



# PET核種製造用サイクロトロンに 関する調査報告

平成21年9月15日

大学共同利用機関法人  
高エネルギー加速器研究機構

1

## 目次

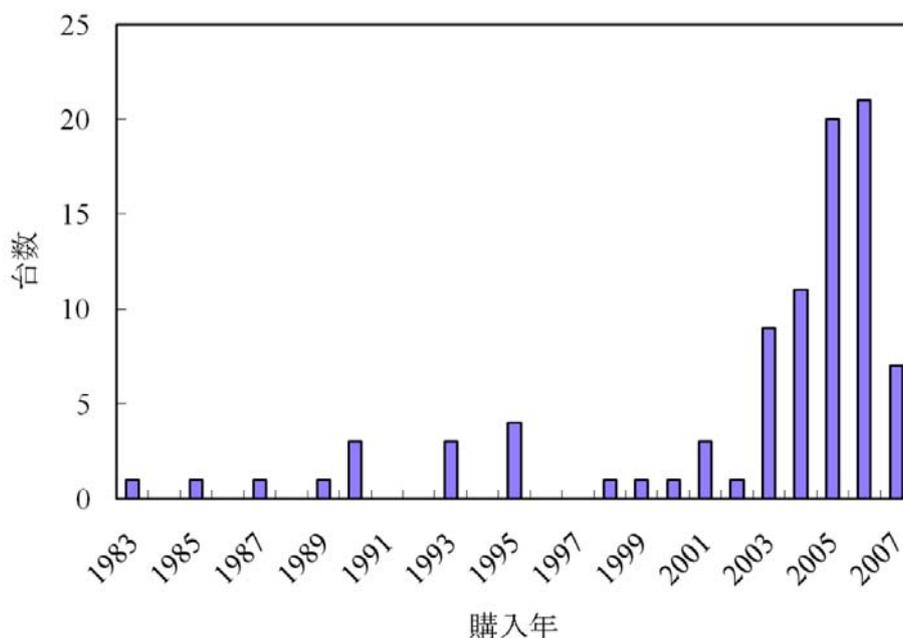
- アンケートによる使用状況結果
- サイクロトロンのタイプ別の中性子発生
  - 陽子加速(2施設):実測
  - H-イオン加速(3施設):実測と計算
  - 自己遮蔽(2施設):実測と計算
- 放射化の状況のまとめ
  - コンクリート
  - 金属材料

# 使用状況調査

- 日本放射線技術学会の協力により、アンケート調査を実施
- 平成19年11月～20年1月までの回答を対象
- PET核種製造用サイクロトロン(以下「サイクロトロン」という)を保有する128施設で、89施設(70%)のサイクロトロン91台についてそれぞれ回答を得た
- 2/3が国産、1/3が外国製であった

3

## サイクロトロンの設置



- 2003年以降急速に増加
- 2007年以降、デリバリ事業が始まり、新設は鈍化している
- 今後は更新や廃止の検討が進む可能性がある

# 製造されている核種と核反応

製造核種	反応式	施設数
$^{18}\text{F}$	$^{18}\text{O}(\text{p},\text{n})^{18}\text{F}$	82
	$^{20}\text{Ne}(\text{d},\alpha)^{18}\text{F}$	1
	$^{18}\text{O}(\text{p},\text{n})^{18}\text{F}, ^{20}\text{Ne}(\text{d},\alpha)^{18}\text{F}$ 両方	4
$^{11}\text{C}$	$^{14}\text{N}(\text{p},\alpha)^{11}\text{C}$	29
$^{15}\text{O}$	$^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$	17
	$^{15}\text{N}(\text{p},\text{n})^{15}\text{O}$	5
$^{13}\text{N}$	$^{16}\text{O}(\text{p},\alpha)^{13}\text{N}$	15
その他	$^{64}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{64}\text{Cu}$	1

ほとんどの施設で製造されている核種は $^{18}\text{F}$ であり、次に $^{11}\text{C}$ (33%)、 $^{15}\text{O}$ (25%)、 $^{13}\text{N}$ (17%)の順となっている。

