

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2011-522276

(P2011-522276A)

(43) 公表日 平成23年7月28日 (2011.7.28)

(51) Int.Cl.

G 2 1 G 1/06 (2006.01)

F 1

G 2 1 G 1/06

テーマコード (参考)

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2011-512400 (P2011-512400)
(86) (22) 出願日 平成21年6月2日 (2009.6.2)
(85) 翻訳文提出日 平成23年2月1日 (2011.2.1)
(86) 国際出願番号 PCT/NL2009/050301
(87) 国際公開番号 W02009/148306
(87) 国際公開日 平成21年12月10日 (2009.12.10)
(31) 優先権主張番号 08157758.7
(32) 優先日 平成20年6月6日 (2008.6.6)
(33) 優先権主張国 欧州特許庁 (EP)

(71) 出願人 510321996
テクニシェ ユニベルシタイト デルフト
オランダ国 2 6 2 8 セーエン デルフト
ステフィンヴェク 1
(74) 代理人 110000442
特許業務法人 武和国際特許事務所
(72) 発明者 ウルテルベーク, フベルト テドール
オランダ国 2 2 6 6 ヘーテー レイド
スヘンダムーフォールブルグ ストンブウ
エイクセヴェク 5 7 ベー
(72) 発明者 ボデ, ペーター
オランダ国 3 2 8 4 エルカー ザイト
ーバイエルラントーコレンディク ズワルト
スルイシェ 3 7

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 無担体 ^{99}Mo の製造プロセス

(57) 【要約】

本発明は、 ^{98}Mo を中性子により活性化することで、その生成された ^{99}Mo が、 ^{235}U の核分裂により生成された ^{99}Mo に代わる選択肢として使用できる比放射能に達する、無担体 ^{99}Mo の製造プロセスに関する。これは、 ^{98}Mo 含有化合物による中性子捕獲時の ^{99}Mo 核の反跳を利用することで達成される。こうした反跳核はもはや ^{98}Mo 含有化合物と化学的に結合しなくなり、したがってその後選択的に分離することができる。好ましい ^{98}Mo 含有化合物は、モリブデン (0) ヘキサカルボニル [$(\text{Mo}(\text{CO})_6)$] およびモリブデン (VI) ジオキソジオキシナート [$\text{C}_4\text{H}_3(\text{O})-\text{NC}_5\text{H}_3)_2-\text{MoO}_2$] である。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

^{98}Mo 含有化学化合物に中性子を衝突させ、その結果得られた、前記化合物に含まれる ^{99}Mo 放射能が分離されることを特徴とする、高比放射能の無担体 ^{99}Mo の製造プロセス。

【請求項 2】

前記化合物に含まれる前記 ^{99}Mo 放射能は、a) 前記生成された ^{99}Mo しか溶解しない液体に移されるか、または b) 前記化合物の溶解度が高い第 1 の液体に移され、その液体は前記化合物が溶解しない第 2 の液体と混合され、「遊離した」 ^{99}Mo 核は前記第 2 の液体相に移され、除去されることを特徴とする、請求項 1 に記載のプロセス。

10

【請求項 3】

前記 ^{98}Mo 含有化学化合物はモリブデン(0)ヘキサカルボニル [$\text{Mo}(\text{CO})_6$] またはモリブデン(VI)ジオキソ-ジオキシナート [$\text{C}_4\text{H}_3(\text{O})-\text{NC}_5\text{H}_3$] $_2-\text{MoO}_2$ であることを特徴とする、請求項 1 または 2 に記載のプロセス。

【請求項 4】

前記第 1 の液体はジクロロメタンであることを特徴とする、請求項 1 ~ 3 に記載のプロセス。

【請求項 5】

前記第 2 の液体は、50 mM の酢酸アンモニウム緩衝液で調製された様々な pH (2 ~ 12) の水相であることを特徴とする、請求項 1 ~ 3 に記載のプロセス。

20

【請求項 6】

溶解しない ^{98}Mo 含有化合物が、1) 前記生成された ^{99}Mo しか溶解しない前記液体を含むか、または 2) 前記化合物が確実に溶解する前記液体、および前記 ^{99}Mo しか溶解しない前記液体を共に含む照射容器に移され、前記容器は、連続振盪されながら、外部中性子ビームで中性子に照射され、反跳した ^{99}Mo は一方の液体相からもう一方の液体相にオンラインで移行することを特徴とする、請求項 1 および 3 ~ 5 に記載のプロセス。

