

令和 2 年 5 月 18 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K07004

研究課題名(和文) 医療用放射性同位体生成断面積の系統的測定研究

研究課題名(英文) Systematic measurements of production cross sections for medical radioisotopes

研究代表者

合川 正幸 (Aikawa, Masayuki)

北海道大学・理学研究院・教授

研究者番号：00374736

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,600,000円

研究成果の概要(和文)：放射性同位元素は様々な分野で利用されており、医学分野においてはがんの診断や治療などに利用されている。医療用放射性同位元素の生成に重要な核反応断面積について、欠落しているデータ及び精度向上が必要なデータを系統的に測定することで、医療分野へ貢献する。本事業では、荷電粒子入射反応に着目し、陽子、重陽子、およびアルファ粒子入射反応による生成断面積測定を系統的に実施した。その結果、学術雑誌に計15編の学術論文が掲載された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

医学分野で利用されている放射性同位元素の生成に不可欠な情報の一つである、核反応断面積を取得した。本事業では、荷電粒子入射反応に着目し、陽子、重陽子、およびアルファ粒子入射反応による生成断面積測定を実施した。この成果により、医療で用いられていることが検討されている放射性同位体の生成について知見が深まり、実現可能性についてより具体的に考察することが可能となった。

研究成果の概要(英文)：Radioisotopes are available for a variety of applications. One of the application fields is the medicine, including radiotherapy and diagnostics of cancers. Production cross sections and yields of such radioisotopes are essential information for the application. However, there still exist a lack of data and data with large uncertainties in many reactions. Therefore, we performed experiments to obtain more accurate and reliable data. In the project, we focused on charged-particle-induced reactions using proton, deuteron and alpha-particles. As a result, we could publish 15 papers in international scientific journals.

研究分野：原子核物理学

キーワード：放射化断面積 医療用放射性同位体

1. 研究開始当初の背景

原子核反応実験で得られる反応断面積など各種の情報(核データ)は、原子力分野のみならず、理学、工学、医学などの多くの分野で応用されている。このような応用分野においては、地球上に存在している安定核に関する核データが非常に重要な役割を果たしている。しかし、安定核に関する核データは、これまでに広く取得されてきてはいるものの、未だ取得されていないエネルギー領域や、実験ごとに結果が大きく異なるデータなどが存在する(図1)。

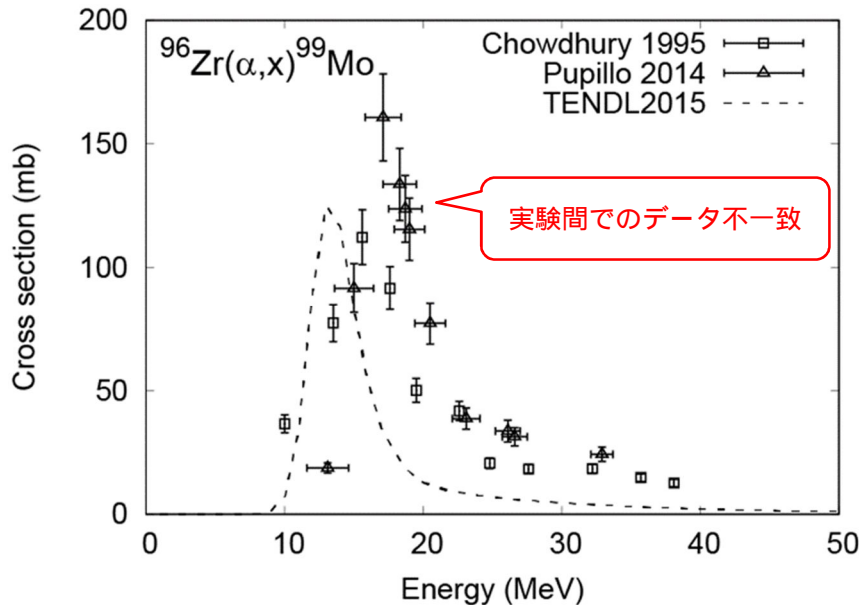


図1:  $^{96}\text{Zr}(\alpha,x)^{99}\text{Mo}$  反応の断面積。先行研究間で結果が大きく異なる。

近年、様々な放射性核種が診断や治療に用いられている。診断は、陽電子対消滅光子を用いたポジトロン断層法や単一光子による放射断層撮影などで、主にガンマ線が用いられる。一方、治療には、ガンマ線に限らず、ベータ線やアルファ線なども利用されている。このような診断や治療に関しては、半減期、放射線の種類やそのエネルギーが異なるため、用途に応じた適切な核種の選択が重要となる。また、現在利用されている核種以外にも、より患者の負担が軽く、効果の高い手法の研究が絶えず進められており、それぞれの手法に最も適した核種に関する研究が必要である。

