



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	荷電粒子入射反応における医療用放射性核種 ^{169}Yb の生成断面積測定 [論文内容及び審査の要旨]
Author(s)	花田, 萌美
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(医理工学)
Dissertation Number	甲第14118号
Issue Date	2020-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/78120
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Moemi_Hanada_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学位論文内容の要旨

博士の専攻分野の名称 博士（医理工学） 氏 名 花田 萌美

学 位 論 文 題 名

荷電粒子入射反応における医療用放射性核種 ^{169}Yb の生成断面積測定
(Cross section measurements of charged-particle induced reactions to produce medical radionuclide ^{169}Yb)

【背景と目的】

放射性核種は放射線源として、工学や医学など様々な分野で広く利用されている。中でも、核医学では、治療と診断共に放射性核種を利用している。より良い医療を求め、その研究開発は現在でも続けられている。

新しい医療用放射性核種が利用検討される際、効率的な生成手法が求められる。生成手法の決定には、生成確率を示す生成断面積（Cross section）といった核反応データが不可欠である。現状、このような核反応データはすべての核反応については十分に揃っていない。その他にも、データが存在していても、応用利用できるだけの信頼性のあるデータが揃っていない、誤差が大きい、データが古いなどの問題点が存在する場合もある。

また、医療用放射性核種生成に用いられる原子炉についても、廃炉や建て替えなどに加え、燃料が高濃縮ウランから低濃縮ウランに変更されることから、今までの生産量や価格を維持することが難しくなっている。更に、原子炉では廃炉の際、残留長寿命核種、いわゆる核のゴミが問題となる。そのため、これらの問題を少しでも軽減するような、原子炉以外による生成手法へ移行していく事が求められている。その中でも我々は、加速器を用いた荷電粒子入射反応に着目して、医療用放射性核種生成に関する系統的な実験を行なっている。

加速器を用いることで、今まで 100%海外輸入に頼っていた放射性核種の国内生産が可能となる。また、陽子、重陽子、アルファ粒子などの荷電粒子入射反応では原材料が目的核種とは異なる元素であるため、化学分離による比放射能の高い目的核種を得ることができる。

このような現状を踏まえて、新しい医療用放射性核種として小線源治療や画像診断に用いられることが期待されているイッテルビウム-169 (^{169}Yb) に着目した。 ^{169}Yb は、半減期 32.02 日のガンマ線放出核種である。このガンマ線が治療に適していることから、小線源治療への利用の検討がされている。また放出するガンマ線の中でも比較的強度が高い、177.21 keV ($I_\gamma = 22.16\%$) と 197.96 keV ($I_\gamma = 35.8\%$) のガンマ線が検出にも適していることから診断技術への応用も検討されている。

この医療用放射性核種 ^{169}Yb を生成する荷電粒子入射反応には、ツリウム (Tm) への陽子、重陽子、アルファ粒子入射反応及びエルビウム (Er) へのアルファ粒子入射反応が考えられる。これらの反応による ^{169}Yb の生成核反応データは少なく、応用には不十分であるため、系統的に実験を実施することとした。これにより、医療用放射性核種である ^{169}Yb の生成核反応データの充実及び、信頼性の確保を行うことで、医療分野への貢献を行うことが本研究における目的である。

修士課程で ^{169}Tm への重陽子入射反応実験を行い、博士課程では引き続いて、 ^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応、 $^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射反応と系統的に実験を実施した。

【材料と方法】

全ての実験は、確立された手法である放射化積層箔法と高純度ゲルマニウム検出器を用

いたガンマ線分光法を適用し、理化学研究所にて実施した。以下に ^{169}Tm 及び $^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射反応実験それぞれの実験条件を示す。

