

## 読者の広場

### 新博士誕生

## 学位論文と院生生活雑感

量子科学技術研究開発機構

量子生命・医学部門 物理工学部

青木 勝海

[aoki.katsumi@qst.go.jp](mailto:aoki.katsumi@qst.go.jp)

---

### 1. はじめに

2022年3月に九州大学大学院総合理工学府先端エネルギー理工学専攻を修了し、博士(工学)の学位を取得しました。今回、新博士誕生ということで執筆の機会をいただきましたので、僭越ながら大学院での研究生生活や研究成果について記したいと思います。

### 2. 研究室での生活

私は、学部4年時の研究室配属時に渡辺・金研究室に配属されてから、修士・博士と6年間過ごしました。渡辺・金研究室は、九州大学の本拠地である伊都キャンパスとは離れており、福岡県の県庁所在地の福岡市の隣に位置する春日市に設置されている筑紫キャンパスにあります。伊都キャンパスは福岡空港から電車とバスで1時間程度の場所に位置しているのに対して、筑紫キャンパスは空港から電車を乗り継いで30分程度の場所に位置し、福岡の中心街である博多や天神にもアクセスの良いキャンパスです。私自身、福岡市から大学に通っていましたが、筑紫キャンパスは交通の便が良かった印象があります。また、筑紫キャンパスの学生の大多数は学部生ではなく大学院生であり、九州大学の学科出身者のみならず様々な大学や高専を出身とする学生が多く、留学生の割合も高いのも特徴の一つです。また、春になると図1のように桜が咲き、修了生や入学生を祝福するような雰囲気があり、緑豊かで心地よいキャンパスです。

私が所属していた研究室では、核データ測定、放射線誘起によるソフトエラー、医療用放射性同位元素(RI)の製造、ミュオグラフィなどの基礎から応用まで幅広く研究活動を行なっています。この中で、私は医療用RI製造に関する研究に興味を持ち、金政浩准教授の指導の下でRI製造に関連した研究活動に励みました。具体的な研究内容について

ては次章で述べます。なぜ、この研究テーマを選んだのかについて少しお話させていただきます。少し話は遡りますが、高校生だった私は発電などに利用される原子力に興味を持って、九州大学エネルギー科学科を志望しました。しかし、大学で原子力の応用について学び、発電のみならず様々な分野に応用されていることを知ることができました。それまで原子力に対しては発電のイメージが強かった私には、医療応用などが新鮮に感じられ、そちらにも興味を持つようになりました。学部生の時に筑紫キャンパスのオープンキャンパスを訪れた際に、医療用 RI 製造の研究を知ることができ、その研究に関心を抱きました。その経緯があって医療用 RI 製造に関する研究を希望し、その研究活動を行なってきました。



図1 九州大学筑紫キャンパスの桜並木[1]

### 3. 医療用 RI 製造に関する研究

ここでは私が大学院生の間に行なった研究について、触れていこうと思います。博士論文のタイトルは、「重陽子加速器中性子源を用いた天然亜鉛を原料とする医療用放射性銅の製造法」です。この研究は、PET (positron emission tomography、陽電子放出断層撮影) と呼ばれる核医学検査に用いられる RI を国内で量産する技術の確立を目指しています。現在、PET 検査に用いられる RI は半減期が短く、製造拠点から使用施設まで輸送できる範囲に制限があることや、検査目的が限定されるといった問題があります。この問題を解決するために長半減期の RI が求められており、 $^{64}\text{Cu}$  がその候補として提案されています。 $^{64}\text{Cu}$  の半減期は 12.7 時間であり、現在 PET 検査で用いられるどの RI の半減期より長く、製造施設から病院への輸送、体内動態の経過観察が可能な長さです。また、 $^{64}\text{Cu}$  は PET 検査の応用のみならず、セラノスティクスと呼ばれる治療や  $^{64}\text{Cu}$  が放出するベータ線とオージェ電子を用いた治療への応用も考えられている RI です。

現在  $^{64}\text{Cu}$  は荷電粒子入射反応である  $^{64}\text{Ni}(p,n)$  反応により製造されています。しかし、この製造手法では Ni 中の陽子の飛程の短さや  $^{64}\text{Ni}$  の天然存在比 (0.93%) の観点から大量製造する際の問題があります。そこで、新たな製造手法として、 $^{64}\text{Zn}(n,p)$  反応を用い