2. 研究の目的

医療で実用化するためには、様々な核種の生成に関して、費用や効率、不純物の含有量を考慮することが必要不可欠である。そのため、同一の核種を生成する複数の反応について、反応断面積及び収量を比較し、必要な量を生成すると同時に不純物が少なくなるよう入射粒子及び入射エネルギーを最適化する必要がある。しかし、未だ反応断面積の実験データが少なく、不定性が高い核反応が存在する。

そこで本研究において、荷電粒子入射反応の断面積を系統的に測定し、医療分野に貢献する。

3. 研究の方法

生成核反応断面積測定に際しては、実験手法として実績のある、積層箔放射化法、ガンマ線分光法を用いた。積層箔放射化法は、複数の金属箔を重ね、ビームを照射することで放射化させ、異なる粒子エネルギーに関する断面積を取得する方法である。この手法により、一度の照射で複数のエネルギーに関する反応断面積を取得することができる。さらに、ガンマ線分光法は、放射化した金属箔中で生成した放射性核種が崩壊時に放出するガンマ線のエネルギーを測定し、時間当たりの崩壊数を計測することで放射性核種の生成量を見積もる手法である。これらの手法により、放射性核種の生成反応断面積を取得することができる。

医療用放射性核種の他、モニター反応と呼ばれる反応を同時に測定し、実施した実験の確かさを確認している。モニター反応の断面積には、国際原子力機関による評価値が存在しており、実験結果と比較することで実験の確かさが確認できる。

4. 研究成果

本事業では、医療用放射性同位体の生成核反応断面積を系統的に測定した。実験は理化学研究

所及びハンガリー原子核研究所で行った。理化学研究所では、周回変動磁場型サイクロトロンを用いた 24MeV の重陽子 (d) と 50MeV のアルファ粒子 ( $\alpha$ ) を、ハンガリー原子核研究所ではサイクロトロンを用いた 18MeV の陽子 (p) を、それぞれ入射粒子とした実験を行った。その結果、表 1 で示す実験を実施することができた。

表 1：実施した核反応実験の標的、入射粒子、及び主目的生成核種

標的	入射粒子	主目的生成核種
$^{nat}\text{Zn}$	d	$^{68}\text{Ga}$
$^{169}\text{Tm}$	p	$^{169}\text{Yb}$
$^{nat}\text{Er}$	$\alpha$	$^{169}\text{Yb}$
$^{159}\text{Tb}$	d	$^{159}\text{Dy}$
$^{89}\text{Y}$	$\alpha$	$^{90}\text{Nb}$
$^{nat}\text{Yb}$	$\alpha$	$^{177}\text{Lu}$
$^{nat}\text{Ni}$	$\alpha$	$^{65}\text{Zn}$
$^{nat}\text{Pd}$	$\alpha$	$^{103}\text{Ag}$
$^{nat}\text{Zr}$	$\alpha$	$^{99}\text{Mo}$
$^{93}\text{Nb}$	d	$^{93}\text{Mo}$
$^{nat}\text{Ag}$	$\alpha$	$^{111}\text{In}$
$^{nat}\text{Zn}$	$\alpha$	$^{68}\text{Ge}$
$^{nat}\text{In}$	$\alpha$	$^{117m}\text{Sn}$
$^{nat}\text{Ir}$	$\alpha$	$^{195}\text{Pt}$
$^{nat}\text{Pd}$	d	$^{103}\text{Ag}$

このうち、 $^{nat}\text{Zr}$  標的の実験結果から導出した  $^{96}\text{Zr}(\alpha, x)^{99}\text{Mo}$  反応の断面積の測定結果は図 2 のようになった。先行研究と比較すると、ピークの位置及び高さが異なる結果が得られた。この結果を用いて収量を求めると、これまでのデータに基づいて推測されてきた値とは大きく異なることが示された。このように、 $^{99}\text{Mo}$  生成に関して新たな知見が得られた。

