



JAEA-Review

2021-016

DOI:10.11484/jaea-review-2021-016

## 核医学検査薬（テクネチウム製剤）の国産化に係る 基礎基盤技術の開発

－ 第 1 ～ 2 期報告書（2014 ～ 2020 年度）－

Development of Fundamental Technologies for Domestic Production of  
Medical Radioisotope (Technetium-99m)

- The First and Second Phase Report (FY2014-2020) -

つくば特区プロジェクト 6 会合メンバー

Project 6 Meeting Members for Tsukuba International Strategic Zone

November 2021

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課  
〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.  
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).  
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.  
For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.  
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

## 核医学検査薬（テクネチウム製剤）の国産化に係る基礎基盤技術の開発 －第1～2期報告書（2014～2020年度）－

つくば特区プロジェクト6 会合メンバー\*

（2021年7月21日受理）

2011年12月に内閣総理大臣によって「総合特別区域」につくば市と茨城県内の一部の地域が指定された。つくば国際戦略総合特区では、つくばの科学技術の集積を活用したライフイノベーションやグリーンイノベーションの推進による産業化を推進することを目的とし、9つの先進的な研究開発プロジェクトが進められている。その中で、核医学検査薬（テクネチウム製剤）の国産化は、2013年10月に新たなプロジェクトと認定され、日本原子力研究開発機構をプロジェクトリーダーとして、関係機関と連携して研究開発を実施している。

日本は、米国、欧州に次いでモリブデン-99 ( $^{99}\text{Mo}$ ) の世界第3位の消費国であるにもかかわらず、そのすべてを輸入している。海外の製造用原子炉のトラブルによる停止や、火山噴火や事故による輸送（空輸、陸送）の停止により、供給が不十分になることから、早期の国産化が強く求められている。本プロジェクトは、診断薬として用いられている放射性同位元素のテクネチウム-99m ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ) 原料である  $^{99}\text{Mo}$  の国産化を目指した技術開発である。

本報告書は、第1～2期計画（2014～2020年度）に行った活動をまとめたものである。

---

大洗研究所：〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002番地

※：日本原子力研究開発機構、株式会社千代田テクノル、株式会社アート科学、太陽鋳工株式会社、筑波大学、茨城県、つくば市、つくばグローバル・イノベーション推進機構  
プロジェクトリーダー：日本原子力研究開発機構 大洗研究所

**Development of Fundamental Technologies  
for Domestic Production of Medical Radioisotope (Technetium-99m)  
- The First and Second Phase Report (FY2014-2020) -**

Project 6 Meeting Members for Tsukuba International Strategic Zone\*

Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received July 21, 2021)

In December 2011, the Prime Minister designated Tsukuba and some areas in Ibaraki Prefecture as “Comprehensive Special Zones”. In the Tsukuba International Strategic Zone, nine advanced research and development (R&D) projects are underway with the goal of promoting industrialization of life innovation and green innovation utilizing the science and technology in Tsukuba. In these projects, the domestic production of medical radioisotope (Technetium-99m,  $^{99m}\text{Tc}$ ) was certified as a new project in October 2013, and R&D have been performed in collaboration with related organizations with Japan Atomic Energy Agency (JAEA) as the project leader.

Japan is the third largest consumer of molybdenum-99 ( $^{99}\text{Mo}$ ) after the United States and Europe, and all  $^{99}\text{Mo}$  are imported. Supply will be insufficient if overseas reactors are shut down due to trouble or if transportation (air and land transportations) is stopped due to volcanic eruptions and some accidents. Thus, early domestic production of  $^{99}\text{Mo}$  is strongly required. This project is a technology development aimed at domestic production of  $^{99}\text{Mo}$ , which is a raw material of  $^{99m}\text{Tc}$  used as a diagnostic agent.

This report summarizes the activities carried out in the first and second phase of the domestic production of medical radioisotope ( $^{99m}\text{Tc}$ ) (here referred to as the “Project 6”) in Tsukuba International Strategic Zone (FY2014-2020).

Keywords : Tsukuba International Strategic Zone, Domestic Production, Molybdenum-99 ( $^{99}\text{Mo}$ ),  
Technetium-99m ( $^{99m}\text{Tc}$ )

---

\* : Japan Atomic Energy Agency, Chiyoda Technol Corporation, ART KAGAKU Co., Ltd,  
Taiyo Koko Co., Ltd., University of Tsukuba, Ibaraki Prefectural Government, City of Tsukuba,  
Tsukuba Global Innovation Promotion Agency  
Project Leader : Oarai Research and Development Institute, Japan Atomic Energy Agency

## 目 次

1. はじめに	1
2. $^{99}\text{Mo}$ 製造の現状	3
2.1 $^{99}\text{Mo}$ の製造方法	3
2.2 $^{99}\text{Mo}$ の供給と製造施設	3
2.3 $^{99}\text{Mo}$ 製造技術開発	5
3. 核医学検査薬の国産化（プロジェクト6）の開発目標	7
4. JMTR ホットラボの設備整備	11
4.1 設備の考え方及び基本計画	11
4.2 JMTR ホットラボ施設内クリーンブース設備	12
5. 各開発課題の目標と成果	16
5.1 開発目標	16
5.2 照射ターゲットの製造技術開発	16
5.3 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離・抽出・濃縮技術開発	23
5.3.1 マスターミルク（溶媒抽出法）	23
5.3.2 ジェネレータ用 Mo 吸着剤	34
5.4 Mo リサイクル技術開発	47
5.5 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 製剤化に向けた技術開発	57
5.6 JMTR 代替炉における検討	62
6. 今後の技術開発課題	65
6.1 $^{99}\text{Mo}$ 製造に係る照射技術開発	66
6.2 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離・抽出・濃縮技術開発	67
6.3 Mo リサイクル技術開発	68
6.4 品質評価と非臨床試験に向けた検討	68
7. まとめ	70
謝辞	71
参考文献	71
付録1 つくば特区「核医学検査薬の国産化」プロジェクト6 会合について	77
付録2 つくば国際戦略総合特区・プロジェクト成果発表会（平成29年11月7日）	83
付録3 JMTR 廃止措置決定に伴う代替炉の検討（第8回プロジェクト6 会合）	89
付録4 特区延長に係るアンケート（令和2年6月18日）	97
付録5 特区延長に係る新計画（案）	101

## Contents

1. Introduction	1
2. Status of $^{99}\text{Mo}$ Production	3
2.1 $^{99}\text{Mo}$ Production Method	3
2.2 Supply and Production Facilities of $^{99}\text{Mo}$	3
2.3 $^{99}\text{Mo}$ Production Technology Development	5
3. Development Goals on Domestic Production of Medical Radioisotope (Project 6)	7
4. Preparation of Equipments in JMTR Hot Laboratory	11
4.1 Equipment Concept and Basic Plan	11
4.2 Clean Booth Equipment in JMTR Hot Laboratory	12
5. Goals and Results of Each Development Task	16
5.1 Development Goal	16
5.2 Fabrication Development of Irradiation Targets	16
5.3 Development of Separation/Extraction/Concentration of $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$	23
5.3.1 Master Milker (Solvent Extraction)	23
5.3.2 Mo Adsorbents for Generator	34
5.4 Mo Recycling Development	47
5.5 Development for $^{99\text{m}}\text{Tc}$ Formulation	57
5.6 Consideration in Alternative Reactors of JMTR	62
6. Future Technology Development Issues	65
6.1 Irradiation Technology Development for $^{99}\text{Mo}$ Production	66
6.2 Development of Separation/Extraction/Concentration of $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$	67
6.3 Mo Recycling Development	68
6.4 Examination for Quality Assessments and Nonclinical Study	68
7. Summary	70
Acknowledgements	71
References	71
Appendix 1 Project 6 Meeting for Domestic Production of Medical Radioisotope (Technetium-99m)	77
Appendix 2 Project Presentation on Tsukuba International Strategic Zone (November 7, 2017)	83
Appendix 3 Consideration of Alternative Reactors for Decision of JMTR Decommissioning (8th Project 6 Meeting)	89
Appendix 4 Survey Result for Extension on Project 6 of Tsukuba International Strategic Zone (June 18, 2020)	97
Appendix 5 New Plan for Tsukuba International Strategic Zone (Draft)	101

**「核医学検査薬（テクネチウム製剤）の国産化に係る基礎基盤技術の開発」執筆者一覧**

**第1章**

神永雅紀(原子力機構)、柴田徳思(千代田テクノル)

**第2章**

土谷邦彦(原子力機構)、竹内宣博(千代田テクノル)

**第3章**

土谷邦彦(原子力機構)、竹内宣博(千代田テクノル)

**第4章**

西方香緒里、土谷邦彦(原子力機構)

**第5章**

藤田善貴、西方香緒里、井手広史(原子力機構)、太田朗生、棚瀬正和(千代田テクノル)、  
新関智文(アート科学)、吉永英雄(太陽鋳工)、福光延吉(筑波大学)

**第6章**

藤田善貴、西方香緒里、井手広史(原子力機構)、太田朗生、棚瀬正和(千代田テクノル)、  
新関智文(アート科学)、吉永英雄(太陽鋳工)、福光延吉(筑波大学)

**第7章**

神永雅紀(原子力機構)、柴田徳思(千代田テクノル)

**Author List**

**Chapter 1**

M. Kaminaga (JAEA), T. Shibata (Chiyoda Technol Co.)

**Chapter 2**

K. Tsuchiya (JAEA), N. Takeuchi (Chiyoda Technol Co.)

**Chapter 3**

K. Tsuchiya (JAEA), N. Takeuchi (Chiyoda Technol Co.)

**Chapter 4**

K. Nishikata, K. Tsuchiya (JAEA)

**Chapter 5**

Y. Fujita, K. Nishikata, H. Ide (JAEA), A. Ota, M. Tanase (Chiyoda Technol Co.),  
T. Niizeki (Art Kagaku Co.), H. Yoshinaga (Taiyo Koko Co.), N. Fukumitsu (Univ. Tsukuba)

**Chapter 6**

Y. Fujita, K. Nishikata, H. Ide (JAEA), A. Ota, M. Tanase (Chiyoda Technol Co.),  
T. Niizeki (Art Kagaku Co.), H. Yoshinaga (Taiyo Koko Co.), N. Fukumitsu (Univ. Tsukuba)

**Chapter 7**

M. Kaminaga (JAEA), T. Shibata (Chiyoda Technol Co.)

This is a blank page.

## 1. はじめに

研究用原子炉は、発電を行う原子炉ではなく、原子炉用燃料・材料や放射線に係る研究・開発、研究者・技術者の教育等を推進する上で不可欠な基盤的研究施設として大きな役割を果たしている。このため、研究用原子炉の利用分野は広く、エネルギー利用に限らず、産業利用、学術研究等の分野で利用促進されてきた<sup>(1-1,1-2)</sup>。特に、研究用原子炉等を用いた放射性同位元素(以降、RI とする)は、工業製品の生産・品質管理(非破壊検査用 RI 製品)から医療分野における診断・治療(医療用 RI 製品)など広く用いられており、生活レベルの維持向上や社会経済の基盤となっている。現在、RI 製品の大部分は海外からの輸入に依存しているが、供給には様々な不確実性があり「国内での供給、それを補う海外からの輸入」という体制が望まれている。国内での RI 製品の製造は、長期にわたって品質の高いものを定常的に供給することが重要であるため研究用原子炉を用いた安定した製造システムを保持することが RI 製品の基本的要件である。

現在、医療診断用 RI の市場規模は 2008 年度では約 485 億円<sup>(1-3)</sup>で、最も多く使用されているのが  $^{99m}\text{Tc}$  である。 $^{99m}\text{Tc}$  は癌、脳卒中、心筋梗塞といった成人 3 大疾患の診断に使用されている。さらに、近年社会問題化している認知症の診断や出血や血管の塞栓といった緊急検査にも不可欠である。 $^{99m}\text{Tc}$  の原料となるのが  $^{99}\text{Mo}$  であるが、我が国は、この  $^{99}\text{Mo}$  を 100%輸入に頼っている。このため、これを国産化し、安定的に供給できるシステムを構築<sup>(1-4)</sup>することが要望されている。世界的な動きとして、2012 年 3 月に開催された「第 2 回核セキュリティ・サミット(韓国・ソウル)」<sup>(1-5)</sup>では、①ベルギー、フランス、オランダ及び米国(4 極)において 2015 年までに欧州における  $^{99}\text{Mo}$  製造メーカーの高濃縮ウラン(HEU)から低濃縮ウラン(LEU)の転換が正式決定、②GTRI(地球的規模脅威削減イニシアチブ)は HEU ターゲットから LEU ターゲットの転換をサポートすることが正式決定され、HEU の核分裂を利用して製造される核分裂法(以降、(n, f)法という)による  $^{99}\text{Mo}$  の民生利用は削減または廃止されていくことになる。一方で、LEU 化に伴い、 $^{99}\text{Mo}$  の分離・精製には核燃料サイクルの再処理工程と類似の技術が必要となり、核不拡散、核分裂性廃棄物の処理・処分等の問題(核セキュリティ)も重要な課題の一つとなる。実際に、 $^{99}\text{Mo}$  製造のための多様化を目指しているものの、直ちに対応できる世界の研究用原子炉は限定されているのが現状であった<sup>(1-6,1-7)</sup>。

日本では、原子力委員会の報告書「原子力政策大綱に示している放射線利用に関する取組の基本的な考え方に関する評価」<sup>(1-8)</sup>において、「関係行政機関が、産業界、医療関係者、研究開発機関等の関係機関と緊密に連携・協力しつつ、国としての対応について早急に検討を進めていくことが必要である。」との提言がなされた。その提言を受け、官民が一体となった「モリブデン-99/テクネチウム-99m の安定供給のための官民検討会」により、『我が国のテクネチウム製剤の安定供給』に向けてのアクションプラン<sup>(1-4)</sup>として、「国産事業者は、中性子放射化法による Mo-99 製造がビジネスとして成立するよう事業化に関する具体的な検討を進め、5 年程度で国産事業を開始すること」が明記された。

このような背景の中、JMTR を用いた放射化法による  $^{99}\text{Mo}$  国産化開発が 2013 年 10 月に「つくば国際戦略総合特区」の新規プロジェクトに採択され、「核医学検査薬(テクネチウム製剤)の国産化」として研究開発が開始された<sup>(1-9)</sup>。つくば国際戦略総合特区における核医学検査薬(テ

クネチウム製剤)の国産化の概要説明した紹介を図1に示す。「つくば国際戦略総合特区」の目的は、つくばに集積する我が国最大の科学技術を活用することで、イノベーションを絶え間なく創出する新しい産学官の連携拠点を形成し、そこから生まれる新事業・新産業が経済の成長を牽引することにより、我が国の直面する課題解決に向け貢献することであり、「核医学検査薬(テクネチウム製剤)の国産化」は「プロジェクト6」と呼ばれ、(n, f)法による<sup>99</sup>Moよりも低コストで製造を可能とする国産化の基礎基盤技術の確立することを目的としている。また、高価な濃縮<sup>98</sup>Moを有効利用し、より製造量を向上させることも検討することとしている。プロジェクト6の実施にあたっては、日本原子力研究開発機構(以降、原子力機構とする)をプロジェクトリーダーとして、関係機関(原子力機構、株式会社千代田テクノ、株式会社アート科学、太陽鋳工株式会社、筑波大学、茨城県、つくば市、つくばグローバル・イノベーション推進機構)と連携して研究開発を推進することとなった(付録1)。

本報告書は、RI製品で大きな市場を持つ医療診断用<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc製品の国内での供給を目指し、茨城県が推奨するつくば国際戦略総合特区の「核医学検査薬の国産化(プロジェクト6)」で実施した研究用原子炉を用いた高品質のRI製品の基礎基盤技術の確立のための研究開発の現状についてまとめたものである。

### つくば国際戦略総合特区

研究学園都市からイノベーションの拠点へ  
つくば市と茨城県内の一部の地域は、2011年12月に内閣総理大臣によって「総合特別区域」に指定されました。  
現在、つくば国際戦略総合特区では、先進的な研究開発プロジェクトの推進をはじめ、世界を視野に入れた新しい産業の創出を目指す取り組みが進められています。  
2017年3月には、期間の延長に係る計画の変更が国に認定されました。  
(国の「総合特別区域基本方針」の最終年度に合わせ、期間は2017年度から4年間)

**総合特区とは**  
国による成長戦略のひとつで、特にグローバル社会における企業間の競争が激化する「競争型」なものです。国際戦略総合特区としてつくば地域を含め現在7地域が指定されています。特区内で認定を受けた研究開発プロジェクトや関連事業には、国による財政支援や、その推進・実現の障害となる規制緩和の緩和などが、さまざまな政策・施策が活用できます。このため、輸送コストも有利な条件でより早期に実用化・商品化を実現しやすいというメリットがあります。

つくばを築き上げる新しい産学官連携システムの構築  
9つのプロジェクトの推進

### つくば国際戦略総合特区のエリア

- つくば市の区域(全域)
  - 龍ヶ崎市のうち、つくばの里工業団地内の区域
  - 那珂郡東海村のうち、村立東海病院、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、いばらき中性子医療研究センターの区域
  - 稲敷郡阿見町のうち、県立医療大学、県立医療大学附属病院の区域
  - 東茨城郡大洗町の一部区域
  - 東茨城郡茨城町の一部区域
- ※区域見直しについてはプロジェクトの進捗等を踏まえ弾力的に対応していきます。



### 核医学検査薬(テクネチウム製剤)の国産化

**精密検査に欠かせない薬剤 安定供給を目指す**  
核医学検査には骨シンチグラフィやSPECTなどがあり、患部に集まりやすい性質をもつ薬品と、放射能同位元素(RI)を結合させた医薬品を利用し、発生するガンマ線を検出することで病気の診断を行います。核医学検査では、テクネチウム製剤が多く使用され、がんの診断や脳・心臓の血流の検査などに用いられています。このテクネチウム製剤の原料がモリブデン-99(<sup>99</sup>Mo)です。日本は米国、欧州に次いで<sup>99</sup>Moの世界第3位の消費国であるにもかかわらず、その全てを輸入に頼っている状態です。そのため、海外の製造拠点をトラブルによる停止や、火山噴火等による輸送(空輸、陸送)の不具合が生じると供給不足が懸念されます。そこで国内の安定供給の観点から、確実の生産性を確保する必要があります。当報告書では、材料供給(日本原子力研究開発機構大洗試験センター)を利用して、実用化技術を開発し、医療産業の国際競争力強化を目指します。

**開発から供給までのイメージ**  
原料の製造から供給までをスムーズに行う体制を整えます。

99Mo → 99mTc

クリーンルームにある貯蔵タンクの内部(左側)・製造・品質試験装置

開発から供給までのイメージ

原料の製造から供給までをスムーズに行う体制を整えます。

原料の調達  
原料の製造  
原料の検出  
原料の検出  
原料の検出  
原料の検出

**99Moの製造方法**  
現在<sup>99</sup>Moの製造方法はウランを核分裂させる「核分裂法」が多く用いられていますが、核分裂性物質の使用・処分等に伴うコスト、核セキュリティ上の管理などの面で課題が大きいという課題がありました。そこで、このプロジェクトではウランを使わずに製造する「放射法」を使用します。ただし、放射法は核分裂法と比べて単位当たりの<sup>99</sup>Mo放射能(製造量)が小さいことから、実用化に向けた技術開発を進めています。

**放射法(n, γ)法**

取相内容

- 放射法による<sup>99</sup>Moの製造
- <sup>99</sup>Moの製造装置の設計・製造・試験
- <sup>99</sup>Moの製造装置の設計・製造・試験
- <sup>99</sup>Moの製造装置の設計・製造・試験
- <sup>99</sup>Moの製造装置の設計・製造・試験
- <sup>99</sup>Moの製造装置の設計・製造・試験

主なプロジェクト参加機関

日本原子力研究開発機構(原子力機構) 企業研究(株) 株式会社千代田テクノ 株式会社アート科学

図1 つくば国際戦略総合特区「核医学検査薬の国産化(プロジェクト6)」の紹介(抜粋)(1-9)

## 2. <sup>99</sup>Mo 製造の現状

### 2.1 <sup>99</sup>Mo の製造方法

これまで、世界で実用化されている <sup>99</sup>Mo の製造法は、濃縮度 90%程度 of HEU を原料（ターゲット）として原子炉内に挿入し、原子炉内で発生する中性子を利用することにより HEU を核分裂させ、生じた核分裂生成物から <sup>99</sup>Mo を分離・精製する方法（核分裂法）となっている。2012 年頃までは、主に 5 つの原子炉（NRU：カナダ、HFR：オランダ、BR2：ベルギー、OSIRIS：フランス、SAFARI-1：南アフリカ）で HEU が照射<sup>(1-6)</sup>されており、世界で消費される <sup>99</sup>Mo の 95%以上が製造されていた。最近では、濃縮度 20%以下の LEU をターゲットとして主に製造している。核分裂法では、ウランターゲットから <sup>99</sup>Mo を分離・精製する過程で、ウランを硝酸で溶解する。硝酸溶解工程は、核燃料サイクルの再処理と類似であることから、技術的観点、核セキュリティの観点などにより事業者が容易に分離・精製をすることはできない。製造事業者も限定され、世界全体の供給量の約 95%を 4 つの事業者で生産しているのが現状である。

ウランを用いない <sup>99</sup>Mo の製造方法<sup>(1-4)</sup>が注目されている。一つは、三酸化モリブデン（MoO<sub>3</sub>）を照射ターゲットとして、原子炉内で発生する中性子との反応（<sup>98</sup>Mo (n, γ) <sup>99</sup>Mo：放射化法）により <sup>99</sup>Mo を製造する方法である。この方法では、研究用原子炉のみならず発電用原子炉を用いて、製造可能性について検討されている。他方は、濃縮したモリブデン-100 ターゲット加速器を用いた <sup>99</sup>Mo 製造である。(n, f)法と放射化法(以降、(n, γ)法という)の比較を図 2-1 に示す。(n, γ)法で製造した <sup>99</sup>Mo は、(n, f)法で製造した <sup>99</sup>Mo よりも比放射能が低いという欠点があることから、分離・抽出技術の開発が必要となっている。

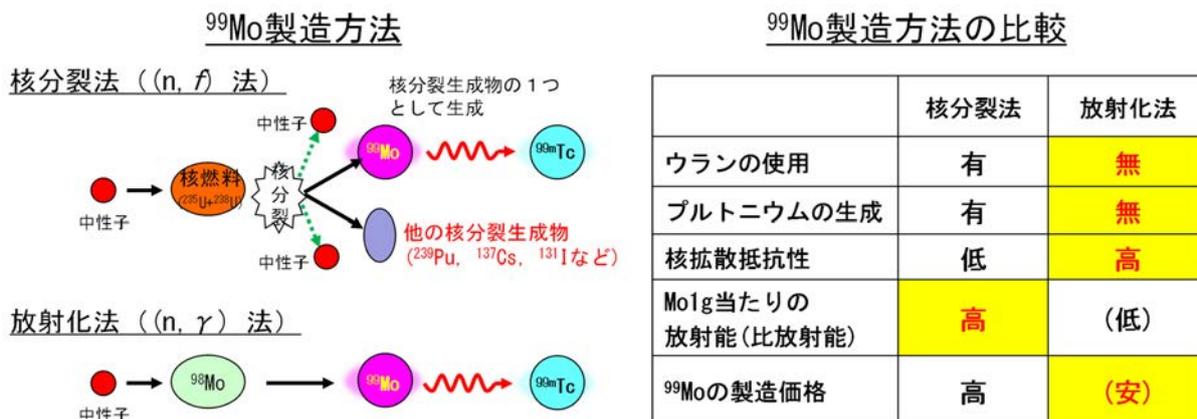
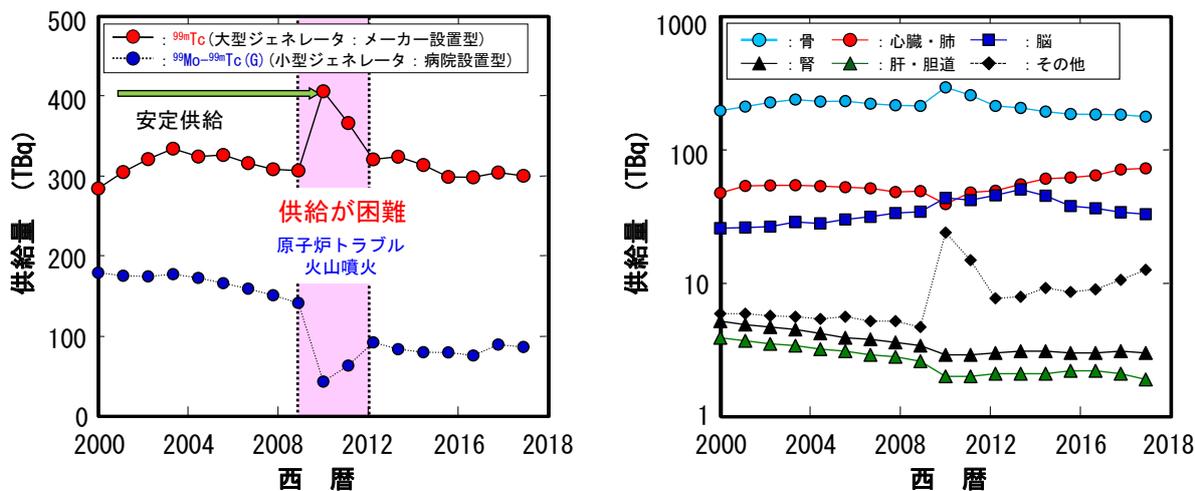


図 2-1 核分裂法((n, f)法)と放射化法((n, γ)法)の比較

### 2.2 <sup>99</sup>Mo の供給と製造施設

放射性医薬品は安定供給が不可欠であるため、複数の原子炉を併用して安定した製造ができるシステムを保持しなければならない。特に、各種疾病診断等に使われている <sup>99m</sup>Tc の原料となる <sup>99</sup>Mo は重要であるが、すべてを輸入に依存しており、日本は欧米に次ぐ世界第 3 位の消費国である。

$^{99}\text{Mo}$  を原料とする  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の核医学検査薬 ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$  製剤) は、主に腫瘍の転移や再発、梗塞など、骨や脳・心筋の血流状況等の検査に用いられ、我が国では 18 成分 34 品目が製造販売されている (2010 年 2 月末現在)。日本アイソトープ協会「放射線利用統計」<sup>(2-1, 2-2, 2-3, 2-4)</sup> や「放射性医薬品流通総計」<sup>(2-5)</sup> 及び「アイソトープ等流通統計」<sup>(2-6, 2-7, 2-8, 2-9, 2-10)</sup> に基づきグラフにした日本における  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  供給量と  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  注射剤の供給量の推移を図 2-2 に示す。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  と小型ジェネレータとして使用する  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  (G) の供給量は他の核医学検査薬に用いられている放射性同位元素よりも圧倒的に多く、2011 年度、前者は全体の 63%、後者は全体の 18% を占め、合計で 81% に達した<sup>(2-2)</sup>。しかしながら、2009~2010 年度は、アイスランド火山噴火、かつカナダの研究用原子炉の停止により、供給不足が発生し、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  と  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  (G) の供給量に大きく影響を受けた<sup>(1-4)</sup>。この期間において、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  製剤を用いた SPECT (Single Photon Emission Computed Tomography: 単一光子放射断層撮影) 検査の代わりに、PET (Positron Emission Tomography: 陽電子放出断層撮影)、CT (Computed Tomography: コンピュータ断層撮影) 及び MRI (Magnetic Resonance Imaging: 磁気共鳴画像) による検査の代替の事例もあったが、これらの検査では得られない診断情報もあることから、今後とも  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製品は重要な核種である。その例として、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  注射剤の供給量を示しており、その供給量の時間的推移はほぼ横ばいであるが、図 2-2 (b) の通り、脳を検査対象領域とする  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  注射剤の供給量は増加傾向を示していることが分かる。



(a) インビボ用 $^{99}\text{Mo}$ - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 医薬品の供給量

(b)  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 注射剤の供給量

図 2-2 日本における  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  供給量と  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  注射剤の供給量の推移

文献(1-6)、(1-7)、(2-11)及び(2-12)に基づいて作成した  $^{99}\text{Mo}$  製造を行っている世界の原子炉の推移を図 2-3 に示す。2008 年までは主に 4 つの原子炉で製造していたが、先述の通り、2011 年に原子炉の高経年化による故障やアイスランドの火山噴火による空輸トラブルにより、世界的に供給が不足した。このため、2012 年には、 $^{99}\text{Mo}$  製造が可能な原子炉の多様化を図った。一方、 $^{99}\text{Mo}$  製造が最大であったカナダの NRU 炉やフランスの OSIRIS 炉が相次いで廃止措置に移行した。最近では、オーストラリアの OPAL 炉での  $^{99}\text{Mo}$  製造が可能となり、約 10 年で  $^{99}\text{Mo}$  製造可能な原子炉が大きく変化している。このような中でも、 $^{99}\text{Mo}$  を安定的に供給できる体制は完全ではない。 $^{99}\text{Mo}$  原料

に関連するトラブルを表 2-1 に示すが、<sup>99</sup>Mo の製造可能な原子炉の多様化にもかかわらず、最近でも供給制限が頻発していることが分かる。

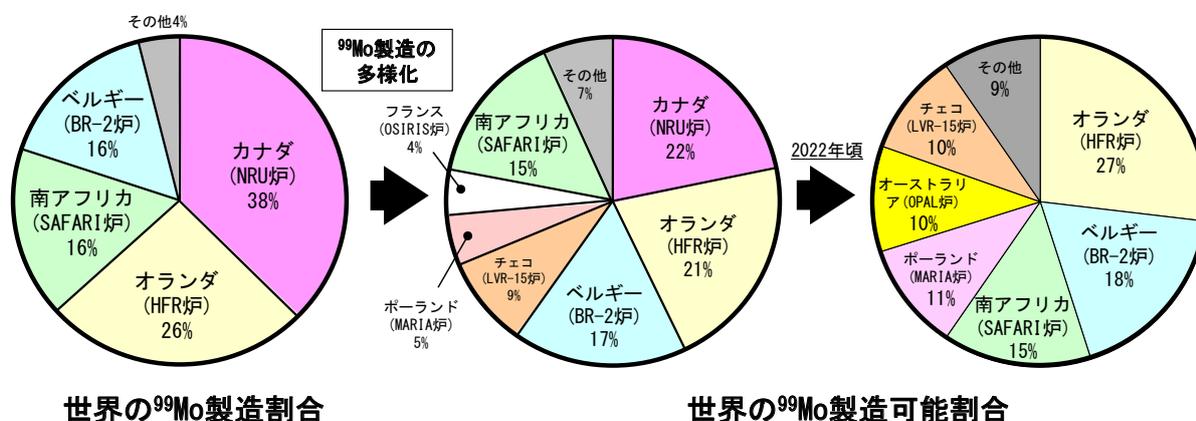


図 2-3 <sup>99</sup>Mo 製造可能な原子炉とその製造割合

表 2-1 <sup>99</sup>Mo 原料に関連するトラブル

期 間	原 因	状 況
2007 年 12 月～2008 年 1 月	カナダ・NRU 炉が計画外停止	製品欠品発生
2009 年 4 月～2010 年 8 月	カナダ・NRU 炉が計画外停止	製品欠品発生
2010 年 4 月	アイスランド火山噴火による航路一時停止	—
2013 年 4 月	カナダ・NRU 炉の製造量低下	製品欠品発生
2013 年 11 月～2014 年 5 月	オランダ・HFR 炉が計画外停止 精製工場のトラブルによる停止	製品欠品発生
2014 年 7 月	南アフリカ・SAFARI-I 炉が計画外停止	製品欠品発生
2017 年 11 月	南アフリカ・SAFARI-I 炉が計画外停止	製品欠品発生
2018 年 6 月～2018 年 8 月	オーストラリア・ANSTO 精製施設のトラブル	製品欠品発生
2018 年 10 月	オランダ・HFR 炉の計画外停止	製品欠品発生

### 2.3 <sup>99</sup>Mo 製造技術開発

「我が国のテクネチウム製剤の安定供給に向けてのアクションプラン」他<sup>(1-4, 2-13)</sup>において、<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc の安定供給に向けた国産化方策の概要が示されている。これらの文献は、東日本大震災の後に原子力委員会に提出されたものであるが、東京電力福島第一原子力発電所の事故の影響は大きく、日本の発電炉及び研究用原子炉のほとんどは新規規制基準対応のために長期間の停止を余儀なくされた。その間、発電炉での <sup>99</sup>Mo 製造については凍結され、さらに <sup>99</sup>Mo 製造の最有力候補であった原子力機構の材料試験炉(JMTR)は 2021 年 3 月に廃止措置計画が認可された。

発電炉を用いた  $^{99}\text{Mo}$  製造では、発電炉 1 基あたりの供給能力が 1,000~4,000 6-dayCi/週、発電炉の高い稼働率を利用して、2 基確保することにより、国内供給量を十分賄えると評価されていた。また、JMTR でも、天然同位体比を持つモリブデン (Mo) を利用することにより国内供給量の約 25%、濃縮モリブデン-98 ( $^{98}\text{Mo}$ ) であれば 100%を確保することができるとされていた。しかしながら、これらの計画が凍結されたことから、安定供給のための  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造手段は、JMTR 以外の研究用原子炉と加速器だけとなった。また、これらを用いた製造試験の検討は実施されているものの、実用化まではまだ時間がかかりそうである。研究用原子炉と加速器による  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造に係る比較を表 2-2 にまとめた。

このような現状から、 $^{99}\text{Mo}$  の国産化に向けては現状の市場価格に見合った製造コストと安定供給を考える必要がある、研究用原子炉を用いた  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造をベース製造施設とし、当面は加速器による  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造で補完することにより、国産  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造を進めていくことが効率的と考えられる。このために、国内供給量 25%を達成すべく、研究用原子炉を用いた  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造検討を進めていくことが必要不可欠である。

$^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造量の拡大には、濃縮したモリブデン (研究用原子炉： $^{98}\text{Mo}$ 、加速器：濃縮モリブデン-100 ( $^{100}\text{Mo}$ )) の入手も視野に入れる必要がある。この  $^{98}\text{Mo}$  や  $^{100}\text{Mo}$  の入手先としては、ロシアにある濃縮工場が候補に挙げられるが、ロシア 1 国からの入手だけでは安定した原料の確保が困難であるとともに、原料コストは天然 Mo の約 1000 倍と見込まれている。一方、各製造装置の供給量は大型加速器ができれば、数基の加速器施設を整備することにより、研究用原子炉の供給量に匹敵した製造が可能である。しかしながら、大型加速器施設の他、 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  の半減期が短く、輸送時間の短縮化等の観点から、専用のホットセルを整備する必要があり、国内供給量を満足するための、建設費及び施設運転費も検討する必要がある。

表 2-2 研究用原子炉と加速器による  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造に係る比較

製造設備	研究用原子炉		加速器		
			大型	中型	小型
原料	天然 Mo	濃縮 $^{98}\text{Mo}$	濃縮 $^{100}\text{Mo}$		
反応	$^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$		$^{100}\text{Mo}(n, 2n)^{99}\text{Mo}$	$^{100}\text{Mo}(p, x)^{99}\text{Mo}$	$^{100}\text{Mo}(p, x)^{99\text{m}}\text{Tc}$
供給量 (6-day Ci/週)	230*	1000*	128	40	16
稼働率	約 60%		約 83%	約 93%	
国内需要	約 25%	約 100%	約 13%	約 4%	約 2%

※：JMTR で整備を予定していた新規水カラビット照射設備を用いた際の供給量

### 3. 核医学検査薬の国産化（プロジェクト6）の開発目標

ウランを用いない  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造の最大の欠点は、天然 Mo を使用した場合に (n,  $\gamma$ ) 法で得られる  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  の比放射能が低いということである。この欠点を改善することが、(n,  $\gamma$ ) 法による  $^{99}\text{Mo}$  国産化の実現を可能とする。このため、具体的な解決手段は、濃縮  $^{98}\text{Mo}$  を原料として利用することであり、濃縮  $^{98}\text{Mo}$  の利用により、研究用原子炉が稼働している間は国内需要のほぼ 100% 国産化の見通しが得られる。しかしながら、前述した通り、濃縮  $^{98}\text{Mo}$  は非常に高価であり、安定的に原料を確保することが困難である。(n,  $\beta$ ) 法による  $^{99}\text{Mo}$  よりも低コストで製造を可能とする基礎基盤技術の確立を行いつつ、この高価な  $^{98}\text{Mo}$  を有効利用し、より製造量を向上させることも検討することとした。

2013 年度からプロジェクトを開始したが、当初は JMTR が再稼働することを前提としていた。このため、図 3-1 に示す  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製品の製造プロセス（案）を構築し、国産化のための技術課題を設定して、各々の革新的な基盤技術開発に着手した。基盤技術の項目は、これまでの基礎研究の結果により、下記 4 項目とし、各項目の現状と課題を整理した。

- ① 大量製造・廃棄物低減型高密度  $\text{MoO}_3$  ペレットの製造技術の開発
- ② モリブデン酸ナトリウム溶液（以降、Mo 溶液とする）から高い比放射能を有する過テクネチウム酸ナトリウム溶液（以降、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液とする）の分離・抽出・濃縮技術の高度化
- ③ 高い吸着能を有する Mo 吸着剤の開発と  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータの設計及び確証
- ④  $^{98}\text{Mo}$  濃縮技術の開発及び照射済  $^{98}\text{Mo}$  の有効利用技術の開発

特に、②に関しては、 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製品が  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液原料及び  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータ（図 3-2 参照）であることから、分離・精製技術の高度化を図る必要がある。すなわち、分離・抽出・濃縮工程に関しては、 $^{99}\text{Mo}$  の半減期が約 66 時間、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の半減期が約 6 時間と短いことから、処理工程の簡素化、処理時間の短縮がキーポイントとなる。また、得られた製品は、品質検査により製品仕様を満足することが求められる。

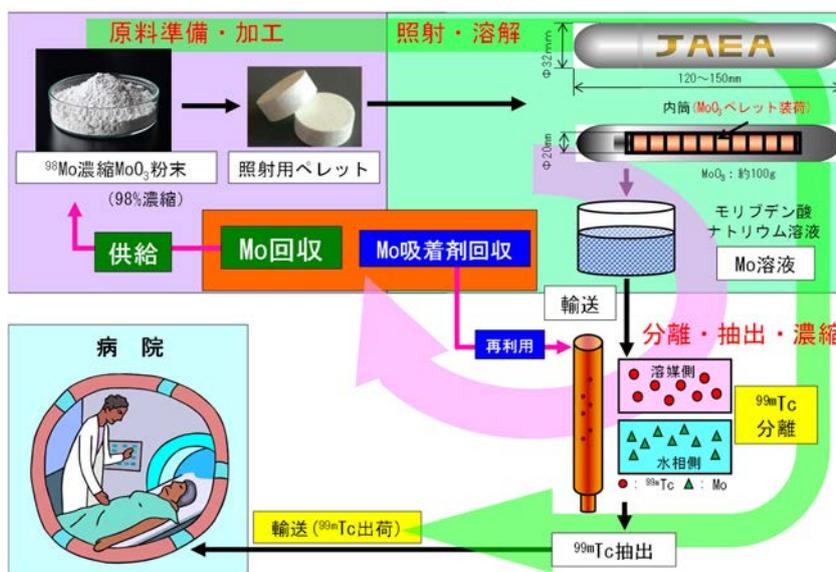


図 3-1 (n,  $\gamma$ ) 法を用いた医療診断用  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製品の製造プロセス(案)

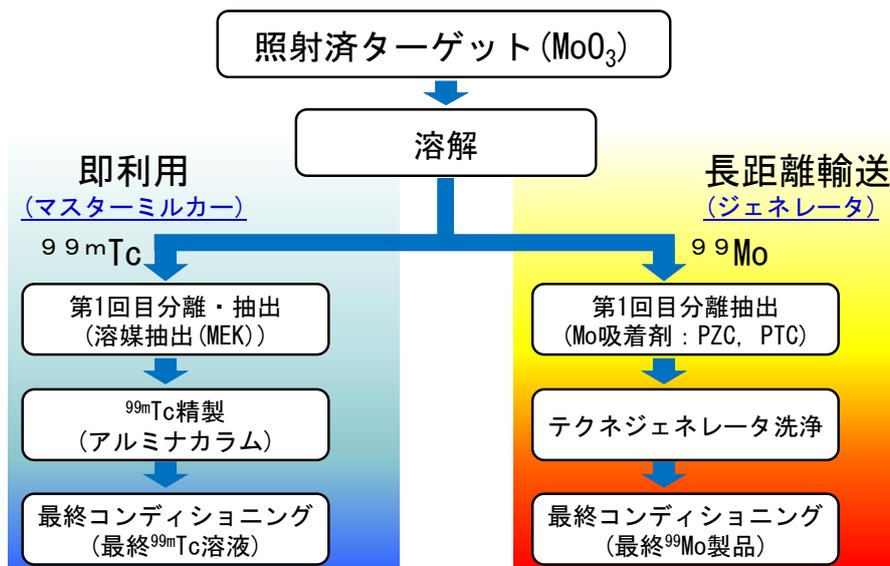


図 3-2  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製品である  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液原料及び  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータの製造フロー

国産化を目指すための具体的な開発ステップを図 3-3 に示す。これまで、原子力機構と関連メーカーとは、原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ<sup>(3-1)</sup>や研究成果最適展開支援プログラム (A-STEP)<sup>(3-2)</sup>等の外部資金を獲得し、当該開発のための基礎基盤研究を行ってきた。この結果、試験研究炉を用いた(n,  $\gamma$ )法による  $^{99}\text{Mo}$  製造の見通しが得られたが、国産化のためには実証試験を積み重ねることが必要不可欠であるとともに、医薬品としての製品の品質を確保する必要があり、更なる開発を当該事業で実施することとした。

基礎基盤研究で得られた知見から、各基盤技術の現状と課題を表 3-1 に示す。それぞれの課題に係る目標値を表 3-2 に示す。医療診断用として用いる製品は、最終的に得られる  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液原料を標識化し、病院等で使用することとなる。一方、本提案では、これまでの基礎研究段階で得られた試験結果並びに各国の放射性医薬品基準値に基づき、研究用原子炉内で製造する  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製品としては、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液原料及び  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータとし、分離・精製技術の高度化を図りつつ、得られる製品は表 3-2 に示した製品仕様を満たすことが必要となる。また、研究用原子炉で  $^{99}\text{Mo}$  の生産量を向上させるための照射ターゲットの開発や資源の有効活用・放射性廃棄物低減による環境低付加システムの構築を目指し、 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造システム全体で要求する項目として、① $^{99}\text{Mo}$  の処理能力が 230 6-day Ci/週 (国内需要の 20%) 以上であること、② $^{99}\text{Mo}$  の製造コストが、 $^{99}\text{Mo}$  供給危機以前 (2008 年) の価格 \$ 250/Ci を最終目標とする<sup>(2-11)</sup>。

