

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2014-153196

(P2014-153196A)

(43) 公開日 平成26年8月25日(2014.8.25)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>G 2 1 G</b> 1/10 (2006.01)	G 2 1 G 1/10	2 G 0 8 5
<b>H 0 5 H</b> 6/00 (2006.01)	H 0 5 H 6/00	

審査請求 未請求 請求項の数 14 O L (全 12 頁)

<p>(21) 出願番号 特願2013-23128 (P2013-23128)</p> <p>(22) 出願日 平成25年2月8日 (2013.2.8)</p> <p>特許法第30条第2項適用申請有り 集会名：第9回日本加速器学会年会 開催日：平成24年8月8日</p>	<p>(71) 出願人 301032942 独立行政法人放射線医学総合研究所 千葉県千葉市稲毛区穴川四丁目9番1号</p> <p>(74) 代理人 110000855 特許業務法人浅村特許事務所</p> <p>(72) 発明者 片桐 健 千葉県千葉市稲毛区穴川四丁目9番1号 独立行政法人放射線医学総合研究所内</p> <p>(72) 発明者 永津 弘太郎 千葉県千葉市稲毛区穴川四丁目9番1号 独立行政法人放射線医学総合研究所内</p> <p>(72) 発明者 鈴木 和年 千葉県千葉市稲毛区穴川四丁目9番1号 独立行政法人放射線医学総合研究所内</p>
---	--

最終頁に続く

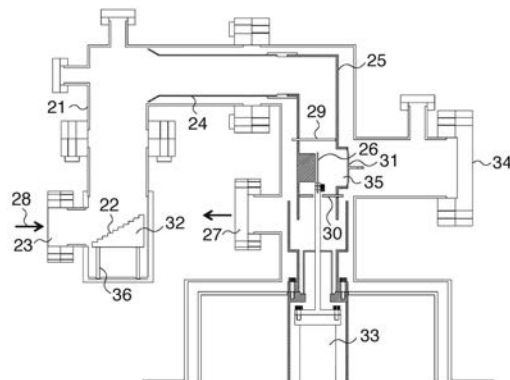
(54) 【発明の名称】  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を生成する方法および装置

(57) 【要約】

【課題】高純度・高効率に  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を生成する方法および装置を提供すること。

【解決手段】本発明の  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を生成する方法は、真空チャンバー内にホウ素化合物の固体ターゲットを設置するステップと、真空チャンバー内を真空にするステップと、固体ターゲットにプロトンを照射するステップとを含む。

【選択図】図3



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

$^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を生成する方法において、前記方法は、真空チェンバー内にホウ素化合物の固体ターゲットを設置するステップと、前記真空チェンバー内を真空にするステップと、前記固体ターゲットにプロトンを照射するステップとを含む方法。

**【請求項 2】**

前記ホウ素化合物は、水素化ホウ素化合物であり、前記  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物は、 $^{11}\text{CH}_4$  分子または  $^{10}\text{CH}_4$  分子である、請求項 1 に記載された方法。

**【請求項 3】**

前記水素化ホウ素化合物は、 $\text{NaBH}_4$ 、 $\text{LiBH}_4$ 、 $\text{KBH}_4$  からなる群から選択される、請求項 2 に記載された方法。

**【請求項 4】**

生成された  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を前記真空チェンバー内の他の気体から分離するステップをさらに含む、請求項 1 から請求項 3 までのいずれか一項に記載された方法。

**【請求項 5】**

前記分離するステップは、気体分子の蒸気圧の温度依存性を利用する、請求項 4 に記載された方法。

**【請求項 6】**

前記分離するステップは、前記  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物よりも蒸気圧の低い気体を第 1 の低温トラップに凝縮させるステップと、前記  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を第 2 の低温トラップに凝縮させるステップと、前記  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物よりも蒸気圧の高い気体を前記真空チェンバーから排出するステップと、前記第 2 の低温トラップの温度を上昇させて、前記第 2 の低温トラップに凝縮された前記  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を気化させて、前記真空チェンバーから取り出すステップとを含む、請求項 5 に記載された方法。

**【請求項 7】**

$^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を生成する装置であって、前記装置は、真空チェンバーと、前記真空チェンバーの中に設置されたホウ素化合物の固体ターゲットと、前記固体ターゲットにプロトンを照射するプロトン照射手段とを含む、装置。

**【請求項 8】**

前記ホウ素化合物は、水素化ホウ素化合物であり、前記  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物は、 $^{11}\text{CH}_4$  分子または  $^{10}\text{CH}_4$  分子である、請求項 7 に記載された装置。

**【請求項 9】**

前記水素化ホウ素化合物は、 $\text{NaBH}_4$ 、 $\text{LiBH}_4$ 、 $\text{KBH}_4$  からなる群から選択される、請求項 8 に記載された装置。

**【請求項 10】**

前記装置が、生成された  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を前記真空チェンバー内の他の気体から分離する分離手段をさらに含む、請求項 7 から請求項 9 までのいずれか一項に記載された装置。

