

## At-211 製造のためのビームエネルギー制御におけるサイクロトロン パラメータの影響

### EFFECT OF CYCLOTRON PARAMETERS ON BEAM ENERGY CONTROL FOR At-211 PRODUCTION

宮脇信正<sup>#,A)</sup>, 渡辺茂樹<sup>A)</sup>, 柏木啓次<sup>A)</sup>, 石岡典子<sup>A)</sup>, 倉島俊<sup>A)</sup>, 福田光宏<sup>B)</sup>  
Nobumasa Miyawaki<sup>#,A)</sup>, Shigeki Watanabe<sup>A)</sup>, Hirotsugu Kashiwagi<sup>A)</sup>, Noriko Ishioka<sup>A)</sup>,  
Satoshi Kurashima<sup>A)</sup>, Mitsuhiro Fukuda<sup>B)</sup>

<sup>A)</sup> Takasaki Institute for Advanced Quantum Science, National Institutes for Quantum Science and Technology

<sup>B)</sup> Research Center for Nuclear Physics, Osaka University

#### Abstract

The effects on beam energy for cyclotron parameters such as accelerating voltage, accelerating RF frequency and magnetic fields were investigated for beam energy control in <sup>211</sup>At production. The beam energy control using the magnetic fields generated by the harmonic coils in the cyclotron parameters resulted in the smallest change in beam current and the largest range of beam energy change. The relationship with the beam energy was clarified by analyzing the movement of the beam orbit center associated with the harmonic coil magnetic fields.

#### 1. はじめに

近年、浸潤・転移した難治性進行がんの治療法として期待されているアルファ線核医学治療において、その核種の候補の一つである <sup>211</sup>At(半減期 7.2 時間)は、加速器での製造が比較的容易であり、これを用いた研究が近年増加している。<sup>211</sup>At の製造は、主に <sup>211</sup>Bi( $\alpha$ , 2n) <sup>211</sup>At の核反応を利用する。この核反応では Bi ターゲットに入射する He ビームのエネルギーの増加とともに <sup>211</sup>At の生成率は増加する[1]が、約 29 MeV 以上では、<sup>211</sup>Bi( $\alpha$ , 3n) <sup>210</sup>At の核反応が生じ、<sup>211</sup>At の同位体の <sup>210</sup>At(半減期 8.1 時間)が生成する。<sup>210</sup>At は <sup>211</sup>At に対して化学的な分離が不可能であり、壊変によって高い毒性の <sup>210</sup>Po(半減期 138 日)が生じる。これは <sup>211</sup>At の半減期より長いため、臨床用に製造する薬剤では不純物として残り[2]、問題である。従って、<sup>211</sup>At を多量に製造するためには、入射ビームの強度の増強だけでなく、<sup>210</sup>At が生成しない上限近くのエネルギーに制御することが必要である。

量子科学技術研究開発機構(QST)高崎量子応用研究所のイオン照射研究施設(TIARA)では、AVF サイクロトロン(K=110)[3]によって加速した He ビームを用いた <sup>211</sup>At の製造を行っており、製造した <sup>211</sup>At は各種研究に提供している。TIARA における <sup>211</sup>At の製造では、<sup>211</sup>At の高率生成と <sup>210</sup>At の生成防止の両立を目指して、サイクロトロンによるビームエネルギーの高精度制御技術の開発を行っている。これまでに、サイクロトロンからビームエネルギーを高精度にリアルタイム測定をするため、<sup>211</sup>At の製造を行う RI 製造装置がある直線ビームラインに、ビームエネルギー・位置モニター(BEPM)システム[4, 5]を導入した。<sup>211</sup>At の製造実験毎に He ビームのエネルギーを BEPM で測定した結果、最大約 1%の変動があることが分かった[6]。この結果からサイクロトロンの加速電圧や磁場を用いて、約 1%の範囲で任意に制御

する技術を開発し、<sup>211</sup>At の生成率を向上させることに成功した[7]。しかし、ビームエネルギー変化に伴ってサイクロトロンからの出射ビーム軌道が変化することが確認され、ビーム強度も低下し、軌道調整も必要であった。このエネルギー制御時の軌道補正を簡便に行うためには、軌道調整パラメータとビーム軌道変化の相関を明らかにすることが必要である。そこで、サイクロトロンのパラメータの変更で生じるビーム軌道の変化に伴うビーム強度を測定し、これと取出されたビームエネルギーの関係について調べた。さらに、ビーム強度の低下が最も小さいパラメータであるハーモニックコイルの励磁電流によるビーム軌道中心及び 1st ハーモニック磁場強度とビームエネルギーの関係について調べた。

