

< 2 > 新規産業開発研究

< 2 - a > 先導的探索 / 実証研究

サブテーマリーダー：光産業創成大学院大学 土屋 裕

(代理：光科学技術研究振興財団 コア研究室 研究リーダー 青島紳一郎)

小テーマ： 物質改変～陽電子放出核種生成ターゲットの研究

研究従事者：光科学技術研究振興財団 コア研究室 研究員 高橋宏典、大須賀慎二、松門宏治

浜松ホトニクス株式会社中央研究所 岡崎茂俊、伊藤利昭、塚田秀夫

## ( 1 ) 研究の概要、新規性及び目標

### 研究の概要

テーマ「レーザーによる陽電子放出核種生成実験」と連携して、高強度フェムト秒レーザーによる短寿命放射性同位体の生成に必要な各種ターゲットを調査検討し、準備したターゲットを実証実験に使用して評価した。その結果、この粒子発生ターゲットが高エネルギー重陽子の発生に有効であることを実証できた。

### 研究の独自性・新規性

高強度場における新しい物理の研究が、各国を代表する先端的な大型の研究施設で始められており、応用の一つとして同位体生成が上げられている。本事業では、重陽子を利用した閾値が低い反応に着目し、それに適合した新規なレーザー照射ターゲットを提案するとともに、実際に作製してそれが成功した。また、当該地域ではPET 装置が運用されており、その現場サイドのニーズを基に検討を実施出来たことは他の研究機関と異なり、独自性がある。よって、本共同研究は、独自性・新規性のある研究である。

### 研究の目標

フェーズ 1 では、PET 用放射性同位体生成の基礎実験を実施するため、重陽子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に調査する。放射性同位体生成の高効率化を図るため、レーザー励起重陽子発生および放射性同位体生成ターゲットを調査検討し、重陽子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に検討する。

平成 13 年度の目標は、ポジトロン CT 用放射性同位体 ( $^{150}$ ) 生成の基礎実験を実施するため、重陽子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に調査することである。

平成 14 年度の目標は、レーザーによる放射性同位体生成の高効率化を図るため、レーザー励起重陽子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットの調査検討し、重陽子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に検討することである。

フェーズ 2 では、陽電子放出核種生成の高効率化を図るため、レーザー励起粒子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットを研究する。さらに、レーザー励起高エネルギー粒子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットを調査検討し、PET 用陽電子放出核種生成の総合効率の高率化を図る。

平成 15 年度の目標は、放射性同位体生成の高効率化を図るため、レーザー励起重陽子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットの研究を行うことである。

平成 16 年度の目標は、陽電子放出核種生成の高効率化を図るため、レーザー励起粒子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットを研究することである。

平成 17 年度の目標は、PET 用陽電子放出核種生成の高効率化を図るため、レーザー励起高エネルギー粒子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットを調査検討し、PET 用陽電子放出核種生成の総合効率の高率化を図ることである。

## ( 2 ) 研究の進め方及び進捗状況

フェーズ 1 では、平成 13 年度途中から、< 2 > 新規産業開発研究 のサブテーマ< 2 - a > 先導的探索研究において、物質改変の中の小テーマ レーザー励起重陽子発生ターゲットと放射性同位

体生成ターゲットの調査検討として進めた。高密度超短パルス光照射による PET 用放射性同位体生成の基礎実験に向けての最適な実験系構築のため、高密度超短パルス光照射による重陽子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に調査し、核反応  $^{12}\text{C}(\text{d},\text{n})^{13}\text{N}$ 、 $^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$  が有望であることを明らかにした。さらに、PET 用放射性同位体生成の高効率化を図るため、重水素化ポリスチレンを多孔質のフィルム状フィルターへ染み込ませたレーザー励起重陽子発生ターゲットと、メラミン樹脂による放射性同位体生成ターゲットを提案した。

平成 13 年度は、高密度超短パルス光照射によるポジトロン CT 用放射性同位体 ( $^{15}\text{O}$ ) 生成の基礎実験に向けての最適な実験系構築のための各種知見を得るため、高密度超短パルス光照射による重陽子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に調査した。

平成 14 年度は、ポジトロン CT 用放射性同位体生成の高効率化を図るため、前年度に引き続いてレーザー励起重陽子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットを調査検討し、重陽子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に検討した。

フェーズ 2 では、< 2 - a > 先導的実証研究～物質改変 の小テーマ 陽電子放出核種生成ターゲットの研究として進めた。高エネルギー粒子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に検討し、陽電子放出核種生成の高効率化を図るため、レーザー励起高エネルギー粒子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットを調査検討し、陽電子放出核種生成の総合効率の高率化を図った。

平成 15 年度は、ポジトロン CT 用放射性同位体生成の高効率化を図るため、前年度までの成果を踏まえ、レーザー励起重陽子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットを調査検討し、重陽子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に検討した。

平成 16 年度は、ポジトロン CT 用陽電子放出核種生成の高効率化を図るため、前年度までの成果を踏まえ、レーザー励起高エネルギー粒子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットを調査検討し、高エネルギー粒子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に検討した。

平成 17 年度は、PET 用陽電子放出核種生成の高効率化を図るため、レーザー励起高エネルギー粒子発生ターゲットと放射性同位体生成ターゲットを調査検討し、PET 用陽電子放出核種生成の総合効率の高率化を図った。

