

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies : 202-4 Medical Use of Quantum Beam

📅 Wed. Mar 16, 2022 4:25 PM - 5:30 PM JST | Wed. Mar 16, 2022 7:25 AM - 8:30 AM UTC | 🏠 Room B

[1B16-19] Medical Radioisotope

Chair: Kenichi Watanabe (Kyusyu Univ.)

4:25 PM - 4:40 PM JST | 7:25 AM - 7:40 AM UTC

[1B16] Development of a method for rapid and simultaneous analysis of chemical form and radioactivity of At-211

*Mariko Segawa¹, makoto maeda¹, yosuke toh¹, ichiro nishinaka², shigeki watanabe², ichiro sasaki², noriko ishioka² (1. JAEA, 2. QST)

4:40 PM - 4:55 PM JST | 7:40 AM - 7:55 AM UTC

[1B17] Development of astatine-211 dry recovery process by evaporation with aerosol

*Masaru Yuhara¹, Shinya Miyamoto¹, Satoshi Wada¹, Yuki Nakai¹, Takashi Oomori¹, Kazuaki Tsukada², Masato Asai², Mitsuhiro Fukuda³, Atsushi Toyoshima⁴, Atsushi Shinohara^{4,5} (1. TOSHIBA ESS, 2. JAEA, 3. RCNP, Osaka Univ., 4. IRS, Osaka Univ., 5. Osaka Aoyama Univ.)

4:55 PM - 5:10 PM JST | 7:55 AM - 8:10 AM UTC

[1B18] Study on Ac-225 production from Ra-226 by using an electron LINAC: Ac-225 separation experiment from Ra-226

*Kunihiro Miyoshi¹, Kotaro Nagatsu², Jun Ichinose², Hisashi Suzuki², Masafumi Ozeki¹, Hidetoshi Kikunaga³, Shigeru Kashiwagi³, Masahiro Sakurai¹, Ryohei Terabayashi¹, Shuichi Hasegawa¹ (1. UTokyo, 2. QST, 3. Tohoku Univ.)

5:10 PM - 5:25 PM JST | 8:10 AM - 8:25 AM UTC

[1B19] Preparation of porous MoO₃ targets for producing ⁹⁹Mo/^{99m}Tc

*Mai Ngoc Quach¹, Chu Minh Ngo¹, Ying Yang¹, Binh Thanh Nguyen, Thai Van Nguyen, Thi Mai Dung Do¹, Nakayama Tadachika¹, Suematsu Hisayuki¹ (1. Nagaoka University of Technology)

5:25 PM - 5:30 PM JST | 8:25 AM - 8:30 AM UTC

Time reserved for Chair

高放射能 At-211 の生成量・化学形の短時間同時分析技術開発

Development of a method for rapid and simultaneous analysis of chemical form and radioactivity of At-211

*瀬川 麻里子¹、前田 亮¹、藤 暢輔¹、西中 一朗²、渡辺 茂樹²、佐々木 一郎²、石岡 典子²

(1. JAEA、2. QST)

がん新療法の実用化に資する高放射能 At-211 の分析技術開発において、燐光の少ないシンチレータを採用した撮像システムの分析性能を検証し、実用化に不可欠な連続分析が可能であるとの結果を得た。

キーワード：医療用 RI、 α 線放出核種 At-211、 α 線イメージング、可視化分析

1. 緒言 α 線放出核種 At-211 を利用したがんの新療法は、全身に転移した難治性のがんに対し高い治療効果が期待されるため、実用化に向けた研究が精力的に進められている。この新療法の実用化には、**半減期が 7.2 時間と短い At-211** を無駄に損失することなく、その生成量と化学形を迅速に分析する技術が必要である。発表者らは、薄膜クロマトグラフィーにより化学形毎に At-211 を分離した試料を用い、シンチレータ及び高感度カメラで α 線を可視化して At-211 の生成量（放射能）と化学形を短時間で同時分析する技術を開発している。これまでに、基礎研究等で使用される 700 Bq 以下の低放射能 At-211 に対し、放射能と化学形の定量が可能である事を実証して基盤技術の確立を図ってきた。その一方で、実用先である前臨床・臨床研究では主に数百 kBq～数百 MBq の高放射能 At-211 が使用されるため、これら高放射能 At-211 に対する定量性を検証する必要がある。しかし、 α 線測定用シンチレータとして一般的な ZnS(Ag)（以後 ZnS）を高放射能 At-211 に用いると、ZnS 内に生じる燐光のため、定量性を失い連続分析ができないという課題があった。本研究では、高放射能 At-211 を試料として、燐光の少ない複数のシンチレータの発光量と燐光の発生量（燐光量）を比較し、高放射能 At-211 に対する本技術の定量性を検証した。

