ 回目の時の解スペクトルであり、 ΔN_i^2 は反応 i の生成核種の不確かさを表す。この重み係数 W_{ij}^{k-1} を用いて、繰り返し回数が k 回目の時の解スペクトル ϕ_j^k を以下の式(3-3)から得る。

$$\phi_j^k = \phi_j^{k-1} \exp \left[\frac{\sum_i W_{ij}^{k-1} \ln \left(\frac{N_i}{\sum_{j'} R_{i,j'} \phi_{j'}^{k-1}} \right)}{\sum_i W_{ij}^{k-1}} \right] \quad (3-3)$$

式(3-3)において繰り返し計算を始める($k=1$ を代入)際に初期値として初期推定スペクトル ϕ_j^0 が必要となる。また、繰り返し計算を止める基準として、式(3-4)で与えられる 1 自由度あたりの χ^2 値の下限もしくは、最大繰り返し回数を設定する必要がある。

$$\chi^2 = \sum_i^{i_{max}} \frac{(\sum_j^{j_{max}} R_{i,j} \phi_j^k - N_i)^2}{\Delta N_i^2} \quad (3-4)$$

最終的な解スペクトル ϕ_j^k は、 χ^2 値があらかじめ設定した値を下回る時、もしくは最大繰り返し回数に到達した時点の解スペクトルとなる。

3.2.3 応答関数

GRAVEL コードの入力値として使用する応答関数は以下の式により導出される。

$$R_{i,j} = \sigma_{i,j} N_s \Omega I_{ave} \frac{1 - \exp(-\lambda t_c)}{\lambda} \quad (3-5)$$

ここで $\sigma_{i,j}$ は反応 i の中性子エネルギー群 j における反応断面積、 N_s は反応核種の面密度、 Ω は HPGe 検出器から見た金属箔の立体角、 I_{ave} は加速器から照射される重陽子の平均電流量、 λ は崩壊定数、 t_c は照射終了から HPGe 検出器で計測を開始までの経過時間を表す。反応核種の面密度 N_s 、HPGe 検出器から見た金属箔の立体角 Ω は以下の式を用いて求めることができる。

$$N_s = \frac{d\rho\delta N_a}{M} \quad (3-6)$$

$$\Omega = 4 \arcsin \left[\frac{\left(\frac{A}{2}\right)^2}{\left(\frac{A}{2}\right)^2 + l^2} \right] \quad (3-7)$$

ここで、 d は金属箔の厚み、 ρ は金属箔の密度、 δ は反応核種の天然存在比、 N_a はアボガドロ定数、 M は原子量、 A は金属箔の幅、 l は HPGe 検出器と金属箔の距離を表す。

また、反応断面積 $\sigma_{i,j}$ には核種生成反応断面積が格納されている JENDL-5 [14]を使用した。今回アンフォールディングに使用した反応断面積を図 3.1 に示す。

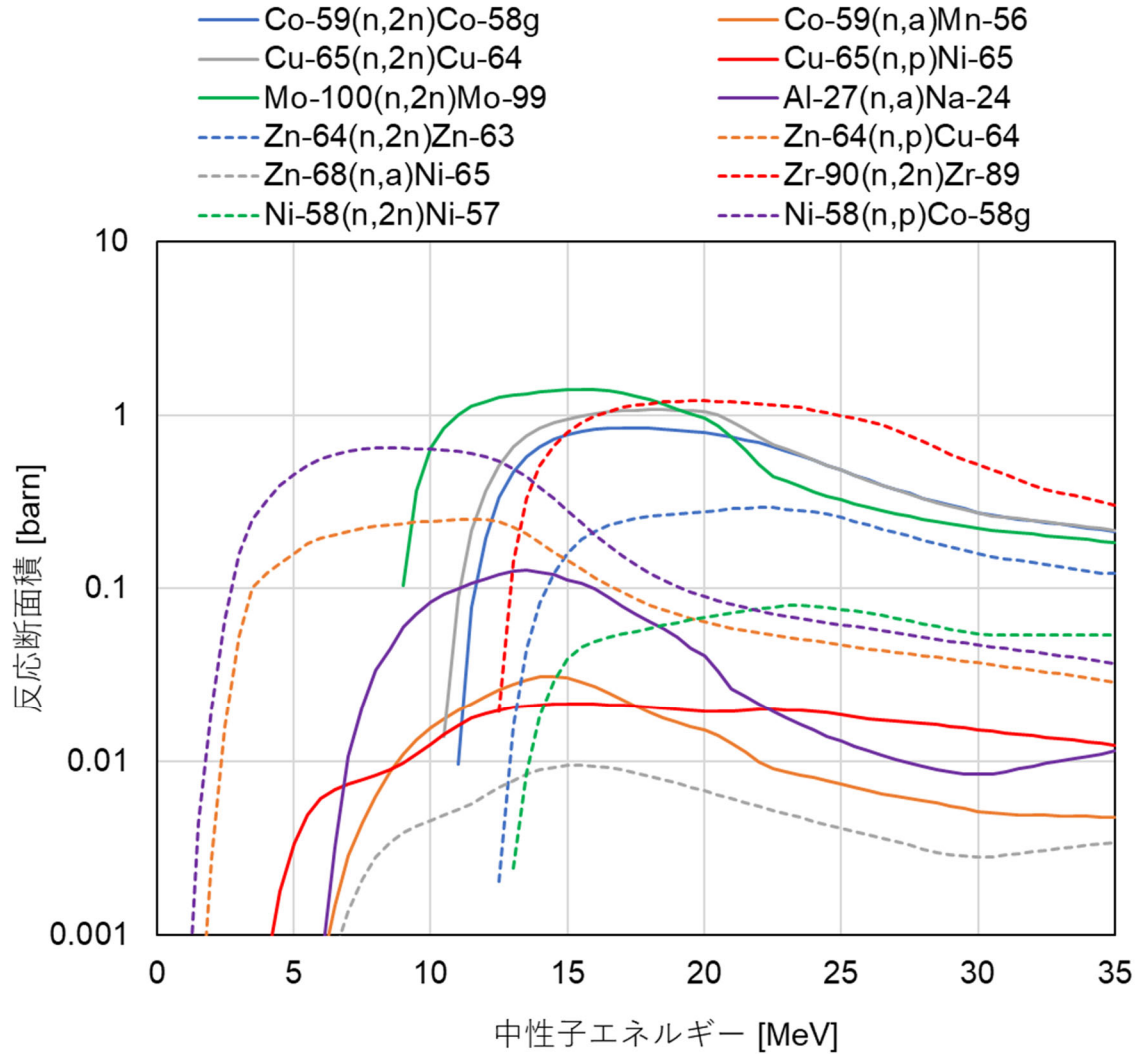


図 3.1 アンフォールディングに使用した反応断面積

3.2.4 初期推定スペクトル

GRAVEL コードの入力値として使用する初期推定スペクトルを導出するために粒子・重イオン輸送計算コード Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) [15]を使用したシミュレーションを行った。PHITS は様々な物質中の放射線の挙動を核反応モデルや核データなどを用いて模擬するモンテカルロ計算コードであり、放射線施設の設計、医学物理計算、放射線防護研究、宇宙・地球惑星科学など様々な分野で利用されている。

重陽子入射反応モデルには JENDL/DEU-2020 [16]に格納されている核データを使用した。DEURACS [17]は重陽子入射核反応専用計算コードであり、非弾性分解反応、弾性分解反応、統計崩壊過程を考慮して計算を行う。JENDL/DEU-2020 による TTNy は PHITS のデフォルトのモデルによる TTNy よりも実験値をよく再現していることが先行研究で示されている。

シミュレーションに使用した体系の概要図を図 3.2 に示す。このシミュレーションでは 0, 15, 30, 45 度方向に検出面を設定し、入射重陽子あたりの TTNy を出力する。入射重陽子エネルギー、中性子コンバータの厚みは表 3.2 に示すように実験を模擬した値に設定した。

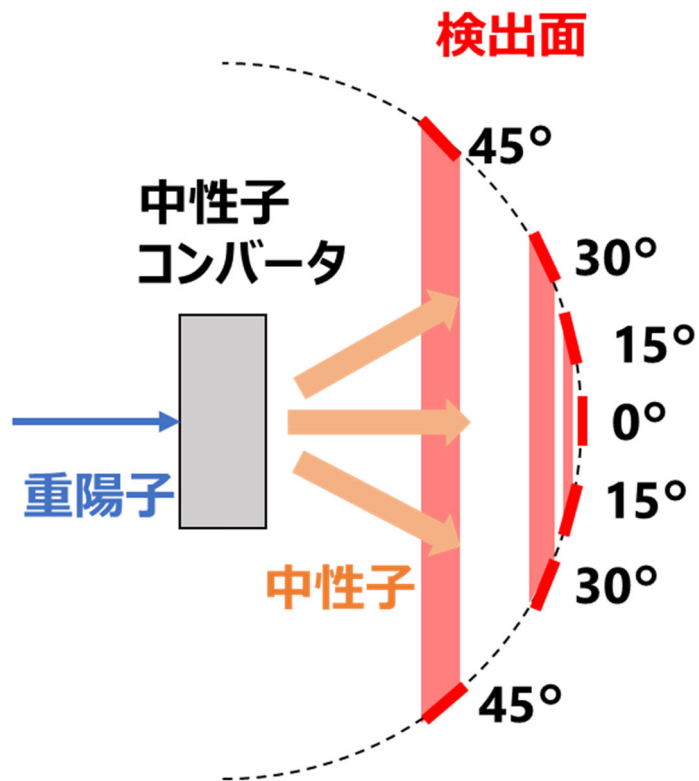


図 3.2 シミュレーション体系の概要図

表 3.2 シミュレーションの条件

入射重陽子エネルギー [MeV]	30		19.9	30.4
コンバータとその厚み [mm]	C 単体	Be 単体	C/Be 複合	C/Be 複合
	4	3.6	Be 1.5	Be 3.2
			C 10	C 10

3.3 照射体系

東北大学 CYRIC と JAEA タンデム加速器で使用したコンバータの厚み、入射重陽子エネルギー、平均電流量、照射時間を表 3.3 にまとめて示す。東北大学 CYRIC