**【請求項 11】**

前記分離手段は、気体分子の蒸気圧の温度依存性を利用する、請求項 10 に記載された装置。

**【請求項 12】**

前記分離手段は、

10

20

30

40

50

前記  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物よりも蒸気圧の低い気体を凝縮させる第 1 の低温トラップと、

前記  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を凝縮させる第 2 の低温トラップと、

前記  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物よりも蒸気圧の高い気体を前記真空チェンバーから排出する排出手段と、

前記第 1 の低温トラップおよび前記第 2 の低温トラップの温度を制御する温度制御手段とを含み、

前記温度制御手段が、前記第 2 の低温トラップの温度を上昇させることによって、前記第 2 の低温トラップに凝縮された前記  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物が気化され、前記真空チェンバーから取り出される、請求項 1 1 に記載された装置。

10

【請求項 1 3】

水素化ホウ素化合物の固体ターゲットにプロトンを照射し、 $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$  分子または  $^{10}\text{C}$   $\text{H}_4$  分子を生成する方法。

【請求項 1 4】

前記水素化ホウ素化合物は、 $\text{NaBH}_4$ 、 $\text{LiBH}_4$ 、 $\text{KBH}_4$  からなる群から選択される、請求項 1 3 に記載された装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、 $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を生成する方法および装置に関する。

20

【背景技術】

【0002】

重粒子線治療における照射野検証のために、シンクロトロン加速器で加速した陽電子放出核イオンである  $^{11}\text{C}$  イオンビームまたは  $^{10}\text{C}$  イオンビームを治療に用いる技術の確立が期待されている。本発明者らは、 $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$  ガスをイオン源へ供給し、 $^{11}\text{C}$  イオンの生成をイオン源で行い、生成された  $^{11}\text{C}$  イオンを加速し照射する方法を提案してきた。 $^{11}\text{C}$  イオンまたは  $^{10}\text{C}$  イオンを ECR 型や EBIS 型のイオン源にて生成し、後段のシンクロトロンで加速・治療供給するためには、高純度の  $^{10}\text{C}$   $\text{H}_4$  分子または  $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$  分子を一度の治療の毎に  $10^{12} \sim 10^{13}$  個程度 ( $0.1 \sim 1 \text{ Ci}$ ) イオン源に供給しなければならない。

30

【0003】

また、従来、PET 診断のための放射性核種生成法として、 $\text{H}_2$  ガスを添加した 15 気圧の  $\text{N}_2$  ガスをターゲットとし、 $^{14}\text{N}(p, \gamma)^{11}\text{C}$  反応を利用した  $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$  生成法が用いられている。この方法では、20 分のプロトン照射によりおおよそ  $10^{13}$  個の  $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$  分子 ( $\sim 1 \text{ Ci}$ ) を生成することが可能である。この数は要求量を十分満たしているが、ESIS (Electron String Ion Source) 型イオン源へ供給する際に不純物が問題となる。不純物のうち最も数多く含まれるのはターゲットガスである  $\text{N}_2$  分子であり、その数は  $10^{21}$  個程度にも達し、不純物から  $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$  分子を十分に分離することは難しい。しかし、ESIS 型イオン源にとって、供給される不純物の分子数は、 $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$  の数に比べて十分に少なくなければならない。

40

【0004】

また、特許文献 1 ~ 3 には、放射性同位元素  $^{11}\text{C}$  を製造するために、ホウ素の粉末またはホウ素を含む化合物を使用すること等が開示されている。しかし、いずれも高純度・高効率に  $^{11}\text{C}$  または  $^{10}\text{C}$  を含む気体化合物を生成するものではない。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献 1】特開 2007 - 170890 号公報

【特許文献 2】特開 2006 - 244863 号公報

【特許文献 3】特開 2012 - 103260 号公報

50

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0006】

そこで、本発明は、高純度・高効率に $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物を生成する方法および装置を提供することを目的とする。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0007】

上記課題を解決するため、本発明は、 $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物を生成する方法において、本方法は、真空チェンバー内にホウ素化合物の固体ターゲットを設置するステップと、真空チェンバー内を真空にするステップと、固体ターゲットにプロトンを照射するステップとを含む。

10

## 【0008】

本発明の別の実施形態では、ホウ素化合物は、水素化ホウ素化合物であり、 $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物は、 $^{11}\text{CH}_4$ 分子または $^{10}\text{CH}_4$ 分子である。

## 【0009】

また、本発明の別の実施形態では、水素化ホウ素化合物は、 $\text{NaBH}_4$ 、 $\text{LiBH}_4$ 、 $\text{KBH}_4$ からなる群から選択される。

## 【0010】

また、本発明の別の実施形態では、生成された $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物を真空チェンバー内の他の気体から分離するステップをさらに含む。

20

## 【0011】

また、本発明の別の実施形態では、分離するステップは、気体分子の蒸気圧の温度依存性を利用する。

## 【0012】

また、本発明の別の実施形態では、分離するステップは、 $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物よりも蒸気圧の低い気体を第1の低温トラップに凝縮させるステップと、 $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物を第2の低温トラップに凝縮させるステップと、 $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物よりも蒸気圧の高い気体を真空チェンバーから排出するステップと、第2の低温トラップの温度を上昇させて、第2の低温トラップに凝縮された $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物を気化させて、真空チェンバーから取り出すステップとを含む。