### (3) 主な成果

#### 重陽子発生ターゲットの開発と放射性同位体生成ターゲットの調査・検討

短寿命放射性同位体への物質改変に関して、ポジトロン CT 用の標識薬剤に必要な短寿命放射性同位体をレーザーで生成する各種の方法について調査・検討・試算し、重陽子ビームを利用する方法が有望であることを見出した。

ポジトロン CT で使用される短寿命放射性同位体標識薬剤に使用する短寿命放射性同位体の生成に関して、調査および試算等の検討を行った結果、高密度超短パルス光照射によって発生する重陽子の性質が放射性同位体生成に大きく影響することが明らかになった。また、重陽子の性質は重陽子発生ターゲットの特性や構造に、また放射性同位体生成効率は同位体生成ターゲットの特性や構造に大きく依存することが明らかになった。そこで、最適な実験系を構築するためには、超短パルス光制御・計測技術、重陽子発生、放射性同位体生成に関する知見以外に、重陽子発生ターゲット、放射性同位体生成ターゲット、放射線計測防御法についての専門的かつ実用的な知見が必要であることが明らかになった。そこで、最適な実験系を構築するため、重陽子発生および放射性同位体生成ターゲット、放射線計測防御法などについて、専門的実用知識や技術を所有する浜松ホトニクスとの共同研究としての本テーマを平成 13 年度途中から開始した。

次に、ポジトロン CT 用放射性同位体生成の高効率化を図るため、重陽子発生と放射性同位体生成の関係を実験的に検討し、レーザー励起重陽子発生ターゲットとして重水素化ポリスチレンを選択した。また、基礎実験用の放射性同位体生成ターゲットの検討を行い、メラミン樹脂を選択した。

重陽子発生ターゲットとして水素を重水素で置換した材料が必要である。真空環境でレーザーを照射するため、ターゲット材料としては、蒸気圧が低く真空中で気化しないものを選択しなければならない。文献調査の結果、重水素化ポリスチレンが用いられていることがわかった。

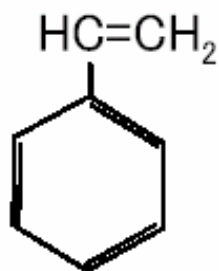


図1 スチレンの構造式

表1 ポジトロン CT 用短寿命放射性同位体の反応

高速粒子	反応	寿命 (半減期)	反応 しきい値	材料の 天然存在度
陽子 p	$^{11}\text{B} (p, n) ^{11}\text{C}$	20.4 min	3.0 MeV	80.10%
	$^{16}\text{O} (p, ) ^{13}\text{N}$	9.96 min	5.5 MeV	99.80%
	$^{15}\text{N} (p, n) ^{15}\text{O}$	2.04 min	3.7 MeV	0.37%
	$^{18}\text{O} (p, n) ^{18}\text{F}$	109.7 min	2.6 MeV	0.21%
重陽子 d	$^{12}\text{C} (d, n) ^{13}\text{N}$	9.96 min	0.3 MeV	98.93%
	$^{14}\text{N} (d, n) ^{15}\text{O}$	2.04 min	0 MeV	99.63%
	$^{20}\text{Ne} (d, ) ^{18}\text{F}$	109.7 min	0 MeV	90.48%

ポリスチレンは、スチレン  $\text{CH}_2 = \text{CHC}_6\text{H}_5$  (図1の構造式を参照)の重合体である。スチレンには8個の水素Hが含まれており、すべてのHを重水素Dに置換した重水素化スチレン  $\text{C}_8\text{D}_8$ は、例えばアルドリッチ社から入手可能である。そこで、外部専門業者へ委託して、重水素化スチレンを原材料として重合をおこなった粉末状の重水素化ポリスチレンを得た。

ポジトロン CT に用いられる放射性同位体の一覧を表1に示す。 $^{18}\text{F}$ の半減期は約2時間であり、サイクロトロンで作成したものをデリバリーすることが可能である。一方、 $^{13}\text{N}$ と $^{15}\text{O}$ の半減期は数分間であり、デリバリーは困難である(特に、酸素はエネルギー代謝を評価するために使われる)。重陽子を用いる場合、これらの同位体を生成するための材料として天然に多く存在する $^{12}\text{C}$ 、 $^{14}\text{N}$ が利用可能であり、実用上も有利である。したがって、表1に示した および の可能性を実験的に確かめることとし、上記炭素Cならびに窒素Nを含む材料の検討を行った。

ポジトロン CT に用いる場合、ガス状の材料を用いて放射性同位体を生成し、気体あるいは生理食塩水等の液体として体内へ取り込ませる必要がある。ただし、ガス材料を真空中で取り扱うことは難しい。そこで、特性を評価する基礎実験の段階では固体材料を用いて行うこととし、炭素と窒素を含む材料としてメラミン樹脂を選択した。

メラミン( $\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$ )とその樹脂の構造式を図2に示す。窒素Nと炭素Cが含まれており、これを重合したメラミン樹脂は食器や建築材として多く使用されており入手が容易である。このため、基礎実験用の材料として適している。メラミン樹脂を放射性同位体ターゲットとして用いると、表1の反応によって $^{15}\text{O}$ と $^{13}\text{N}$ が同時に生成されることが予想される。これらの半減期は、それぞれ10分と2分と異なり、放射線計測時に区別することが可能である。