で行った実験では、C, Be 単体コンバータの厚みは SRIM コードによって計算した重陽子の飛程よりも十分厚い厚みとした。東北大学 CYRIC では C, Be 単体ターゲットを、JAEA では図 3.3 に示す Be ターゲットと C ターゲットを照射ジグに固定し照射口に設置した。図 3.4 と図 3.5 にそれぞれの実験における照射体系の写真を示す。コンバータの下流に内径 122.5 mm の半球状のアクリルドームを設置し、内部の 0, 15, 30, 45 deg の位置に金属箔を貼り付けることで多重箔の放射化を行った。なお、写真中の銅パイプは照射中の発熱を除去する冷却水を流すポートと接続する。アクリルドームに張り付けた金属箔の種類と大きさ、厚みを表 3.4 に示す。

表 3.3 実験条件

実験施設	東北大学 CYRIC		JAEA タンデム	
コンバータとその 厚み [mm]	C 単体 4	Be 単体 3.6	C/Be 複合 Be 1.5 C 10	C/Be 複合 Be 3.2 C 10
入射重陽子 エネルギー [MeV]	30		19.9	30.4
照射時間 [h]	6.0	7.2	12.8	17.7
平均電流量 [nA]	1116	1075	574	796



図 3.3 JAEA タンデム実験のターゲットシステム

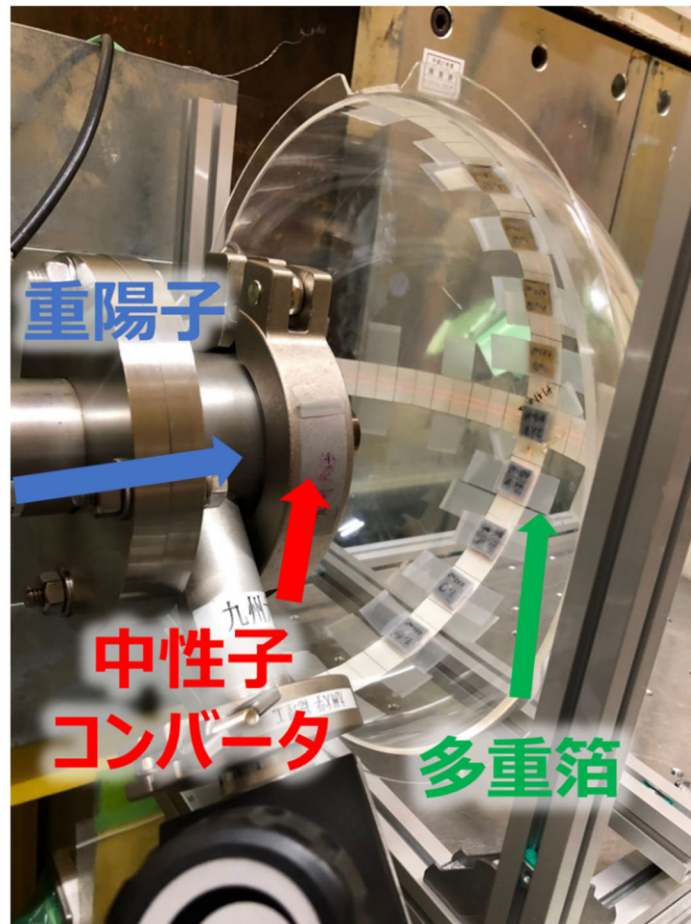


図 3.4 東北大学 CYRIC の照射システム

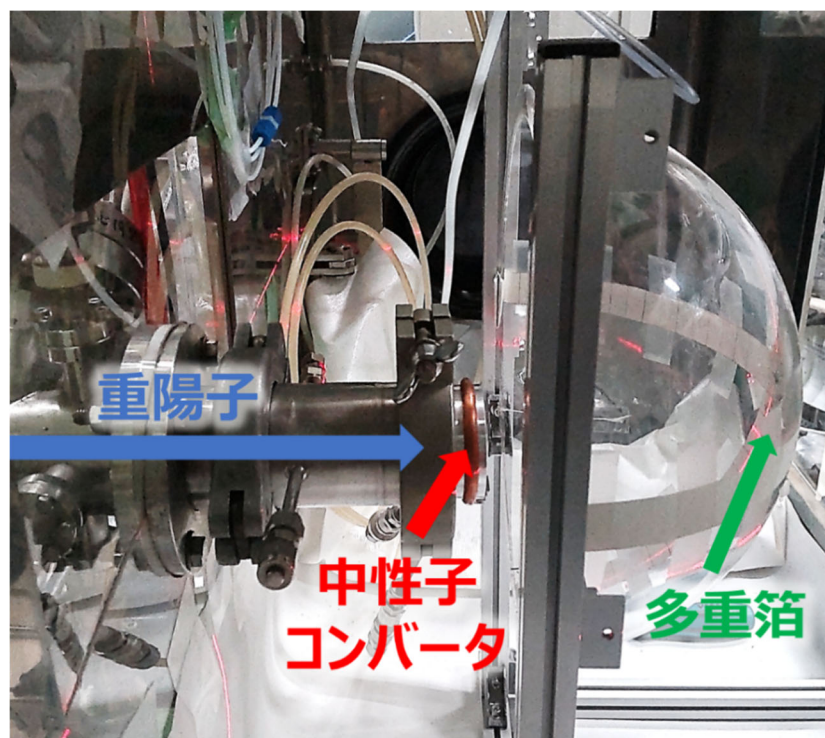


図 3.5 JAEA タンデムの照射システム

表 3.4 多重箔の大きさと厚み

構成元素	JAEA タンデム		東北大学 CYRIC	
	19.9, 30.4 MeV		30MeV	
	大きさ [mm]	厚み [mm]	大きさ [mm]	厚み [mm]
Cu	15 × 15	0.1	15 × 15	0.3
Co	15 × 15	0.1	15 × 15	0.1
Mo	15 × 15	0.2	15 × 15	0.2
Al	15 × 15	0.05	15 × 15	0.05
Zn	15 × 15	0.2	15 × 15	0.1
Zr	15 × 15	0.05	15 × 15	0.05
Ni	15 × 15	0.1	15 × 15	0.1
Au	10 × 10	0.1	15 × 15	0.1

3.4 ガンマ線計測

本実験で γ 線計測に使用した HPGe 検出器は半導体検出器に分類される検出器である。半導体はそのままでは電気を通さないが半導体に放射線が当たると電子正孔対が生成され電気が通るようになる。これを利用して放射線が入射を電気信号に変換することで放射線を検出する。半導体検出器はバンドギャップが狭く、大量の電子-正孔対が生じることでエネルギー分解能に優れているという特性がある。

今回使用した HPGe 検出器は東北大学では Eurisys 社製の EGPC50-195-R (detector 1)と SEIKO EG&G 社製の GMX50 (detector 2) 、JAEA では SEIKO EG&G 社製の GMX50 (detector 1)と GMX30(detector 2)をそれぞれ 2 台使用した。また、波形整形アンプは CYRIC では ORTEC 社製の 572A、JAEA では ORTEC 社製の 571

を、マルチチャンネル波高分析器は CYRIC では ORTEC 社製の Easy-MCA-8k を JAEA では ORTEC 社製の 927 を使用した。 γ 線計測の際に環境 γ 線と鉛ブロックから生じる特性 X 線の低減のため図 3.6 に示すように、HPGe 検出器のヘッド部分を CYRIC では鉛ブロックのみ、JAEA では鉛ブロックと銅板を使用して囲った。以下の項では計測結果の解析手法について詳しく説明する。

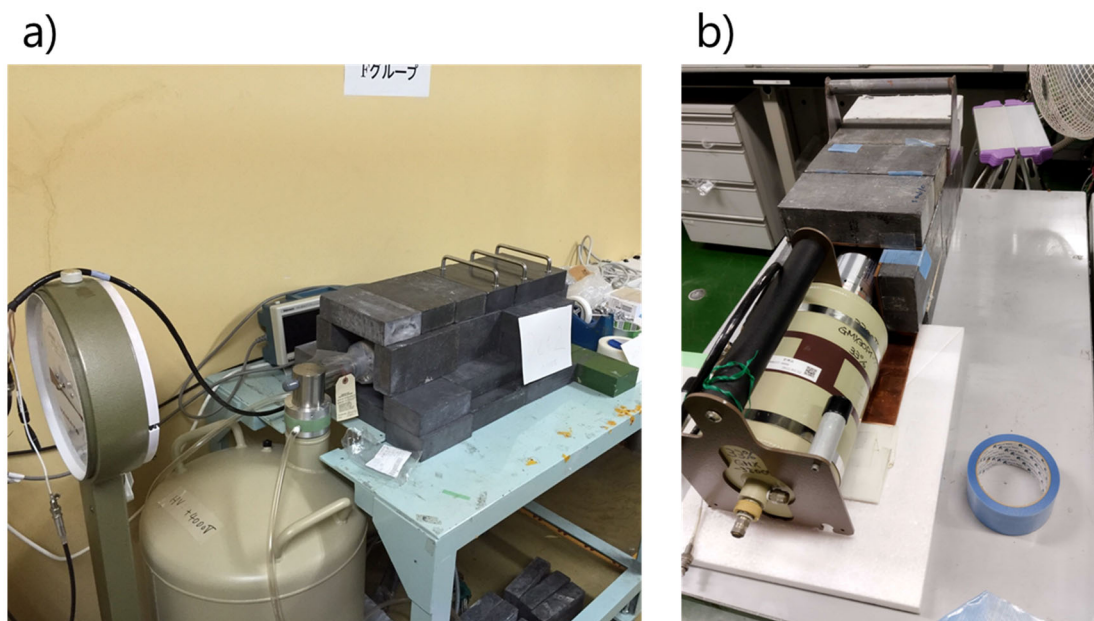


図 3.6 HPGe 検出器による計測体系

a) 東北大学 CYRIC detector1 b) JAEA タンデム detector2

3.4.1 標準線源測定

HPGe 検出器から出力される電気信号から試料の放射能を導出するためには、計測スペクトルのエネルギー校正を行い、さらにエネルギーごとの光電ピーク検出効率曲線を求める必要がある。これらを導出するために放射能と γ 線放出確率が既知である標準線源の測定を行う。今回の実験で使用した標準線源の γ 線エネルギーとその強度を表 3.5 に示す。

