

(γ, n)光核反応の励起関数の検証

VERIFICATION OF EXCITATION FUNCTIONS OF THE (γ, n) REACTIONS

野田秀作^{#, A)}, 井田博之^{A)}, 井村亮太^{A)}, 菊永英寿^{B)}, 塚田 暁^{B)}, 柏木 茂^{B)}, 高橋 健^{B)}, 南部健一^{B)},
大浦泰嗣^{C)}

Shusaku Noda^{#, A)}, Hiroyuki Ida^{A)}, Ryota Imura^{A)}, Hidetoshi Kikunaga^{B)}, Kyo Tsukada^{B)}, Shigeru Kashiwagi^{B)}, Ken
Takahashi^{B)}, Kenichi Nanbu^{B)}, Yasuji Oura^{C)}

^{A)} JFE Engineering Corporation

^{B)} Research Center for Electron Photon Science (ELPH), Tohoku University

^{C)} Tokyo Metropolitan University

Abstract

We measured the activities of ^{99}Mo that were generated by bombarding 15-50 MeV electron bremsstrahlung photons. The experiment was carried out at Research Center for Electron Photon Science (ELPH), Tohoku University. The generated activities in the irradiated ^{nat}Mo target were determined from the gamma-ray measurement using the High Purity Germanium (HPGe) detector. In order to verify the excitation function of $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ reaction, the experimental setup was simulated with the Particle and Heavy-Ion Transport code System (PHITS) to determine the flux of bremsstrahlung photons. Then, the estimated activities were deduced from literature data of the $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ excitation function multiplied by the bremsstrahlung photon spectrum. The experimental result shows that the literature data of (γ, n) excitation function for ^{100}Mo can be used to estimate the activities generated by the bremsstrahlung photons.

1. はじめに

^{99m}Tc (テクネチウム)は、核医学検査に最も広く利用されている放射性核種である[1]。日本では年間約 400 TBq が日本アイソトープ協会を通じて国内の医療機関などに供給されており、SPECT 検査として年間 100 万件が実施され、その市場規模は年間 200 億円とされている。一般に ^{99m}Tc は ^{99}Mo の β -崩壊の娘核種として得られる。 ^{99m}Tc の半減期が 6 時間である一方、親核種である ^{99}Mo の半減期は 66 時間であるため、過渡平衡を利用したミルクィング法から ^{99m}Tc 取得し、放射性薬剤として診断などへ利用される。親核種である ^{99}Mo は海外の研究用原子炉において、高濃縮ウラン(^{235}U)の核分裂生成物として得られている。しかし、製造用研究炉の老朽化、火山の噴火などによる航空輸送の遅延や、高濃縮ウランを使用することによる安全保障上のテロの問題があり[2]、最も広く利用されている放射性核種であるにもかかわらず ^{99}Mo の供給は安定していない。このような問題から、高濃縮ウランを使用しない ^{99}Mo の国内製造方法が世界中で検討されてきた[3]。

本研究では、電子線加速器によって発生した制動放射線による $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ 反応を利用する製造方法に着目し、過去の $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ 励起関数(反応断面積)の文献値を検証するための基礎実験を行った。ただし、単色の光子エネルギーに依存する光核反応の励起関数を得るためには、Tagged photon ビームなどが必要となり、その実験は容易ではない。そこで、ここでは電子線加速器を利用した ^{99}Mo 製造方法を検討するため、より実用的な基礎データとして、電子線エネルギーに依

[#] noda-shusaku@jfe-eng.co.jp

存した ^{99}Mo 生成量を系統的に取得した。

先行研究による測定値として、 $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ 反応の励起関数が EXFOR (Experimental Nuclear Reaction Data)[4]に収録されている。粒子・重イオン輸送計算コード PHITS (Particle and Heavy-Ion Transport code System)[5]によるシミュレーション計算から得られる、電子線により発生した制動放射線スペクトル分布と、文献値として入手できる $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ 反応の励起関数の掛け合わせにより、ある電子線エネルギーに対する制動放射線に起因した光核反応によって作られた ^{99}Mo 量を導出した。

本実験で得られた ^{99}Mo 生成量とこれらのシミュレーション計算によって推定した ^{99}Mo 生成量を比較することによって、文献値である励起関数の検証を行った。