## F-18生成量

- 加速エネルギーと生成量

10MeV : 12MeV : 18MeV = 1 : 1.2 : 1.6

- 照射時間と生成量

1h : 1.5h : 2h : 2.5h = 1 : 1.37 : 1.68 : 1.94

生成量は運転時間に比例しないことから1時間程度の照射が多い

- 照射電流と生成量

電流に正比例する

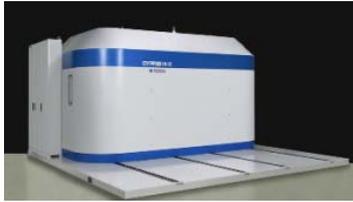
# サイクロトロン分類

(a) 陽子加速

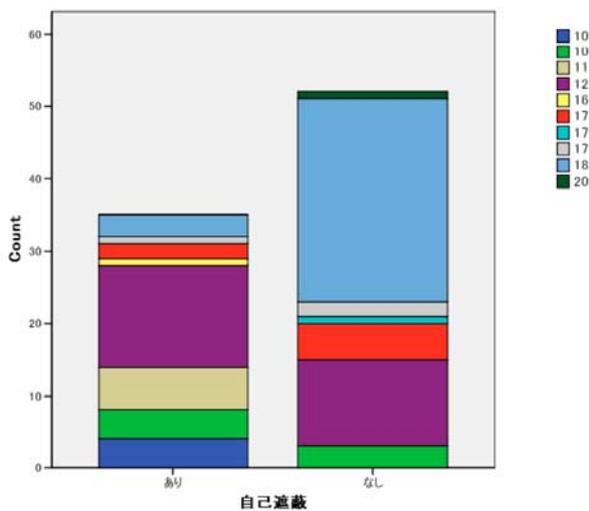
(b) H-イオン加速

自己遮蔽無

自己遮蔽有



## 自己遮蔽の有無と 陽子加速エネルギー



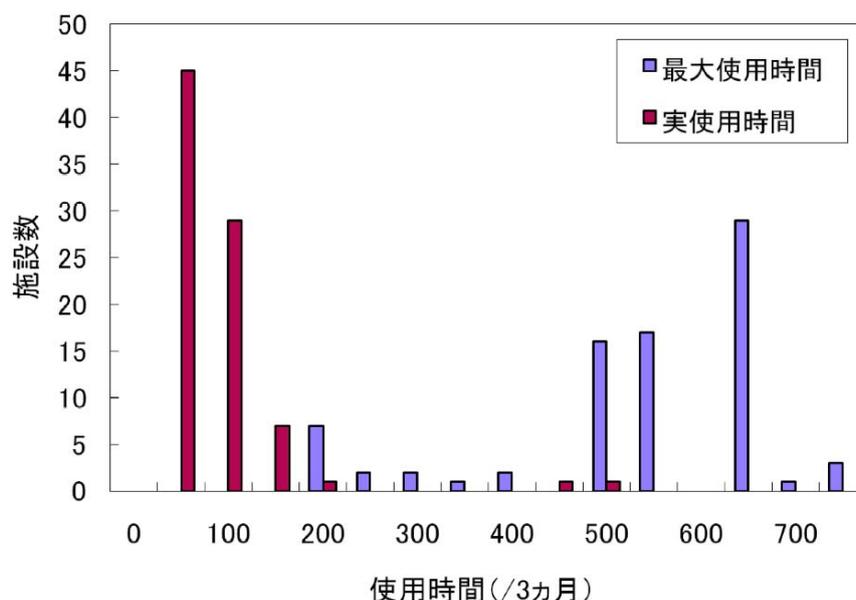
- 自己遮蔽体無しの方の台数が多い。
- 陽子の加速エネルギーは、12MeVと18MeVが主
- 自己遮蔽体無しの方は18MeVが多い
- 自己遮蔽体有りの方は12MeV以下が多い

凡例最上の10は10MeV未満、  
最下の20は20MeV以上を意味する

# サイクロトロン施設の利用方法

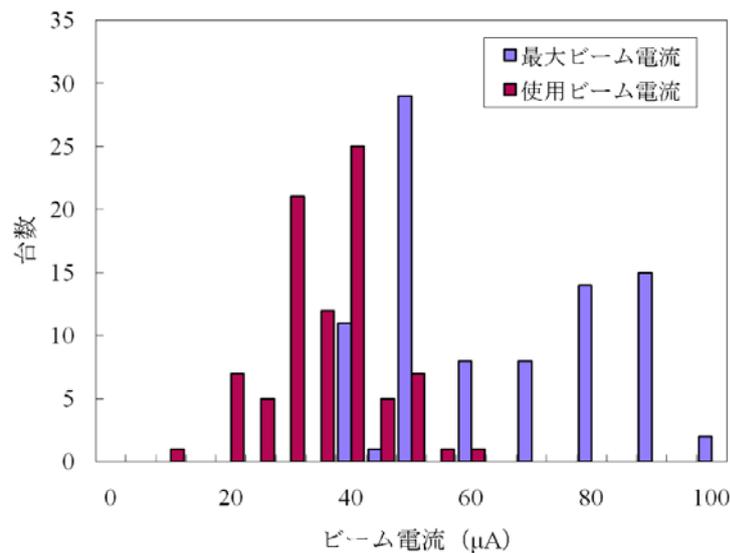
- 加速粒子:陽子が主、一部重陽子も利用
- 加速形式
  - H加速が多い:炭素薄膜による荷電変換でビーム取出し
  - p加速は少なくなっている:デフレクタによるビーム取出し
- 加速エネルギー
  - 12または18MeVが多い
- 遮蔽条件
  - 自己遮蔽体有りのものが増加
- ターゲットボックス
  - 両側に設置して、交互に利用しているものが増加

## 3ヶ月あたりの許可及び使用時間



- 許可時間の平均値:509時間
- 実使用時間の平均値:60.5時間(許可時間の12%程度)

# 陽子ビームの許可及び使用電流



- 許可された陽子のビーム電流の平均値:  $64 \mu A$
- 使用ビーム電流の平均値:  $35 \mu A$  (許可電流の55%程度)

## 使用状況のまとめ

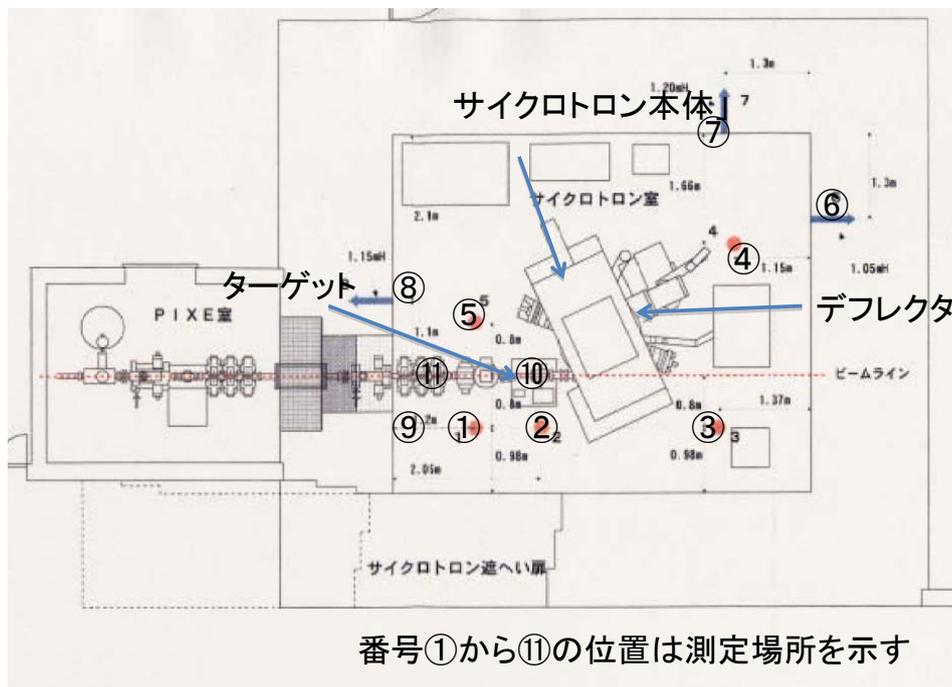
- 製造核種: F-18が主
  - 1日最大製造量の15%、1日50GBqが多い
- ビーム電流:  $30 \sim 40 \mu A$ 
  - 許可電流の55%
- 運転時間: 1日1時間程度(年平均250時間)
  - 許可時間の12%

# 重点検討課題

- 中性子発生量の実測
  - 機種毎の相違
  - 遮蔽条件による相違
- 中性子発生量の計算と放射化計算
  - 図面と実測による運転条件、遮蔽構造の正確な把握
  - 計算と実測値との比較検討
- 運転停止時測定
  - 放射化部位、放射化核種の確認
- 試料採取と分析
  - 照射室内からの試料の採取と測定