【請求項 7】

前記 ^{98}Mo 含有化学化合物は請求項 3 に定義されるような化合物であることを特徴とする、請求項 6 に記載のプロセス。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、無担体 ^{99}Mo の製造プロセスに関する。

【背景技術】

【0002】

現行方式では、高比放射能の ^{99}Mo は、核分裂性のアクチニドターゲット (^{233}U 、 ^{235}U 、 ^{239}Pu など)、主に ^{235}U を用いて核分裂させて生成されており、 ^{99}Mo は高収率 (約 6%) の核分裂生成物の 1 つである。しかしながら、この場合、 ^{99}Mo 以外にも、さらに一連の他の核分裂生成物も生成される。この製造ルートをとると、 ^{99}Mo を他の核分裂生成物から分離および精製しなければならず、製造に核燃料の処理が必要となる。さらに、従来技術のプロセスでは、一緒に生成される他の核分裂生成物の最終保存を行う必要もある。これらを総合すると、必要とされる製造認可を受けた ^{99}Mo の製造場所は非常に少ないと考えられる。また、その結果 ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ジェネレータ (医療ラジオイメージングで使用される) の世界生産は非常に少ない場所に頼っており、現在の場所の一箇所で何らかの問題が起こると、必要な供給を継続することが直ちに危うくなる。

40

【発明の概要】

【課題を解決するための手段】

【0003】

50

本発明は今回、上記の問題点を解消する高比放射能の ^{99}Mo の製造プロセスを提供することを目的とする。

【0004】

本発明を用いれば、 ^{98}Mo の中性子を活性化することで、無担体 ^{99}Mo 製造が可能になり、そのように生成された ^{99}Mo は、 ^{235}U の核分裂により生成される ^{99}Mo に（代わる）好ましい選択肢として使用できる比放射能が得られる。こうした高比放射能は、本発明に従って、 ^{98}Mo 含有核による中性子の捕獲時の ^{99}Mo 核の反跳を利用することで得られる。上述の反跳核はもはやターゲットマトリックスと化学的に結合しなくなり、したがって選択的に分離することができる。

【0005】

このため、本発明は、 ^{98}Mo 含有化学化合物に中性子を衝突させ、その結果得られた、前記化合物に含まれる ^{99}Mo 放射能を分離することを特徴とする高比放射能の無担体 ^{99}Mo の製造プロセスに関する。

【0006】

驚くべきことに、 ^{98}Mo 含有化学化合物に中性子を衝突させることにより、従来技術による ^{235}U の核分裂の問題点を回避しつつ、高比放射能の ^{99}Mo を得ることが可能であることが見出された。もちろん、 ^{99}Mo 以外に他の核分裂生成物は形成されない。

【0007】

本発明のプロセスには2つの選択肢がある。

【0008】

第1の選択肢では、前記化合物に含まれる前記 ^{99}Mo 放射能を、a)生成された ^{99}Mo しか溶解しない液体に移すか、またはb)前記化合物の溶解度が高い液体に移し、その液体を前記化合物が溶解しない第2の液体と混合し、「遊離した」 ^{99}Mo 核を前記第2の液体相に移す。

【0009】

したがって、 ^{98}Mo 含有化学化合物を中性子で衝突させた後、前記化合物に含まれる生成された ^{99}Mo 放射能を、生成された ^{99}Mo しか溶解しない液体、または ^{99}Mo 放射能を含む前記化合物に対して高い溶解度を持つ第1の液体に移す。

【0010】

前記第1の液体は第2の液体と混合し、化合物が溶解しない第2の液体相に抽出することにより「遊離した」 ^{99}Mo 核を移行させる。

【0011】

好ましい ^{98}Mo 含有化合物は、モリブデン(0)ヘキサカルボニル[$(\text{Mo}(\text{CO})_6)$]およびモリブデン(VI)ジオキソ-ジオキシナート[$\text{C}_4\text{H}_3(\text{O})-\text{NC}_5\text{H}_3$)] $_2-\text{MoO}_2$ である。

【0012】

こうした好ましいモリブデン化合物以外に、以下のモリブデン化合物を使用してもよい。

【0013】

シクロヘプタトリエンモリブデン(0)トリカルボニル[$(\text{C}_7\text{H}_8)\text{Mo}(\text{CO})_3$]、濃紫色の結晶性粉末(アクロスオーガニクス(Across Organics))；