2. 実験 量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所 TIARA 施設にて、放射能の異なる At-211 を 12 点滴下した試料（以後、検量用 At-211 試料）を用意した。シンチレータには発光量の多い ZnS（厚さ 12 μ m の透明フィルムに密度 3.25 mg/cm² の ZnS 粉末を塗布）、発光量は ZnS と比較し少ないが燐光が少ないと予想される 2 種のシンチレータ（CsI（厚さ 1 mm）、プラスチック（以後 Plastic、厚さ 300 μ m））を用いた。これらのシンチレータと高感度カメラ（ビットラン社製 CS67M）を組み合わせた α 線撮像システムにより検量用 At-211 試料の発光量及び燐光量を測定した。

3. 結果 図 1(a, b)に ZnS 及び Plastic により測定した検量用 At-211 試料の 2 次元画像を示す。測定時間は(a)50 ms (b)20 s、測定時の放射能は 596 kBq～5.96 MBq であり、各図中の左上が低放射能、右下が高放射能領域である。図 1(c, d)に、図 1(a, b)の撮像後に検量用 At-211 試料を取り外して測定した 2 次元画像を示す。図 1(c)に示す ZnS では連続分析を妨害する燐光が見られる一方で、図 1(d)の Plastic は燐光を生じない事が分かった。以上から、前臨床・臨床研究で用いられるレベルのうち数 MBq までの高放射能 At-211 に対して、Plastic を採用した α 線撮像システムにより連続分析が可能であることが分かった。また、撮像時間の最適化によって、前臨床・臨床研究に用いられるレベルの高放射能 At-211 に対しても分析値の定量性が得られるとの見通しを得た。発表では、実用化に向けて実施した薄膜クロマトグラフィーの分析結果等についても報告する。

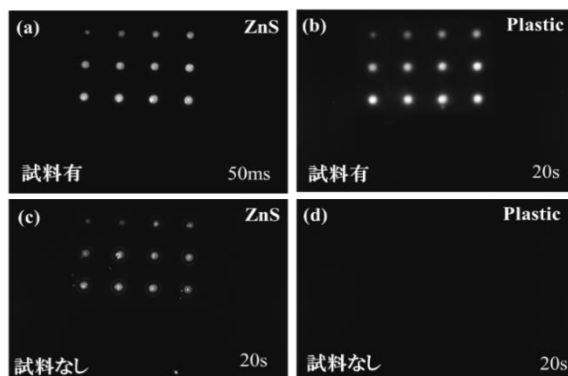


図 1 検量用 At-211 試料と燐光の可視化画像
(a)ZnS による At-211 可視化画像, (b)Plastic による At-211 可視化画像, (c)ZnS の燐光画像, (d)Plastic による画像

*Mariko Segawa¹, Makoto Maeda¹, Yosuke Toh¹, Ichiro Nishinaka², Shigeki Watanabe², Ichiro Sasaki² and Noriko Ishioka²,¹JAEA, ²QST

エアロゾルを用いた At-211 乾式分離技術の開発

Development of astatine-211 dry recovery process by evaporation with aerosol

*湯原 勝¹, 宮本 真哉¹, 和田 怜志¹, 中居 勇樹¹, 大森 孝¹, 塚田 和明², 浅井 雅人²,
福田 光宏³, 豊嶋 厚史⁴, 篠原 厚^{4,5}

¹東芝エネルギーシステムズ, ²原子力機構先端研, ³阪大 RCNP, ⁴阪大放射線機構, ⁵大阪青山大

$^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$ で生成する ^{211}At の乾式分離回収方法を検討している。当該プロセスにエアロゾルを導入することで ^{211}At との複合体とし、フィルタ回収する手法の有効性を評価した。

キーワード : At-211、医薬品原料製造、分離、エアロゾル、アスタチン

1. 緒言 標的アイソトープ治療用核種として注目される ^{211}At は $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$ で生成する。Bi からの ^{211}At 分離法として乾留法が主に報告されているが^[1]、配管付着等による分離効率低下の課題がある。そこで、ガスジェット法^[2]を参考に、 ^{211}At をフィルタ回収する手法を検討し、単位時間当たりエアロゾル捕集量と ^{211}At 回収率に正の相関を確認した^[3]。今回、エアロゾル発生温度をパラメータとして、 ^{211}At 回収率を評価した。