た製造手法が提案されています[2]。この製造手法を用いた場合、原料に入射する粒子が非荷電粒子である中性子であり透過力が高く、原料全体で  $^{64}\text{Cu}$  を生成でき、飛程の短さに関する課題を克服できます。さらに、 $^{64}\text{Zn}$  の天然存在比が 49.2% と高いという特徴があり、天然存在比が低い問題も解決できると期待されています。この製造手法では、図 2 に示すように数十 MeV に加速した重陽子を炭素やベリリウムなどの標的に入射することで中性子を生成し、その中性子を原料である亜鉛に照射します。先行研究において、指導教員である金准教授が 9 MeV と 12 MeV の重陽子入射による  $\text{C}(d,n)$  反応の中性子源を用いて  $^{64}\text{Cu}$  の製造実験を行っており、高純度な  $^{64}\text{Cu}$  を生成することができています[3]。しかし、この時に入射重陽子エネルギーについての検討と核データなどから予測した  $^{64}\text{Cu}$  の生成量について不確かさ評価がなされてなかったことが課題としてありました。入射重陽子エネルギーを検討するためには、それぞれの重陽子エネルギーにおける  $^{64}\text{Cu}$  の生成量を導出する必要があります。その生成量を導出するためには、炭素標的から放出される中性子のエネルギースペクトルと亜鉛の中性子入射反応の断面積が必要となります。反応断面積は核データライブラリの値を引用するため既知です。そのため、 $\text{C}(d,n)$  反応の中性子スペクトルが重要になってきます。しかし、その中性子スペクトルの実験データが少なく、生成量の重陽子エネルギー依存性を調査することができませんでした。そこで、本研究では  $^{64}\text{Cu}$  生成量の重陽子エネルギー依存性を調査するために、様々な重陽子エネルギーにて中性子エネルギースペクトルを多重箔放射化法にて測定しました。

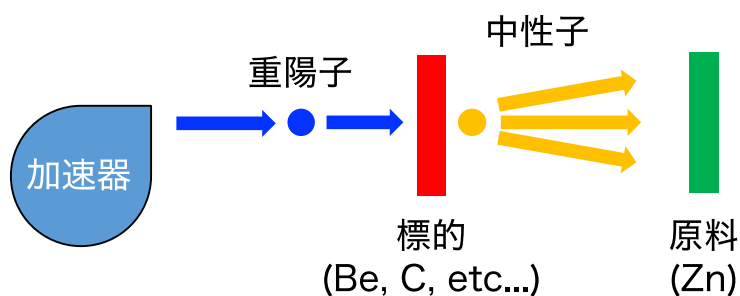


図2 重陽子入射反応から放出される中性子を利用した放射性核種製造の概要

さて、多重箔放射化法による中性子スペクトルの測定では、逐次近似法によるアンフォールディングにて中性子スペクトルを導出します。しかし、逐次近似法のアンフォールディングでは中性子スペクトルの不確かさを解析的に導出することができません。本研究では、ランダムサンプリング手法を取り入れて中性子スペクトルの不確かさを導出する手法を開発しました。この手法によって得られる中性子スペクトルの不確かさが、 $^{64}\text{Cu}$  の生成量の精度に繋がってきます。具体的には多重箔内で生成した核種の放射能と反応断面積に対してランダムサンプリング手法を適用し、大量のアンフォールディング

の入力データを作成します。この時に、生成放射能は測定時の統計誤差を標準偏差とした正規乱数で生成し、断面積は核データの共分散を用いた多変量正規乱数によって生成しました。これらの生成されたデータを逐次近似法のアンフォールディングコードである GRAVEL の入力値として使用し、大量の中性子スペクトルを導出しました。図 3 に示すように、サンプリングした入力データから導出したスペクトルを統計解析することで、最終的な解スペクトルとその不確かさを導出する手法を開発しました。