一方、福島第一原発事故後の原子力安全対策に関しては、2013 年 7 月に発電用原子炉に係る新規規制基準、2013 年 12 月には試験研究用原子炉施設に係る新規規制基準が施行された。JMTR においても、2015 年 3 月に設置許可変更申請を提出したが、自ら定めた評価用地震動に対して、詳細な耐震評価を行った結果、S クラス施設の耐震力が不足しており、大規模な耐震補強が必要であることが判明した。JMTR の耐震補強の成立性の可否は、今後の JMTR の運営方針の決定に大きな影響を与えることから、原子力機構内に第三者を含めた評価委員会を設置し、耐震補強の成立性について検討された。この結果を受け、耐震補強の工事期間、工事費、工事後の JMTR の稼働

等を総合的に評価し、2017年4月に公表された「施設中長期計画<sup>(3-3)</sup>」で国内唯一の材料試験炉である JMTR も廃止検討施設として位置付けられた。

このため、当該事業についても、JMTR の再稼働が望めないことから、再稼働した京都大学研究用原子炉(KUR)等の代替炉を活用して照射試験を行い、低い放射能であるが、分離抽出試験を中心に高度化研究及び実証試験を進め、基礎基盤技術の確立を行うこととした。

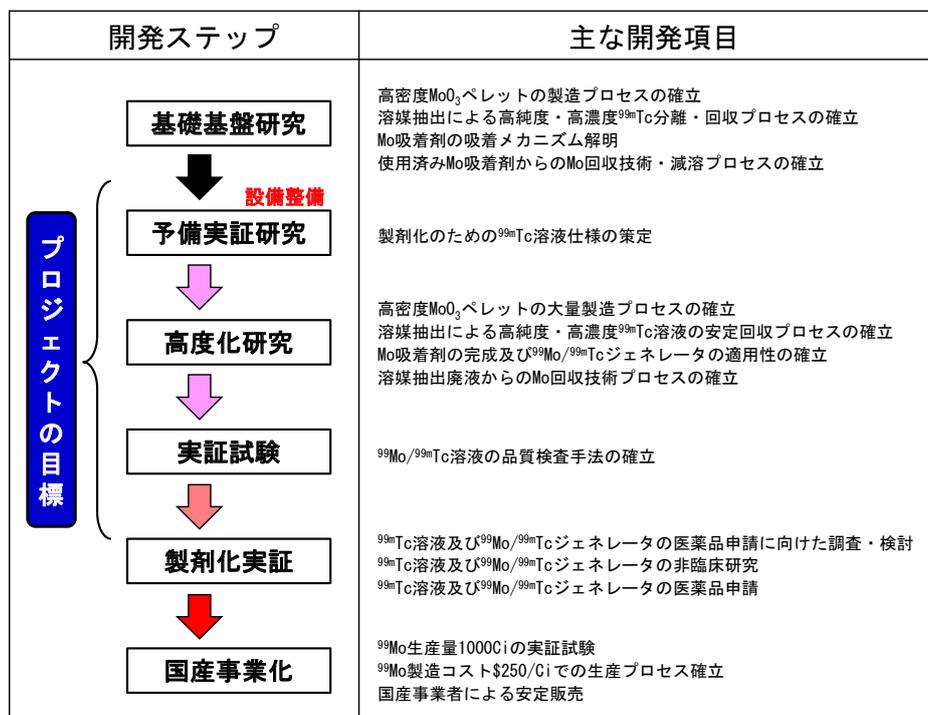


図 3-3 国産化を目指すための具体的な開発ステップ

表 3-1 (n, γ)法による <sup>99</sup>Mo 製造における開発の現状と課題

開発項目	現 状	今後の課題
1 照射ターゲットの製造技術開発	プラズマ焼結法による高密度 MoO <sub>3</sub> ペレットの製造技術を確立。	安定的に大量に製造可能な新たな技術が必要。
2 <sup>99</sup> Mo/ <sup>99m</sup> Tc 分離・抽出・濃縮技術開発	1) MEK(メチルエチルケトン)を用いた溶媒抽出法による <sup>99m</sup> Tc 分離・抽出・濃縮技術を確立。	目標である <sup>99m</sup> Tc 回収率(80±5%)を安定的に達成。 (高純度・高濃縮は確保)
	2) PZC(高分子ジルコニウム化合物)に代わるリサイクル可能な Mo 吸着剤の製造技術を創出。	Mo 吸着剤 1g に対し、200mg 以上の Mo 吸着量を安定的に確保。
3 Mo リサイクル技術開発	Mo 吸着剤に吸着した Mo を高い回収率で回収する技術を確立。	1) Mo 吸着剤からの Mo 原料の回収率を 95%以上確保。 2) 溶媒抽出で使用した Mo 溶解液からの Mo 回収技術の確立。
4 <sup>99m</sup> Tc 製剤化に向けた技術開発	本方法による <sup>99m</sup> Tc 溶液の核医学検査薬の基準値を設定。低放射能濃度での検査実施。	1) <sup>99m</sup> Tc 溶液の品質検査手法の確立。 2) 高放射能 <sup>99</sup> Mo/ <sup>99m</sup> Tc 取扱い。

表 3-2 (n, γ)法による <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 製造における開発目標

1) 製品名 : 高密度 MoO <sub>3</sub> ペレット (照射ターゲット)																							
<table border="1"> <thead> <tr> <th>項目</th> <th>形状</th> <th>焼結密度</th> <th>ペレット純度</th> <th colspan="4">溶解性</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>基準値</td> <td>φ20×10mm</td> <td>90%T. D. 以上</td> <td>99.9%以上</td> <td colspan="4">3 時間以内で溶解</td> </tr> </tbody> </table> 								項目	形状	焼結密度	ペレット純度	溶解性				基準値	φ20×10mm	90%T. D. 以上	99.9%以上	3 時間以内で溶解			
項目	形状	焼結密度	ペレット純度	溶解性																			
基準値	φ20×10mm	90%T. D. 以上	99.9%以上	3 時間以内で溶解																			
2) 製品名 : <sup>99m</sup> Tc 溶液原料																							
<table border="1"> <thead> <tr> <th>項目</th> <th>pH</th> <th>浸透圧 (mOsm)</th> <th>放射化学的異物 (%)</th> <th>MEK (ppm)</th> <th><sup>99</sup>Mo (%)</th> <th>Al (ppm)</th> <th>エンドトキシン</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>基準値</td> <td>4.5~7.5</td> <td>270~300</td> <td>&lt;5</td> <td>5,000</td> <td>&lt;0.015</td> <td>&lt;10</td> <td>検出限界以下</td> </tr> </tbody> </table> <p>※ : <sup>99m</sup>Tc の放射能濃度 1Ci/mL (37GBq/mL) 以上。エンドトキシン濃度 0.03EU/mL 以下。標識化合物による動物の体内分布測定結果が、既存の <sup>99m</sup>Tc 製品と同等。</p>								項目	pH	浸透圧 (mOsm)	放射化学的異物 (%)	MEK (ppm)	<sup>99</sup> Mo (%)	Al (ppm)	エンドトキシン	基準値	4.5~7.5	270~300	<5	5,000	<0.015	<10	検出限界以下
項目	pH	浸透圧 (mOsm)	放射化学的異物 (%)	MEK (ppm)	<sup>99</sup> Mo (%)	Al (ppm)	エンドトキシン																
基準値	4.5~7.5	270~300	<5	5,000	<0.015	<10	検出限界以下																
3) 製品名 : <sup>99</sup> Mo/ <sup>99m</sup> Tc ジェネレータ																							
<table border="1"> <thead> <tr> <th>項目</th> <th>pH</th> <th>浸透圧 (mOsm)</th> <th>放射化学的異物 (%)</th> <th><sup>99</sup>Mo (%)</th> <th>他の不純物元素</th> <th>エンドトキシン</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>基準値</td> <td>4.5~7.5</td> <td>270~300</td> <td>&lt;5</td> <td>&lt;0.015</td> <td>(検出限界以下)</td> <td>検出限界以下</td> </tr> </tbody> </table> <p>(他の不純物元素 : Mo 吸着剤を構成している元素。Mo 吸着剤の材質により検討。)</p> <p>※ : <sup>99m</sup>Tc の放射能濃度 20mCi/mL (0.74GBq/mL) 以上。エンドトキシン濃度 0.03EU/mL 以下。標識化合物による動物の体内分布測定結果が、既存の <sup>99m</sup>Tc 製品と同等。</p>								項目	pH	浸透圧 (mOsm)	放射化学的異物 (%)	<sup>99</sup> Mo (%)	他の不純物元素	エンドトキシン	基準値	4.5~7.5	270~300	<5	<0.015	(検出限界以下)	検出限界以下		
項目	pH	浸透圧 (mOsm)	放射化学的異物 (%)	<sup>99</sup> Mo (%)	他の不純物元素	エンドトキシン																	
基準値	4.5~7.5	270~300	<5	<0.015	(検出限界以下)	検出限界以下																	
4) 製品名 : リサイクル MoO <sub>3</sub> 粉末																							
<table border="1"> <tr> <td> <p><u>リサイクル MoO<sub>3</sub> 粉末</u>                      回収効率 : 95%以上                      粉末純度 : 99.9%以上</p> </td> <td colspan="7">  </td> </tr> </table>								<p><u>リサイクル MoO<sub>3</sub> 粉末</u>                      回収効率 : 95%以上                      粉末純度 : 99.9%以上</p>															
<p><u>リサイクル MoO<sub>3</sub> 粉末</u>                      回収効率 : 95%以上                      粉末純度 : 99.9%以上</p>																							

## 4. JMTR ホットラボの設備整備

つくば国際総合戦略特区の新規プロジェクトとして、2013年10月に「核医学検査薬(テクネチウム製剤)の国産化」が採択・追加され、2014年度の総合特区推進調整費を活用して、JMTR ホットラボ施設内に国産化技術開発のための試験設備が整備された。本プロジェクトを進めるにあたり、(n,  $\gamma$ )法で製造した<sup>99</sup>Mo から分離・抽出した<sup>99m</sup>Tc が、日本薬局方<sup>(4-1)</sup>及び放射性医薬品基準(以下、放薬基という)<sup>(4-2)</sup>に定める放射化学純度の規格と同等であることが必要不可欠であったため、当該試験を実施するための目標を設定し、設備整備を行った。

### 4.1 設備の考え方及び基本計画

厚生労働省の告示「無菌操作法による無菌医薬品の製造に関する指針(H23.4.20)」<sup>(4-3)</sup>では、原料(原薬、添加剤)の管理として、以下のように定められている(抜粋)。

#### 9.1.1 一般要件

(省略)

3) 重要区域内に搬入される原料は、以下のいずれかに従うこと。

- ① 無菌性が保証されている原料。
- ② 当該原料の特性及びバイオバーデンレベルに応じた、適切な滅菌が行われている原料。この場合、あらかじめ定められた頻度でバイオバーデンの測定を実施し、規格値内であることを確認すること。

4) 原料は、エンドトキシン量が管理されていること。

- ① 製造工程において、脱パイロジェン処理が行われない場合、定められたエンドトキシン量以下であることが保証されていること。
- ② 製造工程において脱パイロジェン処理が行われる場合、当該原料の特性及びエンドトキシン量のレベルに応じて適切な脱パイロジェンの方法を設定すること。なお、処理前の原料のエンドトキシン量を管理することが望ましい。

#### 9.1.2 バリデーション

- 1) 原料が無菌であることを要求される場合においては、無菌性を保証するバリデーションを実施すること。
- 2) 原料の滅菌を行う場合においては、滅菌方法のバリデーションを実施すること。

(省略)

- 5) 原料の脱パイロジェン処理を行う場合においては、そのバリデーションを実施すること。一般に脱パイロジェン工程は、添加したエンドトキシンを3log以上減少させることが要求される。

このことから、JMTR に整備する設備としては、できるだけ無菌状態が保証される試験環境であるとともに、実験器具等は滅菌したものを使用できるような環境を整備することを前提として検討することとした。JMTR ホットラボ施設内での<sup>99m</sup>Tc 溶液製造に必要な対応方針を図4-1に示す。設備の対応方針として、<sup>99m</sup>Tc 溶液の製造時において、エンドトキシン量が未検出(0.03EU/mL)であることとした。このために、日本薬局方の空気清浄度規格を参考に図4-2に示す通り、医薬品原料となる<sup>99m</sup>Tc 溶液を製造する施設として、鉛セル内の空気清浄度をクラス7((352,000個/m<sup>3</sup>( <

0.5 μm) 以下と管理目標値を設定した。また、直接支援区域として、鉛セル操作室内の空気清浄度もクラス8 (3,520,000 個/m<sup>3</sup> (<0.5 μm)) 以下に管理することとして整備した。

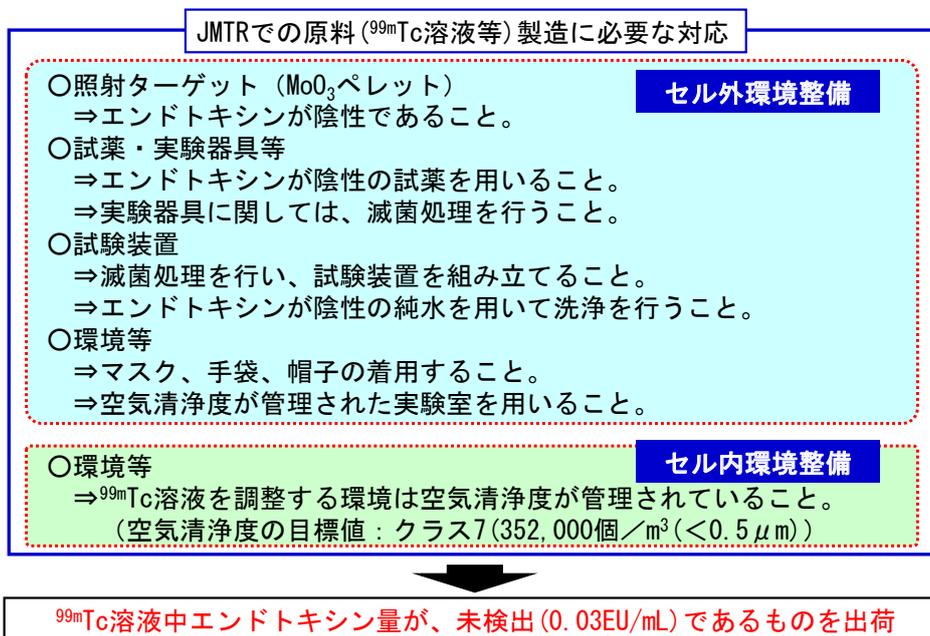


図 4-1 JMTR ホットラボ施設内での <sup>99m</sup>Tc 溶液製造に必要な対応方針

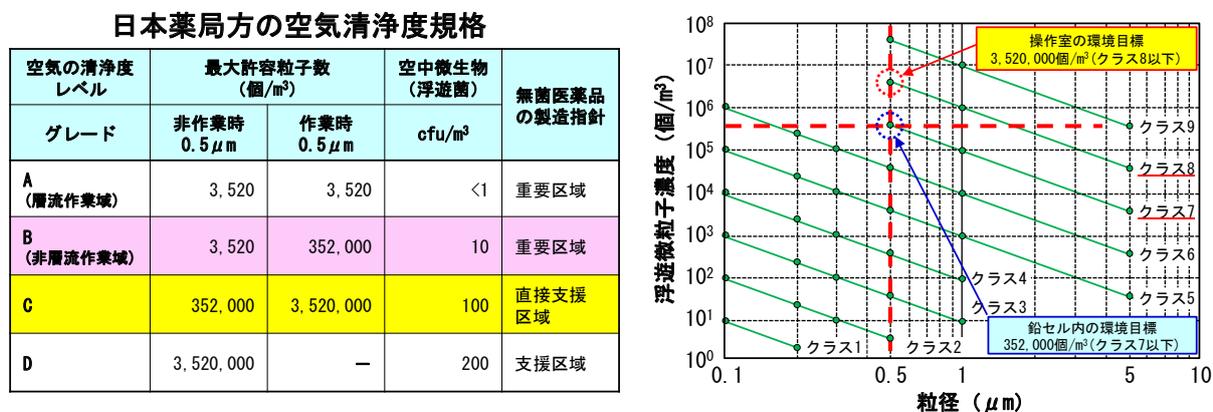


図 4-2 <sup>99m</sup>Tc 溶液を製造する施設の空気清浄度の設定

## 4.2 JMTR ホットラボ施設内クリーンブース設備

JMTR ホットラボ施設に設備整備する基本方針を表 4-1 に示す。<sup>99</sup>Mo から <sup>99m</sup>Tc 溶液を抽出するには、高い放射能を取り扱うことになることから遮蔽されたセルの中で行う必要がある。このため、セル内の環境を最も厳しくするとともに、セルの遮蔽壁を通して操作する操作室も管理された空間で行うことを基本計画として設計・製作を行った。

セル外環境整備としては、実験器具等を準備するための実験準備室や抽出した <sup>99m</sup>Tc 溶液を検査する装置を設置する物性試験室の整備を行った。セル内環境整備としては、<sup>99m</sup>Tc 溶液を抽出するための実験装置の他、セル内の環境を制御するための環境対策機器の整備を行った。また、品

質検査が実施できる試験、分析装置も整備した。JMTR ホットラボ施設内のこれらの設備整備図を図 4-3 に示す。

表 4-1 JMTR ホットラボ施設における試験整備の基本方針

項目		設備整備の概要
<b>(1) セル外環境整備</b>		
1)	実験準備室の整備	材料試験用セル操作室にある暗室を改修し、試薬の保管・調整、実験器具の洗浄等を行うための実験準備室として整備する。なお、本実験準備室は空気清浄度を管理した作業区域とする。
2)	物性試験室の整備	抽出した $^{99m}\text{Tc}$ 溶液の不純物分析や $^{99}\text{Mo}$ 溶液中の不純物分析及び同位体分析を行うための不純物分析機器を設置するため、コンクリートセル操作室・物性試験室内のフードの耐荷重を補強する。
3)	鉛セル用パーテーション工事	$^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ 製造に使用する鉛セル(L-1~L-3)のマニピュレータの操作範囲をパーテーションで区切り、空気洗浄度を管理した部屋にする。
<b>(2) セル内環境整備</b>		
1)	鉛セル内整備	鉛セル(L-1~L-3)内をステンレス鋼内張(ライニング)工事を行うとともに、プラグ部及びセル間扉を気密構造にし、空気清浄度を管理した作業区域とする。
2)	環境対策機器の整備	鉛セル内の空気清浄度を管理するため、各鉛セルにクリーンエア装置やパーティクルカウンタを設置するとともに、 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ 製造に使用する鉛セル(L-2)内に滅菌装置を、他のセルに放射性廃棄物を処理するための装置を整備する。
<b>(3) 試験装置・分析機器の整備</b>		
1)	溶解・分離・抽出・濃縮試験装置の整備	照射済 $\text{MoO}_3$ ペレットの溶解、 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ 溶液から $^{99m}\text{Tc}$ を分離・抽出・濃縮し、 $^{99m}\text{Tc}$ 溶液を作製するための装置を設計・製作する。
2)	不純物分析機器の整備	抽出した $^{99m}\text{Tc}$ 溶液の不純物分析や $^{99}\text{Mo}$ 溶液中の不純物分析及び同位体分析を行うための不純物分析機器を整備し、コンクリートセル操作室にある物性試験室内のフード内に設置する。

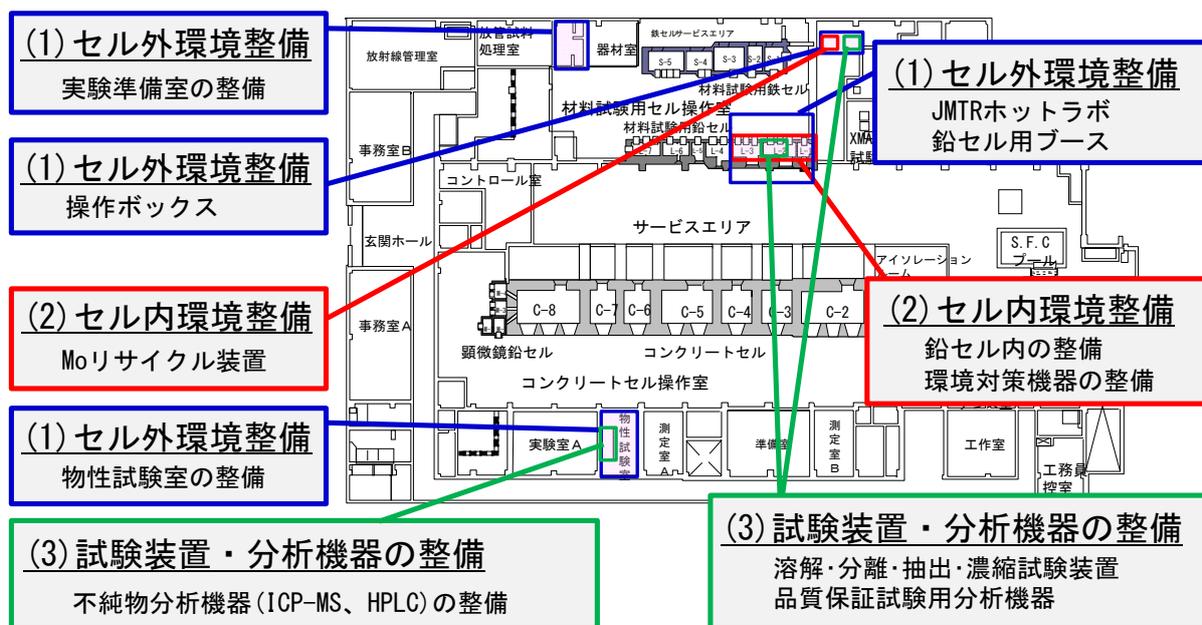


図 4-3 JMTR ホットラボ施設内における設備整備図

<sup>99m</sup>Tc 溶液を抽出するための操作室及びセル内の整備状況を図 4-4 に示す。空気清浄度を管理するため、JMTR ホットラボ施設のマテリアルセル操作室の空気をクリーンエアシステムを通して操作室に導入し、さらにその空気を 2 段目のクリーンエアシステムを通して鉛セル内に導入する方式を採用し、セル内の空気洗浄度を上げる方式としている。

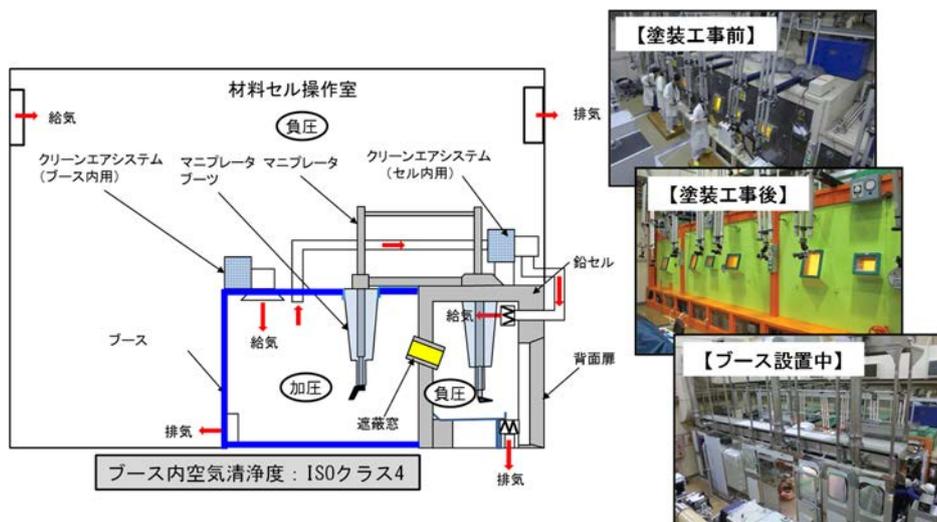


図 4-4 JMTR ホットラボ施設内における設備整備図

整備したブース内及び鉛セル内にはパーティクルカウンタを設置し、常時空間の粒子数を監視できるようにした。ブース内及び鉛セル内のパーティクルカウンタの配置図を図 4-5 及び図 4-6 に示す。微粒子濃度の測定結果を図 4-7 に示す。本結果から、ブース内及び鉛セル内とも目標値を満足した微粒子濃度であり、管理された環境での試験が可能となった。

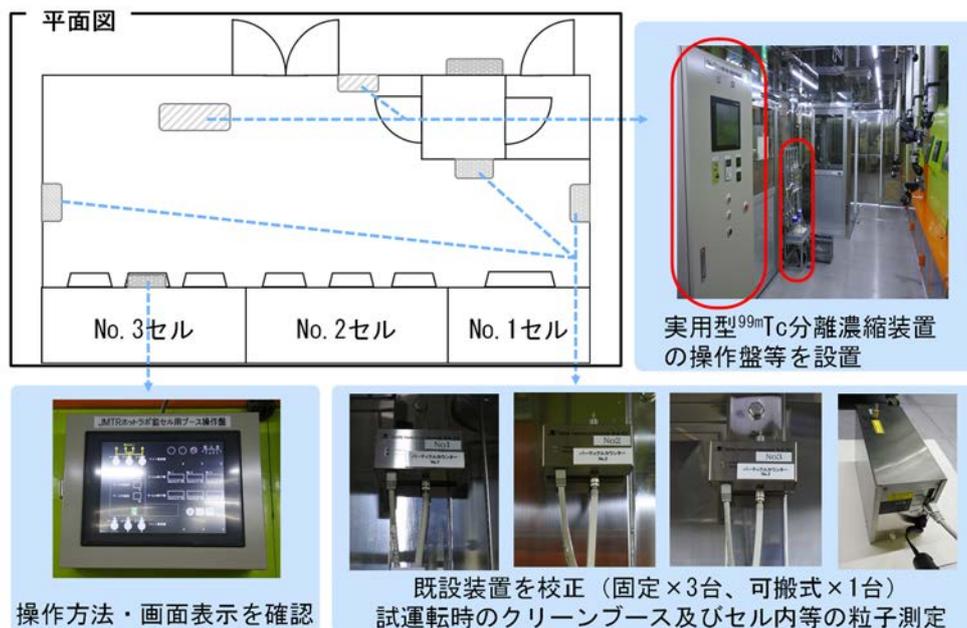


図 4-5 ブース内パーティクルカウンタの設置位置

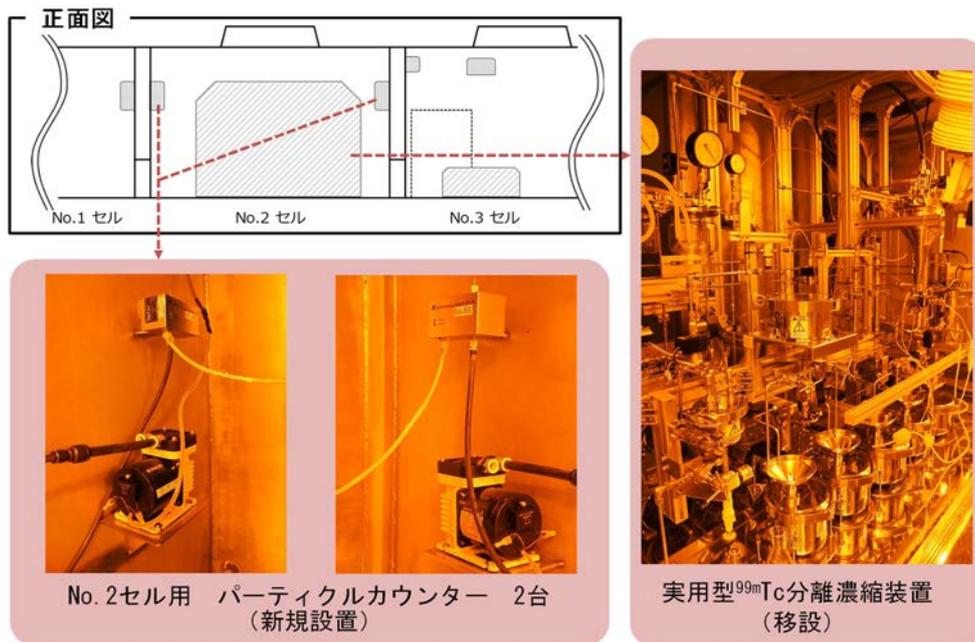


図 4-6 鉛セル (No. 2) 内パーティクルカウンタの設置位置

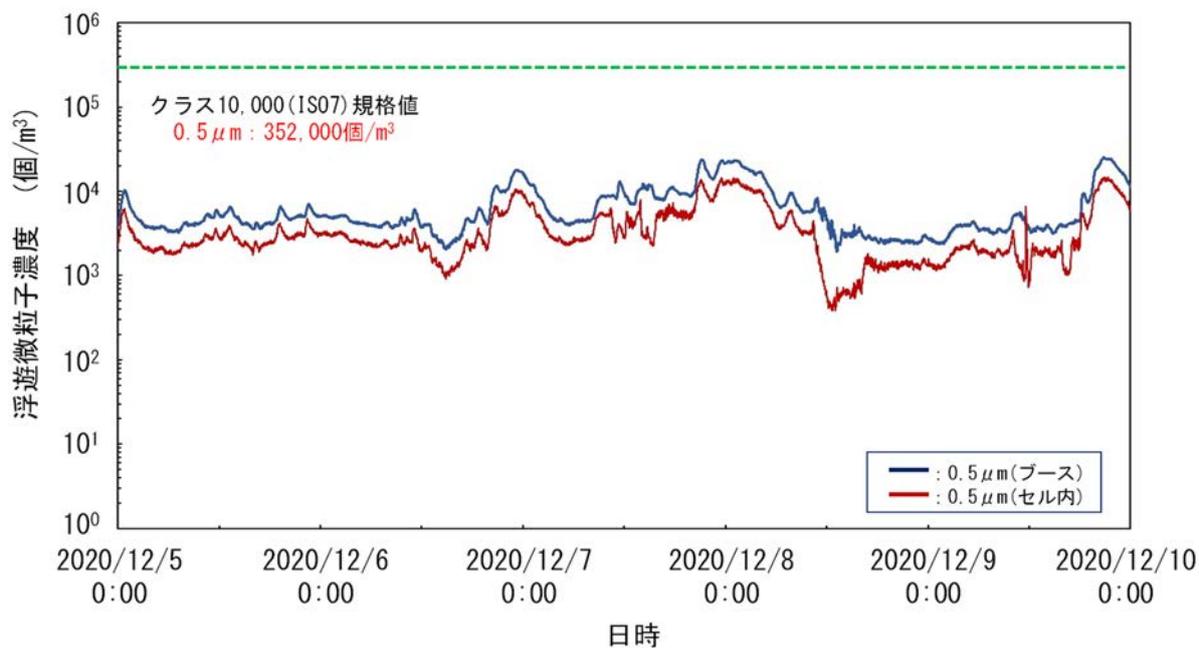


図 4-7 ブース内及び鉛セル (No. 2) 内の空気中の微粒子濃度結果

## 5. 各開発課題の目標と成果

### 5.1 開発目標

つくば国際戦略総合特区事業「核医学検査薬（テクネチウム製剤）の国産化」プロジェクトでは、RI 製品で大きな市場を持つ医療診断用  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製品に着目し、国産化を目指すとともに、研究用原子炉を用いた高品質の RI 製品の基礎基盤技術を確立することが必要である。表 3-1 に示した各開発課題を解決し、国産  $^{99}\text{Mo}$  製造の技術的成立性を実証していく。

$^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  製造として、表 3-1 の 1 及び 3 については、天然同位体比を持つ Mo 原料を用い、国内需要の 20～25%を製造することを目標とし製品開発を行うとともに、2 及び 4 については、医療用として使用している  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液と同等の品質を有する  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  製品を製造する。なお、次の開発フェーズである製剤化実証において、本試験研究で目標値を達成した  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液原料の製造工程を活用して、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  製品を製造し、非臨床試験も行い、医薬品申請に向けた試験データを蓄積する。また、本試験研究で得られた製造実績は、他の RI 製品の製造にも適用し、長期にわたって品質の高いものを供給する製造システムの検討にも資することとした。

一方、2017 年 4 月の原子力機構の「施設中長期計画」における JMTR の廃止施設の決定を受け、JMTR の再稼働が見込めなくなったことから、JMTR に代わる照射場を確保し、試験を継続することとした。以下に各課題に係る目標、現状及び成果についてまとめた。

### 5.2 照射ターゲットの製造技術開発

#### ① 課題目標

大量製造・廃棄物低減を目指した照射ターゲットである高密度  $\text{MoO}_3$  ペレットの製造技術を確立する。目標製造条件として、形状  $\phi 20 \times 10\text{mm}$ 、焼結密度 90%以上とする。確立した製造方法において、リサイクル製品として発生する使用済  $\text{MoO}_3$  粉末を用いたペレットの製造特性を調べ、始発粉末性状に影響を受けない製造条件を決定する。製造した高密度  $\text{MoO}_3$  ペレットを JMTR 等の研究用原子炉にて中性子照射試験を行い、照射特性を明らかにするとともに、実証試験において既設照射設備を用いて 230 6-day Ci/週(照射直後の  $^{99}\text{Mo}$  生成量：1000Ci) レベルの確証を行う。

#### ② 現状と問題点

開発した高密度  $\text{MoO}_3$  ペレットは、JMTR で照射する場合、水カラビットに装荷して照射される。国産事業(需要の 20%)を実現するためには、天然同位体比を持つ  $\text{MoO}_3$  の照射ターゲットを使用し、 $^{99}\text{Mo}$  製造量は 230 6-day Ci(照射直後：1000Ci) 必要である。現在、放射性同位元素を製造するための専用照射設備が検討されている。このため、本設備を用いて目標の  $^{99}\text{Mo}$  製造量を達成するための照射ターゲットである  $\text{MoO}_3$  ペレットの製造仕様を評価し、 $\text{MoO}_3$  ペレットの焼結密度は 90%T. D. 以上と設定した(図 5-2-1 参照)。なお、焼結密度の最大値については、照射後  $\text{MoO}_3$  ペレットを水酸化ナトリウム (NaOH) 溶液で溶解することから、溶解性を考慮して決定していく。

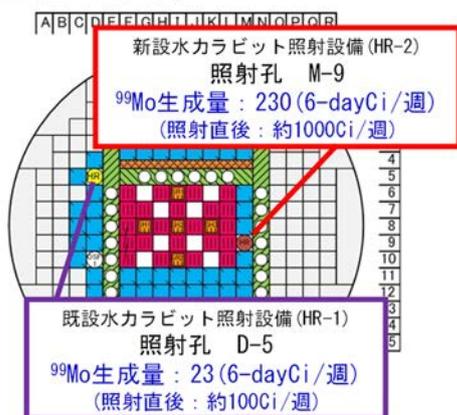
一方、 $\text{MoO}_3$  ペレットの製造条件の設定にあたっては、 $\text{MoO}_3$  の昇華温度が  $700^\circ\text{C}$  と低いため、焼結温度を高く設定することが困難であったが、焼結時に温度・圧力を制御する方法、たとえばプ

プラズマ焼結方法等で目標値を達成する高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの製造が可能となっている。これまでの試験結果によりまとめた MoO<sub>3</sub> ペレットの製造法の比較を表 5-2-1 に示す。

JMTR用ラビット図



JMTR炉心配置例



国産事業を目指したMoO<sub>3</sub>ペレットの評価

照射場	JMTR・HR-2
中性子束 (n/m <sup>2</sup> /s)	$\phi_{th} = 3.5 \times 10^{18}$ $\phi_f = 0.9 \times 10^{18}$
<sup>99</sup> Mo生成量	6Ci/g-Mo
ラビット1本当りのMoO <sub>3</sub> 装荷可能容積	25 cm <sup>3</sup>
MoO <sub>3</sub> の密度	4.696g/cm <sup>3</sup>

1回のラビット照射 : 3本  
MoO<sub>3</sub>ペレット (100%T.D.) を使用した場合  
<sup>99</sup>Mo生成量 (中性子束分布考慮) : 1120 Ci  
MoO<sub>3</sub>ペレットの焼結密度目標値 : >89 %T.D.

MoO<sub>3</sub>ペレットの目標焼結密度 : 90~95%T.D.  
(最大値については、溶解性を考慮)

図 5-2-1 高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの製造仕様

表 5-2-1 MoO<sub>3</sub>ペレットの製造法の比較

項目 \ 方法	一軸加圧	ホットプレス	HIP	プラズマ焼結	
				SPS	Ed-Pas
大量製造	可	良	優	可	良
製造時間	可	可	良	不可	良
製造コスト	優	良	良	可	良
密度制御	不可	良	可	優	優
製品純度	可	可	優	良	良

一軸加圧 : 一軸加圧成型法、HIP : 熱間等方加圧法、SPS : 放電プラズマ焼結法、Ed-Pas : プラズマ高速放電焼結法

この結果、高密度 MoO<sub>3</sub> ペレット開発において、焼結方法としてプラズマ焼結法の内、放電プラズマ焼結法 (SPS 法) を選定した。その結果、MoO<sub>3</sub> ペレットの焼結密度は約 95%と目標値を達成した<sup>(5-1, 5-2, 5-3, 5-4)</sup>。しかしながら、製造において、

- ① 1つ1つダイスに粉末を充填し、焼結を行うことから、大量製造性に不向き

② MoO<sub>3</sub> 粉末の特性により製造条件が大きく変わり、条件設定が困難

③ NaOH 溶液で溶解した際、Mo 溶液中に不溶性残渣が多量

④ 将来の MoO<sub>3</sub> 資源の有効利用及び放射性廃棄物低減の検討から、廃棄物の低減が困難などの課題が明らかになった。特に、製造条件への影響に関しては、一定の製品を製造することが困難となり、最終製品である <sup>99m</sup>Tc の安定製造にも影響することが考えられる。また、将来リサイクル MoO<sub>3</sub> 粉末を用いた MoO<sub>3</sub> ペレットを製造する際には、放射性廃棄物低減の観点からも、新たな製造技術を開発することが必要となった。このため、大量製造が期待できる熱間等方圧加圧法 (HIP 法) による高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの開発<sup>(5-5)</sup>に着手した。

また、HIP 法による高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの開発にあたっては、焼結後の MoO<sub>3</sub> ペレットの特性評価への影響を把握する必要もある。SPS 法による MoO<sub>3</sub> ペレットの焼結温度の影響と高密度 MoO<sub>3</sub> ペレット製造に用いた MoO<sub>3</sub> 粉末の特性を図 5-2-2 に示す。また、使用した始発粉末の特性及び粒子径分布をそれぞれ表 5-2-2 及び図 5-2-3 に示す。この結果、MoO<sub>3</sub> 粉末の焼結性が、MoO<sub>3</sub> 粉末の観察で明らかになった粒子径の大きさ及び 2 次粒子の存在に大きく影響されているものと考えられている。このため、SPS 法では、高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの製造にはより均一な粉末特性を準備する必要があり、製造コストが高額になる欠点が生じている。このため、HIP 法による高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの製造技術の確立にあたっては、製造面からの評価も必要である。

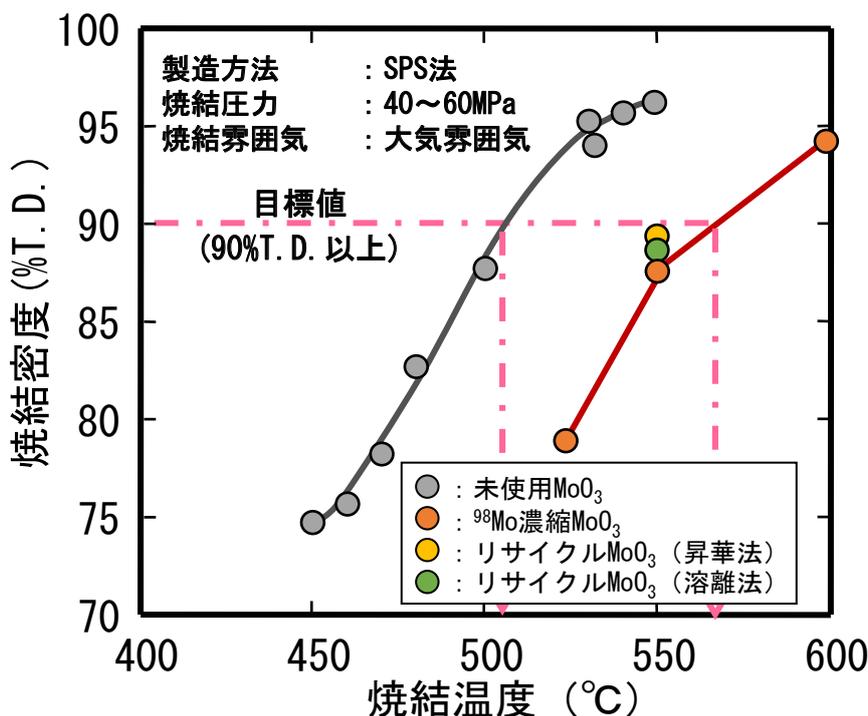


図 5-2-2 異なった MoO<sub>3</sub> 粉末を用いた MoO<sub>3</sub> ペレットの焼結特性

表 5-2-2 SPS 法による MoO<sub>3</sub> ペレット製造に使用した MoO<sub>3</sub> 粉末の特性

試料名		未使用MoO <sub>3</sub>	リサイクルMoO <sub>3</sub> (昇華法)	リサイクルMoO <sub>3</sub> (溶離法)	<sup>98</sup> Mo濃縮MoO <sub>3</sub>
製造メーカー		太陽鋇工製	太陽鋇工製	太陽鋇工製	ロシア製
粉末純度		99.99%	99.9%	99.9%	99.9%
<sup>98</sup> Mo濃縮度		24%	24%	24%	98%
不純物 (単位 ppm)	Fe	<1	1	<1	20
	Al	<10	<10	<10	<10
	Na	<5	17	62	<10
	W	20	30	10	<10
	Cu	<1	1	1	<10
	Mg	<1	<1	<1	<10
SEM像					
平均粒子径		0.7 μm	4.9 μm	12.5 μm	3.0 μm

