

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23602015

研究課題名(和文) 高速中性子により製造可能な核医学用放射性核種の先駆的研究

研究課題名(英文) Pioneering Research on Manufacturability of Radionuclides for Nuclear Medicine by Fast Neutrons

研究代表者

岩本 信之 (IWAMOTO, NOBUYUKI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター・研究副主幹

研究者番号：70391307

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円、(間接経費) 780,000円

研究成果の概要(和文)：大強度高速中性子を利用した国内における核医学用放射性同位元素(RI)製造のために、核医学診療に適したガンマ線、ベータ線及び陽電子放出核を生成する核反応断面積を評価した。この断面積を基に現実的なRI製造体系をシミュレートし、生成されるRIの放射能を算出した。これにより既存の核医学用RIに加えて、新規のRIを含むすべてのRIの製造可能性を評価した。その結果、ガンマ線放出核については化学精製可能な18種のRIを含む20種のRIについて大強度高速中性子による製造可能性があることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In order to produce radioisotopes (RIs) for nuclear medicine by using intense fast neutrons in Japan, we evaluated nuclear reaction cross sections for the production of RIs (gamma-ray, beta-ray and positron emission nuclides) which are suitable for nuclear medical care. We calculated the radioactivity of produced RIs by simulating a realistic RI-production system. We took account of the manufacturability of all RIs including new candidates as well as already used RIs. We obtained 20 RIs for gamma-ray emission nuclides, in which 18 RIs are different from target elements and can be chemically separated.

研究分野：原子力学

科研費の分科・細目：医学物理学・放射線技術学

キーワード：核医学 核データ評価 放射性同位元素 RI生成断面積 放射能 画像診断

1. 研究開始当初の背景

核医学診断及び治療において放射性同位元素 (RI) は必要不可欠であり、これを安定供給することは非常に重要な課題である。現在、日本において核医学診断に利用されている全 RI の 80% 以上を ^{99}Tc の核異性体状態 (ms) である $^{99\text{m}}\text{Tc}$ が占めているが、その $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の親核種である ^{99}Mo はすべて海外から輸入している。そして、その約 95% は高濃縮ウラン (^{235}U) を原料としているため、核拡散防止の観点から問題視されている。さらに、その製造を担う原子炉は老朽化により故障が頻発しているため、供給が不安定となり、国内の医療現場において混乱が生じている。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 以外にも ^{59}Fe 、 ^{131}I 、 ^{133}Xe 、 ^{201}Tl 等の多数の RI が核医学診断及び治療に利用されているが、その大半は海外からの輸入に頼らざるを得ず、今後供給不足に陥る危険性があるため国内での RI 製造・供給体制の確立が強く望まれている。

2. 研究の目的

大強度高速中性子を利用した国内での核医学用 RI 製造のための先駆的な研究を行う。既存の核医学用 RI に加えて、核医学的に利用可能と見込まれる新規の RI を含むすべての RI を対象とし、高速中性子誘起核反応による生成放射能を定量的に算出することによって、大強度高速中性子による核医学用 RI の製造可能性を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 核医学用 RI のリストアップ

