

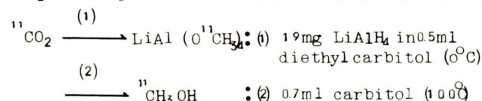
65  $^{11}\text{C}$ -標識有機化合物合成のための中間体 -  $^{11}\text{C}$ -メタノールの大量合成

放医研

○岩田 錬 井戸達雄 佐治英郎  
鈴木和年 玉手和彦 吉川喜久夫  
樫田義彦

炭素は生体構成元素の一つであるため、 $^{11}\text{C}$ で標識した有機化合物は核医学的診断への応用が期待される。加えて $^{11}\text{C}$ はポジトロン放出核種であるため、断層像を得ることが可能であり、その意味からも有用と思われる。しかし、 $^{11}\text{C}$ は半減期が20分と短いため、その中間体の大量合成、迅速な合成法の採用、このための合成の遠隔化及びオンライン化等が必要とされる。今回 $^{11}\text{C}$ 標識有機化合物合成の一環として、その中間体の一つである $^{11}\text{CH}_3\text{OH}$ の合成について検討した。

〔方法〕 $^{11}\text{C}$ はサイクロトロンからのプロトン粒子（入射エネルギー：9MeV）を高純度の $\text{N}_2$ ガスに照射し、これを $700^\circ\text{C}$ の $\alpha\text{O}$ 反応管を通すことにより $^{11}\text{C}$  $\text{O}_2$ として得た。 $^{11}\text{C}$  $\text{O}_2$ から $^{11}\text{C}$  $\text{H}_3\text{OH}$ 合成法は下記に示すとおりである。



$^{11}\text{C}$  $\text{O}_2$ と $\text{LiAlH}_4$ との反応法については、 $\text{CuO}$ 反応管からの直接導入法と、シリカゲルトラップ( $-78^\circ\text{C}$ )で一端吸着濃縮の後 $170^\circ\text{C}$ に加熱して $\text{N}_2$ 気流で追出し $\text{LiAlH}_4$ へ導く方法を試みた。この反応の後、直ちにカルビトールを加えて $100^\circ\text{C}$ に加熱し、生成した $^{11}\text{CH}_3\text{OH}$ を $\text{N}_2$ 気流でアセトン( $-78^\circ\text{C}$ )中に捕集した。得られた $^{11}\text{CH}_3\text{OH}$ は、ラジオガスクロマトグラフィの手法によりその確認と純度の検定を行った。

〔結果〕 $\text{CO}_2$ の $\text{LiAlH}_4$ への導入法に関しては、ターゲット容器からの全量取出し時間と収率の点からシリカゲルトラップ法が優れていることがわかった。この場合、照射終了から15分以内で $^{11}\text{CH}_3\text{OH}$ の合成とアセトン中への捕集を完了した。得られた生成物のラジオガスクロマトグラム上には、 $^{11}\text{CH}_3\text{OH}$ 以外の放射能ピークは認められなかった。 $^{11}\text{CH}_3\text{OH}$ の放射化学的収率は74%であった。

現在この方法により $300\text{mCi}$ 近くの $^{11}\text{CH}_3\text{OH}$ を得ているが、高圧ターゲット( $>10$ 気圧)を用いてターゲット容器からの $^{11}\text{C}$ の取出し率を改善し、 $15\text{MeV}$ 以上の入射エネルギーで照射を行うことにより、 $800\text{mCi}$ 以上の $^{11}\text{CH}_3\text{OH}$ の合成が期待される。また、電磁弁等を使用することによってこれら全合成操作を遠隔化し、 $^{11}\text{CH}_3\text{OH}$ から $^{11}\text{CH}_3\text{I}$ 及び $\text{H}_2^{11}\text{CO}$ をオンラインで合成するシステムを試作している。

66 高純度 $^{123}\text{I}$ の製造および副生核種 $^{135}\text{Xe}$ の臨床応用への可能性

放射線医学総合研究所

○鈴木和年 井戸達雄 岩田 錬  
吉川喜久夫 玉手和彦 佐治英郎  
力武知之 館野之男 樫田義彦

演者らは前回の核医学会において $^{127}\text{I}(\text{P}, 5\text{n})^{123}\text{Xe}$   $\xrightarrow[2.1\text{hr}]{\beta^+, \text{EC}}$   $^{123}\text{I}$ 反応を利用して $^{123}\text{I}$ 以外の放射線不純物を含まない高純度 $^{123}\text{I}$ の製造について報告したが、その後、①製造工程の改良による収率の増加、②Xeトラップの材質による生成 $^{123}\text{I}$ の化学形に対する影響、③副生する $^{135}\text{Xe}$  ( $T_{1/2}=17\text{hr}$ ,  $E_\gamma=188.243\text{keV}$ )の回収とその臨床応用への可能性などについて検討した。

〔方法〕照射条件は表の如くである。前回報告の製造工程のうち、ターゲット出口から液体窒素冷却トラップまでの間の配管経路を、 $^{135}\text{Xe}$ などのテフ

入射粒子：プロトン
エネルギー範囲：60~50MeV
電流値：1~2 $\mu\text{A}$
ターゲット：NaIペレット
厚さ：15 g/cm <sup>2</sup>
キャリアガス：He, 20 ml/min

表

ロンチューブへの拡散損失を妨ぐため、SUS 316チューブに変更した。更に照射終了後、ターゲットを蒸留水で溶解した後、生成 $^{123}\text{Xe}$ をキャリアガスと共に取出す方法を試みた。また生成した $^{123}\text{Xe}$ ,  $^{135}\text{Xe}$ を捕集するのに液体窒素で冷却した銅チューブ、ガラス、リン酸・次亜リン酸をコーティングしたガラスなどのトラップを使用した。照射終了後6~7時間経過した後、トラップを液体窒素から出して未崩壊の $^{123}\text{Xe}$ ,  $^{135}\text{Xe}$ をHeガスと共に追い出した後、蒸留水で生成 $^{123}\text{I}$ を洗い出す。この時の $^{123}\text{I}$ の化学形を高速度液体クロマトグラフを用いて調べた。また $^{135}\text{Xe}$ をゴム製のフアントムに入れ、 $\gamma$ -カメラで画質を検討した。

〔結果〕製造工程の改良により $^{123}\text{I}$ の収率は $58\text{mCi}/\mu\text{A}\cdot\text{hr}$ に増加した。これは前回報告の値の約1.4倍に相当する。これはターゲットのNaI結晶中で生成した $^{123}\text{Xe}$ のうち、キャリアガスのみでは出てこなかった $^{123}\text{Xe}$ が、NaI結晶の溶解により出やすくなったためである。ガラスをトラップとして使用した場合、使用回数と共に $^{123}\text{I}$ の生成割合が減少した。例えば新しいトラップの場合 $^{123}\text{I}$ は85%であったのに対し、古いトラップでは26%であった。このトラップの内面をリン酸、次亜リン酸でコーティングした場合、 $^{123}\text{I}$ の割合はそれぞれ54%、67%に増加した。銅トラップの場合には90%まで増加した。古いガラストラップを使用した場合でも0.02N-NaOHを溶出液として用い、0.1N-Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>8</sub>を少量加えることにより、 $^{123}\text{I}$ は95%に増加した。 $^{135}\text{Xe}$ は、この照射条件では励起関数の最適エネルギー領域を外れているにもかかわらず $34\text{mCi}/\mu\text{A}\cdot\text{hr}$ の収率で得られ、 $\gamma$ -カメラで十分臨床応用可能な画像が得られた。