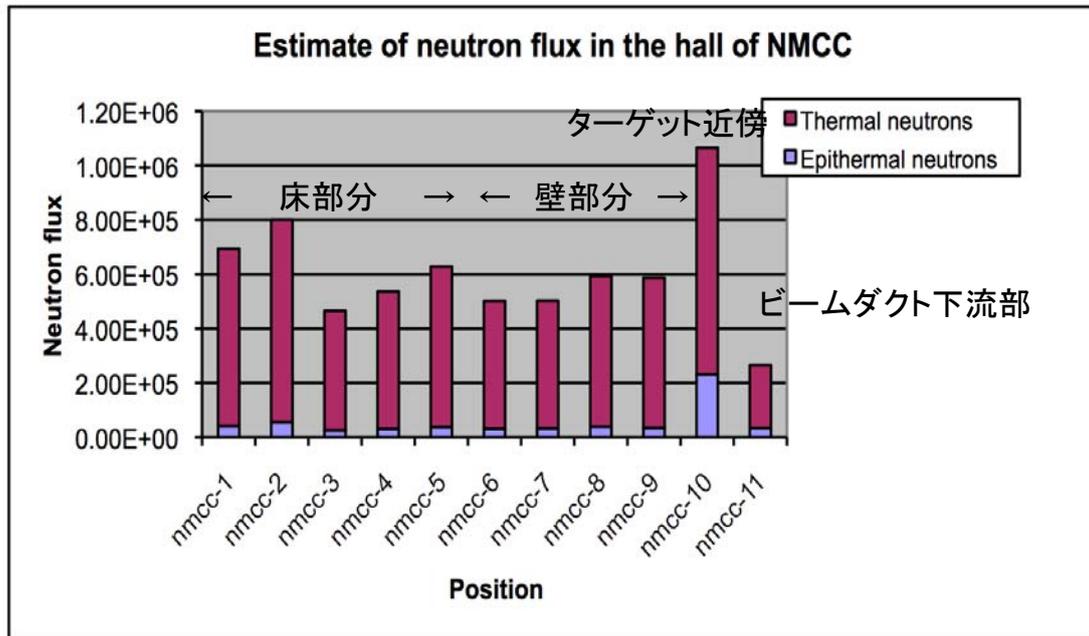
13

## 陽子加速タイプでのサイクロトロン 本体廻りの熱中性子フラックス測定(Ia)



# サイクロトロン本体廻りの 熱中性子フラックス(Ib)

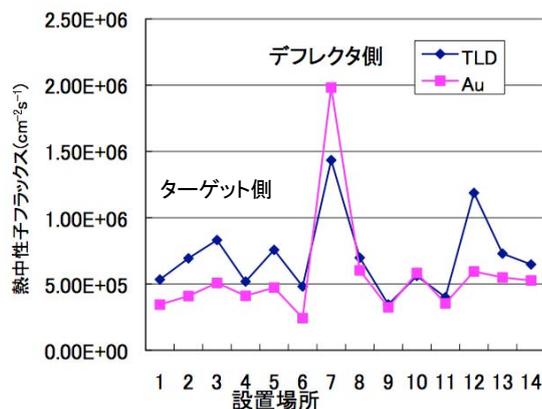
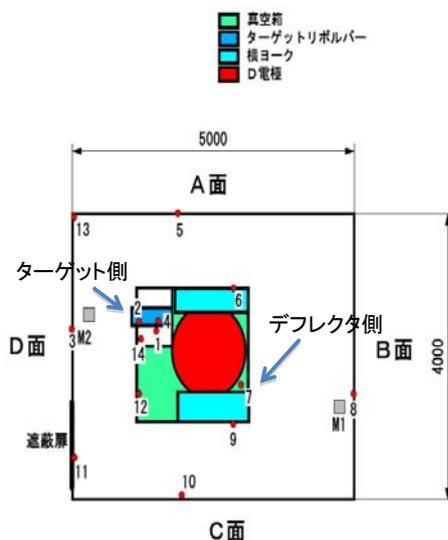
運転条件:P 17MeV,  
20  $\mu$  A  
機種:島津 MCY-1750  
金箔を1週間設置し、運  
転中の平均フラックスを測定



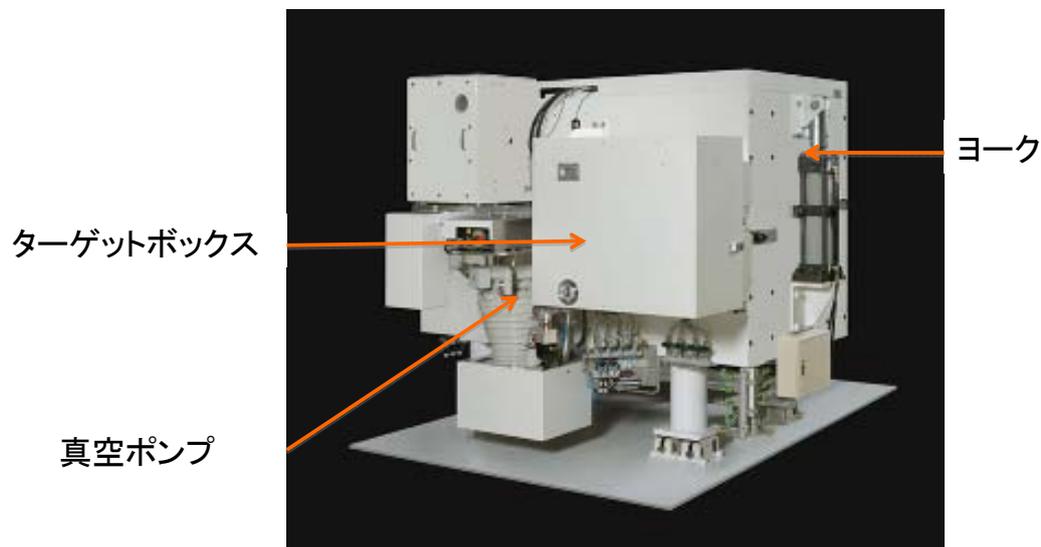
# サイクロトロン本体廻りの 熱中性子フラックス(II)

機種:住重Cypris Model-370  
運転条件:P:18MeV, 20  $\mu$  A  
<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F反応で<sup>18</sup>F製造