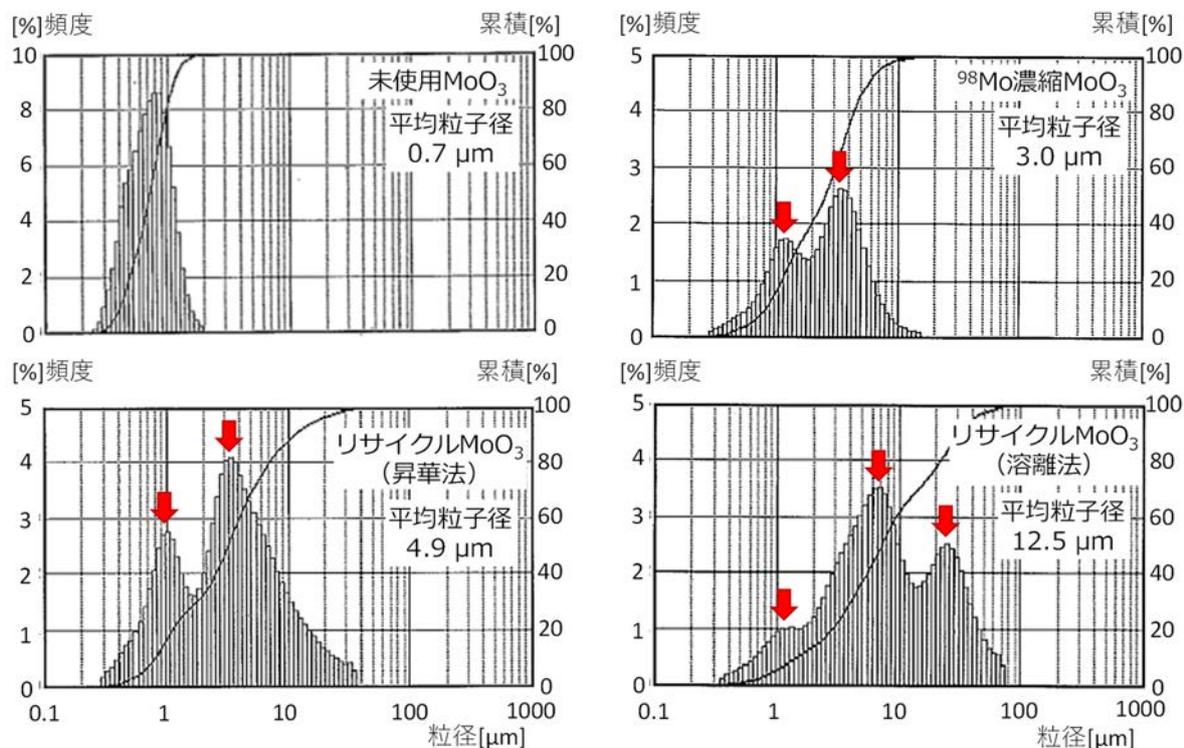


図 5-2-3 SPS 法による MoO<sub>3</sub> ペレット製造に使用した MoO<sub>3</sub> 粉末の粒子径分布

③ 試験方法

HIP 法とは、圧力容器内にアルゴンガスなどのガスを圧力媒体とし、ヒーターで加熱することにより、高い圧力と温度の相乗効果を利用して、金属の接合及び粉末の焼結を行う方法である。SPS 法と HIP 法による製造概念図と製造方法の比較を図 5-2-4 に示す。HIP 法による高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの製造プロセスを図 5-2-5 に示す。原料である MoO<sub>3</sub> 粉末もしくはプレス機により圧縮成形した MoO<sub>3</sub> 成形品を準備し、金属製容器（カプセル）に装荷し、カプセルリング（封止）を行った。それを HIP 装置にセットし、焼結させた。焼結後、カプセルを取り除く脱カプセルを行い、成形した高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットを加工した。

方法	SPS	HIP
概略図	<p>プレス加圧 電流加熱 MoO<sub>3</sub></p>	<p>炉内ガス加圧 炉内ガス加熱 MoO<sub>3</sub></p>
1バッチ当たりの製作数量	数個	数十～数百個

図 5-2-4 SPS 法と HIP 法による製造概念図と製造方法の比較

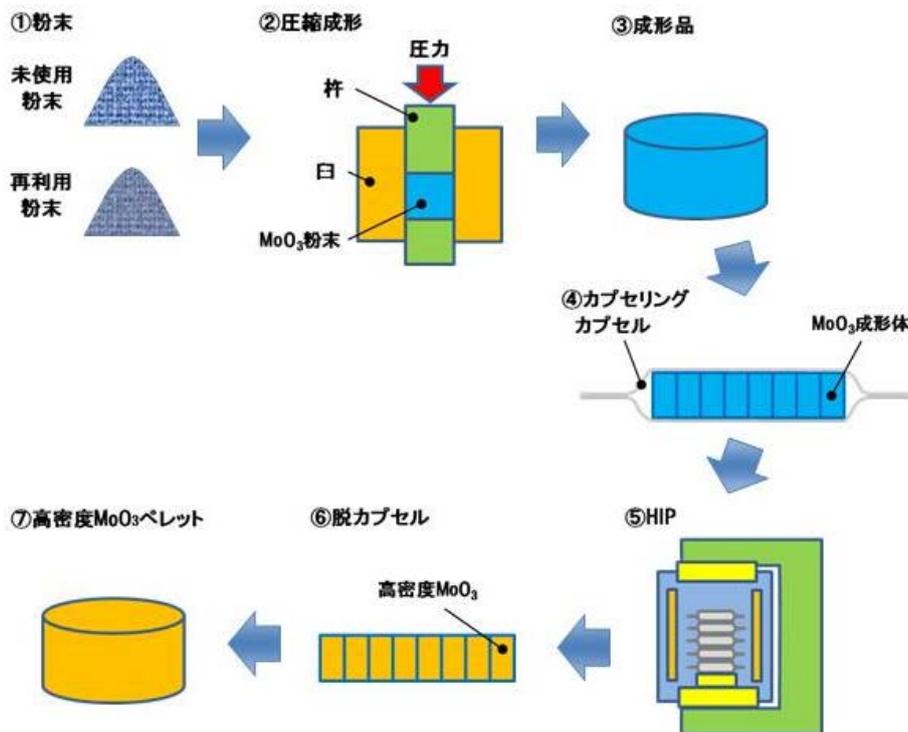


図 5-2-5 HIP 法による高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの製造プロセス

#### ④ 結果及び考察

大量製造でかつ放射性廃棄物の低減を目指した高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの製造技術として、HIP 法に着目し、1 回あたりの製造コストを評価しつつ、大量製造性を確認した。また、これまで開発してきた SPS 法による高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットとの特性の比較を行いながら、HIP 法による最終製品の高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの特性を明らかにした。HIP 法による MoO<sub>3</sub> ペレットの製造試験結果を図 5-2-6 に示す。本結果は、圧力を一定 (HIP 圧力: 190 MPa)、温度をパラメーターにして得られた MoO<sub>3</sub> ペレットの試験結果を示しているが、300°C 以上の温度では、焼結密度は 98% 以上であり、本圧力では温度に関係なく、ほぼ同一の焼結密度を有する MoO<sub>3</sub> ペレットが製作できた。

試作した MoO<sub>3</sub> ペレットは、電子顕微鏡 (SEM) 及び X 線回折装置 (XRD) を用いて、MoO<sub>3</sub> ペレットの結晶粒径の観察及び結晶構造を調べた。始発粉末及び試作した MoO<sub>3</sub> ペレットの X 線回折結果を図 5-2-7 に示す。この結果、すべての焼結条件で MoO<sub>3</sub> に関連するピークであり、始発粉末とのピーク位置との相違も観察されなかった。また、各焼結温度における MoO<sub>3</sub> ペレットの SEM 破面観察結果を図 5-2-8 に示す。この結果、焼結温度が 500°C 以下では、粒成長は小さかったが、焼結温度が 500°C 以上と高温になるとともに MoO<sub>3</sub> ペレットの粒子径が成長していた。600°C の焼結温度では、針状組織が一部生成されていた。さらに、SEM に付随している電子プローブマイクロアナライザ (EPMA) を用いて MoO<sub>3</sub> ペレットの定性分析を行い、主元素は酸素 (O) と Mo であった。

試作した MoO<sub>3</sub> ペレットの 6M-NaOH 溶液への溶解試験を行ったところ、SPS 法で製作した MoO<sub>3</sub> ペレットと同様な溶解特性が得られた。なお、Mo 溶液は MoO<sub>3</sub> ペレットの焼結温度の上昇とともに濃い黒色になった。これは、焼結時の MoO<sub>3</sub> の還元によるものと考えられることから、焼結後の MoO<sub>3</sub> ペレットの酸化処理工程や溶解時に過酸化水素水を添加する工程を追加することにより、無色透明な Mo 溶液を得ることができた。

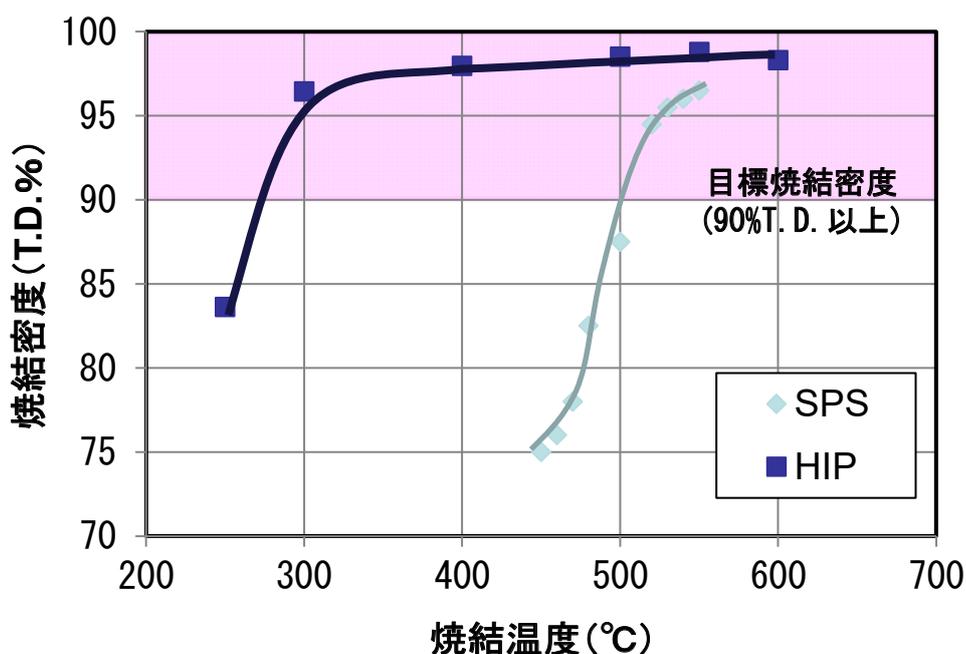


図 5-2-6 従来の SPS 法と開発した HIP 法による MoO<sub>3</sub> ペレットの焼結特性

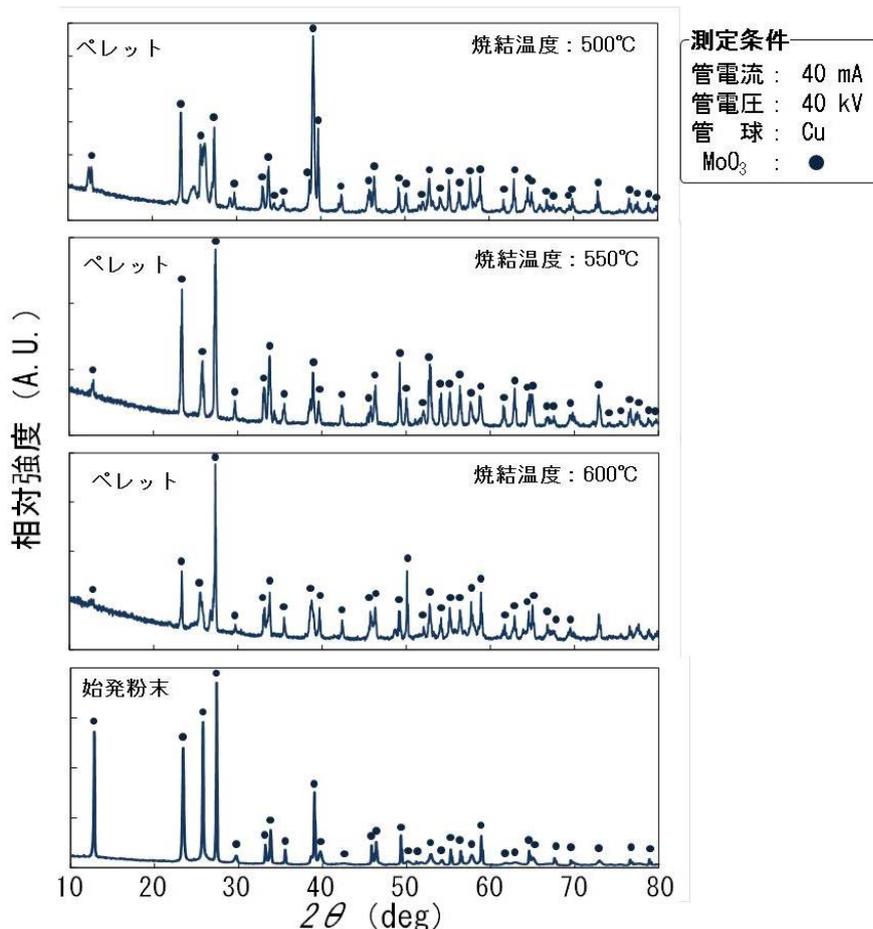
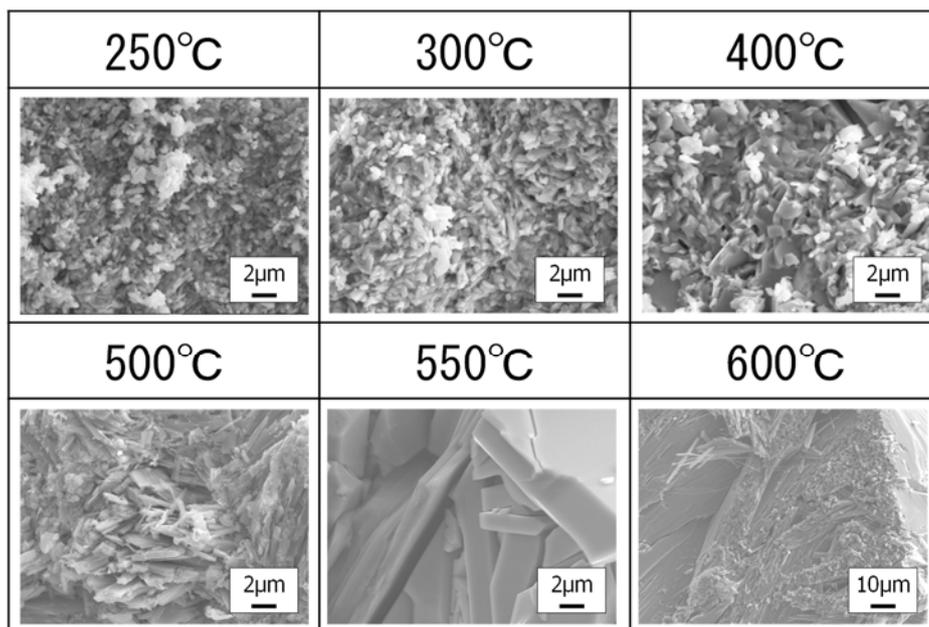


図 5-2-7 試作した MoO<sub>3</sub> ペレットの X 線回折結果



※ : 温度は、焼結温度を示す。

図 5-2-8 HIP 法で製作した MoO<sub>3</sub> ペレットの SEM 破面観察結果

以上の結果により、数十個のペレットを一度にカプセルングすることにより、HIP 法による MoO<sub>3</sub> ペレットの大量製造が可能である見通しを得た。また、焼結後、SPS 法では高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットに治具（ダイス等）であるカーボンの張り付きが起こるため、治具の交換は焼結体を 約 10 個製造するごとに行なう必要があり、放射性廃棄物の発生が懸念されていた。一方、HIP 法では、カプセルを廃棄する必要があるものの、カプセル材の厚みは 0.05～3mm 程度と薄く、少量となる。また、ペレット数十個の製作に対して、廃棄されるカプセルは 1 つであるため、本カプセルング方法を適用することで、SPS 法と比較して放射性廃棄物の低減も可能である。さらに、HIP 法では、バインダーなどを使用せず焼結が可能であり、カプセル材に反応性の低い材料を選定することで、不純物の少ない高密度 MoO<sub>3</sub> ペレットの製作も可能であることを明らかにした。

## 5.3 <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 分離・抽出・濃縮技術開発

### 5.3.1 マスターミルク（溶媒抽出法）

#### ① 課題目標

JMTR 等の研究用原子炉で中性子照射した高密度 MoO<sub>3</sub> ペレット 300～400g を処理可能な実用型 <sup>99m</sup>Tc 分離濃縮装置を開発するとともに、国産 <sup>99m</sup>Tc のニーズを満足させるために 80%以上の安定回収率を確立する技術確立を目指す。得られる <sup>99m</sup>Tc 溶液は、実証試験段階において、放射性医薬品原料として国産事業者（製薬メーカ等）に提供可能なよう放射性医薬品基準及び日本薬局方の基準を満足させる。

#### ② 現状と問題点

JMTR の既存照射設備（照射孔 D-5：図 5-2-1 参照）で 6 日間照射した時、生成される <sup>99</sup>Mo の比放射能は 1.3Ci/g-Mo と評価されている。天然 MoO<sub>3</sub> (<sup>98</sup>Mo 存在比 23.75%) を 300～400g (Mo 量として 200～270g) を使用した場合、得られる <sup>99</sup>Mo 放射能は 55～75 6-day Ci/週となる。また、前述したとおり、新規照射設備が整備されれば、天然同位体比の MoO<sub>3</sub> を用いることにより、230 6-day Ci/週の製造は可能となる。一方、<sup>98</sup>Mo 濃縮 <sup>98</sup>MoO<sub>3</sub> (<sup>98</sup>Mo 存在比 95%) を使用すれば、既存照射設備でも 230 6-day Ci/週の製造は可能であると考えられる。また、<sup>99m</sup>Tc に関しては、(n, f)法で製造した <sup>99</sup>Mo 用に使用されているマスターミルクでは、80%以上の効率で <sup>99m</sup>Tc を溶出可能となっている。

(n, γ)法で製造した <sup>99</sup>Mo は比放射能が低いことから、<sup>99m</sup>Tc を分離濃縮する方法を開発する必要がある。現在、活性炭カラムに吸着させる方法<sup>(5-6)</sup>や <sup>99m</sup>Tc と <sup>99</sup>Mo の昇華温度の違いを利用した乾式による方法<sup>(5-7)</sup>などいくつかの精製・回収方法が提案されている。本開発では、操作性などの観点から、<sup>99m</sup>Tc と <sup>99</sup>Mo の分離に溶媒抽出による方法を選定し、さらに高い比放射能を有する <sup>99m</sup>Tc 溶液を得るためのカラム法を組合せた精製・回収方法を選定した。

#### ③ 溶媒抽出法

炉外性能試験として、溶媒抽出法による <sup>99</sup>Mo 溶液から <sup>99m</sup>Tc 溶液の回収における基盤技術の開発を行った。

溶媒抽出法により、原子炉内の(n,  $\gamma$ )反応により、100Ciを超える大量の $^{99}\text{Mo}$ を商業レベルで製造した経験を持つのは、オーストラリアである<sup>(5-8)</sup>。その方法の概要を以下に記載する。照射した $\text{MoO}_3$  250g (比放射能 1Ci/g- $\text{MoO}_3$ 以上)を水酸化カリウム (KOH) 溶液に溶解し、メチルエチルケトン (MEK) を加えて、空気を吹き込むことによる攪拌で MEK に $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を抽出する。この抽出液を水相と分離し蒸発容器に移し、MEK を加熱及び $\text{N}_2$ ガスを吹き付けつつ乾固する。残った $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は、生理食塩水で溶解し、製品とするものである。この方法は、MEK で抽出後の $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を含んだ MEK の煩雑な蒸発操作を含み、かつ、MEK の相分離の際、水相が少量混ざっても得られる製品がわずかに着色してしまう恐れもある。そのため、この蒸発操作を避ける方法が望まれた。

このプロジェクトで開発した方法は、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を含む MEK を、 $^{99}\text{Mo}$ などの不純物を除くために塩基性アルミナカラム (以降、塩基性 $\text{Al}_2\text{O}_3$ カラムとする)に通し、そのまま、酸性アルミナカラム (以降、酸性 $\text{Al}_2\text{O}_3$ カラムとする)に導き $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を吸着させ、吸着した $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を生理食塩水で分離し、製品とするものである。しかし、この方法は、500mCiの取扱にすぎなく、多量の $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の際への適用は検討されてこなかった<sup>(5-9)</sup>。そのため、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ と化学的性質が同じであるレニウム (Re)<sup>(5-10)</sup>を利用して、1500 Ci までの $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の製造への適用の可能性を調べた。この実験は、実用化にとって不可避な、アルミナカラム (以降、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ カラムとする)中の流速制御についての試験も行った。

このコールド試験では、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の代わりに Re を使い、 $^{99}\text{Mo}$ の量は100~1500Ciとした。実験を始める前に、添加する Re 量を決めるため、まず、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 製造時に存在する $^{99\text{m}}\text{Tc}$ と崩壊により生成するテクネチウム-99 ( $^{99}\text{Tc}$ )の総量を求めた。次に、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の取扱量、すなわち、Reの添加量を変化させた場合の酸性 $\text{Al}_2\text{O}_3$ カラムへの吸着性能、脱着性能を調べた。試験に使用した Re は、 $^{99}\text{Mo}$ として100、500、1000及び1500 Ciから計算した量とした。この条件で、次のように、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の量や各 $\text{Al}_2\text{O}_3$ カラム径を変えた場合の溶離プロファイルを求めた。(i)  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 量 5g、カラム径 10mm、(ii)  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 量 7g、カラム径 12mm、(iii)  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 量 7g、カラム径 14 mm、の3種類の実験を実施したが、ここではカラム径、14mmの場合について述べる。また、実用化を考慮した場合に必要なカラムに流す液体の流速を制御するため、タンデムに配置した塩基性 $\text{Al}_2\text{O}_3$ カラムと酸性 $\text{Al}_2\text{O}_3$ カラムに常圧で流した場合と下流側に減圧ポンプを配し、吸引により流した場合(2種類)について試験した。

常圧における酸性 $\text{Al}_2\text{O}_3$ カラムからの Re の溶離結果を図 5-3-1-1 に示す。溶離液 4 mL から 20 mL のフラクションで酸性 $\text{Al}_2\text{O}_3$ カラムに吸着された大部分の Re が溶離することが分かった。また、回収率は $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 放射能換算として 2.5~24.6TBq (67.6~665 Ci) で 90%以上、36.7TBq (992 Ci) においても 85%と高く (図 5-3-1-2 参照)、取り扱いに優れていることが分かった。

次に、カラム処理の減圧度、8kPa と 13kPa について検討した。減圧条件下における Re の溶離結果を図 5-3-1-3 に示す。この結果、常圧とほぼ同様に、回収率についても 90%以上の Re を 18mL に回収できることが分かった (図 5-3-1-4)。この中で、減圧度 8kPa で行った処理では、得られた Re 濃度は 20.0  $\mu\text{g/mL}$  ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 換算で 584GBq/mL (15.8Ci/mL)) で、減圧度 13kPa では、Re 濃度は 19.7  $\mu\text{g/mL}$  ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 換算で 575GBq/mL (15.5Ci/mL)) であった。目標とした Re 濃度 12.7  $\mu\text{g/mL}$  ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 換算で 370GBq/mL (10Ci/mL)) の 1.6 倍程度となった。

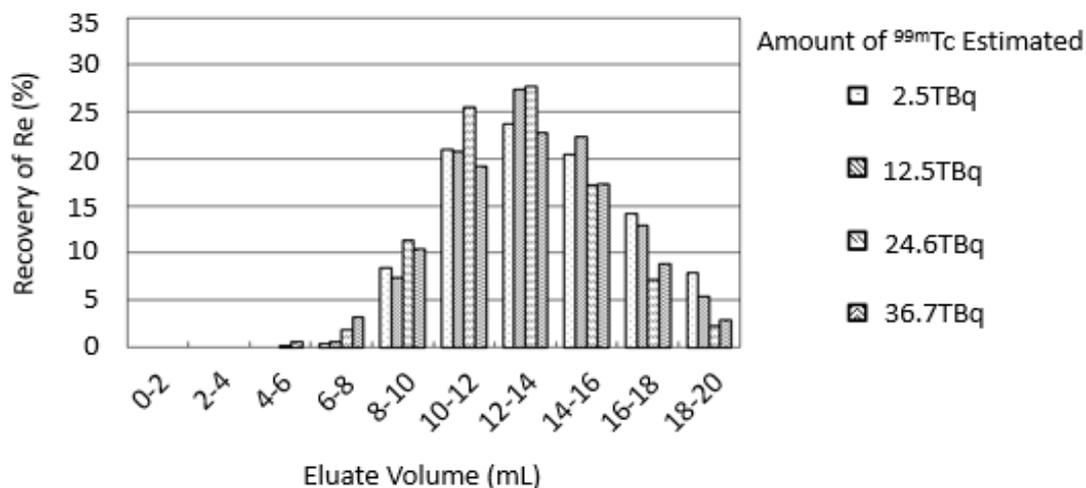


図 5-3-1-1 常圧における酸性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラム (カラム径 : φ14mm) からの Re の溶離結果<sup>(5-11)</sup>

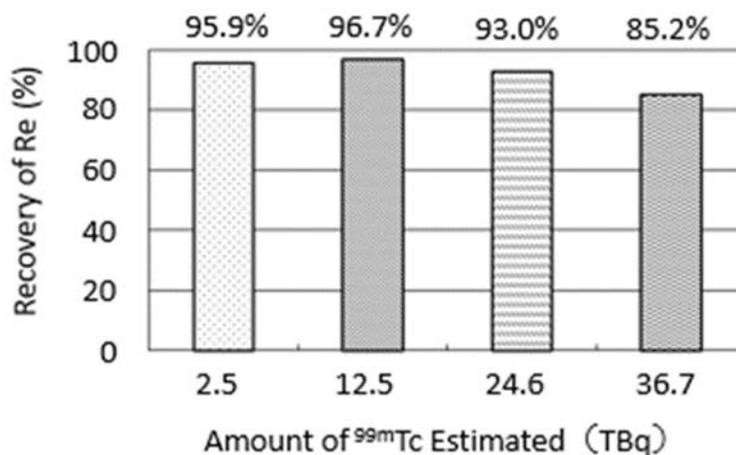


図 5-3-1-2 酸性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラム (カラム径 : φ14mm) からの Re の回収特性<sup>(5-11)</sup>

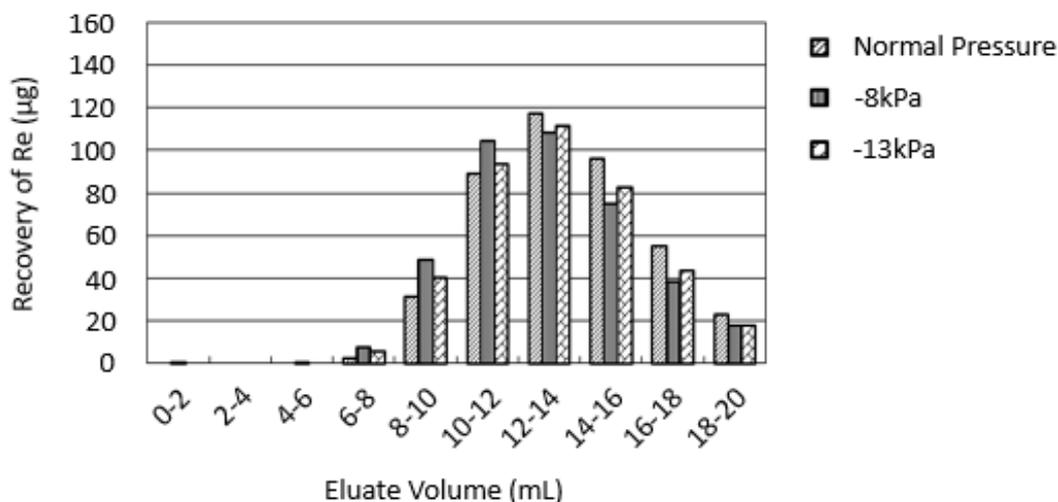


図 5-3-1-3 減圧下における酸性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラム (カラム径 : φ14mm) からの Re の溶離結果<sup>(5-11)</sup>

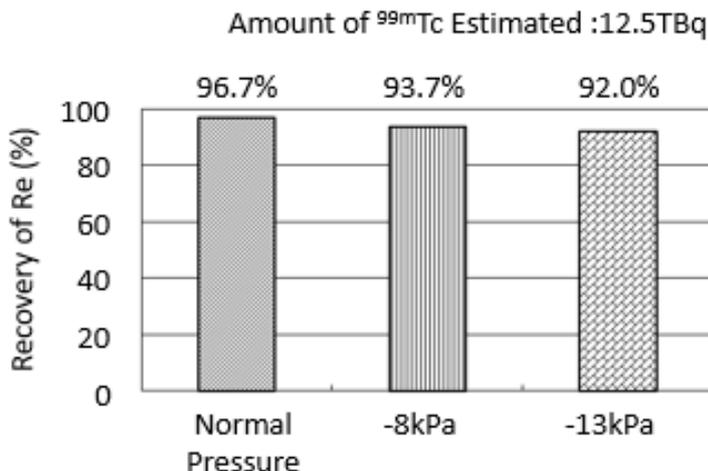


図 5-3-1-4 酸性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラム(カラム径 : φ14mm)からの Re の回収特性<sup>(5-11)</sup>

これにより、カラム径 14mm、Re 添加量 428 μg (<sup>99m</sup>Tc 放射能 12.5 TBq, 338 Ci 相当) の場合、Re(すなわち、<sup>99m</sup>Tc)は 90%以上の高い回収率を得ることが確認できた。この結果に基づき、実用型 <sup>99m</sup>Tc 分離濃縮装置においては、カラム径 14mm (塩基性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラム、酸性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラムにそれぞれ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を 7g 充填) や減圧ポンプによる液体の流速制御の方法を採用した。

④ 実用型 <sup>99m</sup>Tc 分離濃縮装置の設計・製作

予備試験では、ガラス製分離・抽出・濃縮試験装置を用い、<sup>99m</sup>Tc の回収率向上を図った。この結果、<sup>99m</sup>Tc の代わりに Re を用いて、ほぼ 100%の回収率を得た。実際、<sup>99m</sup>Tc の半減期が約 6 時間であり、<sup>99</sup>Mo 溶液から <sup>99m</sup>Tc 溶液の抽出時間を考慮すると、実質的な <sup>99m</sup>Tc 回収率は 80±5%となる(図 5-3-1-5)<sup>(5-12, 5-13, 5-14)</sup>。

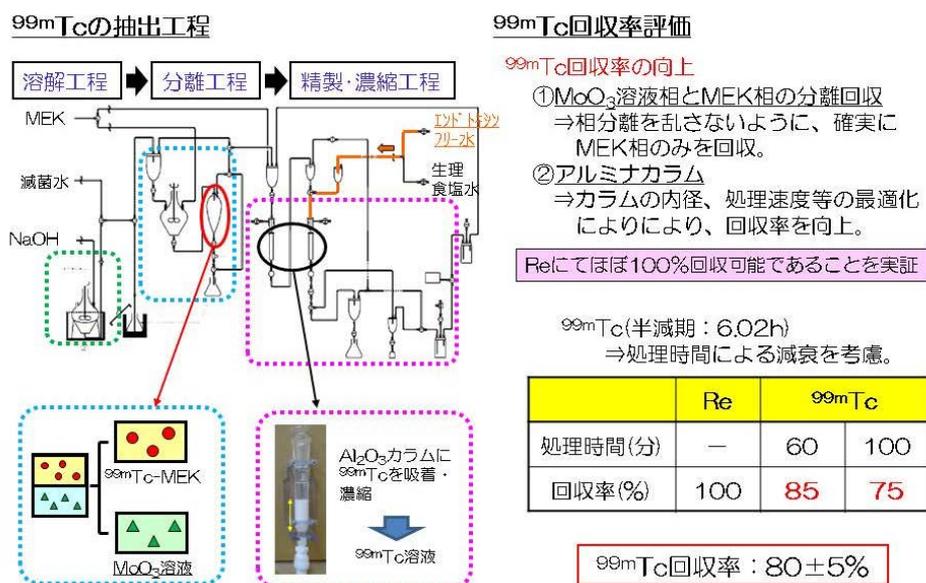


図 5-3-1-5 溶媒抽出法による <sup>99</sup>Mo 溶液から <sup>99m</sup>Tc 溶液の回収効率の評価結果

実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置は、実用規模の放射能量(250 6-day Ci/週以上)に耐え得る構造でなくてはならない。そのため、 $^{99}\text{Mo}$  を取扱う溶解槽及び分離槽は、これまでガラス製の容器を用いていたが、ステンレス鋼等の強固な材質を使用することとした。一方、従来目視で溶液の状態を把握できたものが、ガラス以外の材質にすることにより、目視確認ができなくなること、高い  $^{99}\text{Mo}$  放射能による  $^{99m}\text{Tc}$  の還元など、 $^{99m}\text{Tc}$  の分離・回収効率が低下することが懸念された。また、溶解槽では強アルカリ溶液を用いて大量の  $\text{MoO}_3$  (300~400g) を溶解することから、ステンレス鋼の成分が溶出し、 $^{99m}\text{Tc}$  溶液の品質を低下する可能性があった。これらの課題点を解決し、実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置は、2014 年度の総合特区推進調整費を活用して整備した。整備した実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置の外観写真を図 5-3-1-6 に示す。

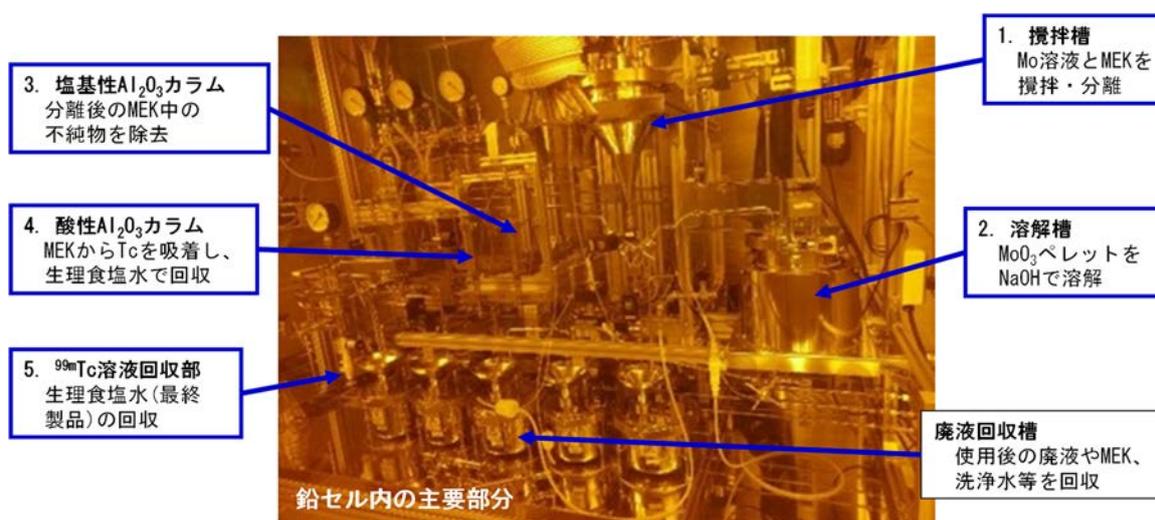


図 5-3-1-6 実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置の外観写真

本試験装置は、主に①照射済  $\text{MoO}_3$  ペレット溶解系、② $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  分離・抽出系、③カラム精製・濃縮系、④高レベル溶液移送系から構成されている。その他、薬液注入系、吸引系、配管・電磁弁または圧空弁系等も設置されている。 $^{99}\text{Mo}$  が含まれている  $\text{Mo}$  溶液から高純度の  $^{99m}\text{Tc}$  のみを短時間に分離・抽出・濃縮できる性能を有し、放射性物質を取扱うことから JMTR ホットラボ施設にある鉛セル内に設置したが、セル内に設置する装置の自動化をできる限り図るとともに、遠隔操作性が良い構造・配列とした。また、各系統はユニット化を図り、メンテナンス・交換性を考慮した。

## ⑤ 開発成果

### ㊦ 実用型 $^{99m}\text{Tc}$ 分離濃縮装置の炉外性能試験

本試験装置を用いて、 $^{99m}\text{Tc}$  の代わりに  $\text{Re}$  を用いて炉外での性能試験を実施した。 $^{99m}\text{Tc}$  ( $\text{Re}$ ) の抽出工程は、溶解工程、(抽出) 分離工程、精製・濃縮工程である。その実験手順を図 5-3-1-7 に示す。

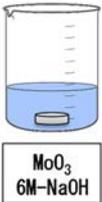
	溶解	抽出分離	精製	濃縮	回収
操作手順	 MoO <sub>3</sub> 6M-NaOH	 MEK	 塩基性Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> カラム	 酸性Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> カラム	 99mTc溶液
試験条件	手動操作	自動操作 (実用型 <sup>99m</sup> Tc分離濃縮装置の制御盤にて操作)			
	<ul style="list-style-type: none"> <li>① 200gの未照射MoO<sub>3</sub>を500mLの6M-NaOH溶液で溶解し、Mo溶液を作製</li> <li>② 試験装置の溶解槽にMo溶液を導入</li> <li>③ Re溶液の添加</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>① MEK90mLを添加</li> <li>② 攪拌5分実施</li> <li>③ Mo溶液とMEKを分離し、MEKを回収</li> <li>※ Mo溶液からMEKに移動した<sup>99m</sup>Tc (Re)の割合を抽出率とする。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>① MEKを塩基性Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>カラムに通液 (不純物除去)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>① MEKを酸性Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>カラムに通液</li> <li>② <sup>99m</sup>Tcの吸着</li> <li>③ カラムの洗浄</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>① 生理食塩水を酸性Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>カラムに通液</li> <li>② <sup>99m</sup>Tc (Re)回収</li> <li>※ Mo溶液から回収した<sup>99m</sup>Tc (Re)の割合を回収率とする。</li> </ul>

図 5-3-1-7 実用型 <sup>99m</sup>Tc (Re) 分離試験手順

この性能試験では、450 μg の Re (<sup>99m</sup>Tc 354Ci に相当) を使用した。また、性能試験を実施する中で、抽出後の液相分離の検出器を導電率によるものから熱伝導率によるものに代えた。さらに、攪拌機の回転翼の形状や位置、抽出分離後の MEK 相を効率よく塩基性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラムに移送できる分岐管を開発するなど、装置に改良を加えた。数多くの性能試験を実施し、最終的に 80% の Re を回収することに成功した (表 5-3-1-1)。この中で、Re の 10% ほどの存在が不明となったが、攪拌槽の内部上側に Mo 溶液が付着したため、その中の Re が回収できなかったためと考えた。

当初、200g の MoO<sub>3</sub> を使って Re 回収試験を実施したが、その後 300g の MoO<sub>3</sub> に Re を 675 μg (<sup>99m</sup>Tc 531Ci に相当) 添加し、実用型 <sup>99m</sup>Tc 分離濃縮装置による Re 回収試験を継続した。この試験で課題となるのは、MoO<sub>3</sub> が 300g となることに伴い増加する Mo 溶液に対する MEK の体積である。攪拌時間を 5 分、135 mL の MEK 量で行ったが、150 mL の抽出率が上回ったため、後者を選択した。この条件で、㊸のホット試験を実施した。

表 5-3-1-1 MoO<sub>3</sub> (200g 使用) からの Re 回収試験の結果

工 程	Re 損失率	Re 回収率
① 抽出	5 %	-
② 分離	0 %	-
(サンプリング)	(0.7 %)	-
③ 精製・濃縮 (2 段カラム)	0.02 %	-
④ 濃縮カラム洗浄	2.1 %	-
⑤ 回収	0.8 %	80 %※

※ : 再分析した結果、83 %

① KUR を用いた基礎試験

実際に放射性核種である  $^{99m}\text{Tc}$  を使用した場合にも、実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置と同様の工程で、 $^{99m}\text{Tc}$  の分離・抽出・濃縮が正しく行われるか確認するため、KUR で照射した  $^{99}\text{Mo}$  を使用し、小規模の基礎試験を行った。

照射サンプルには  $\text{MoO}_3$  ペレット片 1.5g を使用して、5MW で 20 分間中性子照射した後、4 日間冷却させて試験を実施した。冷却後、照射済み  $\text{MoO}_3$  ペレット片を 3.75mL の 6M-NaOH 溶液で溶解し、イオン交換水で 100mL に定容した ( $\text{Mo}$  ( $^{99}\text{Mo}$ ) 溶液)。一方で、 $^{99}\text{Mo}$  を含まない  $\text{MoO}_3$  粉末 33g を 6M-NaOH 溶液 85mL で溶解し、イオン交換水を 8.5mL 添加した溶液を調整しておき、 $\text{Mo}$  ( $^{99}\text{Mo}$ ) 溶液 30mL と混ぜ合わせて調整した。この時、 $\text{Mo}$  溶液の体積は約 132mL、 $^{99}\text{Mo}$  の比放射能は  $101.9 \mu\text{Ci-}^{99}\text{Mo}$  であった。

調製した水相 ( $\text{Mo}$  溶液) と有機相 (MEK) 15mL を分液ロートに加え、3 分間の攪拌及び 3 分間の静置の後、 $\text{Mo}$  溶液と MEK を分離した。分離した有機相は、1g の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を充填した塩基性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムに通し不純物を除去した後、1g の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を充填した酸性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムに通して  $^{99m}\text{Tc}$  を吸着させた。次に、塩基性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムと酸性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムを連結し、新しい MEK 10mL を流して洗浄した後、さらに酸性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムにのみイオン交換水 30mL を流しコンディショニングした。

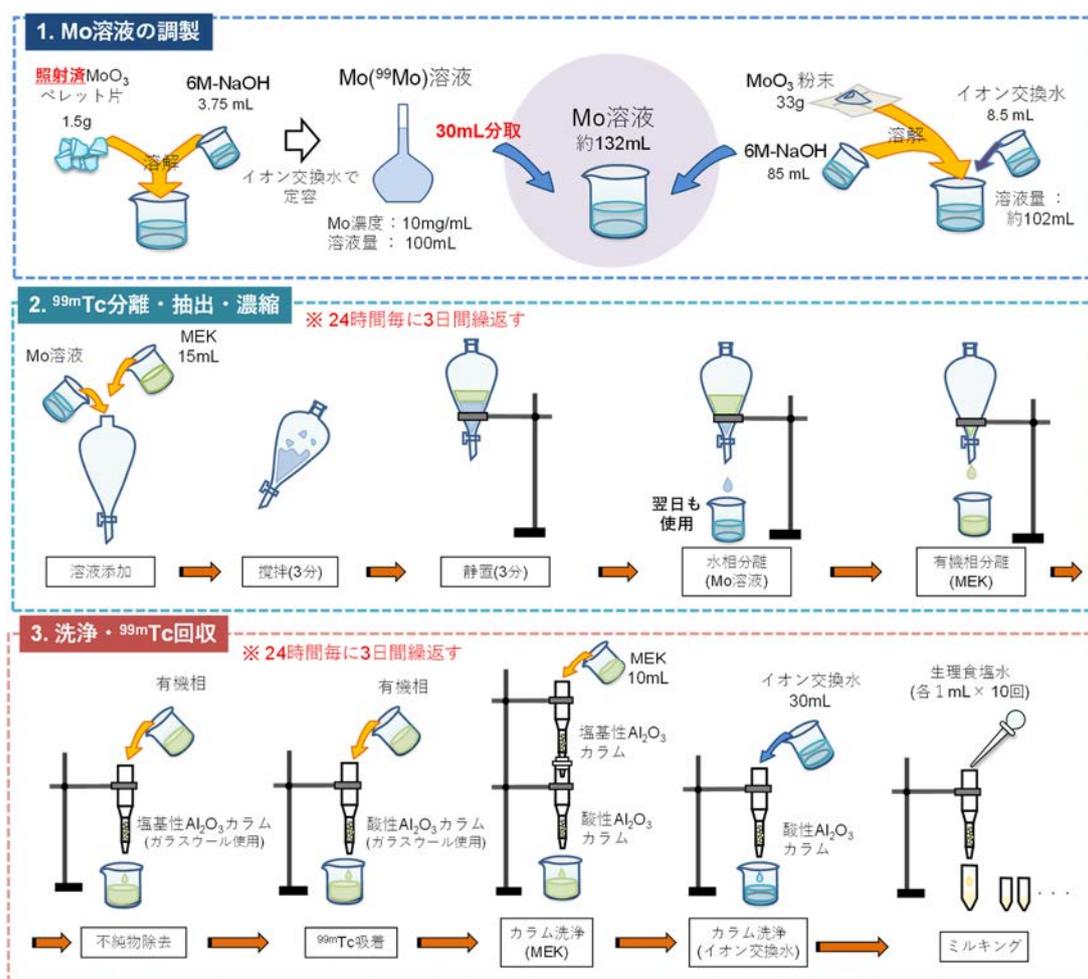


図 5-3-1-8 KUR を用いた基礎試験手順

最後に、酸性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラムに生理食塩水を 1mL×10 回通液して、<sup>99m</sup>Tc の溶出特性を調べた。この操作を 3 日間繰返し実施し、Mo 溶液は <sup>99m</sup>Tc 抽出後の溶液を繰返し使用した。得られた溶液は Ge 半導体検出器により <sup>99</sup>Mo 及び <sup>99m</sup>Tc の放射能を測定し、各試験実施日の溶媒抽出開始時刻を基準に減衰補正した。KUR で行った試験手順を図 5-3-1-8 に示す。

