

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2012年3月29日(29.03.2012)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2012/039036 A1

- (51) 国際特許分類: G21G 1/10 (2006.01) H05H 6/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/066433
- (22) 国際出願日: 2010年9月22日(22.09.2010)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 独立行政法人放射線医学総合研究所(National Institute of Radiological Sciences) [JP/JP]; 〒2638555 千葉県千葉市稲毛区穴川四丁目9番1号 Chiba (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 永津 弘太郎(NAGATSU, Koutaro) [JP/JP]; 〒2638555 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 Chiba (JP). 峯岸 克行(MINEGISHI, Katsuyuki) [JP/JP]; 〒2638555 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 Chiba (JP). 内田 滋夫(UCHIDA, Shigeo) [JP/JP]; 〒2638555 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 Chiba (JP). 田上 恵子(TAGAMI, Keiko) [JP/JP]; 〒2638555 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 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 高矢 諭, 外(TAKAYA, Satoshi et al.); 〒1510053 東京都渋谷区代々木二丁目10番12号 南新宿ビル Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, 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, IS, JP, KE, KG, KM, 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, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF,

[続葉有]

(54) Title: PROCESS AND DEVICE FOR PRODUCTION OF RADIONUCLIDE USING ACCELERATOR

(54) 発明の名称: 加速器による放射性核種の製造方法及び装置

(図1)

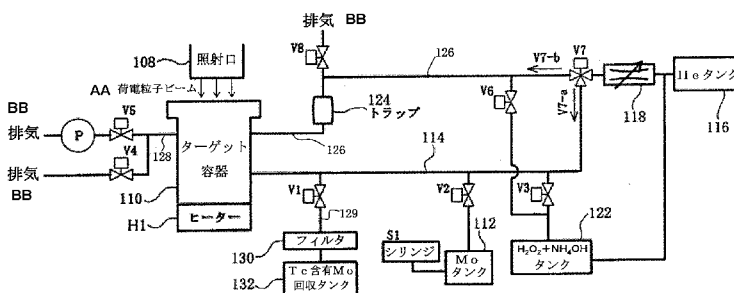


FIG. 1.  
 108 IRRADIATION PORT  
 AA CHARGED PARTICLE BEAM  
 BB DISCHARGED GAS  
 110 TARGET VESSEL  
 H1 HEATER  
 124 TRAP  
 130 FILTER  
 132 Tc-CONTAINING Mo RECOVERY TANK  
 S1 SYRINGE  
 112 Mo TANK  
 122 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> + NH<sub>4</sub>OH TANK  
 116 He TANK

(57) Abstract: A radionuclide such as technetium 99m and molybdenum 99, which has been strongly demanded as a radioactive substance, can be produced remotely and repeatedly in a single target vessel by introducing a target substance that has been dissolved in a liquid or mixed with a liquid into the target vessel, drying the target substance in the target vessel to reduce the volume of a liquid component, and then irradiating the target substance with a beam emitted from an accelerator.

(57) 要約: 液体に溶解又は液体と混合されたターゲット物質をターゲット容器内に導入し、該ターゲット容器内で乾燥させて液体成分を減少させてから、加速器からのビームを照射することにより、放射性薬剤として需要の大きいテクネチウム99mやモリブデン99のような放射性核種を、一つのターゲット容器で遠隔的に繰り返し製造可能とする。

WO 2012/039036 A1

BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, 添付公開書類:  
SN, TD, TG).

— 國際調查報告 (條約第 21 條(3))

## 明 細 書

### 発明の名称： 加速器による放射性核種の製造方法及び装置

#### 技術分野

[0001] 本発明は、加速器による放射性核種の製造方法及び装置に係り、特に、放射性薬剤として需要の大きいテクネチウム $99m$ やモリブデン $99$ のような放射性核種を、一つのターゲット容器で、遠隔的に繰り返し製造することが可能な、加速器による放射性核種の製造方法及び装置に関する。

#### 背景技術

[0002] 世界的に核医学、画像診断分野で利用されているテクネチウム $99m$  ( $Tc-99m$ 、半減期 $6$ 時間)は、核医学において利用される放射性同位元素のうち、 $7$ 割以上を占める主役である。モリブデン $99$  ( $Mo-99$ 、半減期 $66$ 時間)は、 $Mo-99$ の崩壊に伴って $Tc-99m$ が生成することから、上記 $Tc-99m$ の親核種とよばれる放射性同位元素である。 $Mo-99$ をアルミナなどの担持体へ吸着させるなどして、生成した $Tc-99m$ を選択的に回収できる装置が市販されている ( $Mo-99/Tc-99m$ ジェネレータ)。

[0003] 加速器によるテクネチウム $99m$ の製法として、ターゲットに荷電粒子、具体的には陽子 (プロトン) ビームを同位体濃縮したモリブデン $100$  ( $Mo-100$ ) に照射する方法の研究がなされてはいるが、実用的なレベル (例えば医学利用できるほど大量の放射能を得た、あるいはそのための装置一式を実証した等) での報告はまだされていない。

[0004] 本発明は、加速器から得られる荷電粒子を用いて、 $^{100}Mo(p, 2n)^{99m}Tc$ あるいは $^{100}Mo(p, pn)^{99}Mo$ 核反応により、 $Tc-99m$ あるいは $Mo-99$ を製造する方法であることから、加速器を用いた手法全般について先行技術を検証する。いずれの場合も、実用レベルの収量 (放射能) を得たものではなく、コンセプトの検討あるいは検証で評価が終わっている。

[0005] 即ち、非特許文献 $1$ は、エネルギー範囲 $68 \rightarrow 8 MeV$ 、非特許文献 $2$

は、 $22 \rightarrow 10$  MeVの陽子ビームをMo-100に照射するとき、Tc-99m及びMo-99の生成量を見積もったものである。いずれの核種もエネルギーに応じた収率で得られるであろうことが書かれているものの、具体的な照射法や装置構成に関する記述はない。いわゆる実現可能性を探る試験的要素の先行論文であり、物理現象を調査した報告といえる。

### 先行技術文献

### 非特許文献

[0006] 非特許文献1 : Lagunas-solar、 M. G. et al. (1991) Cyclotron production of NCA 99mTc and 99Mo. An alternative non-reactor supply source of instant 99mTc and 99Mo→99mTc generators. Appl. Radiat. Isot. 42(7)、643-657

非特許文献2 : Beaver、 J. E. and Hupf、 H. B. (1971) Production of 99mTc on a medical cyclotron: A feasibility study. J. Nucl. Med. 12(11)、739-741

### 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0007] Mo-100に陽子ビームを照射することで、入射エネルギーに応じてMo-99及びあるいはTc-99mが生成することは古くから確認されている。しかし、現在においても荷電粒子を用いた製造は行われていない。その理由は、照射を行った後に生成する大量の放射性物質を、被ばくすること無く取扱うことができる製造装置が無かったことに起因するものと考えられる。具体的には、ターゲット物質として用いるモリブデンあるいはモリブデン化合物が固体であるため、ターゲット容器内への準備、照射後の取り出し時などにおいて、簡便にこれらの操作を行う手段が無い。一般的な作業と異なり、本作業は大量の放射線環境下で行われるため、作業者の被ばくや汚染に対する安全性の確保が必須であるものの、その実現は極めて難しい。通常固体ターゲットを利用した放射性同位元素の製造においては、遠隔自動化した

産業機器ロボット、あるいは遮蔽物とマニピュレータを組合わせた被ばく低減措置が取られる。しかしながら、これら設備・機器の設置は相当のコストを要し、またマニピュレータ作業は操作の熟練度が求められるなど、経済的にも技術的にも要求される仕様は高い。

[0008] 従って、安価で、容易な操作によって行える、固体ターゲットを利用した放射性同位元素の製造手法確立が、いま強く求められている。

[0009] 本発明は、前記従来課題を達成するべくなされたもので、実用的なテクネチウム $^{99m}$ 及び／又はモリブデン $^{99}$ の製造を行うため、モリブデン $^{100}$ を照射する際に適用可能な具体的な構造及び照射の運用方法を確立することを課題とする。