30

## 【0013】

さらに、本発明は、 $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物を生成する装置であって、本装置は、真空チェンバーと、真空チェンバーの中に設置されたホウ素化合物の固体ターゲットと、固体ターゲットにプロトンを照射するプロトン照射手段とを含む。

## 【0014】

また、本発明の別の実施形態では、ホウ素化合物は、水素化ホウ素化合物であり、 $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物は、 $^{11}\text{CH}_4$ 分子または $^{10}\text{CH}_4$ 分子である。

## 【0015】

また、本発明の別の実施形態では、水素化ホウ素化合物は、 $\text{NaBH}_4$ 、 $\text{LiBH}_4$ 、 $\text{KBH}_4$ からなる群から選択される。

40

## 【0016】

また、本発明の別の実施形態では、本装置が、生成された $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物を真空チェンバー内の他の気体から分離する分離手段をさらに含む。

## 【0017】

また、本発明の別の実施形態では、分離手段は、気体分子の蒸気圧の温度依存性を利用する。

## 【0018】

また、本発明の別の実施形態では、分離手段は、 $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物よりも蒸気圧の低い気体を凝縮させる第1の低温トラップと、 $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む

50

気体化合物を凝縮させる第2の低温トラップと、 $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物よりも蒸気圧の高い気体を真空チェンバーから排出する排出手段と、第1の低温トラップおよび第2の低温トラップの温度を制御する温度制御手段とを含み、温度制御手段が、第2の低温トラップの温度を上昇させることによって、第2の低温トラップに凝縮された $^{11}\text{C}$ または $^{10}\text{C}$ を含む気体化合物が気化され、真空チェンバーから取り出される。

【0019】

さらに、本発明は、水素化ホウ素化合物の固体ターゲットにプロトンを照射し、 $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$ 分子または $^{10}\text{C}$   $\text{H}_4$ 分子を生成する方法を提供する。

【0020】

また、本発明の別の実施形態では、水素化ホウ素化合物は、 $\text{NaBH}_4$ 、 $\text{LiBH}_4$ 、 $\text{KBH}_4$ からなる群から選択される。

10

【図面の簡単な説明】

【0021】

【図1】Thick Target照射による $^{11}\text{C}$ の分布( $\text{NaBH}_4$ および元素状ホウ素)を示す図である。

【図2】 $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$ 生成評価に関する実験装置系を示す図である。

【図3】本発明の一実施形態による $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$ 生成/濃縮装置の概略図である。

【図4】蒸気圧曲線を示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0022】

まず、本発明では、本発明のターゲット材料の1つとして $\text{NaBH}_4$ が適しているというのを突き止めた。以下に、ターゲット材料選定のために行った実験を示す。

20

【0023】

本発明では、ターゲットガスが大量に残留することを防ぐため、ターゲット物質として固体を選択した。ビーム照射によって生成された $^{11}\text{C}$ 原子を固体ターゲット中から効率的に取り出すためには、気体分子として取り出すことが望ましい。とくに、E S I Sイオン源への供給を考慮すると、 $\text{CH}_4$ ガスが好ましい。このような観点から、水素が豊富に含まれる水素化ホウ素化合物をターゲットに採用し、照射と同時に $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$ が得られる手法を検討した。

【0024】

この場合、プロトン照射により $^{11}\text{B}(p, n)^{11}\text{C}$ 反応を利用して $^{11}\text{C}$ を生成する。図1に、水素化ホウ素化合物である $\text{NaBH}_4$ ターゲットにプロトン照射(18 MeV、10  $\mu\text{A}$ 、20分)した場合に生成される放射能分布の計算結果を示す。 $\text{NaBH}_4$ を用いた場合に生成された $^{11}\text{C}$ (0.7 Ci,  $4.4 \times 10^{13}$ 個)は、元素状ホウ素を用いた場合(2.7 Ci)に比べると1/4程度の量であるが、目標値である $10^{12}$ 個を十分に得られることが確認できる。

30

【0025】

$\text{NaBH}_4$ ターゲットを利用した $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$ 生成評価に関する基礎的な実験は図2に示した装置系で行った。ターゲットボックス1内には、結晶粉末状の $\text{NaBH}_4$ を1g封入し(Thick target)、18 MeVのプロトンビーム3を照射した。 $^{11}\text{C}$ 原子のメタン化について、ターゲット中に存在する水素原子の寄与を見るためにキャリアガス5として $\text{H}_2$ ガスではなく $\text{He}$ ガスを用いた。キャリアガスに含まれるターゲットからの揮発性分のうち、二酸化炭素はアスカライト( $\text{NaOH}$ )7に吸着させた。プロトン照射中は、アスカライト7のカラムをドーズキャリブレイタ(Dose Calibrator)9内に置くことで、 $^{11}\text{C}$   $\text{O}_2$ の放射能をモニタした。中に液体窒素を含むコールドトラップ11に収集された $^{11}\text{C}$   $\text{H}_4$ の放射能測定は、2あるいは3半減期後にドーズキャリブレイタを用いて行った。最終的にキャリアガスは、バッファタンク13に回収される。