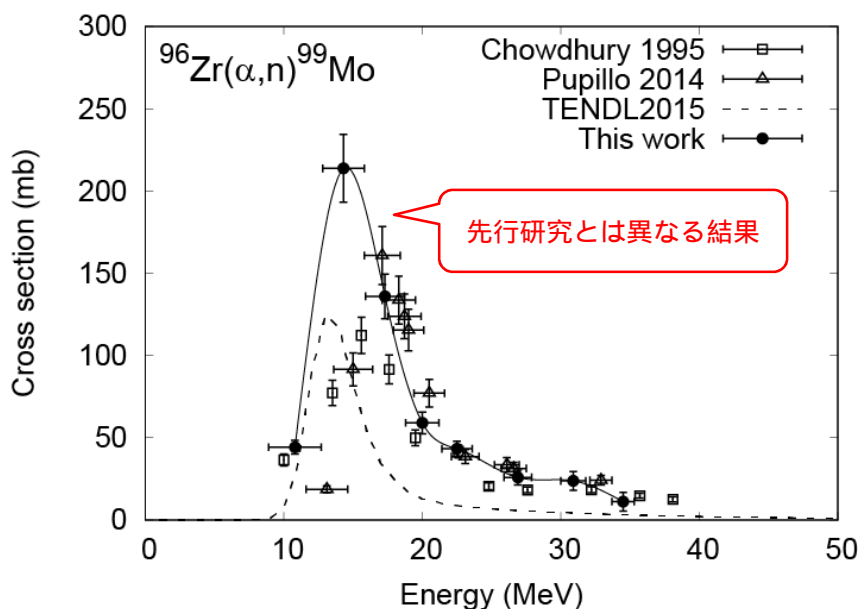


図 2： $^{96}\text{Zr}(\alpha, x)^{99}\text{Mo}$  反応の結果。先行研究とは異なる結果となった。

このように、医学分野で利用されている放射性同位元素の生成に不可欠な情報である、核反応断面積を系統的に取得した。本事業では特に、荷電粒子入射反応に着目し、陽子、重陽子、およびアルファ粒子入射反応による生成断面積測定を行った。結果は査読付き学術雑誌で学術論文計 15 編として発表した。これらの成果により、医療で用いられていることが検討されている放射性同位体の生成について知見が深まり、実現可能性についてより具体的に考察することが可能となった。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計15件（うち査読付論文 15件 / うち国際共著 7件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Michiya Sakaguchi, Masayuki Aikawa, Moemi Saito, Naoyuki Ukon, Yukiko Komori, Hiromitsu Haba	4. 巻 472
2. 論文標題 Activation cross section measurement of the deuteron-induced reaction on yttrium-89 for zirconium-89 production	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B	6. 最初と最後の頁 59-63
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2020.04.003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Zolbadral Tsoodol, Masayuki Aikawa, Ichinkhorloo Dagvadorj, Tegshjargal Khishigjargal, Namsrai Javkhiantugs, Yukiko Komori, Hiromitsu Haba	4. 巻 159
2. 論文標題 Production cross sections of $^{68}\text{Ga}$ and radioactive by-products in deuteron-induced reactions on natural zinc	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Radiation and Isotopes	6. 最初と最後の頁 109095
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apradiso.2020.109095	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Moemi Saito, Masayuki Aikawa, Tomohiro Murata, Yukiko Komori, Hiromitsu Haba, Sandor Takacs, Ferenc Ditroi, Zoltan Szucs	4. 巻 471
2. 論文標題 Production cross sections of $^{169}\text{Yb}$ by the proton-induced reaction on $^{169}\text{Tm}$	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B	6. 最初と最後の頁 13-16
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2020.03.019	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Moemi Saito, Masayuki Aikawa, Michiya Sakaguchi, Naoyuki Ukon, Yukiko Komori, Hiromitsu Haba	4. 巻 154
2. 論文標題 Production cross sections of ytterbium and thulium radioisotopes in alpha-induced nuclear reactions on natural erbium	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Radiation and Isotopes	6. 最初と最後の頁 108874
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apradiso.2019.108874	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Dagvadorj Ichinkhorloo, Masayuki Aikawa, Tsoodol Zolbadral, Yukiko Komori, Hiromitsu Haba	4. 巻 461
2. 論文標題 Activation cross sections of dysprosium-157,159 and terbium-160 radioisotopes from the deuteron-induced reactions on terbium-159 up to 24 MeV	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B	6. 最初と最後の頁 102-104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2019.09.037	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Murata, M. Aikawa, M. Saito, H. Haba, Y. Komori, N. Ukon, S. Takacs, F. Ditroi	4. 巻 458
2. 論文標題 Excitation function measurement for zirconium-89 and niobium-90 production using alpha-induced reactions on yttrium-89	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B	6. 最初と最後の頁 21-27
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2019.07.043	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Moemi Saito, Masayuki Aikawa, Tomohiro Murata, Naoyuki Ukon, Yukiko Komori, Hiromitsu Haba, Sandor Takacs	4. 巻 453
2. 論文標題 Activation cross sections of alpha-induced reactions on natural ytterbium up to 50 MeV	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B	6. 最初と最後の頁 15-21
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2019.05.074	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Enrico Corniani, Ferenc Ditroi, Sandor Takacs, Hiromitsu Haba, Yukiko Komori, Masayuki Aikawa, Moemi Saito, Tomonori Murata	4. 巻 320
2. 論文標題 Study of secondary implantation of radioisotopes during alpha-particle irradiation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry	6. 最初と最後の頁 813-822