各工程での <sup>99m</sup>Tc 含有率の推移を図 5-3-1-9 に示す。<sup>99m</sup>Tc 含有率は、抽出開始時における Mo 溶液中の <sup>99m</sup>Tc 量に対する各工程での媒体 (MEK、酸性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、生理食塩水) 中の <sup>99m</sup>Tc 量の比とした。したがって、溶媒抽出後 MEK 中の <sup>99m</sup>Tc 含有率が「<sup>99m</sup>Tc 抽出率」、生理食塩水中の <sup>99m</sup>Tc 含有率が「<sup>99m</sup>Tc 回収率」である。その結果、3 日間すべてで良好な結果が得られ、ほぼ 100% の <sup>99m</sup>Tc が回収された。

ミルクキングにおける 3 日間の <sup>99m</sup>Tc 溶出特性を図 5-3-1-10 に示す。<sup>99m</sup>Tc 溶出率は、酸性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラムに吸着した <sup>99m</sup>Tc 量に対する溶出液中の <sup>99m</sup>Tc 量の比とした。3 日間すべてにおいて 2mL の溶出液量でシャープなピークが観察され、4mL で <sup>99m</sup>Tc が全量溶出された。これは、カラムの Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 充填量に影響を受けると推測される。このため、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を 7g 充填している実用型 <sup>99m</sup>Tc 分離濃縮装置では、ブロードな溶出ピークになると考えられる。また、3 日間すべての溶出液で <sup>99</sup>Mo の混入は見られなかった。

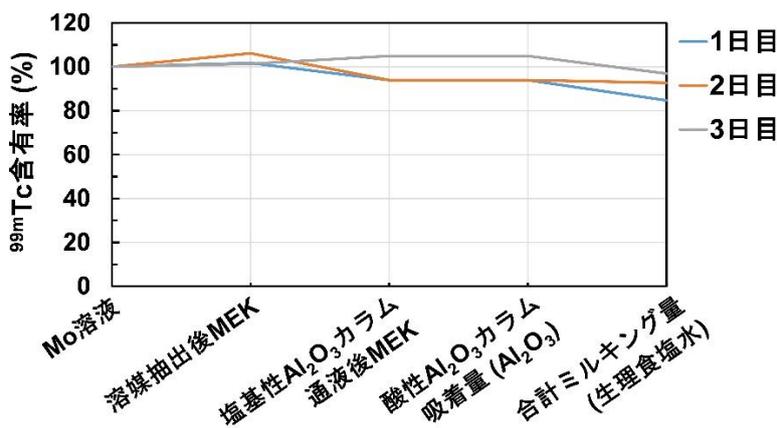


図 5-3-1-9 各工程における <sup>99m</sup>Tc 含有率の推移

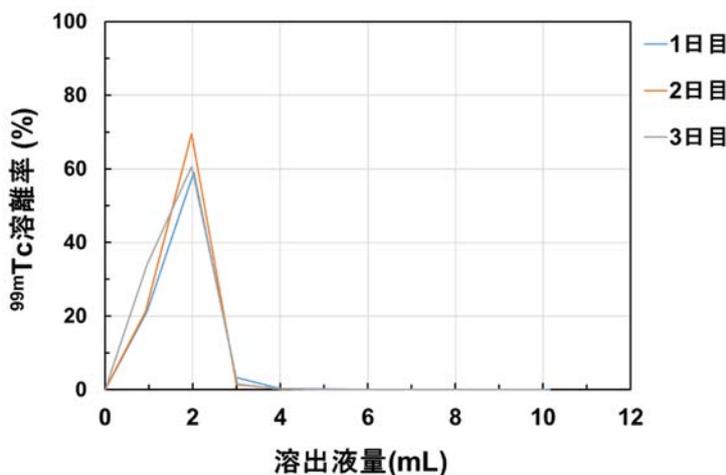


図 5-3-1-10 ミルクキングにおける <sup>99m</sup>Tc 溶出特性

以上の結果より、 $^{99m}\text{Tc}$  を用いた試験でも  $^{99m}\text{Tc}$  の分離・抽出・濃縮が正しく行われることを明らかにし、実際に  $^{99m}\text{Tc}$  を用いた実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置のホット試験でも  $^{99m}\text{Tc}$  回収が可能である見通しを得た。

#### ㊦ 実用型 $^{99m}\text{Tc}$ 分離濃縮装置を用いたホット試験

実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置の炉外性能試験において、Re の回収率が 80%以上であったことから、装置の有効性が確認できたため、本装置を JMTR ホットラボ鉛セル内に設置し、実際に  $^{99m}\text{Tc}$  を使用して回収試験を実施した。その実験手順を以下に示す。

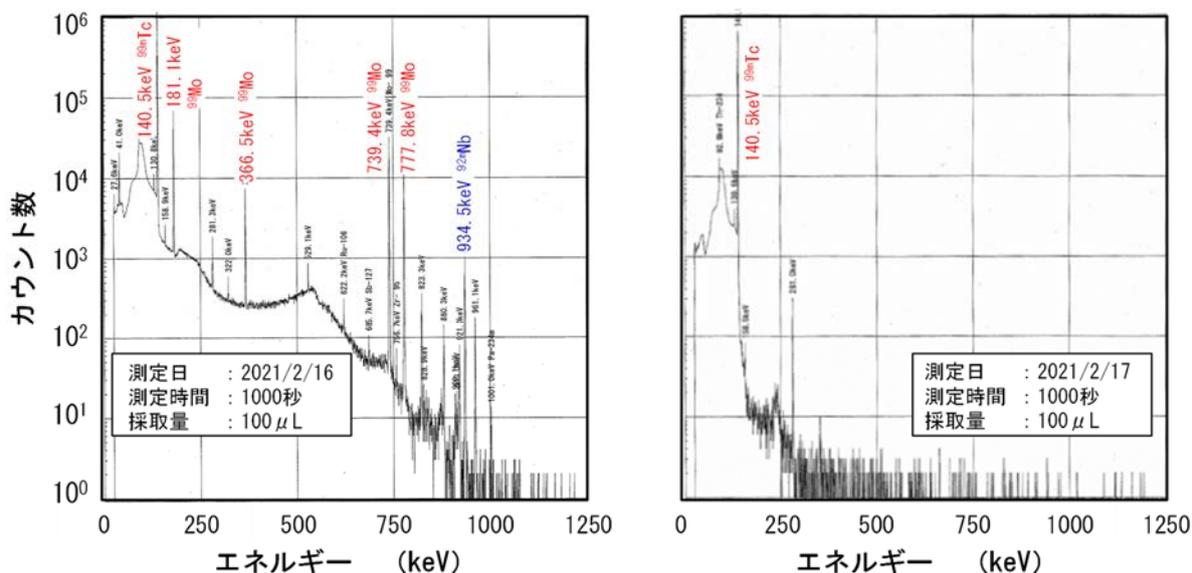
照射サンプルには、高密度  $\text{MoO}_3$  ペレット ( $\phi 18 \times 10\text{mm}$ ) 6 個 (約 66g) を用意し、2 本のアルミニウム製密封容器に 3 個ずつ封入した。密封容器は、さらに照射カプセルに封入され、KUR の水压輸送管にて 5MW で 12 分間照射した。照射後、 $\text{MoO}_3$  ペレットは 6 日間冷却した後、JMTR ホットラボに輸送し、ホットラボにある鉛セルにおいて、そのペレットを溶解し実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置により、 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  分離・抽出・濃縮試験を行った。

照射済み高密度  $\text{MoO}_3$  ペレットは簡易的な溶解装置により、6M-NaOH 溶液 165mL を加え、わずかに加熱して数時間で溶解できた。その  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  溶液を溶解槽に移した。別途、234g の未照射の  $\text{MoO}_3$  粉末を 585mL の 6M-NaOH 溶液で溶解し、溶解槽内で  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  溶液と混合した。この溶液中には、原子炉照射中や冷却、輸送などを行う中で、 $^{99m}\text{Tc}$  の崩壊により生成する長半減期の  $^{99}\text{Tc}$  が多量に混入している。 $^{99}\text{Tc}$  を除くため、抽出槽内で  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  溶液と MEK150mL で 5 分の攪拌、5 分の静置により、MEK 相内の  $^{99}\text{Tc}$  を抽出、除去した。この初期抽出を終えた  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  溶液は 24 時間後の  $^{99m}\text{Tc}$  のミルクキングに備えて保管容器に移し、翌日のミルクキングに供した。なお、ミルクキングにあたっては、Re を添加しない条件で  $^{99m}\text{Tc}$  の分離・抽出試験を行った。

保管容器から  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  溶液を攪拌槽に移送した後、鉛セル外から MEK150mL を攪拌槽に注入し、 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  溶液と MEK を約 5 分間攪拌した。5 分間の静置後、 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  溶液と MEK を分離・回収した。 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  溶液は、MEK への  $^{99m}\text{Tc}$  抽出率を求めるため、一時保管し、放射能測定をするため、 $100 \mu\text{L}$  採取した。その後、24 時間後のミルクキングに備えて、保管容器に移した。 $^{99m}\text{Tc}$  を抽出した MEK は、塩基性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムと酸性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムの順に通液し、前段のカラムで放射性核種純度に影響を及ぼす  $^{99}\text{Mo}$  の除去を、後段のカラムで  $^{99m}\text{Tc}$  の吸着処理を行った。なお、塩基性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムに残存する  $^{99m}\text{Tc}$  をできるだけ酸性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムに吸着させる目的で、MEK30mL を塩基性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラム、酸性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムの順に通液した。次に、 $^{99m}\text{Tc}$  が吸着した酸性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムは、MEK、エンドトキシンなどを除去するために、超純水 (180mL) で洗浄した。最後に、酸性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムに生理食塩水 4mL を通液し、MEK・洗浄用水受槽に回収後、生理食塩水 20mL を通液し、製品受槽を経由して  $^{99m}\text{Tc}$  溶液を回収した。この  $^{99m}\text{Tc}$  溶液からマイクロピペットで  $100 \mu\text{L}$  を採取、放射能測定試料を作製し放射能測定を行った。測定装置として、環境用  $\gamma$  線分析プログラム「SEIKO EG&G」を備えた Ge 半導体検出器 (AMETEK 社製 型式: GMX25P4-70) を使用した。ミルクキングで得られた  $^{99m}\text{Tc}$  溶液 (約 18mL) は、バイアル瓶にアルミキャップ栓を施し、表面汚染がないことを確認後、A 型輸送用鉛容器に収納し、品質検査のために JMTR ホットラボから輸送した。 $^{99m}\text{Tc}$  溶液の品質試験項目は、 $^{99m}\text{Tc}$  放射能、放射化学的異物、アルミニウム濃度、エンドトキシン濃度、異核種、pH、浸透圧及び MEK 濃度とした。

実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置を用いたホット試験は、2020 年度に 3 回実施した。照射済  $\text{MoO}_3$  ペレットを溶解した  $\text{Mo}$  溶液や抽出した  $^{99m}\text{Tc}$  溶液は  $\text{Ge}$  半導体検出器を用いて、各試験で放射能測定を行った。 $\text{Mo}$  溶液と  $^{99m}\text{Tc}$  溶液の  $\gamma$  線スペクトル分析結果（例）を図 5-3-1-11 に示す。この結果、実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置を用いて、 $\text{Mo}$  溶液から  $^{99}\text{Mo}$  が含まれない  $^{99m}\text{Tc}$  溶液を抽出できることが実証できた。得られた  $\gamma$  線スペクトル分析結果により、 $^{99m}\text{Tc}$  回収率を算出したが、今回の試験では、 $^{99m}\text{Tc}$  の抽出には成功したものの、多くの  $^{99m}\text{Tc}$  が酸性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムに吸着されずに  $\text{MEK}$  とともに流れてしまった。

実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置の  $^{99m}\text{Tc}$  回収試験結果の一例を表 5-3-1-2 に示す。表 5-3-1-2 は抽出・分離前の  $\text{Mo}$  溶液中の  $^{99m}\text{Tc}$  放射能を 100% として計算している。なお、それぞれの  $^{99m}\text{Tc}$  の放射能は濃度と液量から算出したが、各工程で  $\text{MEK}$  を取り出し、液量を計測することは不可能なため、 $\text{MEK}$  は損失無しとして計算したことから、 $^{99m}\text{Tc}$  放射能が 100% を超えてしまっている。



(1)  $\text{Mo}$  溶液の  $\gamma$  線スペクトル (溶媒抽出前)      (2)  $^{99m}\text{Tc}$  溶液の  $\gamma$  線スペクトル

図 5-3-1-11  $\gamma$  線スペクトル分析の結果

表 5-3-1-2 実用型  $^{99m}\text{Tc}$  分離濃縮装置の  $^{99m}\text{Tc}$  回収試験結果の一例

工程	第 1 回目試験 各工程における $^{99m}\text{Tc}$ 比	第 2 回目試験 各工程における $^{99m}\text{Tc}$ 比
① 抽出・分離前 ( $\text{Mo}$ 溶液)	100%	100%
② 抽出・分離	86.5%	90%
③ 精製・濃縮 (2 段カラム)	69.1%	106.2%
④ 濃縮カラム洗浄	17.1%	10.9%
⑤ 回収	26.7%	5.3%

この結果より、<sup>99m</sup>Tc の大半が酸性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラムに吸着されていなかった。この原因は、①MEK 中の <sup>99m</sup>Tc 濃度による影響、すなわち、コールド試験では 1500Ci 相当の <sup>99m</sup>Tc と同じ重量の Re を使用していたが、ホット試験では生成された <sup>99m</sup>Tc のみしか含まれていなかったこと、②Mo 溶液の MEK への混入の影響、すなわち、抽出・分離後の MEK に Mo 溶液が混入し、<sup>99</sup>Mo (Mo) や NaOH が <sup>99m</sup>Tc よりも優先して Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に吸着されたこと、③<sup>99m</sup>Tc の化学形の変化、すなわち、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に吸着され易い <sup>99m</sup>TcO<sub>4</sub><sup>-</sup> の状態になっていない <sup>99m</sup>Tc が多いことの 3 点が考えられる。

図 5-3-1-11(1) では <sup>99</sup>Mo や <sup>92m</sup>Nb が検出されていたが、(2) では検出されていない。このことから回収した <sup>99m</sup>Tc 溶液には、放射能的に高純度であることが確認できた。

第 1 回目試験及び第 2 回目試験で回収した <sup>99m</sup>Tc 溶液は、以下の項目の評価を行った。評価項目、規格及び評価結果を表 5-3-1-3 に示す。第 2 回目試験の <sup>99m</sup>Tc 溶液は、放射化学的異物、両ロットのエンドトキシン濃度が不適合となった。ただし、放射化学的異物については <sup>99m</sup>Tc の放射能が低く、相対的に高い数値になったことが原因と考えられる。そのため、放射能が増えれば規格を満足することが可能と思われる。エンドトキシンの不適合については、今後、ホット試験で使用する容器などの乾熱滅菌処理を徹底する必要がある。また、MEK 濃度については、基準では 5000ppm 以下と満足しているものの、数百 ppm とかなり高い値であった。今後の試験では、<sup>99m</sup>Tc を吸着した後の酸性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> カラムの洗浄水の量を増やすなどの対策を講じ、MEK の低減を図る。

表 5-3-1-3 過テクネチウム酸ナトリウム (<sup>99m</sup>Tc) 溶液の評価結果

評価項目	規 格	第 1 回目試験	第 2 回目試験
性状	無色澄明の液	適合	適合
不溶性異物	たやすく検出される不溶性異物を認めない	適合	適合
放射能 (MBq)	—	58.1	10.7
放射化学的異物 (%)	5%以下	5.0	7.2 (不適合)
アルミニウム濃度	試験紙で 10ppm 以下	適合	適合
エンドトキシン濃度	陰性 (通常 0.03EU/mL)	不適合	不適合※2
異核種 (%)	<sup>99</sup> Mo 放射能は 0.015%以下	0.000	0.000
pH	4.5~7.0	6.27	6.19
浸透圧 (mOsm)	約 1 (286mOsm)	282	286
テクネ MAG3 キットの標識時の放射化学的異物※1	メインピーク以外は 10%以下	6.8	7.4
MEK 濃度	—	776	117

※1 : 1mL の <sup>99m</sup>Tc 抽出液を用いて標識、※2 : エンドトキシン濃度は 3EU/mL 以下

### 5.3.2 ジェネレータ用 Mo 吸着剤

#### ① 課題目標

(n,  $\gamma$ )法で製造した  $^{99}\text{Mo}$  用の  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータ(以降、ジェネレータとする)を実証する。(n,  $\gamma$ )法では、 $^{99}\text{Mo}$  の比放射能が小さいため、ジェネレータに使用する Mo 吸着剤の Mo 吸着量を 200mg-Mo/g と設定し開発し、得られる  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液は高純度で 20mCi/mL (0.74GBq/mL) を実現できることを目指す。また、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の 80%の安定した溶離効率、得られた  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液が放薬基で定められた基準値以下であることを目指す。

#### ② 現状と問題点

$^{99}\text{Mo}$  から  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を抽出・濃縮する装置の一つに医療用ジェネレータがある。ジェネレータの概略図を図 5-3-2-1 に示す。ジェネレータには、 $^{99}\text{Mo}$  が吸着された吸着剤を充填したカラムが内蔵されており、抽出用注射針に減圧バイアル瓶を挿し込むことで、生理食塩水がカラムを通液し  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を濃縮した溶液が得られる。この  $^{99}\text{Mo}$  から  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を抽出する操作をミルクングという。

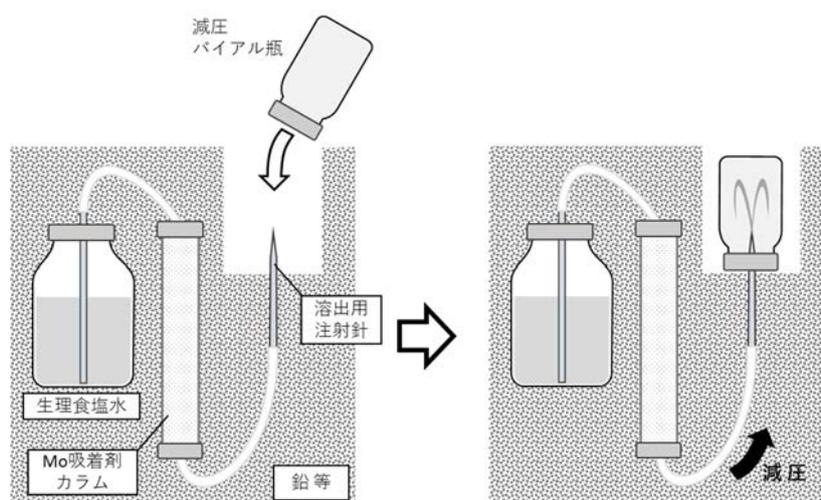
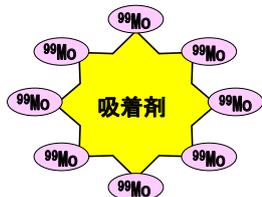


図 5-3-2-1 医療用ジェネレータの概略図(例)

(n,  $\gamma$ )法で得られる  $^{99}\text{Mo}$  比放射能は極めて低いいため、Mo 溶液中の Mo は  $^{99}\text{Mo}$  以外の Mo 同位体が大半を占めている。このため、Mo 吸着剤に Mo を吸着させると  $^{99}\text{Mo}$  以外の Mo 同位体が多く吸着されることとなり、ミルクングで十分な比放射能を含む  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液を得るためには、より多くの Mo 吸着性能を有する Mo 吸着剤が必要である。また、Mo 吸着剤の合成工程では、大気からの汚染がない装置の設計・製作も必要である。ジェネレータに用いる Mo 吸着剤への要求を図 5-3-2-2 に示す。

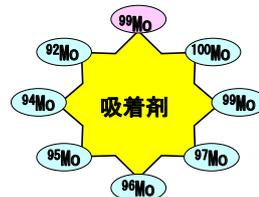
(1) <sup>99</sup>Mo製造法による比較

【核分裂法：mgオーダーの吸着】



<sup>99</sup>Moのみ吸着  
⇒比放射能が高いことから、吸着させるMo量は微量で可能

【放射化法：gオーダーの吸着】



<sup>99</sup>Moだけでなく他のMo同位体も吸着  
⇒比放射能が低いことから、吸着させるMo量は大量に必要

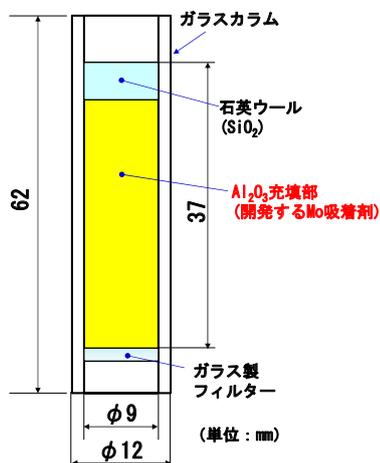
(2) Mo吸着剤の候補材料

放射化法で生成する<sup>99</sup>Moは比放射能が低いことから、高い吸着性能を有するMo吸着剤が必要。

	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系Mo吸着剤		開発中のMo吸着剤	
名称	RI用Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	RI用Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	PZC (高分子ジルコニウム化合物)	PTC (高分子チタニウム化合物)
Mo吸着量	2mg/g	20mg/g	約250mg/g	約250mg/g

図 5-3-2-2 <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc ジェネレータに用いる Mo 吸着剤への要求

現在、国内で市販されているジェネレータでは、核分裂法によって生成された<sup>99</sup>Moが用いられており、Mo吸着剤にはAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が使用されている。そのMo吸着容量は、2~20mg-Mo/g程度である。市販のジェネレータに内蔵されているカラムから設定した(n, γ)法用ジェネレータカラムの概念図を図 5-3-2-3 に示す。



項目	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 充填部
カラム内径 (cm)	0.9
充填高さ (cm)	3.2
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	0.18
充填体積 (cm <sup>3</sup> )	2.0
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 充填量 (g)	0.36

石英ウール部を5mmにした場合

図 5-3-2-3 (n, γ)法用ジェネレータカラムの概念図

ジェネレータとしての実証には、現在病院で使用されているものと同ほぼ同じ大きさの病院内設置用小型ジェネレータを設計・試作して特性評価を行うが、カラム内吸脱着が可能で、かつ得られる<sup>99m</sup>Tc溶液は高純度で20mCi/mL (0.74GBq/mL)を安定して実現する。ジェネレータの実証での最大の問題点は、溶離して得た<sup>99m</sup>Tc溶液中の不純物が放薬基で定められた基準値以下とす

ることである。溶離回収した<sup>99m</sup>Tc 溶液中には、同時に脱離した Mo やパイロジェンなどの混入が危惧される。

Mo 吸着量 200mg-Mo/g を目標値とし、Mo 吸着剤の分子設計と再生吸着剤の保存法などを検討し、新たな Mo 吸着剤の開発を行った。その結果、合成した無機高分子ジルコニウム化合物 (Polyzirconium Compound: 以降、PZC とする)<sup>(5-15, 5-16)</sup>において、Mo の溶離/吸着操作を繰り返しい、Mo 吸着量は、200mg-Mo/g を安定して確保できる結果であった。また、無機高分子チタニウム化合物 (Polytitanium Compound: 以降、PTC とする)<sup>(5-17)</sup>においても 10 回以上の再利用が可能であることを確認した。高性能 Mo 吸着剤として、従来の塩素型 PZC の他に塩素フリー型 PZC 及び PTC の開発に成功し、さらに 10 回以上の再生利用も可能であることが分かった。一方、コスト削減、放射性廃棄物の低減には 20 回以上再生できるようにすることが必要である。また、Mo 吸着・再生工程における Mo の吸脱着はカラム内で行うことが想定されており、これを可能とする装置の概念設計とともに、Mo 吸着剤を絞り込み機械的強度などを改良し、吸着剤の大量合成装置 (1kg 以上/バッチ) を実現する必要がある。

一方で、現在、市販のジェネレータには Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が使用されていることから、放薬基のジェネレータの項目には、得られる<sup>99m</sup>Tc 溶液中の金属不純物濃度として Al しか規定がなされていない。このため、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を構成する元素以外を含む Mo 吸着剤を使用する場合、その金属元素が人体へ与える影響を明らかにする必要がある、これには長い年月を要する。したがって、(n, γ) 法で生成された<sup>99</sup>Mo を使用するジェネレータの早期実用化のためには、Mo 吸着剤として Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を使用することが望まれる。以上より、Mo 吸着容量を向上させた Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の製造開発を行う必要がある。

### ③ 開発成果

#### ア 新規 Mo 吸着剤 (PZC 及び PTC)

(n, γ) 法による<sup>99</sup>Mo 製造は、(n, f) 法による製造と比較して、簡便な工程であること、放射性廃棄物量を低減できることなどの利点がある。しかしながら、<sup>99</sup>Mo の生成量は少なく、そこから抽出される<sup>99m</sup>Tc 製品の放射能濃度も低いという欠点がある。そのため、<sup>99</sup>Mo を効率良く吸着でき、リサイクル可能な Mo 吸着剤の開発を行ってきた。

リサイクル可能な Mo 吸着剤の種類を図 5-3-2-4 に示す。本プロジェクトでは、四塩化ジルコニウムを出発原料とする PZC 及びジルコニウムのアルコキッドを原料とする PZC (以降、改良型 PZC とする) についてジェネレータへの使用を検討すると共に、分光学的手法により Mo が吸着した際の構造変化の検討を行った。

まず、PZC を用いて、ジェネレータ用模擬カラムの試作及び吸着試験を行った。PZC ジェネレータ用模擬カラムを図 5-3-2-5 に示す。模擬カラムは、内径 10mm、長さ 80mm のガラス管に 1g の PZC を充填し、ガラス管両端をゴム栓により封をした。模擬カラムを用いた吸着試験では、100mCi のジェネレータを想定し、Mo 吸着量 159mg/g-PZC を目標値とした。

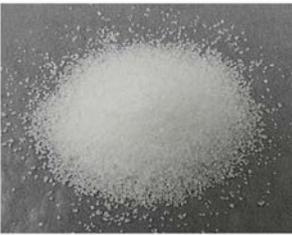
	PZC (高分子ジルコニウム化合物)	改良型PZC	PTC (高分子チタニウム化合物)
外観写真			
原料	四塩化ジルコニウム	ジルコニウム テトラブトキシド	チタン テトライソプロポキシド
コスト	高い	安い	安い
吸着性能 (mg-Mo/g)	約250	約180	約200
リサイクル	可	可	可

図 5-3-2-4 リサイクル可能な Mo 吸着剤

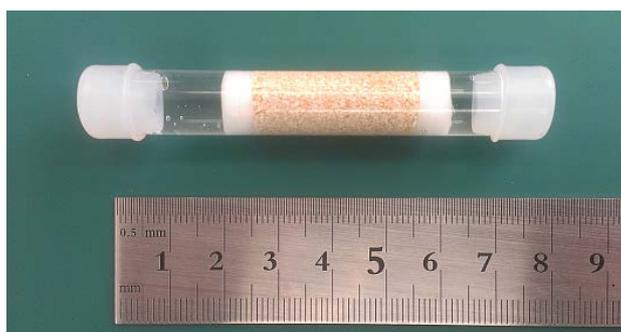


図 5-3-2-5 PZC ジェネレータ用模擬カラムの外観写真

模擬カラムを用いた吸着試験は、静置と循環の2種類を行った。静置による試験は、Mo155mgを含む溶液を添加した模擬カラムを90℃のオーブンで3時間加温した。また、リファレンスとしてバイアル瓶を用いたバッチ法による試験も行った。その結果、Mo吸着量は、模擬カラムで150mg/g-PZC、バッチ法で155mg/g-PZCであった。

加温循環による吸着試験は、図5-3-2-6に示すように、模擬カラムをオーブン内に設置し、オーブンの外からチューブポンプによりMo155mgを含む溶液を循環することにより行った。

加温循環による吸着試験の結果、図5-3-2-7に示すようにカラム内に気泡の発生が確認できた。また、加温条件を60及び40℃とした場合でも気泡の発生が確認できた。気泡の発生により、カラム内の溶液の流れが不均一になり、<sup>99m</sup>Tc溶離やリサイクル際のMo溶離に影響を与えることが考えられる。このことから、循環による吸着を行う場合は、カラムの最適な構造や吸着温度等の条件の検討が必要であると言える。

気泡の発生しない吸着条件の検討として、バッチ法による室温での吸着試験を行った。試験は、PZC1gに170mg/mLのMo溶液を2mL添加し室温で3時間、9時間静置した。吸着量を測定し

た結果、3 時間で 169mg/g-PZC、9 時間で 177mg/g-PZC となり、室温でも 100mCi のジェネレータを想定した吸着量 159mg/g-PZC を達成できることが確認できた。

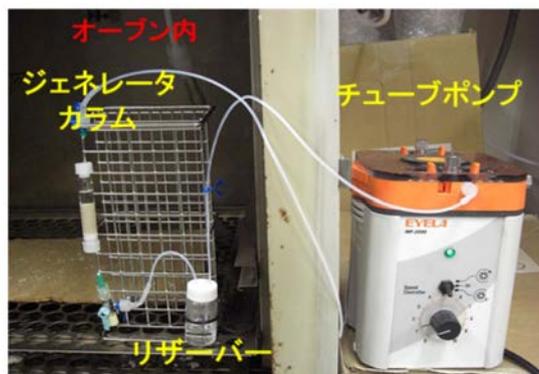
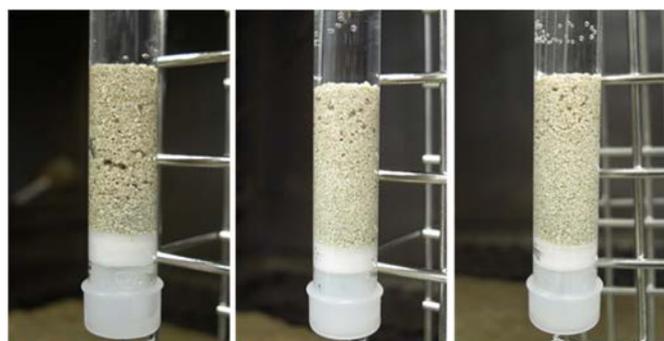


図 5-3-2-6 循環による吸着試験



吸着温度 80°C                      60°C                      40°C

図 5-3-2-7 循環による吸着試験における模擬カラム内の気泡

次に、改良型 PZC は、ジルコニウムテトラ-n-ブトキシドと 3-オキソブタン酸エチルを反応させたのち、水を添加し加水分解縮合することにより合成される。本試験では、加水分解の際に添加する水の量を変え 2 種類の改良型 PZC を合成した。

合成した改良型 PZC を用いて、KUR において吸着特性を評価するホット試験を行った。ホット試験を行うにあたり、予備試験（コールド試験）として室温における吸着特性を評価した結果を表 5-3-2-1 に示す。予備試験の結果から、吸着量の多かった改良型 PZC②をホット試験に供することとした。

表 5-3-2-1 予備試験（コールド試験）結果

サンプル	Mo 吸着量 (mg/g-PZC)
改良型 PZC①	38.5
改良型 PZC②	43.3

ホット試験の結果、Mo 吸着量は 1g の改良型 PZC あたり 24.2mg/g-PZC であり、<sup>99m</sup>Tc の溶離は確認できない結果となった。吸着量が少ない原因としては、室温での吸着が考えられることから、90°C加温による吸着試験（コールド試験）を行った。その結果、表 5-3-2-2 に示すように改良型 PZC①及び PZC②ともに Mo 吸着量は 165mg/g-PZC であり、リサイクルも可能であることが確認できた。

表 5-3-2-2 90°Cにおける吸着及びリサイクル試験（コールド試験）結果

繰返回数	単位当たりの Mo 吸着量 (mg/g-PZC)	
	改良型 PZC①	改良型 PZC②
1	181.9	165.8
2	162.3	180.3

以上のことから改良型 PZC については、加温による吸着が望ましいと考えられるが、模擬カラムでの昇温時の吸着では気泡の発生が予想されるため、吸着条件の検討が必要である。

吸着剤への最適な Mo 吸着条件を検討するために、Mo 吸着時の吸着剤及び Mo の構造について赤外吸収スペクトル (FT-IR) 及びラマン分光を用いて検討を行った。FT-IR の測定試料は、MoO<sub>3</sub>、Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>・2H<sub>2</sub>O（モリブデン酸ナトリウム二水和物）、PZC とし、KBr 錠剤法により行った。なお、PZC については、pH5 の条件で Mo を吸着した試料についても測定した。

測定結果を図 5-3-2-8 に示す。すべての試料において、3200cm<sup>-1</sup>、1600cm<sup>-1</sup>、1000~400cm<sup>-1</sup> にピークを示すことが分かった。また、PZC については、吸着前後で 1000-400cm<sup>-1</sup> のピークに変化があることを確認した。吸着状態のモリブデン酸イオン及び吸着剤の構造の変化については、今後ピークの帰属を行うことにより詳細な検討を行う予定である。

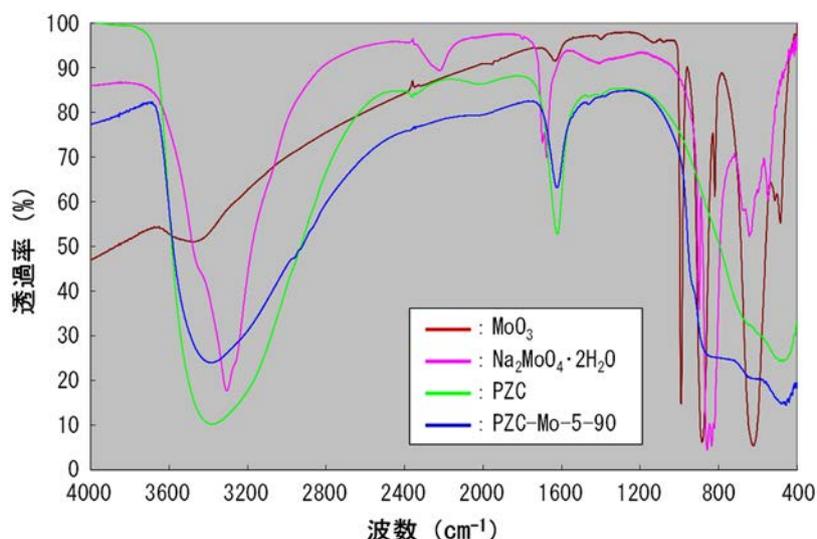


図 5-3-2-8 PZC 及びモリブデン化合物の赤外吸収スペクトル

① Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 吸着剤の性能向上

Mo 吸着容量を向上した Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の開発では、はじめに Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の結晶構造及び比表面積が Mo 吸着容量へ与える影響を調べた。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は、始発物質及び焼結温度により様々な結晶構造に変化することが知られている<sup>(5-18)</sup>。そこで、今回、ユニオン昭和株式会社が扱っている始発粉末3種類(ギブサイト、擬ペーサイト、バイヤライト)を準備した。これらの始発粉末は、すべて結晶構造の異なる水酸化アルミニウムである。粉末状の始発物質に、それぞれ 5wt.%のアルミナゾル(日産化学株式会社製 アルミナゾル 200)と水を添加し十分に混合し、それらを押出法により成型した。次に、成型したものを 200~300℃で1時間乾燥した後、播潰機により粉碎し、150~300 μm のふるいにより分級した。最後に、300~1000℃(100℃毎)で各1時間大気中にて焼結し、計24種類の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を作製した。ここで、それぞれ始発物質ごとに作製した Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を、G-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、p-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 及びB-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と呼ぶ。また、現在市販のジェネレータに使用されている医療用 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(以降、M-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> とする)を比較サンプルとして準備した。これらの Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> について、粒子径分布及び BET 比表面積の測定、XRD による結晶相の同定を行った後、Mo 吸着特性試験を実施し、Mo 吸着容量との相関を調べた。また、Mo 脱離特性試験を実施し、ミルキングによって得られる溶液の品質を放薬基と比較した。

分級後の各始発粉末の粒子径分布を図 5-3-2-9 に示す。平均粒子径は約 250 μm であり、粒子径は焼結後も変化が見られなかった。また、各 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の BET 比表面積を図 5-3-2-10 に示す。G-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、p-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 及びB-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の最大比表面積は、それぞれ 340、294 及び 456m<sup>2</sup>/g だった。各 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の比表面積はおおよそ焼結温度の上昇に伴い減少した。特に、B-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> では 500℃以下の温度において、400m<sup>2</sup>/g 以上の高い比表面積を有していた。700℃以上の焼結温度では、各 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の比表面積変化は始発粉末に関係なくほぼ同じ傾向を示した。M-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の粒子径及び比表面積はそれぞれ、約 100 μm 及び 116m<sup>2</sup>/g であった。

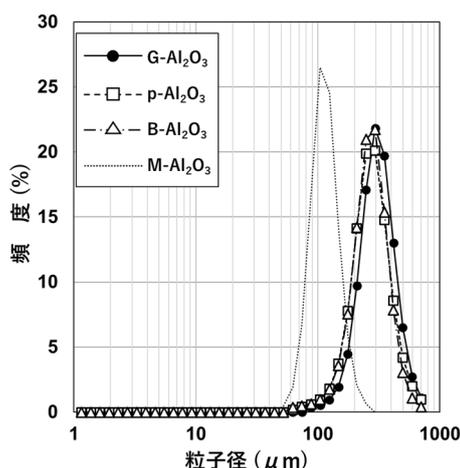


図 5-3-2-9 始発粉末(分級後)の粒子径分布

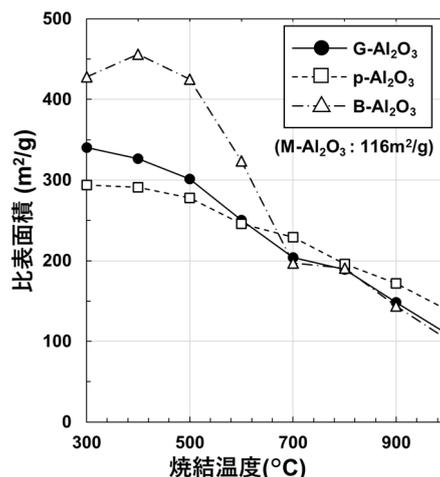


図 5-3-2-10 アルミナの比表面積

各 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の X 線回折パターンを図 5-3-2-11 に示す。G-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> では、 $\chi$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と  $\kappa$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が含まれるのが特徴である。特に、 $\chi$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は広い温度範囲で存在し、900℃では多くの結晶相が混在していた。M-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は、500~800℃で焼結した Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と同様なパターンを示したため、ギブサイト

を始発原料とした  $\text{Al}_2\text{O}_3$  と考えられる。p- $\text{Al}_2\text{O}_3$  では、 $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  単相の温度範囲があるのが特徴的であり、他の始発原料と比べると含まれる結晶相も少ない。また、400~500°Cで擬ペーマイト相がなくなり、大きくパターンが変化していることが分かる。B- $\text{Al}_2\text{O}_3$  は、 $\eta$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  が含まれるのが特徴的で、広い温度範囲で観察された。また、始発原料から 300°C、400~500°Cの2段階で大きくパターンが変化した。

各  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の結晶相変化を図 5-3-2-12 に示す。ギブサイトとバイヤライトでは結晶サイズの大小で相転移が分岐する。これは、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  結晶内部の水蒸気による水熱反応でペーマイトが生成されるが、限界圧力を超えると結晶粒が壊れるためと報告されている<sup>(5-19)</sup>。

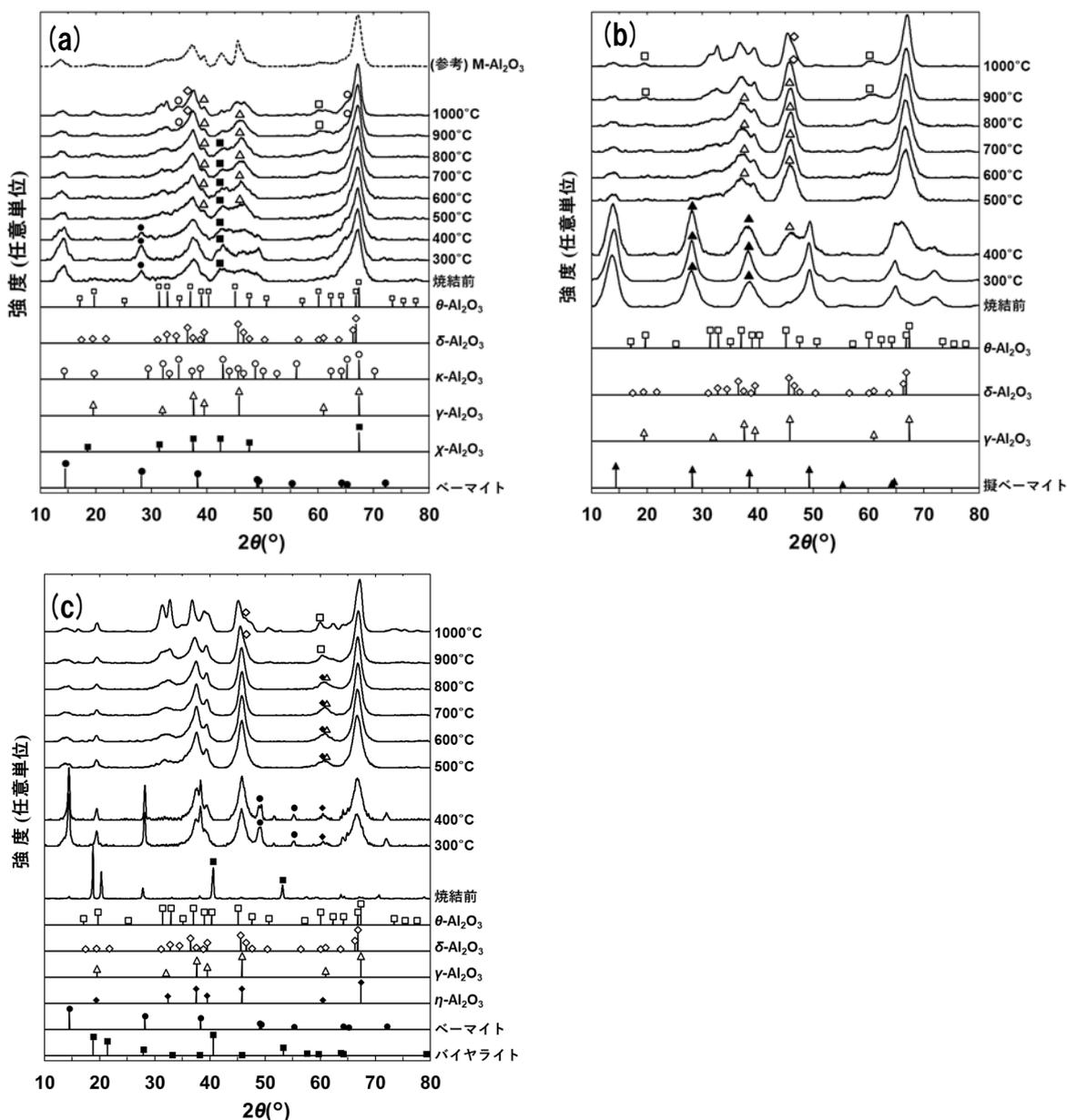


図 5-3-2-11 アルミナの各焼結温度における X 線回折パターン  
(a) G- $\text{Al}_2\text{O}_3$  及び M- $\text{Al}_2\text{O}_3$  (b) p- $\text{Al}_2\text{O}_3$  (c) B- $\text{Al}_2\text{O}_3$