### 課題を解決するための手段

[0010] 本発明者らは、ターゲット物質であるモリブデンを適切な溶媒中へ溶解し、照射前にこれを乾燥させ、液体から固体にすることで解決を試みた。照射において液体ターゲット（モリブデン溶液）を用いることも不可能ではないが、液体がビームのエネルギーを吸収する結果、モリブデンターゲットの十分な核反応を妨げる。従って、この手法で期待される $Tc-^{99m}$ あるいは $Mo-^{99}$ の収量は著しく低下する。本発明によれば、照射前にターゲット物質から液体を除き、入射するビーム軌道上に存在するモリブデンターゲットの密度を上げることで、理論どおりの核反応収率が得られることになる。

[0011] 本発明は、上記知見に基いてなされたもので、液体に溶解又は液体と混合されたターゲット物質をターゲット容器内に導入し、

該ターゲット容器中で乾燥させて液体成分を減少させてから、加速器からのビームを照射することを特徴とする加速器による放射性核種の製造方法である。

[0012] ここで、前記液体に溶解又は液体と混合されてターゲット容器内に導入された前記ターゲット物質を、該ターゲット容器内で乾燥させて固体成分を析出させることができる。

[0013] 又、前記ターゲット容器内に析出した固体成分の厚みを、前記加速器から

入射するビームの軌道上において、0.1～5 mmとすることができる。

- [0014] 又、前記乾燥を、加熱、乾燥用気体の導入、排気の少なくともいずれか一つにより行うことができる。
- [0015] 又、前記乾燥時の前記ターゲット容器内の温度を100℃以上とすることができる。
- [0016] 又、前記乾燥に利用する気体を、ヘリウム、水素あるいは一酸化炭素とすることができる。
- [0017] 又、前記乾燥に利用する気体を、前記液体に溶解又は液体と混合されて前記ターゲット容器内に導入され該ターゲット容器の下方に溜まった前記ターゲット物質を通過するように前記ターゲット容器内に導入することができる。
- [0018] 又、前記ビームの照射終了後、液体を前記ターゲット容器内部へ導入し、前記ターゲット物質を再び該液体に溶解又は該液体と混合させて、前記ターゲット容器外部へ取り出すことができる。
- [0019] 又、前記ターゲット容器から取り出された液体を、廃棄せずに回収することができる。
- [0020] 又、前記ターゲット物質をモリブデン100とし、前記ビームを40～9 MeVの陽子ビームとし、製造される放射性核種をテクネチウム99m及び／又はモリブデン99とすることができる。
- [0021] 又、前記ターゲット容器内に導入される前記ターゲット物質を、アンモニア水に溶解した酸化モリブデンとすることができる。
- [0022] 又、前記アンモニア水に過酸化水素水を添加することができる。
- [0023] 又、前記乾燥時の温度を200～650℃とすることができる。
- [0024] 又、前記液体を、アンモニア水及び／又は過酸化水素水とすることができる。
- [0025] 本発明は、又、加速器からのビームの照射が終了したターゲット物質を、ターゲット容器外部へ取り出す際に、  
液体を前記ターゲット容器内部へ導入し、

前記ターゲット物質を該液体に溶解又は該液体と混合させて、前記ターゲット容器外部へ取り出すことを特徴とする加速器による放射性核種の製造方法を提供するものである。

- [0026] 又、ターゲット容器と、  
液体に溶解又は液体と混合されたターゲット物質を該ターゲット容器内に導入する手段と、  
該ターゲット容器中で乾燥させて液体成分を減少させる乾燥手段と、  
加速器からのビームを前記ターゲット容器に照射する手段と、  
を備えたことを特徴とする加速器による放射性核種の製造装置を提供するものである。
- [0027] ここで、前記乾燥手段が、前記液体に溶解又は液体と混合されて前記ターゲット容器内に導入された前記ターゲット物質を、該ターゲット容器内で乾燥させて固体成分を析出させることができる。
- [0028] 又、前記乾燥手段が、加熱手段、気体供給手段、排気手段の少なくともいずれか1つを含むことができる。
- [0029] 又、前記ターゲット容器が、該ターゲット容器を封じると共に、前記ビームを通過させるための金属薄膜を備え、該金属薄膜を冷却することができる。
- [0030] 又、前記ビームの照射終了後、液体を前記ターゲット容器内部へ導入する手段と、  
前記ターゲット物質を再び該液体に溶解又は該液体と混合させて、前記ターゲット容器外部へ取り出す手段とを更に備えることができる。
- [0031] 又、前記ターゲット容器から取り出された液体を、廃棄せずに回収する手段を備えることができる。
- [0032] 又、前記回収する手段が、配管途中に設けられたフィルタを含むことができる。
- [0033] 本発明は、又、加速器からのビームの照射が終了したターゲット物質を、ターゲット容器外部へ取り出すようにされた放射性核種の製造装置であって

、  
液体を前記ターゲット容器内部へ導入し、前記ターゲット物質を該液体に溶解又は該液体と混合させて、前記ターゲット容器外部へ取り出す手段を備えたことを特徴とする加速器による放射性核種の製造装置を提供するものである。

### 発明の効果

[0034] 従来報告が無かった、モリブデンをターゲットに用いる  $Tc-99m$  の製造が、本発明により可能になる。さらに、製造に要する工程は全て遠隔的に行うことが可能であるため、作業に携わるものの職業被ばくは無であり、安全衛生面に配慮した製造が可能になる。

[0035] 又、ターゲット容器からターゲット物質を迅速に取り出すことができ、一つのターゲット容器で繰り返し製造することが可能になると共に、半減期が短い放射性核種であっても問題を生じることなく、取り出すことができる。

### 図面の簡単な説明

[0036] [図1]本発明の第1実施形態の構成を示す管路図

[図2]第1実施形態で用いられているターゲット容器を示す断面図

[図3]第1実施形態の処理手順を示す流れ図

[図4]本発明の第2実施形態で用いられるターゲット容器を示す、図5のI-V-I-V線に沿う断面図

[図5]図4の矢視V方向から見た側面図

### 発明を実施するための形態

[0037] 以下図面を参照して、本発明の実施形態を詳細に説明する。

[0038] 本発明の第1実施形態は、図1に示す如く、加速器（図示省略）からのビームを照射する手段である加速器照射口108からの荷電粒子（ここでは陽子）ビームが例えば垂直に照射されるターゲット容器110と、液体（ターゲット溶液と称する）に溶解あるいは混合したターゲット物質（ $Mo$ ）を貯えるためのターゲット溶液（ $Mo$ ）タンク112と、該 $Mo$ タンク112内のターゲット溶液を配管114に押し出して前記ターゲット容器110内に



導入する手段であるシリンジS 1と、前記ターゲット容器 110 中で陽子ビームの照射に影響しない程度まで乾燥させ、液体成分を減少させて固体成分を析出させる乾燥手段である、加熱用ヒーターH 1、乾燥用（液体輸送の圧力源も兼ねる）の不活性ガス、例えばヘリウムガスを供給するためのヘリウム（He）タンク 116、流量制御計 118 及び蒸発・排気促進用の減圧ポンプ（例えば真空ポンプ）Pと、回収用溶媒である例えば $H_2O_2 + NH_4OH$ を貯えるための混合溶媒（ $H_2O_2 + NH_4OH$ ）タンク 122 と、陽子ビームの照射終了後、該 $H_2O_2 + NH_4OH$ タンク 122 内の回収用溶媒をシリンジ（図示省略）等で配管 114 に押し出して前記ターゲット容器 110 内部へ導入する手段であるバルブV 3と、ヘリウムガスの流路V 7-a、V 7-b 及び閉路を選択する三方向切換バルブV 7と、ターゲット容器 110 からの配管 126 の途中に配設された、該ターゲット容器 110 からの溶液のオーバーフローを許容するための溶液トラップ 124 と、前記 $H_2O_2 + NH_4OH$ タンク 122 から例えばシリンジ（図示省略）等で導入される回収用溶媒を前記溶液トラップ 124 及び配管 126 から前記ターゲット容器 110 に導入し、該ターゲット容器 110 を洗浄する手段であるバルブV 6と、前記ターゲット容器 110 内部から液体を取り出して、廃棄せずに回収するための手段であるバルブV 1と、後段の配管内部に回収物質の固形分が閉塞しないようにするための、回収用配管 129 の途中に配設されたフィルタ 130 と、Tc含有Mo回収タンク 132 と、バルブV 1～V 8 及び配管 114、126、128、129 を備えている。ここで、バルブV 7 以外は一方向開閉バルブである。

