

令和元年6月24日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05025

研究課題名(和文)新規医療診断法用テクネチウム同位体Tc-95m, Tc-96の生成研究

研究課題名(英文) Production of technetium isotopes, Tc-95m and Tc-96 for a new medical diagnostic method

研究代表者

初川 雄一 (HATSUKAWA, Yuichi)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所 東海量子ビーム応用研究センター・専門業務員(任常)

研究者番号：40343917

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：タンデム加速器による三酸化モリブデンターゲットへの陽子ビーム照射によりTc-95m及びTc-96の生成を行い、合わせて核反応励起関数を得ることにより最適な照射条件を得た。照射モリブデンターゲットからテクネチウム同位体の分離精製法として湿式法を開発し成功裏に高純度テクネチウム同位体を得るスキームの作成に成功した。本研究で濃縮モリブデン照射試料の回収法を開発を行った。Tc-95mのETCC撮像実験において位置分解能に対するガンマ線エネルギー依存性を見出した。Tc-95のETCC撮像実験において水phantom中の線源のETCCとX線CT像との組み合わせ3次元画像を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により現在日本国内で年間90万件の核医学診断に用いられているTc-99m/SPECT診断法の代替としてのTc-95m或はTc-96をトレーサーとし電子追跡コンプトンカメラ(ETCC)による撮像をもちいる新しい核医学診断法の実現性を示すことが出来た。一時供給に不安があったTc-99mであるが現在その供給は安定を取り戻している。しかし今後中国、インドをはじめとする途上国での需要の増大が予想されるが現在の供給体制には限界がある。その際に相補的な役割を本研究のTc/ETCC診断法が果たすことが出来ると期待される。また長寿命を利用することによる新たな診断薬の開発にも期待が持てる。

研究成果の概要(英文)：Production of Tc-95m and Tc-96 by proton irradiation on the molybdenum trioxide target at the Tandem accelerator facility. Optimal irradiation conditions were obtained. We developed a wet chemistry procedure for technetium ions separation from irradiated molybdenum target. #1. We also developed a recovery method for enriched molybdenum target material. #2. We found gamma-energy dependence on the position resolution in the Tc-95m ETCC imaging experiments. #3 In the Tc-95 ETCC imaging experiments, a combined ETCC image of Tc-95 source in water phantom and X-ray CT image.

研究分野：核・放射化学, 量子ビーム科学

キーワード：コンプトンカメラ ETCC Tc-95m Tc-95 Tc-96 量子ビーム医療応用

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

現在最も多用されている医療用 RI、Tc-99m の供給不安に対する対応として、これに代わる新たな核医学診断法を提案した。Tc-99m は核医学診断薬として優れた核特性を有するが、近年供給不安が顕在化し、代替製造の研究が行われている。本研究では Tc-99m に代わる核種として Tc-95m、Tc-96 を利用することにより既に医学診断に利用されている 30 種類以上の標識化合物をそのまま利用できる。ただし Tc-95m、Tc-96 は 700keV 程度の高いエネルギーのガンマ線を放出するので現在利用されている SPECT (単一光子放射断層撮影) 法では効率よい検出ができない。そこで検出装置としてコンプトン散乱を観測することでガンマ線の飛来角度を求め、これよりシングルガンマ線の測定においても撮像が可能になるコンプトンカメラの利用を発想した。

2. 研究の目的

Tc-99m/SPECT (単一光子放射断層撮影) に代わる核医学診断法としてテクネチウムの同位体 (Tc-95, Tc-96) をトレーサーとした核医学診断法の開発を目指す。これらの同位体は高いエネルギーのガンマ線を放出するので SPECT での検出は困難になるので、コンプトンカメラ、特に今回は電子追跡型コンプトンカメラ (ETCC) を検出器として用いた。

3. 研究の方法

原子力機構・東海研究所に設置されているタンデム加速器により供給される陽子ビームを酸化モリブデンターゲットに照射してテクネチウム同位体の生成を行った。最適な照射条件を見出し、適正な照射エネルギーで陽子ビームの照射を行い約 20 MBq の Tc-95m を生成した。三酸化モリブデンターゲット中に生成した Tc-95m を分離、精製し、得られた Tc-95m 溶液を直径 10 mm、長さ 50 mm のプラスチック容器に封入し、これを撮像線源として撮像実験を行った。コンプトンカメラ撮像は電子飛跡検出型コンプトンカメラ (ETCC; Electron Tracking Compton Camera) を用いて行った。ETCC ではコンプトン散乱電子の位置とエネルギー及び散乱ガンマ線の位置とエネルギーが観測され、これらに基づいてイベント毎に解析を行うことにより本来のガンマ線の位置情報を得ることができる。本研究に用いた Tc-95m は 204, 582, 835 keV のガンマ線を放出するが、ETCC によりそれぞれのエネルギーで弁別しエネルギーごとの画像を得た。同様に $^{95}\text{Mo}(p, n)^{95}\text{Tc}$ 反応により半減期 20 時間の Tc-95 を生成し、これを体内での使用を疑似した水ファントム中において ETCC による撮像を行った。直径 10 mm × 2 mm の錠剤状の線源を水ファントム中において撮像を行った。水ファントムは別途 X 線 CT 撮像を ETCC による Tc-95 線源の画像と X 線 CT による水ファントム画像を組み合わせた画像を得た。