#### 2. ビームエネルギー制御に伴うビーム強度 の変化

TIARA AVF サイクロトロンを用いた <sup>211</sup>At の製造では、RI 製造装置において融点(271.5 °C)が低い Bi 板を冷却するためのターゲットホルダーを使用する。Al 製のターゲットホルダーは水冷され、Bi 板の照射面と反対側から固定して間接的に冷却する。また、照射面側の冷却に He ガスを使用するため、冷却用 He ガスの領域と真空のビームラインの間に、Ti 箔を設置して隔っている[8]。従って、Bi 板のターゲットまでに Ti 箔や冷却用 He ガス、固定用 Al 箔が設置されているため、He ビームエネルギーは、50 MeV まで加速して照射に用いている。

これまでに 50 MeV の He ビームのエネルギーを制御するパラメータとして、Dee 電圧(Vdee)や磁場を用いて、エネルギー測定を実施した。この中で、入射側の 2 つあるハーモニックコイルの一つの励磁電流(CHI)が、ビームエネルギーを最も大きく変更することができ、ビームエネルギー変化に伴うサイクロトロンからの出射ビーム軌道の変化も小さかった[7]。生成量はビーム強度に依存するため、ビーム強度を低下させずに Bi ターゲットに照射することが求められる。そこで、各パラメータによるビームエ

<sup>#</sup> miyawaki.nobumasa@qst.go.jp

エネルギーの変化に対するビーム強度の変化を Fig. 1 にまとめた。縦軸に最大ビーム電流に対する比、横軸に BEPM によって測定されたエネルギーを示す。

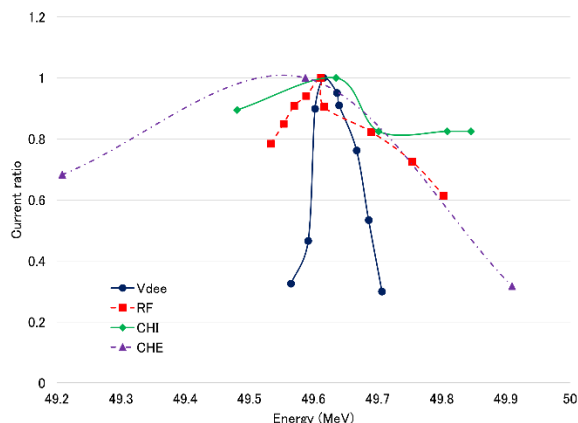


Figure 1: Relationship between beam energy and beam current ratio measured for each cyclotron parameter.

今回は、新たに加速 RF 周波数(RF)と取出し側のハーモニックコイルの励磁電流(CHE)をパラメータに加えた。取 CHE は、ビームエネルギーを入射側のハーモニックコイルよりも広い範囲で変更でき、まだ測定点が 3 点しかないが、ビーム強度の変化も小さい。一方で、CHI もビーム強度の変化も小さい。また RF は Dee 電圧よりもビームエネルギーの変更範囲が広く、ビーム強度の低下も小さかった。しかし、ハーモニックコイルに比べて、ビームエネルギーの変更範囲が狭く、ビーム強度の低下も大きいことから、ビームエネルギー制御としてはハーモニックコイルが最も良いことがわかった。

### 3. ハーモニックコイル磁場とビームエネルギー

#### 3.1 ハーモニックコイル磁場によるビーム軌道中心の変化

高精度なビームエネルギー制御を可能とするハーモニックコイルで生成される磁場によるビームへの影響について理解するため、TIARA AVF サイクロトロン内のハーモニックコイルによるビーム軌道中心の変化を調べた。TIARA AVF サイクロトロン内のハーモニックコイルは、Fig. 2 に示すように、中心領域と取出し領域のスパイラル形状のセクターのバレー部に、上下 2 対それぞれ 4 つずつ設置されている。入射側のハーモニックコイル (CHI1 ~ 4) はサイクロトロンに入射後のビーム軌道のセンタリングに使用され、取出し側のハーモニックコイル (CHE1 ~ 4) はビーム取り出しのためのターンセパレーション等の軌道補正に用いられる。サイクロトロン中心を対称とした 2 組のハーモニックコイル、例えば CHI1 と CHI3 (CHI13) を互いに逆極性で励磁することで、ビーム軌道中心を CHI13 に対して垂直に移動することができる。さらに 90 度異なる 2 対のハーモニックコイルである CHI24 も同様に励磁することで、任意の方向にビーム軌道中心を移動できる。しかし、スパイラル形状のセクターによって入射側と取出し側のハーモニックコイルの位置が異なるた