表 3.5 使用した標準線源のガンマ線エネルギーとその強度

核種	放射能 [kBq]	ガンマ線エネルギー	ガンマ線放出率[%]
^{133}Ba	$E_d = 30 \text{ MeV: } 64.7$	80.997	34.1
		160.61	0.645
		223.23	0.450
		276.40	7.16
		302.85	18.3
		356.02	62.1
		383.85	8.94
^{60}Co	$E_d = 30 \text{ MeV: } 10.5$	1173.2	99.9
		1332.5	100
^{152}Eu	$E_d = 30 \text{ MeV: } 0.81$ $E_d = 19.9 \text{ MeV: } 16.4$ $E_d = 30.4 \text{ MeV: } 4.0$	121.78	28.4
		244.70	7.53
		344.28	26.6
		411.12	2.24
		444.00	3.13
		778.90	13.0
		867.38	4.21
		964.10	14.6
		1112.1	13.5
		1212.9	1.41
		1299.1	1.63
		1408.0	20.9
MIX 線源 (^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{113}Sn , ^{137}Cs , ^{88}Y , ^{60}Co)		60	36.0
		88	3.63
		122	85.6
		166	79.9
		392	64.9
		662	85.1
		898	94.0
		1173	99.86
		1333	99.98
		1836	99.4

3.4.2 エネルギー校正

HPGe 検出器に放射線が入射した際に送られてくる波高データは波高分析器でチャンネル値に変換される。エネルギー校正とは、波高分析器で記録されたチャンネル値を入射したガンマ線の付与エネルギーに変換するエネルギー校正式を導出することである。表 3.5 に示した標準線源を用いて実験で使用して HPGe 検出器のエネルギー校正式を導出した。

3.4.3 ピーク検出効率

ピーク検出効率とは計測試料から放出されるガンマ線に対して検出器で得られる計数の割合である。検出器で得られるガンマ線エネルギーごとの計数は、ガンマ線スペクトル内の光電ピークをガウス分布、バックグラウンドを一次関数と仮定してフィッティングを行い、光電ピークからバックグラウンドによる計数を引くことで得られる。

ピーク検出効率 $\varepsilon(E_\gamma)$ はフィッティングにより得られたバックグラウンドを引いた正味の計数 $S[\text{count}]$ 、計測時間 $t[\text{sec}]$ 、標準線源測定時のガンマ線の放射能 $A[\text{Bq}]$ とガンマ線強度比 I_γ を使って以下の式で表すことが出来る。

$$\varepsilon(E_\gamma) = \frac{S}{AI_\gamma t} \quad (3-8)$$

標準線源測定の結果から導出した各ピークの検出効率を以下の式でフィッティングすることで検出効率曲線 $\varepsilon(E_\gamma)$ を求めた。

$$\varepsilon(E_\gamma) = N \times \exp[(A + BX + CX^2)^{-G} + (D + EY + FY^2)^{-G}]^{-\frac{1}{G}} \quad (3-2)$$

$$X = \ln\left(\frac{E_\gamma}{100}\right) \quad (3-9)$$

$$Y = \ln\left(\frac{E_\gamma}{1000}\right) \quad (3-10)$$

ここで A,B,C,D,E,F,G,N はフィッティングパラメータである。

3.4.4 放射化量計測

放射化した核種から放出されるガンマ線のピークが重ならないように金属箔を表 3.6 に示すグループに分けて放射化量の測定を行った。

表 3.6 金属箔グループ分け

構成元素	JAEA タンデム	東北大学 CYRIC
	19.9, 30.4 MeV	30MeV
Group1	Cu, Co	Cu, Co
Group2	Mo, Al	Mo, Al
Group3	Zn, Zr	Zn, Zr
Group4	Au, Ni	Au, Ni

金属箔の放射能は 3.4.3 に示したピークフィッティングと同様のフィッティングを行い導出した正味の計数 Y を用いて以下の式で表すことができる。

$$A_i = \frac{\lambda_i Y}{I_\gamma \varepsilon_\gamma e^{-\lambda_i t_c} (1 - e^{-\lambda_i t_m})} \quad (3-11)$$

ここで、 λ_i は生成核種 i の崩壊定数、 I_γ はガンマ線放出率、 ε_γ はピーク検出効率、 t_c は照射終了から計測開始までの時間、 t_m は測定時間を示す。また、算出した放射能から核種生成量 N を以下の式を用いて導出した。

$$N = \frac{A_i}{\lambda_i} \quad (3-12)$$

第4章 結果・考察

4.1 複合コンバータの耐久性

本研究では(2-3)式における n の値を 3 と決定したため、コンバータにおける Be の厚みを考慮すると Be 単体コンバータにおける単位体積当たりの入射重陽子密度の最大値 $\rho_{\max,Be}$ 、C/Be 複合コンバータにおける単位体積当たりの入射重陽子密度の最大値 $\rho_{\max,C/Be}$ は以下の式で表すことができる。

$$\rho_{\max,Be} = f(\mu) \quad (4-1)$$

$$\rho_{\max,C/Be} = f(\mu - 3\sigma) \quad (4-2)$$

これらの式(4-1),(4-2)を式(4-3)に代入し比をとると、C/Be コンバータの耐久性は Be 単体コンバータの耐久性のおよそ 90 倍であることがわかる。