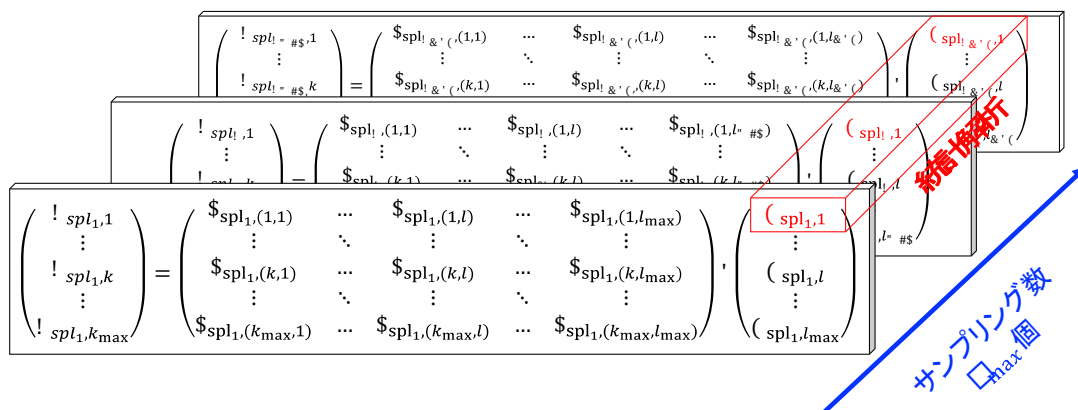


図 3 ランダムサンプリング手法を取り入れた中性子スペクトルの不確かさ導出手法の概要

開発した中性子スペクトルの不確かさ導出手法のテストのために、シミュレーションで導出した生成核種の放射能に対して開発した手法の適用を行いました。このシミュレーションは、PHITS にて 20 MeV 重陽子入射による  $C(d,n)$  反応で生じた中性子を多重箔に照射し、実際の多重箔放射化法による中性子スペクトル測定実験を模擬しました。アンフォールディングの入力データ生成の際の断面積のランダムサンプリングで共分散を使った場合とそうでない場合で、図 4 に示すようにそれぞれの中性子スペクトルの不確かさが異なり、共分散を使った場合の方の不確かさが大きくなることがわかりました。これは、誤差伝播則より導出した中性子スペクトルの不確かさに、断面積の共分散に関係する項が含まれていることに起因すると考察しました。これにより、断面積の共分散を用いて不確かさを導出することが重要であると考えました[4]。

次に、実験データに対して開発した不確かさ導出手法を適用しました。実験は、東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター (CYRIC) にて、16、20、25 MeV 重陽子入射による  $C(d,n)$  反応から放出される中性子のエネルギースペクトルの測定を行いました。導出した中性子スペクトルらを、過去の他の研究者の測定データや JENDL/DEU-2020 を用いて導出した中性子スペクトルらと比較し、同様の傾向を示すことを確認しました。この時に、中性子スペクトルの不確かさ (分散・共分散) を導出し、

$^{64}\text{Cu}$  の生成量の精度を導出できるようにしました。また、中性子スペクトルの重陽子エネルギー依存性についても調査し、重陽子エネルギーが上がるにつれて、中性子スペクトルの絶対値が上がることもわかりました。

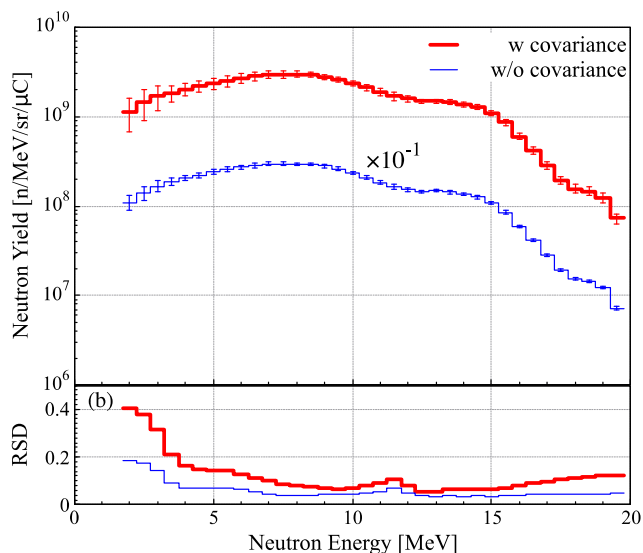


図 4 断面積ランダムサンプリング時に共分散を使った場合（赤色）とそうでない場合（青色）での中性子スペクトル（上段）とその不確かさ（下段）（参考文献[4]から引用）