2. 実験

実験は東北大学電子光理学研究センターの大強度電子線形加速器にて行った。電子線エネルギーが 15、20、25、30、40 および 50 MeV の 6 点に対し実験を行った。電子線エネルギーごとの $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ 生成量は、高純度 Ge 半導体検出器によるガンマ線計測による放射化法で決定することとした。

Figure 1 に照射ターゲットのセットアップ写真を示す。加速された電子は厚さ 50 μm のチタン窓を通して真空中から空気中へ取り出される。本実験で使用した電子線は楕円形であり、その大きさは照射実験前に酸化ベリリウム板によって計測した。電子線ビームの詳細を Table 1 に示す。制動放射線発生用ターゲットとして 2.06 mm タングステン板を採用した。チタン窓から 107.6 mm 後方にタングステン板と照射ターゲットとして天然存在比の Mo 箔 100

mm × 100 mm × 厚さ 9.72 μm を 1 枚設置した。

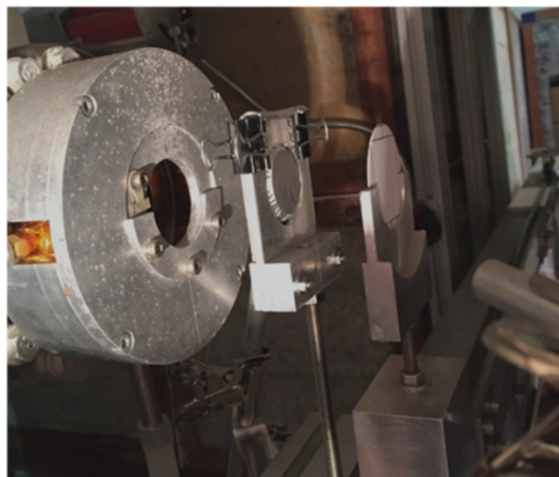


Figure 1: Irradiation target setup.

Table 1: Specification of Electron Beam

Energy (MeV)	Ellipse Size (X × Y mm)	Std. Dev. of Energy (%)
15	3.4 × 3.3	1.0
20	1.9 × 1.7	1.0
25	2.3 × 2.4	1.0
30	2.2 × 1.9	1.0
40	2.0 × 1.9	1.0
50	2.8 × 2.2	1.8

電子線の照射時間は、エネルギーによらず 10 分間とした。詳細な照射条件を Table 2 に示す。

照射後、同センターの加速器施設に併設されている化学実験室にて、高純度 Ge 半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロスコピーによって $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)$ 反応により生成した ^{99}Mo 量を測定した。

Table 2: Irradiation Status

Beam energy (MeV)	Average Current (μA)	Irradiation time (sec)
15	4.5 ± 1.1	600
20	14.4 ± 0.4	600
25	13.8 ± 0.7	600
30	14.7 ± 0.6	600
40	19.1 ± 0.8	600
50	21.4 ± 0.4	600

3. 解析

3.1 本実験における ^{99}Mo 生成量の導出

Figure 2 に 30 MeV 電子線照射終了約 1 時間 30 分後の $^{\text{nat}}\text{Mo}$ 箔から検出したガンマ線スペクトルを示す。 ^{99}Mo の β 崩壊に伴う 739.5、181.1 および 777.9 MeV のピークおよび $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ガンマ崩壊による 140.5 keV のガンマ線が確認できた。これ以外に本計測により確認できたガンマ線のピークは、 $^{92}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{90}\text{Mo}$ による 257.3 および 122.4 keV、 $^{98}\text{Mo}(\gamma, p)^{97}\text{Nb}$ による 657.9 keV、 $^{97}\text{Mo}(\gamma, p)^{96}\text{Nb}$ による 778.2 および 568.9 keV、 $^{92}\text{Mo}(\gamma, pn)^{90}\text{Nb}$ による 1129.2 および 2319.0 keV、対消滅による 511 keV である。Ge 検出器を用いた測定を開始するまでに経過した時間および測定中の壊変補正を行い、 ^{99}Mo の反応収率を導出した。

