

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02014/103712

発行日 平成29年1月12日 (2017.1.12)

(43) 国際公開日 平成26年7月3日 (2014.7.3)

| (51) Int.Cl.            | F I             | テーマコード (参考) |
|-------------------------|-----------------|-------------|
| G 2 1 G 4/08 (2006.01)  | G 2 1 G 4/08 T  |             |
| G 2 1 G 1/10 (2006.01)  | G 2 1 G 1/10    |             |
| G 2 1 K 1/093 (2006.01) | G 2 1 K 1/093 F |             |

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 23 頁)

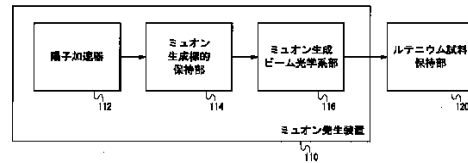
|   |  |
|---|--|
| 出願番号 特願2014-554301 (P2014-554301)         | (71) 出願人 504151365                         |
| (21) 国際出願番号 PCT/JP2013/083161             | 大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構                   |
| (22) 国際出願日 平成25年12月11日 (2013.12.11)       | 茨城県つくば市大穂1番地1                              |
| (31) 優先権主張番号 61/746,839                   | (74) 代理人 100100549                         |
| (32) 優先日 平成24年12月28日 (2012.12.28)         | 弁理士 川口 嘉之                                  |
| (33) 優先権主張国 米国 (US)                       | (74) 代理人 100113608                         |
| (31) 優先権主張番号 特願2012-288140 (P2012-288140) | 弁理士 平川 明                                   |
| (32) 優先日 平成24年12月28日 (2012.12.28)         | (74) 代理人 100138357                         |
| (33) 優先権主張国 日本国 (JP)                      | 弁理士 矢澤 広伸                                  |
|   | (72) 発明者 永嶺 謙忠                             |
|   | 日本国茨城県つくば市大穂1番地1 大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構内 |

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 放射性テクネチウム99m含有物質生成方法及び生成装置

(57) 【要約】

放射性テクネチウム99m含有物質の生成方法および生成装置を提供する。負ミュオンを発生する工程と、負ミュオンをルテニウム試料に照射する工程とを有する放射性テクネチウム99m含有物質生成方法とする。ルテニウム試料は、金属ルテニウム及びルテニウム化合物のうち少なくとも1つを含むことが好ましい。また、ルテニウム試料は、複数の厚さ4mm以下のルテニウム薄板を重ねたものであることが好ましい。



- 110 Muon generation unit
- 112 Proton accelerator
- 114 Muon-generating target holding unit
- 116 Muon-generating beam optical system unit
- 120 Ruthenium sample holding unit

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

負ミュオンを発生する工程と、  
前記負ミュオンをルテニウム試料に照射する工程と、  
を有する放射性テクネチウム 99m 含有物質生成方法。

## 【請求項 2】

前記ルテニウム試料は、金属ルテニウム及びルテニウム化合物のうち少なくとも 1 つを含む  
請求項 1 に記載の放射性テクネチウム 99m 含有物質生成方法。

## 【請求項 3】

前記ルテニウム試料は、複数の厚さ 4 mm 以下のルテニウム薄板を重ねたものである、  
請求項 1 または 2 に記載の放射性テクネチウム 99m 含有物質生成方法。

## 【請求項 4】

負ミュオンを発生するミュオン発生装置と、  
前記ミュオン装置で発生した前記負ミュオンを照射されるルテニウム試料の保持装置と  
、  
を備える放射性テクネチウム 99m 含有物質生成装置。

## 【請求項 5】

前記ルテニウム試料は、金属ルテニウム及びルテニウム化合物のうち少なくとも 1 つを含む  
請求項 4 に記載の放射性テクネチウム 99m 含有物質生成装置。

## 【請求項 6】

前記ルテニウム試料は、複数の厚さ 4 mm 以下のルテニウム薄板を重ねたものである、  
請求項 4 または 5 に記載の放射性テクネチウム 99m 含有物質生成装置。

## 【請求項 7】

前記ミュオン発生装置は、  
複数の超伝導コイルを有し、全長 6 m 以上であるミュオン生成ビーム光学系部を備える  
請求項 4 乃至 6 のいずれか 1 つに記載の放射性テクネチウム 99m 含有物質生成装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、放射性テクネチウム 99m 含有物質生成方法に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

放射性テクネチウム 99m ( $^{99m}\text{Tc}$ : テクネチウム 99 核異性体) は、半減期 6.0 時間であり、ベータ線を出さず、140 keV という測定し易いガンマ線を発生する特性を有する。放射性テクネチウム 99m は、この特性を生かして、核医学という医療の一分野を支える重要な放射線元素であり、骨・腎臓・肺・甲状腺・肝臓など身体各部に対するシンチグラムに用いられている。医用に用いられている全放射性元素のうち、80% が  $^{99m}\text{Tc}$  であり、現在、 $^{99m}\text{Tc}$  の国内使用量は、1k 6day-Ci/週 (6day-Ci は、分離・精製施設を出荷してから 6 日後の放射エネルギーを示す) に達する。

## 【0003】

これまで、放射性テクネチウム 99m は、専用原子炉に高濃縮ウラン 135 ( $^{135}\text{U}$ ) を挿入し核分裂反応を起こさせ、その結果生ずる半減期 6.7 時間のモリブデン 99 ( $^{99}\text{Mo}$ ) を作り、 $^{99}\text{Mo}$  がベータ崩壊することで、得られてきた (原子炉法)。他に、高強度低エネルギー陽子加速器を用いて、高濃縮モリブデン 100 の (p, 2n) 反応によって得られるが、現時点では、医療に使用されている放射性テクネチウム 99m のほぼすべてが、原子炉法によっている。また、我が国で使用されるすべての放射性テクネチウム 99m は、外国の原子炉施設からの輸入に依存している。

## 【先行技術文献】

10

20

30

40

50

## 【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特開2011-153827号公報

【特許文献2】特開2010-127825号公報

【特許文献3】特開2001-85200号公報

【特許文献4】特開平10-106800号公報

【特許文献5】特開2011-105567号公報

【特許文献6】特開2011-2370号公報

【特許文献7】特開2008-31048号公報

【特許文献8】特許2857349号公報

10

## 【非特許文献】

【0005】

【非特許文献1】J.M. Cuttler, 31st Ann. Conf. Canadian Nucl. Soc. (2010).

【非特許文献2】B. Scholten et al., Appl. Radia. Isotopes, 51 (1999) 69.

【非特許文献3】K. Nagamine, "Introductory Muon Science", Cambridge Univ. Press (2003) 1-208.

【非特許文献4】H. Miyadera et al., Nucl. Instr. 569 (2006) 713.

【非特許文献5】T. Suzuki et al., Phys. Rev. C35 (1987) 2212.

【非特許文献6】The Table of Isotopes (8th edition) eds. R.B. Firestone et al. John Wiley (1996).

20

【非特許文献7】D.F. Measday, Phys. Report 354 (2001) 243.

【非特許文献8】M. Lifshitz et al., Phys. Rev. C22 (1980) 2135.

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

【0006】

近年になって、これまで放射性テクネチウム99mの親核モリブデン99を供給してきた外国の原子炉が老朽化し、運転終了廃止の時期が迫っており、高効率の代替の放射性テクネチウム99mの生産方法が模索されている。

【0007】

本発明は、放射性テクネチウム99m含有物質の生成方法を提供することを目的とする。

30

## 【課題を解決するための手段】

【0008】

開示のテクネチウム99m含有物質生成方法は、上記課題を解決するために、以下の手段を採用する。

【0009】

第1の形態は、負ミュオンを発生する工程と、前記負ミュオンをルテニウム試料に照射する工程とを有するテクネチウム99m含有物質生成方法である。

【0010】

第2の形態は、さらに、ルテニウム試料は、金属ルテニウム及びルテニウム化合物のうち少なくとも1つを含む放射性テクネチウム99m含有物質生成方法である。

40

【0011】

第3の形態は、さらに、前記ルテニウム試料は、複数の厚さ4mm以下のルテニウム薄板を重ねたものである、放射性テクネチウム99m含有物質生成方法である。

## 【発明の効果】

【0012】

本発明によれば、放射性テクネチウム99m含有物質の生成方法を提供することができる。

## 【図面の簡単な説明】

【0013】

50

【図 1】図 1 は、本実施形態のテクネチウム 99m 含有物質生成装置の構成例を示す図である。

【図 2】図 2 は、ミュオン生成ビーム光学系部の断面の例を示す図である。

【図 3】図 3 は、500 MeV の陽子と炭素との反応による正パイオン発生の微分断面積、パイオンの運動量依存性（実験値）を示す図である。

【図 4】図 4 は、パイオン崩壊によるミュオン発生の様子を示す図である。

【図 5】図 5 は、飛行中パイオンから発生するミュオンの最高運動量と最低運動量のパイオン運動量依存性を示す図である。

【図 6】図 6 は、色々な運動量のパイオンが崩壊する際に、最低から最高までの運動量のミュオンに対する角度の拡がりを示す、崩壊角を示す図である。

10

【図 7】図 7 は、期待される負ミュオン発生量の計算例を示す図である。

【図 8】図 8 は、負ミュオンによるルテニウム核吸収反応（1）を示す図である。

【図 9】図 9 は、負ミュオンによるルテニウム核吸収反応（2）を示す図である。

【図 10】図 10 は、原子番号がルテニウムに近い<sup>107</sup>Agとミュオンとの核吸収反応の割合の実験値又は理論値を示す図である。

【図 11】図 11 は、様々な物質中のミュオンの飛程のミュオン運動量依存性を示す図である。

【図 12】図 12 は、様々な物質中の光の吸収係数の光エネルギー依存性を示す図である。

【図 13】図 13 は、原子炉・低エネルギー陽子加速器・中間エネルギー陽子加速器による放射性テクネチウム 99m の生成量と特徴とを示す図である。

20

【図 14】図 14 は、シミュレーション計算によるミュオン生成ビーム光学系部 116 の ±5% 運動量幅の確認を示す図である。

【図 15】図 15 は、シミュレーション計算によるミュオン生成ビーム光学系部 116 の立体角の確認を示す図である。

【図 16】図 16 は、照射試料分析系の例を示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0014】

以下、図面を参照して実施形態について説明する。実施形態の構成は例示であり、開示の実施形態の構成に限定されない。

30

【0015】

〔実施形態〕

（ミュオン）

ミュオンは、素粒子の一種である。ミュオンには、正負の電荷を持つ 2 種類の粒子がある。正の電荷を有する正ミュオン及び負の電荷を有する負ミュオンの真空中の寿命は、 $2.2 \mu\text{s}$  である。ミュオンの質量は、陽子の  $1/9$  倍、電子の  $207$  倍である。ミュオンは、宇宙線としても地表に飛来するが、 $150 \text{ MeV}$  以上のエネルギーの陽子等を発生することができる粒子加速器を用いて大量に作られる。

【0016】

物質中に止められたミュオンは、主として、周囲の原子と電磁相互作用をするため、正ミュオンを軽い陽子、負ミュオンを重い電子と考えて、ミュオンの物質中での挙動を理解することができる。

40

【0017】

$1 \text{ MeV}$  程度以上のエネルギーを有する負ミュオン（重い電子）を物質中に注入し、静止させると、次の現象が起こる。

【0018】

（1）負ミュオンは、周辺電子をくぐり抜け原子核に近づき、原子核周辺に小さい原子（ミュオン原子）の高励起状態をつくる。

【0019】

（2）負ミュオンは、ミュオン原子内遷移を経て、1 ナノ秒以下の時間で、基底状態に

50

達する。原子番号  $Z$  のミュオン原子の基底状態の半径は、 $270 / Z \times 10^{-13} \text{ cm}$  であり、 $^{100}\text{Ru}$  ( $Z = 44$ ) では、 $6.14 \times 10^{-13} \text{ cm}$  である。

【0020】

(3) 質量数  $A$  の原子核の半径は、 $1.2 \times A^{1/3} \times 10^{-13} \text{ cm}$  であり、 $^{100}\text{Ru}$  ( $Z = 44$ ) の原子核の半径は、 $5.57 \times 10^{-13} \text{ cm}$  である。ミュオン原子の基底状態の半径と原子核の半径とが同程度となるため、核子と負ミュオンとの間に近接距離で働く弱い相互作用が有効となり、素過程 ( $\mu^- + p \rightarrow n + \mu^-$ ) の核吸収反応が起こり、負ミュオンの自由崩壊 ( $\mu^- \rightarrow e^- + \bar{\nu}_\mu$ ) と競争する。 $^{100}\text{Ru}$  ( $Z = 44$ ) では、弱い相互作用の性質、及び、原子核とミュオンとの原子軌道の波動関数から、95%が核吸収となり、5%が自由崩壊となる。

10

【0021】

(4) ミュオン核吸収反応に続いて、励起核状態から中性子、陽子等の粒子放出が多岐にわたって起こり、これに応じて、様々な原子核同位体が生じる。負ミュオンによって負の電荷が付加されるため、ユニークな原子核変換・元素変換反応が実現する。

【0022】

ここで、負ミュオンとルテニウムとの核反応によって生じる放射性物質の内、殆どが、寿命が短く短時間で減衰するものか、寿命が長いものである。

以下、負ミュオンをミュオンともいう。

【0023】

(テクネチウム99m含有物質生成装置)

20

図1は、本実施形態のテクネチウム99m含有物質生成装置の構成例を示す図である。テクネチウム99m含有物質生成装置100は、ミュオン発生装置110及びルテニウム試料保持部120を含む。ミュオン発生装置110は、陽子加速器112、パイオン/ミュオン生成標的保持部114、ミュオン生成ビーム光学系部116を含む。

【0024】

陽子加速器112は、陽子を加速し、所定の位置を焦点とする陽子ビームを生成する。

パイオン/ミュオン生成標的保持部114は、陽子加速器112で加速された陽子ビームの焦点の位置にパイオン/ミュオン生成標的を保持する。パイオン/ミュオン生成標的として、例えば、直径5cm長さ15cmの円筒形の黒鉛材が使用される。パイオン/ミュオン生成標的は、陽子ビームのパイプとつながる真空中に置かれる。

30

【0025】

ミュオン生成ビーム光学系部116は、パイオン/ミュオン生成標的に陽子ビームが照射されることで発生したパイオンを、閉じ込め輸送し、出射する。パイオンの一部は閉じ込め輸送の際にミュオンに変化するので、ミュオン生成ビーム光学系部116は、ミュオンビームを出射することができる。パイオン/ミュオン生成標的の周囲に、2基のミュオン生成ビーム光学系部116が陽子ビームに対し左右対称に設置されてもよい。

【0026】

ルテニウム試料保持部120は、ミュオン生成ビーム光学系部116で集光されたミュオンビームの焦点の位置にルテニウム試料を保持する。

【0027】

40

ルテニウム試料は、例えば、(1)金属ルテニウム、(2)ルテニウム酸化物、(3)硝酸ルテニウム、(4)硫酸ルテニウム、(5)その他のルテニウム化合物、または、これらの混合物である。ルテニウム試料は、これらに限定されるものではない。ルテニウム試料は、例えば、金属ルテニウム及びルテニウム化合物のうち少なくとも1つを含むものであってもよい。ルテニウム試料は、少なくとも、ルテニウムを含む試料である。

【0028】

ルテニウム試料は、例えば、複数のルテニウム薄板を重ねたものである。ルテニウム薄板の厚さは、0.4cm以下である。

【0029】

ルテニウム試料に含まれるルテニウムは、天然ルテニウムであっても、特定の1つの質

50

量数のルテニウムであっても、特定の複数の質量数のルテニウムを含むものであってもよい。ルテニウム試料に含まれるルテニウムは、例えば、質量数100のルテニウムを他の質量数のルテニウムと比べて多く含むものでもよい。質量数100のルテニウムを多く含むルテニウム試料を用いることで、テクネチウム99mを多く含むテクネチウム99m含有物質を生成することができる。

【0030】

(陽子加速器)

陽子加速器112の例として、エネルギー500 MeV、電流300  $\mu$ A、磁場8 Tの中型超電導陽子サイクロトロンが挙げられる。当該中型超伝導陽子サイクロトロンを陽子加速器112として使用した場合、毎秒 $2.2 \times 10^{11}$ 個のミュオンが得られる。

10

【0031】

テクネチウム99mを適切なサイズのRu試料内に生成するためには、cm厚の領域にミュオンを止めることが必要である。そのために、150 MeV/cの運動量を有するパイオンをミュオン生成ビーム光学系部116に取り込み、ミュオンに変換する。図3に示すように、150 MeV/cのパイオンを効率よく生成するには、500 MeV程度の陽子が適切である。

【0032】

また、原理確認用の陽子加速器112として、例えば、エネルギー250 MeV、電流0.8  $\mu$ Aのがん治療用陽子加速器が使用されうる。

20

【0033】

エネルギーがパイオンの質量140 MeVに比べて十分高い陽子加速器が、陽子加速器112として、使用されうる。

【0034】

(ミュオン生成ビーム光学系部)

図2は、ミュオン生成ビーム光学系部の断面の例を示す図である。ミュオン生成ビーム光学系部116は、常伝導磁気コイル152、複数の超電導磁気コイル154、放射線シールド156、磁気シールド158を含む。

【0035】

ミュオン生成ビーム光学系部116の全長(ビーム進行軸方向の長さ)は、例えば、6 mである。パイオンの静止時の寿命は26 nsであるが、パイオンの運動による相対論的効果で寿命が伸びる。パイオンの崩壊長L(cm)と運動量P MeV/cとの関係は、 $L = 5.593 P$ である。パイオンの崩壊長は、パイオンの強度が1/eになる長さである。従って、150 MeV/cのパイオンの崩壊長は、8.4 mである。また、150 MeV/cのパイオンは、6 mの飛行で51%がミュオンになり、10 mの飛行で71%がミュオンになる。

30

【0036】

ミュオン生成ビーム光学系部116では、ビーム進行軸(図2の横方向)と直角方向にビームが拡がるようとする運動を、ビーム進行軸方向にかけた磁場によって、軸の周りの回転運動に変えることによって、パイオン/ミュオンの大立体角捕獲と閉じ込め輸送を実現する。150 MeV/cのパイオンを22度の角度で20 cmの半径で捕獲し、閉じ込めるためには、ビーム進行軸方向に最大1テスラの磁場があればよい。複数の円形コイルによりビーム進行軸方向の磁場を発生させ複数回収束させることで、1つのコイルを使用する場合に比べてコイルの大きさを小さくすることができる。ビーム進行軸方向は、パイオン/ミュオン標的からルテニウム試料への方向である。

40

【0037】

常伝導磁気コイル152は、パイオン/ミュオン生成標的保持部114に保持されるパイオン/ミュオン生成標的に最も接近している。常伝導磁気コイル152は、円形コイルである。常伝導磁気コイル152により、円形コイルによるビーム進行軸方向の磁場が発生する。常伝導磁気コイル152は、ミュオン生成ビーム光学系部116の入口に設置される。常伝導磁気コイル152は、例えば、半径20 cmで、パイオン/ミュオン標的か

50

らの角度が22度になるように設置される。常伝導磁気コイル152に代えて、超電導コイルが使用されてもよい。

【0038】

超電導磁気コイル154は、ミュオン生成ビーム光学系部116に取り込まれたパイオン/ミュオンを収束する。直径1mの超電導磁気コイル154は、ビーム進行軸方向に、最大1テスラの磁場を発生する。図2の例では、ミュオン生成ビーム光学系部116は11基の超電導磁気コイル154を含む。超電導磁気コイル154により、円形コイルによるビーム進行軸方向の磁場が発生する。超電導磁気コイル154に代えて、常伝導コイルが使用されてもよい。

【0039】

放射線シールド156は、ミュオン軌道の内側及び外側に設置される。即ち、ミュオンは、内側の放射線シールド156と外側の放射線シールド156との間を通過する。ミュオン軌道の内側の放射線シールドは、例えば、ミュオン軌道の外側から伸びるステンレス線によって吊るされる。

【0040】

磁気シールド158は、超電導磁気コイル154からの磁場を系外に漏洩させないために設置される。

【0041】

図14は、シミュレーション計算によるミュオン生成ビーム光学系部116の±5%運動量幅の確認を示す図である。図14では、色々な運動量のパイオン/ミュオンに対して、シミュレーション計算で得られる取り込み立体角を縦軸に示す。

【0042】

図15は、シミュレーション計算によるミュオン生成ビーム光学系部116の立体角の確認を示す図である。図15では、最小(最大)立体角で取り込まれたパイオン/ミュオンが取る軌道が、下側(上側)の曲線で示されている。

【0043】

陽子加速器112で生成された陽子ビームがパイオン/ミュオン生成標的に照射されると、パイオンが発生する。ミュオン生成ビーム光学系部116は、パイオン/ミュオン生成標的で生成されたパイオンを常伝導磁気コイル152側から取り込む(図2の左側)。取り込まれたパイオンは、常伝導磁気コイル152及び超電導磁気コイル154により閉じ込め輸送され、閉じ込め輸送される際にパイオンのうちの一部分がミュオンに変化し、出射する(図2の右側)。ミュオンビームの焦点の位置には、ルテニウム試料が設置される。ルテニウム試料は、ルテニウム試料保持部120によって保持される。ルテニウム試料に、ミュオンビームが照射されることで、ルテニウムとミュオンとによる核反応が生じる。

【0044】

図3は、500MeVの陽子と炭素との反応による正パイオン発生の微分断面積、パイオンの運動量依存性(実験値)を示す図である。測定立体角は0.5ステラジアンである。図3のグラフの横軸は運動量であり、縦軸は微分断面積である。

【0045】

図4は、パイオン崩壊によるミュオン発生の様子を示す図である。図4は、静止パイオンからの等方的ミュオン発生のベクトル表示と、飛行中の異方的ミュオン発生のベクトル表示とを示す。

【0046】

図5は、飛行中パイオンから発生するミュオンの最高運動量と最低運動量のパイオン運動量依存性を示す図である。図5のグラフの横軸はパイオンの運動量であり、縦軸はミュオンの運動量である。図6は、色々な運動量のパイオンが崩壊する際に、最低から最高までの運動量のミュオンに対する角度の拡がり(崩壊角)を示す図である。図6のグラフの横軸はミュオンの運動量であり、縦軸は崩壊角である。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 4 7 】

図 7 は、期待される負ミュオン発生量の計算例を示す図である。

電流  $300 \mu\text{A}$  の陽子強度は、素電荷  $1.60 \times 10^{-19}$  クーロンを使用して、毎秒  $1.9 \times 10^{15}$  ( $= J$ ) となる。エネルギー  $500 \text{ MeV}$  の陽子が標的の炭素に衝突し、運動量  $150 \text{ MeV}/c$  の正パイオンが発生する立体角  $0.5$  ステラジアンに対する微分断面積の運動量依存性は、図 3 に示すようになる。負パイオンと正パイオンとの断面積の比は、 $1/7$  である。運動量  $\pm 5\%$  で  $150 \text{ MeV}/c$  ( $65 \text{ MeV}$ ) の負パイオンが生まれる断面積は、立体角  $1$  ステラジアン、運動量幅  $\pm 5\%$  で取り込んだとすると、 $0.48 \times 10^{-27} \text{ cm}^2$  ( $=$ ) である。  $12 \text{ cm}$  厚の炭素の原子数は、 $2.4 \times 10^{23} \text{ cm}^{-2}$  ( $= n t$ ) である。これらの 3 つの値の積 ( $J \cdot \text{断面積} \cdot n t$ ) から、ミュオン生成ビーム光学系部に取り込まれるパイオンの強度は、毎秒  $2.2 \times 10^{11}$  となる。

10

## 【 0 0 4 8 】

このパイオンが  $6.0 \text{ m}$  飛行するうちに、 $51\%$  のパイオンがミュオンに変わるので、ミュオン生成ビーム光学系部の出口での負ミュオンの強度は、毎秒  $1.1 \times 10^{11}$  となる。パイオン・ミュオン変換の結果、図 6 に示すように、ミュオンが有する運動量 (エネルギー) は、 $70 \text{ MeV}/c$  ( $21 \text{ MeV}$ ) -  $155 \text{ MeV}/c$  ( $82 \text{ MeV}$ ) となる。このとき、図 6 に示すように、崩壊角が  $20$  度以内に収まるため、パイオンはすべてミュオン生成ビーム光学系部に取り込まれる。パイオンからミュオンに変化する割合は、パイオンの静止時の寿命  $26 \text{ ns}$  の相対論的補正から、求まる。例えば、ミュオン生成ビーム光学系部を陽子ビームの方向に対して、直角に 2 基配置することにより、負ミュオンの強度は、毎秒  $2.2 \times 10^{11}$  個となる。このとき、ミュオン生成ビーム光学系部は、鏡映対称に置かれる。

20

## 【 0 0 4 9 】

(負ミュオンによるルテニウム核吸収反応)

図 8 及び図 9 は、負ミュオンによるルテニウム核吸収反応を示す図である。図 8 及び図 9 では、負ミュオンによる、ルテニウム 96、ルテニウム 98、ルテニウム 99、ルテニウム 100、ルテニウム 102、ルテニウム 104 との、核吸収反応が示される。ルテニウム 96、ルテニウム 98、ルテニウム 99、ルテニウム 100、ルテニウム 102、ルテニウム 104 は、天然に存在するルテニウムである。

30

## 【 0 0 5 0 】

ルテニウム試料に入射され、ルテニウム試料中に静止したすべての負ミュオンは、物質中の原子核の周りにミュオン原子を作る。ルテニウムの場合、 $95\%$  以上の負ミュオンが、ミュオンと原子核との間の弱い相互作用によって、原子核に吸収され、図 8 及び図 9 に示す核反応を起こす。

## 【 0 0 5 1 】

図 8 及び図 9 において、ルテニウムと負ミュオンとの核反応で発生する主な放射性元素のうち、主な半減期が 6 時間程度の放射性元素は、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  のみである。他の放射性元素は、半減期が 6 時間と比べて非常に短い放射性元素、半減期が 6 時間と比べて非常に長い放射性元素、若しくは、生成割合が小さい放射性元素である。

40

## 【 0 0 5 2 】

負ミュオン核吸収反応には、中性子を発生する反応に加えて、陽子やアルファ粒子を発生する反応があることが知られている。

## 【 0 0 5 3 】

図 10 は、原子番号がルテニウムに近い  $^{107}\text{Ag}$  によるミュオン核吸収反応の割合の実験値又は理論値を示す図である。図 10 の実験値又は理論値において、例えば、 $^{107}\text{Ag}$  によるミュオン核吸収反応で、 $51\%$  が 1 個の中性子を放出し、 $25\%$  が 2 個の中性子を放出し、 $0.23\%$  が 1 個の陽子を放出する。図 10 において、中性子放出の割合は実験値であり、陽子放出の割合は理論値である。ここでは、 $^{107}\text{Ag}$  によるミュオン核吸収反応のうち、割合の大きい、中性子放出 1 個 ( $51\%$ )、2 個 ( $25\%$ )、3 個 ( $12\%$ ) を有効とする。ルテニウムとミュオンとの核吸収反応は、 $^{107}\text{Ag}$  とミュオンとの核吸収反応と同

50



様であるとみなすと、ルテニウムによるミュオン核吸収反応は、中性子放出1個(51%)、2個(25%)、3個(12%)となる。例えば、ルテニウム100の負ミュオン核吸収反応では、51%が放射性テクネチウム99mを生ずる。

【0054】

天然ルテニウムを含むルテニウム試料に対して、毎秒 $2.2 \times 10^{11}$ 個のミュオンが照射されると、次の式のように、毎秒 $3.3 \times 10^{10}$ 個の放射性テクネチウム99mが生成される。ここで、天然ルテニウムにおける、 $^{102}\text{Ru}$ 、 $^{101}\text{Ru}$ 、 $^{100}\text{Ru}$ の存在比は、それぞれ、0.32、0.17、0.13である。

【0055】

【数1】

$$\begin{aligned} N_{Tc99m} &= N_{\mu^-} \times [^{102}\text{Ru}(\mu^-, 3n) + ^{101}\text{Ru}(\mu^-, 2n) + ^{100}\text{Ru}(\mu^-, n)] \\ &= 2.2 \times 10^{11} \times [0.32 \times 0.12 + 0.17 \times 0.25 + 0.13 \times 0.51] \\ &= 3.3 \times 10^{10} \end{aligned}$$

10

【0056】

このとき、放射性テクネチウム99mの永続平衡値(生成・崩壊が同時に進行する際の原子数)は、 $1.0 \times 10^{15}$  ( $= 3.3 \times 10^{10} / 3.19 \times 10^{-5}$ )である。

【0057】

天然ルテニウムを含むルテニウム試料に対して、毎秒 $2.2 \times 10^{11}$ 個のミュオン照射を12時間行うことで、 $2.5 \times 10^{10}$  Bq / 12hの累積放射線強度を有する放射性テクネチウム99mが得られる。さらに、これを12回繰り返すことで、6日間で、合計 $3.0 \times 10^{11}$  Bqの放射線強度を有する放射性テクネチウム99mが得られる。

20

【0058】

ルテニウムとしてルテニウム100のみを含むルテニウム試料(以下、ルテニウム100試料という)に対して、毎秒 $2.2 \times 10^{11}$ 個のミュオンが照射されると、次の式のように、毎秒 $1.1 \times 10^{11}$ 個の放射性テクネチウム99mが生成される。

【0059】

【数2】

$$\begin{aligned} N_{Tc99m} &= N_{\mu^-} \times [^{100}\text{Ru}(\mu^-, n)] \\ &= 2.2 \times 10^{11} \times [0.51] \\ &= 1.1 \times 10^{11} \end{aligned}$$

30

【0060】

このとき、放射性テクネチウム99mの永続平衡値は、 $3.4 \times 10^{15}$  ( $= 1.1 \times 10^{11} / 3.19 \times 10^{-5}$ )である。

【0061】

また、ルテニウム100試料に対して、毎秒 $2.2 \times 10^{11}$ 個のミュオン照射を12時間行うことで、 $8.5 \times 10^{10}$  Bq / 12hの累積放射線強度を有する放射性テクネチウム99mが得られる。さらに、これを12回繰り返すことで、6日間で、合計 $1.0 \times 10^{12}$  Bqの放射線強度を有する放射性テクネチウム99mが得られる。

40

【0062】

ルテニウム試料に含まれるルテニウムが、負ミュオン核吸収反応により、放射性テクネチウム99mに原子核変換されることにより、放射性テクネチウム99m含有物質が得られる。

【0063】

将来、さらなる生産量の増大を図るには、(1)陽子加速器の強度の増大(300  $\mu$  A (0

50

.15MW) 3mA (1.5MW)、10倍)、(2)ミュオン生成ビーム光学系部の改良による運動量アクセプタンスの増大(1.5倍)、(3)ミュオン生成ビーム光学系部の長さの延長(6m→10m、1.4倍)等を行うことが考えられる。これらの増強により、ルテニウム100試料を用いると、 $1.8 \times 10^{12} \text{ Bq} / 12 \text{ h}$ の放射線強度を有する放射性テクネチウム99mが得られる。

【0064】

ルテニウム試料に照射されるミュオンのエネルギーが高いと、ミュオンはルテニウムを通り抜けてしまう。一方、ルテニウム試料に照射されるミュオンのエネルギーが低いと、ミュオンはルテニウムの原子核近傍に到達しない。したがって、ルテニウム試料に照射されるミュオンのエネルギーが高すぎても低すぎても、放射性テクネチウム99mの生成効率が下がる。

10

【0065】

図11は、様々な物質中のミュオンの飛程のミュオン運動量依存性を示す図である。ここでは、図11の横軸は、運動量(エネルギー)であり、縦軸は、飛程に対応する厚さに密度を掛けた量である。

【0066】

図12は、様々な物質中の光の吸収係数の光エネルギー依存性を示す図である。図12の横軸は、エネルギーであり、縦軸は、吸収長である。

【0067】

図11及び図12のグラフにおいて、ルテニウム(Ru)は、鉄(Fe)と錫(Sn)との中間の値をとるとする。

20

【0068】

チャンネルのパイオン運動量アクセプタンスを $150 \text{ MeV} / c \pm 5\%$ と設定すると、運動量(エネルギー) $70 \text{ MeV} / c$ ( $21 \text{ MeV}$ )から $155 \text{ MeV} / c$ ( $82 \text{ MeV}$ )のミュオンが、輸送され、ルテニウム試料に照射される。すべてのミュオン(運動量(エネルギー) $70 \text{ MeV} / c$ ( $21 \text{ MeV}$ )から $155 \text{ MeV} / c$ ( $82 \text{ MeV}$ )のミュオン)をルテニウム試料中に止めるには、図11のミュオンの飛程から $0.4 \text{ cm}$ から $2.8 \text{ cm}$ であるので、ルテニウム試料の厚さは $2.8 \text{ cm}$ 以上であることが好ましい。ここで、ルテニウム試料の厚さは、ビーム進行軸における厚さである。

【0069】

30

一方、テクネチウム99mの生成は、 $140 \text{ keV}$ のガンマ線を検出することで確認される。 $140 \text{ keV}$ のガンマ線は、テクネチウム99mが崩壊するときに放出する放射線である。図12のグラフから、 $140 \text{ keV}$ で、FeとSnとの中点をルテニウムの値とすると、 $4 \text{ g} / \text{cm}^2$ である。よって、テクネチウム99mが崩壊する際に発生する $140 \text{ keV}$ のガンマ線を検出するには、ルテニウムの密度 $12.45 \text{ g} / \text{cm}^3$ を使用して、ルテニウム試料の厚さが $0.4 \text{ cm}$ 以下であることが求められる。従って、例えば、 $2 \text{ mm}$ ( $=0.2 \text{ cm}$ )厚のルテニウム試料を14枚の多重薄板状にして標的とする。

【0070】

40

1つの薄板状のルテニウム試料(ルテニウム薄板)の厚さは、 $140 \text{ keV}$ のガンマ線を測定できる厚さ( $0.40 \text{ cm}$ )以下であることが好ましい。また、照射されるすべてのミュオンをルテニウム試料中に止めるためには、ルテニウム試料の厚さは $2.8 \text{ cm}$ 以上であることが好ましい。よって、照射されるミュオンのエネルギーに基づいて、複数の $0.4 \text{ cm}$ 以下のルテニウム薄板を重ねて、 $2.8 \text{ cm}$ 以上の多重薄板状にしたルテニウム試料とすることが好ましい。またミュオンビームは直径 $5 \text{ cm}$ 程度に収束されるため、ルテニウム試料は直径 $5 \text{ cm}$ 厚さ $2.8 \text{ cm}$ 程度の大きさになる。

【0071】

(照射試料分析系)

図16は、照射試料分析系の例を示す図である。

【0072】

ミュオン照射によるテクネチウム99mの生成状態をモニタするために、テクネチウム

50

99m含有物質生成装置100に連結して、照射試料分析系が用意される。照射試料分析系は、放射線シールド、遠隔操作系、Ge検出器を含む。放射シールドは、Ge検出器を覆い、外部からの放射線をシールドする。遠隔操作系終端部は、ミュオンが照射されたルテニウム試料から1つのルテニウム薄板を取り出し、放射シールド内のGe検出器に輸送する。Ge検出器は、ミュオンを照射されたルテニウム試料から発生する140keVのガンマ線を計測する。

【0073】

(テクネチウム99mの収率)

一般に放射能がミュオン照射等によって連続的に作られる場合、生成される放射性核の半減期の数倍の時間がたてば、毎秒作られる数と崩壊してゆく数とが等しくなる。

10

【0074】

【数3】

$$R_0 = \lambda N_1$$

【0075】

ここでルテニウム核のミュオン核吸収によるテクネチウム99m生成について考えると、 $R_0$ はミュオン核吸収によるTc99mの生成頻度(長時間後のTc99mの崩壊頻度)、 $\lambda$ はTc99m核の崩壊定数( $=3.19 \times 10^{-5} /s = \ln 2 / \text{半減期}$ )、 $N_1$ は長時間後のTc99mの原子核数である。

20

【0076】

【数4】

$$\text{Tc99mの含有量} = \frac{R_0}{\lambda N_0} [g]$$

【0077】

ここで、 $N_0$ はTcの1g当たりの原子核数( $=6.02 \times 10^{23} / 98.9 = 6.09 \times 10^{21}$ )である。

$R_0$ を $1.1 \times 10^{11} /s$ として、Tc99mの含有量は $0.55 \mu g$ となる。

【0078】

ここで直径5cm厚さ2.8cmのルテニウム試料からこのTc99mを創るとすれば、Tc99mの収量(Tc99mの含有量と試料の質量との比)は次のようになる。

30

【0079】

【数5】

$$\frac{0.55 \mu g}{3.14 \times (5/2)^2 \times 2.8 \times 12.45 g} = \frac{0.55 \times 10^{-6}}{680} = 8.1 \times 10^{-10}$$

【0080】

(医用の放射性テクネチウム99m)

ルテニウム試料として、例えば、三酸化ルテニウムが使用され得る。三酸化ルテニウムにミュオンを照射すると、三酸化ルテニウムと三酸化テクネチウムとの混合物が生成される。この三酸化テクネチウムの中には、放射性テクネチウム99mを含む三酸化テクネチウムが存在する。当該混合物内の三酸化ルテニウムはすべて安定であることから、当該混合物に含まれる放射性物質は、放射性テクネチウム99mを含む三酸化テクネチウム及びテクネチウム99を含む三酸化テクネチウムである。放射性テクネチウム99mを医用として用いるには、生成物に、他の放射性物質が含まれることは好ましくない。本実施形態の方法によれば、他の放射性物質をほとんど含むことなく、放射性テクネチウム99mを含む過テクネチウム酸イオンを得ることができる。

40

50

ルテニウム試料として、例えば、三酸化ルテニウム ( $\text{RuO}_3$ ) を用いる。照射後の試料から高純度のテクネチウム 99m を含有する水溶液を得るには、例えば、以下のような操作が行われる。すなわち、照射後のサンプルを減圧処理容器に入れ、減圧下、310 ~ 320 の範囲に加熱し、昇華物を得る。減圧は、通常、10パスカル ~ 100パスカルの範囲であればよい。該得られる昇華物は、通常、ルテニウム酸化物の含有量が0.01%以下の酸化テクネチウム ( $\text{Tc}_2\text{O}_7$ ) である。この操作は、テクネチウム 99m を含有する酸化テクネチウム ( $\text{Tc}_2\text{O}_7$ ) の気体が生じる温度が約310 (常圧下) であるのに対して、三酸化ルテニウムの気体が生じる温度が約400 (常圧下) であることを利用している。次に前記昇華物に高濃度の水酸化ナトリウム水溶液を加え、昇華物を完全に溶解させた後、塩酸水溶液を加え、pHを4 ~ 8の範囲に調整する。該得られる水溶液は、過テクネチウム酸イオン ( $\text{TcO}_4^-$ ) を含有する水溶液である。水酸化ナトリウムのモル濃度は、4M ~ 8M程度であればよい。次に、この過テクネチウム酸イオン ( $\text{TcO}_4^-$ ) を含有する水溶液を上層に吸着材と下層にイオン交換樹脂が充填されたカラムを通し、カラムを通過してくる水溶液を採取する。該吸着材は、過テクネチウム酸イオン ( $\text{TcO}_4^-$ ) を含有する水溶液に含まれる [ $^{99}\text{TcO}_4^-$ ] イオンを吸着除去するものであり、通常、活性アルミナや活性炭が用いられる。この操作では、 [ $^{99}\text{TcO}_4^-$ ] イオンと同量の [ $^{99m}\text{TcO}_4^-$ ] イオンも吸着除去されるので、前記過テクネチウム酸イオン ( $\text{TcO}_4^-$ ) を含有する水溶液に含まれる [ $^{99}\text{TcO}_4^-$ ] イオンの含有量を予めガンマ線スペクトロメータ等により測定しておき、除去する [ $^{99}\text{TcO}_4^-$ ] イオンの量に見合うだけの吸着材の充填量が適宜決められる。前記イオン交換樹脂は、吸着材による吸着除去が難しい金属イオン種を除去するものであり、通常、ポリスチレン系イオン交換樹脂が用いられる。以上の操作により、過テクネチウム酸水溶液に含有される  $^{99m}\text{Tc}$  の放射能が総放射能の99.985%以上である過テクネチウム酸水溶液が得られる。

10

20

30

40

50

#### 【0081】

(その他)

放射性テクネチウム 99m 含有物質生成装置 100 におけるミュオン発生装置は、上記の例に限定されるものではなく、ミュオンを発生する他の装置によるものであってもよい。

#### 【0082】

(実施形態の作用、効果)

放射性テクネチウム 99m 含有物質生成装置 100 は、ミュオンを発生させ、ターゲットとしてのルテニウム試料に照射する。ルテニウム試料にミュオンが照射されると、ルテニウム試料中のルテニウムとミュオンとの核反応により、ルテニウム試料は、放射性テクネチウム 99m を含む物質 (放射性テクネチウム 99m 含有物質) となる。

#### 【0083】

ミュオン 1 個あたりの天然ルテニウムからの放射性テクネチウム 99m 生成率は 15% と、中性子や陽子を用いた原子核反応に比べて高い。また、ミュオンを作る効率を向上することで、全体の生成効率を上げることができる。ミュオン 1 個あたりの質量数 100 のルテニウムからの放射性テクネチウム 99m 生成率は、51% である。よって、質量数 100 のルテニウムを多く含むルテニウム試料が使用されることで、全体の生成効率が上がる。即ち、質量数 100 のルテニウムを多く含むルテニウム試料が使用されることで、より多くの放射性テクネチウム 99m を得ることができる。

#### 【0084】

陽子加速器として、エネルギー 500 MeV、電流 300  $\mu\text{A}$ 、磁場 8 T の中型超電導陽子サイクロトロンが使用された場合、天然ルテニウムを含むルテニウム試料から、毎秒  $3.3 \times 10^{10}$  個の放射性テクネチウム 99m が生成される。ルテニウムとしてルテニウム 100 のみを含むルテニウム試料から、毎秒  $1.1 \times 10^{11}$  個の放射性テクネチウム 99m が生成される。

#### 【0085】

本実施形態の方法によれば、放射性テクネチウム 99m 以外の放射性元素をほとんど含

まない放射性テクネチウム<sup>99m</sup>含有物質を得ることができる。

【0086】

図13は、原子炉・低エネルギー陽子加速器・中間エネルギー陽子加速器による放射性テクネチウム<sup>99m</sup>の生成量と特徴とを示す図である。本実施形態の方法によれば、エネルギー500 MeV、電流300 μA、磁場8 Tの陽子加速器を用いることにより、原子炉法と同程度の高効率で放射性テクネチウム<sup>99m</sup>を生産することができる。

【0087】

本実施形態の放射性テクネチウム<sup>99m</sup>含有物質生成装置によるミュオン発生効率は、 $10^{-4} \mu^- / \text{proton}$ であり、さらなる改善が期待できる。したがって、ミュオン発生効率に依存する放射性テクネチウム<sup>99m</sup>の生成効率の改善も期待できる。

10

【0088】

ルテニウムとミュオンとの核反応で生じる放射性物質は、実質的に、放射性テクネチウム<sup>99m</sup>のみである。従って、ルテニウム試料として選択される物質の化学的状態及び物理的状態の自由度が高い。即ち、ルテニウム試料として、例えば、金属ルテニウム或いはルテニウム酸化物、硝酸ルテニウム、硫酸ルテニウム等のルテニウム化合物を用いて、ルテニウムとミュオンとの核反応を生じさせることにより、医用に用いることのできる放射性テクネチウム<sup>99m</sup>を得ることができる。

【0089】

ルテニウム試料として、複数の厚さ0.4 cm以下のルテニウム薄板が使用されることで、放射性テクネチウム<sup>99m</sup>含有ルテニウム試料に含まれるテクネチウム<sup>99m</sup>がから発生する140 keVのガンマ線をルテニウム試料の外から検出することができる。

20

【0090】

本実施形態の方法によれば、病院等に設置される低エネルギー陽子加速器によっても、骨・腎臓・肺・甲状腺・肝臓など身体各部に対するシンチグラムに用いられる放射性テクネチウム<sup>99m</sup>が、生成され得る。

【0091】

本実施形態の方法で生成される放射性テクネチウム<sup>99m</sup>含有物質は、医療応用を阻害する放射線は発生しない。従って、放射性テクネチウム<sup>99m</sup>の生成作業が極めて容易になる。

【0092】

また、本実施形態の方法によれば、原子炉や濃縮ウラン<sup>235</sup>を使用しないため、ウラン核分裂特有の長寿命放射性廃棄物が生成されない。また、高強度低エネルギー陽子加速器を用いる場合でも、試料中や試料周辺の残留放射能の問題が発生しない。

30

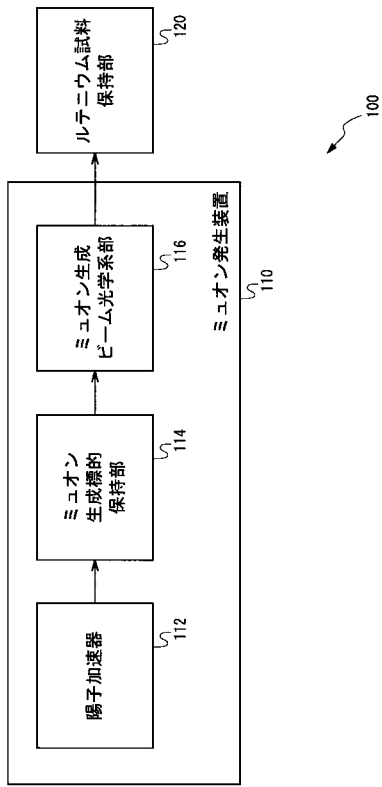
【符号の説明】

【0093】

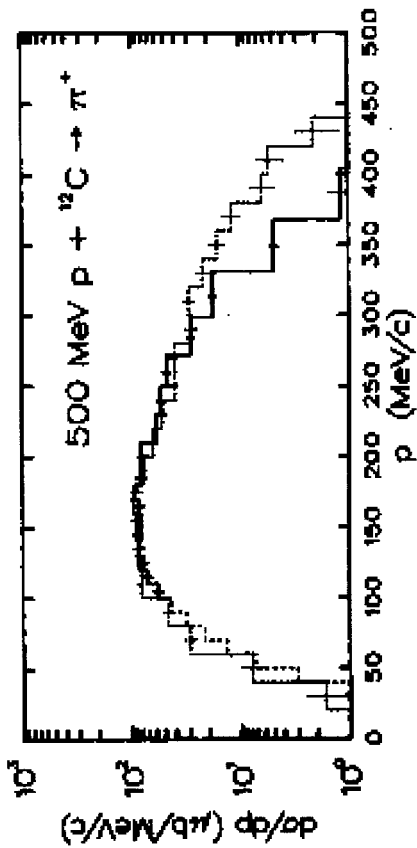
|     |                                   |
|-----|-----------------------------------|
| 100 | 放射性テクネチウム <sup>99m</sup> 含有物質生成装置 |
| 110 | ミュオン発生装置                          |
| 112 | 陽子加速器                             |
| 114 | パイオン/ミュオン生成標的保持部                  |
| 116 | ミュオン生成ビーム光学系部                     |
| 120 | ルテニウム試料保持部                        |
| 152 | 常伝導磁気コイル                          |
| 154 | 超伝導磁気コイル                          |
| 156 | 放射線シールド                           |
| 158 | 磁気シールド                            |

40

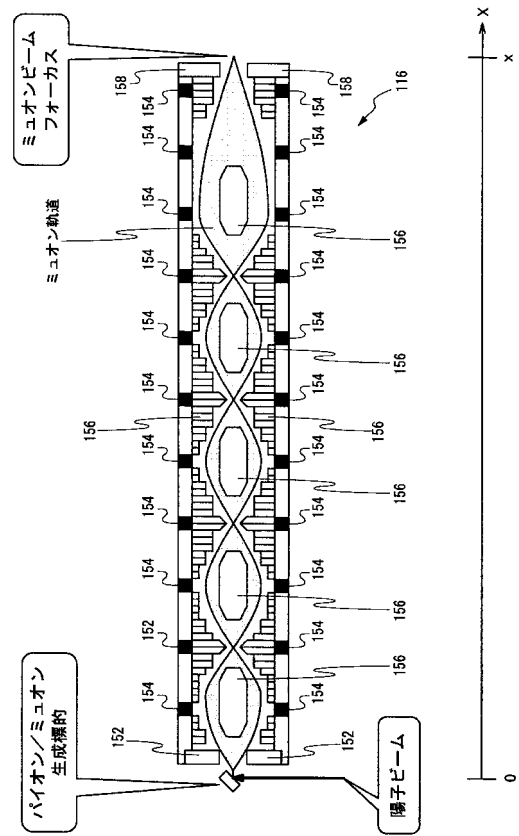
【 図 1 】



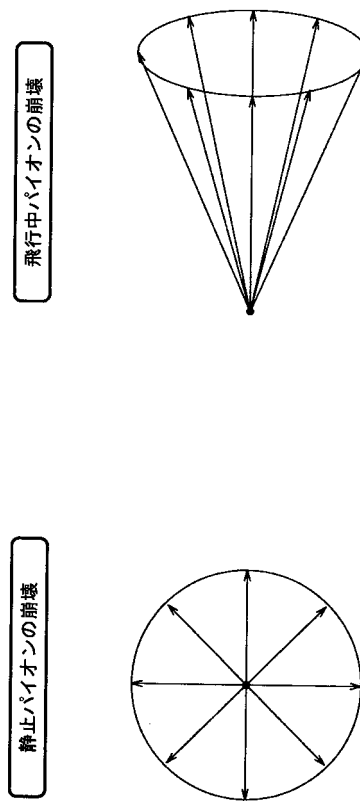
【 図 3 】



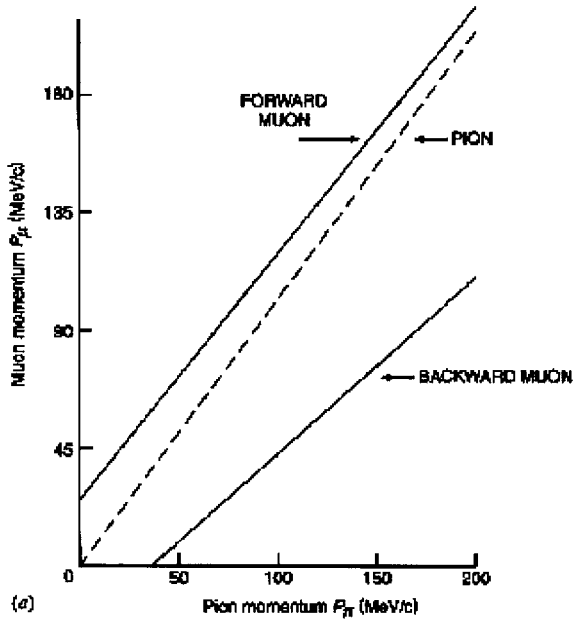
【 図 2 】



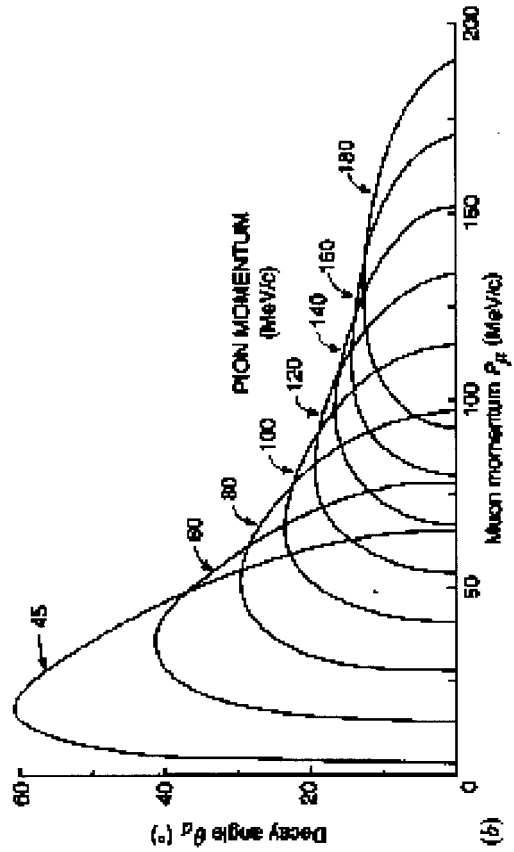
【 図 4 】



【 5 】



【 6 】



【 7 】

$\pi$  production cross section N.J. DiGiacomo PRC 31(85)292  
 500 MeV p,  $^{12}\text{C}$ ,  $\pi^+$ ,  $\theta_L^- \sim +180^\circ$ ,  $\Delta\Omega \sim 0.5$  sr  
 $d\sigma/dp$  ( $\mu\text{b}/\text{MeV}/c$ ) = 80~90 for 100~200 MeV/c  
 $\sigma_{\pi^+}/\sigma_{\pi^-} = 7$  for 500 MeV p on  $^{12}\text{C}$   
 $\pi^-$  intensity produced by 12 cm C captured by 1 sr and 150 ( $\pm 5\%$ )  
 $N_{\pi^-} = 300 \times (0.63 \times 10^{13}) \times 12 \times 10^{-30} \times 20 \times (1/0.5)$   
 $\times (12/(2.5 \times 12)) \times 6.0 \times 10^{23}$   
 $= 1.9 \times 10^{15} \times 0.48 \times 10^{-27} \times 2.4 \times 10^{23} = 2.2 \times 10^{11}$

$\mu^-$  intensity after 6.0m decay section for 150 MeV/c  $\pi^-$

for full capture of pion-to-muon decay

$$N_{\mu^-} = N_{\pi^-} \times [1 - \exp(-600/(5.6 \times 150))] = 2.2 \times 10^{11} \times 0.51 = 1.1 \times 10^{11}$$

By setting two muon channels at opposite sides

$$N_{\mu^-}^{\text{double}} = 2.2 \times 10^{11}$$

【 8 】

### Product of ( $\mu^-$ , xn) Reaction of Ru Isotopes

- $^{104}\text{Ru}$  ( $\mu^-, n$ )  $^{103}\text{Tc}$  (? 50s, 2.2+2.0 MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ )  $^{103}\text{Ru}$  (5/2+, 39.4d, (18.62%) [0.214 MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ ]  $^{103m}\text{Rh}$  (7/2+, 56.1m, 0.03975 MeV  $\gamma$ )  $^{103}\text{Rh}$  (1/2- + 0.225 MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ )  $^{103}\text{Rh}$ ]
- ( $\mu^-, 2n$ ) +  $^{102m}\text{Tc}$  (5?, 4.4m, (98%) 1.80+2.55+3.30 MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ )  $^{102}\text{Ru}$  (0+) +  $^{102}\text{Tc}$  (1+, 5.3s, 4.15+3.4+2.2 MeV  $\beta^-$ )  $^{102}\text{Ru}$
- ( $\mu^-, 3n$ )  $^{101}\text{Tc}$  (9/2+, 14.3m, 1.32+1.07 MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ )  $^{101}\text{Ru}$  (5/2+)
- $^{102}\text{Ru}$  ( $\mu^-, n$ )  $^{101}\text{Tc}$  (9/2+, 14.3m, 1.32+1.07 MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ )  $^{101}\text{Ru}$  (5/2+)
- (31.55%) ( $\mu^-, 2n$ )  $^{100}\text{Tc}$  (1+, 15.8s, 3.38+2.88+2.2 MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ )  $^{100}\text{Ru}$  (0+) +  $^{100}\text{Tc}$  (1/2-, 6.02h, 0.142 MeV  $\gamma$ )  $^{99}\text{Tc}$  (9/2-, 2.14  $\times 10^5$  y, 0.29 MeV  $\beta^-$ )  $^{99}\text{Ru}$  +  $^{99}\text{Tc}$  (9/2-, 2.14  $\times 10^5$  y, 0.29 MeV  $\beta^-$ )  $^{99}\text{Ru}$  (5/2+)
- $^{101}\text{Ru}$  ( $\mu^-, n$ )  $^{100}\text{Tc}$  (1+, 15.8s, 3.38+2.88+2.2 MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ )  $^{100}\text{Ru}$  (0+) (17.06%) ( $\mu^-, 2n$ )  $^{99m}\text{Tc}$  (1/2-, 6.02h, 0.142 MeV  $\gamma$ )  $^{99}\text{Tc}$  (9/2-, 2.14  $\times 10^5$  y, 0.29 MeV  $\beta^-$ )  $^{99}\text{Ru}$  +  $^{99}\text{Tc}$  (9/2-, 2.14  $\times 10^5$  y, 0.29 MeV  $\beta^-$ )  $^{99}\text{Ru}$  (5/2+)
- $^{100}\text{Ru}$  (12.60%) ( $\mu^-, 3n$ )  $^{98}\text{Tc}$  (6+, 4.2  $\times 10^5$  y, 0.397 MeV  $\beta^-$ )  $^{98}\text{Ru}$  (0+) +  $^{99}\text{Tc}$  (9/2-, 2.14  $\times 10^5$  y, 0.29 MeV  $\beta^-$ )  $^{99}\text{Ru}$  (5/2+)
- ( $\mu^-, 2n$ )  $^{98}\text{Tc}$  (6+, 4.2  $\times 10^5$  y, 0.397 MeV  $\beta^-$ )  $^{98}\text{Ru}$  (0+) +  $^{97}\text{Tc}$  (9/2-, 2.14  $\times 10^5$  y, 0.29 MeV  $\beta^-$ )  $^{97}\text{Ru}$  (5/2+)
- ( $\mu^-, 3n$ )  $^{97m}\text{Tc}$  (1/2-, 90d, 0.0965 MeV  $\gamma$ )  $^{97}\text{Tc}$  (9/2+, 2.6  $\times 10^6$  y, EC)  $^{97}\text{Mo}$  (5/2+) +  $^{97}\text{Tc}$  (9/2+, 2.6  $\times 10^6$  y, EC)  $^{97}\text{Mo}$  (5/2+)

【 9 】

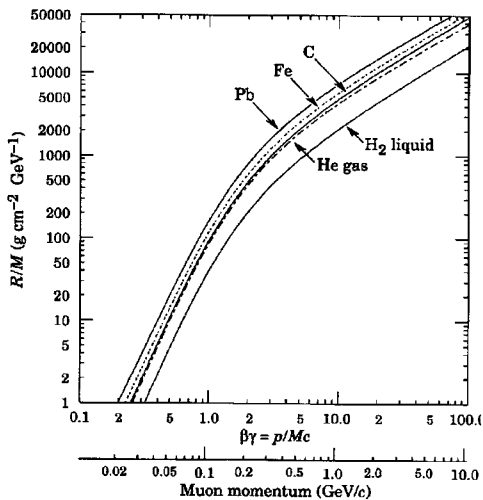
**Product of ( $\mu$ , xn) Reaction of Ru Isotopes(cont'd)**

- <sup>99</sup>Ru ( $\mu$ , n) <sup>98</sup>Tc (6+, 4.2x10<sup>6</sup>y, 0.397MeV  $\beta^-$ ) <sup>98</sup>Ru(0+) (12.76%) ( $\mu$ , 2n) <sup>97m</sup>Tc (1/2-, 90d, 0.0965MeV  $\gamma$ ) <sup>97</sup>Tc (9/2+, 2.6x10<sup>6</sup>y, EC) <sup>97</sup>Mo(5/2+) + <sup>97</sup>Tc (9/2+, 2.6x10<sup>6</sup>y, EC) <sup>97</sup>Mo(5/2+)
- ( $\mu$ , 3n) <sup>96m</sup>Tc (4+, 52m, 0.0342MeV  $\gamma$ ) <sup>96</sup>Mo(0+) + <sup>96</sup>Tc (7+, 4.3d, EC, many  $\gamma$ ) <sup>96</sup>Mo(0+)
- <sup>98</sup>Ru ( $\mu$ , n) <sup>97m</sup>Tc (1/2-, 90d, 0.0965MeV  $\gamma$ ) <sup>97</sup>Tc (9/2+, 2.6x10<sup>6</sup>y, EC) <sup>97</sup>Mo(5/2+) (1.87%) + <sup>97</sup>Tc (9/2+, 2.6x10<sup>6</sup>y, EC) <sup>97</sup>Mo(5/2+)
- ( $\mu$ , 2n) <sup>96m</sup>Tc (4+, 52m, 0.0342MeV  $\gamma$ ) <sup>96</sup>Mo(0+) + <sup>96</sup>Tc (7+, 4.3d, EC, many  $\gamma$ ) <sup>96</sup>Mo(0+)
- ( $\mu$ , 3n) <sup>95m</sup>Tc (1/2-, 61d, [(95.8%)EC+(0.31%)0.71+0.506MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ ] <sup>95</sup>Mo + (3.9%)0.0389MeV  $\gamma$ ) <sup>95</sup>Tc (20.0h, EC, many  $\gamma$ ) <sup>95</sup>Mo(5/2+)
- <sup>96</sup>Ru ( $\mu$ , n) <sup>95m</sup>Tc (1/2-, 61d, [(95.8%)EC+(0.31%)0.71+0.506MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ ] <sup>95</sup>Mo + (3.9%)0.04MeV  $\gamma$ ) <sup>95</sup>Tc (9/2+, 20.0h, EC, many  $\gamma$ ) <sup>95</sup>Mo(5/2+) (5.54%) + <sup>95</sup>Tc (9/2+, 20.0h, EC, many  $\gamma$ ) <sup>95</sup>Mo(5/2+)
- ( $\mu$ , 2n) <sup>94m</sup>Tc (2+, 53m, 2.47MeV  $\beta^-$ +EC, many  $\gamma$ ) <sup>94</sup>Mo(0+) + <sup>94</sup>Tc (6, 7+, 293m, 1.05+0.82MeV  $\beta^-$ , many  $\gamma$ ) <sup>94</sup>Mo(0+)
- ( $\mu$ , 3n) <sup>93m</sup>Tc (1/2-, 43m, [(18%)EC, many  $\gamma$ ] <sup>93</sup>Mo (5/2+, >100Y) + (82%)0.39MeV  $\gamma$ ) <sup>93</sup>Tc (9/2+, 2.7h, EC+ $\beta^-$ , many  $\gamma$ ) <sup>93</sup>Mo + <sup>93</sup>Tc (9/2+, 2.7h, EC +  $\beta^-$ , many  $\gamma$ ) <sup>93</sup>Mo(5/2+)

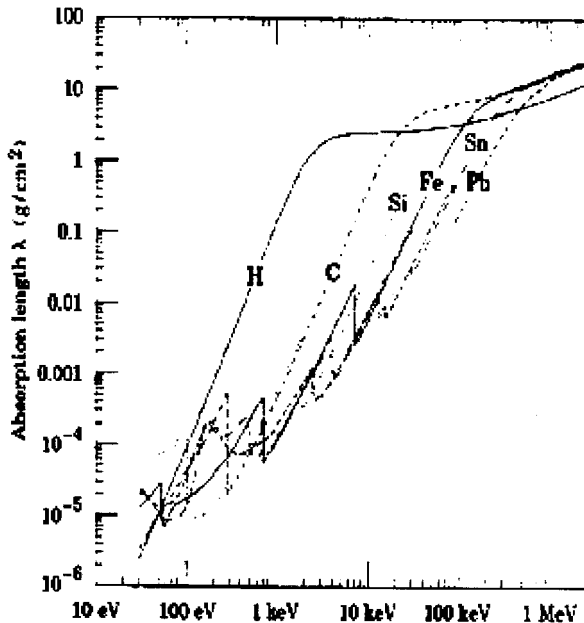
【 1 0 】

|                   |                |              |                |                |                |                      |                      |
|-------------------|----------------|--------------|----------------|----------------|----------------|----------------------|----------------------|
|                   | ( $\mu$ , 0 n) | ( $\mu$ , n) | ( $\mu$ , 2 n) | ( $\mu$ , 3 n) | ( $\mu$ , 4 n) | ( $\mu$ , p)         | ( $\mu$ , p+x n)     |
| <sup>107</sup> Ag | 6(9)           | 51(18)       | 25(18)         | 12(11)         | 6(6)           | 2.3x10 <sup>-1</sup> | 1.8x10 <sup>-1</sup> |

【 1 1 】



【 1 2 】

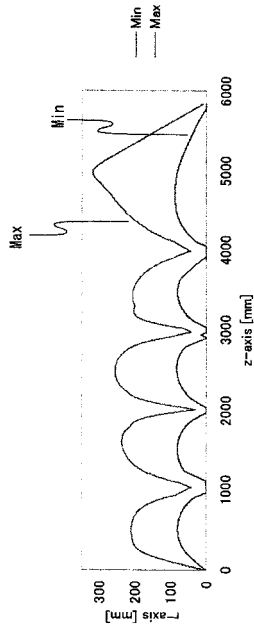




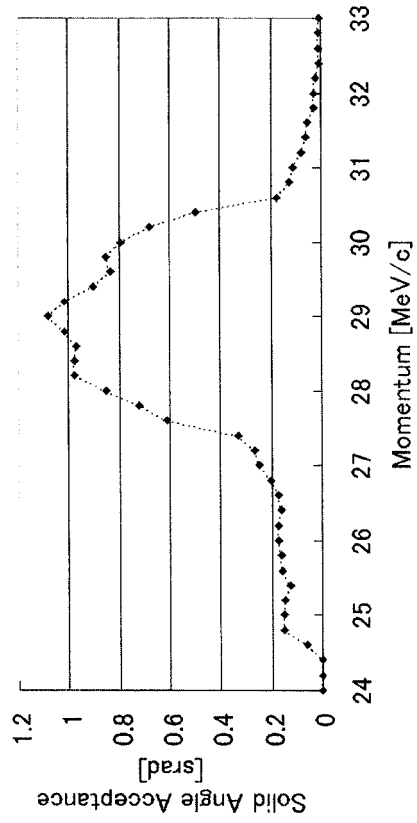
【 図 1 3 】

| 方式  | エネルギー源   | <sup>99</sup> Mo生成量/s<br><sup>99</sup> Tc崩壊量/6d  | <sup>99m</sup> Tc生成量/s<br><sup>99</sup> Tc崩壊量/6d                                       |
|---|--|--|--|
| 原子炉核分裂<br>2.2 MW CANDU<br>[2]                             | 0.027 mg/s (14 g/144 h) <sup>235</sup> U<br>(82 GJ/1g <sup>235</sup> U)<br>0.786x10 <sup>17</sup> fission<br>(175 MeV/fission) | 4.8x10 <sup>15</sup> /s<br>(6.11/100 fission)<br>3.7x10 <sup>15</sup> Bq/6d<br>(崩壊率0.0105/h) | 4.4x10 <sup>14</sup> /s<br>(崩壊率比:0.0105/0.115)<br>4.4x10 <sup>14</sup> Bq/6d           |
| 陽子核反応<br><sup>100</sup> Mo(p,2n) <sup>99m</sup> Tc<br>[3] | 24 MeV, 0.2 μA   | 0.17x10 <sup>6</sup> /μA/s<br>(p,2n)反応率:0.6x GBq/(μA-h)<br>8.6x10 <sup>10</sup> /μA/6d       | 0.17x10 <sup>6</sup> /μA/s<br>(p,2n)反応率:0.6x GBq/(μA-h)<br>8.6x10 <sup>10</sup> /μA/6d |
| ミュオン核吸収<br>(天然Ru)   | 500MeV陽子300μA<br>加速陽子:1.3x10 <sup>15</sup> /s<br>μ 強度: 2.2x10 <sup>11</sup> /s   | 3.3x10 <sup>10</sup> /s<br>(0.15/μ <sup>-</sup> )<br>2.5x10 <sup>10</sup> Bq/6d              | 3.3x10 <sup>10</sup> /s<br>(0.15/μ <sup>-</sup> )<br>2.5x10 <sup>10</sup> Bq/6d        |
| ミュオン核吸収<br>(濃縮 <sup>100</sup> Ru)                         |  | 1.1x10 <sup>11</sup> /s<br>(0.51/μ <sup>-</sup> )<br>1.0x10 <sup>12</sup> Bq/6d              | 1.1x10 <sup>11</sup> /s<br>(0.51/μ <sup>-</sup> )<br>1.0x10 <sup>12</sup> Bq/6d        |

【 図 1 5 】

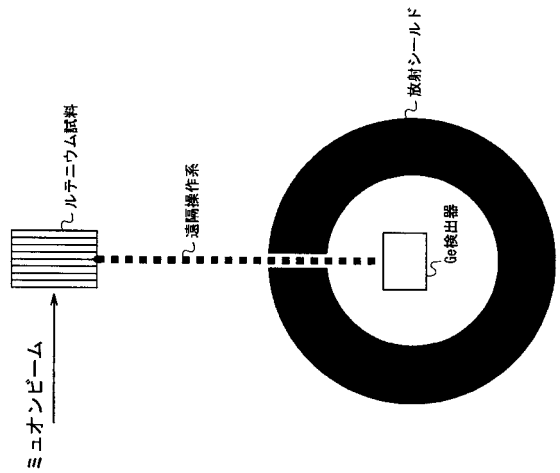


【 図 1 4 】



放射性テクネチウム99異性体生成法の概念的比較

【 図 1 6 】



## 【手続補正書】

【提出日】平成27年6月26日(2015.6.26)

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

負ミュオンを発生する工程と、  
前記負ミュオンをルテニウム試料に照射する工程と、  
を有する放射性テクネチウム99m含有物質生成方法。

【請求項2】

前記ルテニウム試料は、金属ルテニウム及びルテニウム化合物のうち少なくとも1つを含む  
請求項1に記載の放射性テクネチウム99m含有物質生成方法。

【請求項3】

前記ルテニウム試料は、複数の厚さ4mm以下のルテニウム薄板を重ねたものである、  
請求項1または2に記載の放射性テクネチウム99m含有物質生成方法。

【請求項4】

負ミュオンを発生するミュオン発生装置と、  
前記ミュオン装置で発生した前記負ミュオンを照射されるルテニウム試料の保持装置と  
、  
を備える放射性テクネチウム99m含有物質生成装置。

【請求項5】

前記ルテニウム試料は、金属ルテニウム及びルテニウム化合物のうち少なくとも1つを含む  
請求項4に記載の放射性テクネチウム99m含有物質生成装置。

【請求項6】

前記ルテニウム試料は、複数の厚さ4mm以下のルテニウム薄板を重ねたものである、  
請求項4または5に記載の放射性テクネチウム99m含有物質生成装置。

【請求項7】

前記ミュオン発生装置は、  
複数の超伝導コイルを有し、全長6m以上であるミュオン生成ビーム光学系部を備える  
請求項4乃至6のいずれか1つに記載の放射性テクネチウム99m含有物質生成装置。

【請求項8】

請求項1乃至3のいずれか1つに記載の放射性テクネチウム99m含有物質生成方法に  
よって生成される放射性テクネチウム99m含有物質。

【請求項9】

前記放射性テクネチウム99m含有物質に含有されるルテニウム酸化物の総含有量が0.01%を超え0.1%以下であることを特徴とする請求項8に記載の放射性テクネチウム99m含有物質。

【請求項10】

前記放射性テクネチウム99m含有物質に含有されるルテニウム酸化物の総含有量が0.01%以下であることを特徴とする請求項8に記載の放射性テクネチウム99m含有物質。

【請求項11】

前記放射性テクネチウム99m含有物質を含有する過テクネチウム酸水溶液に含有されており、前記過テクネチウム酸水溶液の総放射能に対する<sup>99m</sup>Tcの放射能の割合が99.985%以上であり、且つ、前記テクネチウム酸水溶液におけるルテニウムイオンの総含

有量が0.01%を超え0.1%以下であることを特徴とする請求項8に記載の放射性テクネチウム99m含有物質。

**【請求項12】**

前記放射性テクネチウム99m含有物質を含有する過テクネチウム酸水溶液に含有されており、前記過テクネチウム酸水溶液の総放射能に対する $^{99m}\text{Tc}$ の放射能の割合が99.985%以上であり、且つ、前記テクネチウム酸水溶液におけるルテニウムイオンの総含有量が0.01%以下であることを特徴とする請求項8に記載の放射性テクネチウム99m含有物質。

## 【 国際調査報告 】

| INTERNATIONAL SEARCH REPORT  |  | International application No.<br>PCT/JP2013/083161                              |
|--|--|---|
| <b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b><br>G21G4/08(2006.01)i, G21G1/10(2006.01)i, G21K1/093(2006.01)i<br><br>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC   |  |   |
| <b>B. FIELDS SEARCHED</b><br>Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)<br>G21G4/08, G21G1/10, G21K1/093<br><br>Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched<br>Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2014<br>Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2014 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2014<br><br>Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)<br>JSTPlus (JDreamIII)  |  |   |
| <b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>  |  |   |
| Category*  | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No.   |
| A  | Kanetada NAGAMINE, "Condensed Matter Studies with Muons (Mesons)", Journal of the Japanese Society for Synchrotron Radiation Research, 1998.02, vol.11, no.1, pages 24 to 29 | 1-7   |
| A  | Kase T. and KONASHI K., Transmutation of 99Tc with the Use of an Accelerator, Nuclear Science and Engineering, 1994.11, Vol.118, No.3, pp.153-159                            | 1-7   |
| A  | JP 7-239397 A (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp.),<br>12 September 1995 (12.09.1995),<br>entire text; all drawings<br>(Family: none)                          | 1-7   |
| <input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.  |  |   |
| * Special categories of cited documents:<br>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance<br>"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date<br>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)<br>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means<br>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed<br>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention<br>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone<br>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art<br>"&" document member of the same patent family |  |   |
| Date of the actual completion of the international search<br>07 March, 2014 (07.03.14)   |  | Date of mailing of the international search report<br>18 March, 2014 (18.03.14) |
| Name and mailing address of the ISA/<br>Japanese Patent Office   |  | Authorized officer  |
| Facsimile No.  |  | Telephone No.   |

| 国際調査報告  |  | 国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 3 / 0 8 3 1 6 1                               |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
|---|--|--|-------------|-----------|------------|-------------|------------|-------------|------------|-------------|------------|
| A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))<br>Int.Cl. G21G4/08(2006.01)i, G21G1/10(2006.01)i, G21K1/093(2006.01)i  |  |  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| B. 調査を行った分野<br>調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))<br>Int.Cl. G21G4/08, G21G1/10, G21K1/093  |  |  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの<br><table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2014年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2014年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2014年</td> </tr> </table> |  |  |             | 日本国実用新案公報 | 1922-1996年 | 日本国公開実用新案公報 | 1971-2014年 | 日本国実用新案登録公報 | 1996-2014年 | 日本国登録実用新案公報 | 1994-2014年 |
| 日本国実用新案公報   | 1922-1996年   |  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 日本国公開実用新案公報   | 1971-2014年   |  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 日本国実用新案登録公報   | 1996-2014年   |  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 日本国登録実用新案公報   | 1994-2014年   |  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)<br>JSTPlus(JDreamIII)   |  |  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| C. 関連すると認められる文献   |  |  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 引用文献の<br>カテゴリー*   | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示  | 関連する<br>請求項の番号   |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| A   | 永嶺 謙忠,<br>ミュオン (中間子) を用いた物性研究,<br>放射光, 1998.02, Vol.11, No.1, pp.24-29   | 1-7  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| A   | Kase T. and KONASHI K.,<br>Transmutation of 99Tc with the Use of an Accelerator,<br>Nuclear Science and Engineering, 1994.11, Vol.118, No.3,<br>pp.153-159 | 1-7  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| <input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。   |  |  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| * 引用文献のカテゴリー  |  | の日の後に公表された文献   |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの   |  | 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの     |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの   |  | 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの                     |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)   |  | 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  |  | 「&」同一パテントファミリー文献   |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願   |  |  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 国際調査を完了した日<br>07.03.2014  |  | 国際調査報告の発送日<br>18.03.2014   |             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 国際調査機関の名称及びあて先<br>日本国特許庁 (ISA/J P)<br>郵便番号100-8915<br>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号   |  | 特許庁審査官 (権限のある職員)<br>藤本 加代子   | 2 I 4 4 5 8 |           |            |             |            |             |            |             |            |
|   |  | 電話番号 03-3581-1101 内線 3273  |             |           |            |             |            |             |            |             |            |

| 国際調査報告                |  | 国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 3 / 0 8 3 1 6 1 |
|-----------------------|--|--------------------------------------|
| C (続き) . 関連すると認められる文献 |  |                                      |
| 引用文献の<br>カテゴリー*       | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                | 関連する<br>請求項の番号                       |
| A                     | JP 7-239397 A (動力炉・核燃料開発事業団)<br>1995.09.12, 全文および全図<br>(ファミリーなし) | 1 - 7                                |

## フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US

(注) この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。