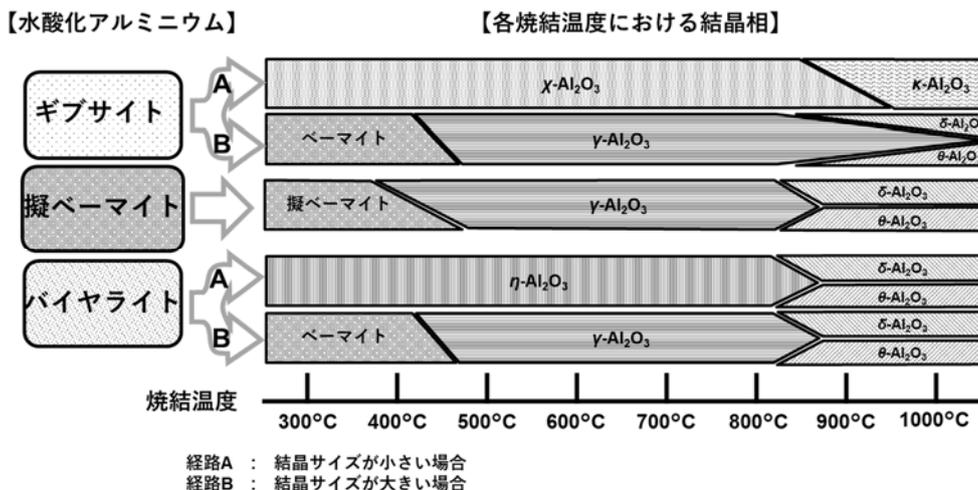
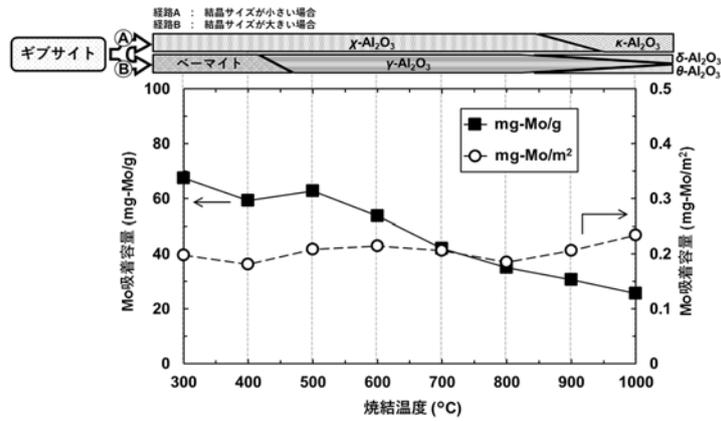


図 5-3-2-12 アルミナの結晶相変化

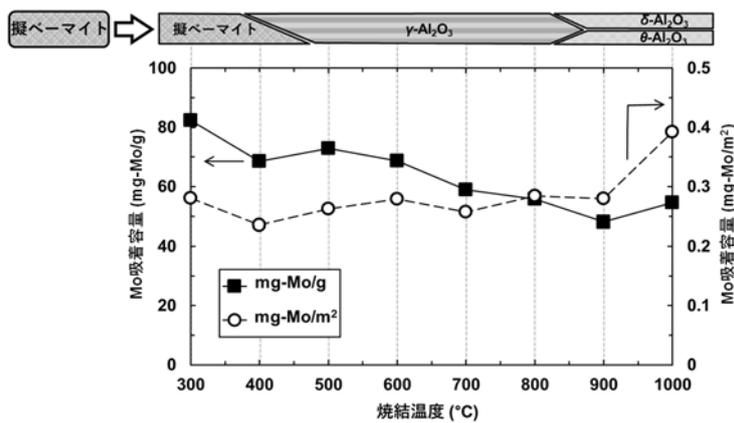
Mo 吸着特性試験は、Mo 溶液を用いて行った。Mo 溶液の濃度は 10mg/mL とし、2mol/L の塩酸 (HCl) を加えることにより pH4 に調製した。各 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を Mo 溶液中にて室温、60℃または 90℃で 3 時間浸漬して Mo を吸着させた。その後、Mo 溶液から Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を取り除き、精製水で洗浄し、洗浄液は吸着後の Mo 溶液と混合した。混合した溶液中の Mo 濃度を誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) により測定し、初期 Mo 添加量から混合溶液中に残った Mo 量を差し引くことで各 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の Mo 吸着量を算出した。各始発粉末を用いて焼結した Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の Mo 吸着特性を図 5-3-2-13 に示す。Mo 吸着容量は温度依存性が確認されなかったため、室温、60℃及び 90℃での平均値とした。ここで、単位質量当たりの Mo 吸着容量 (mg-Mo/g) は比表面積による影響を示し、単位面積当たりの Mo 吸着容量 (mg-Mo/m<sup>2</sup>) は結晶相による影響を示す。その結果、G-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> では単位面積あたりの Mo 吸着容量がほぼ一定だった。したがって、G-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は比表面積が Mo 吸着容量へ与える影響が大きいことが示唆された。p-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は、G-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と同様に単位面積あたりの Mo 吸着容量がほぼ一定だったが、G-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に比べるとより大きい値を示した。1000℃焼結したものでは単位面積あたりの Mo 吸着容量がさらに向上したが、900℃と同じ結晶相のため結晶相以外の要因も予想される。B-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> では、比表面積が大きく低下した 700℃で単位質量当たりの Mo 吸着容量も大きく減少した。単位面積あたりの Mo 吸着量は p-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 同様に高温側で高い傾向が見られたため、δ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、θ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は Mo 吸着しやすい結晶相である可能性がある。

Mo 脱離特性試験は、単位質量当たりの Mo 吸着容量が最も大きかった 300℃で焼結した Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> について行った。Mo 吸着特性試験と同様の手順で Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に Mo 吸着させた後、洗浄後の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> をポリプロピレン製カラム (内径 5~5.5mm×高さ 42mm) に移した。その後、ミルキングとして Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を充填したカラムに生理食塩水を 2 回流し、溶液中の Mo 濃度と Al 濃度を ICP-MS により測定した。Mo 脱離率 (%) は、Mo 吸着量に対する脱離した Mo 量の割合とし、Al 混入量 (ppm-Al/g-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) は Al 濃度を Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 重量で割った値とした。各 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の Mo 脱離特性試験結果を表 5-3-2-3 に示す。ミルキングによって得られた溶液の品質を放薬基と比較した。pH では基準値が 4.5~7.0 に対して、すべての Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が基準値を満たしていた。Mo 脱離率については、<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 比のみ規定されて

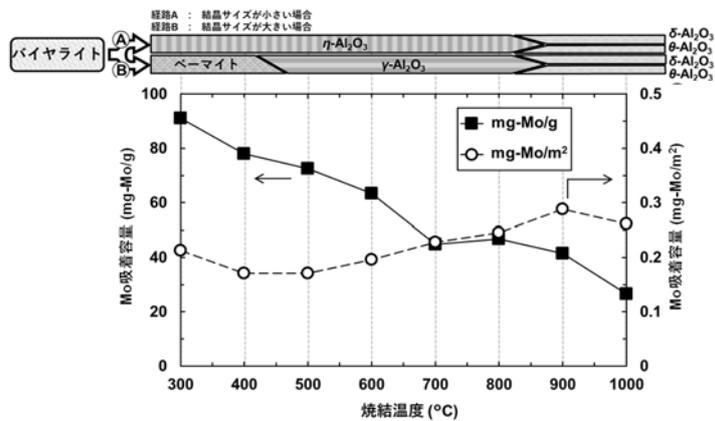
いるが、この値は Mo 脱離率と概ね一致する。その結果、Mo 脱離率は基準値を大きく逸脱しているため改善が必要である。Al 混入量は、規定値である 10ppm をすべての Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> で満足した<sup>(5-20)</sup>。



(a) G-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>



(b) p-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>



(c) B-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

図 5-3-2-13 各始発粉末で製作したアルミナの Mo 吸着特性試験結果

表 5-3-2-3 各アルミナ(300°C焼結)の Mo 脱離特性試験結果

アルミナ	Mo 吸着容量 (mg-Mo/g-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	ミルクング液			
			pH	Mo 脱離率 (%)	Al 混入量 (ppm-Al/g-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )
G-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	68.9	1 回目	4.9	0.32	1.27
		2 回目	4.9	0.33	1.20
p-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	65.7	1 回目	5.1	0.83	4.02
		2 回目	5.1	0.86	4.13
B-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	97.1	1 回目	5.0	0.38	2.36
		2 回目	5.0	0.36	2.01

次に、KUR を用いて、<sup>99</sup>Mo を用いた Mo 吸着/<sup>99m</sup>Tc 溶離特性を調べた。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> には、300°C で焼結した Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 3 種(G-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、p-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 及び B-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) と M-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用意した。照射サンプルには MoO<sub>3</sub> ペレット片 1.5g を使用して、5MW で 20 分間中性子照射した後、4 日間冷却して試験を実施した。試験手順は、上記と同様の手順で実施したが、吸着温度は室温のみとし、また生理食塩水を分割して流し溶離特性を調べた。<sup>99</sup>Mo 及び <sup>99m</sup>Tc の放射能測定には Ge 半導体検出器を用いた。ミルクングは約 24 時間ごとに 3 日間実施した。

各 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の <sup>99</sup>Mo 吸着容量及び <sup>99</sup>Mo 比放射能から換算した Mo 吸着容量、比較のため結晶相及び BET 比表面積の結果を表 5-3-2-4 に示す。その結果、比表面積が大きいほど Mo 吸着容量が大きくなる結果となった。特に、B-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> では M-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の 2 倍以上の Mo 吸着容量が得られた。

表 5-3-2-4 各アルミナ(300°C焼結)の結晶相、BET 比表面積、<sup>99</sup>Mo 吸着容量及び Mo 吸着容量

アルミナ	結晶相	比表面積 (m <sup>2</sup> /g)	Mo 吸着容量	
			MBq- <sup>99</sup> Mo/g-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	mg-Mo/g-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
G-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	χ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + ベーマイト	311	24.54	58.4
p-Al <sub>2</sub> O	擬ベーマイト	270	23.69	56.4
B-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	η-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + ベーマイト	417	31.55	74.1
M-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	χ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	116	15.82	37.2

ミルクングにおける <sup>99m</sup>Tc 溶離特性結果を図 5-3-2-14 に示す。<sup>99m</sup>Tc 溶離率はミルクング開始時での <sup>99m</sup>Tc 生成量に対する <sup>99m</sup>Tc 溶離量の割合とした。1~3 日目で、ほぼ同じ傾向が見られ、溶離率が高い順に B-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、p-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、M-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、G-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> となった。

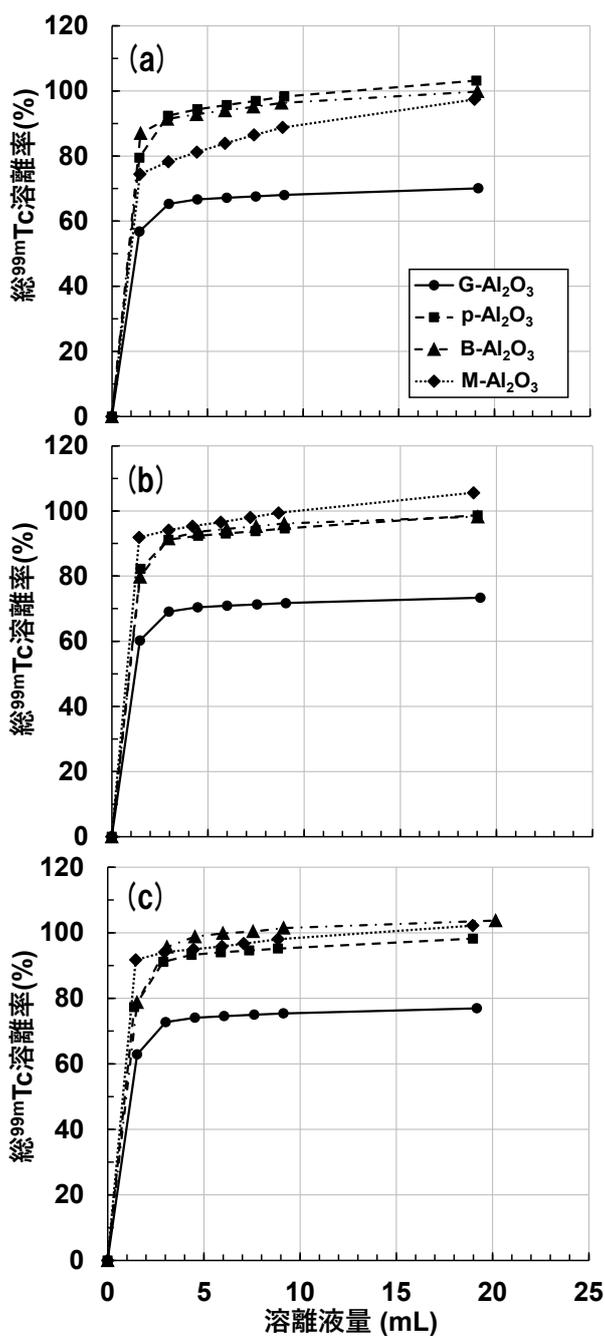


図 5-3-2-14 各アルミナの <sup>99m</sup>Tc 溶離特性 (a)1日目 (b)2日目 (c)3日目

ミルクングでの <sup>99</sup>Mo 脱離特性の結果を図 5-3-2-15 に示す。<sup>99</sup>Mo 脱離特性は、放薬基で指標とされる <sup>99m</sup>Tc 溶出量に対する <sup>99</sup>Mo 脱離量の比(<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc)で評価した。その結果、すべての Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> で基準値である 0.015%以下を逸脱していたが、比表面積が大きい Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ほど <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 比が低い結果となった。また、各 <sup>99m</sup>Tc 溶液の pH を図 5-3-2-16 に示す。基準値は pH4.5~7.0 とされているが、p-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> では基準値下限付近、M-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> では基準値からの逸脱が確認された。<sup>99</sup>Mo 脱離特性と <sup>99m</sup>Tc 溶液の pH は同様の傾向を示したため、相関があることが予想される。ここで、M-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は現行のジェネレータで使用されている Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> であるにもかかわらず、基準値を逸脱しているこ

とから今回の試験条件と市販のジェネレータでは Mo 吸着条件が異なると推測される。すなわち、市販のジェネレータでは (n, f) 法による高比放射能の  $^{99}\text{Mo}$  を使用しているため、添加する Mo 溶液量は極少量で十分であり、さらに Mo 吸着法として先に  $\text{Al}_2\text{O}_3$  をカラムに充填しておき Mo 溶液を添加する動的吸着を適応することで、Mo が脱離せずにカラム内に留められていると考えられる。したがって、今回基準値を逸脱した  $\text{Al}_2\text{O}_3$  についても、動的吸着を適用することで特性が改善すると予想される。また、すべての  $\text{Al}_2\text{O}_3$  が約 3mL のミルクキングで  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  をほぼ全量溶出した。溶離率の高さは比表面積と相関が見られないため、結晶構造や細孔径に依存している可能性がある。

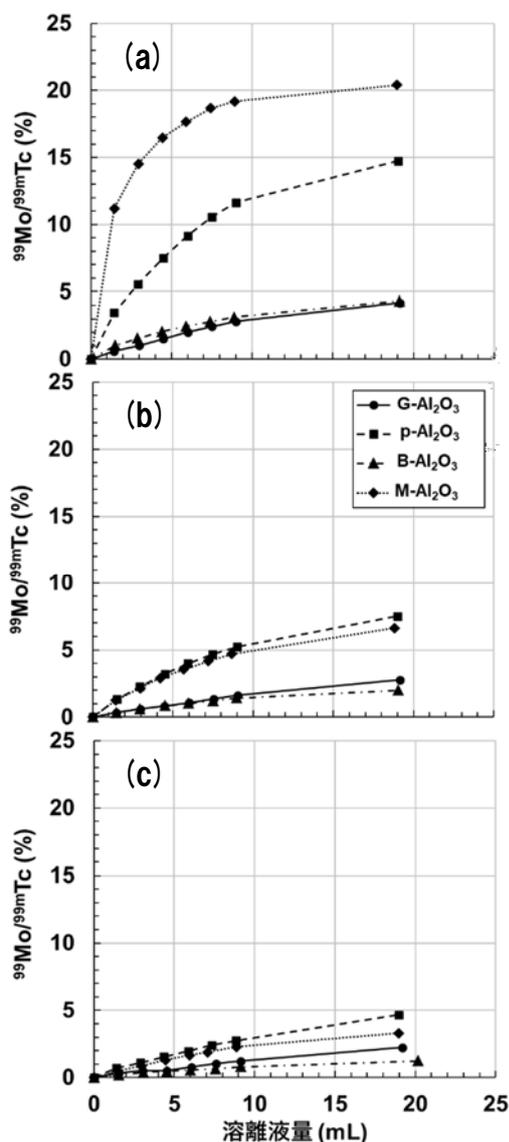


図 5-3-2-15 各アルミナの  $^{99}\text{Mo}$  脱離特性 (a)1日目 (b)2日目 (c)3日目

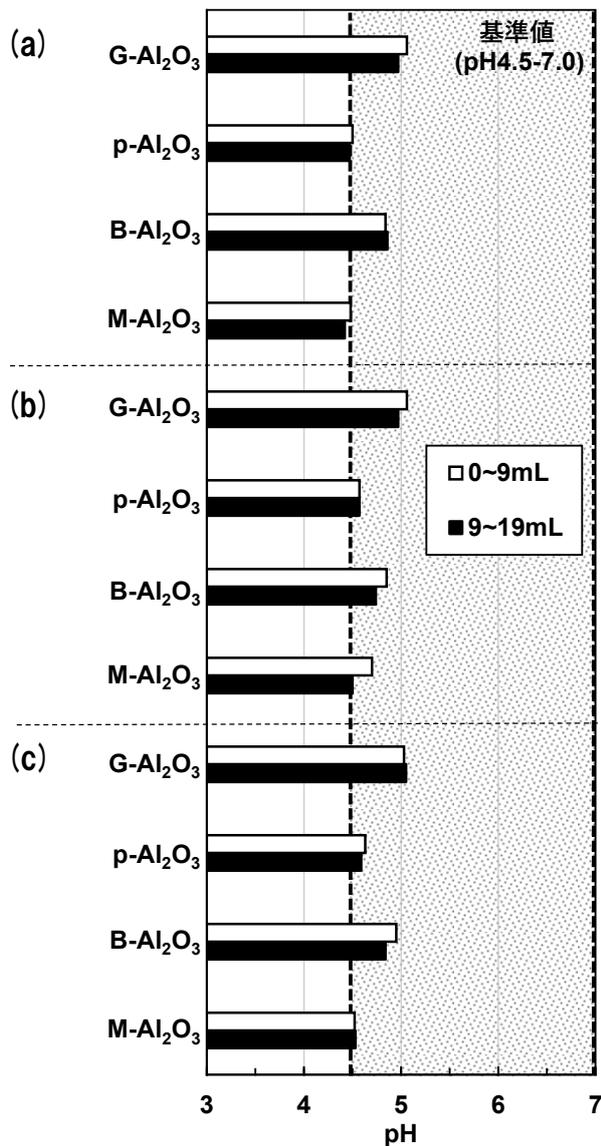


図 5-3-2-16 各アルミナから得られた  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液の pH (a)1日目 (b)2日目 (c)3日目

以上より、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  の Mo 吸着容量及び Mo 脱離特性は  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の比表面積に強く依存することを明らかにした。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶離特性は  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の結晶相に影響を受けると推測され、 $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  は  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶離しにくい結晶相と予想される。また、各  $\text{Al}_2\text{O}_3$  から得られたすべての  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液で  $^{99}\text{Mo}$  脱離率の基準値を満たさなかったが、Mo の脱離は  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液の pH にも影響を与えるため、Mo 脱離特性の向上が必要である<sup>(5-21)</sup>。

本研究開発により、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  の Mo 吸着及び  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶離特性の向上には、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  の比表面積及び結晶相の改良が有効であると結論づけられ、現行の市販のジェネレータに使用されている  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の Mo 吸着容量を大きく上回る  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を見出した。

## 5.4 Mo リサイクル技術開発

### ① 課題目標

JMTR 等の研究用原子炉で中性子照射した高密度  $\text{MoO}_3$  ペレットを原料とし、実用型  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  分離濃縮装置を用いて、 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  の分離・抽出・濃縮を行う。本製造工程において、Mo が高濃度で含有する廃液が発生する。この Mo 廃液には (n,  $\gamma$ ) 法で必要かつ高価な  $^{98}\text{Mo}$  原料がほとんど残っているため、有効利用の観点から、Mo の回収再利用が必要不可欠である。Mo 回収の目標収率 95% 以上、回収  $\text{MoO}_3$  粉末の純度 99.9% 以上を目標として、高度化技術開発を行い、高密度  $\text{MoO}_3$  ペレット製造試験に資する。

### ② 現状と問題点

Mo 回収のプロセスは、廃液から Mo をモリブデン酸として沈殿回収する工程と、回収したモリブデン酸を精製する工程から構成される。これら両プロセスは既に工業規模で実施されており、標準収率は 97~98% である。工業規模での収率の実績から本開発の目標収率を算出すると、97.5% (Mo 回収) と 97.5% (精製) の結果から 95% となる。照射後廃液の特殊な回収条件という点を鑑み、本開発において工業実績と同等もしくはそれ以上の回収率を達成することを目標とする。また、回収  $\text{MoO}_3$  粉末の純度においては主たる不純物であるナトリウム (Na) の低減が必要である。Na の除去目標値は工業製品の製品規格である 0.01% 以下を目標とし、回収  $\text{MoO}_3$  粉末の純度 99.9% 以上を達成する。

ジェネレータから得られる低濃度 Mo 溶液 (70mL/g- $\text{MoO}_3$ ) からの Mo 回収においては、Mo 回収率 95% 以上が得られることを既に炉内試験にて実証済みである<sup>(5-22, 5-23, 5-24)</sup>。しかしながら、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  分離濃縮装置より発生する高濃度 Mo 溶液 (2mL/g- $\text{MoO}_3$ ) からの Mo 回収では原液組成が大きく異なることより、新たに回収・精製条件の確立が必要である。

### ③ 開発成果

一般産業で実施している Mo リサイクル工程における Mo 溶液は、50g/L 以上の Mo 濃度で管理されている。この Mo 濃度の管理は、HCl 等の添加によるモリブデン酸作製時の収率、生成するモリブデン酸の粉末特性 (粒度等) に影響するためである。そこで、 $^{99}\text{Mo}$  製造技術検討の内、使用済 Mo 溶液からの回収するプロセスにおいて、実際に PTC から Mo を溶離し、その Mo 溶液を使用して  $\text{MoO}_3$  として回収して得られる  $\text{MoO}_3$  の粉末特性を調べ、回収率の向上について検討した。

また、一般産業で実施している Mo リサイクル工程では、触媒等に含まれる Mo を溶液化してモリブデン酸として回収している。一方、MoO<sub>3</sub> は、大気中で昇華しやすい特徴を持つことから、昇華法による Mo 回収を試み、得られる MoO<sub>3</sub> の粉末特性を調べるとともに、回収率向上についても検討した<sup>(5-22, 5-23, 5-24)</sup>。

PTC からの Mo 回収方法について検討を行った。室町ケミカル社製ムロマック®ミニカラムに PTC 5.00g(Mo : 10.7%)を充填し、1M-NaOH 溶液 100mL、イオン交換水 50mL を通液した。通液実験は 80°C に設定した恒温槽内で行った。PTC からの Mo 溶離プロファイルを図 5-4-1 に、Mo 溶離回収率を表 5-4-1 に示す。室温での Mo 溶離回収率は約 60%であったが、溶離温度を 80°C とすることにより 98%となった。また、溶離処理時間の延長により回収率の変化を確認したところ、90°C ×3h の処理条件では Mo 回収率が 98.9%であったが、90°C ×6h の処理条件では 99.3%となった。したがって、Mo 溶離時の温度は高い方が好ましく、処理時間は長い方が良いことがわかった。

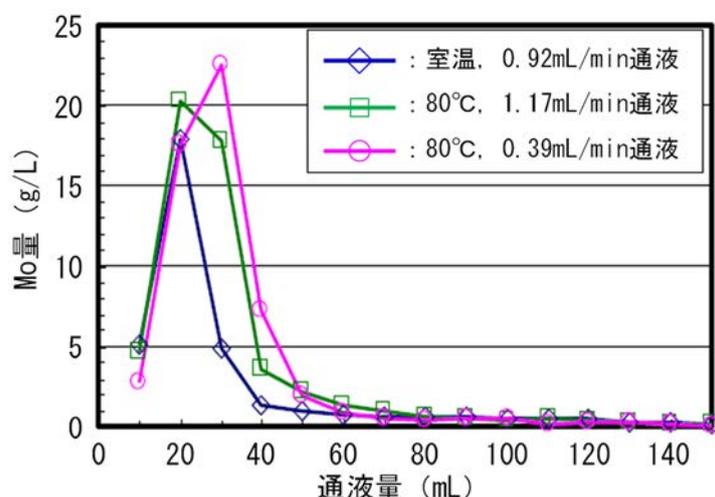


図 5-4-1 PTC からの Mo 溶離プロファイル

表 5-4-1 PTC からの Mo 溶離回収率

通液温度	通液速度 (mL/min)	Mo 溶離後 PTC		Mo 溶離回収 (%)
		重量 (g)	Mo (%)	
室温	0.92	4.30	5.00	59.8
80°C	1.17	4.23	0.96	92.4
80°C	0.39	3.96	0.24	98.2

一般産業で実施している工程では、50g/L 以上の Mo 濃度で管理されているが、上記の実験による Mo 溶液の濃度は 7.71g/L と低い。このような低い Mo 濃度の溶液から HCl 添加による Mo 回収を行うと回収率の低下が考えられる。そのため、MoO<sub>3</sub> 試薬をアルカリ溶液に溶解して Mo 濃度 8.6g/L の溶液を合成し、HCl を用いた Mo 回収実験も行った。

Mo 吸着剤(PTC) 25.0g から溶離した Mo 溶液 500mL(Mo 濃度 7.71g/L)からエバポレーターを用いて 4 倍濃縮し、液量 125mL(Mo 濃度 30.8g/L)とした。この溶液を 80°Cに加熱し、溶液の pH が 0.8 となるように 14.5mL の 35%-HCl を加え、80°Cで 2 時間攪拌した。溶液中に生成したモリブデン酸を濾過により分別した。得られたモリブデン酸は若干の水分を含むが 6.86g であった。なお、濾液量は 140mL、Mo 濃度は 0.673g/L であった。溶離処理によって回収された Mo は 3.853g であり、濾過により分別した濾液中に含まれる Mo が 0.094g であることから、濃縮と HCl による Mo 回収の収率は 97.6%となる。この Mo 溶離回収フローと Mo 収支結果を図 5-4-2 に示す。

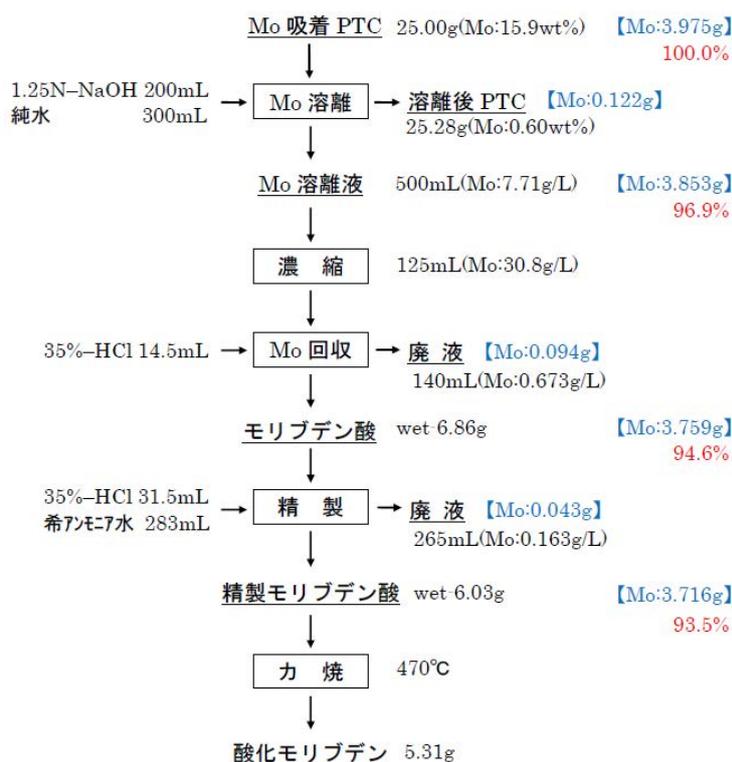


図 5-4-2 Mo 溶離回収フローと Mo 収支結果

一般産業で実施されている Mo リサイクルにおいて、HCl による Mo 回収工程の収率が 98%程度であるのに対し、今回、低 Mo 濃度溶液を 4 倍濃縮して行った Mo 回収の回収率は 97.6%であった。また、Mo 吸着剤 (PTC) から回収された MoO<sub>3</sub> の粉末特性として、不純物の化学分析、XRD、レーザー回折散乱法 (Microtrac) による粒度分析、SEM 観察を行い、リサイクルした Mo の利用は可能である見通しも得られた。

MoO<sub>3</sub> は、大気中 700°C以上の加熱により昇華する性質がある。この性質を利用すれば、MoO<sub>3</sub> を水に溶解させずに回収することが可能である。そこで、Mo を吸着させた PZC 及び PTC を用いて、熱分析を行い、Mo の昇華による重量減少を調べた。本試験で使用した PZC 及び PTC の組成分析値を表 5-4-2 に示す。また、大気中、10°C/分の昇温速度で 1000°Cまで昇温させ、その後、1000°Cで 100 分間保持させた熱分析結果を図 5-4-3 に示す。

PZC の Mo 昇華による重量減少理論値は、Mo 含有率 16.6%から 24.90%と算出される。Mo は 700°C以上で昇華されるので、PZC の熱分析結果から 700°C以上での重量減少率は 22.16%と理論値よりも低い。また、同様に、PTC の Mo 昇華による重量減少理論値は、Mo 含有率 18.3%から 27.45%と算出され、PTC の熱分析結果から 700°C以上での重量減少率は 7.76%と極端に低かった。

表 5-4-2 Mo 吸着剤の PZC 及び PTC の組成分析結果

主元素	PZC	主元素	PTC
Mo	16.6%	Mo	18.3%
Zr	45.5%	Ti	33.9%
Na	0.35%	Na	2.06%

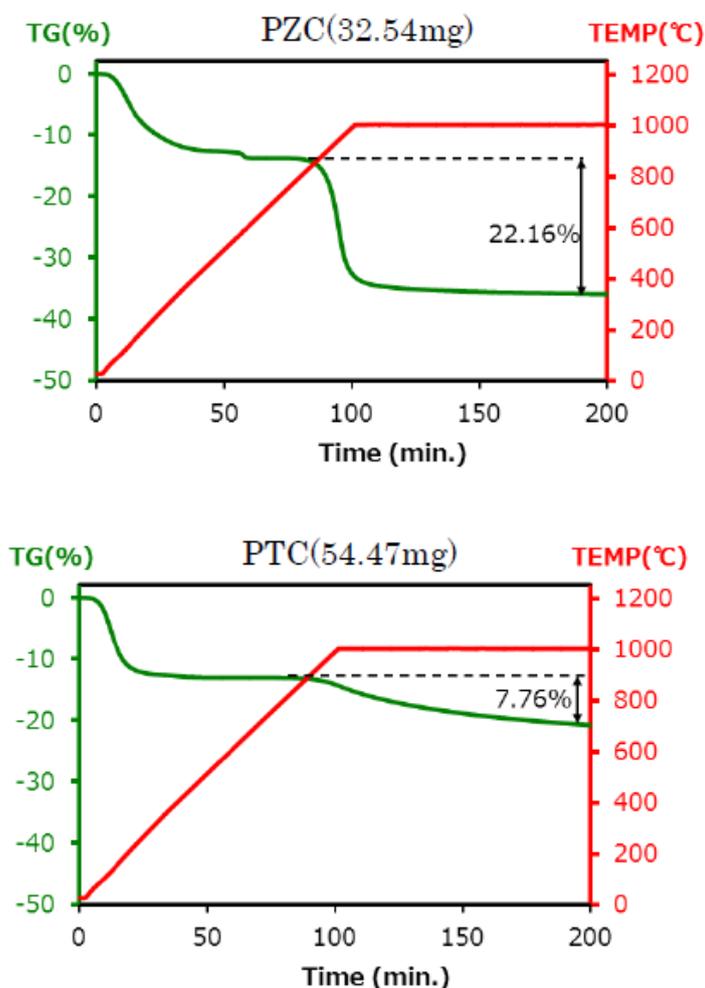


図 5-4-3 Mo 吸着剤(PZC 及び PTC) の熱分析結果

この原因として、各ジェネレータに含まれる Na が、高温加熱により、モリブデン酸ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{MoO}_4$ ) となって Mo の昇華を抑制することが考えられる。そこで、Mo を吸着させた PZC を

HClにて酸洗浄することにより、含有Naを低減させた。酸洗浄したPZCのNa成分値と、950℃×2hの加熱処理を行い、昇華によるMo回収率を調べた結果を図5-4-4に示す。

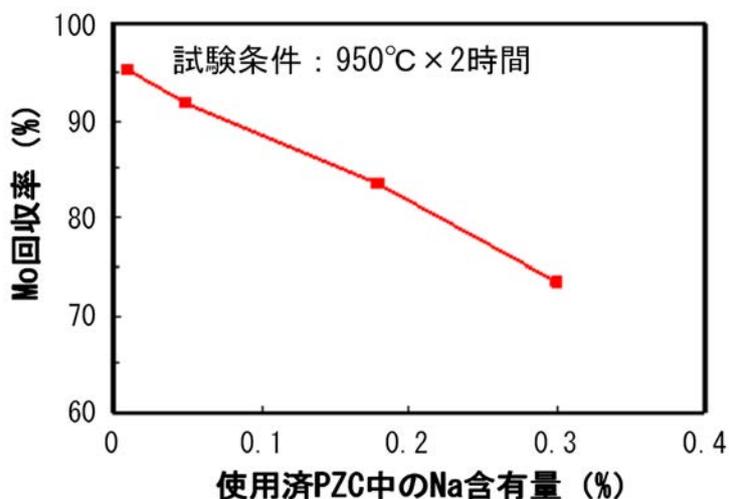


図 5-4-4 Mo 吸着剤 PZC の Na 含有量と昇華による Mo 回収率結果

図 5-4-4 の結果から、ジェネレータに含まれる Na 濃度が 0.1%程度でも昇華による Mo 回収率に大きく影響している。各ジェネレータの Na 濃度を 0.01%以下に低減できる HCl 濃度とその使用量について検討した結果、PZC については、0.05N-HCl を用いてジェネレータの 10 倍重量、すなわち、PZC100g に対し 0.05N-HCl で 1000g を用いて洗浄することで、Na 濃度を 0.01%以下に低減できた。また、PTC については、0.2N-HCl を用いて同じくジェネレータの 10 倍重量使用することで、Na 濃度を 0.01%以下に低減することができた。

脱 Na 処理した PZC 及び PTC の熱分析結果を図 5-4-5 に示す。脱 Na 済 PZC は、1000℃までの重量減少では Mo 回収が理論量よりも 10%程度少なく、95%以上の Mo を回収するには、1200℃の加熱が必要である。一方、脱 Na 済 PTC は、1000℃までの加熱により Mo 回収率 95%以上が期待できる。

脱 Na 済 PTC (Mo 含有率 24.8%) の 100.0g を炉内に挿入した後、1000℃×4h の熱処理を行い、Mo を昇華回収した。十分に冷却させた後の炉内残留物は、59.5g であり、Mo 含有率は 1.23%であった。したがって、この昇華回収装置により 97%の Mo を回収することができた。また、PTC から昇華法を用いて回収された MoO<sub>3</sub> の粉末特性として、不純物の化学分析、XRD、粒度分析、SEM 観察を行い、回収した MoO<sub>3</sub> を用いた高密度ペレット製造に見通しが得られた。

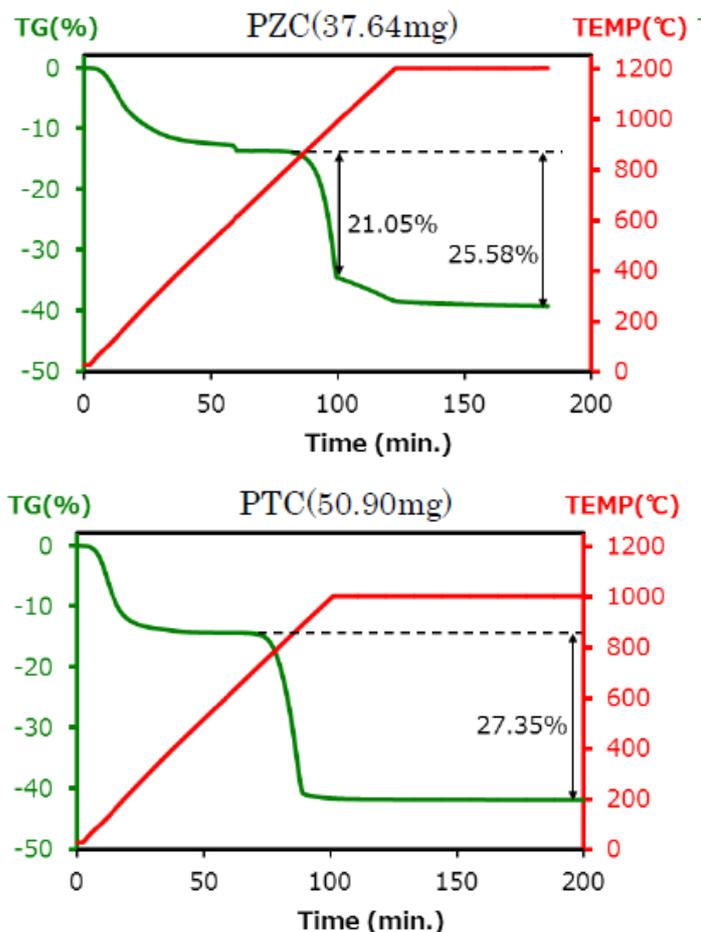


図 5-4-5 脱 Na 済モリブデン吸着ジェネレータ PZC 及び PTC の熱分析結果

#### ④ Mo リサイクル装置の設計・製作

高濃度 Mo 溶液 (2mL/g-MoO<sub>3</sub>) から Mo 回収を実証するために、JMTR ホットラボ施設に整備した図 5-4-6 の Mo リサイクル装置を利用する。本装置は MoO<sub>3</sub> で通常 100g(最大 250g)の回収を可能とし、高濃度 Mo 溶液の処理に適する装置とすることを基本設計に反映した。開発する Mo リサイクル装置は、2014 年度の総合特区推進調整費を活用して整備した。

Mo リサイクル装置は、①モリブデン酸回収系、②モリブデン酸精製系及び③三酸化モリブデン焼成系から主に構成されている。本装置は、放射性物質を含んだ溶液を取扱うことから、コンクリートセル・アイソレーションルーム内に整備した簡易フードに設置するが、自動化をできる限り図るとともに、遠隔操作性が良い構造・配列とした。各系統の基本仕様を表 5-4-3 に示す。基本仕様の決定にあたっては、次項の基礎試験で得られた試験データに基づき行った。

モリブデン酸回収系は、Mo を含有する廃液からモリブデン酸を回収するためのものである。モリブデン酸回収にあたっては、反応槽に精製水を所定の量を導入し、使用済 Mo 溶液を導入口から装荷し、希釈する。昇温の際には、加熱時間を短くするために溶解槽を効率良く加熱できる構造とするとともに、攪拌機も設置した。

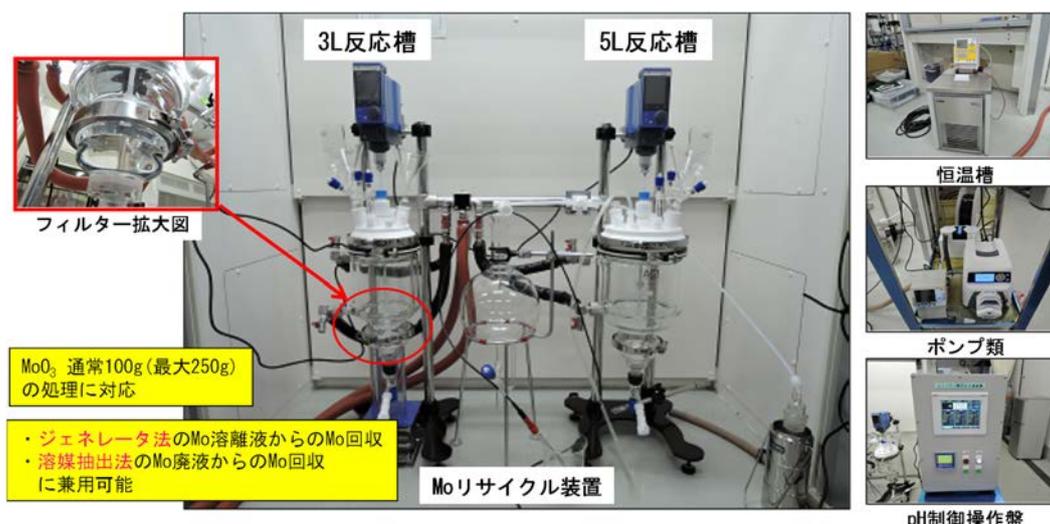


図 5-4-6 最大 250g 規模処理の Mo リサイクル装置の外観写真

表 5-4-3 Mo リサイクル装置を構成する各系統の基本仕様

装置を構成する系統	基本仕様	設計・製作の留意点
モリブデン酸回収系	Mo 溶液取扱量 : 2L規模 モリブデン廃液量 : 最大2L (通常0.5L) 反応槽 : ガラス製 水注入量 : 最大1.5L HCl 注入量 : 最大0.5L (通常0.35L)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・自動で加熱温度を調節すること。</li> <li>・自動でpHを調節し、沈殿生成すること。</li> <li>・簡単なバルブ操作でモリブデン酸を濾過回収すること。</li> <li>・モリブデン酸の洗浄機構を有すること。</li> </ul>
モリブデン酸精製系	Mo 溶液取扱量 : 4L規模 回収モリブデン酸量 : 最大250g (通常100g) 精製槽 : ガラス製 水注入量 : 最大4.0L アルカリ溶液注入量 : 最大1.0L (通常0.5L) HCl 注入量 : 最大1.0L (通常0.7L)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・自動で加熱温度を調節すること。</li> <li>・自動でpHを調節し、沈殿生成すること。</li> <li>・簡単なバルブ操作で精製モリブデン酸を濾過回収すること。</li> <li>・精製モリブデン酸の洗浄機構を有すること。</li> </ul>
三酸化モリブデン焼成系	精製モリブデン酸量 : 最大250g (通常100g) 電気炉(最高使用温度) : 100℃以上	<ul style="list-style-type: none"> <li>・プログラム制御で焼成可能であること。</li> <li>・<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc ジェネレータの減容処理に兼用可能であること。</li> </ul>

