

エアロゾルを用いた At-211 の分離回収試験 その 2

Development of At-211 separation and recovery methods by aerosol

湯原 勝¹⁾ 宮本真哉¹⁾ 山下 雄生¹⁾ 岡部 寛史¹⁾ 矢板由美¹⁾ 大森 孝¹⁾

Masaru YUHARA Shinya MIYAMOTO Yu YAMASHITA Hirofumi OKABE Yumi YAITA Takashi OMORI

¹⁾東芝エネルギーシステムズ

(概要)

放射性同位元素 (RI) を用いたがん治療薬原料として、短半減期 α 核種 ^{211}At が注目されている。Bi ターゲット中に α 線照射で生成した ^{211}At を医薬品原料として使用するには、生成した ^{211}At を Bi から分離・回収する必要がある。一般的な分離手法として、Bi の沸点が ^{211}At より高いことを利用した乾留法が開発されているが、回収率が安定しない課題がある。そこで、ガスジェット搬送法を参考にターゲット加熱時にエアロゾルを導入し、 ^{211}At -エアロゾル複合体としてフィルタ回収する手法を検討した。

キーワード： ^{211}At 、分離、回収、エアロゾル

1. 目的

フィルタ回収率の向上および安定化を目的として照射により生成した ^{211}At を用いた分離回収試験を実施した。 ^{211}At の半減期は 7.2 時間と短いため、製造後の迅速な分離回収技術の開発が必須である。既往研究 (引用文献 1) では、乾留後の配管内に付着した ^{211}At を純水で洗浄回収している。 ^{211}At 量産化のためには、処理の簡略化・時間短縮による減衰ロス低減や回収率の安定化が望まれる。そこで、超重元素の迅速分離・分析技術 (ガスジェット法) を応用し、ターゲット加熱時に分離された ^{211}At をエアロゾルに付着させてフィルタ上に回収する手法を検討した。2020 年度に実施した試験 (引用文献 2) ではエアロゾル導入により ^{211}At フィルタ回収率が向上し、本手法の有効性を確認したが、さらなる回収率向上を目的に試験、検討を行った。

2. 方法

タンデム加速器ビームライン R2 にて Bi より ^{211}At を生成した後、照射済みターゲットを図 1 に示す装置を用いて ^{211}At 分離回収試験を実施した。試験装置は、エアロゾル発生部、ターゲット加熱・エアロゾル複合体生成部、 ^{211}At 回収部から成り、各構成要素は配管で接続した。試験条件を表 1 に示す。

①ターゲットの照射 (At-211 の生成)

タンデム加速器ビームライン R2 にて 28.0 MeV に加速した α 線を Bi チップ (高純度化学研究所製、純度 99.99 %、 $10\text{ mm} \times 1\text{ mm}$) に照射し、 ^{209}Bi ($\alpha, 2n$) ^{211}At により ^{211}At を生成した。照射済みターゲットを取り出し、Ge 半導体検出器で γ 線スペクトルを測定し、76~92 keV のピークを用いて ^{211}At 生成量を求めた。照射終了から分離試験開始までの冷却時間の違いにより、各試験での分離時 At 量は 9~215 kBq となった (表 1 参照)。

②エアロゾルの発生

石英ボートに KCl 粉末を 5 g 入れ、電気炉で加熱し、He ガスを 1.5 L/min で導入して KCl をエアロゾル化させた。 ^{211}At を付着させるエアロゾル密度 (単位容積あたりに存在するエアロゾル個数) をパラメータとするため、KCl 粉末の加熱温度を 650~750 °C に変化させた。エアロゾル密度の KCl 粉末加熱温度依存性を図 2 に示す。

③ ^{211}At およびエアロゾルの分離回収

電気炉内に照射済み Bi チップをセットし、エアロゾル含有 He ガス導入開始後、照射済みターゲットを加熱して ^{211}At を分離し、回収ガスに含まれるエアロゾルをガラス繊維フィルタで捕集した。フィルタ捕集物を 0.01M-NaOH 水溶液で溶解し、Ge 半導体検出器で溶液中の γ 線スペクトルを測定して ^{211}At を定量した。また、エアロゾル成分であるカリウムの回収液中濃度をイオンメータで測定した。分離回収性能は次式に示す ^{211}At フィルタ回収率 R (%) により評価した。