核医学診療に適した RI を抽出し、その中から安定核を標的として高速中性子との核反応により生成可能なものをリストアップする。

(2) 簡易核データ計算及び生成量算出

核反応断面積の簡易計算から RI 生成断面積を導出する。これを用いてリストアップした RI の生成放射能を算出し、核医学利用が期待できる RI を選別する。

(3) 核データ評価計算

選別した RI の生成反応について、断面積測定実験による測定データから核反応断面積の計算結果を評価し、最も妥当な断面積を導出する。

(4) 生成放射能計算

導出した RI 生成断面積を用いて目的の RI 及び副次的に生成される不要な RI の生成放射能を計算する。

(5) 核医学用 RI の製造可能性評価

不要な RI の生成を抑え、効率の良い核医学用 RI の製造条件について調査し、製造可能性を評価する。

4. 研究成果

(1) 核医学用 RI のリストアップ

RI 製造の原料は安定核に限定し、10 ~ 20MeV のエネルギーをもつ高速中性子との核反応で製造可能な RI を調査した。このうち半減期が3時間 ~ 1週間の範囲にある RI を核医学に適しているとして、原子核構造及び放射性崩壊データベース ENSDF からリストアップすると共に、画像診断用として PET で有用な陽電子放出核、SPECT 等で有用なガンマ線放出核、また治療用として細胞を傷害する能力の高いベータ線放出核に分類した。選別にあたり、陽電子放出核はガンマ線強度を 10% 未満とし、またガンマ線放出核についてはガンマ線のエネルギー範囲が 30keV ~ 1.3MeV で 1崩壊あたりの強度が 50% 以上という条件を課した。

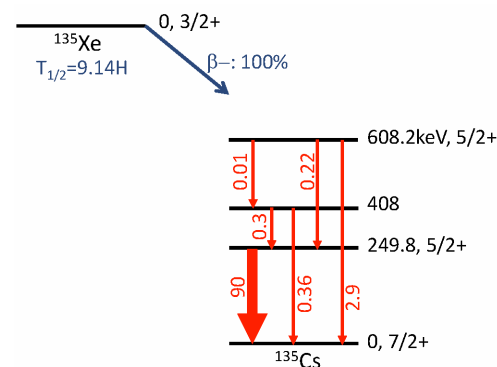


図 1: ^{135}Xe のベータ崩壊により放出されるガンマ線の例。励起準位には励起エネルギー (keV 単位) 及びスピン・パリティ、準位間のガンマ線遷移にはガンマ線強度 (% 単位) を示す。

リストアップした RI の例として図 1 に ^{135}Xe から発生するガンマ線エネルギーとその強度を示す。単ガンマ線放出核ではないが、250keV ガンマ線の強度が 90% 以上であり、上記の条件を満たす。

ベータ線放出核についてはガンマ線強度を 10% 未満とし、ベータ線の最大エネルギーには上限を設けなかった。最終的に条件を満たす陽電子放出核 38 種、ガンマ線放出核 112 種、ベータ線放出核 26 種をリストアップした。

(2) 簡易核データ計算及び生成量算出

(1) でリストアップした RI が核反応により十分な量生成されるかどうかを簡易的に調べるために、核反応計算コード CCONE のデフォルトパラメータを用いて生成断面積を導出した。

核反応は直接過程、前平衡過程及び複合核過程に分類されるが、CCONE ではそれぞれの過程がチャンネル結合光学モデル並びに歪曲波ボルン近似、二成分励起子モデル及び Hauser - Feshbach 統計モデルにより記述されている。離散準位は RIPL-3 データベースか

ら取り、準位の欠損等を考慮して高い励起エネルギーでは定温度・フェルミガスモデルに基づく核準位密度モデルを使用した。また、放出粒子として中性子、陽子、重陽子、三重陽子、 ^3He 、アルファ粒子及びガンマ線を考慮した。

導出した断面積を用いて天然元素及び濃縮同位体を原料とした場合の RI 生成量を以下の条件で算出した。中性子照射時間を目的の RI の半減期の 2 倍もしくは 1 週間のどちらか短い方とし、照射終了から検査開始までの期間を 24 時間とした。天然元素原料 1 グラム当たり生成される 1 メガベクレルを超える放射能をもち、核医学診療用として不適当な副次的 RI 生成の観点から原料の絞り込みを行うことにより、65 核種の RI を選別した。なお、最終的にリストアップした核種の内訳は陽電子放出核 12 種 (生成反応数 17)、ガンマ線放出核 45 種 (88)、ベータ線放出核 14 種 (43) となった。

(3) 核データ評価計算

簡易計算により選別した 65 核種を生成する核反応断面積の測定データと CCONE の計算結果を比較し、CCONE のパラメータ調整を行うことで核異性体状態の生成も含めた最も妥当な断面積を導出した。図 2 及び図 3 に断面積評価結果の例を示す。