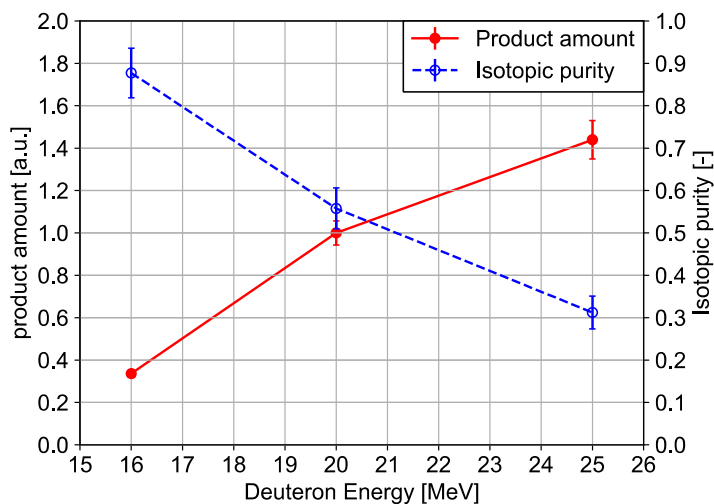


図5 測定した中性子スペクトルを用いて算出した $^{64}\text{Cu}$ の生成量（赤丸）とその同位体生成純度（青丸）

導出した中性子スペクトルと断面積を用いた畳み込み積分により  $^{64}\text{Cu}$  の生成量を算出した結果を図 5 に示します。中性子スペクトルと断面積の不確かさを生成量の不確か

さへ伝播させ、生成量の精度についても検討しました。この結果から、重陽子加速器中性子源を用いた天然亜鉛を原料とする  $^{64}\text{Cu}$  の製造において、重陽子エネルギーの依存性を明らかにすることができました。これらの不確かさ導出手法の実験データへの適用と、 $^{64}\text{Cu}$  の生成量の予測とその精度については、今後学術雑誌に論文を投稿する予定です。

#### 4. おわりに

2022年4月から量子科学技術研究開発機構の物理工学部に職をいただき、研究者としての生活をスタートしました。当部署は、重粒子線がん治療装置 HIMAC の運転管理や照射システムの QA/QC 業務を行っており、重粒子線治療のさらなる高度化に関する研究も行っています。その中で、私は治療装置の照射・線量評価技術に関する研究を行っています。これまでの研究で得た知識などを活かすことができる部分はありますが、まだまだ知識や経験不足を感じる時が多いため、これからも精進していきたいと思っています。

最後に、大学・大学院でお世話になった方々にお礼を申し上げて終わりとさせていただきます。金政浩准教授には、研究に関して多くの知識や技術を教えていただき、基礎的な知識を身につけることができました。渡辺幸信教授には、研究だけでなく研究の進め方などの研究者としての基礎をご教授いただきました。IAEA の大塚直彦さんには、私の博士研究の中で軸である断面積のランダムサンプリング手法について多くの助言をいただきました。さらに、研究室の先輩、同期、後輩、また実験させていただいた東北大学 CYRIC の方々のおかげで学位を取得することができたと思っています。本当にありがとうございました。まだまだ未熟者ですが、今後もどうぞよろしく願いいたします。

#### 参考文献

- [1] 九州大学大学院総合理工学府ホームページ <https://www.tj.kyushu-u.ac.jp/>
- [2] Tadahiro Kin et al., “New production routes for medical isotopes  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{67}\text{Cu}$  using accelerator neutrons,” J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 034201 (2013).
- [3] Tadahiro Kin et al., “Production of high-purity medical radio isotope  $^{64}\text{Cu}$  with accelerator-based neutrons generated with 9 and 12 MeV deuterons,” J. Nucl. Sci. Technol., **54**, 1123 (2017).
- [4] Katsumi Aoki et al., “Nuclear data uncertainty in iterative neutron spectrum unfolding,” J. Nucl. Sci. Technol. (印刷中)