め、2 組のハーモニックコイルの励磁電流の組み合わせで生じるビーム軌道中心の移動方向は、入射側と取出し側で異なる。また、ビーム軌道中心の移動量は励磁する磁場強度により制御できるが、入射側と取出し側のハーモニックコイルの巻き数が異なり、さらに主磁場の影響も受けるため、同じ励磁電流でも磁場強度が異なる。そこで、入射側と取出し側のハーモニックコイルの励磁電流によるビーム軌道中心の移動方向と磁場強度を調べた。

ビーム軌道中心の移動方向を示すため、デュー電極の中心であるサイクロトロン中心を通るヨーク短軸から 15 度傾いた軸を Y 軸とした座標を設定した。励磁電流の極性とコイルの位置によってビーム軌道中心の移動方向が異なる。入射側の 4 つのハーモニックコイルは、X と Y の座標軸からそれぞれ 8 度回転した位置にある。CHI13 に正の励磁電流 (CHI1 に正、CHI3 に負) を流した場合、ビーム軌道中心は Y 軸から 8 度異なる正の方向に移動する。一方、CHI24 に正の励磁電流 (CHI2 に正、CHI4 に負) を流した場合、X 軸から 8 度異なる負の方向に移動する。同様に取出し側のハーモニックコイルの位置は、設定した座標からそれぞれ 140 度回転しており、ビーム軌道中心は、CHE13 への正の励磁電流に対して Y 軸から 140 度異なる正の方向に、CHE24 への正の励磁電流に対して X 軸から 140 度異なる負の方向に移動する。従って、ハーモニックコイルの励磁電流によるビーム軌道中心の移動方向が入射側と取出し側で全く異なるため、励磁電流の組み合わせからビーム軌道中心の移動方向の方位角を座標として示す必要がある。

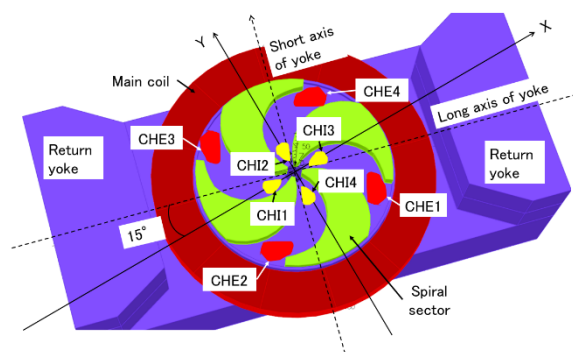


Figure 2: Schematic view of the TIARA AVF cyclotron.

#### 3.2 ビーム軌道中心の変化とビームエネルギー

ハーモニックコイルの励磁電流によるビーム軌道中心の変化とビームエネルギーの関係を調べるため、ハーモニックコイルの励磁電流値から、ビーム軌道中心の変化を求めた。ハーモニックコイルによる 1st ハーモニック磁場強度は、メインコイルへの励磁電流が 585 A と 850 A の時に 50 A をコイルに通電した時の磁場測定結果から、50 MeV He のメインコイル励磁電流 428.64 A に対して求めた。その結果、入射側は  $1.7 \times 10^{-3}$  T、取出し側は  $3.5 \times 10^{-3}$  T の 1st ハーモニック磁場強度であり、入射側と取出し側で約 2 倍の差があった。これらを基に測定されたビームエネルギー毎に入射側と取出し側のハーモニックコイルの励磁電流によるビーム軌道中心の移動方向と 1st ハーモニック磁場強度を、極座標に前者を方位角、後者を半径として、それぞれ Fig. 3 と Fig. 4 に示す。

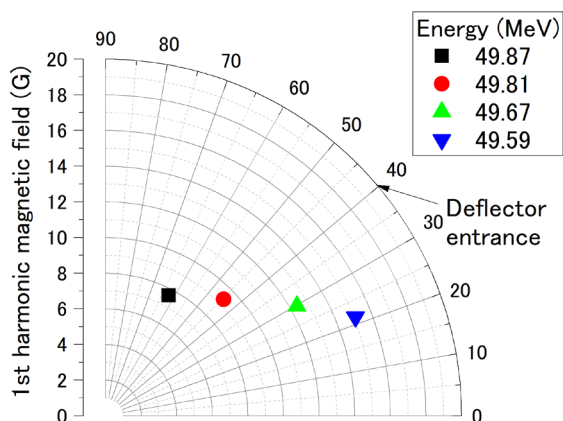


Figure 3: Relationship between the azimuth angle and the first harmonic magnetic field by the harmonic coil near the injection area for each measured beam energy.