モリブデン酸精製系は、回収したモリブデン酸の不純物を除去するためのものである。モリブデン酸の精製にあたっては、精製槽に回収モリブデン酸を装荷後、精製水及びアルカリ溶液を所定の量を導入口から投入し、モリブデン酸を溶解する。昇温の際には、加熱時間を短くするために精製槽を効率よく加熱できる構造とするとともに、攪拌機も設置した。

開発した Mo リサイクル装置を JMTR ホットラボ内の簡易フード内に設置し、本装置を使用してリサイクル条件を確認し、回収 MoO<sub>3</sub> 粉末の特性を評価した。Mo 回収は、溶媒抽出法により発生する Mo 溶液、ならびに、ジェネレータ法により発生する Mo 溶液にも対応させる必要があるため、両者の Mo 溶液を想定した原液を調製した。

溶媒抽出法から発生する Mo 溶液には、抽剤である MEK が少量含まれている。6M-NaOH 溶液 500mL に MoO<sub>3</sub> 粉末 200g を投入して溶解を行った後、水を加えて 618mL に秤量し、そこに MEK2mL を添加して十分に攪拌を行い、Mo 濃度 215g/L、Na 濃度 110g/L の原液 620mL を原液とした。

**酸沈** 原液 500mL に水 1.5L を加えて希釈したものを Mo リサイクル装置の 3L 反応槽（左側）に投入し、HCl を加えて pH4~4.5 に調整した。その後、80°C に昇温し、NH<sub>3</sub> 濃度 10g/L とする様に塩化アンモニウム 62.9g を投入後、HCl を加えて pH0.6 に調整した。80°C で 2 時間攪拌後、25°C まで冷却し濾過を行った。濾過終了後、300mL の 0.1N-HCl を用いて得られたモリブデン酸の洗浄を行った。

**精製** 濾過をしたモリブデン酸をフィルターごと Mo リサイクル装置の 5L 反応槽（右側）に装着し、4L の水を投入した。その後、攪拌しながら 80°C に昇温し、440mL のアンモニア水 (NH<sub>3</sub>(aq)) を投入してモリブデン酸を溶解した。溶解後、HCl を用いて pH0.6 に調整した。80°C で 2 時間攪拌後、25°C まで冷却し濾過を行った。濾過終了後、300mL の 0.1N-HCl を用いて得られたモリブデン酸の洗浄を行った。

**焼成** 得られたモリブデン酸を 470°C で 6 時間焼成を行い、MoO<sub>3</sub> として 151.45g 回収した。上記の工程から発生する濾液の液量及び Mo 濃度を表 5-4-4 に示した。

表 5-4-4 各工程から発生する濾液の液量と Mo 濃度（溶媒抽出法）

酸沈工程		精製工程		Mo 回収率 (%)
濾液量 (L)	Mo 濃度 (g/L)	濾液量 (L)	Mo 濃度 (g/L)	
2.56	0.238	5.32	0.389	97.51

ジェネレータ法から発生する Mo 溶液は、溶液中に含まれる Mo 濃度が溶媒抽出法と比べて薄いことが特徴である。MoO<sub>3</sub> 粉末 100g を水に分散し、157g の NaOH を投入して溶解した後、水を加えて 2L に秤量し、Mo 濃度 33g/L、Na 濃度 45g/L の原液を調製した。

**酸沈** 原液 2L を Mo リサイクル装置の 3L 反応槽に投入し、HCl を加えて pH4~4.5 に調整した。その後、80°C に昇温し、NH<sub>3</sub> 濃度 10g/L とする様に塩化アンモニウム 62.9g を投入後、HCl を加えて pH0.6 に調整した。80°C で 2 時間攪拌後、25°C まで冷却し濾過を行った。濾過終了後、300mL の 0.1N-HCl を用いて得られたモリブデン酸の洗浄を行った。

**精製** 濾過を行ったモリブデン酸をフィルターごと 5L 反応槽に装着し、4L の水を投入した。その後、攪拌しながら 80°C に昇温し、530mL の NH<sub>3</sub>(aq) を投入してモリブデン酸を溶解した。溶解後、HCl を用いて pH0.6 に調整した。80°C で 2 時間攪拌後、25°C まで冷却し濾過を行った。濾過終了後、300mL の 0.1N-HCl を用いて得られたモリブデン酸の洗浄を行った。

**焼成** 得られたモリブデン酸を 470°C で 6 時間焼成を行い、MoO<sub>3</sub> として 90.17g 回収した。上記の工程から発生する濾液の液量及び Mo 濃度を表 5-4-5 に示した。

表 5-4-5 各工程から発生する濾液の液量と Mo 濃度（ジェネレータ法）

酸沈工程		精製工程		Mo 回収率 (%)
濾液量 (L)	Mo 濃度 (g/L)	濾液量 (L)	Mo 濃度 (g/L)	
2.72	0.218	5.49	0.307	96.58

溶媒抽出法、ジェネレータ法とも表に示した Mo 回収率は、原液の Mo 量から、各工程で発生する濾液に含まれる Mo 量を減算した結果である。両者とも、Mo 回収率は目標の 95%以上を達成した。しかし、焼成後の回収 MoO<sub>3</sub>量から算出した収率では、溶媒抽出法が約 94%、ジェネレータ法では約 90%となっており、反応容器の壁面への付着がロスの大い原因となっている。

回収 MoO<sub>3</sub>の品質を比較するため、溶媒抽出法及びジェネレータ法から発生する Mo 溶液から回収した MoO<sub>3</sub>粉末の不純物分析値を表 5-4-6 に示した。

回収 MoO<sub>3</sub>に含まれる Na 濃度は、ともに目標値である 0.01%以下となった。また、溶媒抽出法で発生する Mo 溶液には僅かに MEK が含まれるが、Mo 回収率や不純物として悪影響のない範囲であった。また、レーザー回折・散乱式粒子径分布測定装置にて測定した回収 MoO<sub>3</sub>粉末の粒度分布結果を図 5-4-7 に示した。いずれの方法で回収した MoO<sub>3</sub>粉末も、平均粒径 (D<sub>50</sub>) が 3μm 前後であり、分布のパターンも同様のダブルピークであった。

表 5-4-6 回収 MoO<sub>3</sub>の不純物分析値

元 素	溶媒抽出法	ジェネレータ法
Na (%)	0.0059	0.0042
K (%)	< 0.0005	< 0.0005
MgO (%)	0.0001	0.0001
CaO (%)	< 0.0001	< 0.0001
W (%)	0.002	0.001
Fe (%)	< 0.0001	0.0001
Cu (%)	0.0003	0.0003
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	0.007	0.007
Si (%)	< 0.001	< 0.001
Pb (%)	< 0.001	< 0.001
PO <sub>4</sub> (%)	< 0.0005	< 0.0005
S (%)	< 0.001	< 0.001
C (%)	0.001	0.001

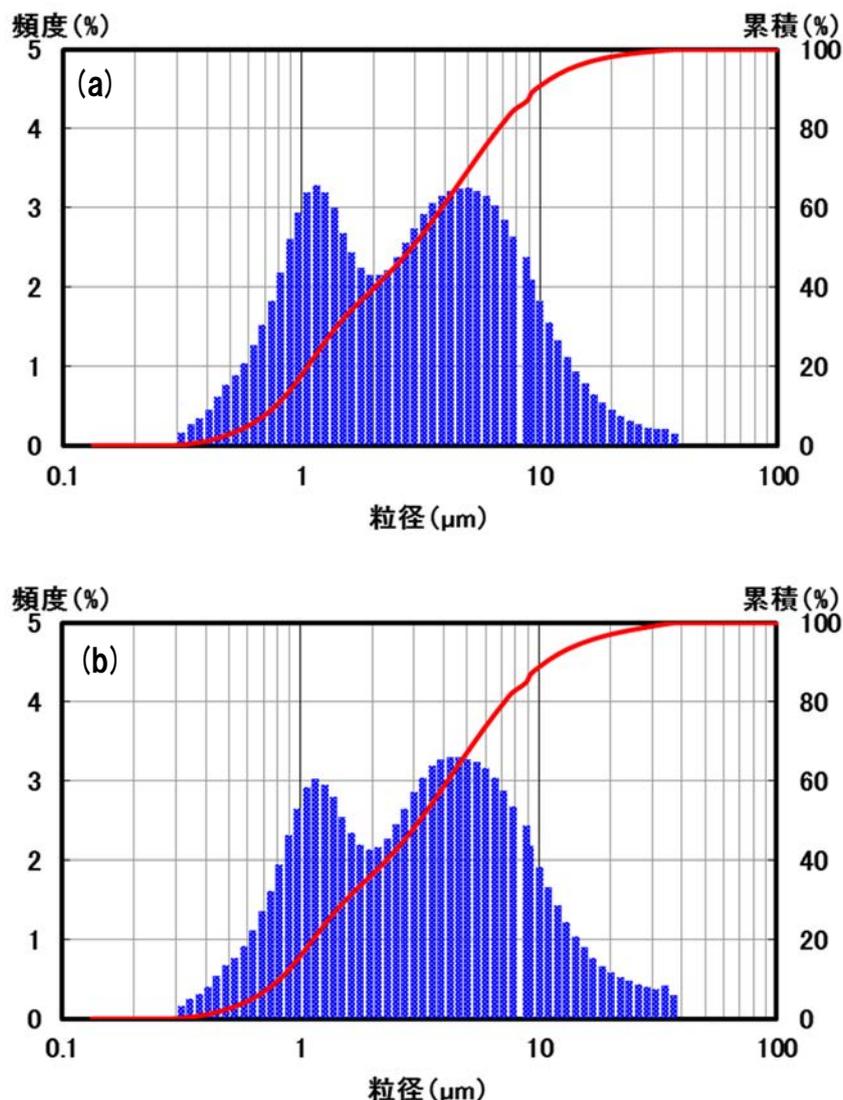


図 5-4-7 回収 MoO<sub>3</sub> 粉末の粒度分布結果 (a)溶媒抽出法 (b)ジェネレータ法

以上から、Mo リサイクル装置を使用した Mo 回収試験を行い、溶媒抽出法から発生する MEK が微量混入した Mo 溶液及びジェネレータ法から発生する Mo 溶液から、収率 95%以上で MoO<sub>3</sub> が回収できる見通しを得た。

溶媒抽出法により発生する Mo 溶液に含まれる MEK が Mo 回収に与える影響を調べるため、MEK 濃度の異なる Mo 溶液を試作し、酸沈実験を行って回収率を比較した。

Mo 溶液の調製は、6M-NaOH 溶液 500mL に MoO<sub>3</sub> 粉末 200g を投入して溶解を行った。この Mo 溶液に、0～50mL の MEK を投入し、その後水を加えて総量 2L (Mo 濃度は 67g/L) とした。

この 2L の Mo 溶液に、160mL の HCl を投入して pH4～5 とした後、80℃に昇温して塩化アンモニウム 63g を投入した。その後、HCl を加えて pH0.8 に調整し、80℃で 2 時間攪拌後、ヌッチェを用いて吸引濾過を行った。濾過後、300mL の 0.1N-HCl を用いて得られたモリブデン酸の洗浄を行った。MEK の添加量を変化させたときの Mo 酸沈結果を表 5-4-7 に示した。

表 5-4-7 MEK 添加量による Mo 酸沈結果

MEK		濾液		モリブデン酸		Mo 収率 (%)
添加量 (mL)	vol%	液量 (L)	Mo 濃度 (g/L)	Wet 重量 (g)	水分 (%)	
0	0	2.46	0.359	232.9	9.0	99.3
2	0.35	2.40	0.430	230.2	8.8	99.2
5	0.87	2.47	0.336	231.9	9.0	99.4
10	1.72	2.44	0.369	232.6	9.9	99.3
20	3.39	2.48	0.294	232.2	9.5	99.5
30	5.00	2.42	0.469	237.1	12.4	99.2
50	8.06	2.34	0.606	242.6	14.4	98.9

MEK の添加量を変えても酸沈による Mo 収率には大きな差は無いが、添加量が 30mL (5.0vol%) を超えると、濾液に含まれる Mo 濃度が上昇し、かつ、得られたモリブデン酸の水分が増加している。これまでの経験から、Mo 酸沈時の濾液の Mo 濃度が 0.5g/L を超えることは無いことより、MEK の影響で Mo 回収率が低下していると考えられる。

過剰の MEK が Mo 酸沈収率とモリブデン酸の水分量に影響することが判明したが、酸沈時の収率が 98%以上あれば総合収率 95%以上を満足できる。また、水分量については濾過ができれば問題ないので、MEK 濃度 5.0vol%程度の混入量であれば Mo 回収に影響を与えないことが分かった。

## 5.5 $^{99m}\text{Tc}$ 製剤化に向けた技術開発

### ① 課題目標

(n,  $\gamma$ )法による  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  製造から得た  $^{99m}\text{Tc}$  溶液が市販されている  $^{99m}\text{Tc}$  製剤と同等以上の品質であることを検証するために、JMTR ホットラボ施設内に整備した各種分析装置を用いて、品質検査手法を確立する。得られた品質検査手法により、溶媒抽出で得た  $^{99m}\text{Tc}$  溶液及びジェネレータで得た  $^{99m}\text{Tc}$  溶液について分析を行う。得られた結果に基づき、本試験研究で得た  $^{99m}\text{Tc}$  溶液の総合評価を行い、試験装置の改良、製造工程の改善等を行うとともに、最終仕様を満足する品質の  $^{99m}\text{Tc}$  溶液の製造に見通しを得る。

### ② 現状と問題点

我が国に輸入されている  $^{99}\text{Mo}$  は、原子炉内での  $^{235}\text{U}$  の核分裂を利用する (n, f)法により生産されている。海外の  $^{99}\text{Mo}$  精製会社から供給を受けている  $^{99}\text{Mo}$  溶液の標準仕様を表 5-5-1 に示す。この  $^{99}\text{Mo}$  溶液の特徴は、比放射能が (n,  $\gamma$ )法と比較して約 4 桁高いことから、輸入後、少量の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムに必要十分な量を吸着させ、生理食塩水による簡単な溶離操作で  $^{99m}\text{Tc}$  溶液を製造で

きる。一方、 $^{99m}\text{Tc}$  製剤にする場合、国内の研究用原子炉で製造した  $^{99m}\text{Tc}$  溶液は、設定した目標値を満足することが必要である。 $^{99m}\text{Tc}$  溶液の品質確認を行うためには、品質確認項目とともに、分析方法についても下記の方法を第 1 候補として実施することとする。

- ①  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  放射能比 : 放射性医薬品基準 0.015%以下
- ② Mo 濃度 : 10  $\mu\text{g}$  以下 (USP38<232>医薬品製剤の元素不純物制限値)
- ③ MEK 濃度 : 医薬品の残留溶媒ガイドライン 5,000ppm 以下
- ④ アルミニウム濃度 : 放射性医薬品基準 10ppm 以下
- ⑤ エンドトキシン濃度 : 0.03EU/mL 以下
- ⑥ 浸透圧 : 生理食塩水との比で約 1 (270~300mOsm)

#### 【 $^{99m}\text{Tc}$ 溶液の分析方法】

- ①  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  放射能比 : Ge 半導体検出器により、 $^{99m}\text{Tc}$  及び  $^{99}\text{Mo}$  の放射能を測定。
- ② Mo 濃度 : ICP(誘導結合プラズマ)発光分析方法を適用。  
※: ジェネレータで得られる  $^{99m}\text{Tc}$  溶液の分析に関しては、Mo 吸着剤を構成する元素の溶離がないことを確認する。
- ③ MEK 濃度 : 高速液体クロマトグラフィ(HPLC)を適用。アイソクラティック分析とする。提供された分析試料をそのまま試料溶液とし、MEK を生理食塩水で希釈して 1,000mg/L とした標準溶液により、試料溶液中の MEK の含量を定量する。
- ④ アルミニウム濃度 : 過テクネチウム酸ナトリウム( $^{99m}\text{Tc}$ )注射液の規格値に準じた品質試験を適用。
- ⑤ エンドトキシン濃度 : 厚生労働省から通知された「無菌操作法による無菌医薬品の製造に関する指針(平成 23 年 4 月 20 日付)」の原料(原薬、添加剤)の管理項目に基づき、ゲル化法を適用 (検出限界: 0.03EU/mL)。
- ⑥ 浸透圧 : 凝固点降下法により浸透圧を測定。なお、浸透圧は放射性医薬品基準に定められている規格ではないが、過テクネチウム酸ナトリウム溶液の液性は生理食塩水であり、工程管理上の確認項目として、浸透圧を測定。また、工程管理値として生理食塩水に対する浸透圧比の規格を約 1(270~300mOsm)と設定。

精度の高い分析値を取得するためには、分析試料の作製方法が重要である。基礎基盤研究で実施した分析方法を確認し、分析手法の確立を目指す。

表 5-5-1 (n, f)法で製造した <sup>99m</sup>Mo 溶液の仕様

Maker	Nordion	Covidien	ANSTO	IRE	NTP	BATEK
Product Form	Sodium Molybdate	Sodium Molybdate	Sodium Molybdate	Sodium Molybdate	Sodium Molybdate	Sodium Molybdate
Formulation	0.2N-NaOH	0.2N-NaOH	0.2N-NaOH	0.2N-NaOH	0.2N-NaOH	0.2N-NaOH
pH	9.0-12	>10	12-14	12-14	12-14	12
Chemical Processing	Chromatographic /Precipitation Purification	Chromatographic /Precipitation Purification	Chromatographic /Purification	Chromatographic /Purification	unknown	Chromatographic /Precipitation Purification
Specific Activity	No carrier added (> 185TBq/g)	cal. 2Ci/mL (after 6 days calibration)	4-5Ci/mL (at shipping time) up to 100GBq/mL	> 2Ci/mL	> 2Ci/mL	> 2Ci/mL
Radiochemical Purity	greater than 95%	greater than 95%	greater than 95%	greater than 95%	greater than 95%	greater than 95%
Stabilizer	NaOCl (2.8mg/mL)	No added	NaOCl (5%)	1N-NaNO <sub>2</sub>	NaOCl (2-4mg/Ci)	No added
Bottle	Polyethylene	SUS	Glass	Glass	SUS	Glass
Radionuclidic Purity	greater than 98%	greater than 98%	greater than 98%	greater than 98%	greater than 98%	greater than 98%

### ③ 開発成果

得られた <sup>99m</sup>Tc 溶液の品質については、これまで実施してきた基礎基盤研究で設定した基準値 (表 5-5-2) を満足する試験を実施し、試験データを蓄積する。

<sup>99m</sup>Tc 溶液の品質検査を行うための分析装置の一覧を表 5-5-3 に示す。分析機器のうち、1~4 については、総合特区推進調整費を活用して整備された装置である。3 及び 4 の分析機器については、<sup>99</sup>Mo 及び <sup>99m</sup>Tc のガンマ線エネルギーとほぼ同等のエネルギーを有するセシウム-137 (<sup>137</sup>Cs、661.66keV) 及びユウロピウム-152 (<sup>152</sup>Eu、121.78keV) を用いて、その性能試験を行い、品質検査の手法の向上を図った。γ-TLC アナライザーは、薄層クロマトグラフィー (TLC) とともに使用される。試料 (<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 溶液もしくは <sup>99m</sup>Tc 溶液) を展開する際に用いる TLC 用展開槽により、<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 化学形態や <sup>99m</sup>Tc 溶液の品質を調べる。図 5-5-1 に装置の外観写真を示す。<sup>99m</sup>Tc (140.51keV) の代替核種として、<sup>152</sup>Eu を TLC で測定した結果を図 5-5-2 に示す。測定後、得られた <sup>152</sup>Eu のピークについて、γ-TLC アナライザーのデータ処理ソフトにより Rf 値と面積値を求め、標準偏差 (σ)、Rf 値の変動係数 (coefficient of variation: CV 値)、面積値の CV 値及び σ の 2 倍に相当する <sup>152</sup>Eu の検出下限値 (Bq 数) を算出した<sup>(5-25)</sup>。

放射線検出器を HPLC に接続することにより、得られた <sup>99m</sup>Tc 溶液の品質を確認することができる。図 5-5-3 に装置の外観写真及び予備試験体系を示す。予備試験では、それぞれ <sup>152</sup>Eu 溶液 (1000Bq) と <sup>137</sup>Cs 溶液 (1000Bq) について、HPLC 用放射線検出器を用いて測定した結果を図 5-5-4 に示す。この結果、<sup>152</sup>Eu については所定の検出が可能であることが確認できた。

その他、トキシノメータ及び Ge 半導体検出器による測定は、基礎基盤研究から使用実績があり、概ね測定技術は確立されている。また、外部機関にも分析を依頼し、同様な試料を用いて分析を行い、これらの分析機器を用いた結果と比較・検討し、分析精度の向上を図っていく。

表 5-5-2 <sup>99m</sup>Tc 製品の目標基準値の設定

項目	放薬基※1	UPS※2	EP(non-fission)※3	目標基準値
<sup>99m</sup> Tc 量 (%)	90-110	90-110	90-110	—
放射化学的異物 (%)	< 5	< 5	< 5	< 5
放射核的純度 ( $\mu\text{Ci}/\text{mCi}-^{99m}\text{Tc}$ )				
<sup>99</sup> Mo	< 0.15 (0.015%)	< 0.15	(< 0.1%)	< 0.15 (0.015%)
<sup>131</sup> I	—	< 0.05	—	—
<sup>103</sup> Ru	—	< 0.05	—	—
<sup>89</sup> Sr	—	< 0.006	—	—
<sup>90</sup> Sr	—	< 0.00006	—	—
他核種	—	< 0.1 emitter	(< 0.01%)	—
pH	4.5-7.0	4.5-7.5	4.5-8.0	4.5-7.0
非放射性不純物				
Al	< 10ppm	< 10 $\mu\text{g}/\text{mL}$	< 5ppm	< 10ppm
MEK	—	< 0.1%	—	< 5000ppm
その他、医薬品として要求される基準値				
エンドトキシン (Eu/mL)	< 0.03	—	—	< 0.03
浸透圧 (mOsm)	285	—	—	270-300

基準値を設定



※1：放射性医薬品基準、※2：米国薬局方 (USP)、※3：欧州薬局方 (EP)

表 5-5-3 <sup>99m</sup>Tc 溶液の品質検査を行うための分析装置の一覧

	分析機器	設置場所	主な目的
1	高周波誘導結合質量分析装置 (ICP-MS)	物性試験室	抽出した <sup>99m</sup> Tc 溶液の不純物 (Mo, Al, 等) の分析、リサイクルした Mo の不純物分析、同位体 ( <sup>98</sup> Mo) 分析等を行う。
2	高速液体クロマトグラフィー (HPLC)	物性試験室	抽出した <sup>99m</sup> Tc 溶液の不純物分析、特に有機物 (MEK : <5000ppm) 等の不純物分析を行う。
3	HPLC 用放射線検出器	物性試験室	購入した HPLC に設置し、抽出した <sup>99m</sup> Tc 溶液の放射能測定 ( <sup>99m</sup> Tc) を行う。
4	ラジオγ-TLCアナライザー	ホットモックアップ室	抽出した <sup>99m</sup> Tc 溶液の品質を確認するための品質保証試験を行う。
5	トキシノメータ	クリーンルーム (実験準備室)	抽出した <sup>99m</sup> Tc 溶液中のエンドトキシンの含有量を測定する。
6	Ge 半導体検出器	HL 管理区域内	溶解した Mo 溶液や抽出した <sup>99m</sup> Tc 溶液中の放射能測定を行う。
7	その他	—	超純水製造装置、pH 計、天秤、など、高純度の <sup>99m</sup> Tc 溶液を得るための実験機器を整備。

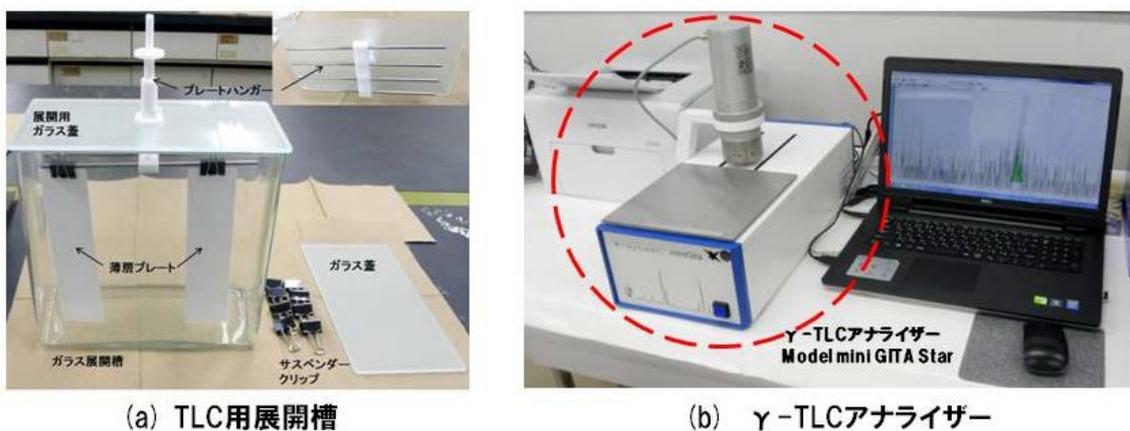


図 5-5-1 展開槽及びγ-TLC アナライザーの外観写真

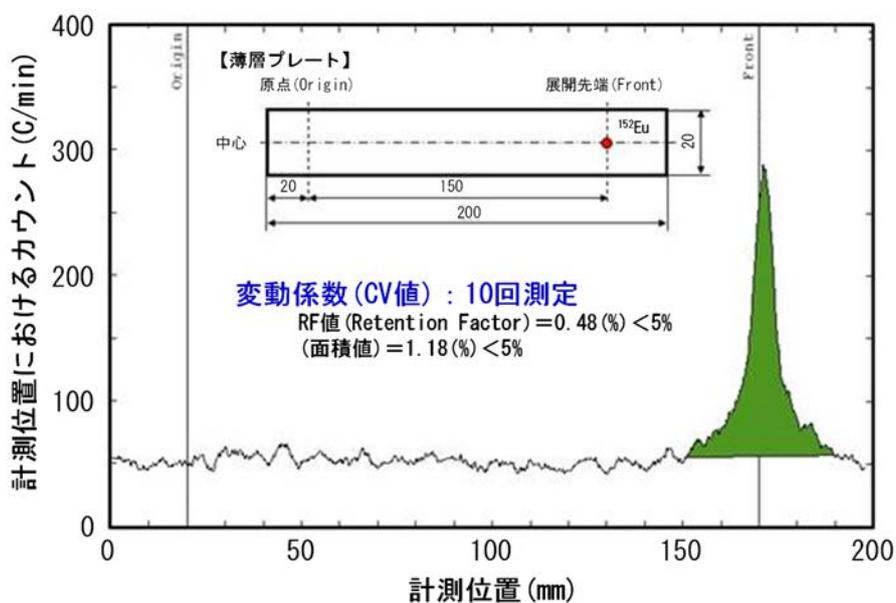


図 5-5-2 γ-TLC アナライザーの検出感度測定結果 ( $^{152}\text{Eu}$  使用)

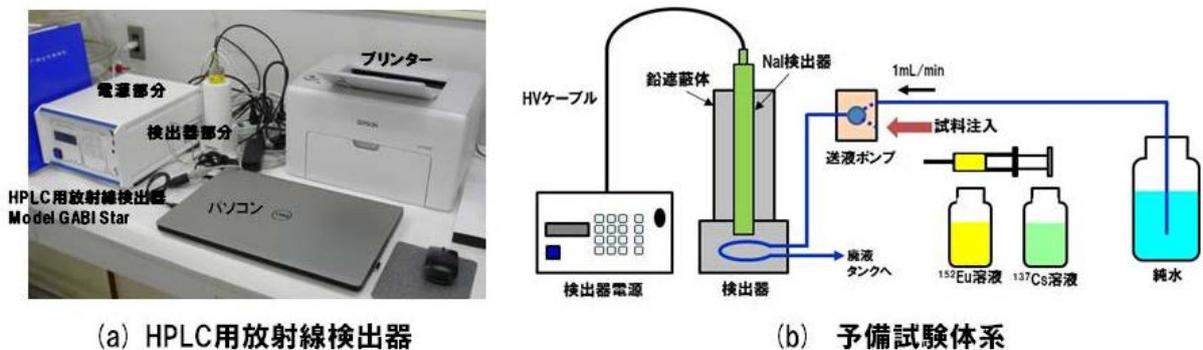


図 5-5-3 高速液体クロマトグラフィー (HPLC) 用放射線検出器

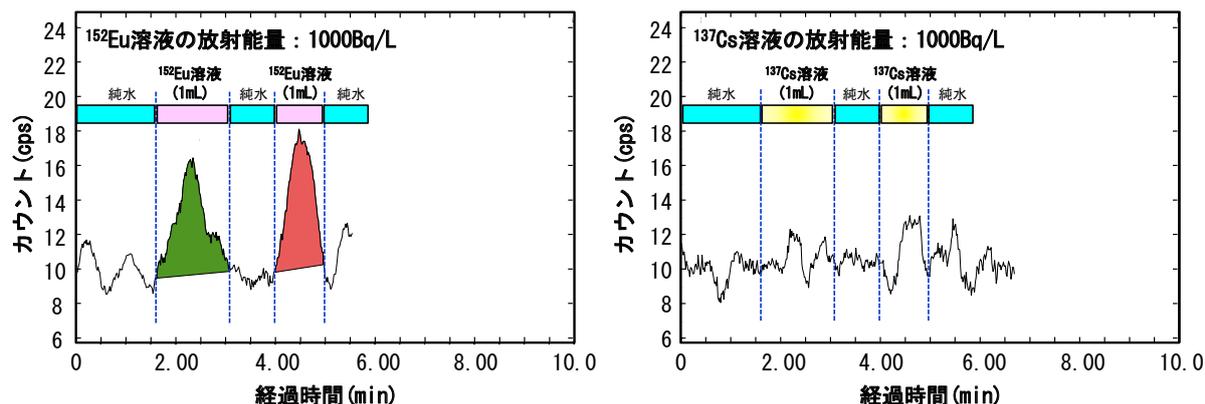


図 5-5-4 HPLC 用放射線検出器の検出感度測定結果

### 5.6 JMTR 代替炉における検討

原子力機構では、2014 年度の原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ「JMTR を用いた放射化学による  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  の国産化技術開発」の試験結果に基づいて、2013 及び 2014 年度に「京都大学原子炉実験所共同利用研究」を活用して、KUR で照射した  $\text{MoO}_3$  ペレットを用いた最終確認の試験を行った<sup>(5-26)</sup>。本試験では、 $\text{MoO}_3$  ペレットの照射は、KUR の水圧輸送管（以降、HYD とする）及び傾斜照射孔（以降、SLANT とする）の照射孔を用いて実施したが、各照射孔での  $^{99}\text{Mo}$  生成量を正確に評価するために、中性子モニターと呼ばれるドシメータの照射試験により中性子束の測定を行った。ドシメータとして、インジウム（In）箔、カドミウム（Cd）被覆付き In 箔及びニッケル（Ni）箔を用い、In 箔は熱中性子束、Ni 箔は高速中性子束の測定に用いた。なお、Cd 被覆には、厚さ 1mm、直径 10mm の板を用いた。

照射した各ドシメータは、KUR にある HPGe 検出器（型式：CANBERA GC4020）を用いてガンマ線を測定し、中性子束を評価した。ここで、熱中性子束の評価については、カドミ差し引き法を用いた。中性子束の評価に必要な HYD 及び SLANT における各放射化箔の実効断面積は、連続エネルギーモンテカルロ計算コード MVP2.08 と断面積ライブラリ（JENDL-4.0 及び JENDL/D999）により求めた。

これまで KUR の各照射孔の公称値は、高濃縮ウラン燃料を使用していた時の値であり、燃料組成や燃料配置が現在の炉心とは異なること、中性子束測定用ドシメータが金（Au）を用いて測定した結果であったことから、今回の照射条件とは異なっていた。本測定結果において、HYD の中性子束は、公称値に対して、熱中性子束が 1.14 倍、熱外中性子束が 5.90 倍及び高速中性子が 0.91 倍であった。一方、SLANT では、熱中性子束が 1.03 倍、熱外中性子束が 2.65 倍及び高速中性子が 0.90 倍であった。

ドシメータの照射試験で得られた結果に基づいて、各照射領域における中性子スペクトルを核計算コード MVP2.0、断面積ライブラリ JENDL-4.0 を使用し、数値計算を行った。なお、数値計算にあたっては、各燃料要素の燃焼度分布（縦方向 30 ノード、追跡核種：219 核種）、炉心温度、ドシメータ照射時の制御棒位置を考慮した。エネルギー107 群表示の中性子スペクトルを図 5-6-1 に示す。次に、HYD 及び SLANT 照射領域における  $^{99}\text{Mo}$  中性子捕獲率を図 5-6-2 に示す。本図は、各エネルギーに対する全  $^{99}\text{Mo}$  中性子捕獲率が 1 となるよう規格化している。したがって、

$^{98}\text{Mo}$  中性子捕獲率は熱中性子領域だけではなく、12. 2eV に存在する第一共鳴(63. 7b)や共鳴領域及び非分離共鳴領域でも大きいことが分かった。特に、共鳴領域においては中性子捕獲断面積に対する共鳴積分が 6. 907b と熱中性子断面積(0. 132b)よりも大きい<sup>(5-27)</sup>ことから、 $^{98}\text{Mo}$  生成量評価には熱中性子だけではなく全エネルギーの中性子束評価が必要なが明らかになった。図 5-6-2 に示したエネルギー依存の  $^{98}\text{Mo}$  中性子捕獲率を使用し、中性子スペクトルを考慮した  $^{99}\text{Mo}$  生成量を評価した。この結果、全中性子エネルギーを考慮した  $^{98}\text{Mo}$  生成量は、HYD では熱中性子束のみを考慮した場合と比較して約 3. 5 倍、SLANT では約 2. 0 倍となった。

このことから、代替炉での照射孔における中性子束及び中性子スペクトルを把握し、正確な  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  生成量を評価することが重要となる。

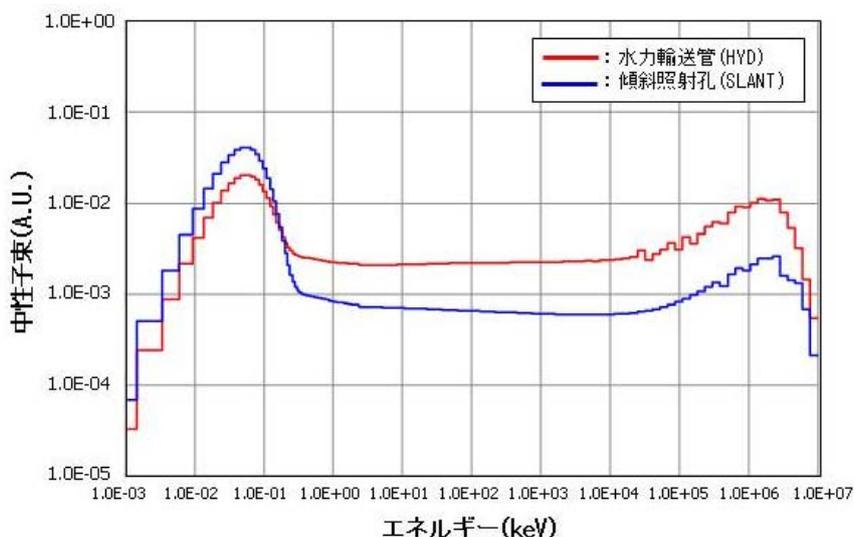


図 5-6-1 KUR の水力輸送管(HYD)及び傾斜照射孔(SLANT)における中性子スペクトル<sup>(5-26)</sup>

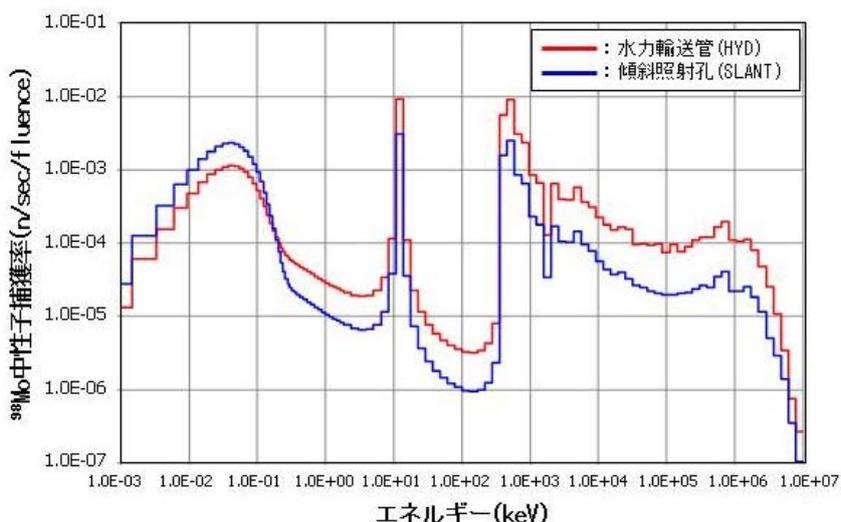


図 5-6-2 各照射領域における中性子照射量あたりの  $^{98}\text{Mo}$  中性子捕獲率<sup>(5-26)</sup>

現在、代替炉として、KUR の他、原子力機構の JRR-3 が再稼働したことから、十数 Ci レベルの  $^{99}\text{Mo}$  生成量が見込まれ、より実用化の実証試験が可能となった。また、海外炉での代替炉としては、ポーランドの MARIA 炉、カザフスタンの WWR-K 炉及びインドネシアの RSG-GAS 炉が考えられる(付録 3)。海外炉での照射試験の可能性についても、安定供給のために検討が必要と考えられる。

## 6. 今後の技術開発課題

JMTR の廃止措置計画が 2021 年 3 月 17 日に認可され、これまで燃材料の照射試験や RI 製造を担ってきた照射炉が、日本になくなることとなる。一方、JMTR の廃止措置により、国内照射試験炉の必要性が議論されているものの、これから新たな照射試験炉を建設し、運転されるまでには最低 10 年は必要とされており、安定的に RI 製造を行うためのリスクが大きくなったと考えられることから、新たな RI 製造のシナリオを検討する必要がある。

特に、<sup>99</sup>Mo 製造に関しては、株式会社千代田テクノルにより図 6-1 に示す評価結果<sup>(6-1)</sup>がなされ、世界で第 1 位の需要である米国でさえ、国産化を進めても 2026 年以降供給不足が予想されている。日本でも、再稼働する JRR-3 や再稼働を予定している常陽などの原子炉を利用する検討が開始されたが、<sup>99</sup>Mo の安定供給までには課題点が多い。また、加速器による <sup>99</sup>Mo 製造開発も進められているが、現時点では <sup>99</sup>Mo 製造量は多くはない。このような状況において、2023 年度以降、日本は世界で唯一自国での <sup>99</sup>Mo 製造が確立されてない大量消費だけを行う国になる可能性が大きくなる。

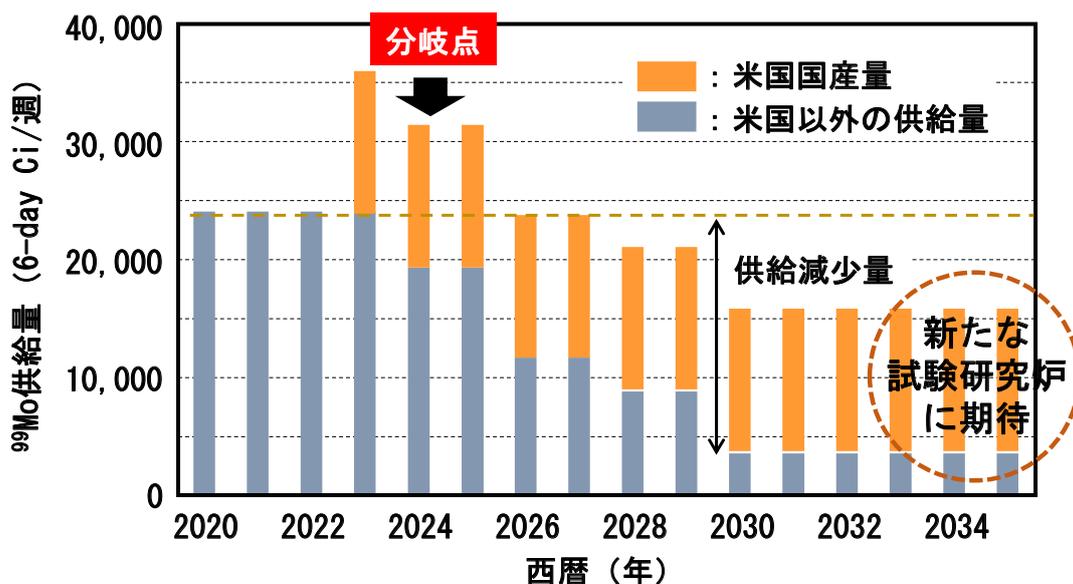


図6-1 <sup>99</sup>Moの海外からの供給予想<sup>(6-1)</sup>

これまで培ってきた <sup>99</sup>Mo 製造に係る基礎基盤技術を発展させ、直ぐに社会実装まで繋げられる技術を蓄積することが非常に重要となる。当該プロジェクトは、第 2 期計画を経て、2021 年度から第 3 期計画の延長が認められた。第 3 期計画においては、図 6-2 に示すように全量を輸入に頼っている <sup>99</sup>Mo 製造について国産化の割合を設定し、<sup>99</sup>Mo 製造する施設に関わらず、共通技術開発を効率かつ合理的に進めることが必要不可欠である。このため、第 3 期計画においては、図 6-3 に示すシナリオを設定し、基礎基盤技術の開発を行うとともに、関係各署との連携を強化することも視野に入れて進める計画とする。