モリブデン(0)ヘキサカルボニル[$(\text{Mo}(\text{CO})_6)$]、白色、結晶性粉末(アクロスオーガニクス)；

メチルシクロペンタジエニルモリブデン(I)トリカルボニル、二量体[$(\text{C}_5\text{H}_5)_2-(\text{C}_5\text{H}_5)]_2-\text{Mo}_2(\text{CO})_6$ 濃紫色、結晶性粉末(アクロスオーガニクス)；

プロピルシクロペンタジエニルモリブデン(I)トリカルボニル、二量体[$(\text{C}_5\text{H}_5\text{CH}_2\text{CH}_2)_2-(\text{C}_5\text{H}_5)]_2-\text{Mo}_2(\text{CO})_6$ 濃褐色、結晶性粉末(アクロスオーガニクス)；

シクロペンタジエニルモリブデン(II)トリカルボニル 二量体[$(\text{C}_5\text{H}_5)_2-\text{Mo}$

10

20

30

40

50

(CO)₃]₂、濃紫色の結晶性粉末(アクロスオーガニクス)；
 ペンタメチルシクロペンタジエニル-モリブデン(V)ジカルボニル 二量体[(CH_3)₅-(C_5H_5)- $\text{Mo}(\text{CO})_2$]₂ オリーブグリーンの結晶性粉末；
 モリブデン(VI)ジオキソ-ビス(アセチルアセトナト)[($\text{CH}_3\text{COCH}=\text{C}(\text{O}-)\text{CH}_3$)]₂- MoO_2 、白色、結晶性(c r i s t a l l i n e)粉末(シグマアルドリッチ(S i g m a A l d r i c h)、USA)。

モリブデン(VI)ジオキソ-ジオキシナート[($\text{C}_4\text{H}_3(\text{O})-\text{NC}_5\text{H}_3$)]₂- MoO_2 、橙黄色の結晶性(c r i s t a l l i n e)粉末、フォーヘル(V o g e l)ら[x x x]に記載されているような方法に従って合成。

モリブデン(IV)ジスルフィド[MoS_2]、濃灰色の粉末、325メッシュ(M e s h)(アクロスオーガニクス)；

二珪化モリブデン[MoSi_2]、濃灰色の粉末、325メッシュ(アルファエイサー(A l f a A e s a r)G m b H、カルルスルーエ(K a r l s r u h e)、ドイツ)；
 モリブデンナノ粒子(約100nm)、濃灰色の粉末、(ジョンソンアンドマッセイ(J o h n s o n & M a t t h e y)、USA)

カリウムモリブデン(VI)-ヘキサシアノフェラート[$\text{KM o}[\text{Fe}^{\text{I I I}}(\text{CN})_6]$ 、濃褐色、結晶性粉末、セベスタ(S e b e s t a)ら[y y]が記載した方法に従って合成。

【0014】

好ましい第1の液体は有機溶媒ジ-クロロメタン(CH_2Cl_2)であり、好ましい第2の液体は50mMの酢酸アンモニウム緩衝液で調製された様々なpH(2~12)の水相である。

【0015】

他の好適な第1の液体としてクロロホルム(CH_3Cl)、ベンゼン(C_6H_6)、トルエン($\text{CH}_3-\text{C}_6\text{H}_5$)がある。

【0016】

他の好適な第2の液体としては、酸性溶液HCl(0.05M)、アルカリ溶液NaOH(0.05M)、キレート液Na₂EDTA(0.05M)、クエン酸Na₃(0.05M)、HCl(0.05M)に溶かした酸化液H₂O₂(0.02M)、還元液(NaHSO₃(0.05M)、食塩水溶液NaCl(0.9%w/w)、中性緩衝液溶液NH₄Ac(0.05M；pH7.3)の水溶液がある。

【0017】

請求項1の第2の任意の変形例では、⁹⁸Mo含有化合物を、1)生成された⁹⁹Moしか溶解しない液体、または2)化合物が溶解する液体、および⁹⁹Moは溶解するが、化合物は溶解しない液体(第1の液体と混合できない)を含む照射容器に移し、連続振盪しながら容器に外部中性子ビームで中性子照射し、反跳した⁹⁹Moを一方の液体相からもう一方の液体相にオンラインで移行させる。