[0039] 前記ターゲット溶液として用いるモリブデン溶液は、酸化モリブデン（ $MoO_3$ が望ましい）を10～30%のアンモニア水に溶解あるいは混合して得られる。溶解を促進させるために、10～30%の過酸化水素水を加えてもよく、この場合の溶液組成は、25%アンモニア水：30%過酸化水素水＝1：1から1：2が望ましい。

[0040] 前記ターゲット容器 110 は、図 2 に詳細に示す如く、照射口 110A 側

と金属薄膜 110B で隔離されてターゲット溶液を導入し荷電粒子を照射処理するターゲット室 110C と、該ターゲット室 110C を加熱冷却するための、ヒーター H1 が配設された加熱冷却部 110D とで構成され、さらに金属薄膜 110B の照射口 110A 側には、金属薄膜 110B を冷却する流体（ここではヘリウムガス）を流すため真空隔膜 110E と金属薄膜 110B とで区画された冷却室 110F が設けられる。図において、110G は、配管 114 及び回収用配管 129 が接続されるポート、110H は、溶液トラップ 124 が配設された配管 126 が接続されるポート、110I は、バルブ V4、V5 が配設された配管 128 が接続されるポート、110J は冷却 He ガス入口ポート、110K は冷却 He ガス出口ポート、110L は冷却水入口ポート、110M は冷却水出口ポートである。

[0041] 前記ターゲット室 110C は、例えば、内径 10~20mm、深さ 20~100mm の円柱形状となるように製作し、その材質はアルミニウム、あるいは金、白金が選択できる。安価な材料としてアルミニウムが好ましいが、耐腐食性を考慮する場合は、金あるいは白金を選択することも可能である。加速器からのビームを通過させることでビームをターゲット物質に照射させる金属薄膜 110B の材質も同様であり、その厚さはビームのエネルギーに応じて、例えば 10~500 $\mu$ m、特に 10~100 $\mu$ m とすることが好ましい。気密性の必要なフランジ 110N の部分にはステンレスあるいは耐熱シリコン製の Oリング 110P を設け、金属薄膜 110B はフランジ 110N の押圧力により気密性を保持しているが、これらの方法は限定されるものではない。

[0042] 前記ターゲット容器 110 の底部あるいは側面から、上記したターゲット溶液を導入する。溶液の導入にあたり、ポンプやシリンジなどを用いることができる。溶液の導入量は、析出後のモリブデン化合物のビームの軌道上における厚みが 0.1~5mm となる量をあらかじめ決定しておくこととするが、実用的な収量を得るため、例として入射する陽子ビームエネルギーが 18MeV のとき、モリブデンの面積密度が、約 450mg/cm<sup>2</sup>以上になる

ものとする。但し、必要な面積密度は入射エネルギーに強く依存するため、限定はしない。

[0043] 当該溶液を乾燥し液体成分を減少させる手段として、ターゲット容器 110 の外周、例えば底部へ固定した発熱体、例えばヒーター H1 を設けて加熱を行う。このときの設定温度はターゲット容器 110 内が約 100~700 °C となるようにするが、200~650 °C がより望ましい。さらに、ターゲット容器内部に気体を送り、蒸発した水分の放出を促進させる。水分の放出が終わると、モリブデン酸アンモニウム塩の析出が起こるが、さらに加熱を続けることにより当該化合物は、酸化モリブデンと、アンモニアガス、水に分解する。このとき、アンモニアガス及び水は、導入気体とともにターゲット容器外へ放出される結果、ターゲット容器底面には酸化モリブデンの結晶のみが存在する。

[0044] 導入気体は、ヘリウムガスを用いることが望ましく、これはターゲット容器内部に残留した際、核反応生成物を与えないことに起因する。あるいは、水素あるいは一酸化炭素を導入し、上記酸化モリブデンの還元を行うことも好まれる。なぜなら、還元によって得られる結晶について、単位体積あたりのモリブデン含有量を増加させることが可能になり、核反応効率が上昇する結果、得られる Tc-99m あるいは Mo-99 の収量を増加させることが可能になるためである。

[0045] 上記のとおり、ターゲット容器内部に液体として導入したターゲット物質を、乾燥固化によって固体として調製したことで、効率的な照射が可能になる。乾燥固化の程度は、少なくとも、残留液体によるビームエネルギーの吸収の影響が許せる程度に乾燥固化させる。

[0046] 照射時の発熱で一部の酸化モリブデンの揮発（昇華）が起こりうるため、ターゲット容器上部は、金属薄膜 110B で封をしヘリウムガスなどで冷却を行う。この結果、過度の昇華物を当該薄膜上で析出させることが可能になり、原料損失を防ぐことができる。

[0047] 照射中、ターゲット容器は密封系としても開放系としても構わない。開放

系であれば、照射時の発熱に起因する圧力上昇を防ぐことが可能になり、ターゲット容器を破損させることのない照射が可能になる。

[0048] ここで、ターゲット容器 110 には複数の出入口を設けてあるので、(1) 溶液注入時は、上の穴が排気口になるため、圧力の上昇はない。又、(2) 加熱乾燥時は、やはり上の穴から陰圧系の真空ポンプ P へ接続するので、加熱しているが、むしろ大気圧より低くなる。(3) 照射時は、ビームの発熱によって温度上昇が起こるが、上の穴に続く経路中に内圧の増減に応じて収容体積を増減する膨張室を設けることで圧力バランスを大気圧と同じに保つことができる。従って、金属薄膜 110B の健全性に問題はなく、少なくとも圧力に起因する破損は生じない。

[0049] 照射終了後、ターゲット容器内部にアンモニア水導入し、約 5 ~ 10 分間かけて照射した酸化モリブデンを再溶解させる。アンモニア水を導入する代わりに、アンモニア水 + 過酸化水素水混合溶液を導入すると酸化モリブデンがより再溶解しやすくなる。溶解促進のため、加温、気体の導入による混和などを行う。

[0050] 導入する液として、アンモニア水は 10 ~ 30 % 重量パーセント濃度、過酸化水素水は 10 ~ 30 % 重量パーセント濃度を用いることとし、その液量は、ターゲット容器形状に依存するが、容積の 20 ~ 80 % に相当する液量を導入する。溶液の増加に伴い、ターゲット容器壁面に広範囲に付着している可能性がある Tc-99m や Mo-99 を溶解、回収できる効率が上がる。

[0051] 次に、Tc-99m あるいは Mo-99 が溶解した酸化モリブデン再溶解液を、ヘリウムガス等の圧送によって、ターゲット容器外部へ移送する。このとき、前述の工程で溶解しきれなかった酸化モリブデン等が回収配管を閉塞させる恐れがあるため、ターゲット容器直後にフィルタ 130 を設け、それらを除外することで、安定した溶液の移送が可能になる。この配管途中に設けるフィルタ 130 は 0.22  $\mu$ m 以上の孔径を持つ市販品とすることができ、配管の閉塞をおこななければ孔径に制限は無い。フィルタ材質として