照射用ターゲットとして非常に高価な濃縮同位体試料を使用するため、ターゲット試料の再利用が必要である。テクネチウム同位体を分離精製する際に酸化モリブデン照射試料はアンモニアによる溶解液へ希塩酸添加によりモリブデン酸の沈殿析出を行い、溶液中に留まるテクネチウムイオンを分離する。この際に生成するモリブデン酸沈殿を過酸化水素水で溶解したのちに蒸発乾固後に 600 °C で 30 分間加熱することにより三酸化モリブデンの回収を試みた。得られた物質は粉末 X 線結晶構造解析法により構造解析を行い生成物の同定を行い三酸化モリブデンの回収の確認を行った。

4. 研究成果

Tc-95m は 204, 582, 835 keV のガンマ線を放出するが、ETCC によりそれぞれのエネルギーで弁別した 2 次元スペクトルを得た。この結果得られた画像の位置分解能にエネルギー依存性があることを明らかにした。204keV に対して 582, 835keV の画像の位置分解が向上していることが分かった。Tc-95 線源を水ファントム中において ETCC による撮像と X 線 CT との組み合わせにより 3 次元画像を得ることが出来た。これにより人体内での撮像を模擬したが、核医学的診断に利用可能であることを示すことが出来た。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 3 件)

Takehito HAYAKAWA, Yuichi HATSUKAWA, Toru TANIMORI,
“ ^{95}Tc and ^{96}Tc as alternatives to medical radioisotope $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ”
Heliyon, 4, e00497 (2018) 査読あり

Hatsukawa Y, Hayakawa T, Tsukada K, Hashimoto K, Sato T, Asai M, Toyoshima A, Tanimori T, Sonoda S, Kabuki S, Kimura H, Takada A,

“Electron-tracking Compton camera imaging of technetium-95m”
PlosOne 13, e0208909 (2018) 査読あり

Y. Hatsukawa, K. Tsukada, K. Hashimoto, T. Sato, et al.,
“TECHNETIUM ISOTOPES FOR ELECTRON TRACKING COMPTON CAMERA
IMAGING”
Czech Chem. Soc. Symp., 16, 241 (2018) 査読あり

〔学会発表〕(計 6件)

初川雄一、橋本和幸、株木重人、櫛田淳子、塚田和明、浅井雅人、豊嶋厚史、西嶋恭
司、國枝悦夫、
“テクネチウム同位体を用いたコンプトンカメラ撮像実験”
第62回放射化学会・2018年日本放射化学会(京都)2018年9月

Y. Hatsukawa, K. Hashimoto, K. Tsukada, M. Asai, A. Toyoshima, S. Kabuki, J.
Kushida, A. Takagi, K. Nakamura
“Electron Tracking Compton Camera imaging of Technetium-95”
18th Radiochemical Conference (Czech) 2018年5月

Y. Hatsukawa, K. Tsukada, K. Hashimoto, T. Sato, M. Asai, A. Toyoshima, Y. Nagai,
T. Tanimori, S. Sonoda, S. Kabuki, H. Kimura, A. Takada, T. Mizumoto, T.
Hayakawa,
“PRODUCTION OF TECHNETIUM ISOTOPES FOR COMPTON CAMERA
IMAGING”
The 62nd Annual Radiobioassay & Radiochemical Measurements Conference, (Hawaii,
USA) 2017年12月

初川雄一、塚田和明、橋本和幸、佐藤哲也、浅井雅人、豊嶋厚史、永井泰樹、谷森達、
園田信也、株木重人、木村寛之、高田淳史、水本哲也、早川岳人、高木聖也
“コンプトンカメラ(ETCC)撮像用テクネチウム同位体製造研究”
2017日本放射化学会年会・第61回放射化学討論会、(つくば)2017年9月

Yuichi Hatsukawa, Kazuaki Tsukada, Kazuyuki Hashimoto, Tetsuya Sato, Masato
Asai, Atsushi Toyoshima, Yasuki Nagai, Toru Tanimori, Shinya Sonoda, Shigeto
Kabuki, Hiroyuki Kimura, Atsushi Takada, Tetsuya Mizumoto, Taketo Hayakawa
“PRODUCTION OF TECHNETIUM ISOTOPES FOR ELECTRON TRACKING
COMPTON CAMERA (ETCC) IMAGING”
International Nuclear Chemistry Congress 2017 (Gothenburg, Sweden) 2017年8月

初川雄一、塚田和明、橋本和幸、佐藤哲也、浅井雅人、豊嶋厚史、永井泰樹、谷森達、
園田信也、株木重人、木村寛之、高田淳史、水本哲也、早川岳人
“コンプトンカメライメージング用 Tc-95m 及び Tc-96 の生成研究”
日本放射化学会年会 (新潟大学) 2016年9月

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 塚田和明

ローマ字氏名: TSUKADA, Kazuaki

所属研究機関名: 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

部局名: 原子力科学研究部門 先端基礎研究センター

職名: 研究主席

研究者番号(8桁): 30343916

研究分担者氏名: 高田 淳史

ローマ字氏名: TAKADA, Atsushi

所属研究機関名: 京都大学

部局名：理学研究科

職名：助教

研究者番号（8桁）：90531468

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。