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10967-019-06527-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 M. Aikawa, M. Saito, Y. Komori, H. Haba, S. Takacs, F. Ditroi, Z. Szucs	4. 巻 449
2. 論文標題 Activation cross sections of alpha-particle induced nuclear reactions on natural palladium	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B	6. 最初と最後の頁 99-104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2019.04.066	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Murata, M. Aikawa, M. Saito, N. Ukon, Y. Komori, H. Haba, S. Takacs	4. 巻 144
2. 論文標題 Production cross sections of Mo, Nb and Zr radioisotopes from $\alpha$ -induced reaction on natZr	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Radiation and Isotopes	6. 最初と最後の頁 47-53
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apradiso.2018.11.012	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 M. Aikawa, Y. Komori, H. Haba	4. 巻 436
2. 論文標題 Activation cross sections of deuteron-induced reactions on niobium up to 24 MeV	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 217-220
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2018.09.039	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 F. Ditroi, S. Takacs, H. Haba, Y. Komori, M. Aikawa, M. Saito, T. Murata	4. 巻 436
2. 論文標題 Investigation of alpha particle induced reactions on natural silver in the 40-50 MeV energy range	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 119-129
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2018.09.018	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 M. Aikawa, M. Saito, S. Ebata, Y. Komori, H. Haba	4. 巻 427
2. 論文標題 Activation cross sections of $\gamma$ -induced reactions on natZn for Ge and Ga production	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 91-94
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2018.05.006	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 M. Aikawa, M. Saito, N. Ukon, Y. Komori, H. Haba	4. 巻 426
2. 論文標題 Activation cross sections of alpha-induced reactions on natIn for $^{117m}\text{Sn}$ production	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B	6. 最初と最後の頁 18-21
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2018.04.023	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Naoyuki Ukon, Masayuki Aikawa, Yukiko Komori, Hiromitsu Haba	4. 巻 426
2. 論文標題 Production cross sections of deuteron-induced reactions on natural palladium for Ag isotopes	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B	6. 最初と最後の頁 13-17
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2018.04.019	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件 (うち招待講演 1件/うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Masayuki AIKAWA
2. 発表標題 GALLIUM-68 PRODUCTION IN ZINC OXIDE NANOPARTICLES
3. 学会等名 1st integrated conference on joint research program in Mongolia (ICJPM) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Sakaguchi, M. Aikawa, M. Saito, N. Ukon, Y. Komori, H. Haba
2. 発表標題 89Y標的への重陽子入射反応による89Zr生成反応断面積
3. 学会等名 2018年度核データ研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Aikawa, M. Saito, T. Murata, M. Sakaguchi
2. 発表標題 Systematic study on charged-particle-induced reactions for medical radioisotope production
3. 学会等名 The 9th AASPP Workshop on Asian Nuclear Reaction Database Development (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Murata, M. Aikawa, M. Saito, N. Ukon, Y. Komori, H. Haba, S. Takacs
2. 発表標題 99Mo production from alpha-induced reaction on 96Zr
3. 学会等名 18th Radiochemical Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 村田朋大, 合川正幸, 齋藤萌美, 右近直之, 小森有希子, 羽場宏光, タカッチ サンドール
2. 発表標題 Zr標的へのアルファ粒子照射による99Moの励起関数測定
3. 学会等名 日本原子力学会2018年春の年会
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 齋藤萌美, 合川正幸, 村田朋大, 右近直之, 小森有希子, 羽場宏光, Sandor Takacs
2. 発表標題 natYbへの50 MeVアルファ粒子入射反応における <sup>177</sup> Luの生成断面積について
3. 学会等名 日本原子力学会2018年春の年会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	右近 直之 (Ukon Naoyuki)  (70792985)	福島県立医科大学・先端臨床研究センター・助教   (21601)	