40

【0026】

表1に $\text{NaBH}_4$ をターゲット物質に用いた際の放射能の分布を示す。比較のため、元

50

素状ホウ素をターゲットとして行った放射能測定結果も記している。元素状ホウ素を用いた場合には、取り出し効率が0.2%、回収された $^{11}\text{CH}_4$ の放射能が3mCiであり、 $^{11}\text{CH}_4$ としての放射能の収量は非常に低く、殆どの $^{11}\text{C}$ は固体ターゲット中に残留した。一方で、 $\text{NaBH}_4$ ターゲットを用いた場合には、全体の放射能の約30%を $^{11}\text{CH}_4$ として取り出すことが出来た(約70%はターゲット内に残留)。また、 $^{11}\text{CH}_4$ の数も $5 \times 10^{12}$ 個(77mCi)に達し、目標値を達成することが出来た。これらの結果から、 $^{11}\text{CH}_4$ の生成方法として、 $\text{NaBH}_4$ をターゲットとすることが有効であることが確認された。

【0027】

【表1】

10

NaBH<sub>4</sub>と元素状ホウ素ターゲットについての収量の比較

ターゲット	キャリアガス	放射能(mCi)/比率				$^{11}\text{CH}_4$ 収集分子数 (個)
		全体	ターゲット (不揮発分)	$^{11}\text{CO}_2$ (アスカライト吸着分)	$^{11}\text{CH}_4$ (コールドトラップ収集分)	
元素状ホウ素	H <sub>2</sub>	1410/ 100%	1404/ 99.8%	0.052/ 0.0%	3.2/ 0.2%	$2 \times 10^{11}$
NaBH <sub>4</sub>	He	264/ 100%	185.9/ 70.4%	0.70/ 0.3%	77.3/ 29%	$5 \times 10^{12}$

20

【0028】

このような高い取り出し効率(高効率)が達成されるのは、 $\text{NaBH}_4$ は豊富に水素原子を含んでいるためと考えられる。 $\text{NaBH}_4$ のB原子は、プロトン照射されることで $^{11}\text{B}(p, n)^{11}\text{C}$ の反応により $^{11}\text{C}$ へと変化する。発生した $^{11}\text{C}$ 原子はホットアトムとしてターゲット中を減速しながら運動し、停止寸前において周囲に多く存在する水素原子と結合することで、 $^{11}\text{CH}_4$ へと変化する。この $^{11}\text{CH}_4$ は気体であり固体内部から気化できるため、高い取り出し効率につながると考えられる。この現象は、 $\text{NaBH}_4$ だけでなく、 $\text{LiBH}_4$ 、 $\text{KBH}_4$ 等、他の水素化ホウ素化合物をターゲットとして用いた場合においても生じると考えられる。

30

【0029】

以上の通り、 $\text{NaBH}_4$ の固体ターゲットを使用することにより高効率に $^{11}\text{CH}_4$ を取り出せることを示したが、ホウ素と水素を含有する任意の水素化ホウ素化合物、例えば、 $\text{LiBH}_4$ 、 $\text{KBH}_4$ をターゲットとして使用して $^{11}\text{CH}_4$ を取り出すことも有効である。さらに、ホウ素と酸素を含有する任意の酸化ホウ素化合物の固体ターゲットを使用して $^{11}\text{CO}_2$ を取り出すことも有効である。同様に、他の任意のホウ素化合物をターゲットとして使用することも可能である。

【0030】

また、表2に $^{11}\text{CH}_4$ として得られた放射能のビーム電流依存性を示す。ビーム電流の増加と共に、単位電流当りの放射能( $A/I_B$ )の値が低下していることが分かる。この原因の一つとして、過熱による $\text{NaBH}_4$ の変形や分解が挙げられる。このダメージを防ぐ為には、ビーム電流の低密度化や冷却の強化が有効である。

40

【0031】

【表 2】

 $^{11}\text{CH}_4$ として得られた放射能のビーム電流依存性( $\text{NaBH}_4$ ターゲットの場合)

ビーム電流 $I_B$ ( $\mu\text{A}$ )	1	5	18
$^{11}\text{CH}_4$ 放射能 A (mCi)	13.6	48.3	77.3
$A/I_B$ (mCi/ $\mu\text{A}$ )	13.6	9.7	4.29

## 【0032】

10

次に、上記の水素化ホウ素化合物を用いた $^{11}\text{CH}_4$ の生成プロセスを利用して、 $^{11}\text{CH}_4$ 生成/濃縮装置を発明した。図3は、本発明装置の概略図である。本発明装置は、真空チェンバー21と、真空チェンバーの中に設置されたホウ素化合物の固体ターゲット22と、固体ターゲットにプロトンを照射するプロトン照射手段とを含む。

## 【0033】

真空チェンバー21の内部体積は、1000cc程度にされており、真空ポンプにより $10^{-4}\text{Pa}$ 程度にまで真空引きにされる。表3は、300Kにおいて、 $P=1.33\times 10^{-4}\text{Pa}$ にまで真空引きした1000ccの真空チェンバー内に残留する空気由来のガスの粒子数を示す。表3に示されている通り、真空チェンバー内に残留するガスの粒子数は、窒素分子が $10^{13}$ 個程度、酸素分子が $10^{12}$ 個程度、アルゴン分子が $10^{11}$ 個程度、二酸化炭素分子が $10^{10}$ 個程度である。