$$\frac{D_{\frac{C}{Be}}}{D_{Be}} = 90.01 \quad (4-3)$$

4.2 実験結果

4.2.1 エネルギーキャリブレーション

それぞれの実験で使用した HPGe 検出器のエネルギー校正の結果を図 4.1 に示す。

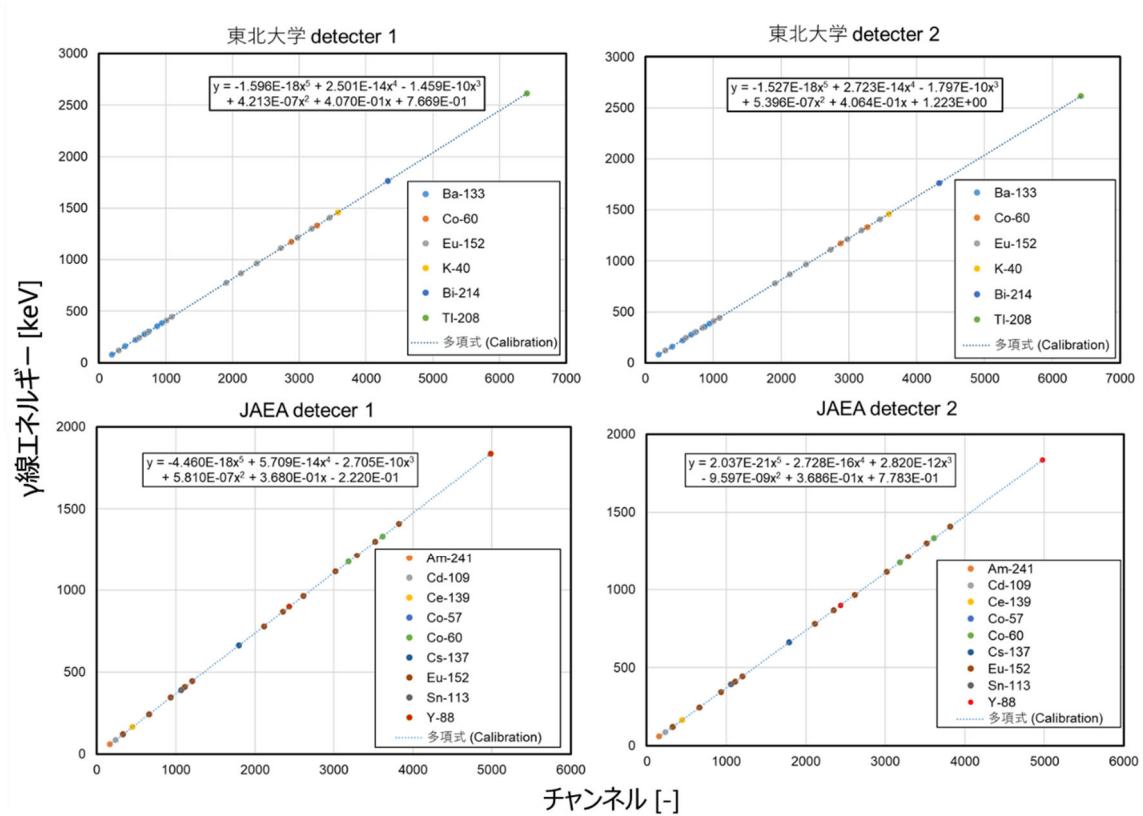


図 4.1 各検出器のエネルギーキャリブレーションの結果

4.2.2 光電ピーク検出効率

それぞれの実験で導出した検出効率曲線を図 4.2 に示す。

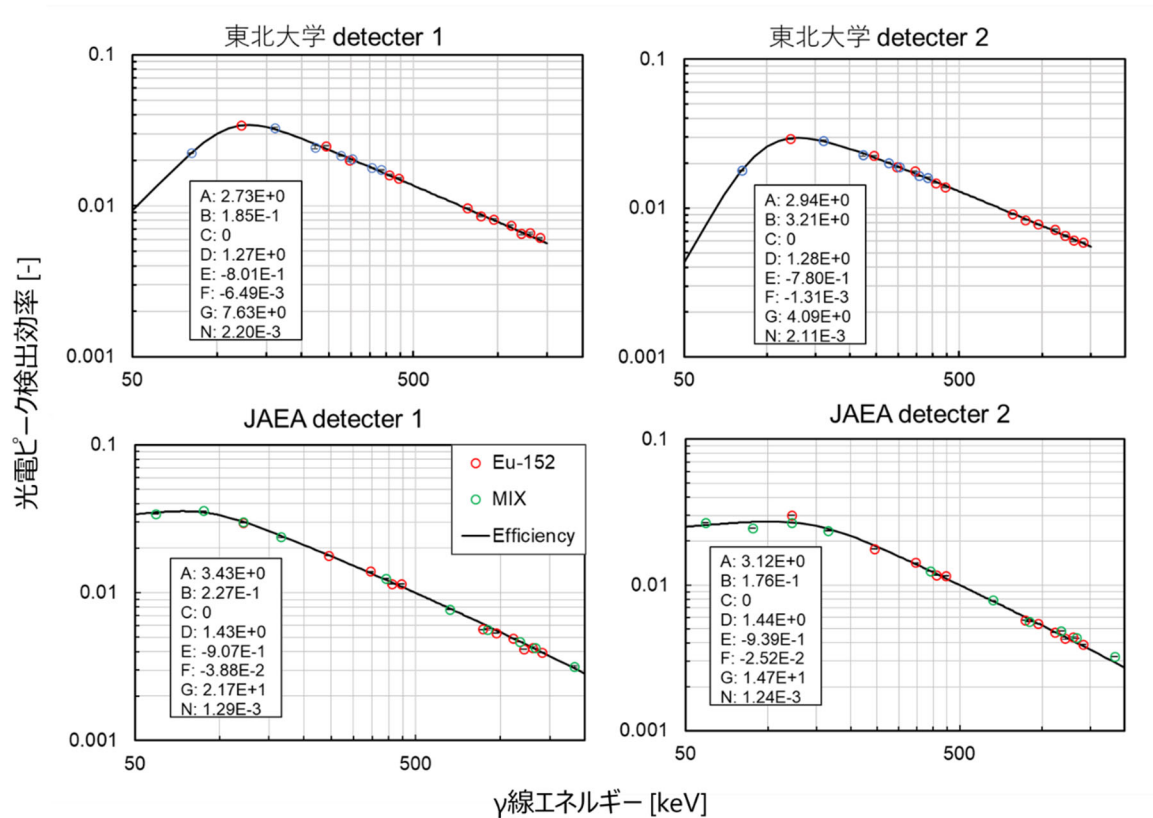


図 4.2 各検出器のピーク検出効率曲線

4.2.3 生成核種数

アンフォールディングに使用した反応による照射終了時核種生成量を表 4.1 にそれぞれ示す。表中に示す不確かさは、ガンマ線の光电ピークのカウント数の統計誤差である。

表 4.1 各実験における照射終了時の核種生成量

(a) 東北大学 CYRIC $E_d = 30$ MeV C 単体コンバータ

Reaction	E_γ [keV]	Number of produced atoms at end of irradiation [atoms]			
		0 deg	15 deg	30 deg	45 deg
$^{59}\text{Co}(\text{n},2\text{n})^{58\text{g}}\text{Co}$	811	4.90(5)E+09	2.20(2)E+09	1.82(1)E+09	8.99(6)E+08
$^{59}\text{Co}(\text{n},\text{a})^{56}\text{Mn}$	847	2.11(0)E+08	8.22(2)E+07	5.73(5)E+07	2.93(7)E+07
$^{65}\text{Cu}(\text{n},2\text{n})^{64}\text{Cu}$	1346	8.71(10)E+09	3.59(4)E+09	2.66(3)E+09	1.37(2)E+09
$^{65}\text{Cu}(\text{n},\text{p})^{65}\text{Ni}$	1116	1.42(1)E+08	6.16(6)E+07	4.31(14)E+07	—
$^{100}\text{Mo}(\text{n},2\text{n})^{99}\text{Mo}$	181	3.53(2)E+09	1.23(1)E+09	7.02(40)E+08	3.14(2)E+08
$^{27}\text{Al}(\text{n},\text{a})^{24}\text{Na}$	1369	6.78(2)E+08	2.16(1)E+08	1.32(1)E+08	6.18(3)E+07
$^{64}\text{Zn}(\text{n},2\text{n})^{63}\text{Zn}$	670	1.44(2)E+08	—	—	—
$^{64}\text{Zn}(\text{n},\text{p})^{64}\text{Cu}$	1346	1.38(4)E+09	8.62(21)E+08	5.10(17)E+08	1.92(14)E+08
$^{68}\text{Zn}(\text{n},\text{a})^{65}\text{Ni}$	1481	8.79(24)E+06	5.04(31)E+06	—	—
$^{90}\text{Zr}(\text{n},2\text{n})^{89}\text{Zr}$	909	1.06(0)E+09	5.40(2)E+08	2.72(1)E+08	6.91(4)E+07
$^{58}\text{Ni}(\text{n},2\text{n})^{57}\text{Ni}$	127	3.74(3)E+08	1.29(1)E+08	5.61(8)E+07	2.15(4)E+07
$^{58}\text{Ni}(\text{n},\text{p})^{58\text{g}}\text{Co}$	811	7.05(5)E+09	3.19(2)E+09	2.62(2)E+09	1.54(1)E+09

(b) 東北大学 CYRIC $E_d = 30$ MeV Be 単体コンバータ

Reaction	E_γ [keV]	Number of produced atoms at end of irradiation [atoms]			
		0 deg	15 deg	30 deg	45 deg
$^{59}\text{Co}(\text{n},2\text{n})^{58\text{g}}\text{Co}$	811	1.15(1)E+10	5.75(4)E+09	3.74(2)E+09	2.56(1)E+09
$^{59}\text{Co}(\text{n},\text{a})^{56}\text{Mn}$	847	4.01(1)E+08	1.69(0)E+08	1.09(0)E+08	7.12(33)E+07
$^{65}\text{Cu}(\text{n},2\text{n})^{64}\text{Cu}$	1346	1.99(2)E+10	1.04(1)E+10	6.66(5)E+09	5.04(4)E+09
$^{65}\text{Cu}(\text{n},\text{p})^{65}\text{Ni}$	1116	2.82(2)E+08	1.37(1)E+08	7.34(12)E+07	—
$^{100}\text{Mo}(\text{n},2\text{n})^{99}\text{Mo}$	181	6.53(3)E+09	2.14(1)E+09	1.81(1)E+09	9.98(4)E+08
$^{27}\text{Al}(\text{n},\text{a})^{24}\text{Na}$	1369	1.03(0)E+09	3.52(1)E+08	3.21(1)E+08	1.60(1)E+08
$^{64}\text{Zn}(\text{n},2\text{n})^{63}\text{Zn}$	670	2.71(3)E+08	—	—	—
$^{64}\text{Zn}(\text{n},\text{p})^{64}\text{Cu}$	1346	2.81(6)E+09	1.03(2)E+09	8.74(19)E+08	8.42(22)E+08
$^{68}\text{Zn}(\text{n},\text{a})^{65}\text{Ni}$	1481	1.79(4)E+07	6.15(20)E+06	3.55(30)E+06	—
$^{90}\text{Zr}(\text{n},2\text{n})^{89}\text{Zr}$	909	2.51(1)E+09	9.25(3)E+08	4.50(2)E+08	3.17(1)E+08
$^{58}\text{Ni}(\text{n},2\text{n})^{57}\text{Ni}$	127	6.51(5)E+08	3.73(3)E+08	1.41(2)E+08	3.35(6)E+07
$^{58}\text{Ni}(\text{n},\text{p})^{58\text{g}}\text{Co}$	811	1.12(1)E+10	7.08(3)E+09	6.43(3)E+09	3.35(1)E+09

(c) JAEA タンデム $E_d = 19.9$ MeV C/Be 複合コンバータ

Reaction	E_γ [keV]	Number of produced atoms at end of irradiation [atoms]			
		0 deg	15 deg	30 deg	45 deg
$^{59}\text{Co}(\text{n},2\text{n})^{58\text{g}}\text{Co}$	811	3.07(3)E+09	2.30(2)E+09	9.72(9)E+08	3.74(5)E+08
$^{59}\text{Co}(\text{n},\text{a})^{56}\text{Mn}$	847	7.23(2)E+07	3.91(2)E+07	1.48(2)E+07	6.45(72)E+06
$^{65}\text{Cu}(\text{n},2\text{n})^{64}\text{Cu}$	1346	1.22(4)E+09	8.97(29)E+08	3.73(12)E+08	2.19(12)E+08
$^{65}\text{Cu}(\text{n},\text{p})^{65}\text{Ni}$	1116	1.84(4)E+07	9.84(40)E+06	4.13(47)E+06	—
$^{100}\text{Mo}(\text{n},2\text{n})^{99}\text{Mo}$	181	4.84(2)E+09	1.12(0)E+09	6.79(3)E+08	2.00(2)E+08
$^{27}\text{Al}(\text{n},\text{a})^{24}\text{Na}$	1369	4.17(1)E+08	1.12(0)E+08	8.01(4)E+07	3.53(3)E+07
$^{64}\text{Zn}(\text{n},2\text{n})^{63}\text{Zn}$	670	2.01(11)E+07	—	—	—
$^{64}\text{Zn}(\text{n},\text{p})^{64}\text{Cu}$	1346	2.89(5)E+09	1.52(3)E+09	6.66(18)E+08	3.79(19)E+08
$^{68}\text{Zn}(\text{n},\text{a})^{65}\text{Ni}$	1481	4.03(15)E+06	—	—	—
$^{90}\text{Zr}(\text{n},2\text{n})^{89}\text{Zr}$	909	3.75(3)E+08	3.01(2)E+08	1.17(7)E+08	4.08(4)E+07
$^{58}\text{Ni}(\text{n},2\text{n})^{57}\text{Ni}$	127	9.37(26)E+07	8.56(17)E+07	3.38(9)E+07	—
$^{58}\text{Ni}(\text{n},\text{p})^{58\text{g}}\text{Co}$	811	8.66(5)E+09	5.36(33)E+09	2.61(1)E+09	1.64(1)E+09

(d) JAEA タンデム $E_d = 30.4$ MeV C/Be 複合コンバータ

Reaction	E_γ [keV]	Number of produced atoms at end of irradiation [atoms]			
		0 deg	15 deg	30 deg	45 deg
$^{59}\text{Co}(\text{n},2\text{n})^{58\text{g}}\text{Co}$	811	1.08(1)E+10	4.77(3)E+09	2.07(1)E+09	1.22(1)E+09
$^{59}\text{Co}(\text{n},\text{a})^{56}\text{Mn}$	847	2.56(0)E+08	9.52(3)E+07	4.10(0)E+07	2.66(6)E+07
$^{65}\text{Cu}(\text{n},2\text{n})^{64}\text{Cu}$	1346	4.76(9)E+09	1.94(4)E+09	7.91(20)E+08	4.20(14)E+08
$^{65}\text{Cu}(\text{n},\text{p})^{65}\text{Ni}$	1116	5.48(8)E+07	2.50(7)E+07	7.69(67)E+06	—
$^{100}\text{Mo}(\text{n},2\text{n})^{99}\text{Mo}$	181	5.20(3)E+09	2.04(1)E+09	8.01(5)E+08	4.96(3)E+09
$^{27}\text{Al}(\text{n},\text{a})^{24}\text{Na}$	1369	8.52(2)E+08	3.58(1)E+08	1.36(1)E+08	7.62(4)E+08
$^{64}\text{Zn}(\text{n},2\text{n})^{63}\text{Zn}$	670	3.24(4)E+08	—	—	—
$^{64}\text{Zn}(\text{n},\text{p})^{64}\text{Cu}$	1346	3.34(7)E+09	1.78(4)E+09	8.49(27)E+08	6.43(21)E+08
$^{68}\text{Zn}(\text{n},\text{a})^{65}\text{Ni}$	1481	2.04(3)E+07	9.43(26)E+06	—	—
$^{90}\text{Zr}(\text{n},2\text{n})^{89}\text{Zr}$	909	2.02(1)E+09	1.06(0)E+09	3.81(1)E+08	1.50(1)E+08
$^{58}\text{Ni}(\text{n},2\text{n})^{57}\text{Ni}$	127	6.91(5)E+08	3.45(3)E+08	1.26(2)E+08	4.73(9)E+07
$^{58}\text{Ni}(\text{n},\text{p})^{58\text{g}}\text{Co}$	811	9.77(6)E+09	5.30(3)E+09	3.23(2)E+09	2.10(1)E+09