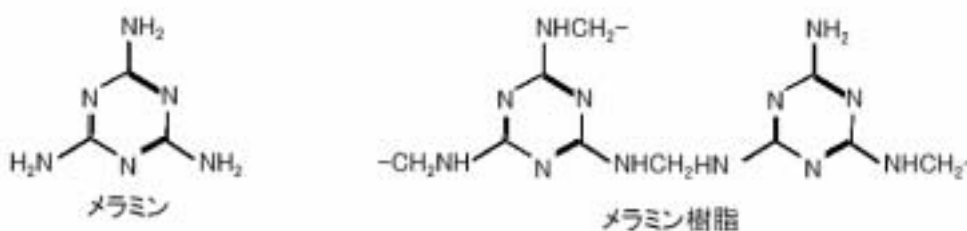


図2 メラミンとその樹脂の構造式

### 重陽子発生ターゲットの製作

重水素化ポリスチレンを多孔質のフィルム状フィルターへ染み込ませたレーザー励起重陽子発生ターゲットを試作した。先に準備した重水素化ポリスチレンは重合度が不十分であったため、ポリスチレン単体では強度の高い薄膜を得ることが困難であった。そこで、別途用意した下地となる薄膜上に重水素化ポリスチレンを塗布あるいは染み込ませる方法を適用することにした。下地となる薄膜は、酸、アルカリ、有機溶媒の除粒子、除菌濾過に用いられるメンブレンフィルターが適していると考えられ、フッ化エチレン樹脂のみから作られた PTFE タイプメンブレンフィルター（孔径 3  $\mu\text{m}$ 、多孔度 83 %、厚さ 75  $\mu\text{m}$ 、直径 90 mm）を選択した。

ターゲットを作成する作業工程は以下の通りである。

重水素化ポリスチレン 50 mg をトルエン溶媒 1 ml へ溶かしてシャーレへ広げる。

フィルターを溶液に浸けて溶液を吸わせる。

フィルターを取り出し、テフロンシート上へ広げて乾燥させる。

乾燥したフィルターをコート紙ではさんで厚い本等で圧縮してしわを伸ばす。

図3にターゲット治具に取りつけて TW レーザーを照射された重陽子発生ターゲットの様子を示す。レーザー照射によって穴が開いていることがわかる。

ポジترون CT 用放射性同位体生成の高効率化を目指して、今後のターゲット改良のヒントを得ることを目的として、他の研究機関から報告されている粒子加速ターゲットの調査検討を行った。

米国ローレンスリバモア研究所 (LLNL) では、種々の厚さを持つ固体ターゲットにレーザーを集光照射した場合の陽子加速の実験がおこなわれている (Phys. Rev. Lett. Vol.88, 215006 (2002)). パルス幅 100 fs のレーザーを集光して集光強度  $10^{20}$  W/cm<sup>2</sup> 以上を実現し、これを厚さ 3  $\mu\text{m}$  から 100  $\mu\text{m}$  のアルミ箔ターゲットに照射して放出される高速陽子をラジオクロミックフィルムと CR-39 粒子検出器で計測した。また、シミュレーションも行ってその妥当性を評価した。

図4は、ターゲット膜の厚さを変えた場合に得られる陽子のピークエネルギーを示している。厚さ 3  $\mu\text{m}$  では 24 MeV と高いピークエネルギーが得られているが、厚くなるにつれてピークエネルギーは減少し、厚さ 100  $\mu\text{m}$  では 6.5 MeV となった。実験データと一緒にシミュレーション結果も示されており、両者は良い一致を示している。また、図5は、各厚さにおける陽子のエネルギースペクトルを示している。両図から明らかなように、薄いアルミ箔ターゲットほど高いエネルギーを持つ粒子を多く発生できることがわかった。

粒子発生機構に関してはまだ未解明の内容が多くあり、LLNL と同様の結果が得られるとは言えないが、ターゲット膜の厚さが重要なパラメータであることがわかった。本実験で用いている粒子発生ターゲットは、LLNL で用いているアルミ箔とは異なり、重水素化ポリスチレンを多孔質 PTFE フィルター染み込ませたものである。PTFE フィルターの膜厚は 75  $\mu\text{m}$  であるが、ポリスチレンを染み込ませた後にしわができないように圧縮しているため、ターゲットの厚さは 40 ~ 50  $\mu\text{m}$  である。

重水素化ポリスチレンを多孔質 PTFE フィルター染み込ませた重陽子発生ターゲットから重陽子が発生できていることが確認できたが、不純物を起源とする陽子の方が量的に多く発生されてしまうという問題があった。