[^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応実験 1] 純度 99.0% の ^{169}Tm 金属箔 1 枚と純度 99.6% の ^{27}Al 金属箔 2 枚を 1 組とし、9 組から成る計 27 枚を積層箔標的とした。 ^{169}Tm 箔、 ^{27}Al 箔の厚さは、裁断前の大きな金属箔の質量及び面積から算出し、それぞれ 28.65 mg/cm^2 及び 1.50 mg/cm^2 である。この積層箔標的にビーム強度 178.6 nA の 51.6 MeV アルファ粒子を 2 時間照射した。

[^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応実験 2] 実験 1 の積層箔標的の先頭に ^{27}Al 金属箔を 1 枚追加した計 28 枚から成る積層箔標的に、ビーム強度 186.8 nA の 50.7 MeV アルファ粒子を 1 時間照射した。

[$^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射反応実験] 純度 99% の $^{\text{nat}}\text{Er}$ 金属箔と純度 99.6% の $^{\text{nat}}\text{Ti}$ 金属箔を、より多くのデータ点を得られるよう変則的に重ねた計 32 枚の積層箔標的を作成した。 $^{\text{nat}}\text{Er}$ 及び $^{\text{nat}}\text{Ti}$ の厚さは、裁断前の大きな金属箔の質量及び面積から算出し、それぞれ 20.06 mg/cm^2 及び 2.26 mg/cm^2 である。この積層箔標的にビーム強度 200.3 nA の 50.9 MeV アルファ粒子を 1 時間照射した。

【結果】

それぞれの実験において、 ^{169}Yb 及び副生成物についての生成断面積を得た。実験結果は、先行研究及び理論データベース値である TENDL-2017 との比較を行なった。

[^{169}Tm へのアルファ粒子入射反応実験] ^{169}Yb の他に副生成物である $^{169,170,171,172}\text{Lu}$ 及び $^{167,168,170}\text{Tm}$ の計 8 核種の生成断面積を得た。 ^{169}Yb 生成の結果は、唯一存在する Mohan Rao らによる先行研究のデータよりも大きい値となり、TENDL-2017 は実験値と比較して過小評価している結果となった。また、 ^{169}Yb 生成には ^{169}Lu 崩壊による生成経路が重要となることもわかった。

[$^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射反応実験] ^{169}Yb の他に副生成物である ^{166}Yb 及び $^{165,166,167,168,170,173}\text{Tm}$ の計 8 核種の生成断面積を得た。 ^{169}Yb 生成の結果は、それぞれ異なる傾向を示していた 4 つの先行研究の中で、比較的新しい先行研究 Király らのデータと傾向が一致した。しかしながら、断面積の大きさは Király らよりも小さい値となった。TENDL-2017 は、Király らと我々の実験結果の 2 つの実験と同様の振る舞いを見せたが、実験値と比較して過小評価している結果となった。

【考察】

^{169}Yb 生成に関する複数の荷電粒子入射反応実験を比較するために、 ^{169}Tm への重陽子及びアルファ粒子入射反応、 $^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射反応それぞれについて、我々の実験結果を用いて生成量 (Yield) を算出した。それらと、Tárkányi らによる ^{169}Tm への陽子入射反応実験の生成量を比較したところ、 ^{169}Tm への重陽子入射反応が低いエネルギーで最も多くの ^{169}Yb を生成できることがわかった。このことから、荷電粒子入射反応による ^{169}Yb 生成の中では ^{169}Tm への重陽子入射反応が最も効率の良い反応であると考えられる。

【結論】

医療用放射性核種 ^{169}Yb 生成荷電粒子入射反応実験を理化学研究所 AVF サイクロトロン使用して系統的に実施してきた。博士課程では、 ^{169}Tm 及び $^{\text{nat}}\text{Er}$ へのアルファ粒子入射反応実験を実施し、 ^{169}Yb の生成を中心に他の副生成物の断面積も得た。これらの実験結果をもとに生成量を算出し、荷電粒子入射反応の比較を行ったところ、 ^{169}Tm への重陽子入射反応が最も効率の良い方法だということが分かった。