は、特に石英、ポリプロピレンあるいはテフロン（登録商標）が望ましいが、材質に制限はない。

[0052] 回収した溶液は、その後、例えばイオン交換樹脂を用いて精製を行い、目的とするTc-99mを得ることができる。このとき、イオン交換樹脂を通過した後の液体を捕集し、次回の生産に用いる。捕集した液体の組成は、照射前に準備する液体と同成分であるため、特別な精製を必要とすることなく、そのまま次回の生産に供することが可能である。

[0053] 以下、図2及び図3を参照して、実施例の操作手順を説明する。

[0054] [1. ターゲットの準備]

ターゲット溶液（アンモニア性酸化モリブデン）をバルブV2→V1経路でポート110Gからターゲット室110Cへ導入する（ステップ100）。このとき、排気経路としてバルブV4を開放しておく。

[0055] 次に、ターゲット容器備え付けのヒーターH1により、ターゲット容器110を加熱し、溶液の乾燥を行う（ステップ110）。このとき、ヘリウムガスを、流量制御計118で流量制御しながらバルブV7-a及び配管114経路で導入し、ターゲット室内部の乾燥を促進させ、ポート110IからバルブV5→真空ポンプP経路で排気する。この時、ヘリウムガスはポート110Hから導入することもできるが、ポート110Gから導入した方が、前記液体と混合されてターゲット容器内に導入されターゲット容器10の下方に溜まった前記ターゲット物質がポート110G通って管路114へ逆流して、その途中で固体化することにより目詰まりが生じることを防ぐことができるので好ましい。乾燥時のターゲット容器110内の温度は100～700℃とするが、水分のほかにアンモニアを蒸気として除去できる温度となる250℃以上が特に好ましい。

[0056] 適切な時間、乾燥を行った（ステップ120）後、ターゲット容器温度を室温程度に冷却する（ステップ130）ことで、準備を終える。この時、ポート110Lからポート110Mへ冷却水を流して、強制的に冷却を行っても構わない。準備終了後、すべての経路を遮断する。

## [0057] [2. 照射]

陽子ビームは金属薄膜110Bを通過してターゲット室110Cの底部に向けて照射される(ステップ140)。照射は、ターゲット上での陽子ビームエネルギーが9から40MeVの範囲となるように行うが、テクネチウム-99mの製造においては、特に15から22MeVが望ましい。また、照射時の発熱によりターゲット容器内部の圧力上昇を抑えるため、バルブV8を開放し、ターゲット容器、特に金属薄膜110Bの破損を防止する。さらに、ポート110Jからポート110Kへヘリウムガスを流し、真空隔壁110E及び金属薄膜110Bを冷却し、一方ポート110Lからポート110Mへも冷却水を流して、陽子ビーム照射を受け特に高温となるターゲット容器110の底部を冷却する。

## [0058] [3. 回収]

適切な時間(例えば数時間)照射を行った後、生成したテクネチウム99mの回収を行う。30%アンモニア水:30%過酸化水素水=1:1溶液を、回収用媒体として、バルブV3→配管114経由でポート110Gからターゲット容器110へ導入後、ヘリウムガスを配管114経由でポート110Gから導入し、ターゲット内部の攪拌を行う(ステップ150)。ヘリウムガス排気経路としてバルブV8を開放する。さらに、ヒーターH1によりターゲット容器110を加温する。以上の手順によって、照射した酸化モリブデンの溶解を促進させる。このとき、溶液がターゲット容器からあふれ出ることを許容させるため、バルブV8とターゲット容器110との間に溶液トラップ124及び/又は補助タンクを設ける。更に、バルブV8の開放端に膨張室を設けることもできる。

[0059] 一定時間(例えば5~10分)経過後、バルブV8を閉鎖し、ヘリウムガスをバルブV7-b→配管126→溶液トラップ124経由でポート110Hからターゲット容器110に供給し、ターゲット溶液を、ポート110Gを通過してバルブV1から回収用配管129とフィルタ130を通過させ、Tc含有Mo回収タンク132に回収する(ステップ160)。

- [0060] 続いて、ターゲット容器内及び回収用配管 129 へ付着する残留分を回収するため、30%アンモニア水：30%過酸化水素水=1：1溶液を、バルブV6→溶液トラップ124経由でポート110Hから、ターゲット容器110内へ導入する（ステップ170）。このとき、排気経路としてバルブV4を開放する。
- [0061] 次に、バルブV4を閉鎖後、前記同様の手順でヘリウムガスを配管126経由で供給し、Tc含有Mo回収タンク132に回収を行う（ステップ180）。
- [0062] 以上、一連の手順により、テクネチウム99mの遠隔的な製造が完了する。
- [0063] 次回の製造は、ここに示した以外の特別な操作を必要とせず、[1. ターゲットの準備]を行うことにより、達成される。この時、Tc含有Mo回収タンク132に回収した溶液を再利用することができ、その場合ターゲット容器内部に入る溶液は、モリブデン+アンモニア水+過酸化水素水の組合せで、それぞれの成分について、ステップ170での残留分の回収残りの影響で多少の増減はあるかもしれないが、変動は想定の範囲内で、準備や回収によって、変動が相殺されるので、ターゲット容器及び金属薄膜は、前回照射時に使用したものをそのまま（洗浄など不要で）繰り返し再使用できる。
- [0064] 次に、加速器からの陽子ビームが水平方向に照射される第2実施形態について説明する。本実施形態は、図4（図5のIV-IV線に沿う断面図）及び図5（矢視V方向から見た側面図）に示す如く、金属薄膜110Bがビームの軌道に対し斜めに設けられ、該金属薄膜110Bに目掛けて陽子ビームが水平方向から照射されるようにされたターゲット容器110'を用いる点が第1実施形態と異なる。なお、図4におけるターゲット容器部は、図5に示すIV-IV線上の断面を示す。ターゲット容器の内部の形状は、第1実施形態では円柱形状であったが、第2実施形態では、加工の容易さから頂点が平らな円錐形状に形成されている。他の構成及び作用については、第1実施形態と同様であるので、対応する部分に同じ符号を用いて説明は省略する

- 。
- [0065] なお、前記実施形態においては、ヘリウムガスと排気装置（真空ポンプP）の組合せでターゲット物質の導入、回収等を行っていたが、ターゲット物質の導入や排出を行う手段はこれに限定されず、他のポンプやシリンジ等、一般的な液体輸送手段を用いてもよい。また、ターゲット容器110、110'から離れた場所に液体輸送手段を設置して、送液を行ってもよい。
- [0066] また、前記実施形態においては、モリブデン100からモリブデン99とテクネチウム99mを製造していたが、ターゲット物質や製造核種の種類、同時に利用する溶媒の種類、ビームの種類を問わない。例えば、製造する放射性核種を ${}^A_Z\text{Product}$ 、ターゲット物質を ${}_{Z-1}^A\text{Target}$ とし（Aは原子量、Zは原子番号）陽子ビームを利用して、 ${}_{Z-1}^A\text{Target} (p, x) {}^A_Z\text{Product}$ 核反応を用いた製造を行う場合を考える。このとき ${}_{Z-1}^A\text{Target}$ の単体、酸化物、水酸化物、フッ化物、塩化物、臭化物、ヨウ化物、塩酸塩、硝酸塩、亜硝酸塩、硫酸塩、硫化物、水素化物、およびこれらの水和物が利用できる。
- [0067] 溶媒に対する溶解度も問わない。すなわち、溶解せずとも移動相に懸濁して存在することが可能であれば、いずれの溶媒も利用できる。例えば、Mo単体金属（微粉末）は、有機溶媒であるアルコールやアセトンなどには溶解しないが、移動相としてのこれら溶媒によって、ターゲット容器内部へ移送することが可能であり、また、照射前に有機溶媒は容易に蒸発させることが可能であることから、本製造目的は達せられる。本稿に於いて、液体に溶解しているという表現は、液体に混合していること、両者が共存していることも含む。
- [0068] 又、アンモニア水濃度、酸化モリブデン濃度も問わない。更に、溶解性向上のため、必要に応じて過酸化水素水を添加してもかまわない。このときの過酸化水素水濃度は問わない。
- [0069] 乾燥時のターゲット容器内の温度は100℃以上が好ましく、さらにはアンモニアを蒸発させることが可能な200～650℃が望ましいが、これに限定されない。また、生成した結晶の厚みも、入射するビーム軌道上におい