4.2.4 応答関数

アンフォールディングに使用した応答関数の代表例として JAEA タンデム 19.9MeV の応答関数を図 4.3 に示す。反応断面積と比較すると金属箔の厚みの影響で核種ごとの上下関係は変化があるものの反応断面積の形状に変化はないことがわかる。

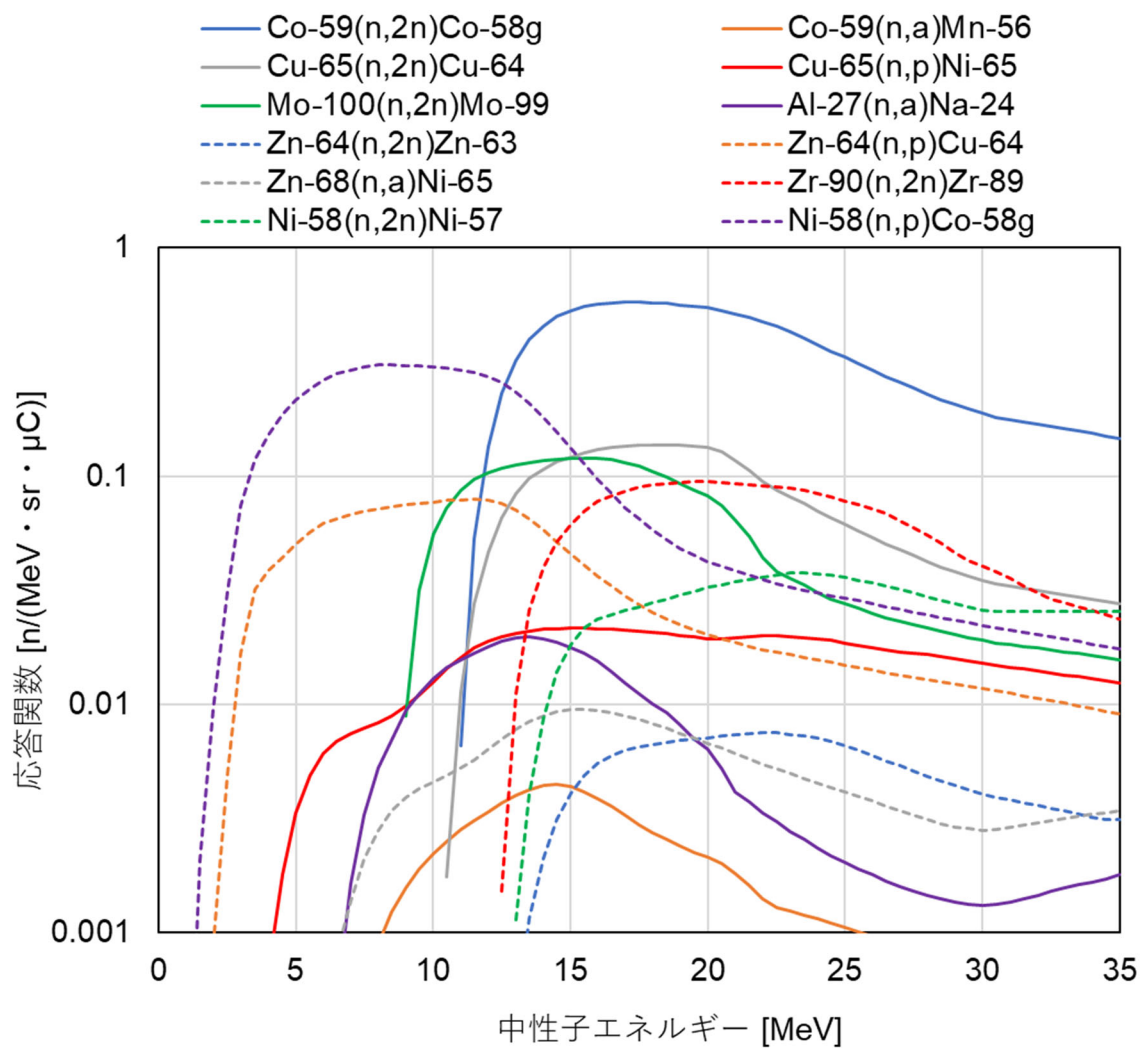


図 4.3 JAEA タンデム 19.9MeV のアンフォールディングに使用した応答関数

4.2.5 DEURACS による中性子収量分布の比較

PHITS によるシミュレーションにより得られた初期推定スペクトルを図 4.4 に示す。この結果から、C 単体に比べ Be 単体と複合コンバータの TTNy の方が大きく、Be 単体、複合コンバータの TTNy はほぼ同様の TTNy が得られると想定できる。またこれらの TTNy の特徴として、入射重陽子エネルギーのおおよそ半分のエネルギー帯に TTNy のピークがみられる点、C 単体コンバータの場合ピークから低エネルギー部にかけて中性子収量が小さくなる点、低エネルギー部の角度依存性が小さい点が挙げられる。

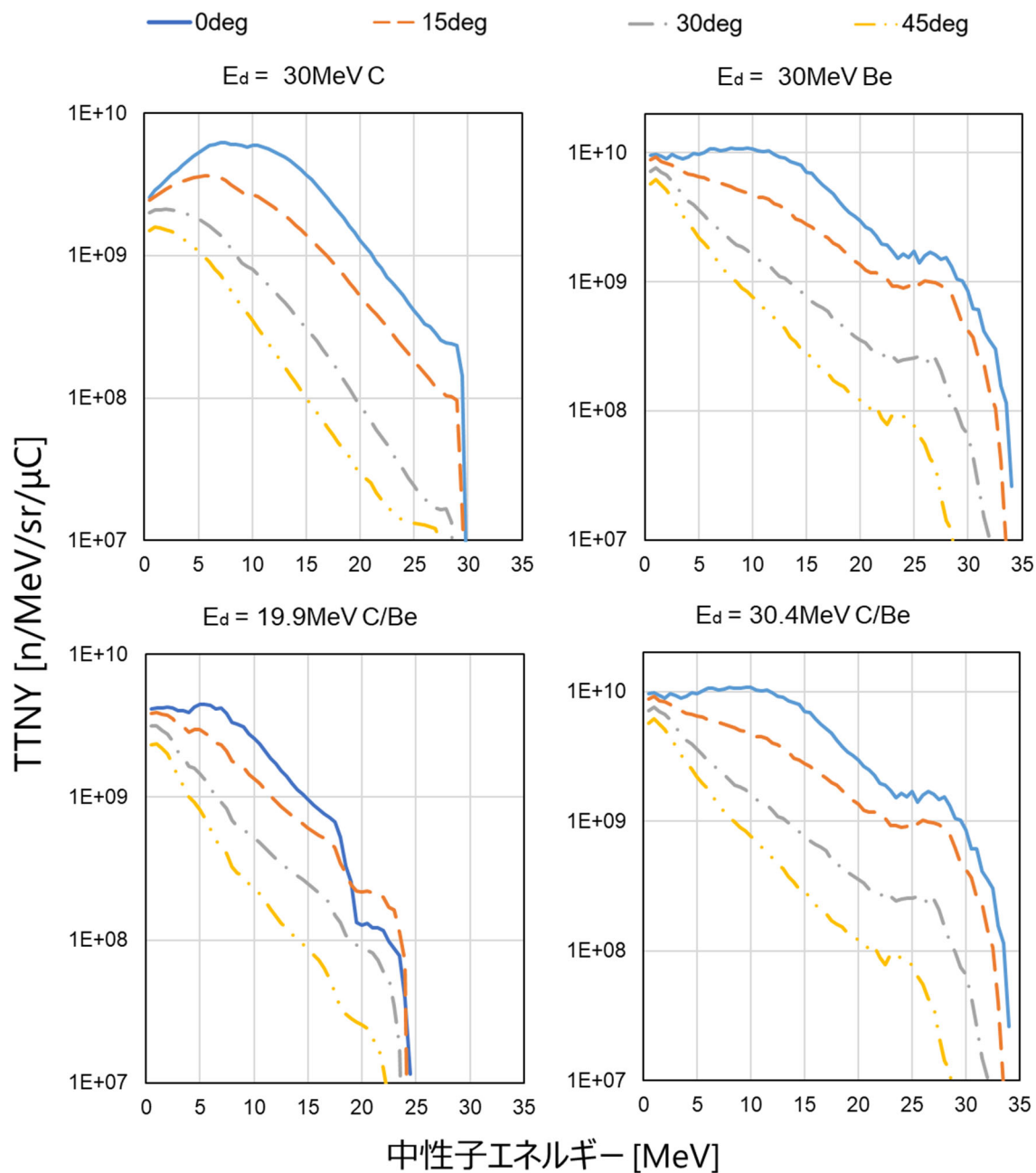


図 4.4 PHITS シミュレーションにより導出した初期推定スペクトル

4.2.6 二重微分中性子収量分布

入射重陽子エネルギー19.9 MeV の複合コンバータを使用した際の 30deg の結果と、Weaver ら [18]が有機液体シンチレーターを用いた飛行時間法（Time Of Flight: TOF 法）を用いて計測を行った入射重陽子エネルギー20MeV、Be 単体コンバータ