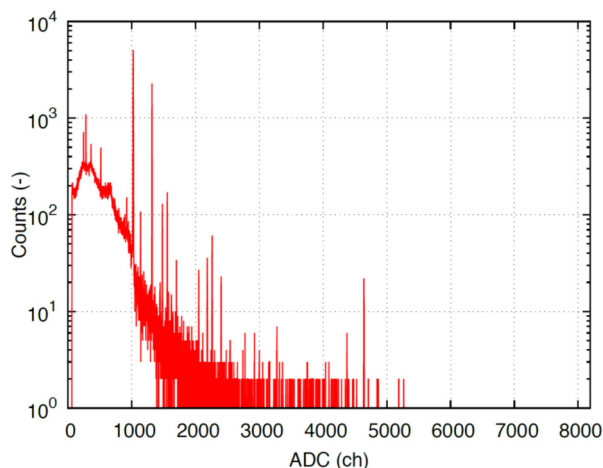


Figure 2: ADC spectrum of $^{\text{nat}}\text{Mo}$ target irradiated by 30 MeV electron bremsstrahlung photons.

3.2 シミュレーションによる ^{99}Mo 生成量の導出

電子線に起因する制動放射線によって作られる ^{99}Mo 放射能は以下の式で表すことができる。

$$A_{\text{EOB}} = nf \int_0^{E_0} P(E)\sigma(E)dE \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1)$$

$$= nfY(E_0) \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$

この式では、本実験に使用した照射ターゲットは十分に薄いため、ターゲット中では制動放射線は減衰しないと仮定している。ここで、 A_{EOB} は照射後の ^{99}Mo 生成放射能、 n は照射ターゲット量 ($^{\text{nat}}\text{Mo}$ 中の ^{100}Mo 数密度 × 放射ターゲット厚さ × 電子ビーム面積)、 f は電流量; 入射電子数、 E_0 は加速電子エネルギー; 制動放射線の最大エネルギー、 $P(E)$ は電子 1 個当たりの制動放射線スペクトル、 $\sigma(E)$ は光子エネルギー E に対する光核反応の励起関数、 λ は ^{99}Mo の壊変定数、 t は照射時間、 $Y(E_0)$ は電子 1 個当たりの ^{99}Mo 平均生成収率である。

$P(E)$ は、電子 1 個当たりに制動放射ターゲットから放出される X 線スペクトルであり、PHITS を用いたシミュレーションにより導出した。Figure 3 に 10、20、30、40 および 50 MeV 電子をタングステンに入射した場合の制動放射線スペクトルを示す。PHITS により導出した制動放射線スペクトルは、入射電子線エネルギーによらず実際

の値をよく再現することが確かめられている[6].

光核反応により生成される ^{99}Mo 量を推定するためには、制動放射線スペクトルに加えて、 $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ 反応の励起関数が必要となる。Beil ら[7]、Crasta ら[8]および Utsumiya ら[9]などによって、実験的に励起関数が測定されている。これらの値を Fig. 4 に示す。この測定値を励起関数 $\sigma(E)$ とし、PHITS による制動放射線スペクトルを掛け合わせることで $Y(E_0)$ を導出した。このような一連のシミュレーションにより得られた $Y(E_0)$ と、本実験で得た A_{EOB} から求めた $Y(E_0)$ との比較を行った。

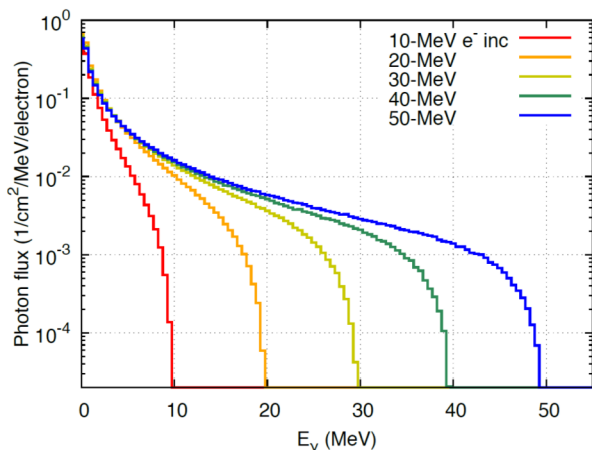


Figure 3: PHITS calculation results of bremsstrahlung X-ray spectra generated by electron-bombarding onto W converter.