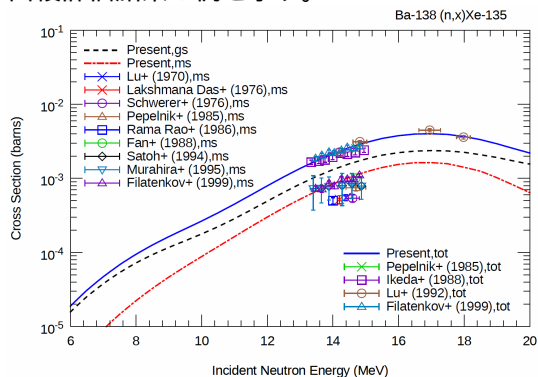


図 2 : ^{138}Ba 標的核への中性子入射による ^{135}Xe 生成断面積の評価結果

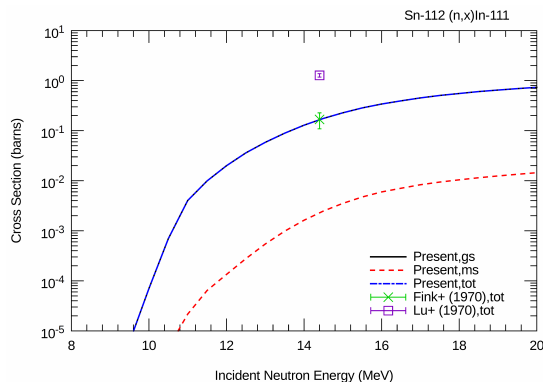


図 3 : ^{112}Sn 標的核への中性子入射による ^{111}In 生成断面積の評価結果

図 2 に ^{135}Xe の基底状態 (gs) 及び核異性体状態 (ms) 生成断面積の評価結果を示す。測定データのある全 ^{135}Xe 生成断面積 (tot) と $^{135\text{ms}}\text{Xe}$

生成断面積の評価から $^{135\text{gs}}\text{Xe}$ 生成断面積を導出した。図 3 に ^{111}In 生成断面積を示す。 $^{111\text{ms}}\text{In}$ 生成断面積の測定データは無いが CCONE 計算から $^{111\text{ms}}\text{In}$ 生成断面積はかなり小さいと予想され、 ^{111}In と $^{111\text{gs}}\text{In}$ 生成断面積はほぼ一致している。

(4) 生成放射能計算

RI 製造体系を模擬して RI 生成放射能計算を実施するために、粒子・重イオン輸送計算コード PHITS を使用した。このコードに (3) で評価した RI 生成断面積と核構造データベース ENSDF から採用した最新の崩壊データを組み込んで計算を行った。試料は中性子源から 2cm 離して設置し、単一エネルギーの様な中性子ビームが入射すると仮定した。試料の形状は半径 (r) 2cm、厚さ (z) 2cm の円筒形とした。その他の条件は (2) における RI 生成放射能の算出と同様である。図 4~6 では 100%濃縮の ^{112}Sn 同位体を標的試料とした場合の結果を示す。

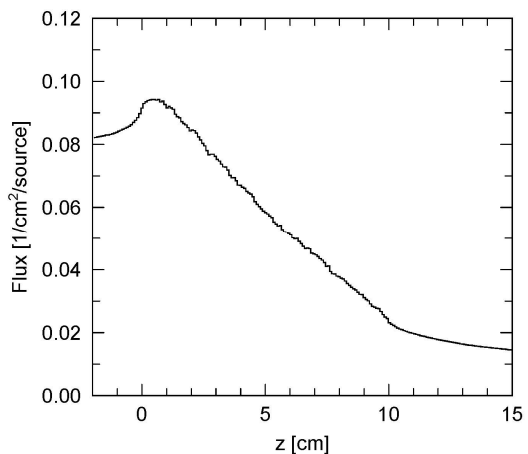


図 4 : ^{112}Sn 試料 (厚さ 10 cm) を置いたときの厚さ方向における中性子束の変化。試料は $z=0 \sim 10\text{cm}$ の位置に配置。