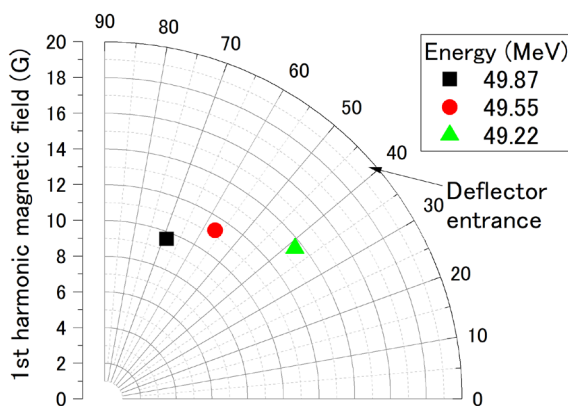


Figure 4: Relationship between the azimuth angle and the first harmonic magnetic field by the harmonic coil near the extraction area for each measured beam energy.

ビームエネルギーの増加に伴って、両方のハーモニックコイルとも磁場強度が弱くなりながら角度が増加する傾向が得られた。この傾向は、サイクロトロンからビームを取り出すデフレクター電極の入り口角度の 41.5 度からビーム軌道中心が遠ざかる方向であった。これは、ビーム軌道もデフレクター電極から遠ざかり、取出しまでの Dee 電極で加速される回数が増え、取り出されるビームエネルギーが増加したと考えられる。また、取出し側のハーモニックコイルの磁場強度が入射側よりも高く、少しの角度の変化でビームエネルギーが大きく変化することが分かった。これまで CHI と CHE によってビーム軌道中心が変化する方位角方向を考慮していなかったため、コイルへの励磁電流の比較だけでは全く相関が見出せなかった。今回、CHI と CHE によってビーム軌道中心が変化する方位角の座標を統一してビームエネルギーを通して比較すると、両者ともビーム軌道中心デフレクター電極の方向に対して同じ傾向を有することが明らかになった。

#### 4. まとめ

ビームエネルギーに敏感な  $^{211}\text{At}$  の製造での生成率の増加のために、サイクロトロンの加速電圧や磁場等のパラメータによってビーム軌道の変化に伴うビーム強度を測定し、取出されたビームエネルギーの関係について調べた。サイクロトロンのパラメータによるビーム軌道の変化に伴うビーム電流の変化は、Vdee や RF を用いた場合に比べて、ハーモニックコイル磁場を用いた場合が最も緩やかで、CHE が CHI に比べてビームエネルギーが 1% を超える広い範囲まで変更できた。ハーモニックコイルによるビームエネルギーの変化を理解するために、CHI と CHE によるビーム軌道中心の移動方向と磁場強度をそれぞれ算出して比較を可能にした。これにより、両方のハーモニックコイルともビーム軌道中心をデフレクター入り口から遠ざける方向に設定することでビームエネルギーが増加することがわかった。この結果から、デフレクター電極からビーム軌道を遠ざけることで取出しまでのビームの加速回数を増やすことがビームエネルギーの増加に関係していると考えられる。この関係を用いることで、ビーム電流の低下を抑えながら高精度にビームエネルギーの制御が可能になるが、一方で、ビーム電流の増加のために安易にハーモニックコイルを調整することでビームのエネルギーが簡単に変化することも示している。従って、 $^{211}\text{At}$  製造では、 $^{211}\text{At}$  の生成率の最大化と  $^{210}\text{At}$  の混入防止のために、ビームエネルギーはリアルタイムで測定して、高精度なビームエネルギーの制御をハーモニックコイルの励磁電流の調整で行うことが最適であることがわかった。

#### 謝辞

本研究は、JSPS 科研費 JP20K08014 の助成を受けて実施しました。

#### 参考文献

- [1] K. Gagnon *et al.*, J. Label Compd. Radiopharm 2012, 55 436–440.
- [2] A. Alfano *et al.*, Journal of Physics: Conference Series 41 (2006) 115–122.
- [3] S. Kurashima *et al.*, Quantum Beam Sci. 1, 2 (2017).
- [4] T. Watanabe *et al.*, “理研 RIBF におけるビームエネルギー・位置モニターの開発”, Proceedings of the 14th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Sapporo, Japan, Aug. 1-3, 2017, pp. 1114-1117.
- [5] T. Watanabe *et al.*, “理研超伝導リニアック用ビームエネルギー・位置モニターのコミッションング”, Proceedings of the 17th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Online, Japan, Sep. 2-4, 2020, pp. 718-723.
- [6] N. Miyawaki *et al.*, “TIARA AVF サイクロトロンにおける RI 製造用ビームラインのビームエネルギー・位置モニターの開発”, Proceedings of the 18th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, QST-Takasaki Online, August 9 - 12, 2021, pp. 302-305.
- [7] N. Miyawaki *et al.*, “TIARA AVF サイクロトロンの高精度ビームエネルギー制御の検討”, Proceedings of the 19th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, October 18 - 21, 2022, Online (Kyushu University), pp. 889-892.
- [8] S. Watanabe *et al.*, QST Takasaki Annual Report 2019, pp. 105.