て0.1～5mmであることが望ましいが、これに限定されない。

[0070] 乾燥時に利用する気体も、ヘリウムあるいは水素あるいは一酸化炭素であることが望ましいが、これらに限定されない。

[0071] また、溶液の取り出しには、気圧体による加圧圧送やシリンジによる吸引等を用いることができる。

[0072] さらに、酸化モリブデンの溶解を促進させるために、加熱装置及び気体供給装置を併用してもかまわない。

[0073] ターゲット容器の数も一つに限定されず、複数用いて、順番にビームを照射して連続的に製造できるようにすることもできる。照射するビームも陽子ビームに限定されない。ターゲット物質も固体に限定されず、予め溶液化されていても良い。

### 産業上の利用可能性

[0074] 本発明は、放射線医学、核医学等の分野で、画像診断に用いる放射線医薬品の製造に適用可能である。

### 符号の説明

- [0075] 108…加速器照射口  
110、110'…ターゲット容器  
110B…金属薄膜  
110C…ターゲット室  
110D…加熱冷却部  
H1…ヒーター  
110E…真空隔膜  
110F…冷却質  
112…ターゲット溶液(Mo)タンク  
114、126、128…管路  
122…混合溶媒(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>+NH<sub>4</sub>OH)タンク  
116…ヘリウム(He)タンク  
P…真空(減圧)ポンプ

126、128…配管

129…回収用配管

130…フィルタ

132…Tc含有Mo回収タンク

## 請求の範囲

- [請求項1] 液体に溶解又は液体と混合されたターゲット物質をターゲット容器内に導入し、  
該ターゲット容器中で乾燥させて液体成分を減少させてから、加速器からのビームを照射することを特徴とする加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項2] 前記液体に溶解又は液体と混合されてターゲット容器内に導入された前記ターゲット物質を、該ターゲット容器内で乾燥させて固体成分を析出させることを特徴とする請求項1に記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項3] 前記ターゲット容器内に析出した固体成分の厚みが、前記加速器から入射するビームの軌道上において、0.1～5mmであることを特徴とする請求項2又は3に記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項4] 前記乾燥を、加熱、乾燥用気体の導入、排気の少なくともいずれか一つにより行うことを特徴とする請求項2に記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項5] 前記乾燥時の前記ターゲット容器内の温度が100℃以上であることを特徴とする請求項5に記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項6] 前記乾燥に利用する気体が、ヘリウム、水素あるいは一酸化炭素であることを特徴とする請求項4又は5に記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項7] 前記乾燥に利用する気体を、前記液体に溶解又は液体と混合されて前記ターゲット容器内に導入され該ターゲット容器の下方に溜まった前記ターゲット物質を通過するように前記ターゲット容器内に導入することを特徴とする請求項4又は5に記載の加速器による放射性核種の製造方法。

- [請求項8] 前記ビームの照射終了後、液体を前記ターゲット容器内部へ導入し、前記ターゲット物質を再び該液体に溶解又は該液体と混合させて、前記ターゲット容器外部へ取り出すことを特徴とする請求項1乃至7のいずれかに記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項9] 前記ターゲット容器から取り出された液体を、廃棄せずに回収することを特徴とする請求項8に記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項10] 前記ターゲット物質がモリブデン100であり、前記ビームが40-9 MeVの陽子ビームであり、製造される放射性核種がテクネチウム99m及び/又はモリブデン99であることを特徴とする請求項1乃至9のいずれかに記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項11] 前記ターゲット容器内に導入される前記ターゲット物質が、アンモニア水に溶解した酸化モリブデンであることを特徴とする請求項10に記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項12] 前記アンモニア水に過酸化水素水が添加されていることを特徴とする請求項11に記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項13] 前記乾燥時の温度が200~650℃であることを特徴とする請求項11又は12に記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項14] 前記液体が、アンモニア水及び/又は過酸化水素水であることを特徴とする請求項8に記載の加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項15] 加速器からのビームの照射が終了したターゲット物質を、ターゲット容器外部へ取り出す際に、  
液体を前記ターゲット容器内部へ導入し、  
前記ターゲット物質を該液体に溶解又は該液体と混合させて、前記ターゲット容器外部へ取り出すことを特徴とする加速器による放射性核種の製造方法。
- [請求項16] ターゲット容器と、  
液体に溶解又は液体と混合されたターゲット物質を該ターゲット容

器内に導入する手段と、

該ターゲット容器中で乾燥させて液体成分を減少させる乾燥手段と

、

加速器からのビームを前記ターゲット容器に照射する手段と、

を備えたことを特徴とする加速器による放射性核種の製造装置。

[請求項17] 前記乾燥手段が、前記液体に溶解又は液体と混合されて前記ターゲット容器内に導入された前記ターゲット物質を、該ターゲット容器内で乾燥させて固体成分を析出させることを特徴とする請求項16に記載の加速器による放射性核種の製造装置。

[請求項18] 前記乾燥手段が、加熱手段、気体供給手段、排気手段の少なくともいずれか1つを含むことを特徴とする請求項16又は17に記載の加速器による放射性核種の製造装置。

[請求項19] 前記ターゲット容器が、該ターゲット容器を封じると共に、前記ビームを通過させるための金属薄膜を備え、該金属薄膜が冷却されていることを特徴とする請求項16に記載の加速器による放射性核種の製造装置。

[請求項20] 前記ビームの照射終了後、液体を前記ターゲット容器内部へ導入する手段と、

前記ターゲット物質を再び該液体に溶解又は該液体と混合させて、前記ターゲット容器外部へ取り出す手段とを更に備えたことを特徴とする請求項16乃至19のいずれかに記載の加速器による放射性核種の製造装置。

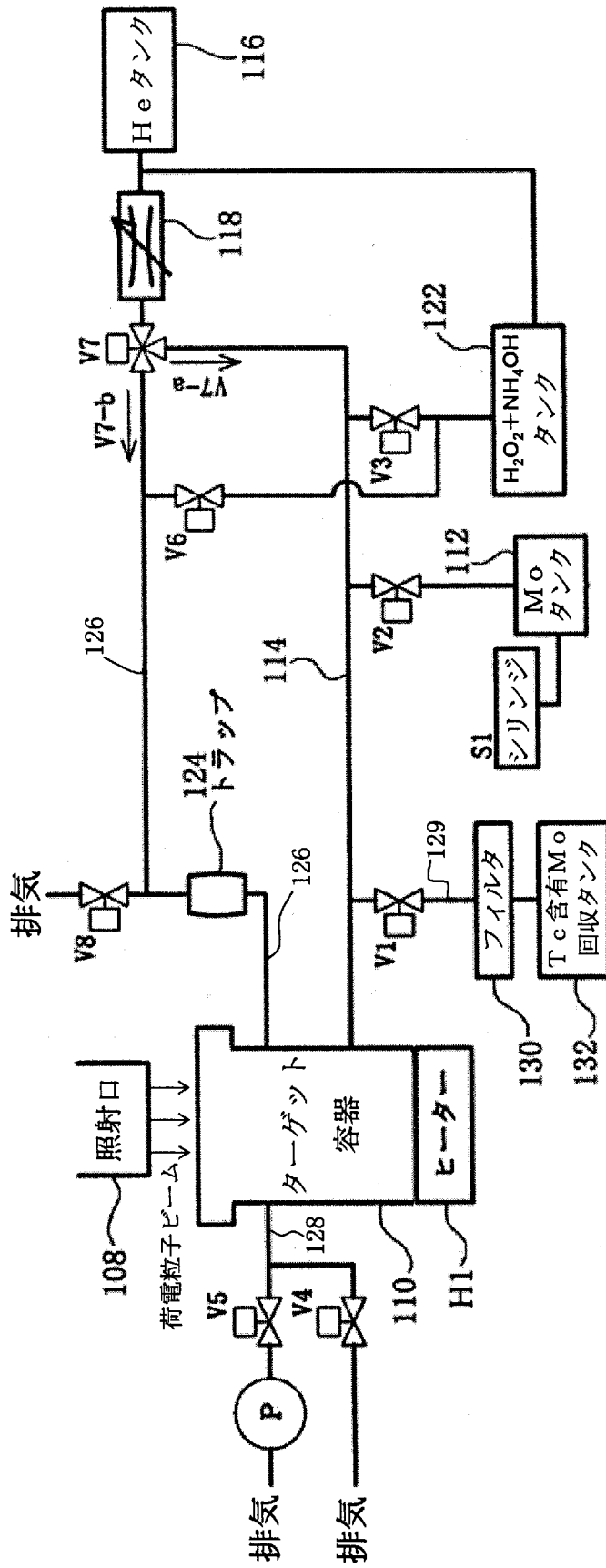
[請求項21] 前記ターゲット容器から取り出された液体を、廃棄せずに回収する手段を備えたことを特徴とする請求項20に記載の加速器による放射性核種の製造装置。