の中性子収量をそれぞれ図 4.5 に示す。図 4.5 からわかるように Weaver らの実験結果に比べ、今回の実験結果には 10MeV 付近に不自然なピーク見られる。TOF 法は中性子の飛行時間から直接エネルギーを決定するため、TTNY のエネルギーの構造は正しいと考えられる。そのため、本研究のアンフォールディング結果が真の解とは異なる局所解を出力したと考えられる。この不自然なピークは特定の反応を過大評価、もしくは過少評価する事で発生したと考えられ、原因となっている反応を応答関数の形状と照らし合わせることで特定した。不自然なピーク構造の原因となっていた $^{100}\text{Mo}(n,2n)^{99}\text{Mo}$, $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}$ の反応をアンフォールディングから除いた結果を図 4.6 に示す。また、Weaver ら, Lhersonneau ら [19], Meulders ら [20] の実験結果を図 4.6 にともに示す。Weaver ら、Meulders らの実験は TOF 法、Lhersonneau らの実験は多重箔放射化法による計測結果である。

TTNY から入射重陽子エネルギーのおおよそ半分のエネルギー帯に TTNY のピークがみられる、C 単体コンバータの場合ピークから低エネルギー部にかけて中性子収量が小さくなる、低エネルギー部の角度依存性が小さい傾向がみられる。これらの傾向は物理モデルを基にしたシミュレーション結果、TOF 法による結果の傾向と一致しており妥当な結果であると考えられる。また、これらの傾向は反応過程によって説明することができ、入射重陽子エネルギーのおおよそ半分のエネルギー帯の TTNY のピーク構造は、入射重陽子の陽子がはがれて中性子が生成される陽子ストリッピングによる構造であると考えられる。また、低エネルギー部は入射重陽子が一度原子に取り込まれ励起状態にした後、励起原子が崩壊することで中性子が放出される統計崩壊過程による構造であると考えられる。

次に多重箔放射化法を用いた Lhersonneau らの結果をもとに絶対値について比較する。30 MeV、0 deg の C 単体コンバータにおいて今回の結果とピークの位置は異なるものの、ピークの最大値はおおむね一致している。また、Lhersonneau らの 30 MeV、20 deg の C 単体コンバータの結果は今回の C 単体 15deg の結果のようにピーク構造は見られない一方で、今回の 30 deg の結果とおおむね一致しており、中性子の前方性は異なるものの統計崩壊過程による等方性の高い中性子については

おおむね一致していると考えられる。中性子の前方性の違いは、金属箔の大きさの違いによる角度分解能、ビーム径による前方性の違いによるものだと考えられる。

また、入射重陽子エネルギー30 MeV、Be 単体コンバータにおける高角度の中性子収量のデータは測定例が少なく、今回の実験により核データ研究や RI の製造に応用可能な有益なデータが得られたと考えられる。

C/Be 複合によって得られた二重微分中性子収量分布(Double-differential Thick-Target Neutron Yield: DDTTNY)についてみると、19.9、30 MeV の双方において Be 単体コンバータと形状は一致、絶対値についてはわずかに小さい値となっていることがわかる。この結果から複合コンバータを用いた場合、Be コンバータと同程度の中性子収量が得られることがわかる。

また、図 4.7 に DDTTNY に対して中性子エネルギー方向に積分を行った角度微分中性子収量分布を示す。また、Weaver ら、Lhersonneau ら、Meulders らのデータについても同様の計算を行い、結果を図 4.7 に共に示す。この結果から TTNY は前方性が強いことがわかる。今回の入射重陽子エネルギー30 MeV Be 単体コンバータの角度微分中性子収量分布において、15 deg と比較して 30 deg は同程度の中性子収量を示しており、15 deg のデータを過少評価もしくは、30 deg のデータを過大評価している可能性がある。