【0018】

また、この変形例を使用することで、従来技術による核分裂プロセスの問題点が解消される。

【0019】

現行の技法ではMo化合物および/または抽出プロトコルが好適でないことにより、モリブデンの比放射能があまり増大しなかったため、本プロセスは新規なプロセスであり、現行の技法と比較して自明ではない点が特筆される。主として核燃料(²³⁵U)の核分裂による従来技術の手法は、無担体⁹⁹Moの大規模製造において現在まで世界中で使用されてきたが、本明細書で前述したような問題点があった。

【0020】

反跳により⁹⁹Moを生成すると、本来義務付けられている、前述のような問題点を伴う核燃料の処理を回避しつつ、必要とされる高比放射能の⁹⁹Moが得られることは特筆される。

10

20

30

40

50

【0021】

さらに、現在、核分裂により生成される ^{99}Mo による以外に、同等の比放射能が得られる製造の選択肢がないことも留意されたい。核分裂により生成された ^{99}Mo の場合、製造施設は核燃料を処理しなければならず、前述のような必要とされる認可を受けている施設は、世界でも数が少ない。本明細書で提案する、濃縮された ^{98}Mo ターゲットの中性子照射からの反跳 ^{99}Mo による製造を用いれば、世界でより多くの施設が高放射能 ^{99}Mo の製造を開始できる。

【0022】

反跳（ジラード・チャルマーズ（S z i l a r d - C h a l m e r s ））反応の原理は知られているものの、十分な密度の中性子ビームを用いることなど、適当な化学化合物および実験条件を使用することで、本発明により高比放射能の ^{99}Mo を得られることは驚くべきことである。したがって、本プロセスは現行の ^{99}Mo 製造手法と比較して新規性ばかりでなく進歩性もある。

10

【0023】

さらに、放射化学施設に接続された中性子源に必要な挿入管を別にすれば、本プロセスに問題点は存在しない。

【0024】

また、請求項2および6に記載のプロセスの選択肢によれば、請求項2では、中性子による ^{98}Mo 化学化合物の衝突を反応器内で行うのに対し、請求項6を開示する選択肢では、中性子ビームにより反応器の外部で衝突を行うことが注目される。

20

【0025】

本プロセスは、 ^{99}Mo の生成に限定されるものではなく、現在のところ主に ^{235}U の核分裂プロセスにより生成される他の生成物に使用され得る点が特筆される。

【0026】

本発明のプロセスはまた、 $^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Y}$ ； $^{103}\text{Ru} \rightarrow ^{103\text{m}}\text{Ru}$ ； $^{132}\text{Te} \rightarrow ^{132}\text{I}$ ； $^{137}\text{Cs} \rightarrow ^{137\text{m}}\text{Ba}$ および $^{140}\text{Ba} \rightarrow ^{140}\text{La}$ の生成にも好適である。

【0027】

以下の実施例により本発明をさらに説明する。

【実施例】

30

【0028】

実施例のアプローチ1

ジラード・チャルマーズ反応；

実施例1。モリブデン複合体の照射

20～1500mgの $\text{Mo}(0)$ ヘキサカルボニルおよび Mo(VI) ジオキソ・ジオキシナートをポリエチレンカプセルに密封し、デルフト工科大学（D e l f t U n i v e r s i t y o f T e c h n o l o g y ）のホヘルオンデルウェイスリアクタ（H o g e r O n d e r w i j s R e a c t o r ）の気送設備において中性子フルエンス率を $5.0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ として好適な時間（15分～5時間）照射した。また、照射の一部は、気送設備と比較してフルエンス率はかなり高い（ $2.4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）が、異なる中性子フルエンス率プロファイル（高速中性子フルエンス率に対する熱中性子フルエンス率の比）を持つ炉心照射設備で行った。短時間の照射（15～30分）の場合、照射終了から1時間後に ^{99}Mo の放射化学的分離を行ったのに対し、より長時間の照射の場合、半減期が短い ^{101}Mo および ^{101}Tc を崩壊させるため照射終了から2時間後に分離を行った。

40

【0029】

実施例2。有機モリブデンターゲットの液-液抽出

照射後、標的を50mlの精製された有機液体（ジクロロメタン（ CH_2Cl_2 ）、クロロホルム（ CH_3Cl ）、ベンゼン（ C_6H_6 ）、トルエン（ $\text{CH}_3-\text{C}_6\text{H}_5$ ））に溶解させた。原液から2.0mlのアリコートをし、50mMの酢酸アンモニウム緩衝液