しておくことも重要である。第3期計画におけるプロジェクトでは、国産化に向けての上記検討も進める。

## 6.2 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離・抽出・濃縮技術開発

### ① マスターミルクカーの開発

マスターミルクカーの開発では、実用型  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  分離濃縮装置を用いてホット試験を行い、300g の  $\text{MoO}_3$  を使用して  $^{99}\text{Mo}$  からの  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の回収を試みた。これまでに行った試験では、 $^{99}\text{Mo}$  溶液からの  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の分離・抽出には成功したが、酸性  $\text{Al}_2\text{O}_3$  カラムへの  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の吸着は不十分であった。原因としては、MEK 中の  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  濃度の影響、 $^{99}\text{Mo}$  溶液の MEK への混入の影響、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の化学形の変化などが考えられる。これらを確認するため、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の代わりに Re を用いた検証試験を行い、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  が  $\text{Al}_2\text{O}_3$  に吸着しなかった原因の追求を行う。

### ② ジェネレータ (Mo 吸着剤) の開発

PZC 及び PTC のような新たな Mo 吸着剤の開発においては、PZC1g を充填した模擬カラムを用いて 100mCi のジェネレータを想定し Mo 吸着量 160mg/g-PZC を目標として吸着試験を行い、静置状態の吸着では 155mg/g-PZC を達成し、目標値に近い吸着量を確保できている。一方、ジェネレータの作製において、循環方式による吸着方法が求められるが、吸着温度を上げる必要があり、吸着時の気泡発生による溶離やリサイクルに影響が出ることが分かった。室温における PZC の Mo 吸着については、90°C と比較して遅く、図 6-4 に示すように 160mg/g-PZC の吸着量を得るためには、3 時間が必要であると評価できる<sup>(6-2)</sup>。今後、模擬カラムを用いて気泡の発生が抑えられる温度での循環による吸着試験の検討が必要であり、併せて溶離及びリサイクル試験も行う必要がある。

また、市販ジェネレータで使用されている  $\text{Al}_2\text{O}_3$  とは異なることから、これらの Mo 吸着剤の利用のためには、抽出した  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液の品質検査として、Mo 吸着剤の構成元素の混入についても検討していく必要がある。

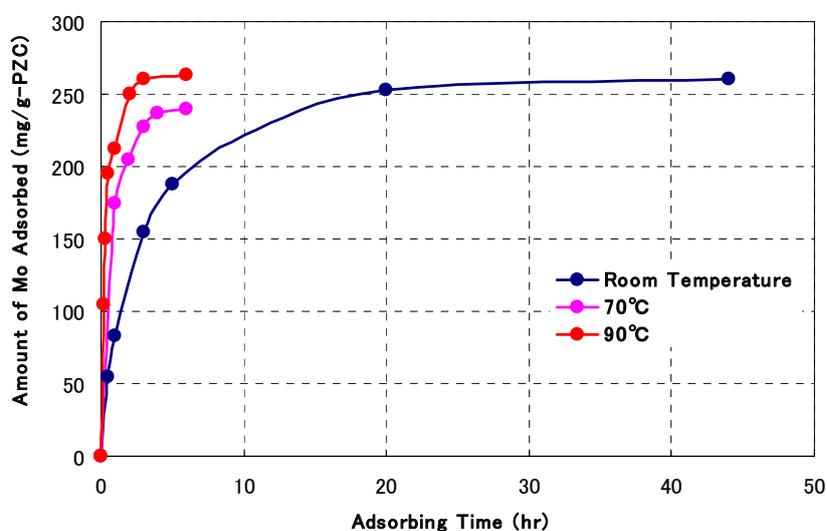


図 6-4 室温及び加温時の吸着特性

Mo 吸着容量を向上した  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の開発では、現行のジェネレータに使用されている  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の Mo 吸着容量を大きく上回る  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を見出したが、これらを実用化するためには、ミルキングの際に Mo が脱離してしまう問題点を解消する必要がある。これまでの試験結果から、Mo 溶液中に  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を浸漬して Mo 吸着する方法(静的吸着)では、カラム全体に Mo が均一に吸着されているため、ミルキングの際にカラム下部に吸着している Mo の脱離が避けられないと予想される。したがって、Mo 脱離を抑えるためには、先にカラムへ  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を充填しておき、そこに Mo 溶液を流して Mo 吸着させる方法(動的吸着)が有効と考えられる。すなわち、はじめに添加する Mo 溶液量を少なくしてカラム上部にのみ Mo 吸着させることで、ミルキングの際、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  に吸着しない  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  のみを溶出し、Mo はカラム中に留められる可能性がある。これらを確認するため、今後、HPLC を用いた  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の破過曲線作成を行う。Mo 溶液濃度及び通液速度を変更した破過曲線の作成により、各  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を使用したジェネレータに適した Mo 吸着条件を明らかにする。

一方で、今回、Mo 吸着容量を向上した  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を見出したが、実用化するためには更なる Mo 吸着容量の向上が必要である。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  は浸漬する溶液の pH により、陽イオンも陰イオンも吸着する性質を持つことが知られている<sup>(6-3)</sup>。また、Mo イオンも溶液の pH により化学形が変化することが報告されている<sup>(6-4)</sup>。したがって、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  の表面構造及び Mo 溶液の性状を最適化することによって、Mo 吸着容量を向上できる可能性がある。これらを調査するため、今後 FT-IR やラマン分光などを用いて、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  表面と Mo イオンの化学形との相関を調べ、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  への Mo 吸着機構を明らかにする。

### 6.3 Mo リサイクル技術開発

溶媒抽出法及びジェネレータ法から発生する Mo 溶液に関しては、Mo 回収率が 95%以上得られており、回収  $\text{MoO}_3$  の不純物や物性についても問題は無かった。しかしながら、Mo 溶液からの酸沈、洗浄、精製等の工程により多くの廃水が発生する。各工程からの廃水量の削減が課題である。また、 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  分離・抽出時に、医療用  $\text{Al}_2\text{O}_3$  が Mo 吸着剤に使用されることが考えられる。この  $\text{Al}_2\text{O}_3$  吸着剤の成分は主に  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  であり、アルカリ溶液への Al 成分の溶出が懸念される。したがって、Al 不純物を含む Mo 溶液からの Mo 回収方法を検討することが今後の課題として考えられる。

### 6.4 品質評価と非臨床試験に向けた検討

既存の  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液に準じて、(n,  $\gamma$ )法で得られる抽出液の目標値を表 6-1 のように定め、開発を進めていく。

(n,  $\gamma$ )法で得られる  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  と医療用キットを用いて、臨床で使用されている骨シンチグラフィ製剤、心筋シンチグラフィ製剤、脳血流シンチグラフィ製剤を合成する。一方、既存の  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を用いてそれぞれ同様に合成する。ラットに、(n,  $\gamma$ )法で得られた  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  製剤と既存の  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  から合成された製剤を、日を変えて投与する。全身像を撮像し、視覚的評価と骨、心筋及び脳の放射能カウントの定性的評価から、従来法と同等の画質が得られるか明らかにする。

表 6-1 第 3 期プロジェクトの  $^{99m}\text{Tc}$  溶液の開発目標

	pH	浸透圧 (mOsm)	放射化学的 異物 (%)	$^{99}\text{Mo}$ (%)	Al (ppm)	他の不純物元素	エンドトキシン
抽出液成分	4.5-7.5	270-300	<5	<0.015	<10	検出感度以下	検出感度以下
$^{99m}\text{Tc}$ 放射能濃度	20mCi (0.74GBq)/mL						

## 7. まとめ

癌などの核医学検査に用いる  $^{99m}\text{Tc}$  製剤の原料となる Mo について、我が国は世界第 3 位の消費国にもかかわらず、国内需要の 100%を海外に依存している。2010 年以降、欧州等の製造用原子炉の老朽化、火山噴火等による航空輸送による  $^{99}\text{Mo}$  の供給不安、原料のウラン入手の困難及び核不拡散からウランを用いる製造方法の制限等が表面化し、国産化の動きが活発化した。この状況下において、つくば国際戦略総合特区「核医学検査薬の国産化」プロジェクトが立上がり、ウランを用いない  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  の製造技術開発が開始された。当初、国産化を図るため、原子力機構の JMTR を活用した  $^{99}\text{Mo}$  製造計画が策定されたが、東日本大震災以降、新規制基準が制定され、炉プール躯体の耐震性能が不足することから再稼働が困難となった。このため、計画を変更し、KUR 等の代替炉を用いて基礎基盤技術の確立を行った。基礎基盤技術の確立までの各課題の成果を表 7-1 にまとめた。2021 年から第 3 期計画として、技術実証まで実証する計画（図 7-1）とし継続していく。

表 7-1 第 2 期計画で得られた各課題の成果

	開発項目	目 標	令和 2 年度までの実績
1	照射ターゲットの製造技術開発	新たな製造方法による高密度 $\text{MoO}_3$ ペレットの安定製造技術を確立。	HIP 法による高密度 $\text{MoO}_3$ ペレットの大量製造に見通し。
2	$^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ 分離・抽出・濃縮技術開発	1) MEK(メチルエチルケトン)を用いた溶媒抽出法による $^{99m}\text{Tc}$ 分離・抽出・濃縮技術を確立(高純度・高濃縮 $^{99m}\text{Tc}$ 溶液の確保)。	KUR で照射した $\text{MoO}_3$ 試料を用いた溶媒抽出法によるホット試験を実施。本年度の第 3 回目試験で抽出した $^{99m}\text{Tc}$ 溶液の品質検査も実施。
		2) PZC(高分子ジルコニウム化合物)に代わるリサイクル可能な Mo 吸着剤の製造技術を創出(200mg/g)。	新規 Mo 吸着剤(PZC)の合成方法を確立。照射済み $\text{MoO}_3$ 試料を用いたミルキング特性を取得。
3	Mo リサイクル技術開発	Mo 吸着剤に吸着した Mo を高い収率で回収する技術を確立(回収率：95%以上)。	炉外試験による Mo 回収技術を確立。
4	$^{99m}\text{Tc}$ 製剤化に向けた技術開発	本方法による $^{99m}\text{Tc}$ 溶液の核医学検査薬の基準値を設定。低放射能濃度での検査実施。	溶媒抽出法で得た $^{99m}\text{Tc}$ 溶液の品質検査の実施(エンドトキシン量、浸透圧、標識試験等)。
5	代替炉による照射試験	KUR、海外炉等による照射試験の実施。	KUR にて、 $\text{MoO}_3$ ペレットの照射試験を行い、溶媒抽出法、Mo 吸着剤等の基礎特性を取得(KUR ホットラボ利用)。

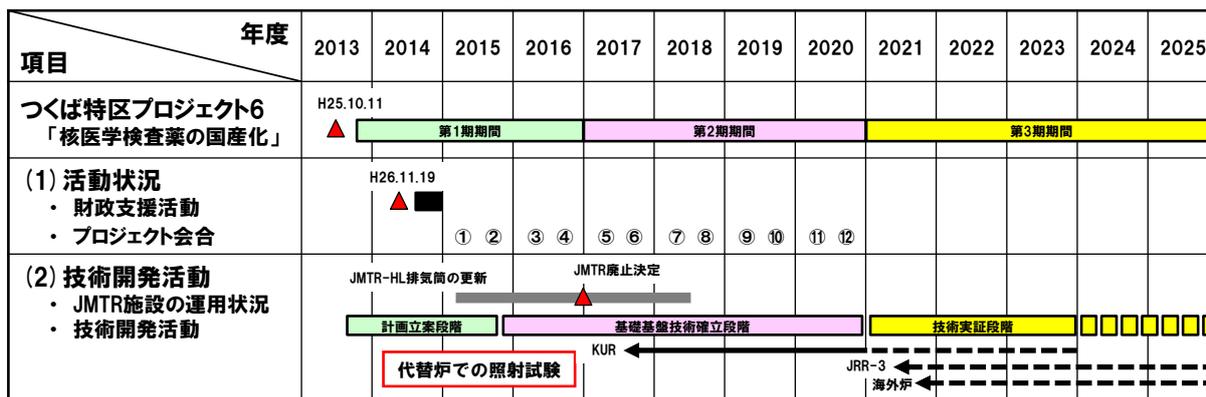


図 7-1 つくば国際戦略総合特区「核医学検査薬の国産化」プロジェクト 6 の全相計画

### 謝辞

本研究開発は、つくば国際戦略総合特区「核医学検査薬（テクネチウム製剤）の国産化」の一環として実施したものである。当該プロジェクトの立上げから、実施に至るまで支援してくださった方々に深く感謝いたします。また、JMTR ホットラボの排気塔の更新による施設の停止及びJMTR 廃止決定におきましては、「京都大学原子炉実験所共同利用研究」に採択していただき、代替炉としてMoO<sub>3</sub>ペレットの照射試験やKUR ホットラボラトリの利用など、多大なご支援をいただきました。また、2018年度までつくば特区プロジェクト6 会合メンバーとして、高密度MoO<sub>3</sub>ペレットの開発に携わっていただきました金属技研株式会社、当該会合にオブザーバーとしてAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>吸着剤の開発に携わっていただきましたユニオン昭和株式会社の方々には当該プロジェクトを進める上で多大な協力をいただきました。さらには、物質・材料研究機構では、アルミナのMo 吸着メカニズムの解明に協力をいただきました。

本報告書をまとめるにあたり、原子力科学研究部門原子力科学研究所研究炉加速器技術部研究炉技術課 新居昌至氏に有意義なご助言をいただきました。以上、記して深く感謝いたします。

### 参考文献

- (1-1) 日本学術会議編, 「提言 我が国における放射性同位元素の安定供給体制について」, 平成 20 年(2008 年)7 月 24 日, 日本学術会議基礎医学委員会・総合工学委員会合同 放射線・放射能の利用に伴う課題検討分科会, 2008.
- (1-2) 河村弘, 「研究用原子炉を用いた工業生産」, 学術の動向, Vol. 20, No. 6, 2015, pp. 32-38.
- (1-3) 日本放射性医薬品協会事務局編, 「放射性医薬品業界 事業規模」, (「放射性医薬品物流統計 2009」(社)日本アイソトープ協会編より抜粋).

- (1-4) モリブデン-99/テクネチウム-99m の安定供給のための官民検討会, 「我が国のテクネチウム製剤の安定供給に向けてのアクションプラン」, 平成 23 年 7 月 7 日, 2011.
- (1-5) 外務省, 「第 2 回ソウル核セキュリティ・サミット」,  
[https://www.mofa.go.jp/mofaj/gaiko/kaku\\_secu/2012/](https://www.mofa.go.jp/mofaj/gaiko/kaku_secu/2012/) (参照: 令和 3 年 5 月 10 日).
- (1-6) Association of Imaging Producers & Equipment Suppliers, “Report on Molybdenum-99 Production for Nuclear Medicine 2010-2020”, 2008, 28p.
- (1-7) Nuclear Energy Agency, Organization for Economic Co-operation and Development, “A Supply and Demand Update of The Molybdenum-99 Market”, 2012, 11p.
- (1-8) 原子力委員会, 「原子力政策大綱に示している放射線利用に関する取組の基本的考え方の評価について」, 2010 年 6 月 1 日, 2010.
- (1-9) つくばグローバル・イノベーション推進機構, つくば国際戦略総合特区・パンフレット.
- (2-1) 日本アイソトープ協会, 「放射線利用統計 2005」, 2005, 39p.
- (2-2) 日本アイソトープ協会, 「放射線利用統計 2012」, 2012, 41p.
- (2-3) 日本アイソトープ協会, 「放射線利用統計 2016」, 2016, 41p.
- (2-4) 日本アイソトープ協会, 「放射線利用統計 2018」, 2018, 41p.
- (2-5) 日本アイソトープ協会, 「放射性医薬品流通統計 1999」,  
<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/tyoki/bunka5/siryu2/siryu13.htm>(令和 3 年 4 月 20 日).
- (2-6) 日本アイソトープ協会, 「アイソトープ等流通統計 2005」, ATOMICA,  
[https://atomica.jaea.go.jp/data/detail/dat\\_detail\\_08-01-04-07.html](https://atomica.jaea.go.jp/data/detail/dat_detail_08-01-04-07.html)  
 (令和 3 年 4 月 20 日).
- (2-7) 日本アイソトープ協会, 「アイソトープ等流通統計 2012」, Isotope News, No. 699, 2012, p. 40.
- (2-8) 日本アイソトープ協会, 「アイソトープ等流通統計 2014」, Isotope News, No. 723, 2014, p. 67.
- (2-9) 日本アイソトープ協会, 「アイソトープ等流通統計 2016」, 2016, 19p.
- (2-10) 日本アイソトープ協会, 「アイソトープ等流通統計(第 3 版)2021」, 2021, 19p.
- (2-11) L. Kidd, “Curies for patients”, Nuclear Engineering International, 2008, pp. 26-32.
- (2-12) Nuclear Energy Agency, Organization for Economic Co-operation and Development, “The Supply of Medical Radioisotopes: 2017 Medical Isotope Supply Review:  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  Market Demand and Production Capacity Projection 2017-2022”, NEA/SEN/HLGMR(2017)2, 2017, 29p.
- (2-13) 井上登美夫, 「国産化  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  の医療運用に向けての課題—我が国における  $^{99}\text{Mo}$  の国内安定供給の方向性と課題—」, RADIOISOTOPES, Vol. 62, No. 9, 2013, pp. 667-678.
- (3-1) 科学技術振興機構, 「平成 23 年度「原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ」採択課題,  
<https://www.kenkyu.jp/nrd2/kadai/h23.html>(参照: 令和 3 年 4 月 30 日).
- (3-2) 科学技術振興機構, 「平成 23 年度「研究成果最適展開支援プログラム(A-STEP)」採択課題,  
<https://www.jst.go.jp/a-step/kadai/h23-1honkaku.html>(参照: 令和 3 年 4 月 30 日).

- (3-3) 日本原子力研究開発機構, 「施設中長期計画」, 平成 29 年 4 月 1 日(改訂令和 3 年 4 月 1 日), 2021, [https://www.jaea.go.jp/about\\_JAEA/facilities\\_plan/keikaku.pdf](https://www.jaea.go.jp/about_JAEA/facilities_plan/keikaku.pdf)(参照:令和 3 年 4 月 30 日).
- (4-1) 厚生労働省, 「第十六改正日本薬局方」, 平成 23 年 3 月 24 日, 厚生労働省告示第 65 号, 2011.
- (4-2) 厚生労働省, 「放射性医薬品基準」, 平成 25 年 3 月 29 日, 厚生労働省告示第 83 号, 2013.
- (4-3) 厚生労働省医薬食品局監視指導・麻薬対策課, 「無菌操作法による無菌医薬品の製造に関する指針」の改訂について, 平成 23 年 4 月 20 日, 2011.
- (5-1) A. Kimura, Y. Sato, et al., “Development of High Density MoO<sub>3</sub> Pellets for Production of <sup>99</sup>Mo Medical Isotope”, IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, Vol.18, 2011, 042001, pp.1-4.
- (5-2) K. Nishikata, A. Kimura et al., “Fabrication and characterization of high-density MoO<sub>3</sub> pellets”, Proceedings of 2012 Powder Metallurgy World Congress & Exhibition (PM 2012) (CD-ROM), 2013, 8p.
- (5-3) 西方香緒里, 木村明博, 他, 「(n, γ)法による <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 製造用照射ターゲットの製造技術開発と特性評価」, JAEA-Technology 2014-034, 2014, 34p.
- (5-4) 西方香緒里, 木村明博, 他, 「放射性モリブデンの作製方法」, 特許公報 特許第 5888781 号(登録日:平成 28 年 2 月 26 日).
- (5-5) 木村明博, 西方香緒里, 他, 「三酸化モリブデンペレットの製造方法」, 特許公報 特許第 6465284 号(登録日:平成 31 年 1 月 18 日).
- (5-6) K. Tatenuma, K. Ishikawa, A. Tsuguchi, et al, “A Mass-Production Process of a Highly Pure Medical Use <sup>99m</sup>Tc from Natural Isotopic Mo(n, γ)<sup>99</sup>Mo without Using Uranium”, RADIOISOTOPES, Vol.63, No.11, 2014, pp.501-513.
- (5-7) Y. Nagai, Y. Nakahara, M. Kawabata, et al, “Quality of <sup>99m</sup>TcO<sub>4</sub><sup>-</sup> from <sup>99</sup>Mo Produced by <sup>100</sup>Mo(n, 2n)<sup>99</sup>Mo”, Journal of the Physical Society of Japan, Vol.86, 053202, 2017.
- (5-8) R. E. Boyd, “Molybdenum-99:Technetium-99m Generator”, Radiochimica Acta, Vol.30, 1982, pp.123-145.
- (5-9) S. Chattopadhyay, S. S. Das, L. Barua, “A simple and rapid technique for recovery of <sup>99m</sup>Tc from low specific activity (n, γ)<sup>99</sup>Mo based on solvent extraction and column chromatography”, Applied Radiation and Isotopes. Vol.68, 2010, pp.1-4.
- (5-10) A. Shibata, T. Ishida, T. Shiina, et al, “Extraction Properties of <sup>99m</sup>Tc from irradiated High-density MoO<sub>3</sub> Pellets Solution”, Proceedings of the 7<sup>th</sup> International Symposium on Material Testing Reactors (ISMTR-7), Poland, 20-23 October 2014.
- (5-11) 棚瀬正和, 藤崎三郎, 他, 「(n, γ)法で得られる <sup>99</sup>Mo からの高濃度 <sup>99m</sup>Tc 溶液の大量製造技術の評価」, RADIOISOTOPES, Vol.65, No.5, 2016, pp.237-245.

- (5-12) A. Kimura, K. Nishikata, M. Tanase, et al., “Development of  $^{99m}\text{Tc}$  Extraction-Recovery by Solvent Extraction Method”, JAEA-Conf 2011-003, 2011, pp.147-150.
- (5-13) M. Tanase, T. Shiina, et al., “Development of  $^{99m}\text{Tc}$  Production from  $(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ ”, Proceedings of the 5th International Symposium on Material Testing Reactors (ISMTR-5), 2012.
- (5-14) 棚瀬正和, 藤崎三郎, 太田朗生, 他, 「 $(n, \gamma)$  法で得られる  $^{99}\text{Mo}$  からの高濃度  $^{99m}\text{Tc}$  溶液の大量製造技術の評価 -  $^{99m}\text{Tc}$  の代わりに非放射性 Re を用いた基礎的検討-」, RADIOISOTOPES, Vol.65, No.5, 2016, pp.237-245.
- (5-15) M. Tanase, K. Tatenuma, et al., “A  $^{99m}\text{Tc}$  Generator using a New Inorganic Polymer Adsorbent for  $(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ ”, Applied Radiation and Isotopes, Vol.48, No.5, 1997, pp.607-611.
- (5-16) 長谷川良雄, 西野瑞香, 他, 「RI ジェネレータとしての Mo 吸着剤の合成」, 日本化学会誌, Vol.1996, No.10, 1996, pp.888-894.
- (5-17) 木村明博, 谷本政隆, 他, 「塩素フリー無機高分子系 Mo 吸着剤の開発」, JAEA-Technology 2011-012, 2011, 17p.
- (5-18) W. H. Gitzen (Ed.), “Alumina as a Ceramic Material”, Wiley, 1970, 264p.
- (5-19) 坂本憲一, 「アルミナ水合物とアルミナ」, 軽金属, Vol.22, No.4, 1972, pp.295-308.
- (5-20) Y. Suzuki, T. Kitagawa, et al., “Molybdenum Adsorption and Desorption Properties of Alumina with Different Surface Structures for  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  Generators”, Transactions of the Materials Research Society of Japan, Vol.43, No.2, 2018, pp.75-80.
- (5-21) Y. Fujita, M. Seki, et al., “Effect on  $^{99}\text{Mo}$ -adsorption/ $^{99m}\text{Tc}$ -elution properties of alumina with different surface structures”, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.327, 2021, pp.1355-1363.
- (5-22) S. Kakei, A. Kimura, et al., “Development of Mo Recycle Technique from Generator Materials”, Proceedings of the 5th International Symposium on Material Testing Reactors (ISMTR-5), 2012.
- (5-23) S. Kakei, A. Kimura, et al., “Mo Recycling Property from Generator Materials with Irradiated Molybdenum”, Proceedings of the 6th International Symposium on Material Testing Reactors (ISMTR-6), 2013.
- (5-24) 谷本政隆, 木村明博, 西方香緒里, 新関智丈, 吉永英雄, 他, 「モリブデンのサイクルシステム及び当該サイクルシステムに使用されるモリブデン吸着剤の再生方法」, 特許公報 特許第 5953548 号(登録日:平成 28 年 6 月 24 日), 2016.
- (5-25) 鈴木祐未, 中野寛子, 他, 「 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  溶液の品質検査用分析装置の性能試験(1)」, JAEA-Technology 2015-031, 2015, 58p.
- (5-26) 石田卓也, 椎名孝行, 太田朗生, 他, 「中性子照射化法による  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  製造に関する試験体系の確立」, JAEA-Technology 2015-030, 2015, 42p.

- (5-27) K. Tsuchiya, K. Nishikata et al., “ $^{99}\text{Mo}$ - $^{99\text{m}}\text{Tc}$  Production Process by  $(n, \gamma)$  Reaction with Irradiated High-density  $\text{MoO}_3$  pellets”, Proceedings of the 6th International Symposium on Material Testing Reactors (ISMTR-6), 2013.
- (6-1) 河村弘, 太田朗生, 他, 「 $^{99}\text{Mo}$ の準国産化に向けた取り組み」, FBNews No.524, 2020.
- (6-2) 長谷川良雄, 西野瑞香, 他, 「 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレーター用高性能 Mo 吸着剤の合成と特性」, 日本化学会誌, Vol.1999, No.12, 1999, pp.805-810.
- (6-3) G. L. Schmitt, D. J. Pietrzyk, “Liquid Chromatographic Separation of Inorganic Anions on an Alumina Column”, Analytical Chemistry, Vol.57, No.12, 1985, pp.2247-2253.
- (6-4) O. F. Oyerinde, C. L. Weeks, et al., “Solution structure of molybdic acid from Raman spectroscopy and DFT analysis”, Inorganica Chimica Acta, Vol.361, 2008, pp.1000-1007.

This is a blank page.

## 付録1 つくば特区「核医学検査薬の国産化」プロジェクト6 会合について

### プロジェクト6 会合の趣旨

つくば国際戦略総合特区のプロジェクト「核医学検査薬（テクネチウム-99m）の国産化」が平成25(2013)年10月11日に追加・認定された。これを受けて、茨城県等地方自治体、国内の大学・研究機関、民間企業等と連携・協力しながら、日本原子力研究開発機構にある JMTR ホットラボ施設を活用し、ウランを用いない放射化法による  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  国産化の早期実現のための技術的成立性の実証試験を進めることになった。このため、産学官連携を強化し、研究開発よりの確に効率的に推進するための委員会として「核医学検査薬の国産化プロジェクト会合（仮称）」を設置することとする。

#### 記

##### 1. プロジェクト会合の参画機関について

プロジェクト会合を構成する委員を別紙に示す。プロジェクト会合の事務局は、つくばグローバル・イノベーション推進機構で行う。

##### 2. 主な検討内容について

「核医学検査薬（テクネチウム-99m）の国産化」プロジェクトを完遂するために、各参画組織が分担する研究課題の進捗状況を把握し、研究開発課題、推進方策等についてチェック・アンド・レビューを行うとともに、課題点・解決策を議論し、国産化に向けた技術的実証に資する。

##### 3. その他

- (1) 開催頻度：2回/年（必要に応じて、開催頻度は変更。）
- (2) 開催場所：適宜決定（水戸市、つくば市、大洗町など。）
- (3) 旅費等：各参画組織で原則負担。

以上

別紙

プロジェクト6 会合の参画機関の構成

	機 関	備 考
プロジェクトリーダー	日本原子力研究開発機構	
主たる実施者	日本原子力研究開発機構	
	(株)千代田テクノル	
参画組織	日本原子力研究開発機構	
	(株)千代田テクノル	
	(株)アート科学	
	太陽鋳工(株)	
	金属技研(株)	2018年度まで
支援組織	つくばグローバル・イノベーション推進機構	
関係省庁／自治体	文部科学省※1	
	茨城県産業戦略部科学技術振興課	
	つくば市科学技術振興課	
その他、潜在的に今後の参画が想定される組織	ユニオン昭和(株)	適宜、情報交換を実施(オブザーバ参加)
	大学、国立研究開発法人、素材メーカー、製薬メーカーなど	

※1：必要に応じて参加を依頼。

プロジェクト6 会合メンバー (1)

	機 関	氏 名	期 間
プロジェクトリーダー	日本原子力研究開発機構	荒木政則	2015年4月～2016年3月
		石原正博	2016年4月～2017年6月
		神永雅紀	2017年7月～2021年3月
主たる実施者	日本原子力研究開発機構	荒木政則	2015年4月～2016年3月
		楠 剛	2016年4月～2021年3月
	(株)千代田テクノル	竹内宣博	2015年4月～2017年6月
		柴田徳思	2017年7月～2021年3月

プロジェクト6 会合メンバー (2)

	機 関	参加メンバー (年度)
参画組織	日本原子力研究開発機構	土谷邦彦 (2015~2020)、井手広史 (2020) 藤田善貴 (2017~2020)、西方香緒里 (2018~2020)
	筑波大学	福光延吉 (2015~2020)、原田伊吹 (2015) 熊田博明 (2018~2020)、篠野健太郎 (2019~2020)
	(株)千代田テクノル	佐藤典仁 (2016~2019)、椎名孝行 (2015~2019) 棚瀬正和 (2015~2020)、濱島健二 (2015~2017) 竹内宣博 (2017~2020)、太田朗生 (2019~2020) 小口靖弘 (2019~2020)
	(株)アート科学	長谷川良雄 (2015~2018)、新関智文 (2015~2020)
	太陽鋳工 (株)	吉永英雄 (2015~2020)、掛井貞紀 (2015~2019) 野村和宏 (2020)
	金属技研 (株)	鈴木康明 (2015)、宇野 毅 (2016~2018) 新倉高一 (2015~2016)、石崎博之 (2015~2018) 上野薫 (2017~2018)
オブザーバ	ユニオン昭和 (株)	松倉 実 (2017~2020)

プロジェクト6 会合メンバー (3)

	機 関	年度	参加メンバー (年度)
支援組織	つくばグローバル・ イノベーション 推進機構	2015	末広峰政、根本富彦、川尻健司、齋藤 均
		2016	末広峰政、上田博嗣、石原由美子
		2017	綱島和仁、上田博嗣
		2018	橋本俊幸、上田博嗣
		2019	橋本俊幸、上田博嗣、生井 茜
		2020	橋本俊幸、生井 茜
自治体	茨城県	2015	田口賢寿、木村憲寿、田山尚弘、松本 満
		2016	山本清文、磯山 亮
		2017	鈴木和文、鈴木宏明
		2018	鈴木和文、鈴木宏明
		2019	藤井 瞭、青木洋平
		2020	鳥羽秀樹、青木洋平
	つくば市	2015	東郷公咲、小川英男
		2016	飯村通治、大垣博文、高橋研太
		2017	久保田靖彦、前島吉亮、高橋研太
		2018	岡野 渡、前島吉亮、野元隆彬
		2019	岡野 渡、野元隆彬
		2020	岡野 渡、野元隆彬

**「核医学検査薬の国産化」プロジェクトに係る経緯（概要）（平成 26 年度まで）**

- 平成 24 年 10 月 2 日 JMTR における Mo-99/Tc-99m 製造技術開発に係る「つくば国際戦略総合特区」の指定基準への適合性検討  
（場所：茨城県庁、参加機関：茨城県、原子力機構）
- 平成 24 年 11 月 16 日 JMTR における Mo-99/Tc-99m 製造技術開発の現状説明  
（場所：筑波大学付属病院、参加機関：茨城県、つくばグローバル・イノベーション推進機構、筑波大学付属病院、原子力機構、他）
- 平成 25 年 2 月 4 日 つくば特区新規プロジェクト内容に係る打合せ  
・提案する新規プロジェクトの取組内容、規制緩和事項、経済効果等に関する議論等  
（場所：筑波大学付属病院、参加機関：茨城県、つくばグローバル・イノベーション推進機構、筑波大学付属病院、原子力機構、他）
- **平成 25 年 6 月 10 日 つくば特区新規プロジェクト概要書提出（茨城県⇒内閣府）**
- 平成 25 年 7 月 19 日 つくば特区新規プロジェクトに関する説明（庁議前説明）  
（場所：茨城県庁、参加機関：茨城県、原子力機構）
- 平成 25 年 7 月 31 日 内閣府 西村内閣府副大臣への説明  
（場所：内閣府、参加機関：茨城県、つくば市、大洗町、筑波大学、原子力機構、他）
- 平成 25 年 8 月 1 日 文部科学省 戸谷官房長への説明  
（場所：文部科学省、参加機関：茨城県、原子力機構）
- **平成 25 年 10 月 11 日 つくば特区新規プロジェクトの追加が決定**  
**⇒大洗町の一部を特区の区域に追加**
- 平成 26 年 2 月 18 日 平成 26 年度財政支援に係る個票提出（茨城県⇒内閣府）
- **平成 26 年 4 月 16 日 平成 26 年度第 1 回財政支援要望の提出（茨城県⇒内閣府）**
- 平成 26 年 5 月 28 日 つくば特区核医学検査薬の国産化プロジェクトに関する打合せ  
・「<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 製造実証」のための試験研究の説明及び「<sup>99m</sup>Tc 製剤化に向けた評価」のための品質試験方法に関する議論等  
（場所：筑波大学付属病院、参加機関：茨城県、つくば市、つくばグローバル・イノベーション推進機構、筑波大学付属病院、原子力機構、他）
- **平成 26 年 7 月 15 日付 原子力機構と関連企業との間で共同研究を締結**  
「放射化法による <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 製造に関する基礎基盤技術の確立」  
・関連企業：千代田テクノル、金属技研、アート化学、太陽鉱工
- **平成 26 年 11 月 19 日 平成 26 年度総合特区推進費補助金の交付**
- **平成 27 年 3 月 31 日 JMTR ホットラボ施設内の環境整備の完了。**

以上

## プロジェクト6 会合の開催実績

回数	日時	場所	主な議題
第1回	平成27年 4月23日(木) 10:00~12:00	茨城県庁 11階 会議室	(1) プロジェクト6 会合の趣旨説明 (2) 参画機関の紹介 (3) 平成26年度の活動報告 (4) 課題解決に向けた対応状況及び今後の方針 ・ Mo原料の調達 ・ 実用化に向けた課題、等 (5) 平成27年度の計画
第2回	平成27年 11月24日(火) 15:00~17:00	筑波大学 春日プラザ 4階 共用会議室1	(1) 平成27年度の活動報告 (2) 課題解決に向けた対応及び今後の方針 ・ 非臨床・臨床研究に向けた対応 (3) 平成28年度に向けた実施目標について ・ 研究開発計画(改定案)の説明 ・ 原子力学会「2016年春の年会」のシリーズ発表の提案 ・ 研究開発費の確保
第3回	平成28年 5月31日(火) 15:00~17:00	茨城県庁 10階 会議室	(1) 総合特区制度の延長に係る対応 (2) 平成27年度プロジェクトの活動概要 (3) 各課題の活動報告及び今後の進め方 (4) 課題解決に向けた対応及び今後の方針 ・ JMTRの現状及び研究開発計画の確認 ・ AMEDへの事前相談への対応 ・ 研究開発費の確保 ・ 成果報告
第4回	平成28年 11月29日(火) 15:00~17:00	文部科学省 研究交流センター 2階 第1会議室	(1) 平成28年度プロジェクトの活動状況 (2) JAEA 施設中長期計画(案) ・ JMTRに関する方針に対する説明 (3) 特区事業の延長に対する対応及び今後の方針に関する議論 ・ 特区延長手続きに関する状況 ・ 世界における原子炉を用いたMo-99製造の現状 ・ 延長期間中の実施計画、目標及び実施内容に関する議論 ・ 各課題に関する今後の進め方に係る検討依頼
第5回	平成29年 5月26日(金) 15:00~17:00	茨城県庁 14階 共用会議室	(1) つくば特区の延長状況について (2) プロジェクト全体計画及び平成29年度実施項目(案) (3) 平成28年度プロジェクトの活動状況 (4) 今後の進め方に関する議論 ・ 延長期間中の実施計画、目標及び実施内容に関する議論 ・ 各課題に関する今後の進め方に係る検討依頼
第6回	平成29年 11月28日(火) 15:00~17:00	文部科学省 研究交流センター 3階 第3会議室	(1) 平成29年度実施状況 ・ 成果報告会(11/7開催)含む (2) 平成29年度プロジェクトの活動状況 (3) 今後の進め方に関する議論 ・ KUR照射試験について ・ $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 非臨床試験について ・ 平成30年度の実施計画(案) ・ 各課題に関する今後の進め方に係る検討依頼

第7回	平成30年 6月20日(水) 15:00~17:15	(株)千代田テクノロ 大洗大貫台事業所 AB会議室	(1) 平成29年度成果及び平成30年度実施計画(案) (2) 平成29年度活動状況(12~5月までの実施説明)及び実施計画 (3) 今後の進め方に関する議論 ・各課題に関する今後の進め方に係る意見交換 (4) 施設見学 ・個人線量測定サービス施設の見学
第8回	平成30年 12月3日(月) 14:00~16:00	筑波大学 春日キャンパス 高細精棟(CO1棟) 5階 511室	(1) 平成30年度実施状況 (2) 平成30年度プロジェクトの活動状況 (3) 今後の進め方に関する議論 ・代替炉(KUR、海外炉)照射試験 ・平成31年度の実施計画(案) ・各課題に関する今後の進め方に係る検討依頼
第9回	令和元年 6月4日(火) 14:00~16:00	原子力機構 大洗研究所 材料試験炉部 第1会議室	(1) 平成30年度成果及び令和元年度実施計画(案) (2) 平成30年度活動状況及び令和元年度実施計画 (3) 今後の進め方に関する議論 ・最近の動向及び今後の進め方に係る意見交換
第10回	令和2年 1月24日(金) 14:00~16:00	筑波大学 春日キャンパス 高細精棟(CO1棟) 5階 511室	(1) 令和元年度実施状況 (2) 令和元年度プロジェクトの活動状況 (3) 今後の進め方に関する議論 ・Mo-99製造に係る最近の動き ・令和2年度の実施計画(案)について ・各課題に関する今後の進め方に係る検討依頼
第11回	令和2年 7月9日(木) 13:30~15:30	TV会議 (Zoomシステム)	(1) 令和元年度成果及び令和2年度実施計画(案) (2) 令和元年度活動状況及び令和2年度実施計画 (3) 今後の進め方に関する議論 ・最近の動向及び今後の進め方に係る意見交換 ・特区延長に係る意見交換
第12回	令和3年 3月3日(水) 10:00~12:00	TV会議 (Zoomシステム)	(1) 第2期つくば特区プロジェクト6の活動のまとめ ・第2期つくば特区プロジェクト6の報告書の作成依頼について (2) 令和2年度下期の活動状況 (3) つくば特区の延長について ・第3期つくば特区の延長計画と手続き状況等 ・第3期つくば特区(テクネチウム)の実施計画(案) ・第3期つくば特区の進め方(意見交換) ・プロジェクトの進め方 ・ライフイノベーション分野での情報共有

付録2 つくば国際戦略総合特区・プロジェクト成果発表会(平成29年11月7日)

Tsukuba International Strategic Zone  
**つくば国際戦略総合特区**  
 プロジェクト成果発表会

「つくば国際戦略総合特区」は、平成23年12月に国から特区指定を受け、最先端科学技術を活用したイノベーションの創出と産業化に取り組んできました。これまでの成果と今後の展望、本県産業への波及などについて、各プロジェクトの中心研究者からご紹介しします。特区プロジェクトの成果や展望に興味をお持ちの企業様・研究者・一般の方々のご参加をお待ちしております。

平成29年11月7日(火) 午後2時～午後5時30分  
 つくばカピオ ホール (茨城県つくば市竹園1-10-1)

参加  
無料



- ◆ 開会挨拶 14:00～14:20
- ◆ 特区概要説明 14:20～14:30
- ◆ 特区プロジェクト成果発表 14:30～16:15

- 次世代がん治療(BNCT)の開発実用化.....筑波大学医学医療系准教授 熊田 博明
- 生活支援ロボットの実用化.....産業技術総合研究所ロボットイノベーション研究センター副研究センター長 大場 光太郎
- 藻類バイオマスエネルギーの実用化.....筑波大学特命教授 渡邊 信
- TIA世界的イノベーションプラットフォームの形成.....産業技術総合研究所TIA推進センター事務局長 岩田 晋
- つくば生物医学資源を基盤とする革新的医薬品・医療技術の開発.....エーザイ株式会社筑波研究所シニアサイエンティフィックアドバイザー 吉松 賢太郎
- 核医学検査薬(テクネチウム製剤)の国産化.....日本原子力研究開発機構原子力科学研究部門大洗研究開発センター照射試験炉センター照射試験開発課長 土谷 邦彦
- 戦略的都市鉱山リサイクルシステムの開発実用化.....産業技術総合研究所環境管理研究部門総括研究主幹 大木 達也
- 植物機能を活用したヒトの健康増進に資する有用物質生産システムの開発事業化.....筑波大学生命環境系教授、つくば機能植物イノベーション研究センターセンター長 江面 浩
- 革新的ロボット医療機器・医療技術の実用化と世界的拠点形成.....筑波大学大学院教授、CYBERDYNE株式会社代表取締役社長/CEO、内閣府IMPACT革新的研究開発推進プログラムプログラムマネージャー 山海 嘉之

※都合により発表順が変更になる可能性があります。

◆ パネルディスカッション 16:25～16:55

テーマ「つくばエリアでの共創の実現に向けて！～産官学金連携から社会実装へ～」  
 各プロジェクトの中心研究者が、未来社会創生に向けての共創と社会実装の在り方を熱く語ります！

◆ ポスターセッション(in ホワイエ) 17:00～17:30

各プロジェクトのブースを設置し、ポスターや研究成果の展示・体験などを通じて、世界をリードする中心研究者と自由な意見交換を行っていただけます！！

申し込み

件名に「1107参加希望」と明記し、名前、所属、連絡先をご記入の上、  
[event@tsukuba-gi.jp](mailto:event@tsukuba-gi.jp)宛、メールでお申し込みください。

問い合わせ

(一社)つくばグローバルイノベーション推進機構  
 〒305-0031 つくば市吾妻1-10-1 つくばイノベーションプラザ  
 Tel 029-869-8030 ,Fax 029-869-8031  
 E-mail event@tsukuba-gi.jp

会場案内図



※TXつくばエクスプレス「つくば駅」下車 A3出口から徒歩10分  
 ※お車でお越しの際は、近隣の有料駐車場をご利用ください。

主催：(一社)つくばグローバルイノベーション推進機構、茨城県、つくば市、筑波大学  
 後援：国立研究開発法人産業技術総合研究所、筑波研究学園都市交流協議会、いばらき成長産業振興協議会、株式会社筑波銀行、株式会社つくば研究支援センター、一般社団法人茨城研究開発型企業交流協会