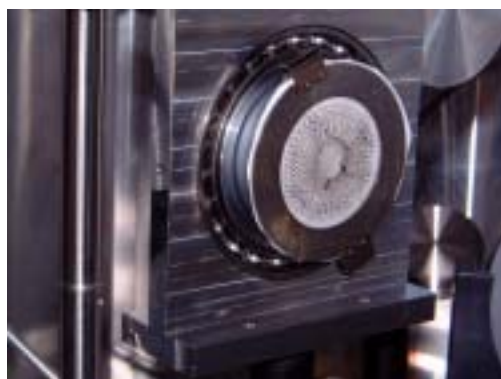


図3 TW レーザー照射実験後の重陽子発生ターゲットの様子

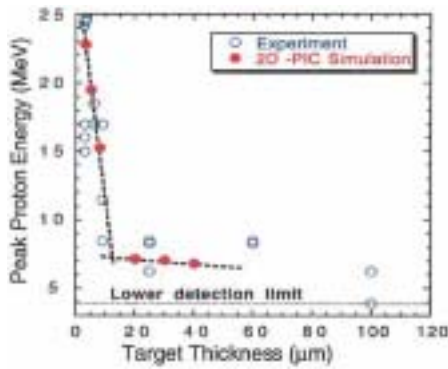


図4 陽子のピークエネルギー

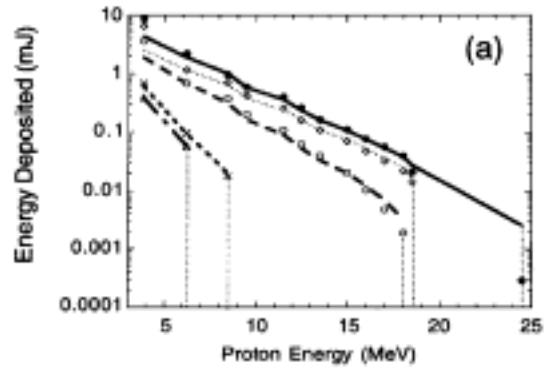


図5 陽子のエネルギースペクトル

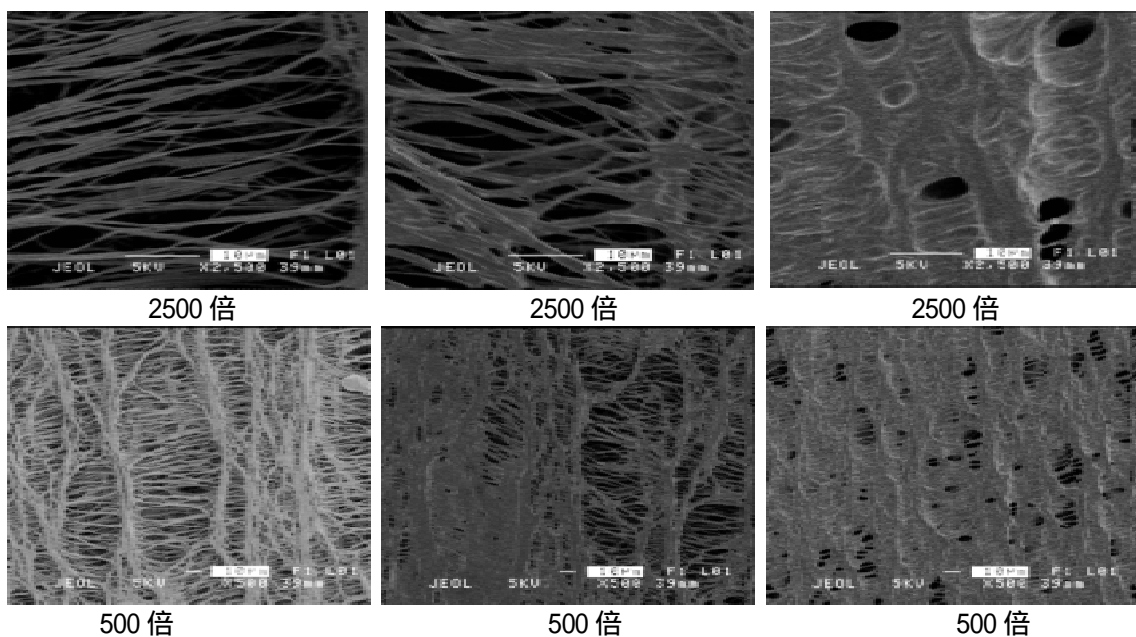
(Phys. Rev. Lett. Vol.88, 215006 (2002)から引用)

そこで、試作したターゲットの構造の検討をおこなうため、走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いてターゲットの表面を観察した。得られたSEM像を図6に示す。

基板である PTFE フィルターは多孔質の構造を持っているため、図6(a)に示すように繊維状の PTFE が複雑に絡み合った構造をしていることがわかった。図6(b)は、通常の実験に用いている重陽子発生ターゲット (直径 90 mm の PTFE 膜に重陽子化したポリスチレン 50 mg をトルエン 1 ml に溶かしてしみ込ませた) の様子を示している。この場合、PTFE 膜の一部にポリスチレンが付着していることがわかった。図6(c)は通常の4倍の量の重陽子化ポリスチレンをしみ込ませた場合の観測結果である。この時、ポリスチレンは PTFE の繊維の隙間に多くしみ込んでいることがわかった。

重水素化ポリスチレンを多孔質 PTFE フィルター染み込ませた重陽子発生ターゲットと、メラミン樹脂による基礎実験用の放射性同位体ターゲットを開発して実験に使用し、1 MeV 以上のエネルギーをもつ重陽子が発生できることが確認された。こうして発生できた重陽子を上記放射性同位体ターゲットに照射させて同位体生成の実験をおこなったが、放射化は確認されなかった。検討の結果、その原因は、最も多く発生している粒子が陽子であり、放射化に必要な重陽子の数が不足しているからであると考えられた。