50

で調製した様々な pH (2 ~ 12) の同量の水相と接触させた。緩衝液溶液の pH は、希酢酸またはアンモニア溶液を加えて維持した。さらに、以下の水溶液も使用した：酸性溶液 HCl (0.05 M)、アルカリ溶液 NaOH (0.05 M)、キレート液 Na₂EDTA (0.05 M)、クエン酸 Na₃ (0.05 M)、HCl (0.05 M) に溶かした酸化液 H₂O₂ (0.02 M)、還元液 (NaHSO₃ (0.05 M)、食塩水溶液 NaCl (0.9 % w / w)、中性緩衝液溶液 NH₄Ac (0.05 M ; pH 7.3)。また、ミリQ水を水相とした実験も行った。有機溶液から酢酸アンモニウムへのモリブデンの溶媒抽出に関する速度論的研究。さらにミリQ水を水相とした実験も行った。ジクロロメタンから酢酸アンモニウム緩衝液溶液への ⁹⁹Mo の溶媒抽出に関する速度論的研究を行い、その後の研究のため平衡時間を最適化した。この実験では、5分から1時間の範囲の様々な時間間隔でサンプルをローラーベッドから除去した。⁹⁹Mo の抽出収率は振盪時間の15分後に一定値になるのに対し、モリブデン全体の抽出収率は30分まで上昇することが観察された。このため、15分の振盪時間で最も高い濃縮係数が得られた。これを考慮して、15分の振盪時間でその後の抽出を行った(トマール(Tomar)ら、2008年)。溶液を15分間振盪後、サンプルを3000rpmで5分間遠心したところ(ジュアン(Juan))、きれいに分離された相が得られた。続いて、水層から1.0mLのアリコートを取り出し、γカウンティングにより⁹⁹Mo放射能を測定し、さらに全モリブデン濃度を判定した。ジクロロメタン原液の場合、最初に0.2mLのアリコート(n = 3)を王水(3 × 1.0mLの濃HCl、および1 × 1.0mLの濃HNO₃)で処理し、γカウンティング後、これを10mLまで希釈し全Mo含有量を判定した(ICP - OES)。

【0030】

実施例3。解析

有機相、水相およびジクロロメタン - Mo 原液の ⁹⁹Mo 放射能を以下の通り測定した。

【0031】

2048多重波高分析器(Wallac)に接続した遮蔽井戸型 NaI (T1) カウンターを用いてγ線分光測定を行った。^{99m}Tc による140keVのピークを⁹⁹Mo の放射能の指標として使用した。^{99m}Tc と⁹⁹Mo との間で平衡が成立するように放射化学的分離から24時間後にサンプルの計数を行った。140keVのピークのネット面積は、コンプトンバックグラウンドの線形減算により得た。計数時間は、140keVのピークで少なくとも10000カウントが得られるように調整した。

【0032】

誘導結合高周波プラズマ発光分光分析装置(Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrometer) (パーキンエルマー(Perkin Elmer) ICP - OES 4300DV) を用いて、水性サンプルおよび王水分解したジクロロメタン原液の全モリブデン濃度を測定した。モリブデン濃度の測定には202.031nm、203.845nmおよび204.597nmの輝線を使用した。装置はモリブデンについて、ICP - OES 標準溶液(メルク(Merck)、ウルトラピュア(Ultrapure) 1.000g Mo . L⁻¹) を用い、これを0.05 ~ 2.5μg . mL⁻¹ Mo の範囲の標準溶液が得られるように好適に希釈して校正した。

【0033】

γ活性と全Mo濃度との比から水相および原液の⁹⁹Moの比放射能(cpm / mg 全Mo で表す) を測定した。濃縮係数は、分離した水相の⁹⁹Moの比放射能(specific activity) の、有機相の⁹⁹Moの比放射能(specific activity) に対する比として計算した。

【0034】

実施例のアプローチ2

実施例4

10

20

30

40

50

この実施例のアプローチは、第 1 のアプローチと同じ化学原理に基づく。ただし、ここでは中性子の衝突と同時に液 - 液抽出を行う。照射 / 液 - 液抽出の終了後、上記に記載されているのと同じ要領で全溶液を処理する。