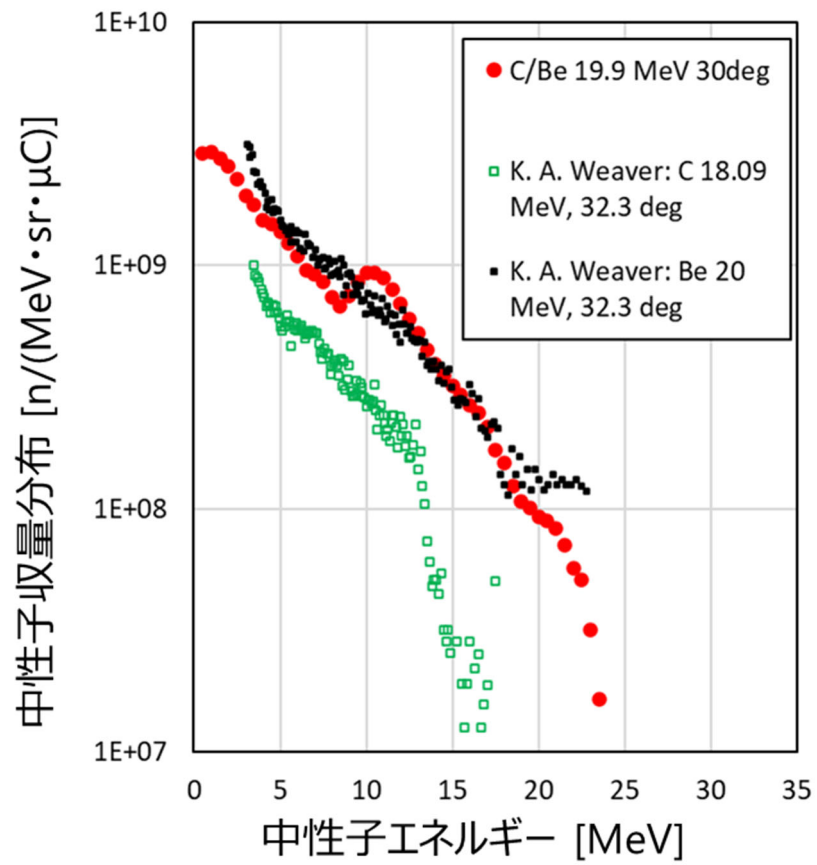
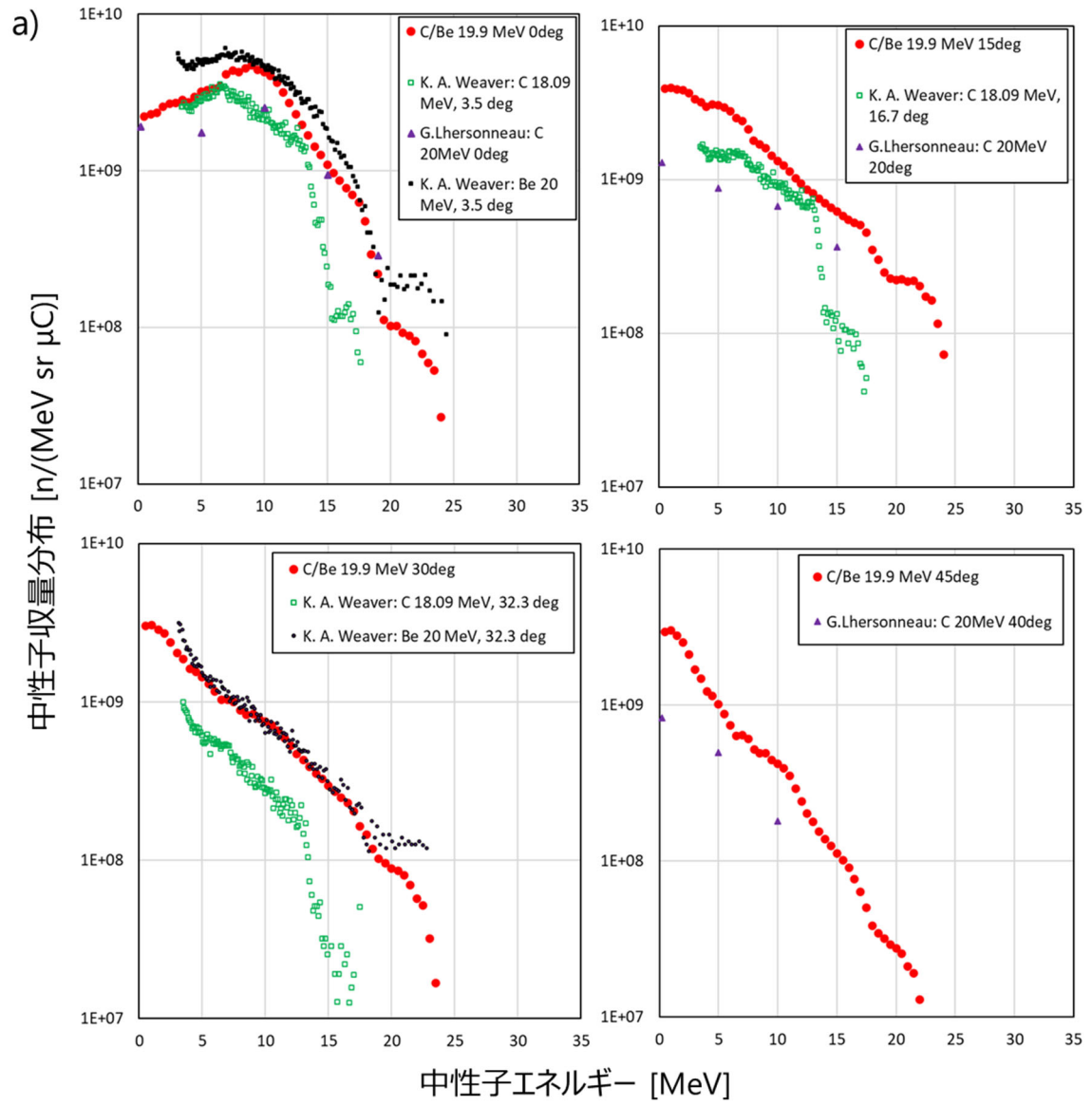
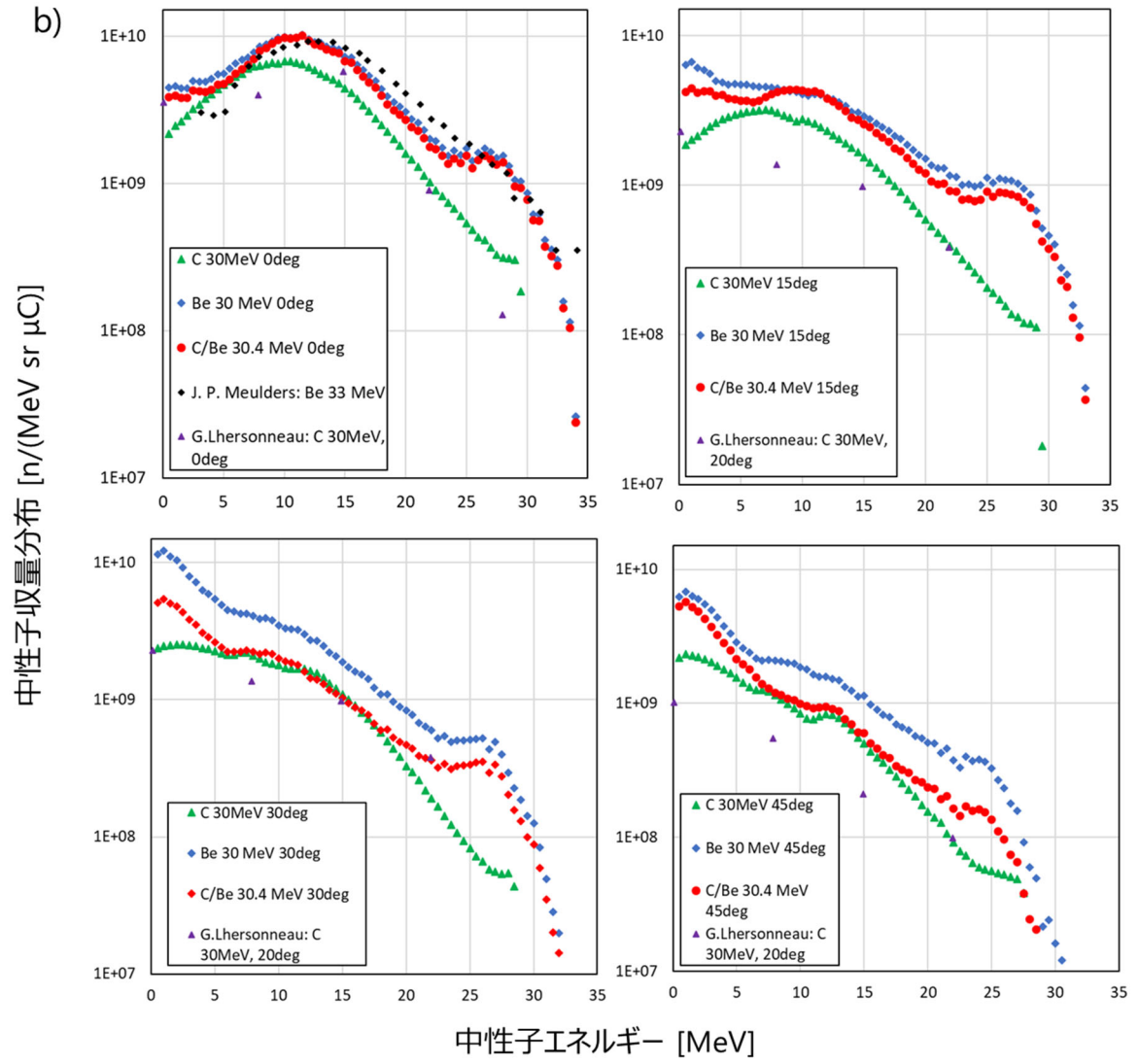
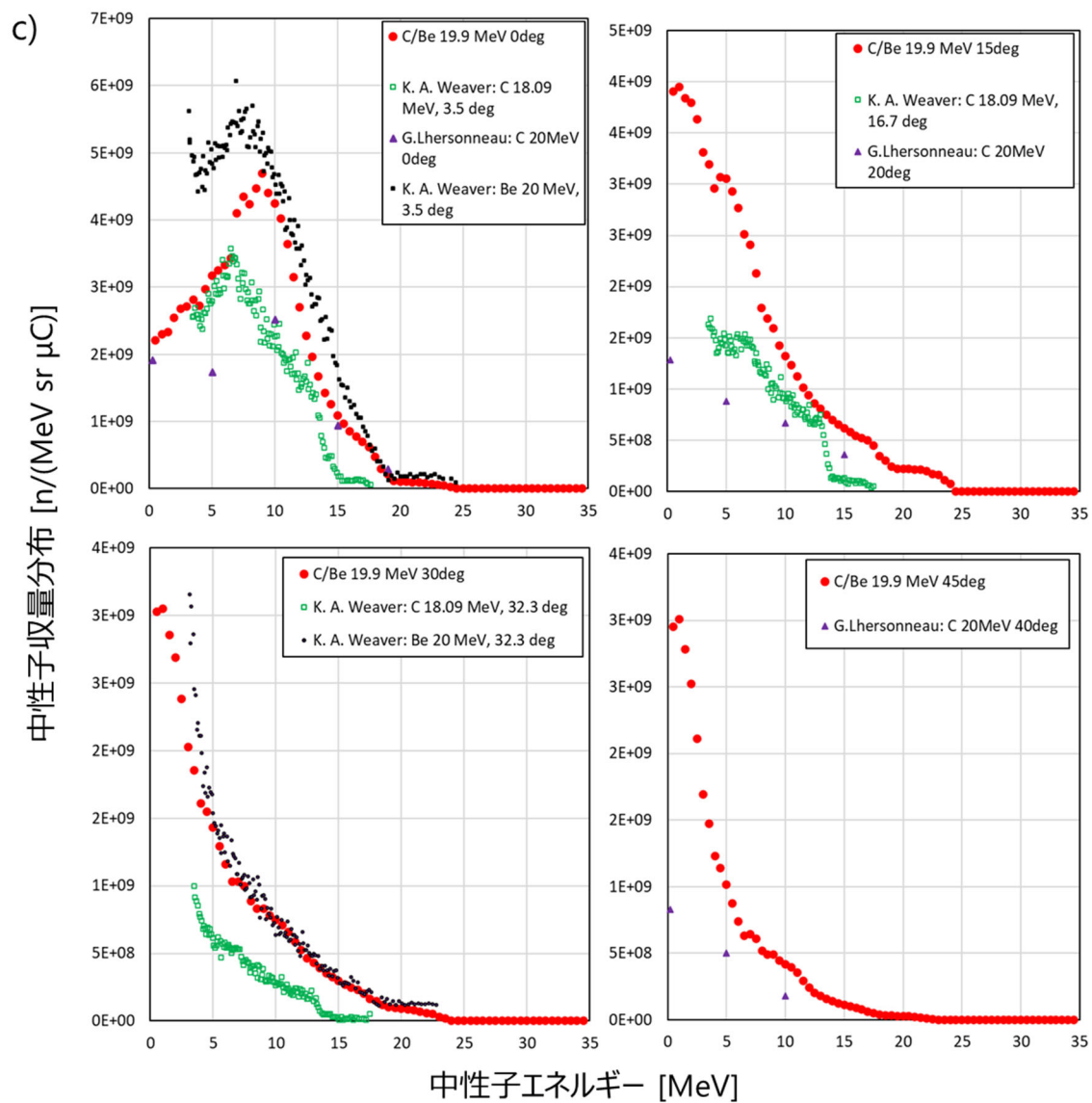


図 4.5 $^{100}\text{Mo}(n,2n)^{99}\text{Mo}$, $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}$ 反応を含むアンフォールディングによる
中性子収量と Weaver らの実験結果







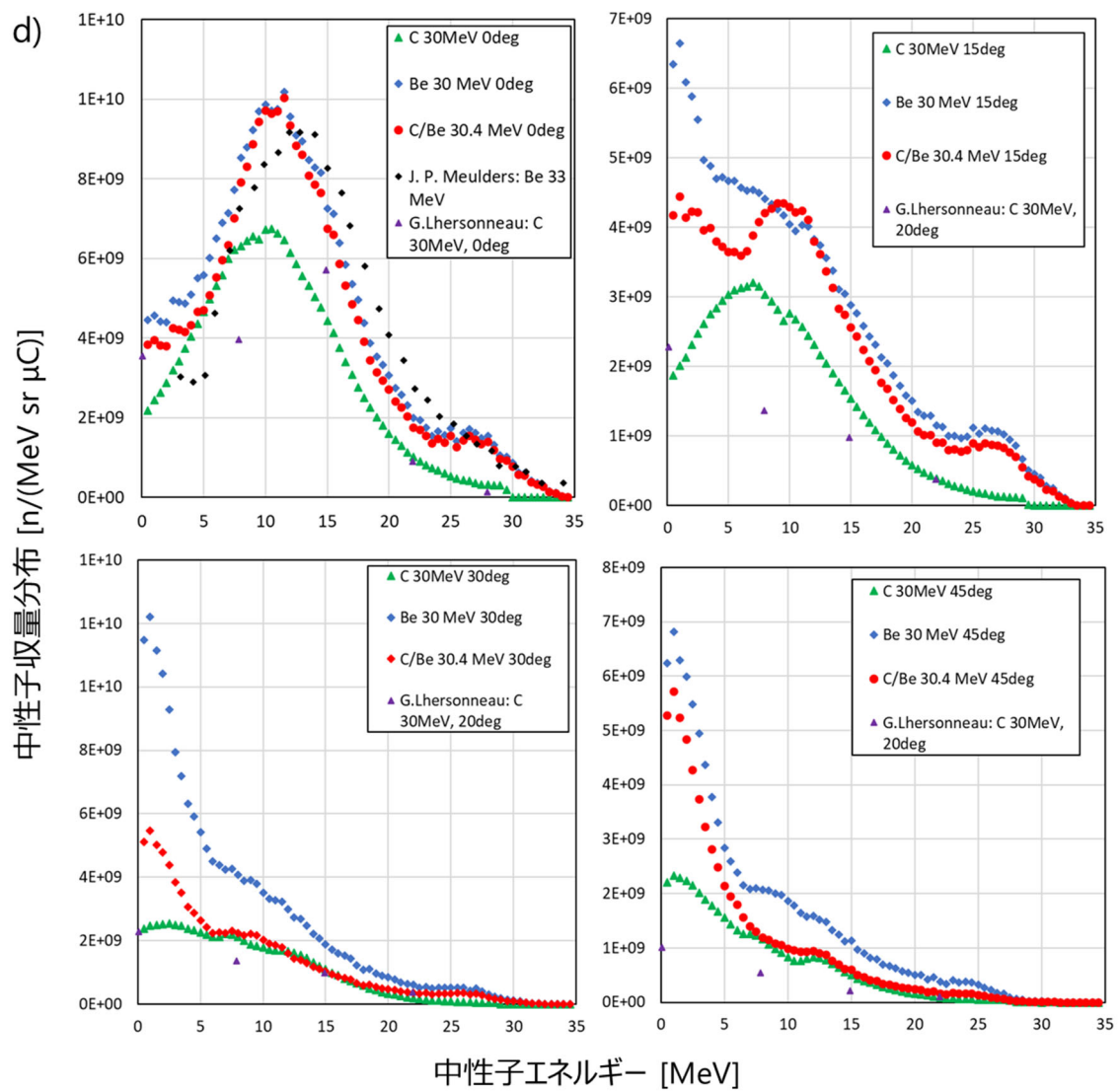


図 4.6 今回の実験で導出した DDTNY と Weaver ら, Lhersonneau ら, Meulders らの実験結果 a) 入射重陽子エネルギー20 MeV 程度、縦軸対数、b) 入射重陽子エネルギー30 MeV 程度、縦軸対数、c) 入射重陽子エネルギー20 MeV 程度縦軸線形、d) 入射重陽子エネルギー30 MeV 程度、縦軸線形