そこで、陽電子放出核生成実験のための高エネルギー粒子発生ターゲットとして、長時間の連続使用が可能なテープターゲットシステムを検討した。開発にいたる経緯と検討の結果得られた仕様は、以下の通りである：



(a) PTFE (b)  $C_8D_8$  1 time coated PTFE (c)  $C_8D_8$  4 times coated PTFE

図6 走査型電子顕微鏡で観測したターゲットの表面の様子



当該実験においては、現在は回転円盤状のターゲット薄膜を用いているが、この方法では、ターゲット面積で決まるショット数の制限(1500ショット程度)や、照射の繰り返しによる膜の破壊のためにターゲット面に凹凸が生じてレーザーの焦点から外れる等の問題がある。これらの問題を解決するために、テープ状ターゲットの導入を検討した。テープ状ターゲットを用いれば、テープの長さに応じてショット数を任意に増加させることができ、また、常に適当な張力をかけながらテープ送りをするため、ターゲット面をレーザーの焦点深度の範囲に保持することも可能になり、現行のターゲットシステムが抱える問題を解消することができる。

以下にテープターゲットシステムの構成と各部の仕様の検討結果についてまとめる

テープ状ターゲット部： 経験的には、レーザーショットによって直径1 mm程度の穴が開くが、その穴の間隔を1 mmとすれば裂け目を生じないことが分かっているため、500ショット/mの照射が可能である。現在使用している多孔質PTFEフィルターをテープ状にしたもの(幅20mm)の長さの最小単位は10 mであるが、これを繋ぎ合わせて40 mのテープを作った場合、現行の10倍以上のショット数が得られる見込みである。

テープ保持・送り部： テープ保持部は、上記のPTFEフィルターテープおよび将来的に用いられる可能性がある金属箔テープ(幅5 mm、Ti：厚さ1.5  $\mu\text{m}$ 、Ta：厚さ3  $\mu\text{m}$ 等)の両方に対応できるように、幅が異なる2種類のリールが使えるようにする。また、テープ送りのガイドローラーは、2段階のガイド溝を有する構造にして両方のテープ幅に対応できるようにする。

駆動部： テープの送り速度は可変で最大4 cm/secとし、テープ使用量を測るためのエンコーダーを取り付ける。PTFEフィルターと金属のテープでは、引っ張り張力に対する破断限界が大きく異なるため、張力調整機構には、(ア)破断限界の大きなPTFEフィルターテープに対しては、巻取り側と送り側のそれぞれのリールにモーターを取り付けて、両側での回転数に僅かに差をつけて張力を発生させ、(イ)破断しやすい金属テープを回す場合は、送り側のリールからモーターを切り離してリールの摩擦のみで張力を発生させるようにして、2つのモードに対応するためのモーター保持機構を付加する。

この仕様に基づいて製作したテープターゲット装置の外観写真を図7に示す。実機の性能は以下の通りである。適合するテープは、幅5 mmと20 mmの2種類である。前者は金属テープ(Ti：1.5  $\mu\text{m}$ 厚)、後者は現在使用しているPTFEをテープ状にしたものに対応する。これら以外の材質のテープにも対応するため、張力調整用の予備モーターが装備されている。上述したように、レーザーショットによってターゲットには直径1 mm程度の穴が開くが、その穴の間隔を1 mmとすれば裂け目を生じない事が分かっているため、テープの送り速度が20 mm/s以上であれば、10 Hzでのレーザーショットが可能である。最大送り速度は40 mm/secを達成しているため、20 Hzまでの繰り返しのショットが可能であり、十分な性能を有している。また、このピッチ(2 mm/ショット)での照射をおこなった場合、500ショット/mが可能である。市販のPTFEテープの長さの最小単位は10 mであるが、これを繋ぎ合わせて40 mのテープを作った場合、従来の回転ターゲット装置の10倍以上のショット数が得られ、大幅な改善が達成できる。レーザーの焦点深度方向の位置制御については、チェンバー外から遠隔操作できるようになっており、最適な照射条件を実現する事ができる。



図7 製作したテープターゲット装置



(a) 全体構成の概念



(b) テープのガイド機構を取り付けた溶液槽シャーレ

図8 重水素化ポリスチレン導入装置

重水素化ポリスチレンのトルエン溶液をメンブレンテープに染み込ませる手法で、テープ状の重水素化ポリスチレンテープターゲットを作成した。

重水素化ポリスチレンのトルエン溶液は、1.5 gの重水素化ポリスチレンを30 mlのトルエンに溶かしたものをを用いた。この濃度は、従来用いていた円盤状のターゲットの製作に用いたものと同じである。溶液を染み込ませる作業と、納入時に使われているメンブレンテープの芯からテープターゲット装置用のリールにテープを巻きかえる作業を行うために、図8に示す重水素化ポリスチレン導入装置を試作した。

テープを1度溶液中に通しただけでは、十分には染み込んでいないように考えられたので、1 m程度ずつ毎に、巻取りと巻き戻しを繰り返した。溶液を吸ったテープがシャーレのエッジでしごかれて、少量ではあるが、溶液がシャーレの外壁をつたって散逸していることも確認出来た。30 mlのほとんどを使い切ったが、容器に残った量とシャーレを伝って散逸した分は、全体の10%以内である。10 mのテープのうち、最後の50 cm程度は、芯にかたく巻きつけてあるためか、かなり質が悪く棄てざるを得なかった。10 mのテープに対する作業は1時間程度を要した。