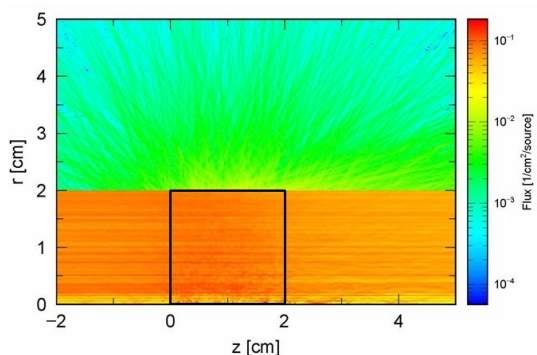


図 5 : ^{112}Sn 試料とその周囲の中性子束分布の断面図。試料は $r=0 \sim 2\text{cm}$ 、 $z=0 \sim 2\text{cm}$ の黒枠位置に配置。

図 4 に試料の厚さを 10 cm にした場合の厚さ方向に対する中性子束の変化を示す。本研究で設定したように厚さが 2 cm 程度であれば、中性子束が試料入射時からあまり減少しな

いため効率良く RI を生成できることが分かる。図 5 に模擬体系中の中性子束空間分布の断面図を示す。試料後方の中性子束がほとんど減少せず、散乱や(n,2n)反応等による 2 次中性子に起因する半径 (r) 方向への広がりも少ないことが分かる。図 6 に 14MeV 中性子を入射した場合の試料内における中性子束のエネルギースペクトルを示す。14MeV の中性子が支配的ではあるが、低エネルギー 2 次中性子の成分がわずかに混在している。

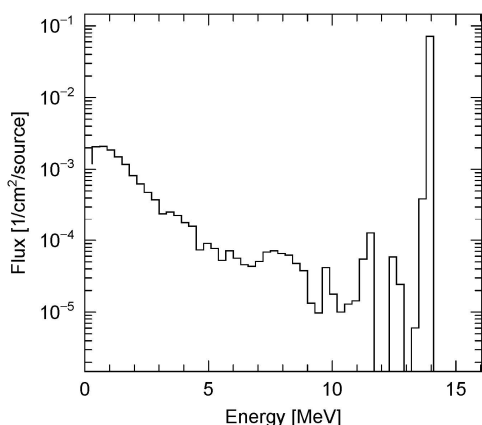


図 6：14MeV 中性子入射による ^{112}Sn 試料中の中性子スペクトル

核反応断面積は図 2 や図 3 で見られるように中性子エネルギーとともに大きく変化する。従って、生成放射能の中性子エネルギー依存性を考慮し、10、14、18MeV の各中性子エネルギーについて、生成されるすべての RI に対する放射能の計算を実施した。表 1 に ^{112}Sn 試料と高速中性子との核反応により生成される RI の放射能を中性子エネルギーごとに示す。エネルギーが 14-18MeV であれば放射能割合が高くほぼ無担体の ^{111}In が得られることが分かる。

(5) 核医学用 RI の製造可能性評価

核医学用 RI の製造可能性を評価するため、生成放射能、不要な RI に対する比放射能及び化学分離による精製等の観点から製造に適する反応を選別した。最終的にガンマ線放出 RI として 20 核種 (反応数 40) を得た。これらのうち 30 反応による 18 核種は標的核とは異なる元素であり、化学分離が可能である。また、陽電子放出 RI については 5 核種 (9) ベータ線放出 RI については 8 核種 (19) をそれぞれ得た。これらの RI について大強度高速中性子による製造可能性があることを明らかにした。また、生成放射能の中性子エネルギー依存性を考慮して、目的の RI を効率良く生成できる最適な中性子エネルギーをそれぞれの反応について決定した。さらに現在利用されている核医学用 RI の代替または新規の RI としての利用可能性を検討した。

(6) 今後の展望

PHITS による RI 生成放射能の算出については、中性子源のスペクトル、試料の形状及び試料の配置等について、RI 製造により適した体系の検討を進める予定である。

表 1：PHITS 計算により得られた ^{112}Sn の高速中性子核反応による生成放射能。それぞれのセルには中性子エネルギーごとに全体に占める放射能割合を示す。