[請求項22] 前記回収する手段が、配管途中に設けられたフィルタを含むことを特徴とする請求項20に記載の加速器による放射性核種の製造装置。

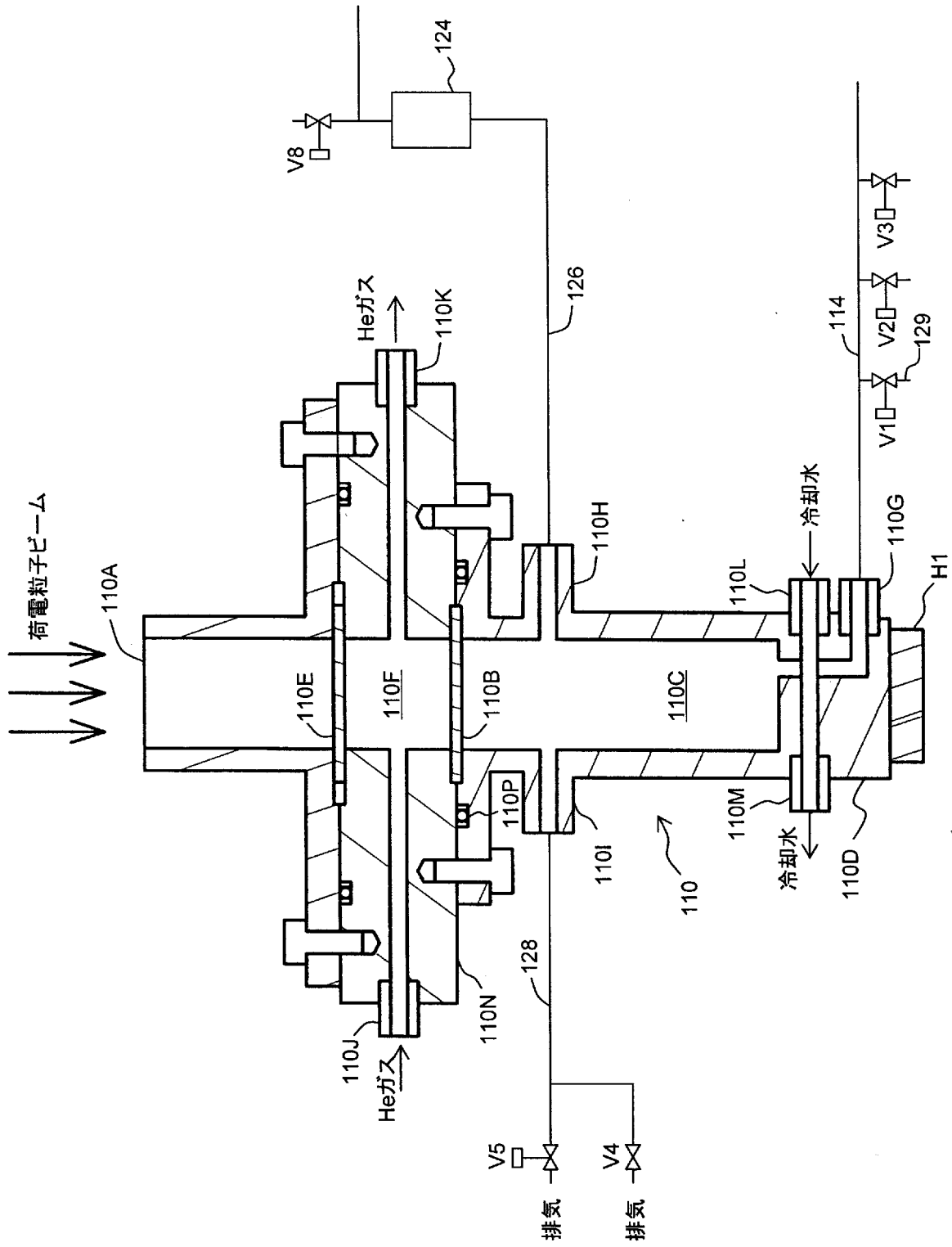
[請求項23] 加速器からのビームの照射が終了したターゲット物質を、ターゲッ

ト容器外部へ取り出すようにされた放射性核種の製造装置であって、  
液体を前記ターゲット容器内部へ導入し、前記ターゲット物質を該液体に溶解又は該液体と混合させて、前記ターゲット容器外部へ取り出す手段を備えたことを特徴とする加速器による放射性核種の製造装置。

[図1]