熱中性子のフラックスは  
デフレクタ側の方が2倍程度高い



# H-加速タイプでのサイクロトロン 本体廻りの熱中性子フラックス測定



機種:住友重機製HM-18

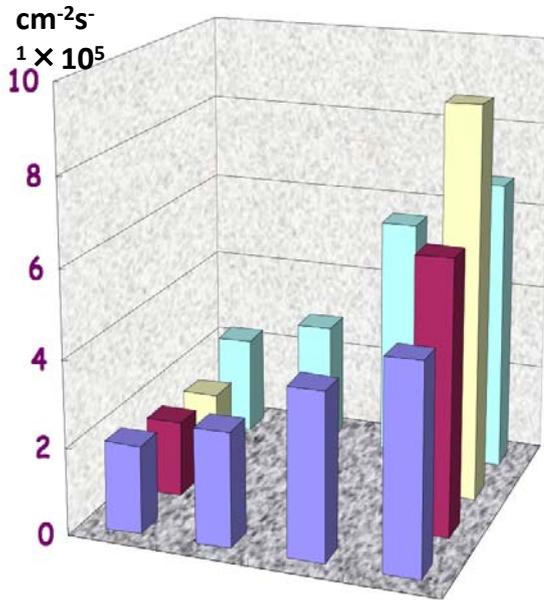
## サイクロトロン運転中の中性子フラックスをビーム軌道面の高さで測定



国立長寿医療センター HM-18

標的:水(O-18)  
製造核種:F-18  
加速粒子:H<sup>-</sup>  
加速エネルギー:  
18MeV  
ビーム電流:21  $\mu$  A  
運転時間:63分

# サイクロトロン廻りの 中性子フラックス

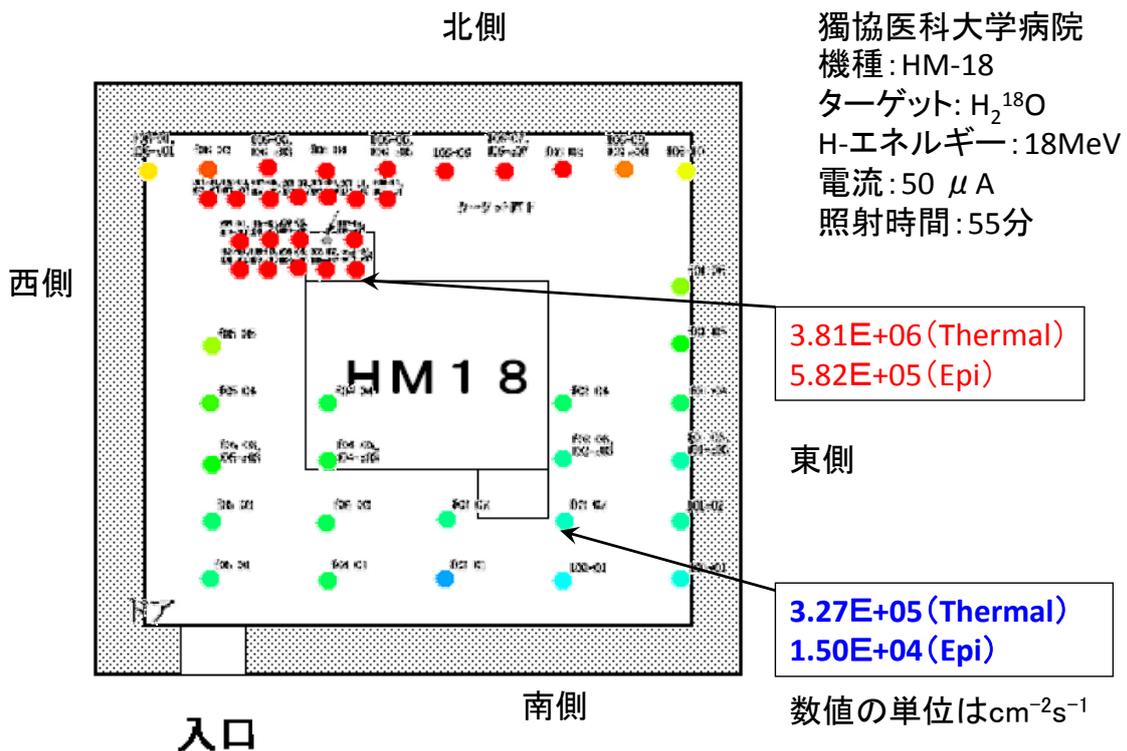


ターゲットボックスの近傍:  $10^6 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$   
 反対側:  $2 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$   
 ターゲットボックス内:  $10^6 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$

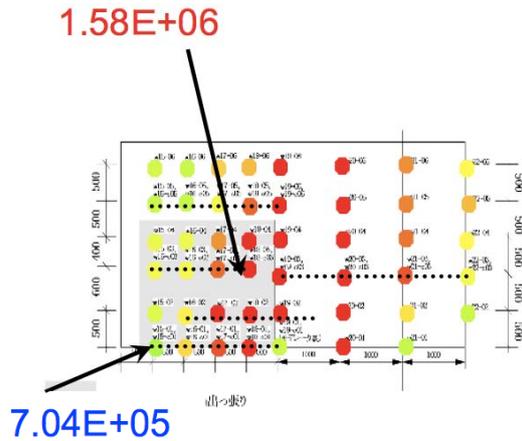
ターゲットボックスの近傍の壁面のコンセントのビスを採取  
 蛍光X線分析で Cu:Zn=65:35

Ge検出器による放射能測定  
 Cu-64:  $4.5 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  (2日間の履歴)  
 Zn-65:  $6.3 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  (2年間の履歴)