20

## 【0034】

## 【表 3】

$P=1.33\times 10^{-4}\text{Pa}$ にまで真空引きした1000ccの真空チェンバー内に残留する空気由来のガスの粒子数(300K)

ガス	$\text{N}_2$	$\text{O}_2$	Ar	$\text{CO}_2$
空气中体積比率(%)	78.1	20.9	0.93	0.03
粒子数 (1000cc、 $1.33\times 10^{-4}\text{Pa}$ )	$2.8\times 10^{13}$	$7.4\times 10^{12}$	$3.3\times 10^{11}$	$1.1\times 10^{10}$

30

## 【0035】

固体ターゲット22である $\text{NaBH}_4$ 粉末は、真空チェンバー21内のターゲット台32の上に設置されている。このターゲット台32は、熱伝導率の低いロッド36を介して真空チェンバー本体の底面に設置されている。これは、ターゲット台32で発生する熱の真空チェンバー21の壁面への熱伝導を低減するためである。また、ターゲット台32は、外部から供給される冷却水により冷却される。これによって、 $\text{NaBH}_4$ 粉末を冷却し、熱による分解(400~500で生じる)を防止する。また、 $\text{NaBH}_4$ 粉末の温度は、温度センサーで監視することが可能である。

40

## 【0036】

本発明装置は、プロトンビームの入射口(真空窓)23を含み、ターゲット台32上の $\text{NaBH}_4$ 粉末はここから入射したプロトンビーム28によって照射される。 $10\mu\text{A}$ 程度、20MeV程度のプロトンビームを20分程度の照射することにより、 $10^{12}\sim 10^{13}$ 個程度の $^{11}\text{CH}_4$ 分子が発生し、 $\text{NaBH}_4$ 粉末から気化する。さらに、 $\text{H}_2$ ガスおよび $\text{B}_2\text{H}_6$ 等の $\text{NaBH}_4$ の分解生成ガスも発生する。真空チェンバー21の内部は、熱運動する $10^{13}$ 個程度の残留ガス分子と $10^{12}\sim 10^{13}$ 個程度の $^{11}\text{CH}_4$ ガス分子等とで満たされる。

## 【0037】

したがって、本発明によれば、真空チェンバー内のガス中の $^{11}\text{CH}_4$ の比率が、従来

50

のキャリアガスを使用する生成方法と比べて極めて高い。したがって、 $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ をさらに濃縮することが、比較的容易であり、後段のイオン源に供給可能な高純度の $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ の生成が実現される。

【0038】

放射性核種生成に関する当技術分野では、発生した放射性ガスを輸送する必要があるために、キャリアガスを流さなければならないということが常識であった。したがって、本発明のように真空条件下で放射性核種を生成するという技術思想は存在しなかった。本発明は、この従来常識に反して、真空条件下で、固体ターゲットから放射性核種を発生させる。これによって、より高純度の $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ の生成を実現している。

【0039】

本発明装置は、真空チェンバー内に満たされた $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ を真空チェンバー内の他の気体から分離する分離手段をさらに含むことが可能である。本実施形態においては、気体分子の蒸気圧の温度依存性を利用して分離するが、当業者にとって既知の他の任意の分離手段を利用することも可能である。

【0040】

図4に、真空チェンバー内に存在するガスの蒸気圧曲線を示す。各々の曲線にて、圧力を一定に保ちつつ温度を低下させたとき、曲線の右側は気体、左側は固体となる。本実施形態では、この基本性質を利用して不純物分子の分離を行う。

【0041】

本実施形態において、分離手段は、 $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ よりも蒸気圧の低い気体を凝縮させる第1の低温トラップ24、25と、 $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ を凝縮させる第2の低温トラップ26と、 $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ よりも蒸気圧の高い気体を真空チェンバーから排出する排出手段と、第1の低温トラップ24、25および第2の低温トラップ26の温度を制御する温度制御手段33とを含む。

【0042】

第2の低温トラップ26は、 $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ を凝縮させるために20～50K程度に冷却される。また、第1の低温トラップ24、25は、 $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ よりも蒸気圧の低い気体を凝縮させるために50～150K程度に冷却される。また、第1の低温トラップ24、25の別の役割は、輻射シールドであり、ターゲット台32で発生する熱の輻射熱が第2の低温トラップ26に流入することを防ぐことによって、第2の低温トラップ26を効率よく冷却する。また、ターゲット台32で発生する熱の輻射熱が第2の低温トラップ26に直接流入することを防ぐために、真空チェンバー21の形状は屈曲されている。

