

研究室だより (I)

加速器を用いるアイソトープの基礎的研究と 製造技術開発：原研アイソトープ部高崎駐在グループ

日本原子力研究所東海研究所アイソトープ部（高崎駐在）
関根俊明

今年は放射能発見から 100 年に当たり色々な行事が催されている。その中で待望されていた Table of Isotopes の第 8 版が出版された。膨大なデータの蓄積を目の当たりにして、100 年の時間の長さとその間の多くの人々の弛み無い努力に感慨を深くする。R I の製造研究に関係すると、核データを最も良く利用することになるが、時に核データを産み出す立場にもなる。Table of Isotopes によって求める情報が容易に得られることに感謝しつつ、微力ながら核データに関する研究にも努めている。

平成 3 年の 10 月始めに当時名古屋大学の加藤敏郎先生や動燃の原田秀郎氏との共同研究として、 ^{90}Sr の (n, γ) 反応断面積測定を行った。この実験が無事に済んだ 2 週間後に筆者、出雲三四六、重田典子の 3 人が住み慣れた東海研を離れ、高崎に赴いた。私達は原研東海研のアイソトープ部研究開発課員であるが、この後は高崎で専らサイクロトロンを用いて R I 製造研究に従事することになる。

高崎に赴任したのは、放射線高度利用研究計画でサイクロトロンが動き出した時期である。この計画はイオンビームを用いて主に材料科学・生命科学を推進するものである。この中で R I のトレーサー利用、医学での診断・治療において新しい展開を目的に R I 製造施設が設けられた。また、サイクロトロンが軽イオンだけでなく、重イオンも加速できることから、重イオン核反応で生成する不安定核の研究も計画された。

現在のメンバーは、筆者の他に R I 製造研究では重田典子、不安定核研究では小泉光生、長明彦である。また、前述の出雲三四六、及び松岡弘充は R I 製造に長年携わり、施設設計・建設に寄与するとともに、1 年半乃至 2 年高崎に駐在して研究の開始時に重要な役割を果たした。現在も、マシンタイムでの応援や必要な開発実験で密接に協力している。また、不安定核研究では名古屋大学の河出清研究室の院生諸子が特研究生として核分光実験遂行の原動力となっている。

初めに R I 製造について述べる。放射線遮蔽したセル 3 基、標識化合物合成用セル 3 基を備えたホットラボ、フード 3 台を備えたセミホットラボと 7 m の壁を隔てて、ターゲットルームがある。ターゲットルームには 2 本のビームラインが来ているが、1 本は核分光実験用で、もう 1 本が原研で初めての R I 製造専用ビームラインである。各種 R I の製造のために固体・液体・気体のターゲットを照射する。1 本のビームラインで物理的性状を異にするターゲットを照射することが大きな問題であった。液体と気体ターゲット

についてはこれまでも例があり、ピストルの回転式弾丸装填と同様な方式（弾丸にあたるのはターゲットを納めたホルダー）が使えるが、固体ターゲットも一緒にするのは例がない。我々は円形ではなく、（可動性の）平面に弾丸を並べるといふ図1のような照射方式を採用した。固体ターゲットはアルミニウム製ターゲットホルダーに固定して台車に載せ、ホットラボからモノレールで輸送する。照射装置の隣にモノレールのターミナルがあり、ターゲット（ホルダー）を可動平面に渡す。

この装置はうまく動いて、固体ターゲットでは ^{139}La (p, n) 反応による ^{139}Ce の製造、 ^{186}W (p, n) 反応による ^{186}Re の製造などに用いてきた。 ^{139}Ce は、Ge検出器の計数効率校正に用いられるが、国外から入手し難い状況となったため、製造技術を開発した。 ^{186}Re は半減期4日で β^- 崩壊し、 β^- 線による局部照射でガンなどの治療に利用されると考えられる核種である。目的部位に集積する化合物やモノクローナル抗体に ^{186}Re を標識して体内投与する。この核種は原子炉で ^{185}Re (n, γ) 反応でも製造できる。その場合、無担体ではないが大量に製造できるので、末期のガンが骨に転移して引き起こす激痛の緩和への応用が検討されている。無担体の ^{186}Re はモノクローナル抗体に標識して、放射免疫療法に用いるのに有利である。