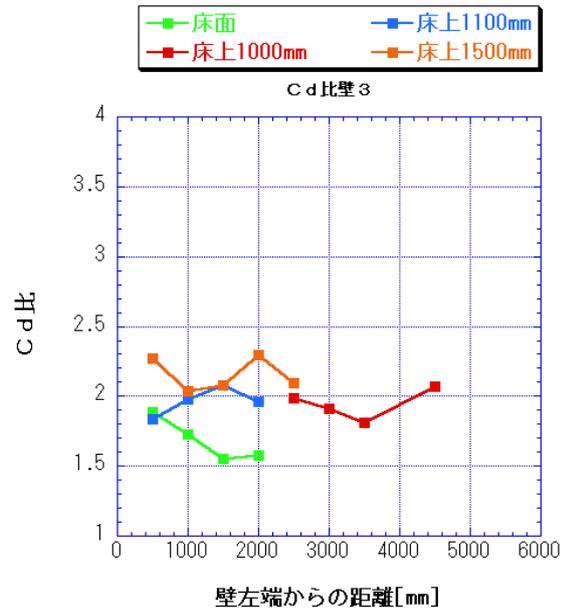
# 床面の中性子フラックス



# 北側壁面での中性子フラックス



数値の単位は $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$

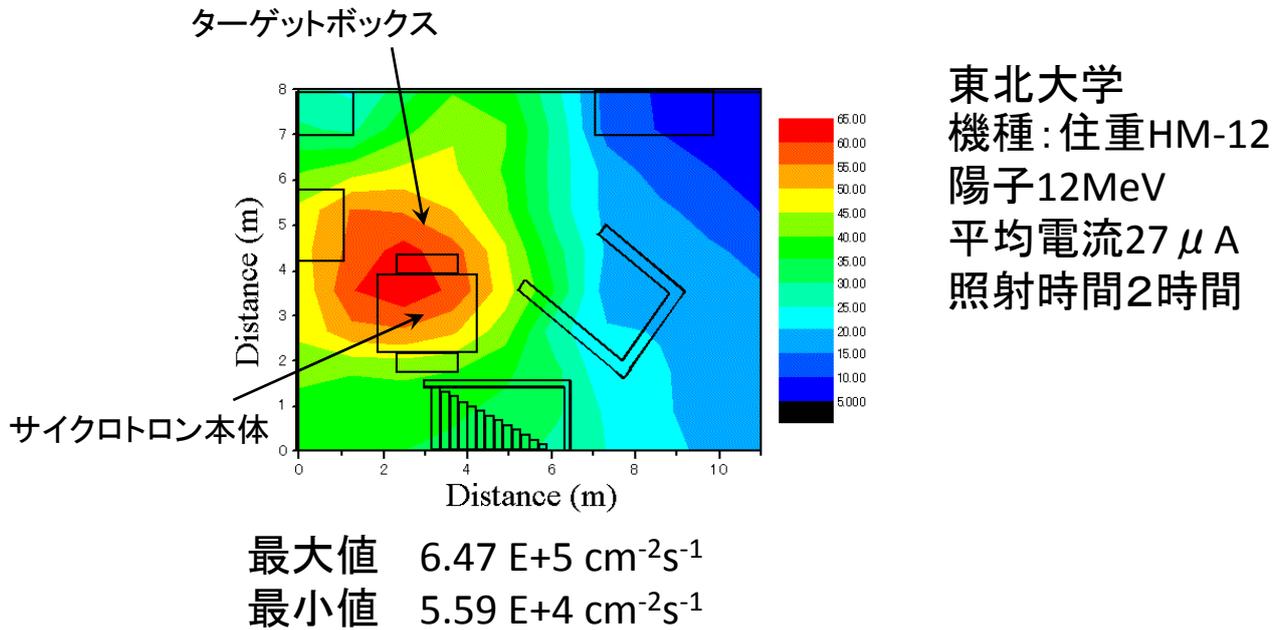


カドミウム比は2程度

# 採取試料から求めた中性子フラックス

試料、材質、検出核種	中性子フラックス, $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
鍵:真鍮Zn-65	3.96E+05
ネジ:SUS:Cr-51	4.37E+05
ネジ:SUS:Fe-59	6.76E+05
ネジ:SUS:Co-60	6.03E+05
座金:SUS:Cr-51	5.95E+05
座金:SUS:Fe-59	6.78E+05
座金:SUS:Co-60	7.32E+05

# H-加速タイプでのサイクロトロン 本体廻りの熱中性子フラックス測定



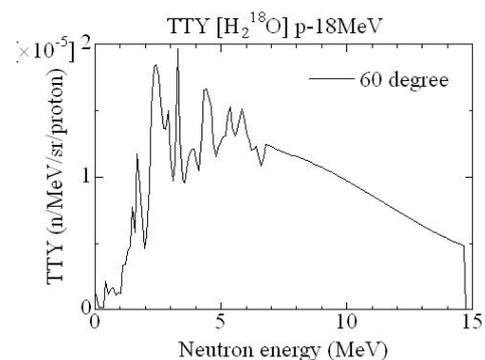
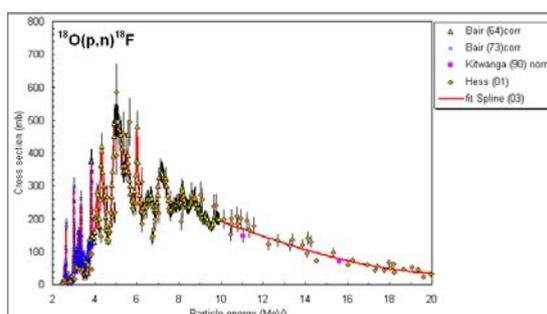
## モンテカルロ計算による評価