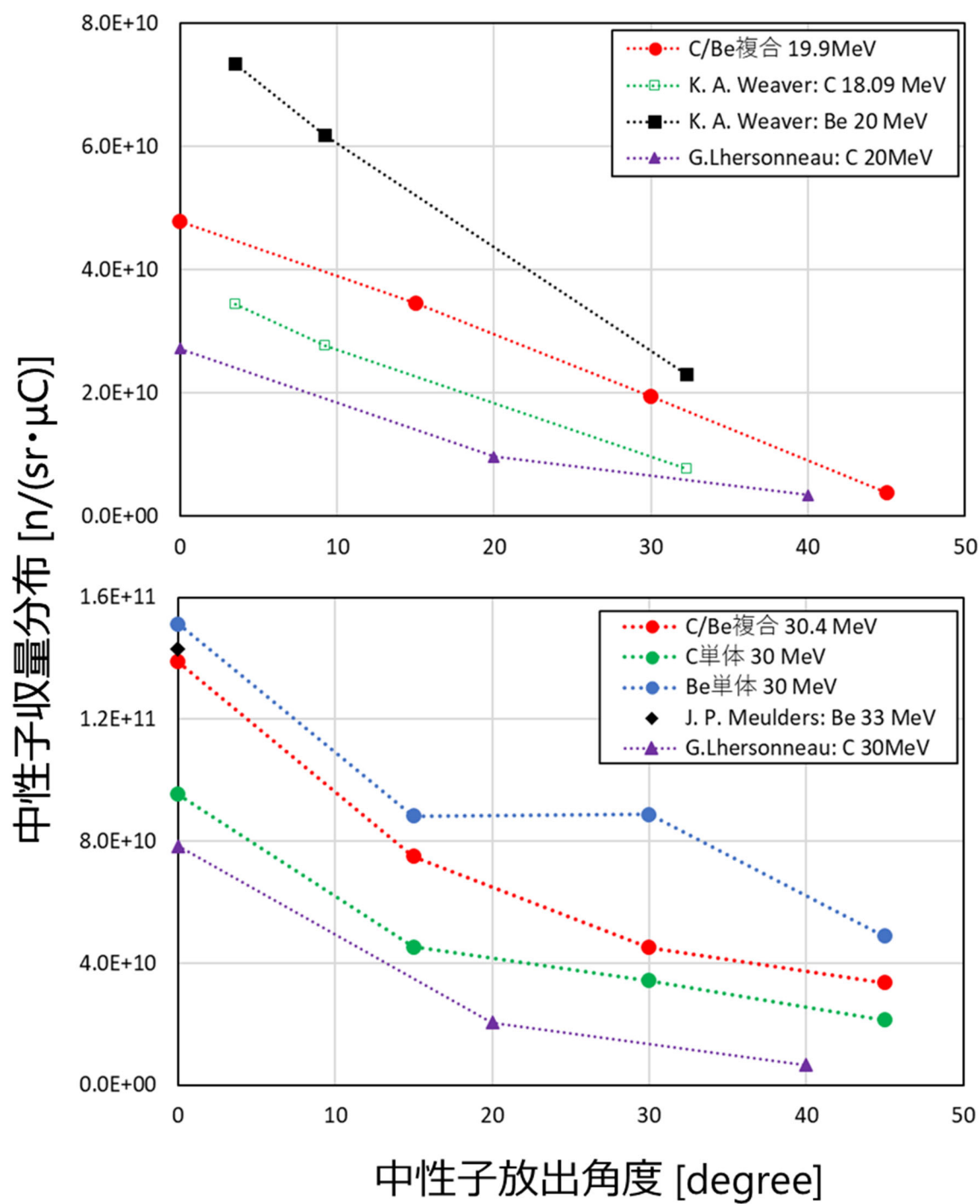


図 4.7 角度微分中性子収量分布（図中破線は eye guide として追加した）

第5章 結論および今後の展望

5.1 結論

近年、医療用 RI はがんの検査や治療に広く使用されている。その中でも ^{64}Cu は検査用、治療用の両方で利用可能な物理的性質を持っており、検査や治療での実用化が期待されている。重陽子加速器中性子源は ^{64}Cu を含む、医療用 RI の製造への応用が検討されており、RI の大量製造に適した性質を持っている。本研究では重陽子加速器中性子源の中性子コンバータに着目し、中性子収量を維持しつつ高耐久な中性子コンバータとして C と Be を用いた複合コンバータの開発を行った。また、複合コンバータの性能調査のため、C, Be 単体と複合コンバータによる中性子収量を計測し比較を行った。

C/Be 複合コンバータは重陽子入射方向の上流側に Be、下流側に C を設置してある。この複合コンバータは Be の厚みを平均飛程よりわずかに薄くすることで重陽子のほとんどを C コンバータ部に停止させることができ、ブリストリングを抑制可能となっている。これにより、単体 Be コンバータの約 90 倍の耐久性があると考えられる。

また、東北大学 CYRIC と JAEA タンデムにて重陽子加速器中性子源による中性子収量を多重箔放射化法にて計測した。アンフォールディング過程では GRAVEL コードを使用し、実験結果から導出した核種生成数を再現する TTNy を導出した。この際、逐次近似の初期推定解として PHITS シミュレーションにより得られた TTNy、応答関数として JENDL-5 に格納されている反応断面積を使用した。これにより、入射重陽子エネルギー 30 MeV における単体 C、単体 Be コンバータにおける 0, 15, 30, 45 deg の TTNy と C/Be 複合コンバータにおける入射重陽子エネルギー 19.9, 30.4 MeV の 0, 15, 30, 45 deg の TTNy を得た。今回の実験結果と Weaver ら, Lhersonneau ら, Meulders らの実験結果を比較すると、今回の結果は TOF 法を用いた Weaver ら, Meulders らの結果と形状がおおむね一致し、多重箔放

射化法を使用した Lhersonneau らの結果と絶対値に近い、妥当な結果が得られたことがわかった。また、設計した複合コンバータは単体 Be コンバータと比較すると中性子収量がわずかに下回るものの、同程度の中性子収量が得られることが分かった。

5.2 今後の展望

本研究では、理論上 C/Be 複合コンバータが Be 単体コンバータに比べてどの程度耐久性があるかについての結果を示した。しかし、実験的に耐久性について議論することができなかったため、実験的に Be 内に蓄積した重陽子数を計測する方法を探っていきたいと考えている。また、実際に RI 製造を行う場合、今回の実験より高出力で長時間の重陽子照射が必要となる。このような照射条件において中性子コンバータの耐久性だけでなく、廃熱性能についても考える必要がある。よって、耐久性と廃熱性能を両立させた中性子コンバータの設計も行っていきたいと考えている。

参考文献

- [1] Radioisotopes **72**, 49 (2023).
- [2] P. Gould, Nature **460**, 312 (2009).
- [3] Y. Nagai *et al.*, J. Phys. Soc. Japan **82**, 1 (2013).
- [4] T. Mitsumoto *et al.*, CYCLOTRONS 2010 - 19th Int. Conf. Cyclotrons Their Appl. **c**, 430 (2010).
- [5] L. Pienkowski *et al.*, Phys. Rev. C **56**, 1909 (1997).
- [6] Y. Nagai *et al.*, J. Phys. Soc. Japan **82**, (2013).
- [7] T. P. Lou, *Compact DD/DT Neutron Generators and Their Applications* (University of California, Berkeley, 2003).
- [8] Y. Nagai and Y. Hatsukawa, J. Phys. Soc. Japan **78**, 1 (2009).
- [9] Y. Nagai, Phys. Procedia **66**, 370 (2015).
- [10] T. Kin *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. **54**, 1123 (2017).
- [11] H. Kumada *et al.*, Appl. Radiat. Isot. **106**, 78 (2015).
- [12] Y. Yamagata *et al.*, J. Radioanal. Nucl. Chem. **305**, 787 (2015).
- [13] M. Matzke, *Unfolding of Pulse Height Spectra: The HEPRO Program System* (Braunschweig, 1994).
- [14] O. Iwamoto *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. **60**, 1 (2023).
- [15] T. Sato *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. **61**, 127 (2023).
- [16] S. Nakayama *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. **58**, 805 (2021).
- [17] S. Nakayama *et al.*, Phys. Rev. C **94**, 14618 (2016).
- [18] K. A. Weaver *et al.*, Nucl. Sci. Eng. **52**, 35 (1973).
- [19] G. Lhersonneau *et al.*, Eur. Phys. J. A **52**, (2016).
- [20] J. P. Meulders *et al.*, Phys. Med. Biol. **20**, 235 (1975).

謝辞

本研究を通して勉学の面だけでなく人間的にも大きく成長することができたと思います。短文ではありますが、ここで私を支えてくださった皆様方へ感謝を述べさせていただきます。

金政浩准教授には、研究の総合的な指導をしていただきました。学会発表や発表練習、論文の添削など、様々な点で熱心な指導をいただき、有意義な研究生活を送ることができました。深く感謝いたします。

最後に大学 6 年間、金銭や生活面など、いつも支えて下さった家族に感謝の意を表し、これで謝辞を締めくくりとさせていただきます。