トルエン溶液を吸わせたテープは乾燥させる必要があるが、リールの芯近くに巻き込んだ部分は、トルエンの揮発が進みにくいと予想される。そこで、乾燥に要する時間をターゲットの質量の時間変化から見積もることにした。テープの有効に使用できたテープの長さは、メンブレンの密度などから計算した結果から948 cmと予想され、この場合、テープの乾燥質量は3.578 gである。また、テープドライバー用のリール(アルミ製)は、16.826 gである。結果を図9に示す。

図9のグラフから、2日程度でトルエンが全て揮発している事が分かる。質量は1.35 g付近に

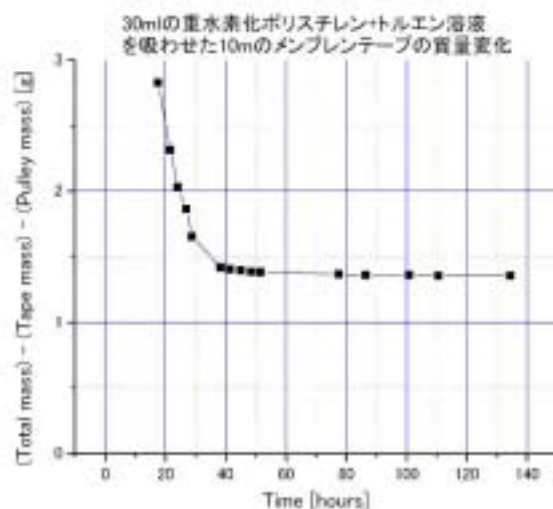


図9 溶液を染み込ませたテープの質量変化



図 10 重水素化ポリスチレンを導入し、トルエンを揮発し終えたテープターゲット

漸近しているが、この値が、テープに入った重水素化ポリスチレンの量であると考えられる。当初用意した溶液には、1.5 g の重水素化ポリスチレンが溶け込んでいたので、10 %程度が作業中に失われたようである。この値は、従来の円盤状ターゲット用のメンブレンに入れることが出来た重水素化ポリスチレンの量よりも約 20 %程度多い。図 10 に完成したテープターゲットを示す。

#### 放射性同位体生成の州立の計算

15 年度までに基礎実験用の放射性同位体生成ターゲットとしてメラミン樹脂を用いて同位体生成の実験をおこなったが、放射化は確認できなかった。そこで本四半期、放射性同位体生成ターゲットの見直しをおこなった。

メラミン樹脂は図 2 にその構造式を示すように窒素 N と炭素 C が含まれている。したがって、高エネルギーの重陽子を入射すると、表 2 に示す二つの核反応が生じる。

表 2 メラミン樹脂に重陽子を入射した時の核反応

高速粒子	反応	寿命 (半減期)	反応 しきい値	材料の 天然存在度
重陽子 d	$^{14}\text{N}(d,n)^{15}\text{O}$	2.04 min	0 MeV	99.63 %
"	$^{12}\text{C}(d,n)^{13}\text{N}$	9.96 min	0.3 MeV	98.93 %

当初、放射化実験として核反応  $^{14}\text{N}(d,n)^{15}\text{O}$  を利用することを予定していたが、生成される  $^{15}\text{O}$  の半減期は約 2 分と非常に短いため、レーザー照射後にメラミン樹脂を真空チャンバーから取り出して、そこから放出される  $\gamma$  線を対向するシンチレータ付光電子増倍管で計測し始めるまで約 2 分かかるため、放出される  $\gamma$  線の量は半減してしまって検出できなかった可能性がある。

一方、 $^{12}\text{C}(d,n)^{13}\text{N}$  から生成される  $^{13}\text{N}$  の半減期は約 10 分と長いため、検出できる可能性が高いと期待されるが、メラミンに含まれる炭素 C が少ないため不利であった。

さらに、各核反応の衝突断面積をより詳細に検討したところ、図 11 に示すように 2 MeV 以下の重陽子に対しては  $^{12}\text{C}(d,n)^{13}\text{N}$  の方が衝突断面積が大きく、より効率良く核反応が生じるであろうと考えられた。そこで、より積極的にこの反応を利用するために、炭素 C をより多く含む材料を放射化ターゲットとして用いることを検討した。