- 計算コード&断面積

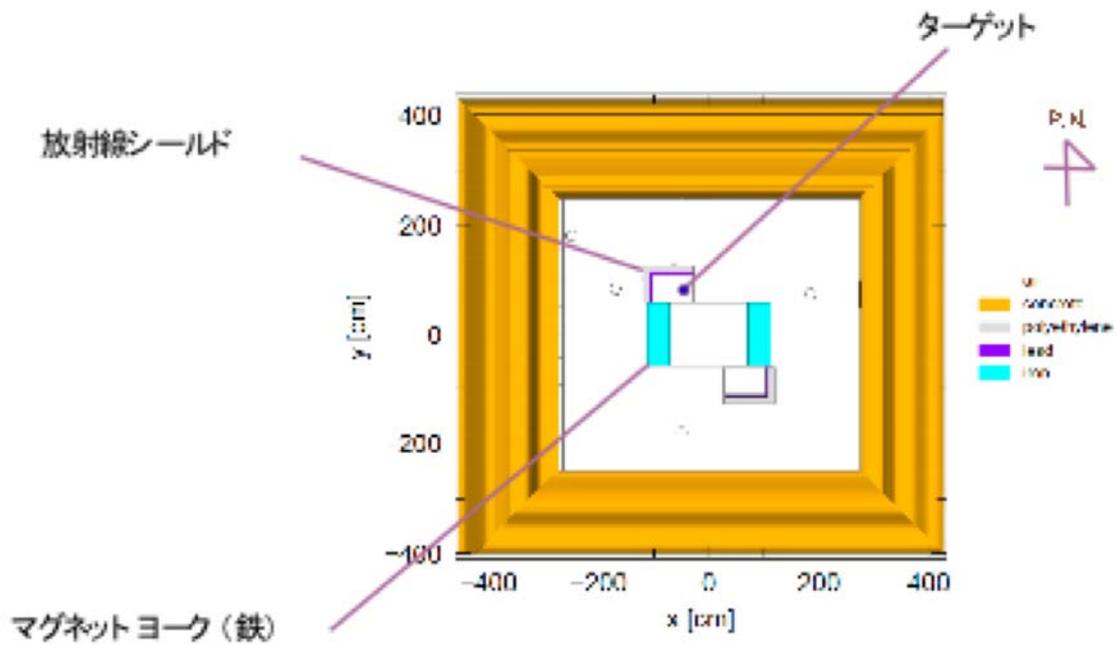
PHITS 2.13 & MCNP5 + JENDL-3.3

- 線源条件

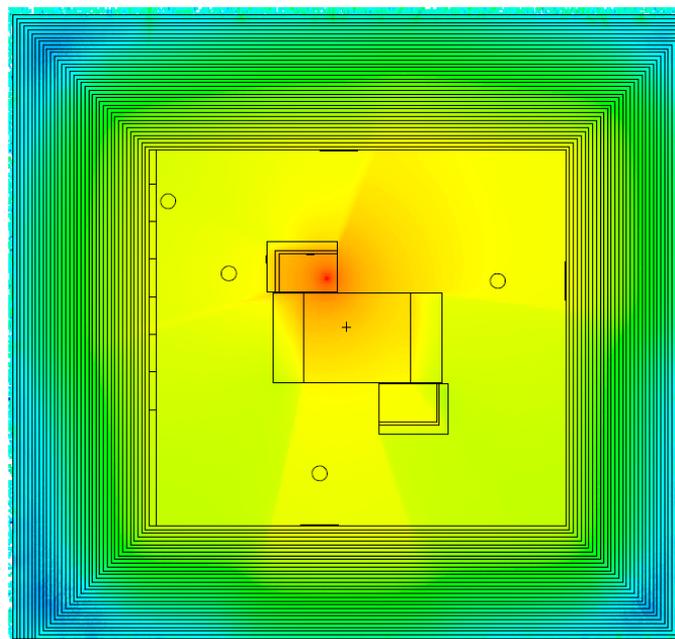
$^{18}\text{O}(\text{p},\text{n})^{18}\text{F}$  反応の断面積 (IAEA medical data) と SRIM-2006 で計算



# サイクロトロン室の遮蔽構造図



# サイクロトロン室内の実効線量分布図



## 熱中性子束測定結果と計算結果の比較

位置	測定結果 ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ )	計算結果 ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ )	計算/測定 (C/M)
放射線シールド内外表面			
シールド内面, 北面	1.0E+07	1.5E+07	1.4
シールド外表面, 北面	3.6E+06	5.0E+06	1.4
サイクロトロン室内(ターゲット高さ)			
ホール設置, ターゲット 西側方向約 1m	1.1E+06	1.9E+06	1.8
ホール設置, サイロ入口側	4.0E+05	9.2E+05	2.3
ホール設置, サイロ右奥側	8.6E+05	1.7E+06	2.0
内壁(ターゲット高さ)			
北壁	2.5E+06	2.4E+06	1.0
西壁	8.0E+05	1.6E+06	2.0
東壁	7.9E+05	1.7E+06	2.2
南壁	3.5E+05	9.9E+05	2.8

## 放射化計算による評価

- 計算コード  
DCHAIN-SP2001
- 計算対象
  - 放射化測定用サンプル(蛍光X線分析値)
  - コンクリート壁(組成NUREG/CR-3474)
- 計算に使用するスペクトル  
→モンテカルロ計算コードによる計算結果  
中性子175群(VITAMIN-J群構造)

# 放射化測定試料の放射能測定結果と計算(MCNP-5)結果

核種	測定結果 (Bq/g)	計算結果 (Bq/g)	計算／測定 (C/M)
<sup>65</sup> Zn	1.2E+01	2.9E+01	2.4

核種	ワッシャ			ビス		
	測定結果 (Bq/g)	計算結果 (Bq/g)	計算／測定 (C/M)	測定結果 (Bq/g)	計算結果 (Bq/g)	計算／測定 (C/M)
<sup>59</sup> Fe	5.1E-01	6.5E-01	1.3	4.4E-01	6.1E-01	1.4
<sup>51</sup> Cr	2.4E+01	4.5E+01	1.9	2.0E+01	4.5E+01	2.2
<sup>60</sup> Co	3.8E+00	7.5E+00	2.0	3.2E+00	7.5E+00	2.4

## 実測と計算

- サイクロトロン室のおおまかな構造に基づいて計算を実施した
- MCNP、PHITSなどでほぼ同じ結果となった
- 中性子の空間分布、フラックスを計算によっても再現できる(ファクター3以内)
- 中性子による放射化も計算によって再現できる(ファクター3以内)