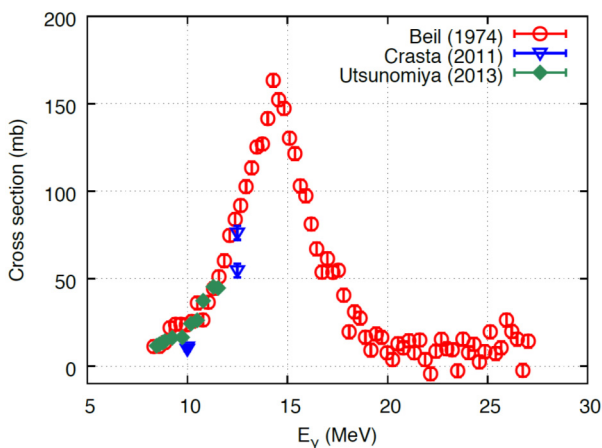


Figure 4: Literature data of $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ excitation function.

4. 結果

本研究によって得られた、 ^{99}Mo 生成量を実験値およびシミュレーション結果を Fig. 5 に示す。実験値と文献値による推定値は、測定を実施した電子線エネルギー領域に渡って、よく一致している。

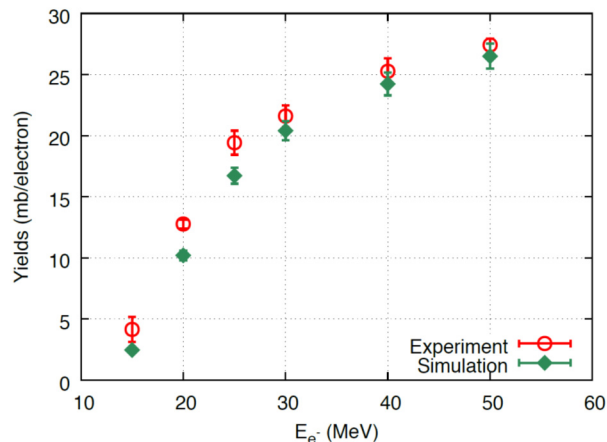


Figure 5: Electron-energy dependent yields of ^{99}Mo production.

5. 考察

Figure 5 は、本実験値は過去の文献値である Beil らの励起関数を用いた計算結果を支持している。Beil らの測定による励起関数は、巨大共鳴反応が支配的である光子エネルギーが 30 MeV までの領域において、 $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ 反応を精度よく測定されていると考えることができる。今後、 ^{99}Mo 製造用照射ターゲットの設計などのシミュレーション計算への応用が考えられる。

6. まとめ

文献値である $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ 励起関数の検証を行うことを目的とし、電子線入射による制動放射線照射による ^{99}Mo 生成収率の測定を行った。電子線入射により発生する制動放射線を PHITS により導出した。制動放射線エネルギースペクトルと文献値の励起関数を掛け合わせることで、入射電子線エネルギーに対する ^{99}Mo 生成収率を推定した。実験値とシミュレーション結果はよい一致を示した。Beil らによる過去の測定値は妥当であると考えられる。

参考文献

- [1] アイントープ等流通統計2017;
<https://www.jrias.or.jp/report/pdf/ryutsutoukei2017.pdf>
- [2] T. Inoue., “国産化 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ の医療運用に向けての議論—我が国における ^{99}Mo の国産安定供給の方向性と議題—”, *RADIOISOTOPES*, vol. 62, pp. 667-678, 2013.
- [3] The Supply of Medical Radioisotopes: Review of Potential Molybdenum-99/Technetium-99m Production Technologies, <https://www.oecd-nea.org/med-radio/reports/Med-Radio-99Mo-Prod-Tech.pdf>
- [4] N. Otuka *et al.*, “Towards a More Complete and Accurate Experimental Nuclear Reaction Data Library (EXFOR): International Collaboration between Nuclear Reaction Data Centres (NRDC)”, *Nucl. Data Sheets*, vol. 120, pp. 272-276, 2014.
- [5] T. Sato *et al.*, “Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 55, pp. 684-690, 2018.

- [6] Y. Iwamoto *et al.*, “Benchmark study of the recent version of the PHITS code”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 54, pp. 617-635, 2017.
- [7] H. Beil *et al.*, “A study of the photoneutron contribution to the giant dipole resonance in doubly even Mo isotopes”, *Nucl. Phys. A*, vol. 227, pp. 427-449, 1974.
- [8] R. Crasta *et al.*, “Photo-neutron cross-section of ^{100}Mo ”, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 290, pp. 367-373, 2011.
- [9] H. Utsunomiya *et al.*, “Photoneutron cross sections for Mo isotopes: A step toward a unified understanding of (γ, n) and (n, γ) reactions”, *Phys. Rev. C*, vol. 88, p. 051805, 2013.