放射性同位体生成の収率を計算するために、基礎実験用の放射性同位体生成ターゲットであるメラミンに対する重陽子の飛程を計算した。

放射性同位体は生成されると同時に崩壊もしていくので、時間  $t$  の照射後に存在する放射性核種の原子数  $N^*$  は次式で与えられる。

$$N^* = Af \{ 1 - \exp(- \lambda t) \} / \lambda$$

ここで、各パラメータは以下の通りである。



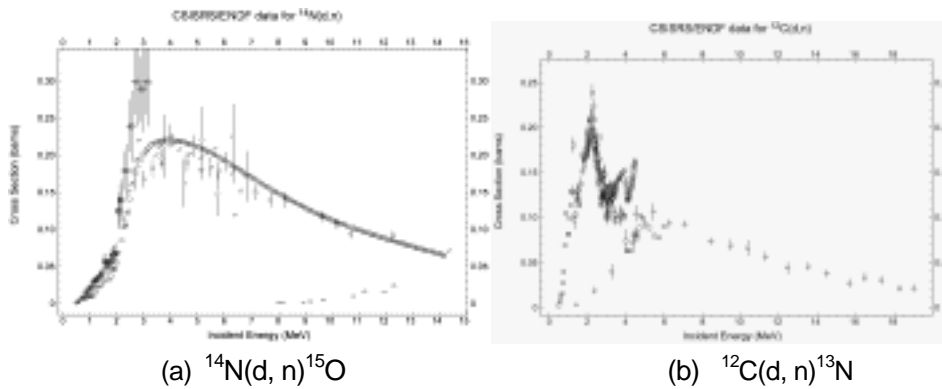


図 11 衝突断面積の比較

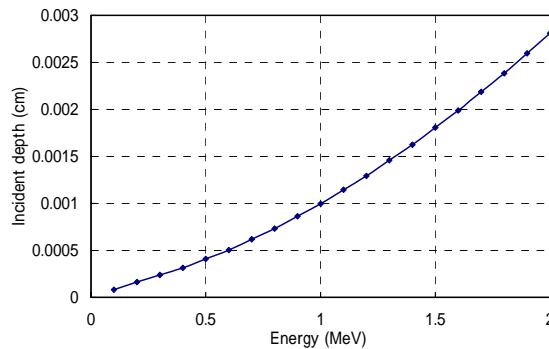


図 12 メラミンに対する重陽子の飛程

- A : ターゲット中に存在する放射化対象核種 (原料の原子) の個数
- f : 粒子フルエンス率 (線束密度) [ $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ] (高エネルギー粒子の数)
- : 核反応断面積 (単位 b バーン) ( $1 \text{ b} = 1 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ )
- : 崩壊率は、  $= \ln 2 / T_{1/2} = 0.693 / T_{1/2}$  (  $T_{1/2}$  は半減期)

ここで、f はトムソンパラボラ型イオン分析器による実測値から得られる。また、 $T_{1/2}$  は文献またはデータベースから知ることができ、 $T_{1/2}$  も文献から知ることができる。

A は原料原子の密度と高エネルギーイオンの材料中における飛程から求めることができる。ここで、飛程は入射するイオンのエネルギーに依存する。具体的には、高エネルギーのイオンほど飛程が大きく、核反応はより多く生じる。原子の飛程は米国立標準技術研究所(NIST)のデータベース (<http://www.nist.gov/srd/atomic.htm>)から得られるが、すべての原子について記載されていない。今回は、アモルファスカーボンに対する陽子の飛程のデータをメラミンに読み替えた。なお、陽子の飛程を重陽子の飛程へ変換する際には、エネルギーEの重陽子の飛程L2はエネルギーE/2の陽子の飛程L1の2倍である ( $L2=2 \times L1$ ) とした。こうして得られたメラミンに対する重陽子の飛程を図12に示す。例えば1 MeVの重陽子のメラミンにおける飛程は9.95  $\mu\text{m}$ であることがわかった。

次に、放射性同位体生成の収率を評価した。収率の計算にあたっては、発生した重陽子のエネルギー分布、上述したメラミン樹脂内で想定される核反応の断面積、メラミン樹脂中における重陽子の飛程等を考慮した。実験で得られた重陽子のエネルギー分布を図13に示す。重陽子がメラミン樹脂に入射した時に想定される核反応  $^{12}\text{C}(d, n)^{13}\text{N}$ 、 $^{14}\text{N}(d, n)^{15}\text{O}$  のそれぞれの反応断面積を図14に示す。メラミン樹脂内部での重陽子の飛程を図15に示す。1秒間当たりの同位体生成量の計算結果を重陽子のエネルギーの関数として、図16に示した。入射する重陽子のエネルギーが高いほど生成される同位体の数が多いことがわかった。具体的には、今回の実験では  $^{13}\text{N}$  は111個生成されて0.13 Bqを放射し、 $^{15}\text{O}$  は37個生成されて0.21 Bq放射することが計算から期待されることがわかった。

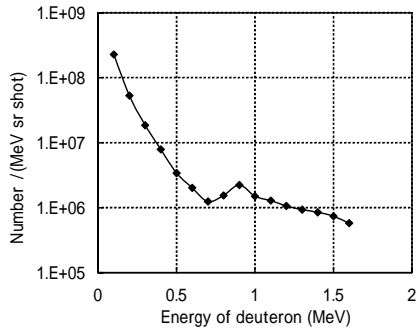


図 13 発生した重陽子のエネルギー分布

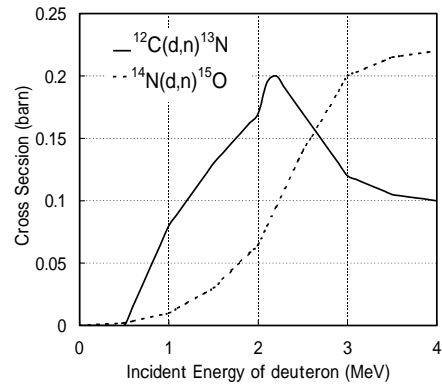


図 14 想定される核反応の断面積

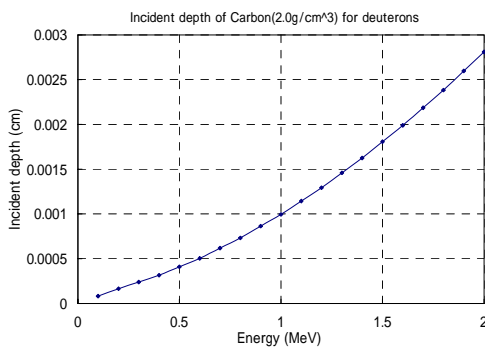


図 15 メラミン樹脂における重陽子の飛程

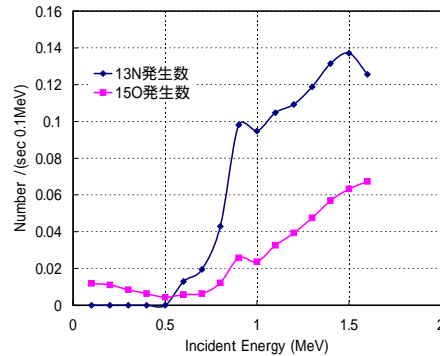


図 16 同位体の生成数 (計算値)

#### イオン発生用ターゲット材料の検討

高エネルギー粒子発生ターゲットの材料として、一般に金属およびプラスチックの優劣が議論されている。前者ではイオンの加速に必要な自由電子に富んでいる事が、後者ではその低密度ゆえにレーザー照射面上で加速された電子が反対側に透過しやすい事が、それぞれの利点として考えられている。

形状については、両者ともに面充填率が 100 % のものが一般に使用されている。われわれが開発し、高エネルギー粒子の発生を実証したターゲットは、非金属である PTFE の多孔質膜であり、後者の低密度である利点をさらに活かそうとしたものである。この多孔質ターゲットに自由電子を大量に含有させて、加速された電子が反対側に透過しやすい利点を付加することができれば、より高性能化を実現できる可能性がある。このような着想の下、調査検討をおこない、以下のようなターゲットを提案するにいたった。

(A) 焼結 Ti メッシュ： 繊維径 20-140  $\mu\text{m}$ 、面充填率 20-50 %、厚さ 100-5,000  $\mu\text{m}$  のものがある。図 17 にその表面の顕微鏡写真を示す。メッシュ構造なので、d-ポリスチレンをしみ込ませることも可能であると思われる。

(B) 導電性プラスチックシート： 通常のプラスチックに炭素を大量に混入して導電性を持たせたもの。半導体デバイスの保存袋などとして、厚さ 50  $\mu\text{m}$  のものが市販されている。

(C) 金属不純物を含む多孔質のメンブレンフィルター： 現在使用している PTFE フィルターは、不純物としての金属の含有量が特に少ないものである。PTFE 以外の成分 (例えばセルロース) からなるフィルターも市販されており、その中には金属の含有量の高いものもあることがわかった。ここで、含有量は金属元素によって異なるが、PTFE と比較すると  $10^2$ - $10^5$  倍程度の違いがある。不純物としての金属がイオンの加速時に必要な電子の放出に寄与できるとすれば、金属含有量の高いフィルターを用いることによって加速電場の増強が期待できる。

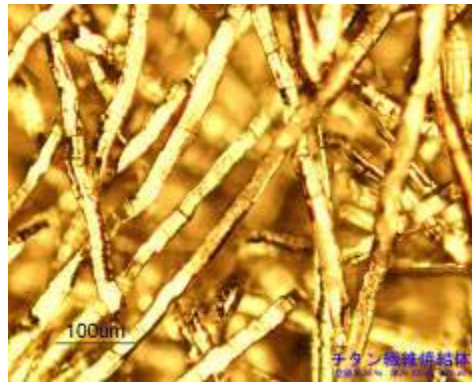


図 17 チタン焼結体の顕微鏡写真

#### (4) 研究成果に関する評価

##### 国内外における水準との対比

高密度レーザーを利用した短寿命放射性同位体の生成は、英国ラザフォード研究所と米国ミシガン大学から報告されている。ただし、ここで報告されている同位体は、 $^{63}\text{Zn}$ 、 $^{11}\text{C}$  であり、本事業で目指す材料とは異なっている。本事業では、PET 装置で適用することを想定した産業化研究を進めており、他の研究機関の姿勢と異なっている。高い技術レベルで制御した、テラワットパルスを用いた実験が可能であり、そこに高性能 PET 装置が運用されている現場サイドのニーズを基にターゲットを検討した。したがって、高い水準で研究を推進してフェーズ を完了した。

##### 実用化に向けた波及効果

PET に必要な短寿命放射性同位体を高密度レーザーによって生成できるようになると、大型で放射線の遮蔽が必要なサイクロトロンが不要になるので多くの医療機関において PET を容易に設置できるようになり、ガン検診等の診断を普及することができる。また、将来的には車載用 PET 施設も期待される。

#### (5) 残された課題と対応方針について

フェーズ では、参画企業においてリーディングプロジェクト等を利用して研究を継続し、実用レベルのレーザーによる短寿命放射性同位体生成を実現するためのターゲットの条件を明確にしていく。