つくば国際戦略総合特区・プロジェクト成果発表会  
平成29年11月7日 つくばカピオホール

# 核医学検査薬（テクネチウム製剤） の国産化

## －プロジェクト概要と成果－

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構  
原子力科学研究部門 大洗研究開発センター  
照射試験炉センター

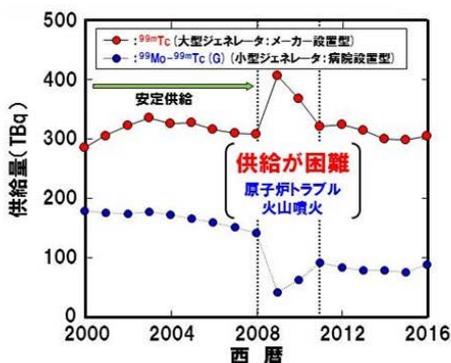
土谷 邦彦

（プロジェクト参画機関  
（株）千代田テクノル、金属技研（株）、（株）アート科学、太陽鉬工（株）  
筑波大学、その他

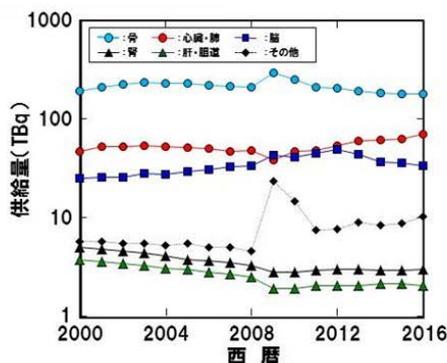
### 1. 背景 －日本における<sup>99m</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc供給の現状－

<sup>99m</sup>Moを原料とする<sup>99m</sup>Tcの核医学検査薬（<sup>99m</sup>Tc製剤）は、主に腫瘍の転移や再発、梗塞など、骨や脳・心筋の血流状況等の検査に用いられ、我国では18成分34品目が製造販売されている。

インビボ用<sup>99m</sup>Mo-<sup>99m</sup>Tc医薬品の供給量



<sup>99m</sup>Tc注射剤の供給量



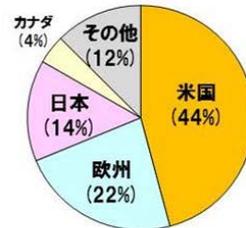
- <sup>99m</sup>Tcと<sup>99m</sup>Mo-<sup>99m</sup>Tc (G:ジェネレータ)の供給量は年々減少傾向であるが、他の核種と比較して圧倒的に多く、2015年度は前者は61%、後者は15%の供給量を占め、合計で75%以上に達している。
- <sup>99m</sup>Tc注射剤供給量の時間的推移はほぼ横ばいであり、核医学検査薬として主要な核種である。

【参考文献】「放射性医薬品流通統計2005, 2012, 2017」等、(社)日本アイソトープ協会編

## 2. 目的 – $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 国産化の重要性 –

$^{99}\text{Mo}$ の娘核種である $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は、核医学検査薬として利用。  
日本は、欧米につぐ世界第3位の消費国。

- $^{99}\text{Mo}$ は100%外国から輸入  
⇒ 欧米の製造用原子炉の老朽化、火山噴火等による航空輸送への影響。
- $^{99}\text{Mo}$ はU-235を中性子照射により製造  
⇒ 高濃縮U原料入手が困難、核分裂性廃棄物処理及び核不拡散上の問題。



Mo-99の需要 (国別の使用量)



ウラン ( $^{235}\text{U}$ ) を用いない放射化法による $^{99}\text{Mo}$ 製造技術を確認し、 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 国産化を目指し、 $^{99}\text{Mo}$ を安定に供給することが重要。

2

## 3. 「核医学検査薬の国産化」に係る実施体制

- つくば国際戦略総合特区のプロジェクト (H25.10.11追加) に基づき、日本原子力研究開発機構にあるJMTRホットラボ施設内の環境整備を行い、ウランを用いない放射化法による $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 国産化の早期実現のための技術的成立性を実証する。
- 原子力機構の研究施設群、人的資源を最大限に活用し、原子力機構を中核とする研究開発拠点の形成に向けて、茨城県等地方自治体、国内の大学・研究機関、民間企業等と連携・協力しながら、国産化技術の開発・評価・実証を行う。



放射化法による $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 国産化を実現することにより、日本国内だけでなく世界に対してもライフイノベーション分野に貢献。

3

## 4. (n, γ) 法による<sup>99m</sup>Tc製剤の目標基準値

既存<sup>99m</sup>Tc製剤の基準等に基づいて、製造する<sup>99m</sup>Tc溶液の品質確認方法及び目標の品質規格基準値を設定。

項目	放薬基*1	USP *2	EP (non-fission) *3	目標基準値
<sup>99m</sup> Tc量 (%)	90~110	90~110	90~110	—
放射化学的異物 (%)	< 5	< 5	< 5	<5
放射核的純度 (μCi/mCi <sup>99m</sup> Tc)				
<sup>99</sup> Mo	<0.15 (<0.015%)	<0.15	(<0.1%)	<0.15 (<0.015%)
<sup>131</sup> I	—	<0.05	—	—
<sup>103</sup> Ru	—	<0.05	—	—
<sup>89</sup> Sr	—	<0.006	—	—
<sup>90</sup> Sr	—	<0.00006	—	—
他核種	—	<0.1, a emitter	(<0.01%)	—
pH	4.5 ~ 7.0	4.5 ~ 7.5	4.5 ~ 8.0	4.5~7.5
非放射性不純物				
Al	<10 ppm	<10 μg/ml	<5 ppm	<10ppm
MEK	—	<0.1%	—	<5000ppm
その他、医薬品として要求される基準値				
エンドキシン (Eu/mL)	<0.03	—	—	<0.03
浸透圧 (mOsm)	285	—	—	270~300

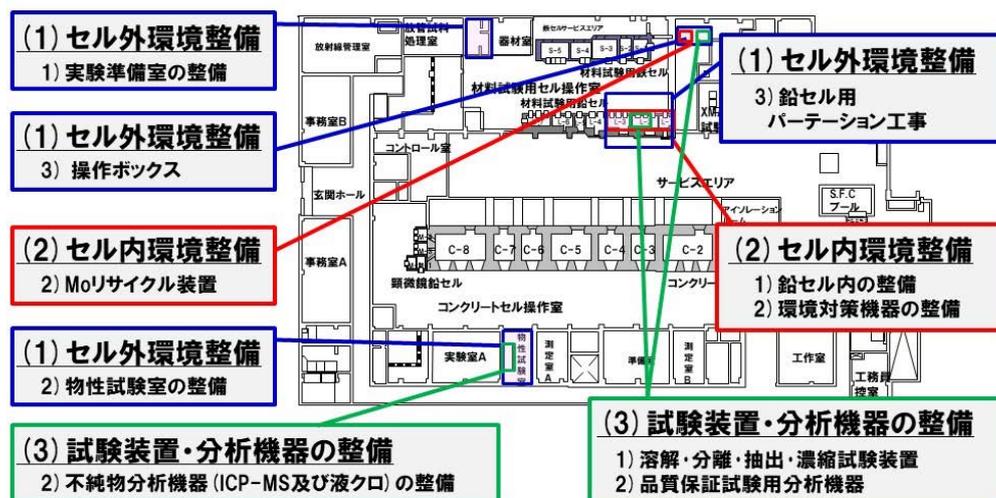
基準値を設定

\*1:放射性医薬品基準、\*2:米国薬局方 (USP)、\*3:欧州薬局方 (EP)

4

## 5.1 主な成果① –プロジェクトに向けた設備整備–

JMTRホットラボ施設内に空気清浄度を管理した設備及び<sup>99m</sup>Tc原料溶液等の分析・検査を行うための装置の整備完了。



○ 文部科学省より「設備整備補助金」として交付 (平成26年11月19日) を受け、設備整備を完了。

5

## 5.2 主な成果② – 開発項目及び進捗状況 –

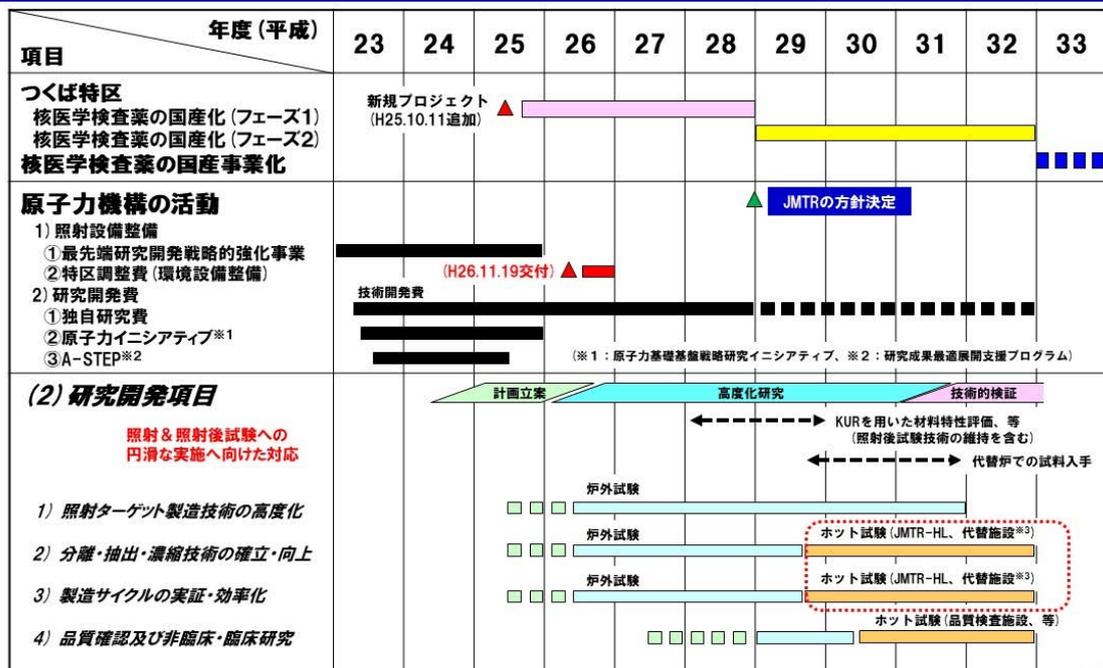
ウラン ( $^{235}\text{U}$ ) を原材料としない放射化学による $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 製造に係る要素技術を確認し、基本的な製造工程を構築。 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 製造システムの完成に向けた技術開発を実施中。

開発項目	目標	進捗状況
1 照射ターゲットの製造技術開発	新たな製造方法による高密度 $\text{MoO}_3$ ペレットの安定製造技術を確認。	焼結に与える粉末特性への影響HIP法による改善検討。
2 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離・抽出・濃縮技術開発	1)MEK (メチルエチルケトン) を用いた溶媒抽出法による $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離・抽出・濃縮技術を確認 (高純度・高濃縮 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶液の確保)。 2)PZC (高分子ジルコニウム化合物) に代わるリサイクル可能なMo吸着剤の製造技術を創出 (200mg/g)。	Tcの模擬元素であるReを用いて、分離工程の最適化を実施中。また、抽出・濃縮工程におけるReの回収率の向上を図る。 PZC及びPTCの特性評価 (継続中)。アルミナ系Mo吸着剤の検討。 ⇒ 影響評価、構造検討、等
3 Moリサイクル技術開発	Mo吸着剤に吸着したMoを高い収率で回収する技術を確認 (回収率:95%以上)。	MEK含有量によるMo溶液からのMo回収特性の把握。
4 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 製剤化に向けた技術開発	本方法による $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶液の核医学検査薬の基準値を設定。低放射能濃度での検査実施。	ICP-MSによる不純物測定を確認。 ⇒ 炉外試験での、製造技術や分離・抽出・濃縮技術の開発に活用。

※:年2回、プロジェクト会合を開催し、進捗確認及び今後の進め方について議論・協議。

6

## 6. 全体計画



※3: 現在、JMTRホットラボについて、規制庁と調整中。代替施設も視野に入れて、検討を開始。

7

This is a blank page.

付録3 JMTR 廃止措置決定に伴う代替炉の検討(第8回プロジェクト6会合)

平成30年12月3日 筑波大学 春日キャンパス 高細精棟(CO1棟)5階 511室



資料5-1

# 代替炉を用いた照射試験の検討

平成30年12月3日

日本原子力研究開発機構  
高速炉・新型炉研究開発部門 大洗研究所  
環境技術開発センター 材料試験炉部

**代替炉(海外炉)の概要**

## ポーランド MARIA炉の概要

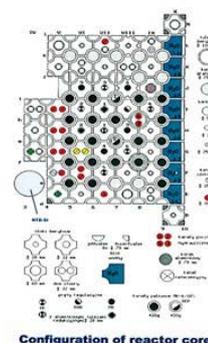


- (1) 運転: 運転: 1974年臨界。炉プール型。最大30MW (通常18MW運転)。年間稼働率約75%。
- (2) 燃料調達: ロシア製、中濃縮燃料 (36%)、2015年にLEU化<sup>※</sup>。  
(※: ロシア製及びフランス製LEU燃料の使用認可を有する)
- (3) <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tcに係る製造状況
  - HFRの代替炉として<sup>99</sup>Moを生産を開始し、現在はNRU、OSIRISの廃止に伴い、生産量は増大。
  - その他のRI製造として、I-131、P-32、S-35、Ir-192等の実績。



General view

Photo Source : National Centre for Nuclear Research (NCBJ)

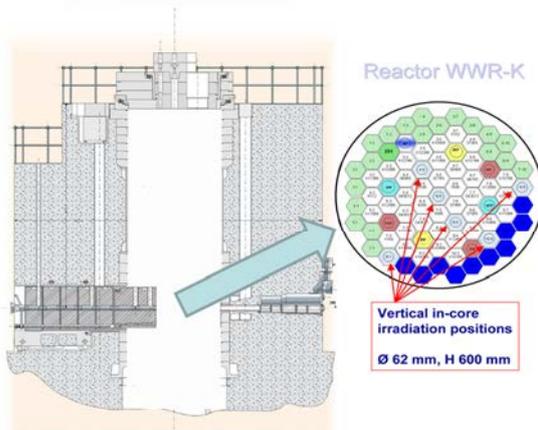


1

## カザフスタンWWR-K炉の概要



- (1) 運転: 運転: 1967年臨界。炉プール型。6MW運転。年間稼働率約40%。
- (2) 燃料調達: ロシア製、中濃縮燃料 (36%)、2016年にLEU化が完了。
- (3) <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tcに係る製造状況
  - (n,  $\gamma$ ) 法により<sup>99</sup>Moを製造し、<sup>99</sup>Moゲルを生産。



	チャンネル数	直径 (mm)	熱中性子束 (n/cm <sup>2</sup> /s)
<b>垂直照射孔</b>			
炉心領域	3	62	(1.0~1.1) × 10 <sup>14</sup>
炉心周辺領域	(可変)	62	(3~6) × 10 <sup>14</sup>
反射体領域	12	70~200	10 <sup>12</sup> ~10 <sup>13</sup>
<b>水平照射孔</b>			
半径方向	5	100	2 × 10 <sup>13</sup>
接線方向	1	193	6 × 10 <sup>12</sup>
熱中性子柱	1	1150	1 × 10 <sup>13</sup>

2

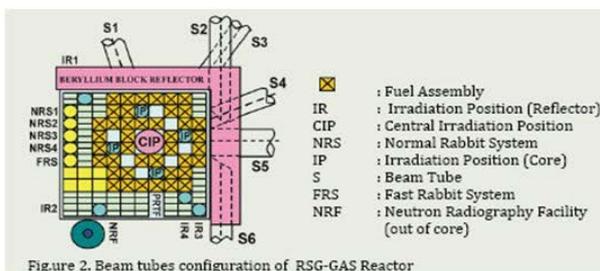
## インドネシアRSG-GAS炉 (BATAN) の概要



- (1) 運転: 1987年臨界。プール型。通常15MW運転 (公称30MW)。  
RSG-GAS (RSGは多目的研究炉の略。GASは初代原子力委員長G.A.Siwabessy博士のイニシャル)在スルボン。年間稼働率約50%。
- (2) 燃料調達: BATAN製。
- (3)  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ に係る試験状況
  - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の製造: 高濃縮ウランによる照射を実施。現在、低濃縮ウランの照射試験を実施。
  - $(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ の製造技術開発も実施しており、Mo吸着剤をアルミナからPZC類似品に変更予定。

### Descriptive Parameter of RSG-GAS

Power	: 15MW (maximum 30MW)
Neutron flux at core	: $\sim 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$
<b>Core</b>	
Active core volume (dm <sup>3</sup> )	: 180
Active core height (cm)	: 60
Loading (Kg $^{235}\text{U}$ )	: 8.675
Number of fuel elements	: 40 (in TWC)
Number of control elements	: 8 (in TWC)
Fuel type	: $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ - MTR
$^{235}\text{U}$ enriched (%)	: 19.75
$^{235}\text{U}$ density (g cm <sup>-3</sup> )	: 2.96
Moderator / coolant	: $\text{H}_2\text{O}$
Neutron beam tubes	: 6 (2 Tangential & 4 Radial)
Beam tubes (diameter)	: 24 cm (S2, S4, S6) 27 cm (S5)



3

京大炉 (KUR) における試験計画  
(案)

## KURにおける照射試験に係る前提条件



- (1) RIラベリング  
水圧輸送管用Al容器からアルミ容器を取出した時点
- (2) KURRIのホットラボにおける1日最大使用量

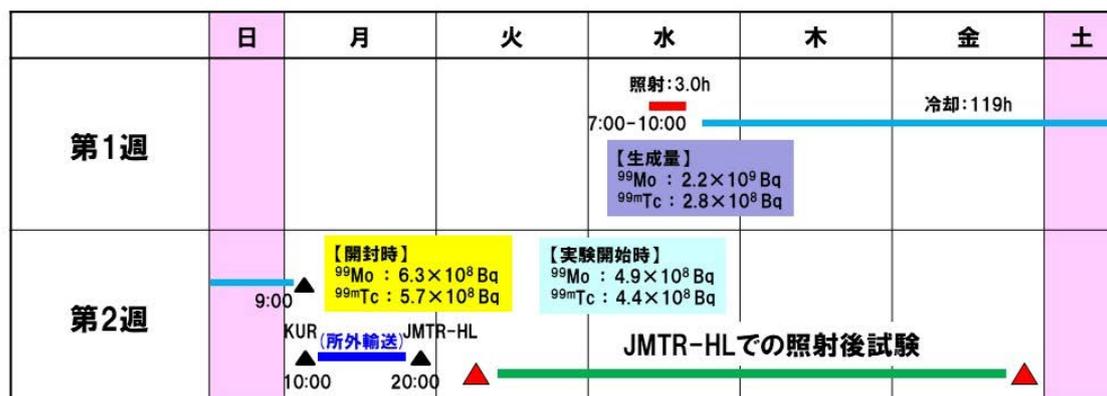
核種	1日最大使用量 (MBq)	使用限度 (×0.4717)
Mo-99	1335.6	630.0
Tc-99m	1335.6	630.0

4

## KURを用いた照射試験計画



- 1日最大使用量に基づいて、照射計画を策定



### 【照射条件】

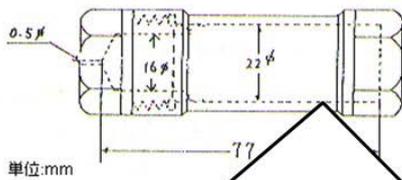
- 水圧輸送管にて、1MW・3時間で照射
- 開封時の<sup>99</sup>Mo生成量は、 $6.3 \times 10^8$ Bq以下。

5

## KUR用水圧輸送管用照射容器の準備



### 長期照射カプセル



単位:mm

照射試料名	MoO <sub>3</sub> ペレット
化学組成	MoO <sub>3</sub> (Mo:天然同位体比)
重量	約10g
寸法	φ18×10 mm
焼結密度	約92%T.D.

### カプセルに装荷するアルミニウム容器(案)

6	材料試料	MoO <sub>3</sub>	8	φ18×10mm、支給品
5	溶封ビン	A1050	1	
4	封入ビン	A2024	1	
3	緩衝材	A1050	1	高純度7μmコアワイヤ
2	試料容器端栓	A1050	1	
1	試料容器筒	A1050	1	

品番 部品名 材質 個数 備考

KUR用MoO<sub>3</sub>ペレット照射容器

6



**代替炉 (海外炉) での照射・  
JMTRでの照射後試験計画 (案)**

## 照射条件及び<sup>99</sup>Mo生成量評価



- (1) 照射試料  
MoO<sub>3</sub> ペレット : 約10.7g (焼結密度:94%T.D.)
- (2) 照射条件  
熱中性子束 : 1.8 x 10<sup>18</sup> n/m<sup>2</sup>/s
- (3) RI輸送  
A型輸送物
- (4) 照射後の<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tcの生成量
  - 照射期間 : 約7日
  - 冷却時間 : 約2日 (輸送時)
  - 輸送期間 : 約7日 (JMTR/HLまで)

Isotope	Amount (x10 <sup>10</sup> Bq)		
	at irradiation	after cooling	in JMTR
Mo-99	20.9	12.6	2.2
Tc-99m	16.8	11.4	2.0

7

## 照射試料の概要

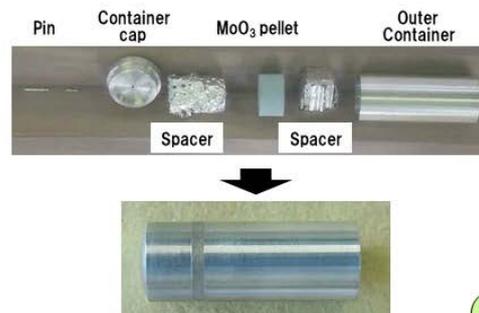
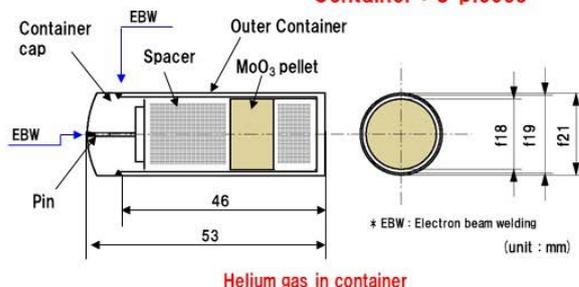


### 照射試料の仕様

Irr. Samples	MoO <sub>3</sub> Pellet
Structure	MoO <sub>3</sub> (Mo : natural isotope ratio)
Weight	about 10.7 g/1 pellet
Dimension	φ18 × 10 mm
Sintering Density	about 94 %T.D.
Impurities	Na:<5ppm, K:<5ppm, Cu:<1ppm, W:20ppm

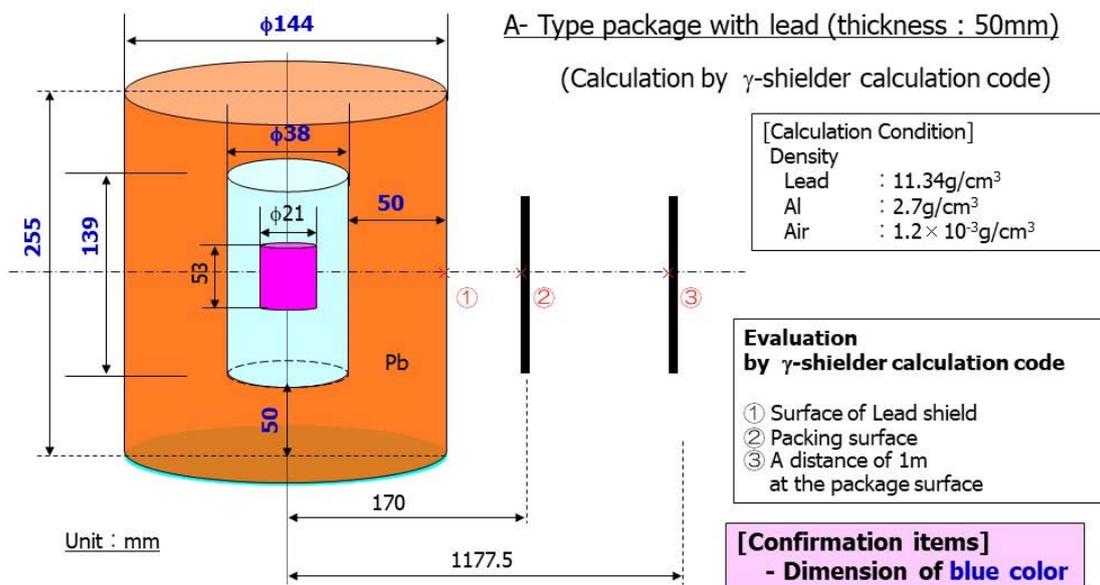
### 照射容器の準備

Container : 3 pieces



8

## 輸送容器の遮蔽計算 (例)



9

## 表面線量の評価結果 (例)



### 輸送時における生成核種の評価 (照射終了後2日)

	Mo-99	Tc-99	Tc-99m	Na-24	Mn-56	Fe-55	Fe-59
Activity (Bq)	1.26 × 10 <sup>11</sup>	9.46 × 10 <sup>5</sup>	1.14 × 10 <sup>11</sup>	1.07 × 10 <sup>8</sup>	4.87 × 10 <sup>5</sup>	7.45 × 10 <sup>7</sup>	3.87 × 10 <sup>7</sup>
A2 value	0.6TBq	0.9TBq	4TBq	0.2TBq	0.3TBq	TBq	0.9TBq
Result	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK

#### A型輸送物の条件

Radiation dose rate of package

(1) Package surface : 2mSv/h

(2) At a distance of 1m at the package surface : 0.1mSv/h

#### 線量評価の結果

Evaluation Points	Radiation Dose rate(mSv/h)
①	1.34 × 10 <sup>4</sup>
②	1.60 × 10 <sup>3</sup>
③	3.13 × 10 <sup>1</sup>

10

## A型輸送が可能な輸送ルート



11

## 海外炉で照射した試料の輸送ルート



		In foreign country	(Transport)	In Japan
<b>MARIA</b> $\phi_{th} = 1.8 \times 10^{18} \text{ (/m}^2\text{/s)}$ ペレット1個当りの $^{99}\text{Mo}$ 生成量*1: 約6.0Ci	Law	Law and regulation in Poland	ICAO convention **2	Law and regulation in Japan
	Root	Road(ポーランド国内)	Air transport (アムステルダム経由)	Road
	Remark	欧州からのRI輸送は、ワルシャワ-アムステルダム-成田で多くの輸送実績が有り。		
<b>WWR-K</b> $\phi_{th} = 1.1 \times 10^{18} \text{ (/m}^2\text{/s)}$ ペレット1個当りの $^{99}\text{Mo}$ 生成量*1: 約3.6Ci	Law	Law and regulation in Kazakhstan	ICAO convention **2	Law and regulation in Japan
	Root	Road(カザフ国内)	Air transport (フランクフルト経由)	Road
	Remark	日本向けについてはルフトハンザが過去に輸送実績があるので、アルマティ-フランクフルト-成田で輸送可能。		
<b>RSG-GAS</b> $\phi_{th} = 1.3 \times 10^{18} \text{ (/m}^2\text{/s)}$ ペレット1個当りの $^{99}\text{Mo}$ 生成量*1: 約4.3Ci	Law	Law and regulation in Indonesia	ICAO convention **2	Law and regulation in Japan
	Root	Road(インドネシア国内)	Air transport	Road
	Remark	日本貨物航空では実績があり、輸送は可能。		

\*1:  $\text{MoO}_3$ ペレットの重量は10g、照射期間は6日間としたときの予想生成量。

\*2: Convention on International Civil Aviation (Chicago Convention or ICAO Convention)

12

## 付録4 特区延長に係るアンケート(令和2年6月18日)

関係者各位

令和2年6月18日  
(一社)つくばグローバル・イノベーション推進機構  
(担当:生井)

### つくば国際戦略総合特区についてのアンケート

平素よりつくば国際戦略総合特区事業にご協力を賜り、厚く御礼申し上げます。

つくば特区事業は、平成24年度に第1期計画、平成29年度に第2期計画を開始し、令和3年度(来年度)から第3期計画を開始するところです。令和3年度以降の特区事業の継続について、本年4～5月にかけて各プロジェクトの関係者の一部の方にご意見を頂戴したところ、多くの皆様からつくば特区の継続を希望するご意見が伺えました。

今後、つくば特区事業全体の継続、及び各プロジェクトの具体的な計画の検討を進めていくにあたり、各プロジェクトのこれまでの取組や今後の具体的な取組の予定について、追加でヒアリングをさせていただきたく存じます。お忙しいところ大変恐縮ですが、以下のアンケートのご回答にご協力のほどよろしくお願いいたします。

ご回答いただいたアンケートの結果をもとに、各プロジェクト関係者の皆様と協議させていただきながら、次期のつくば特区の計画を検討させていただきたく存じます。

なお、既に茨城県さまから直接、以下と同様の内容についてヒアリングを受けている場合は、「既に回答済です」とご回答いただけたらと存じます。

#### 1. つくば特区継続に関する方針

##### 【つくば特区プロジェクトが目指すこと】

つくば国際戦略総合特区プロジェクトでは、特区事業の制度を活用して、新たな産業を茨城県内に創出することを目指します。

##### 【現行計画と今後について】

現行計画は令和2年度で終了となるため、令和3年度以降継続する場合は、計画や体制を見直す必要があります。

現在、特区事業全体の継続の是非について事務局で検討させていただいているところでありますので、産業化に向けた方針や次世代人材、費用対効果などの現状について皆さまにお伺いしたいものです。

#### 2. アンケートについて【6/30(火)〆切】

以下のアンケートにご回答願います。図示などが難しい場合は、別の方法で記載していただいても結構です。次ページからアンケートが始まります。

- ① 現在の体制図、令和3年度以降の体制図、それ以降の体制図（予定）について教えてください。特区プロジェクトに参画している大学・研究所・企業等とそれぞれの関係について、把握している範囲ですべて記載ください。図示していただいても、参画機関を羅列して、役割を書きいただいても結構です。

【実施体制】

日本原子力研究開発機構（マネジメント・照射評価）  
 筑波大学(品質評価)  
 株式会社千代田テクノル(Tc-99m 抽出開発)  
 株式会社アート科学(Mo 吸着剤開発)  
 太陽鋳工株式会社(原料供給、リサイクル)

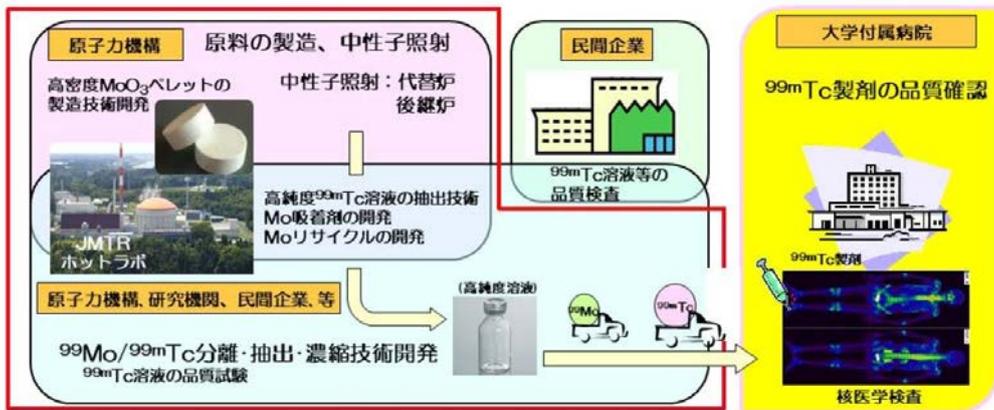


図 これまでの実施体制の概略図

【国産化に向けた実施体制(案)】

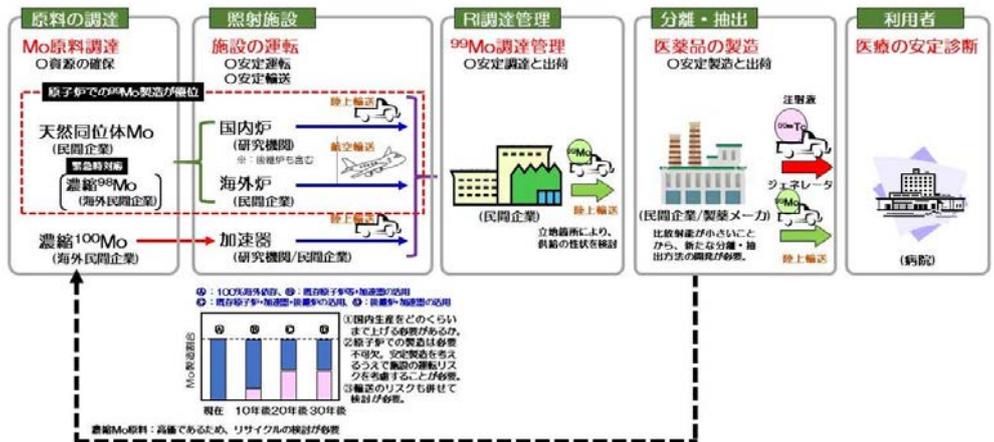


図2 ウランを用いない 99Mo/99mTc 製造シナリオ(案)

② つくば特区事業に対するお考えについて、これまでと令和3年度以降の対応について教えて下さい。

項目	これまで	令和3年度以降
費用対効果について	特に費用対効果はなかった。	基礎基盤技術の確立のため、費用対効果については予測が困難である。今後、国内の試験研究炉等の再稼働により、費用対効果が期待できるが、年間を通じた安定供給を検討する必要がある。
若手人材の確保 (人材育成の観点から、若手研究者の関与・代表の変更などありますか?)	施設の再稼働が遅れているため、長期を見据えた若手の人材育成が必要である。なお、研究資金等の確保が必要である。	同左
産業化・新事業の目途 (具体的な予定を内容・時期も含め教えてください)	東日本大震災以降、原子力に関する規制基準が強化され、国内の試験研究炉の再稼働が遅れたため、途中で計画を変更せる必要が生じた。令和2年度内にホット試験により基礎基盤技術の確証は進める。	海外炉で照射したより Mo-99 の放射能の高い試験により、実証する。また、JRR-3 の再稼働による実証試験の検討も行うことも視野に入れることも可能である。
コーディネータ・橋渡しなど、マネジメント人材 (現在関与している人がいれば、その方の所属と氏名も教えてください)	特になし。	特になし。
特区に期待すること (財政支援以外についてもお教え下さい)	/	Mo-99 の安定供給は重要な課題であり、国内体制を確立するため、国レベルでの議論に発展できるよう期待する。(「原料供給元⇒製薬製造元⇒End Users」のそれぞれの役割の整理も必要)

③ プロジェクトの目標や課題、特区制度活用による影響について教えてください。

質問内容	回答欄
<p>現在取り掛かっているプロジェクトで、特区期間に関係なく、次の4～5年でどんなことを目指しますか？</p>	<p>・国内外の代替炉を活用して、現在までに進めている技術の確立を進める。海外炉での Mo-99 の供給可能性、国内の試験研究炉の再稼働、後継炉等の検討、さらには加速器による Mo-99 製造のベストミックスを考えることにより、国内の安定供給を長期的視点で考える必要がある。</p>
<p>上記を達成するにあたり、どのような課題があると考えられますか？</p>	<p>・「原料供給元⇒製薬製造元⇒End Users」のそれぞれの役割の明確化。                  ・原料供給元、製薬製造元における施設にトラブルがあると、長期停止が予想される。このため、安定運転の対応、代替方法の検討など、対応策に係る議論を行う必要がある。</p>
<p>規制緩和や税制支援などの特区制度を活用することで、課題解決、研究開発の加速化、競争力の強化にどうプラスに働くと考えられますか？</p>	<p>・研究開発の加速化に関しては、予算確保が必要不可欠である。                  ・これまで学会会議等で重要性は提言として発信されてきたが、事業化のためには規制緩和のみならずコミュニティの体制づくりが必要不可欠である。</p>

記入者所属・氏名	日本原子力研究開発機構 材料試験炉部 土谷 邦彦
記入者連絡先	TEL : 029-267-1919(内線 7030)、 E-mail : tsuchiya.kunihiko@jaea.go.jp

質問は以上となります。ご協力をありがとうございました。

付録5 特区延長に係る新計画(案)

### 新計画の概要について(案)

方針

- ・ イノベーション推進, 産業化促進から**社会実装**へ
- ・ **規制の特例措置**の積極的な活用と新たな企業(新事業)の参画の促進

プロジェクト

現計画の9プロジェクトと今後の新たな事業を包含する**4分野**のプロジェクトに再構成する。

サービスロボットの社会実装

- ・ 搭乗型移動支援ロボットの社会実装
- ・ 自律型ロボットの社会実装の社会実装 など

環境・エネルギー分野の課題解決と産業創出

- ・ 廃水・廃棄物を利用した藻類バイオ原油生産
- ・ 混合プラスチックの高品位選別 など

革新的な医薬品・医療機器・医療技術, 機能性食品等の開発

- ・ 次世代がん治療(BNCT)の実用化
- ・ テクネチウム製剤の製造技術の確立と安定供給
- ・ GABAマトの商品化
- ・ サイバニクスクラウド対応の医療機器の国際展開 など

オープンイノベーションプラットフォームの推進

- ・ TIA世界的イノベーションプラットフォーム
- ・ TLSK, つくば生物医学資源コンソーシアム
- ・ サイバニクス産業 など

KPI  
(数値目標)

特区**全体**としての産業化への度合いを測る現行の数値目標を継続して設定する。

	R3	R4	R5	R6	R7
連携企業数(社)	180	360	540	720	900
起業, 製品化, ライセンスアウト(件)	15	30	45	60	75
IPO(件)	(定性評価)	(定性評価)	(定性評価)	(定性評価)	1

### プロジェクト体系の見直し

- ・ 現行, 特定の機関・事業によるプロジェクトと複数の機関・事業者によるプロジェクトが混在
- ・ 3期目を迎えるにあたり, 特区計画期間中であっても, 事業の**新陳代謝**(事業内容の見直し, 廃止, 新事業の追加)を円滑に行っていく必要がある。
- ・ 現行9プロジェクトと今後の新たな事業を包含する**4分野**の構成とする。
- ・ 特区計画書上の構成であり, 現行のプロジェクト内での事業内容や推進体制は**継続**

**現計画: 9プロジェクト**

- 次世代がん治療(BNCT)の開発実用化
- 生活支援ロボットの実用化
- 藻類バイオエネルギーの実用化
- TIA世界的イノベーションプラットフォームの形成
- つくば生物医学資源を基盤とする革新的医薬品・医療技術の開発
- 核医学検査薬(テクネチウム)の国産化
- 革新的ロボット医療機器・医療技術の実用化と世界的拠点形成
- 戦略的都市鉱山リサイクルシステムの開発実用化
- 植物機能を活用しヒトの健康増進に資する有用物質生産システムの開発事業化

**新計画: 現行9プロジェクトと今後の新たな事業を包含する4分野**

サービスロボットの社会実装

- ・ 搭乗型移動支援ロボットの社会実装
- ・ 自律型ロボットの社会実装 など

革新的な医薬品・医療機器・医療技術, 機能性食品等の開発

- ・ 次世代がん治療(BNCT)の実用化
- ・ テクネチウム製剤の製造技術の確立と安定供給
- ・ ゲノム編集技術によるGABA
- ・ サイバニクスクラウド対応の医療機器の国際展開 など

環境・エネルギー分野の課題解決と産業創出

- ・ 廃水・廃棄物を利用した藻類バイオ原油生産
- ・ 混合プラスチックの高品位選別 など

オープンイノベーションプラットフォームの推進

- ・ TIA世界的イノベーションプラットフォーム
- ・ TLSK, つくば生物医学資源コンソーシアム,
- ・ サイバニクス産業 など

## KPI(数値目標)の見直し

### 新計画

	R3	R4	R5	R6	R7	
産業化創出	連携企業数(社)	180	360	540	720	900
	起業、製品化、 ライセンスアウト(件)	15	30	45	60	75
	IPO(件)	(定性評価)	(定性評価)	(定性評価)	(定性評価)	1

- つくば特区での取組・事業が多様になってきたことから、全体として、産業化への度合いを測ることができる現行の数値目標を継続
- 目標値は、現計画の実績の推移（新型コロナウイルスの影響も加味）を踏まえて設定
- IPO件数は達成が容易ではないが、事業化・産業化の最終目標として継続して設定

### 現計画

	H29	H30	R1	R2		
産業化創出	連携企業数(社)	233 (173)	451 (329)	616 (486)	(641)	年平均約+200で推移
	起業、製品化、 ライセンスアウト(件)	25 (8)	39 (11)	59 (13)	(23)	平均約+20で推移
	IPO(件)	-	-	-	(1)	
BNCT	治療症例数(件)	0 (6)	0 (12)	0 (24)	(58)	
	適用拡大症例数(件)	0 (0)	0 (0)	0 (5)	(10)	
	藻類バイオマス					
藻類バイオマス	藻類バイオマス原油の生産量 (t/ha/年)	44 (29)	44 (36)	254 (38)	(40)	

## (参考)新旧対照表

	旧計画 (H23~H28)	現計画 (H29~R2)	新計画 (H3~R7)
目標	つくばにおける科学技術の集積を活用したライフ・イノベーション・グリーンイノベーションの推進	つくばにおける科学技術の集積を活用したライフ・イノベーション・グリーンイノベーションの推進による産業化促進	つくばにおける科学技術の集積を活用したライフ・イノベーション・グリーンイノベーションの推進による産業化促進と <b>社会実装</b>
プロジェクト	先導的4プロジェクトと5プロジェクトの創出	旧計画からの9プロジェクトの推進	「ロボット」、「医療」、「環境・エネルギー」、「オープンイノベーション」の <b>4分野</b> の事業の推進
KPI (数値目標)	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 新規プロジェクトの創出</li> <li>● プロジェクトごとの進捗</li> <li>① 産学官連携による新規プロジェクトの創出数</li> <li>② 次世代がん治療 (BNCT) の商用型治療装置の普及施設の数</li> <li>③ 市場に本格投入する生活支援ロボットの種類</li> <li>④ 藻類産生炭化水素オイルの1ha当たりの年間生産量</li> <li>⑤ TIA-nanoにおける産学官連携による累積事業規模</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 全体としての産業化促進</li> <li>● BNCT, 藻類プロジェクトの進捗</li> <li>① 連携企業数</li> <li>② 事業・産業創出 (起業, ライセンスアウト, 製品化等) 件数</li> <li>③ 事業化に伴う株式公開 (IPO) 件数</li> <li>④ 次世代がん治療 (BNCT) による治療症例数</li> <li>⑤ 次世代がん治療 (BNCT) 適用拡大症例数</li> <li>⑥ 藻類産生炭化水素オイルの1ha当たりの年間生産量</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 全体としての産業化促進</li> <li>① 連携企業数</li> <li>② 事業・産業創出 (起業, ライセンスアウト, 製品化等) 件数</li> <li>③ 事業化に伴う株式公開 (IPO) 件数</li> </ul>