我々は、無担体 ^{186}Re の製造に注目して、 ^{186}W (p, n) ^{186}Re 反応の励起関数を測定した（図2）¹⁾。励起関数測定には、積層ターゲットを照射する放射化学が現在も用いられている。図2から、この反応はALICEコードで複合核過程+前平衡粒子放出過程で良く説明できることが分かる。理論的計算によって荷電粒子の低エネルギー核反応の励起関数は、かなり予測できるようになったが、RI製造において生成量の把握のために実験データを必要とする。

前述の照射装置で水ターゲットについてユニークな照射が可能になった。液体ターゲットは通常配管して輸送するのに対し、マイシン瓶に水を詰めて固体用ターゲットホルダーに固定して輸送し、照射する方法を開発した。このマイシン瓶（と言って良いかどうか？）は、ゴム製の蓋から注射針で内容物を取り出せる点は通常のマイシン瓶と同じであるが、チタン製で、底は薄い（厚さ0.1 mm）チタン箔で、陽子・ α 粒子ビームを導入する窓になる。この照射法の特徴はターゲットの水の純度を保てること、操作が容易であることである。これを用いて ^{16}O (α, pn) ^{18}F 、 ^{16}O (p, α) ^{13}N 反応で製造した ^{18}F 、 ^{13}N などのポジトロン放射体をトレーサーとする植物機能研究が高崎研内外の研究者によって活発に進められている。

この辺りで話題を核分光学的研究に移そう。短寿命アイソトープを迅速に質量分離するためにオンライン同位体分離器（ISOL）を設置した。オフライン利用して、RIのイオン注入による核物性的研究や新しい医療用線源の製造の可能性も追求しているが、ここでは核分光学的研究について述べる。

東海研タンDEM加速器には以前からISOLがあり、現在は陽子誘起核分裂で生成する中性子過剰核種やアクチノイドの新核種の研究で成果を挙げている。高崎研TIARA-ISOL

は AVF サイクロトロンに接続されており、希ガスイオンの高強度ビームを利用して専ら ^{36}Ar ビームと Mo, Zr などのターゲットとの反応で生成する β 安定線から離れた希土類領域の中性子欠損核種を研究している。なお、近い将来、金属元素のイオンも加速されるので、より不安定な領域に対象を拡げられる。

ISOL の利用で重要なイオン源は、東海研 ISOL で開発した表面電離型を用いている。表面電離型イオン源はアルカリ元素、アルカリ土類、希土類元素などイオン化ポテンシャルの低い元素をイオン化できる。これらとは別の元素をイオン化することと、元素の選択性を高めるために、レーザー共鳴イオン化に基づくレーザーイオン源を開発している。国内でレーザーイオン源の開発を進めているのは我々だけであるが、国外ではロシアのレトコフのグループやマインツ大学グループが CERN の ISOLDE で高温チェンバーにレーザーを導入する方式を開発した。また、ベルギーのルーバン大学のサイクロトロン施設ではヘリウムなどの気流中にレーザーを導入する方式（ガス・セル方式）を開発中である。我々は以前にガス・セル方式を試したが、その困難性が明らかになり、現在は高温チェンバー方式を研究中である。

レーザーイオン源のポイントの 1 つは、レーザーと原子との相互作用確率を大きくすることにあり、連続発振レーザーでは光子強度が小さくて使えない（多段階励起のため、途中の準位で脱励起する確率が大きい）。パルスレーザーであってもレーザー光子強度に限界があるので、原子をできる限り狭いチェンバー内に一時的に閉じこめ、細いレーザービームで照射することになる。同じ高温チェンバー方式であっても、ISOLDE が陽子加速器に接続されているのに対して、TIARA-ISOL は重イオン加速器であるので、原子の取り出し方が異なる。また、どのようなレーザー（レーザー波長・パルス繰り返し率）を使うかということも大きな問題である。ISOLDE で用いている高繰り返し率の銅蒸気レーザーは取扱が容易でない。予算と人員を考慮し、我々にとって適当なレーザーとして、繰り返し率では劣るがパルス当たりの光子強度の大きいエキシマレーザーを採用した。これまでに安定な La, Ba 同位体試料のイオン化と質量分離に成功しており、現在オンラインの実証試験を準備している。なお、出来るだけイオン化効率を大きくするために、高温チェンバーへのレーザー導入方式に新しい試みを行ったが、これについては別な機会に述べる。