【 0 0 3 5 】

ジクロロメタンまたはクロロホルムを照射すると、照射中に強力な高エネルギー即発 γ 線に加えて非常に高く、非実用的な ^{38}Cl 放射能が生成されるため、このアプローチでは、Mo 化合物の溶解に好ましい相はベンゼンまたはトルエンである。

【 0 0 3 6 】

中性子ビーム照射の利点は、反応器「内」の照射と比較して、中性子ビーム照射に伴うかなり少ない γ 線線量を化合物に当てることにある。 γ 線（反応器内の核分裂過程に起因する）は、反跳過程に対して逆効果（「アニーリング」という）をある程度持つものである。さらに、もう 1 つの利点は、反応器の照射の場合、安全性の面から望ましくない化学分解およびガス状化合物の形成の可能性があるため、化合物が危険とみなされる場合があることである。こうした影響は、ビーム照射においてはほとんど無視できる程度であり、リスクの程度がかなり小さくなる。

10

【 0 0 3 7 】

中性子ビーム照射の問題は中性子強度が比較的低く、したがって ^{99}Mo 収率が低いことである。

【 0 0 3 8 】

実施例 1、2 および 3 は請求項 2 に記載の選択肢に関し、実施例 4 は、請求項 6 に記載の選択肢に関する。

20

【 0 0 3 9 】

本発明は上記の開示、実施例または特許請求項の範囲に限定されるものではないことに留意されたい。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/NL2009/050301

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. 62161/06

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)
6216

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

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

EPO-Internal, WPI Data, INSPEC

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2008/047946 A (JAPAN ATOMIC ENERGY AGENCY [JP]; KAKEN INC [JP]; ISHITSUKA ETSUO [JP];) 24 April 2008 (2008-04-24) abstract	1
X	WO 98/59347 A (EUROP ORG FOR NUCLEAR RESEARCH [CH]; RUBBIA CARLO [CH]) 30 December 1998 (1998-12-30)	1
Y	page 64, line 6 - page 65, line 5	2
Y	US 2003/219366 A1 (HORWITZ E. PHILIP [US] ET AL) 27 November 2003 (2003-11-27) claim 1	2
A	WO 2006/039787 A (UNIV MCMASTER [CA]; TOMLINSON RICHARD [CA]; COLLIER BRUCE [CA]; GUEST) 20 April 2006 (2006-04-20) page 4, line 9 - line 28	3
-/--		

☒ 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 document 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.

Z document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

29 July 2009

Date of mailing of the international search report

07/08/2009

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040.
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Capostagno, Eros

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/NL2009/050301

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2006/023829 A1 (SCHENTER ROBERT E [US] ET AL) 2 February 2006 (2006-02-02) paragraph [0056] -----	2
A	FUCUGAUCHI ET AL.: "Chemical effects of (n, ?) nuclear reaction on (Mo6C18)C14" JOURNAL OF RADIOANALYTICAL AND NUCLEAR CHEMISTRY, vol. 178, no. 2, March 1994 (1994-03), pages 437-442, XP002501770 the whole document -----	2,6
P,X	TOMAR ET AL.: "Increasing the specific activity of medically useful radionuclides through Szilard Chalmers reaction" TRANSACTIONS OF THE AMERICAN NUCLEAR SOCIETY - CONF. 8-12 JUNE 2008, vol. 98, no. 1, 2008, pages 880-881, XP008108821 USA page 881, paragraph 1 -----	1-7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/NL2009/050301

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2008047946 A	24-04-2008	CA 2666570 A1 JP 2008102078 A	24-04-2008 01-05-2008
WO 9859347 A	30-12-1998	AT 326757 T AU 3435297 A BG 63789 B1 BG 103954 A CA 2294063 A1 CZ 9904520 A3 DE 69735898 T2 EP 0990238 A1 ES 2264804 T3 HU 0003714 A2 JP 2002504231 T NO 996312 A PL 337441 A1 PT 990238 E SK 166999 A3	15-06-2006 04-01-1999 29-12-2002 31-01-2001 30-12-1998 14-06-2000 19-04-2007 05-04-2000 16-01-2007 28-02-2001 05-02-2002 08-02-2000 14-08-2000 31-10-2006 11-07-2000
US 2003219366 A1	27-11-2003	NONE	
WO 2006039787 A	20-04-2006	CA 2583568 A1 US 2008187489 A1	20-04-2006 07-08-2008
US 2006023829 A1	02-02-2006	WO 2006028620 A2	16-03-2006

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(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, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW