

2022年度 博士前期課程学位論文要旨

学位論文題名 (注: 学位論文題名が英語の場合は和訳をつけること)

Ac-225 製造現場における可搬型 α 線スペクトロメータの応用

学位の種類: 修士 (放射線学)

東京都立大学大学院

人間健康科学研究科 博士前期課程 人間健康科学専攻 放射線科学域

学修番号 2189718

氏名: 三瓶 優真

(指導教員名: 井上 一雅)

注: 1 ページあたり 1,000 字程度 (英語の場合 300 ワード程度) で、本様式 1~2 ページ (A4 版) 程度とする。

近年、生物学的効果比が大きく、組織中での飛程が短い α 線を利用した標的アイソトープ治療に関する研究開発が活発となっている。国内において、 ^{225}Ac は新たな放射製薬剤として国際社会における日本の先導性および優位性を意識した新産業創出を目指すことが出来る「重要ラジオアイソトープ」の一つとして位置付けられており、主に ^{226}Ra に中性子や陽子を照射する製造方法について研究が進められている。しかし、照射後の $^{225}\text{Ac}/^{226}\text{Ra}$ 溶液から ^{225}Ac を分離する必要があり、精製した ^{225}Ac に原料の ^{226}Ra が混入していないことを確認する手法の確立が ^{225}Ac の製造過程における課題の一つとなっている。 α 線放出核種の同定には真空チャンバを使用する α 線スペクトロスコープが有用であるが、検出器や真空ポンプを汚染するおそれがあるために試料を直接測定することは難しく、電着試料等の作成においても時間を要する。先行研究で開発された Si 半導体検出器を有する可搬型 α 線スペクトロメータは、空気中で簡便に α 線スペクトルを測定することができるが、 α 線ピークのテーリングが大きいためエネルギー分解能が悪い。本研究では、可搬型 α 線スペクトロメータのエネルギー分解能を改善し、 ^{225}Ac の製造現場において ^{225}Ac 溶液に混入する ^{226}Ra の検出に応用できる可能性について検討した。

α 線放出核種の非密封溶液を使用した実験には制約が多いため、本研究では放射線輸送計算コードである PHITS を使用して開発した可搬型 α 線スペクトロメータによる測定ジオメトリを再現した。Si 半導体検出器の表面に生じる不感層の厚さおよび検出器固有のエネルギー分解能を、それぞれ 600 nm および 100 keV に最適化することにより、線源から Si 半導体の結晶表面までの距離 (SSD) が 3.8 mm から 23.8 mm までの範囲において、 ^{241}Am 電着線源および 3 核種 (^{237}Np 、 ^{241}Am および ^{244}Cm) 混合電着線源のいずれに対しても、実測の α 線スペクトルを計算で概ね再現できた。次に、ハニカム構造のアルミニウム製コリメータを基準として、セルサイズおよびセルの形状に対する計数効率およびエネルギー分解能の依存性を計算に検討した結果、特に、セルサイズに対してトレードオフの関係にあることを明らかにした。実際に、セルサイズ 3.2 mm のハニカム構造を有するアルミニウム製の既製部品 (箔厚 25 μm 、厚さ 5 mm) をコリメータとして活用した結果、SSD が 8.8 mm の場合について ^{241}Am 電着線源に対する計数効率が 2.5%、5.5 MeV の α 線ピークに対する半値幅 (FWHM) および 10 分の 1 幅 (FWTM) がそれぞれ 123 keV および 247 keV となった。 ^{225}Ac および ^{226}Ra から放出される α 線のエネルギーはそれぞれ 5.8 MeV および 4.7 MeV であり、その差が 800 keV であることから、コリメータを使用することにより ^{225}Ac およびその子孫

核種から放出される α 線のテーリングによる影響を抑えることが可能であり、可搬型 α 線スペクトロメータを ^{225}Ac 溶液中に混入する ^{226}Ra の検出に応用できる可能性が示唆された。

可搬型 α 線スペクトロメータの ^{225}Ac 製造現場への応用について検討するため、コリメータを使用して ^{225}Ac (子孫核種は平衡状態で存在していると仮定) を測定した場合の α 線スペクトルを計算し、非密封の ^{225}Ac 溶液をステンレス板に滴下した試料を 2 つ作成して実測した結果と比較した。最もエネルギーの高い ^{210}Po から放出される α 線ピークについて実測から評価された FWHM は、2 つの試料においてそれぞれ 180 keV および 152 keV であり、いずれも計算から評価された FWHM (114 keV) よりも大きくなった。実測において FWHM の劣化に影響を及ぼした可能性のある要因として、SSD の誤差、滴下した溶液の広がり、滴下した溶液の自己吸収が考えられたが、SSD や滴下した溶液の直径の変化が FWHM に与える影響は限定的であった。一方、体積線源を想定した場合は、数 μm のわずかな厚みでも自己吸収によって FWHM が劣化することが明らかとなった。厚さ 2.2 μm の体積線源を想定して計算した結果、 ^{210}Po から放出される α 線ピークの FWHM は 166 keV となり、実測した α 線スペクトルが再現された。 ^{226}Ra が検出されるおそれのある場合には、その壊変によって生じる希ガスの ^{222}Rn による検出器等の汚染防止策を考慮する必要がある。そこで、線源をマイラー膜で覆った場合の α 線スペクトルを計算した結果、 ^{226}Ra から放出される 4.7 MeV の α 線ピークの計数効率および FWHM が悪化することが明らかとなった。しかし、市販されている厚さ 2 μm のマイラー膜を使用したとしても、FWHM は少なくとも 300 keV を下回り、 ^{226}Ra の検出には大きな影響を与えないことが示唆された。そこで、陽子ビームの照射後の $^{225}\text{Ac}/^{226}\text{Ra}$ 溶液から精製した ^{225}Ac 溶液の放射能として 1,000 kBq/ μL を想定し、これを千倍希釈して 1 μL 滴下した 1,000 Bq の ^{225}Ac (子孫核種も平衡状態で存在していると仮定) に対して 1% の放射能比に相当する 10 Bq の ^{226}Ra が混入していた場合について、2 μm のマイラー膜を使用した 1,800 秒の測定で得られる α 線スペクトルを計算した結果、 ^{226}Ra の混入を十分に検出できることが示唆された。実際の製造現場においては測定できる ^{225}Ac の放射能や測定時間に制約が生じると考えられる。 ^{226}Ra の検出限界下限値 (Bq) について計算した結果、例えば、測定できる ^{225}Ac の放射能が 100 Bq であったとしても、3,600 秒の測定によって混入割合が 1% の ^{226}Ra を検出できることが示唆された。また、特に 10,000 Bq の ^{225}Ac に対しては、3,600 秒の測定で 0.1% の ^{226}Ra を検出できることも示唆された。

本研究では、コリメータを使用することにより先行研究で開発された可搬型 α 線スペクトロメータのエネルギー分解能の大幅な向上を実現した。また、 ^{225}Ac 溶液に混入する ^{226}Ra を十分に検出できる可能性を示した。本研究の成果は、真空中で測定する必要のある従来の α 線放出核種の同定手法を大きく簡便化するものであり、実際に ^{225}Ac の製造現場への応用が期待されるものである。今後の課題として、可搬型 α 線スペクトロメータによる ^{226}Ra の実測に基づき、本研究で示した検出下限値について検証するとともに、実用化に向けた測定条件等の最適化について検討する必要がある。また、 ^{225}Ac の製造にあたって ^{226}Ra 以外に混入する可能性のある核種として、Ac の同位体 (^{224}Ac や ^{226}Ac) が考えられるため、それらの子孫核種を含めた α 線スペクトルへの影響についても検討する必要がある。