【0043】

これら第1の低温トラップ24、25、第2の低温トラップ26の冷却には、クライオクーラー（冷凍機）や各種液化ガスを用いることが可能である。本実施形態では、第1の低温トラップ24、25および第2の低温トラップ26の温度は、クライオクーラー33によって温度制御される。第1の低温トラップ24、25は、第2の低温トラップ26よりも高い温度に設定され、 $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ 分子よりも蒸気圧の低い気体（ $\text{CO}_2$ 、または $\text{NaBH}_4$ の分解生成物である $\text{B}_2\text{H}_6$ 等）を凝縮および吸着させるようになっている。第2の低温トラップ26は、第1の低温トラップ24、25で吸着されなかった $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ が凝縮および吸着されるように温度設定される。 $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ よりも蒸気圧の高い分子（ $\text{N}_2$ 、 $\text{Ar}$ 、 $\text{O}_2$ 、 $\text{NaBH}_4$ の分解生成物である $\text{H}_2$ ）は、第1の低温トラップ24、25および第2の低温トラップ26のいずれにも吸着されることなく、排出手段によって排出口27を介して真空チェンバー21から排出される。本実施形態では、排出手段としてターボ分子ポンプが使用されるが、任意の排出手段が使用可能である。

【0044】

第1の低温トラップ24、25および第2の低温トラップ26は、温度設定のために、温度センサーとヒーターが備わっている。ヒーターは、温度センサーからの情報を用いて正確に温度制御される。第1の低温トラップ24、25および第2の低温トラップ26の温度制御により、不純物ガスの混じった混合ガスから高純度の $^{13}\text{C}^{13}\text{H}_4$ を分離すること

10

20

30

40

50



が可能である。

【0045】

十分に分離が完了した後、バルブ29、30が閉じられ、第2の低温トラップ26の周囲が、真空チェンバー21内の空間35として隔離される。その後、第2の低温トラップ26はヒーターにより加熱され、吸着された $^{11}\text{CH}_4$ を再度気化させる。この状態でバルブ11を開き、空間35の外へ $^{11}\text{CH}_4$ を取り出す。取り出された $^{11}\text{CH}_4$ は、フランジ34を介して、イオン源等の装置に輸送される。

【0046】

このような構成とすることにより、本発明装置は、従来のキャリアガスを使用する $^{11}\text{CH}_4$ ガス生成装置よりも短時間で高純度の $^{11}\text{CH}_4$ ガスの生成が可能である。 $^{11}\text{C}$ は、半減期が約20分と短いので、生成時間が短いということも、 $^{11}\text{CH}_4$ ガスを高純度・高効率に得るという効果に寄与している。

10

【0047】

上記実施形態では、 $\text{NaBH}_4$ を固体ターゲットとした場合について記載してきたが、本発明装置は、同様の原理により、他の任意のホウ素化合物、例えば、 $\text{LiBH}_4$ 、 $\text{KBH}_4$ 、 $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{BN}$ などをターゲットとすることも可能である。

【0048】

以上の説明では、固体 $\text{NaBH}_4$ をターゲットとして、 $^{11}\text{CH}_4$ を生成することについて記載してきたが、天然のBは、約20%の $^{10}\text{B}$ と約80%の $^{11}\text{B}$ とで構成されているので、本発明により同時に $^{10}\text{CH}_4$ も生成されている。したがって、本発明により、 $^{11}\text{CH}_4$ に加えて、 $^{10}\text{CH}_4$ も高純度・高効率に生成されることに留意されたい。