2. 実験方法 日本原子力研究開発機構タンデム加速器を用いて 28MeV に加速した $^4\text{He}^{2+}$ イオンを Bi ターゲット(純度 4N)に照射して、100kBq オーダーの ^{211}At を生成し分離試験に供した。Ge 半導体検出器で 72~96keV のピークを用いて ^{211}At を定量した。図 1 に分離回収試験装置の概要を示す。He ガス流速 83cm/min で KCl 粉末を 650~750℃に加熱しエアロゾルを発生させた。 ^{211}At 蒸発部にエアロゾル含有 He ガスを導入し、照射済みターゲットを 500℃で 20 分間加熱して ^{211}At を蒸発させ混合した。ガス中の固形分をガラス繊維フィルタで捕集後、0.01M NaOH 水溶液で溶解した。分離回収装置内面、フィルタの洗浄液中 ^{211}At 濃度を Ge 半導体検出器で、K 濃度をイオンメータで測定し、 ^{211}At 回収率(%), ^{211}At 蒸発部入口におけるエアロゾル濃度(mg/cm^3)を評価した。

3. 実験結果 エアロゾル発生温度が高い程、エアロゾル導入速度は増大した。従来^[3]の研究ではエアロゾル導入速度が大きい程 ^{211}At 回収率は高いが、一部条件で関係が逆転した。そこで、分離時 ^{211}At 供試量で規格化したところ、図 2 のように ^{211}At 回収率に対して正の相関が得られた。これは ^{211}At に対するエアロゾルの相対空間密度増大に伴い ^{211}At -エアロゾルの衝突・結合が促進され、複合体生成量が増加したためと考えられる。

4. 結論 単位 ^{211}At 量当たりのエアロゾル導入速度増大が ^{211}At 回収率向上に有効であることを確認した。

謝辞 本研究は、国立研究開発法人科学技術振興機構 産学共創プラットフォーム共同研究推進プログラム (JST、OPERA、JPMJOP1721) の支援を受けて実施した。本研究成果は日本原子力研究開発機構の施設供用制度により得られたものである。

参考文献 [1] E. Anheim et al, “Automated astatination of biomolecules – a stepping stone towards multicenter clinical trials” (2015).
[2] K.Rengan et al.(1993). Ultrafast Chemical Separations, Washington, D.C.: National Academy Press.
[3] 湯原ら、「エアロゾルを用いた At-211 乾式分離技術の開発」放射化学討論会 2021、3K05

*Masaru Yuhara¹, Shinya Miyamoto¹, Satoshi Wada¹, Yuki Nakai¹, Takashi Omori¹, Kazuaki Tsukada², Masato Asai², Mitsuhiro Fukuda³, Atsushi Toyoshima⁴, Atsushi Shinohara^{4,5} ¹Toshiba ESS, ²JAEA, ³RCNP, Osaka Univ., ⁴IRS, Osaka Univ., ⁵Osaka Aoyama Univ.

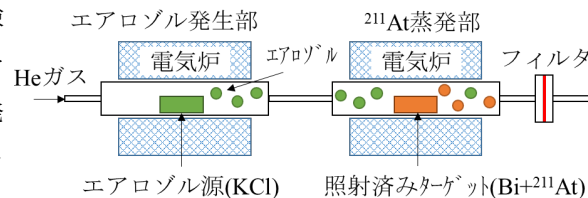


図 1. ^{211}At 分離回収試験装置

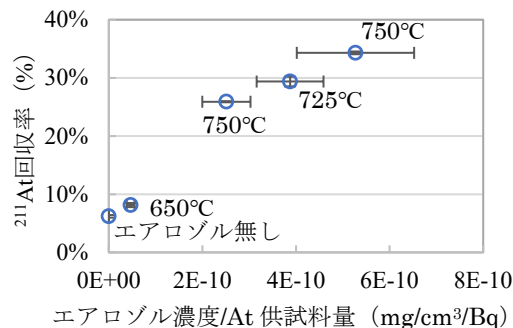


図 2. 単位 ^{211}At 量当たりのエアロゾル濃度に対する ^{211}At 回収率

電子線形加速器と Ra-226 を用いた Ac-225 放射性医薬品生成の検討: Ac-225 分離精製試験

Study on Ac-225 production from Ra-226 by using an electron LINAC:

Separation experiment of Ac-225 from Ra-226

*三好 邦博¹, 永津 弘太郎², 市瀬 潤², 鈴木 寿², 尾関 政文¹,
菊永 英寿³, 柏木 茂³, 櫻井 政宏¹, 寺林 稜平¹, 長谷川 秀一¹

¹東大, ²量研・量医研, ³東北大

標的 α 線治療用の核種として注目される Ac-225 を Ra-226 と電子線形加速器によって生成するための原理実証を進めている。Au メッキ基板を用いた Ra-226 ターゲットを作成し Ac-225 生成試験と単離試験を実施した。

キーワード: 標的 α 線治療, Ra-226, Ac-225, 電子線形加速器, 光核反応

1. 緒言

固体 Ra-226 を電子線形加速器で照射するためのターゲットシステム開発および照射後の Ac-225 分離精製プロセスの評価を進めている。電着法にて調整した Ra-226 を Al 照射容器内に密封し、電子線形加速器にて照射後、Ac-225 を単離する。

2. Au メッキ基板を用いた Ra-226 ターゲットの評価

従前の検討で Al 基板へ直接電着すると、Al 表面に腐食が観察された。そこで、Al 基板に対して Ni および Au の二層のメッキを施し、安定した電着と不純物の溶出を抑制する設計を考案した(図 1)。照射後でも、電着物は基板上に保持されていることを確認した。

3. Ac-225 分離精製試験

照射後生成物中からの Ac-225 分離抽出を抽出クロマトグラフィーにて行なった(図 2)。照射された電着物を硝酸にて溶解し、DGA および LN レジンの 2 種類にて Ac-225 の単離を行なった。

4. 今後の予定

光核反応の効率評価と Ac-225 分離精製プロセスの最適化を行い、GBq オーダーの Ra-226 を照射可能な照射装置の検討も並行して進める予定である。

参考文献

- [1] Tatsuhiko Sato et al., Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol. 55(5-6), 684-690 (2018)
[2] K. Nagatsu et al., J. Nucl. Med. Mol. Img. (2020) doi/10.1007/s00259-021-05460-7

*Kunihiro Miyoshi¹, Kotaro Nagatsu², Jun Ichinose², Hisashi Suzuki², Masafumi Ozeki¹, Hidetoshi Kikunaga, Shigeru Kashiwagi, Masahiro Sakurai¹, Ryohei Terabayashi¹, Shuichi Hasegawa¹

¹Univ. of Tokyo, ²iQMS-QST, ³Tohoku Univ.



図 1 照射後の電着物の様子

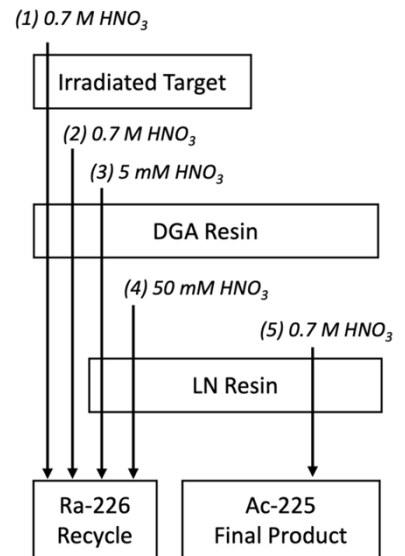


図 2 Ra/Ac 分離精製プロセス

Preparation of porous MoO₃ targets for producing ⁹⁹Mo/^{99m}Tc

*Quach Ngoc Mai⁽¹⁾⁽²⁾, Ngo Minh Chu⁽¹⁾, Ying Yang⁽¹⁾, Nguyen Thanh Binh⁽³⁾, Nguyen Van Thai⁽²⁾, Thi Mai Dung Do⁽¹⁾, Tadachika Nakayama⁽¹⁾, Hisayuki Suematsu⁽¹⁾

⁽¹⁾Extreme Energy-Density Research Institute, Nagaoka University of Technology, Nagaoka, Niigata 940-2188, Japan

⁽²⁾Department of Nuclear Engineering and Environmental Physics, School of Engineering Physics, Hanoi University of Science and Technology.

⁽³⁾Radioisotope Research and Preparation Centre, Dalat Nuclear Research Institute.