	放射能 [MBq]		
	10MeV	14MeV	18MeV
$^{109\text{ms}}\text{Ag}$	5.6	16.8	18.1
	5.7%	0.05%	0.03%
^{109}Cd	5.6	16.8	18.1
	5.7%	0.05%	0.03%
^{111}In	10.2	33630	54000
	10.5%	99.6%	99.8%
$^{113\text{ms}}\text{In}$	37.8	43.1	42.9
	39.0%	0.13%	0.08%
^{113}Sn	37.8	43.1	42.8
	39.0%	0.13%	0.08%

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

N.Iwamoto, Evaluation of Neutron Induced Reaction Cross Section on Rh Isotopes, JAEA-Conf (Japan Atomic Energy Agency)、査読有、2014、投稿中
N.Sato, K.Tsukada, S.Watanabe, N.S.Ishioka, M.Kawabata, H.Saeki, Y.Nagai, T.Kin, F.Minato, N.Iwamoto, O.Iwamoto, First Measurement of the Radionuclide Purity of the Therapeutic Isotope ^{67}Cu Produced by $^{68}\text{Zn}(n,x)$ Reaction Using $^{nat}\text{C}(d,n)$ Neutrons, Journal of the Physical Society of Japan、査読有、83、2014、投稿中

Y.Nagai, K.Hashimoto, Y.Hatsukawa, H.Saeki, S.Motoishi, N.Sato, M.Kawabata, H.Harada, T.Kin, K.Tsukada, T.K.Sato, F.Minato, O.Iwamoto, N.Iwamoto (他 12 名)、Generation of Radioisotopes with Accelerator Neutrons by Deuterons, Journal of the Physical Society of Japan、査読有、82、2013、064201(1-7) DOI:10.7566/JPSJ.82.064201

N.Iwamoto, Evaluation of Neutron Induced Reaction Cross Sections on Re Isotopes, JAEA-Conf 2013-002 (Japan Atomic Energy Agency)、査読有、2013、pp.143-148

<http://jolissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Conf-2013-002.pdf>

T.Kin, Y.Nagai, N.Iwamoto, F.Minato, O.Iwamoto (他 6 名)、New Production

Routes of Medical Isotopes of ^{64}Cu and ^{67}Cu using Accelerator Neutrons、
Journal of the Physical Society of Japan、査読有、82、2013、034201(1-8)
DOI:10.7566/JPSJ.82.034201

〔学会発表〕(計5件)

N.Iwamoto、Evaluation of Neutron Induced Reaction Cross Section on Rh Isotopes、2013年度核データ研究会、2013年11月14日、福井大学附属国際原子力工学研究所(福井県)

岩本信之、柳田祥太郎、バリウム同位体の中性子核データ評価、日本原子力学会2013年秋の大会、2013年9月3日、八戸工業大学(青森県)

岩本信之、Evaluation of Neutron Induced Reaction Cross Sections on Re Isotopes、2012年度核データ研究会、2012年11月15日、京都大学原子炉実験所(大阪府)

岩本信之、イリジウム同位体の核データ評価、日本原子力学会2012年秋の大会、2012年09月20日、広島大学東広島キャンパス(広島県)

岩本信之、テクネチウム99の核データ評価、日本原子力学会2011年秋の大会、2011年9月21日、北九州国際会議場(福岡県)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

Y.Nagai, K.Hashimoto *et al.*、Generation of Radioisotopes with Accelerator Neutrons by Deuterons、Journal of the Physical Society of Japan、82、2013、064201(1-7)はJournal of the Physical Society of JapanのPapers of Editors' Choiceに選ばれた。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩本 信之 (IWAMOTO, Nobuyuki)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・
原子力科学研究部門 原子力基礎工学研
究センター・研究副主幹
研究者番号：70391307

(2) 研究分担者

岩本 修 (IWAMOTO, Osamu)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・
原子力科学研究部門 原子力基礎工学研
究センター・研究主幹
研究者番号：80370360