核分光実験では、未知核種の探索とともに、質量数 130 付近の核変形の遷移領域のエネルギー準位構造を研究している。研究の内容は図 3 のようにまとめられ、プラセオジムの新しいアイソトープ ^{127}Pr , ^{125}Pr を同定し、 ^{126}Pr の崩壊を調べて娘核 ^{126}Ce の γ バンドを初めて明らかにした^{2,3)}。また、図 4 に示すような 5 台の Ge 検出器による γ - γ 角度相関測定を $^{124,126,128}\text{La}$ の崩壊について行った。その結果、娘核 $^{124,126,128}\text{Ba}$ の集団運動状態と考えられる準位を多数見出した。また、現在理論的に興味を持たれているが、これまで括弧付きであった（下から）2 番目の 0^+ 準位を確立した。

崩壊核分光に加えて、レーザー核分光を東邦大学の桂川研究室と、電磁的モーメント

の測定法の開発を新潟大学の矢野研究室と共同研究で進めている。

この原稿の執筆途中で菊池康之氏の訃報に接した。御冥福を祈る。

- 1) N. Shigeta *et al.*, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **205** (1996) 85.
- 2) T. Sekine *et al.*, *Z. Phys.*, **A349** (1994) 143.
- 3) A. Osa *et al.*, *Nucl. Phys.*, **A588** (1995) 185c.