Keywords: Porous MoO₃ target, Mo wires, heating, MNCPIX, DNRR.

Technetium-99m (^{99m}Tc), a daughter nucleus from β decay of ⁹⁹Mo, is the most widely used medical radioisotope [1]. Due to non-proliferation regulations in Japan, it is not possible to produce ⁹⁹Mo by a nuclear fission (n, f) method requiring highly enriched uranium. Therefore, a neutron capture (n, γ) method has been developed to supply ⁹⁹Mo domestically. From our previous research, the hot atom effect of radioisotopes after irradiation was proved in MoO₃ powder, and this effect can be utilized in the radioisotopes extraction process using only water [2]. However, to utilize the hot atom effect to extract radioisotopes, a porous target of MoO₃ is necessary. The sintering method using MoO₃ and NaCl powders was investigated to make a MoO₃ porous target previously [3,4]. Nevertheless, the porous structure has not been successfully made. Therefore, in this report, Mo wires were heated in an electrical furnace at 500 and 550 °C with one and two-step heating in air to synthesize a good MoO₃ porous structure. Mo wires were characterized by X-ray diffraction (XRD) and scanning electron microscopy (SEM) after heating. The results in Fig. 1 showed that α -MoO₃ was formed after heating at both conditions of one-step (Fig. 1 (a)) and two-step (Fig. 1(b)) heating and the MoO₃ porous structure was made and strongly maintained by small remaining Mo wire (Fig. 2). These porous MoO₃ structures after characterizing were chosen as targets to be irradiated in the neutron irradiation experiment and compared with α -MoO₃ powder. In order to predict the result of the neutron irradiation experiment, the activity of MoO₃ porous wire was preliminary calculated by theory and Monte Carlo N-Particle Transport Code (MNCPIX) with the irradiation conditions. From the results in this work, the MoO₃ porous structure from Mo wire was successfully made by a simple heating method; the simulation results supported choosing the best condition for irradiation experiment in the next step. Currently, the irradiation experiment is being conducted at Dalat Nuclear Research Reactor (DNRR); the result will be presented at the conference.

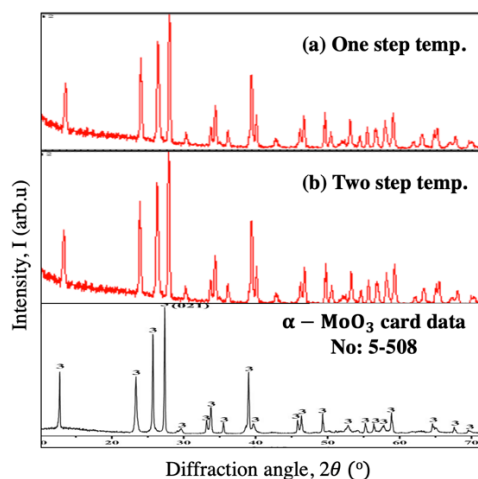


Fig.1. XRD results of α -MoO₃ sample were synthesized

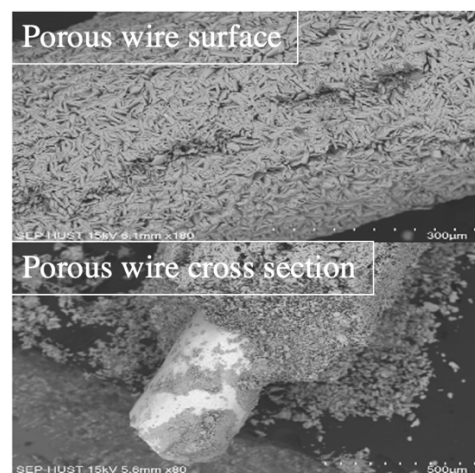


Fig.2. SEM results of porous α -MoO₃ surface and the Mo core inside of wire.

References

- [1] R. E. Boyd, "Molybdenum-99: Technetium-99m generator", National Center for Biotechnology Information, 123-145, 1982.
- [2] H. Suematsu et.al, ホットアトムと含水 MoO₃ 多孔体による ^{99m}Tc 医療用放射性同位元素作製法開発.
- [3] M. Seki, "Development of water nuclide separation method for medical ⁹⁹Mo / ^{99m}Tc generator development", Nagaoka University of Technology, (2017).
- [4] T.Q.Thang, "Development of porous MoO₃ target for radioisotope separation with water", Nagaoka University of Technology, (2020).