# 自己遮蔽体付サイクロトロン

IBA Cyclone 10/5

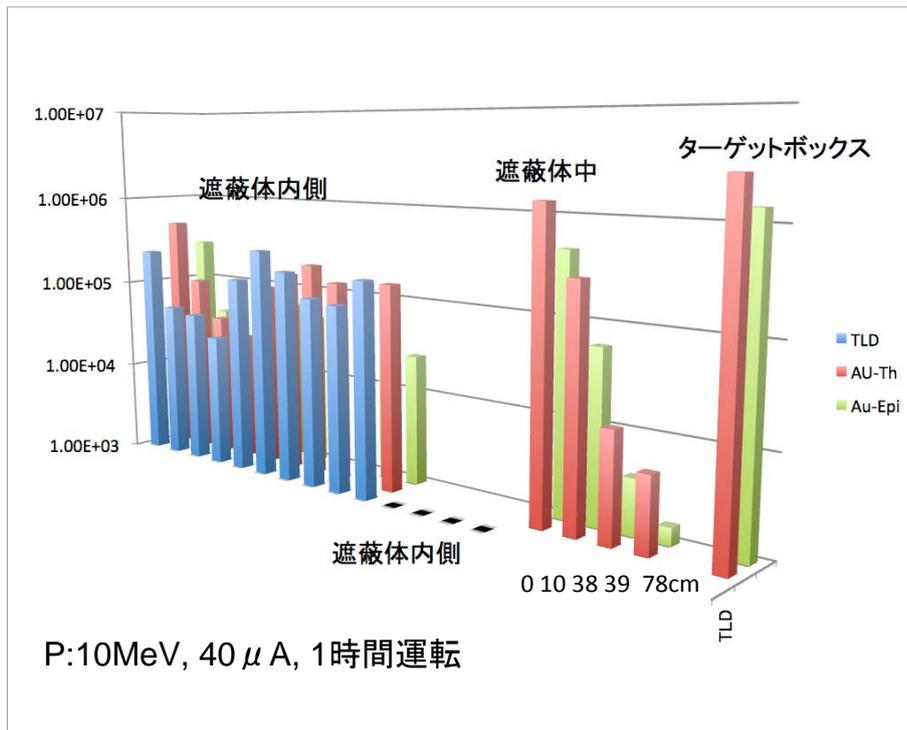


水遮蔽体の外側から

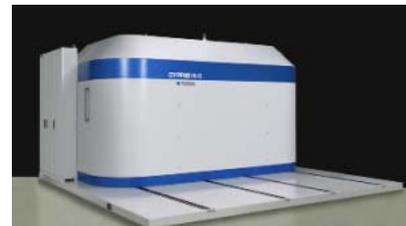
## 自己遮蔽体を開けたところ



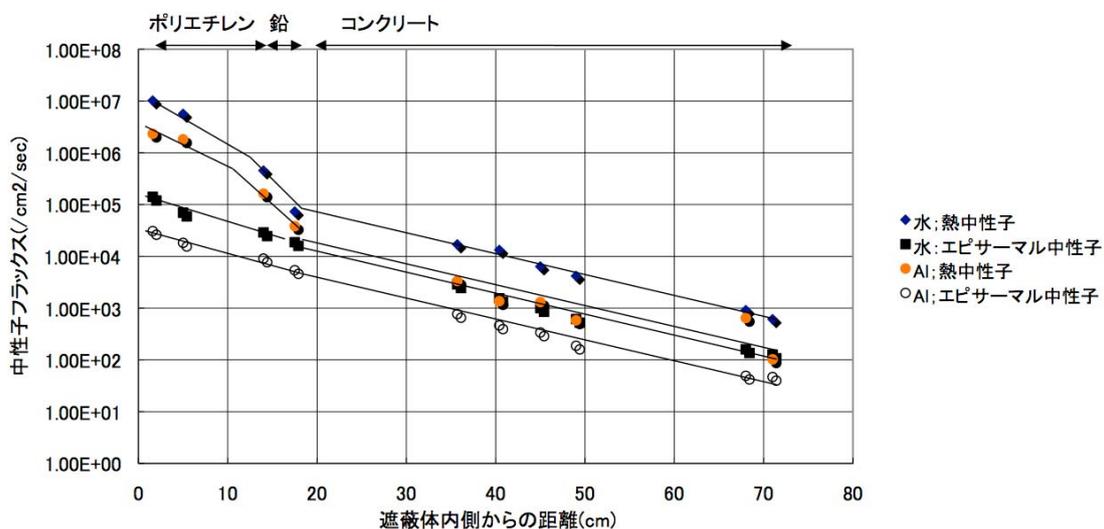
# 遮蔽体内外の中性子フラックス



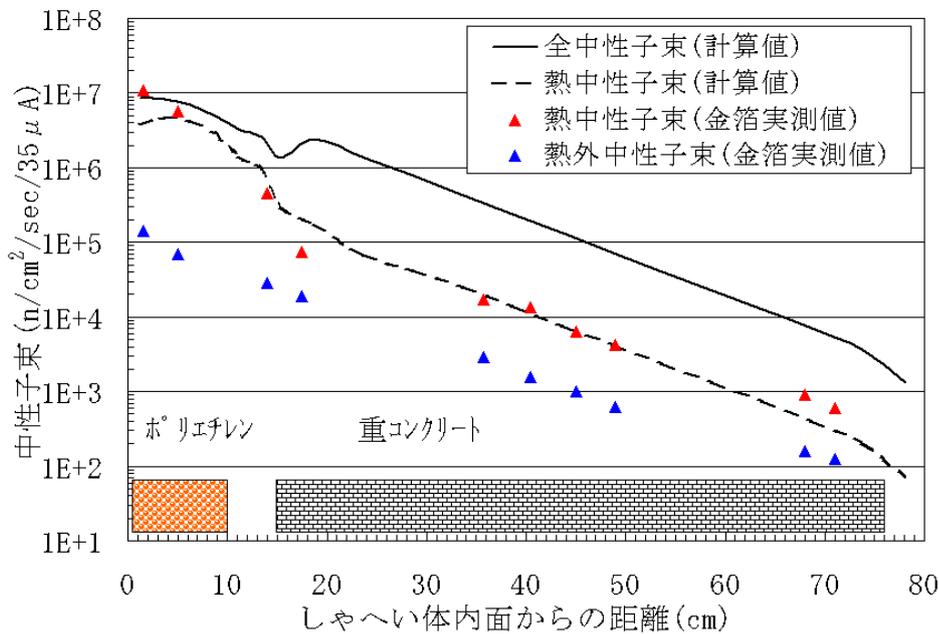
## 自己遮蔽体 (HM-12S)



水及びアルミニウムターゲットでの測定  
アルミニウムターゲットの方が中性子発生量が少ないが減衰傾向は同じであった  
遮蔽体により熱中性子は4桁減衰する



## 自己しゃへい体内部中性子束分布 の計算結果との比較



熱中性子の計算結果  
は実測値と良くあった  
→ 遮蔽体内の減衰  
傾向を良く再現できた

## 自己遮蔽体の中性子測定結果

- ターゲット近傍 :  $10^{6-7} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- 自己遮蔽体内側 :  $10^{5-6} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- 自己遮蔽体外側: 検出できず
- 遮蔽体は中性子の遮蔽効果も十分であり、遮蔽体外の放射化は無視できる

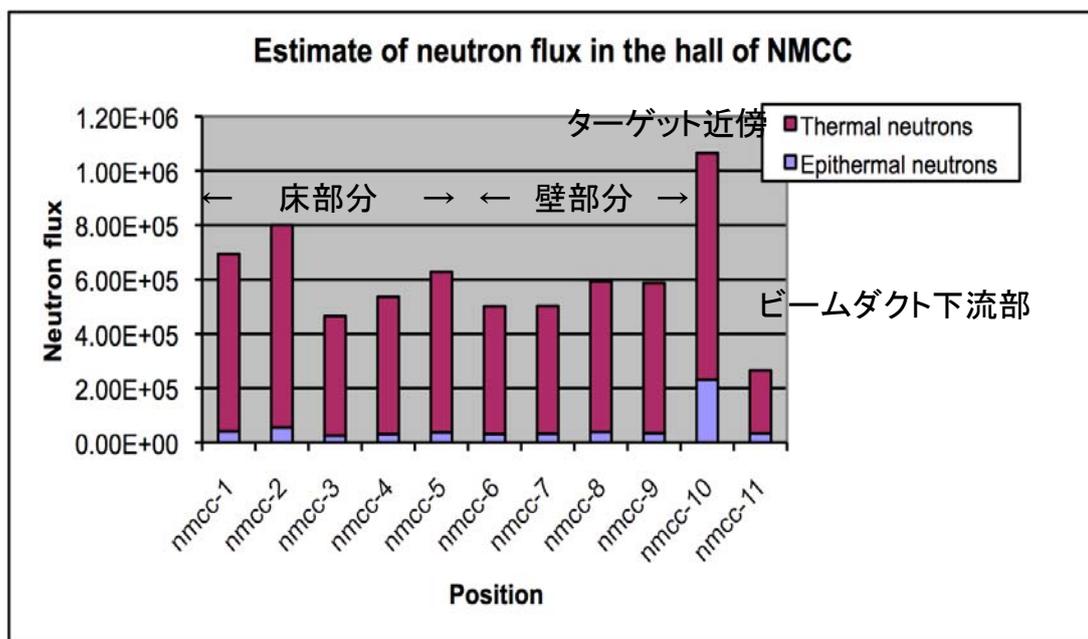
# 自己遮蔽体無しの場合の中性子 測定結果

- ターゲット近傍:  $10^7 \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 
  - 加速のタイプでの差はない
- サイクロトロン室内:  $10^{5-6} \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- 中性子発生数の見積
  - 10GBqのF-18を1時間の照射で製造時
  - > ターゲットで発生する中性子数は $3 \times 10^{10}$ 個となる
  - > ターゲットから10cmで $2.5 \times 10^7 \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
  - > ターゲットから100cmで $2.5 \times 10^5 \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- 見積は実測と合っており、中性子発生数はRI製造量から概算できる