$$R = A_{\text{filter}} / A_{\text{target}} \times 100$$

ここで、 A_{target} はターゲット中の ^{211}At 量 (Bq)、 A_{filter} はガラス繊維フィルタから洗浄回収した ^{211}At

量 (Bq)を指す。

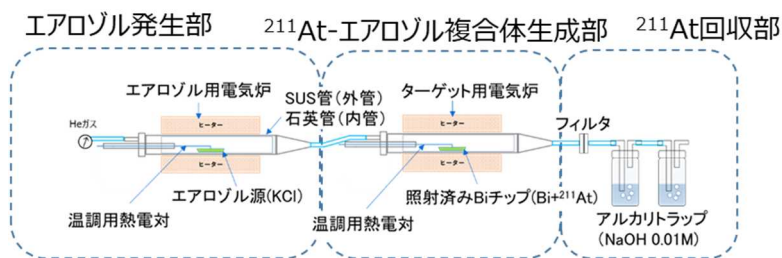
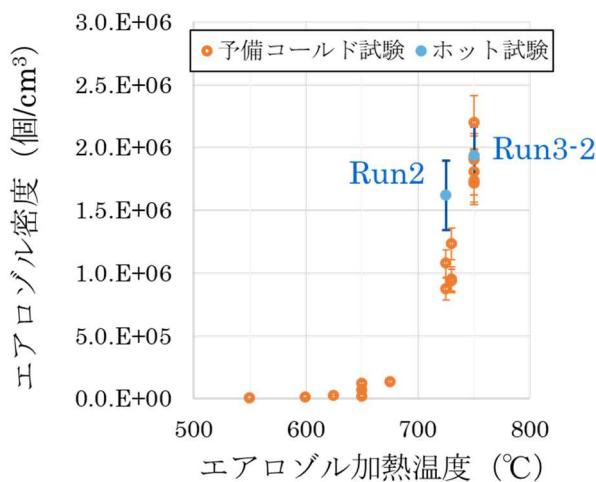


図1 211At 分離装置

表1 試験条件

ID	Blank	Run1	Run2	Run3-1	Run3-2
分離時 211At 量 (kBq)	43	9	86	139	215
エアロゾル源	無し	KCl			
エアロゾル加熱温度 (°C)	—	650	725	750	750
キャリアガス	He				
入口ガス流量(L/min)	1.5				
ターゲット加熱温度 (°C)	500				
処理時間 (min)	20 ※昇降温時間除く				

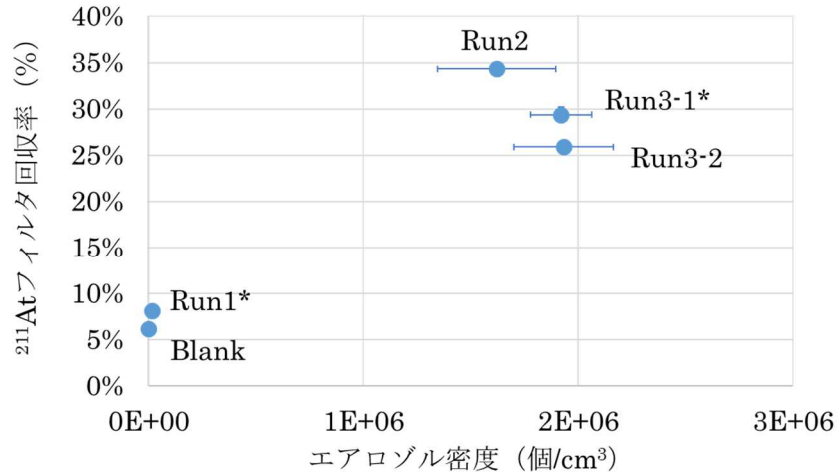


* Run1、Run3-1はエアロゾル密度未実測

図2 エアロゾル加熱温度とエアロゾル密度の関係

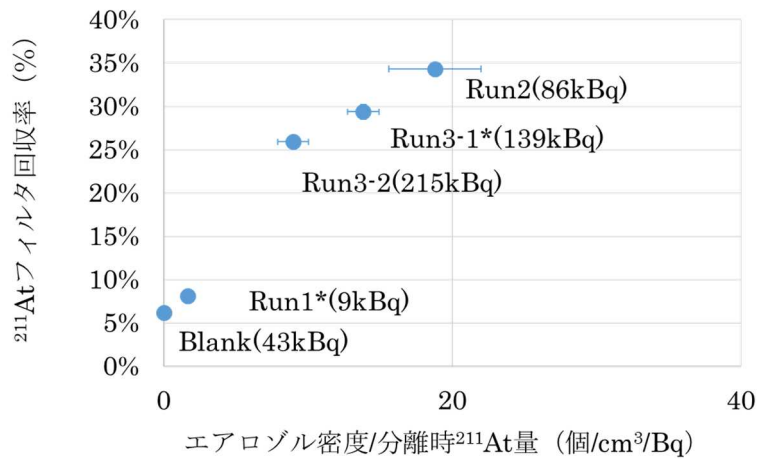
3. 結果及び考察

エアロゾル密度に対する 211At フィルタ回収率を図3に示す。エアロゾル密度が高い条件ほど、211At とエアロゾルの接触頻度が増し 211At 回収率は高まると予想していたが、一部条件で関係が逆転した。分離時 211At 量の影響を確認するため、分離時 211At 供試量で規格化した。図4に示したように 211At 回収率に対して正の相関が得られた。このことから 211At に対するエアロゾルの相対空間密度増大に伴い 211At-エアロゾルの衝突・結合が促進され、複合体生成量が増加したと考えた。



* Run1, Run3-1のエアロゾル密度はコールド試験結果を基に算出

図3 エアロゾル密度に対する ²¹¹At フィルタ回収率



* Run1, Run3-1のエアロゾル密度はコールド試験結果を基に算出

図4 単位 ²¹¹At 量あたりのエアロゾル密度に対する ²¹¹At フィルタ回収率

4. 引用(参照)文献等

1. E. Aneheim et al, “Automated astatination of biomolecules – a stepping stone towards multicenter clinical trials” (2015)
2. 湯原ら、「エアロゾルを用いた At-211 の分離回収試験」、日本原子力研究開発機構施設供用利用課題令和2度実施報告書 2020A-D02