20

【符号の説明】

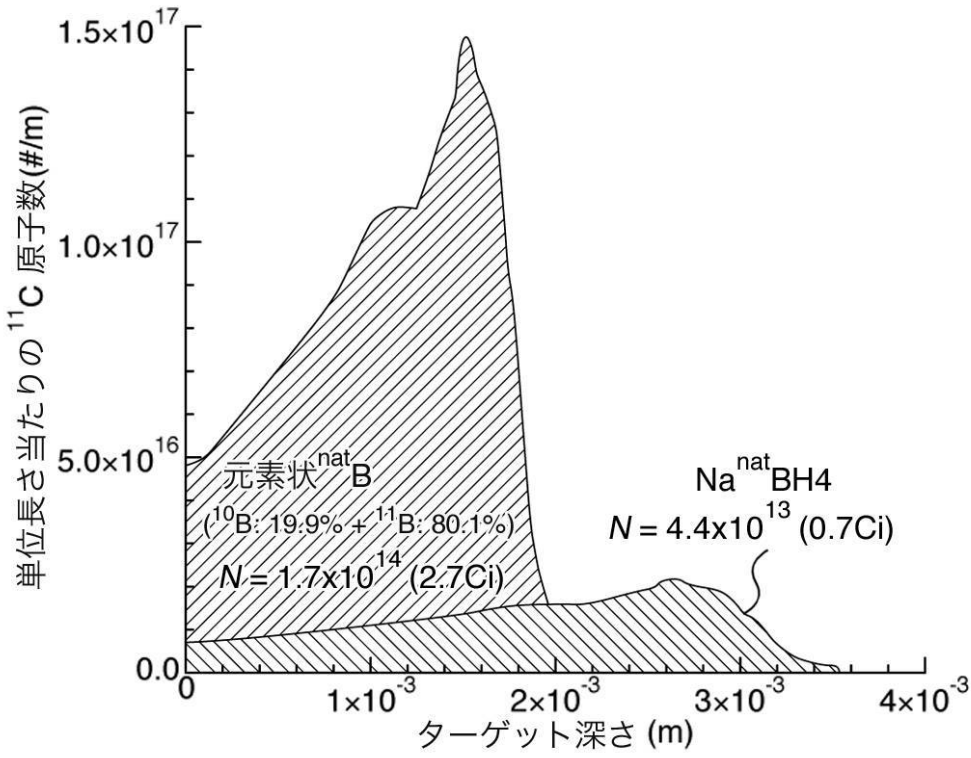
【0049】

- 1 ターゲットボックス
- 3 プロトンビーム
- 5 キャリアガス
- 7 アスカライト
- 9 ドーズキャリプレータ
- 11 コールドトラップ
- 13 バッファタンク
- 21 真空チェンバー
- 22 ターゲット
- 23 入射口
- 24 第1の低温トラップ
- 25 第1の低温トラップ
- 26 第2の低温トラップ
- 27 排出口
- 28 プロトンビーム
- 29 バルブ
- 30 バルブ
- 31 バルブ
- 32 ターゲット台
- 33 温度制御手段
- 34 フランジ
- 35 空間
- 36 ロッド