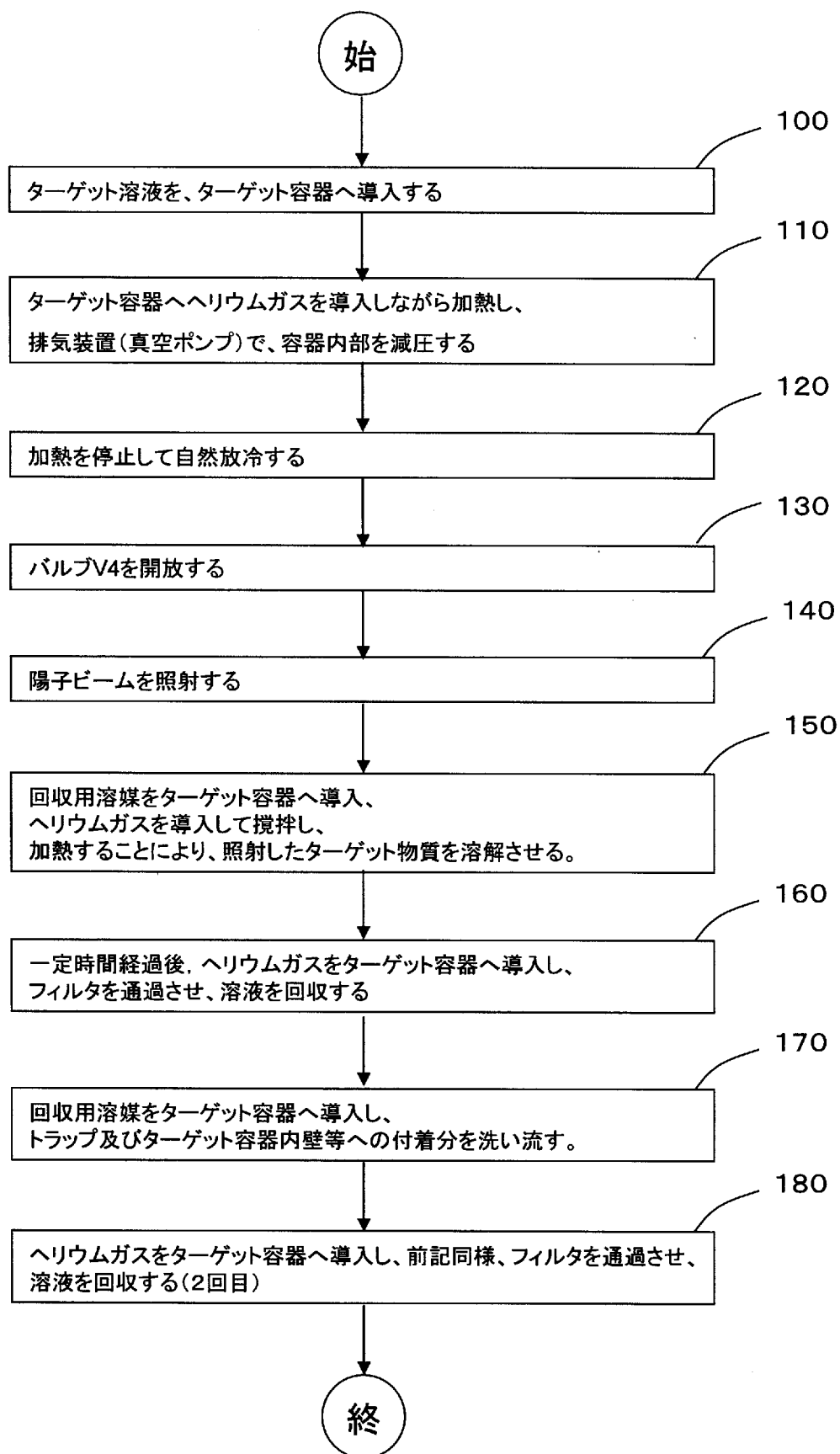


[図2]

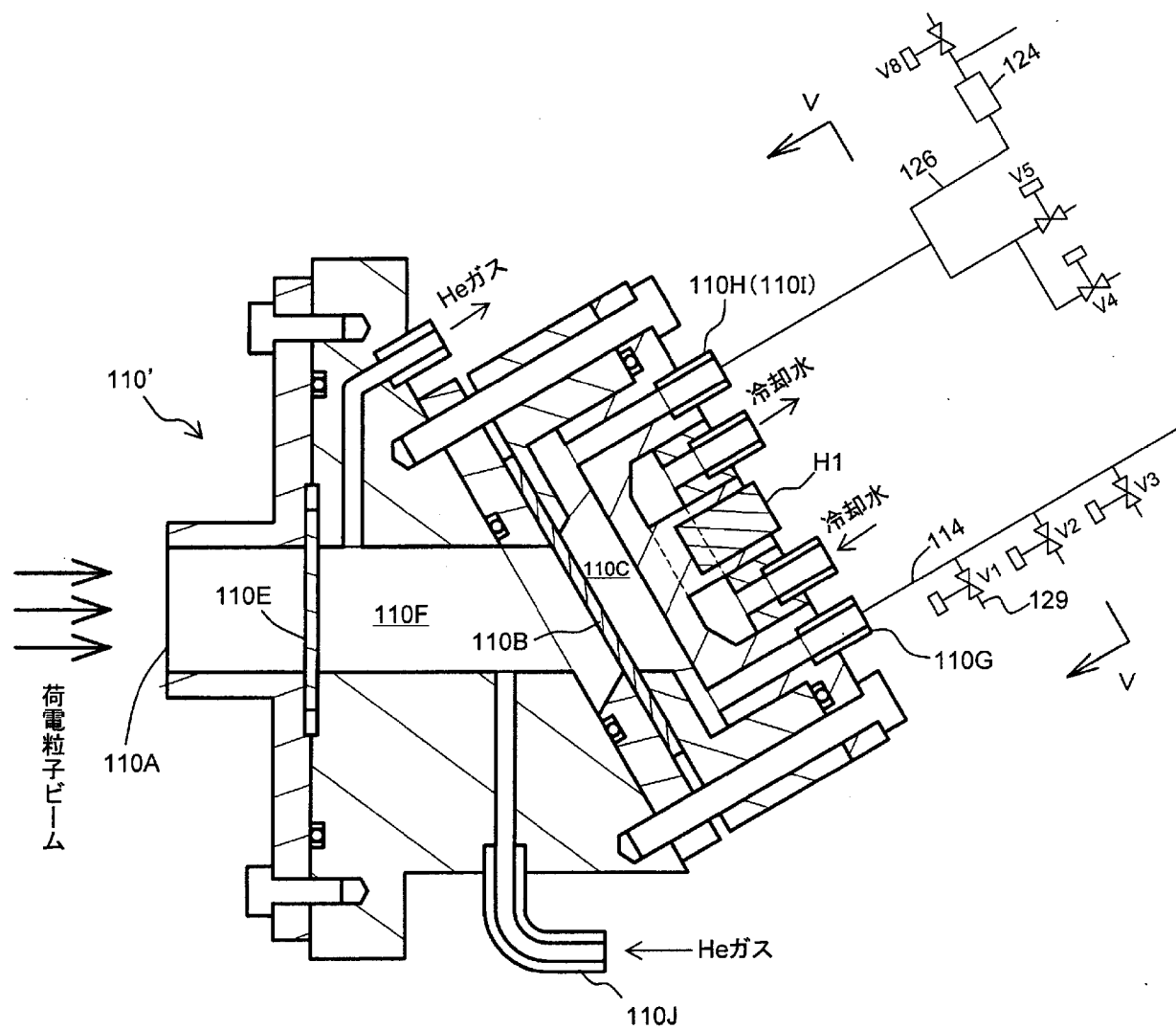




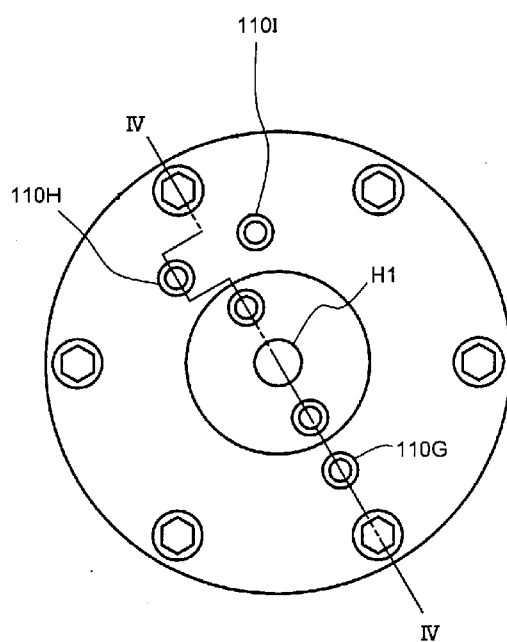
[図3]



[図4]



[図5]



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2010/066433

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

G21G1/10(2006.01) i, H05H6/00(2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G21G1/10, H05H6/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2007-536533 A (Actinium Pharmaceuticals, Inc.), 13 December 2007 (13.12.2007), paragraphs [0047], [0058] to [0075] & US 2007/153954 A1 & EP 1742670 A1 & WO 2005/105160 A1	1-5, 16-18 6-15, 20-23
A	JP 2008-102078 A (Japan Atomic Energy Agency, Kaken Co., Ltd.), 01 May 2008 (01.05.2008), entire text; all drawings & EP 2104113 A1 & WO 2008/47946 A1	1-18, 20-23
A	WO 01/15176 A1 (Hitachi, Ltd.), 01 March 2001 (01.03.2001), page 28 (Family: none)	1-18, 20-23

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“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)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“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

“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

“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

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
07 December, 2010 (07.12.10)

Date of mailing of the international search report  
21 December, 2010 (21.12.10)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/066433

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-214395 A (Hitachi, Ltd.), 31 July 2002 (31.07.2002), paragraph [0004] (Family: none)	1-18,20-23
A	JP 55-22102 A (Japan Atomic Energy Research Institute), 16 February 1980 (16.02.1980), page 2, upper right column (Family: none)	1-18,20-23
A	JP 10-206597 A (The Institute of Physical and Chemical Research), 07 August 1998 (07.08.1998), paragraph [0022] (Family: none)	1-18,20-23
A	JP 1-254900 A (Daiichi Radioisotope Laboratories, Ltd.), 11 October 1989 (11.10.1989), entire text; all drawings (Family: none)	1-18,20-23
A	JP 63-2199 U (The Japan Steel Works, Ltd.), 08 January 1988 (08.01.1988), entire text; all drawings (Family: none)	1-18,20-23

