

医療応用を目的とした新規放射性同位元素の生成断面積の測定研究

Measurements of new production cross section for medical application.

原子核反応データベース研究開発センター

右近 直之

北海道大学大学院理学研究院

齋藤 萌美

Nuclear data center (JCPRG)

Naoyuki Ukon

Graduate school of science, Hokkaido University

Moemi Saito

Abstract

Nuclear data are very important information for medical applications, radiation therapy and nuclear medicine. However, there are many unmeasured data, and even for currently measured and used in the past, nuclear data with less error and higher reliability are required. Therefore, we performed several experiments to obtain production cross section data for medical radioisotopes using AVF cyclotron at RIKEN. The results are in good agreement with previous data and theoretical calculation.

1 はじめに

近年、核データは医療の分野において非常に重要な要素となっており、より正確な核データの取得が急務となっている。

放射線医学分野では粒子線治療と呼ばれる高エネルギーイオンビームを用いたがん治療が脚光を浴びている。原子核反応から生じるフラグメント粒子の種類やその量、エネルギーといったデータは、粒子線の生物効果・治療効果を物理的知見から評価する場合に必須な情報であり、生体構成元素と粒子線の相互作用による体内で挙動を知ることは非常に重要な課題となっている。さらに、放射線をどのように体内へ照射しどの程度の線量を投与するかを決定する放射線治療計画では核データに基づくモンテカルロシミュレーションにより、詳細な線量分布を推定する試みも行われている。

一方で、体内に放射性同位元素 (RI) を投与しそこから発生する放射線を検出し体内の薬剤分布を測定する核医学と呼ばれる医療分野においても核データは重要である。核医学で用いられる RI はサイクロトロンで製造されることが多く、効率よく RI を得るためには核データの情報が必須である。

以上のように、医療と核データは密接な関係を有しており、原子核反応データベース研

究開発センターでは以前より医療応用に焦点をあて核データの測定を行っている。そこで、本年度も欠落あるいは更新が必要な医療関連の核データを取得・評価を行った。

ここでは、2016年度の活動内容について報告する。

2 活動内容

2016年度は以下の3実験を行った。

1) ${}^{\text{nat}}\text{Zn}(\alpha, x){}^{68}\text{Ge}$

RIは、放射線治療や診断などで用いられている。このようなRIの一つである ${}^{68}\text{Ga}$ ($T_{1/2} = 67.71$ 分)は、陽電子放出体として陽電子放射断層撮影 (PET) に有用な核種である[1]。この ${}^{68}\text{Ga}$ に加え、親核である ${}^{68}\text{Ge}$ ($T_{1/2} = 270.95$ 日)は、 ${}^{68}\text{Ga}$ のジェネレーターとなるため、同様に重要な核種だと言える[2]。 ${}^{68}\text{Ge}$ の生成方法のひとつとして、 ${}^{\text{nat}}\text{Zn}$ への α 粒子入射がある。この反応の断面積については、先行研究[3,4]は存在するものの、それらの間でわずかなずれがある。そこで我々は、この ${}^{\text{nat}}\text{Zn}$ への α 粒子入射反応による ${}^{68}\text{Ge}$ の生成断面積を測定した。

実験は理化学研究所のAVFサイクロトロンにて、放射化法および積層箔法を用いて実施した。積層箔標的には、高純度 (${}^{\text{nat}}\text{Zn}$ (99.9%)、 ${}^{\text{nat}}\text{Ti}$ (99.6%)) の金属箔を用い、 Zn-Ti-Ti ($8 \times 8 \text{ mm}^2$)を一組として、計14組を重ねた。各々の箔の厚さは、切断前の金属箔 (Zn : $50 \times 50 \text{ mm}^2$ および Ti : $50 \times 100 \text{ mm}^2$) で計測した面積と質量から算出し、それぞれ 18.64 mg/cm^2 、 2.25 mg/cm^2 であった。この標的に、平均強度 41.0 pA の 51.5 MeV α 粒子を2時間照射し、冷却時間を置いた後にGe検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーを行った。ビーム強度はファラデーカップによって、エネルギーはプラスチックシンチレーターモニターを用いたTOF法[5]により測定した。

${}^{68}\text{Ge}$ は 1077.34 keV γ 線 (3.22%)[6]を測定することで同定した。この γ 線は、80日の冷却時間において測定を開始した。この冷却時間は ${}^{68}\text{Ga}$ の半減期より十分長く、核反応により直接生成された ${}^{68}\text{Ga}$ はすべて崩壊しており、親核である ${}^{68}\text{Ge}$ からの崩壊のみであると考えられる。ここで、それぞれのZn箔は、生成粒子の反跳による断面積の減衰効果を取り除くため、入射ビーム下流のTi箔と同時に測定を行った。

測定した生成断面積を先行研究[3,4]及びTENDL-2015のデータ[7]と共に図1に示す。先行研究と少し異なる結果となったが、ピーク位置は 30 MeV 付近と先行研究と一致する結果となった。TENDL-2015は実験結果とは異なる傾向であるが、これは ${}^{\text{nat}}\text{Zn}(\alpha, 3n)$ 反応を過小評価しているためと考えられる。

我々は、 ${}^{68}\text{Ga}$ のジェネレーターである ${}^{68}\text{Ge}$ の生成断面積を得るために、 ${}^{\text{nat}}\text{Zn}$ への α 粒子入射反応実験を行った。 ${}^{\text{nat}}\text{Zn}(\alpha, x){}^{68}\text{Ge}$ 反応の励起関数を 51.5 MeV まで測定し、その結果、ピークの位置は先行研究と一致するものの、大きさは20%ほど大きな値となっている。この結果により、PET核種 ${}^{68}\text{Ga}$ のジェネレーターである ${}^{68}\text{Ge}$ の生成について、Znへの α 粒子入射反応の精度が向上したといえる。

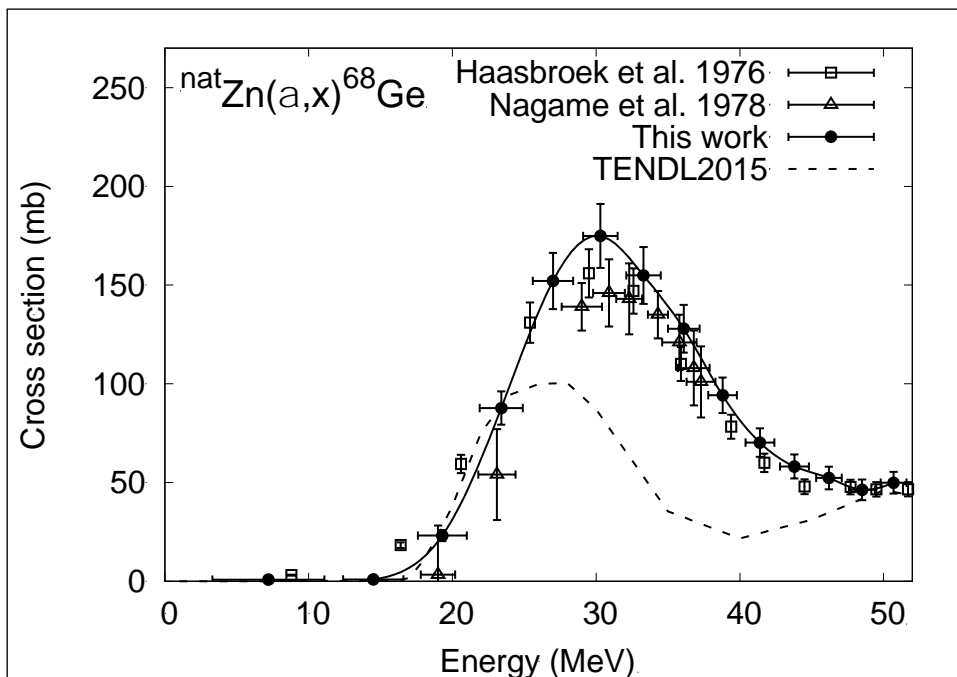


図 1 ${}^{\text{nat}}\text{Zn}(\alpha, x){}^{68}\text{Ge}$ 反応の生成断面積及び先行研究[3,4]、TENDL-2015[7]との比較

2) ${}^{\text{nat}}\text{Pd}(\text{d}, x){}^{103}\text{Ag}$

${}^{103}\text{Pd}$ ($T_{1/2}=16.991$ 日) は医療用 RI の一つであり、小線源治療で利用されている。この同位体を効率的に生成するためには、様々な反応過程を調べ、比較検討する必要がある。その反応過程には、 ${}^{103}\text{Pd}$ への崩壊を前提に、親核である ${}^{103}\text{Ag}$ ($T_{1/2}=65.7$ 分) を生成する反応も含まれる。 ${}^{103}\text{Ag}$ の生成反応の一つに、パラジウムへの重陽子入射反応があるが、先行研究では 20.3MeV 以下の断面積データのみが存在する[8]。そこで今回、 ${}^{\text{nat}}\text{Pd}(\text{d}, x){}^{103}\text{Ag}$ 反応の放射化断面積を、積層箔法を用いて 23.9MeV までのエネルギー領域を測定し、先行研究及[8]と理論計算[7]との比較を行った。

理化学研究所の AVF サイクロトロンを用いて加速した 24 MeV の重陽子を、パラジウム箔 (厚さ : $8.15 \mu\text{m}$, 20 枚), 亜鉛箔 (厚さ : $25.14 \mu\text{m}$, 19 枚), チタン箔 (厚さ : $4.98 \mu\text{m}$, 16 枚) を重ねた標的に照射した。チタン箔はビームの強度とエネルギーを確認するモニターとして利用した。照射後、パラジウム箔で生成された放射性同位体について、HPGe 検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーを行い、 ${}^{\text{nat}}\text{Pd}(\text{d}, x){}^{103}\text{Ag}$ 反応の放射化断面積を求めた。

得られた ${}^{\text{nat}}\text{Pd}(\text{d}, x){}^{103}\text{Ag}$ 反応の放射化断面積を先行研究[8]及び理論計算[7]と比較した (図 2)。先行研究[8]とは実験値がある全エネルギー領域で非常に良く一致した。一方、理論計算[7]とは、15MeV 以下で良く一致するものの、15MeV 以上のエネルギー領域では大きく異なる結果となった。これは理論計算が ${}^{104}\text{Pd}(\text{d}, 3n){}^{103}\text{Ag}$ 反応 ($Q=-15.673\text{MeV}$) を過

大評価しているためと考えられる。これまで、得られていなかったエネルギー領域の放射化断面積の測定が可能であった。放射化断面積ピークはより大きなエネルギー領域に存在すると考えられ、今後大きなエネルギー領域での測定が必要である。

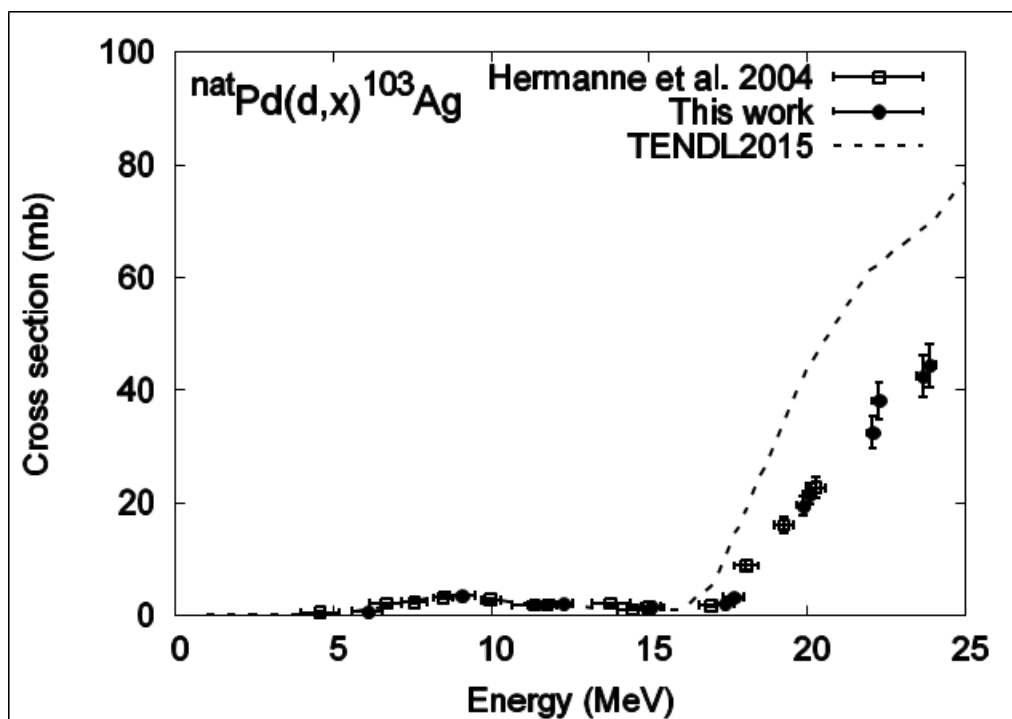


図2 $\text{natPd}(d,x)^{103}\text{Ag}$ 反応の断面積び先行研究[8]、TENDL-2015[7]との比較

3) $\text{natCr}(\alpha,x)^{52}\text{Fe}$

PET は重要な核医学検査のひとつであり、使用される放射性同位元素は多岐にわたっている。なかでも ^{52}Fe は半減期 8.27 時間で ^{52}Mn へ減衰する陽電子放出核種である。先行研究において鉄の同位体である性質を利用し骨髄のトレーサーとして利用されている [9-11]。

^{52}Fe の生成方法として $\text{natCr}(\alpha,x)^{52}\text{Fe}$ 反応があげられるが、この反応による生成断面積の報告は 3 報のみである [12-14]。さらにこれらのデータには大きな乖離が見られ、より正確な生成断面積の測定が必要である。そこで本研究では RIKEN AVF サイクロトロンを使用し $\text{natCr}(\alpha,x)^{52}\text{Fe}$ 反応による生成断面積を測定し先行研究及び理論計算 [7] との比較を行った。これまでの実験と同様に RIKEN AVF サイクロトロンにより 50 MeV α 粒子入射を行った。ビーム強度はファラデーカップによって、エネルギーはプラスチックシンチレーターモニターを用いた TOF 法 [5] により測定した。標的にはニクロム箔 (6.73 mg/cm²)、ニッケル箔 (4.45 mg/cm²) を使い、モニター反応としてチタン箔 (2.25 mg/cm²) を使用した。HPGe 検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーを行い ^{52}Fe の放射化断面積を測定した。これらの結果は現在解析中である。

3 まとめ

このように、放射線治療及び核医学などの放射線医学領域で重要な核データの測定及び評価を行った。理化学研究所の研究者（羽場氏、小森氏）と共同で医療用放射性同位元素の生成断面積測定を実施した。実験は順調に進んでおり、論文を発表するとともに、残りの実験結果についても解析を行っている。

4 参考文献

- 1) S.R. Banerjee and M.G. Pomper, *Appl. Radiat. Isot.* 76 (2013) 1.
- 2) F. Rösch, *Appl. Radiat. Isot.* 76 (2013) 24.
- 3) F.J. Haasbroek et al., *CSIR Research Report, FIS 89* (1976).
- 4) Y. Namage et al., *Appl. Radiat. Isot.* 29 (1978) 615.
- 5) T. Watanabe et al., *Proc. 5th Int. Part. Accel. Conf. (IPAC2014)*, 3566 (2014).
- 6) National Nuclear Data Center: the NuDat 2 database,
<http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>.
- 7) A.J. Koning et al.: TENDL-2015: TALYS-based evaluated nuclear data library.
- 8) A. Hermanne et al., *Radiochim. Acta* 92 (2004) 215.
- 9) A Ferrant et al., *Blood* 81 (1993) 3435.
- 10) M Lubberink et al., *Appl. Radiat. Isot.* 51 (1999) 707.
- 11) S Beshara et al., *Br. J. Haematol.*, 120 (2003) 853.
- 12) A Hermanne et al., *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 256-257 (2015) 28.
- 13) VN Levkovskij, *Moscow 1991. (EXFOR A0510)*
- 14) DP Chowdhury et al., *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 103 (1995) 261. (EXFOR A0204)