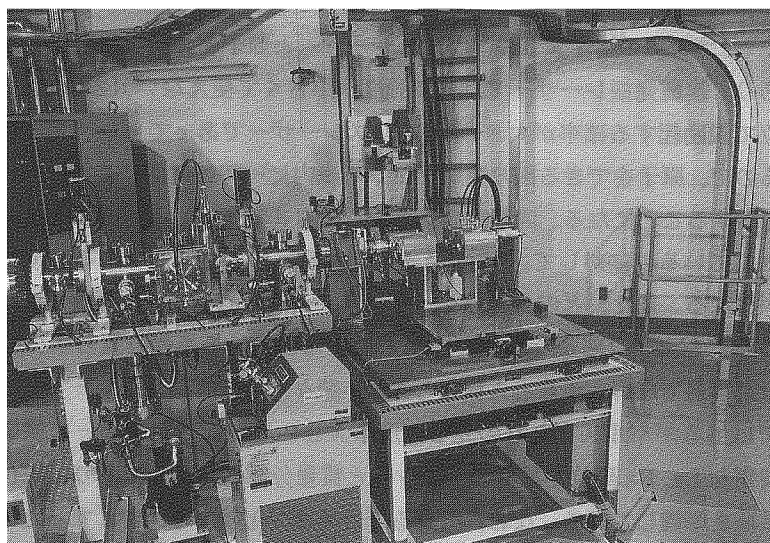


図1 RI製造用照射装置と固体ターゲット輸送用モノレール

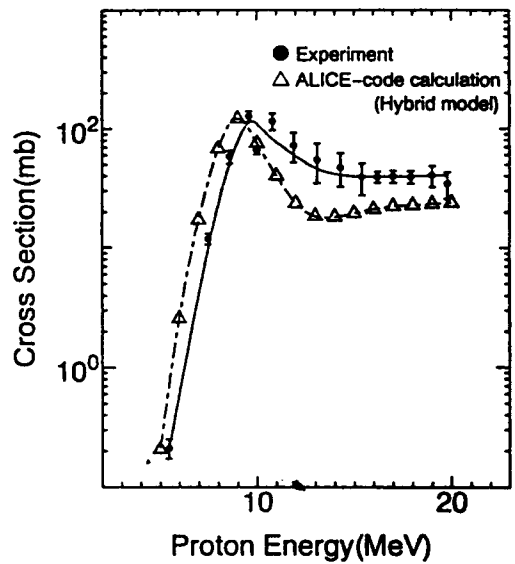


図2 $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ 反応の励起関数反応の励起関数の実験値と理論値

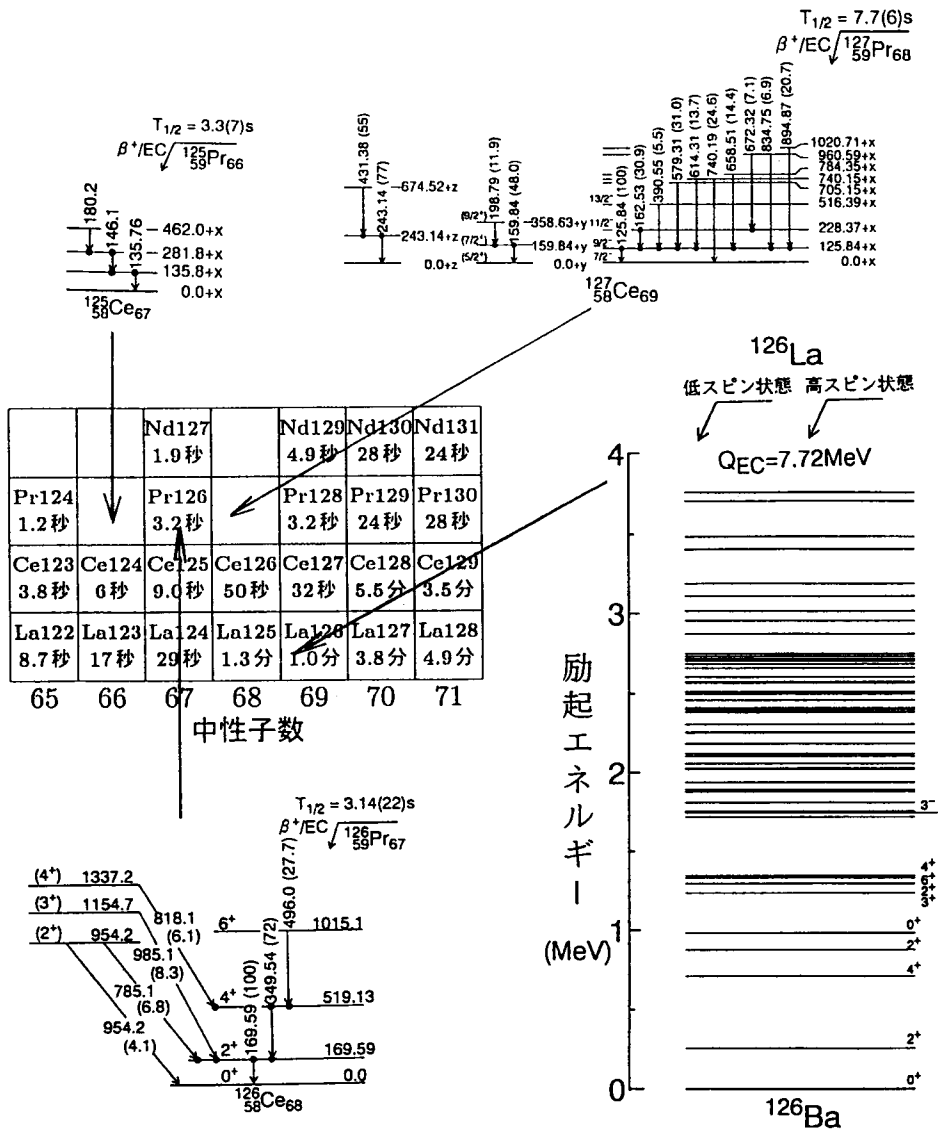


図3 TIARA-ISOLによる核分光学的研究

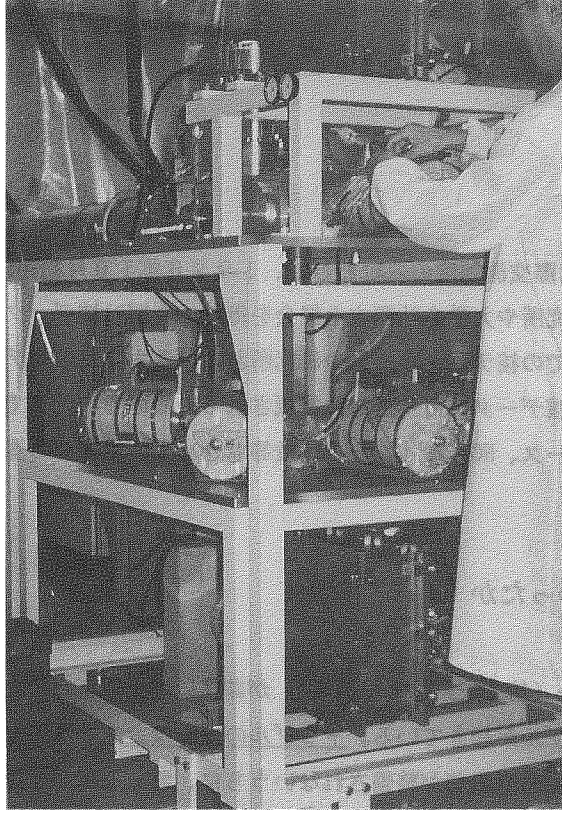


図4 テープ式輸送装置と5台のGe検出器による γ 線角度相関測定装置