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2010/066433

**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3.  Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Document 1 (JP 2007-536533 A (Actinium Pharmaceuticals, Inc.), 13 December, 2007 (13.12.2007), paragraphs [0047], [0058]-[0075]) discloses a method for producing a radioactive nuclei by an accelerator, by introducing a target substance (a radium-containing aqueous-organic solution or a suspension) dissolved in or mixed with a liquid, into a target container (or a cylinder-shaped hollow container), by drying the same in said target container to reduce the liquid component thereof, and by irradiating the target substance with a beam (or a proton beam) from an accelerator. Moreover, the invention of document 1 precipitates a solid component by heating the same at a temperature of 100 °C. (continued to extra sheet)

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:  
Claims 1-18 and 20-23.
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2010/066433

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet (2)

Thus, the inventions of claims 1, 2, 4, 5 and 16-18 are not admitted to involve any novelty to and any special technical feature over the invention disclosed in document 1. Therefore, it is admitted that the dependent claims of claim 1 contain the five inventions which are related in the individual special technical features, as indicated in the following, if the special technical features are determined thereon.

Incidentally, the inventions of claims 1, 2, 4, 5 and 16-18 but having no special technical feature are grouped into invention 1.

(Invention 1) Invention of claims 1-5, 8, 9, 14, 16-18 and 20-22, and invention of claims 10-13, and having the following special technical features

A method for producing a radioactive nuclei by an accelerator, "by introducing a liquid into the inside of said target container after the end of the irradiation of a beam, by dissolving said target substance again into said liquid or mixing the same with said liquid, and by extracting the same to the outside of said target container".

Here, the invention of claim 3 is grouped into invention 1, since the same is only the conversion of the well-known technique to the invention of claim 2 but does not take any new effect.

(Invention 2) Invention of claims 6 and 7, and invention of claims 8-14 and having the following special technical features

A method for producing a radioactive nuclei by an accelerator "using a gas for drying".

(Invention 3) Invention of claims 10-13

A method for producing a radioactive nuclei by an accelerator, "wherein a target substance is molybdenum 100, wherein a beam is a proton beam of 40-9 MeV, and wherein the radioactive nuclei to be produced is technetium 99m and/or molybdenum 99".

(Invention 4) Invention of claims 15 and 23

A method for producing a radioactive nuclei by an accelerator, "by introducing a liquid into the inside of said target container when a target substance after the end of the irradiation of a beam in the accelerator is extracted to the outside of said target container, by dissolving said target substance into said liquid or mixing the same with said liquid, and by extracting the substance to the outside of said target container".

(Invention 5) Invention of claim 19, and invention of claims 20-22 and having the following special technical features

A method for producing a radioactive nuclei by an accelerator, wherein said target container includes a metal thin film for closing said target container and for passing said beam, and wherein said metal thin film is cooled".

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
 Int.Cl. G21G1/10(2006.01)i, H05H6/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野  
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
 Int.Cl. G21G1/10, H05H6/00

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

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2010年
日本国実用新案登録公報	1996-2010年
日本国登録実用新案公報	1994-2010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)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の 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 請求項の番号
X A	JP 2007-536533 A (アクチニウム ファーマシューティカルズ, インコーポレイティド) 2007.12.13, 段落【0047】、【0058】 ～【0075】 & US 2007/153954 A1 & EP 1742670 A1 & WO 2005/105160 A1	1-5, 16-18 6-15, 20-23
A	JP 2008-102078 A (独立行政法人 日本原子力研究開発機構、株式会社化研) 2008.05.01, 全文全図 & EP 2104113 A1 & WO 2008/47946 A1	1-18, 20-23

C欄の続きにも文献が列挙されている。  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 07.12.2010	国際調査報告の発送日 21.12.2010
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 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) 木下 忠 電話番号 03-3581-1101 内線 3273

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の 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 請求項の番号
A	WO 01/15176 A1 (株式会社日立製作所) 2001.03.01, 第28頁 (ファミリーなし)	1-18, 20-23
A	JP 2002-214395 A (株式会社日立製作所) 2002.07.31, 段落【0004】 (ファミリーなし)	1-18, 20-23
A	JP 55-22102 A (日本原子力研究所) 1980.02.16, 第2頁右上欄 (ファミリーなし)	1-18, 20-23
A	JP 10-206597 A (理化学研究所) 1998.08.07, 【0022】 (ファミリーなし)	1-18, 20-23
A	JP 1-254900 A (株式会社第一ラジオアイソトープ研究所) 1989.10.11, 全文全図 (ファミリーなし)	1-18, 20-23
A	JP 63-2199 U (株式会社日本製鋼所) 1988.01.08, 全文全図 (ファミリーなし)	1-18, 20-23



## 第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1.  請求項 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2.  請求項 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3.  請求項 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

文献1（JP 2007-536533 A（アクチニウム ファーマシューティカルズ，インコーポレイテッド）2007.12.13，段落【0047】、【0058】～【0075】）には、液体に溶解又は液体と混合されたターゲット物質（ラジウム含有水性-有機性溶液又は懸濁液）をターゲット容器内（シリンダ形中空容器）に導入し、該ターゲット容器中で乾燥させて液体成分を減少させてから、加速器からのビーム（陽子ビーム）を照射する加速器による放射性核種の製造方法、が記載されている。そして、文献1に記載の発明は、100℃の温度で加熱して固体成分を析出させている。

1.  出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2.  追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3.  出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。  
請求項1-18，20-23
4.  出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。

(第Ⅲ欄のつづき)

従って、請求項1, 2, 4, 5, 16-18に係る発明は、文献1に記載された発明に対して新規性が認められず、特別な技術的特徴を有しない。そこで、請求項1の従属請求項について特別な技術的特徴を判断すると、以下に示す各特別な技術特徴で連関する5の発明が含まれるものと認められる。

なお、特別な技術的特徴を有しない請求項1, 2, 4, 5, 16-18に係る発明は、発明1に区分する。

(発明1) 請求項1-5, 8, 9, 14, 16-18, 20-22に係る発明及び請求項10-13に係る発明のうち以下の特別な技術的特徴を有する発明  
「ビームの照射終了後、液体を前記ターゲット容器内部へ導入し、前記ターゲット物質を再び該液体に溶解又は該液体と混合させて、前記ターゲット容器外部へ取り出す」加速器による放射性核種の製造方法。

なお、請求項3に係る発明は請求項2に係る発明に対して周知技術の転換を行うものによらず、新たな効果を奏するものではないため、発明1に区分する。

(発明2) 請求項6, 7に係る発明及び請求項8-14に係る発明のうち以下の特別な技術的特徴を有する発明  
「乾燥に気体を利用する」加速器による放射性核種の製造方法。

(発明3) 請求項10-13に係る発明  
「ターゲット物質がモリブデン100であり、ビームが40-9MeVの陽子ビームであり、製造される放射性核種がテクネチウム99m及び/又はモリブデン99である」加速器による放射性核種の製造方法。

(発明4) 請求項15, 23に係る発明  
「加速器からのビームの照射が終了したターゲット物質を、ターゲット容器外部へ取り出す際に、液体を前記ターゲット容器内部へ導入し、前記ターゲット物質を該液体に溶解又は該液体と混合させて、前記ターゲット容器外部へ取り出す」加速器による放射性核種の製造方法。

(発明5) 請求項19に係る発明及び請求項20-22に係る発明のうち以下の特別な技術的特徴を有する発明  
「前記ターゲット容器が、該ターゲット容器を封じると共に、前記ビームを通過させるための金属薄膜を備え、該金属薄膜が冷却されている」加速器による放射性核種の製造装置。