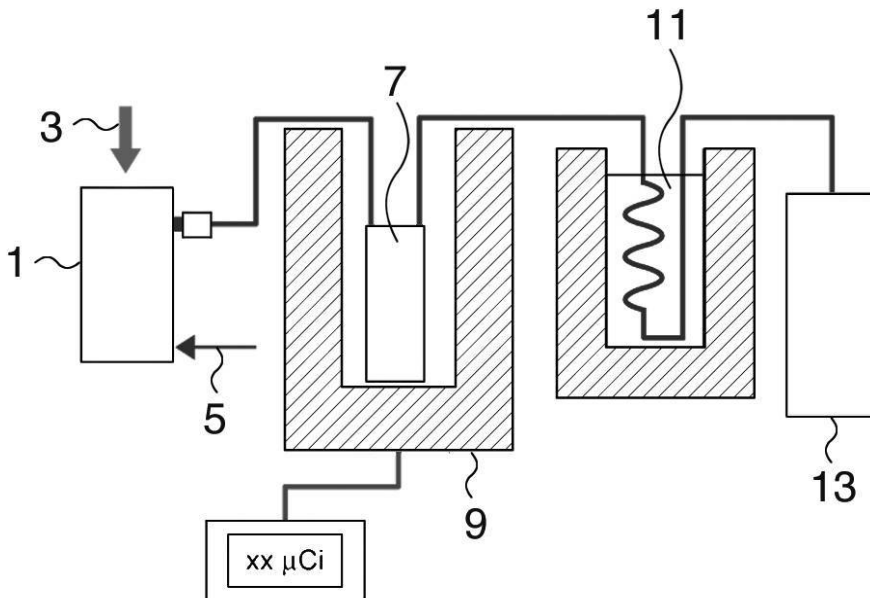
30

40

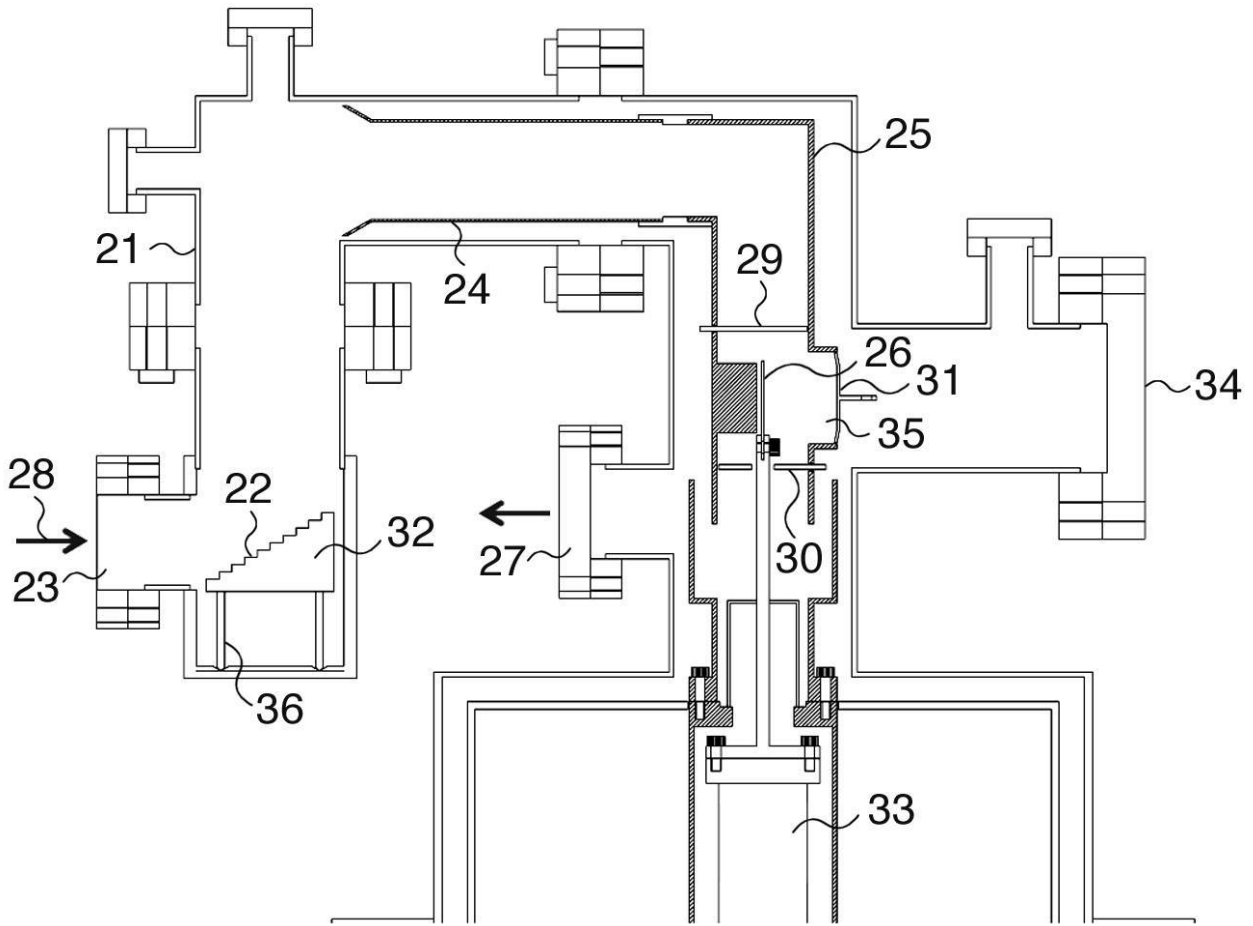
【 図 1 】



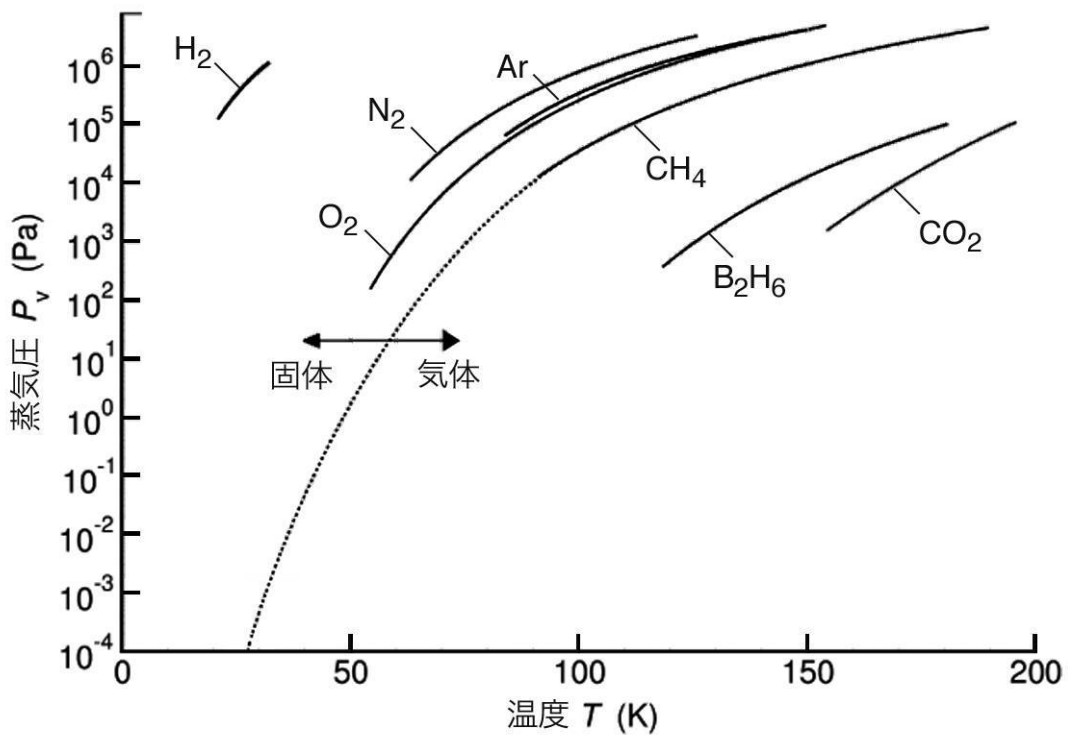
【 図 2 】



【 図 3 】



【 図 4 】



---

フロントページの続き

- (72)発明者 北條 悟  
千葉県千葉市稲毛区穴川四丁目9番1号 独立行政法人放射線医学総合研究所内
- (72)発明者 後藤 彰  
千葉県千葉市稲毛区穴川四丁目9番1号 独立行政法人放射線医学総合研究所内
- (72)発明者 野田 耕司  
千葉県千葉市稲毛区穴川四丁目9番1号 独立行政法人放射線医学総合研究所内
- (72)発明者 峯岸 克行  
千葉県鎌ヶ谷市くぬぎ山4丁目10番20号
- (72)発明者 本間 壽廣  
東京都練馬区関町北3丁目44番19号
- Fターム(参考) 2G085 BA02 BA17 BD01 EA01