## コンクリートの放射化見積

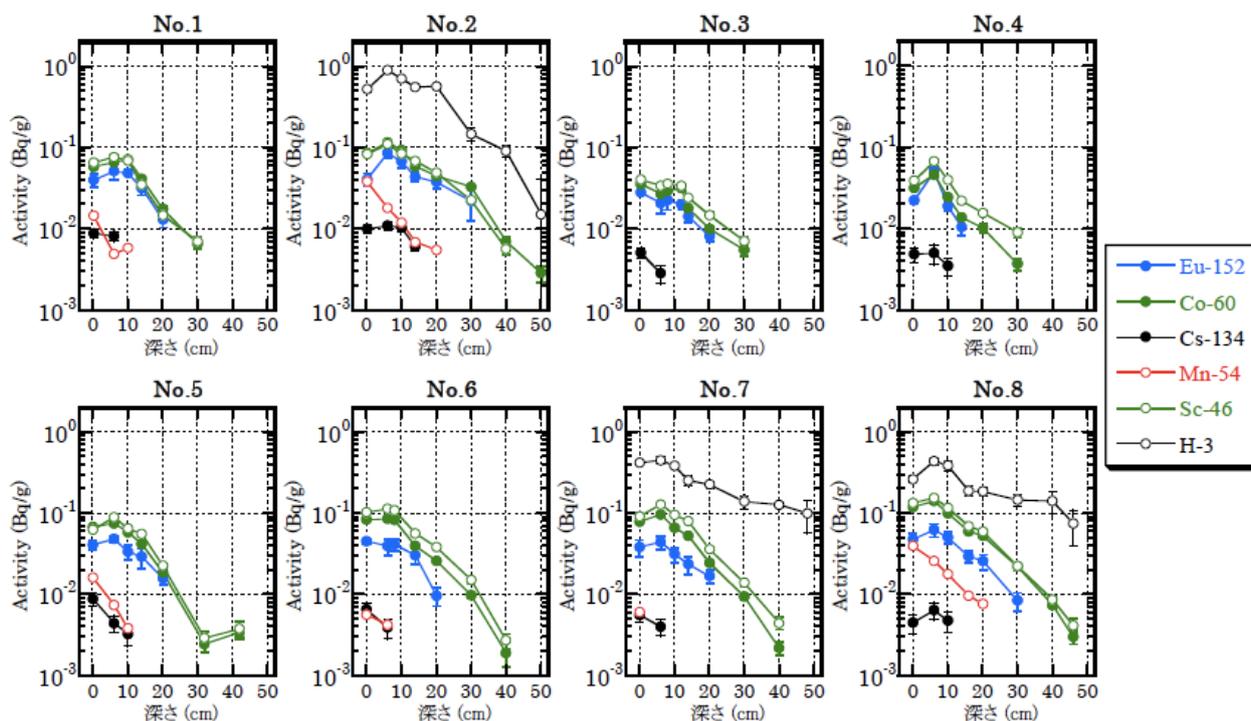
- Co-60がRS-G-1.7の値生成する条件
  - コンクリート中のCo濃度:10ppm
  - 年間運転時間:500hで20年運転
  - > 運転時の中性子フラックス=  $5 \times 10^5 \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
  - 年間運転時間:250hで20年運転
  - > 運転時の中性子フラックス=  $1 \times 10^6 \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- 現在の多くのサイクロトロン施設における運転時の中性子フラックスに相当する
- 以下に実測例を紹介する

# 中性子フラックスとコンクリートの放射化



測定位置1～8番についてコンクリートの実測値を次に比較

## 床および壁コンクリート中の放射能分布



# コンクリートの放射化

- 主要核種：H-3, Co-60, Eu-152, Sc-46, Cs-134
  - 上記核種の相対比はいずれの箇所においても類似している
  - 上記核種はいずれも熱中性子捕獲反応により生成
- 最大放射能は深さ10cm程度にある
- 深さ30cmで約1桁減衰、厚さ1.5mの遮蔽壁の平均ではクリアランスレベルを下回る
- ターゲット近傍では速中性子反応生成核種（Mn-54）が生成し、表面から指数関数的に減衰
  
- 表層付近でCo-60の放射能は0.1Bq/gとなっている → 試算結果とも合っている

## 建屋の除染手順

- 除染区域の推定
  - 壁面、床面は1m<sup>2</sup>区分けし、表面はつりで表層の放射能を測定
  - 自己遮蔽体有りの場合は遮蔽体内の床面のみ
  - ボーリングを代表箇所で行い、深さ分布をとる
- 建屋の除染
  - 区画毎にクリアランスレベルを超える深さを決定し、はつりとる
  - 念のため、サーベイ等により、自然放射線レベルであることを確認する

# 金属材料などの放射化

- 主な生成核種
  - 鉄、ステンレス鋼：Mn-54、Co-60
  - 銅：Co-60、Ni-63
- サイクロトロン本体(10～30ton)
  - 真空容器等：低レベル放射化物
  - 鉄ヨーク：ターゲット側表面付近は低レベル放射化物(大部分はクリアランスレベル相当となる)
  - 真空ポンプ：クリアランスレベル相当、表面汚染なし
- 周辺機器(1～2トン)
  - 電源、配管：クリアランスレベル相当、表面汚染なし

## 今後の課題

- 最近のサイクロトロン施設建屋のボーリング試料採取ができれば、計算と実測の比較が進み、計算の精度向上につながる
- 計算の精度向上には、中性子発生源となるPET核種製造反応の核データの収集が必要
- ターゲットまわりの遮蔽の工夫が望まれる
- 建屋壁内側のブロック化が望まれる
- PET核種製造用サイクロトロンでは、中性子発生量や放射化に大差はない → 事前評価手法をマニュアル化することで、検認を簡便化できる
- 施設毎に中性子による放射化を考慮した測定記録が望まれる。その際、線量ではなく、フラックスで測定する必要がある。