

公益財団法人 JKA 自転車等機械振興事業に関する補助事業

事業名：
2023 年度医療用放射性同位体製造ターゲット用透水性包装開発
報告書



バトナム原子力研究所の原子炉炉心

事業者：長岡技術科学大学 極限エネルギー密度工学研究センター
末松久幸

1. 概要

Tc-99m の母元素である Mo-99 のホットアトム効果を利用した放射化法による製造・水への抽出のため、 α -と β -MoO₃ 粒子ターゲット、および透水性包装・フィルター材料としての PTFE フィルター+ガラス繊維の中性子照射実験を行った。 α - MoO₃ に比べて、 β - MoO₃ 粒子では透水性包装を通した水への Mo-99 抽出率が高く、60°C、5.5 時間で生成した Mo-99 のうち 66%を抽出することが可能であった。PTFE フィルター+ガラス繊維は中性子照射により重量減少した。また、Na-24 が生成し水に溶解した。これらのことから、PTFE フィルター+ガラス繊維は繰り返し照射に向かないため、ターゲットを透水性包装して照射するよりも、ターゲットを照射した後透水性のフィルターを通して通水する方法が好適と判断した。以上の結果を基に Mo-99 生産用工程を計算した。2.4kg のターゲットを 8 時間中性子照射した後、60°C5.5 時間水抽出する工程を繰り返し、1 日 3 バッチ行えば、目標とする Mo-99 の 5TBq/6 日の製造が可能と算出した。

2. 本事業の背景、目的と内容

2-1 背景

医療用放射性同位体 Tc-99m とその母元素である Mo-99 は、海外から 100%輸入されて各病院に配送後製剤化されているため、その生産用原子炉の停止、火山の噴火や戦争の勃発による空路障害で供給不足が発生している。これは、Mo-99 が原爆に転用可能な高濃縮ウランを使用する原子炉使用済核燃料からの分離（核分裂法）で製造されていて、日本で利用できないためである。

これに代わり、日本原子力研究開発機構（JAEA）では、研究用原子炉の中性子を α -MoO₃ ターゲットに照射して、核反応で Mo-99/Tc-99m の生産（核分裂法）を試みている^{1, 2)}。Fig.1 にその概要を示す。この α -MoO₃ 高密度ペレット NaOH 溶解法では、Mo-98 の三酸化物粒子を焼結し、原子炉で中性子照射後、NaOH 水溶液に溶解し Mo-99 を含む溶液を得る。Mo-99/Tc-99m を取り出す際、NaOH への溶解はホットラボで行う必要があり、トラブルを生む可能性がある。さらに、Mo-99 から Tc-99m を分離する方法の開発

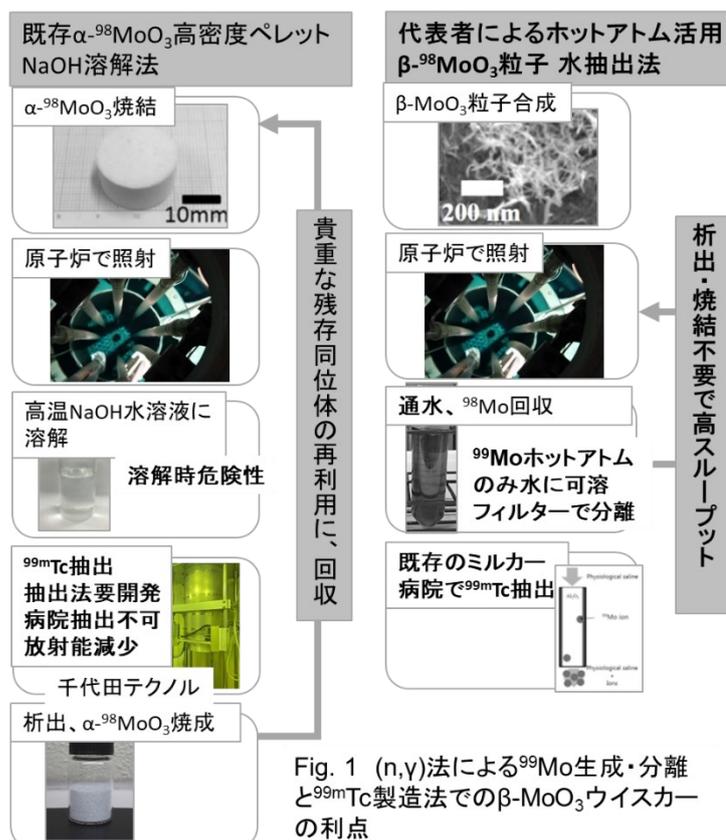


Fig. 1 (n, γ)法による⁹⁹Mo生成・分離と^{99m}Tc製造法での β -MoO₃ウイスキアの利点

が進められているが、この方法では半減期 6 時間しかない Tc-99m の各病院への配送・製剤化中に放射能が大きく減少することが予想されている。一方、既存の配送方法に適した母元素 Mo-99 を取り出すためには、大多数の Mo 天然同位体から同位体分離のために人体に有害な強酸を使用する必要があり、医療用には不適當であった³⁾。このため、Mo-99 を容易に抽出できるターゲット開発が強く求められていた。

事業者は、 α -や β -MoO₃ を中性子照射ターゲットにして、照射後水に浸すだけで Mo-99 を抽出する事に成功した^{4,7)}。これは、核反応で得た運動エネルギーを有する Mo-99 が拡散を促進するホットアトム効果によるものであると考えた。さらに、このホットアトム効果による Mo-99 の水への抽出率は、 β -MoO₃ で高い値を示した。これを利用すれば、Tc-99m の配送問題も回避でき、かつ既存の Mo-99 配送や各病院での製剤化と言った既存のインフラをそのまま使った Tc-99m 安定供給が可能になると予想した (Fig.1)。

このホットアトム活用 β -MoO₃ 水抽出法を実用化するためには、Fig.2 に示す二つのターゲットが想定された。一つは、 β -MoO₃ 粒子を透水性包装で包んだターゲットであり、透水性包装ごとカプセルに入れて照射し、照射後通水することにより Mo-99 を回収する案である。この案では、透水性包装を中性子照射する必要があり、照射による損傷や、不純物による放射能が水中に溶解しない材質を選ばなければならない。もう一つは、 β -MoO₃ 粒子のみをカプセルに入れて中性子照射し、照射後カプセルの一端または両端のキャップを透水性フィルターに変えて通水する案である。この案では、キャップの脱着の必要があるものの透水性フィルターは照射されない。

2-2 目的

本事業では、どちらのターゲットが適しているか、また、実用化のための原子炉の要件を算出するため、 β -MoO₃ のホットアトム効果を活用した水への Mo-99 抽出と、透水性包装・フィルター材料の中性子照射実験を行った。さらに、今後建設される次世代の試験研究炉での設計に役立つよう、ターゲット重量など必要要件の知見を得ることを目的とした。

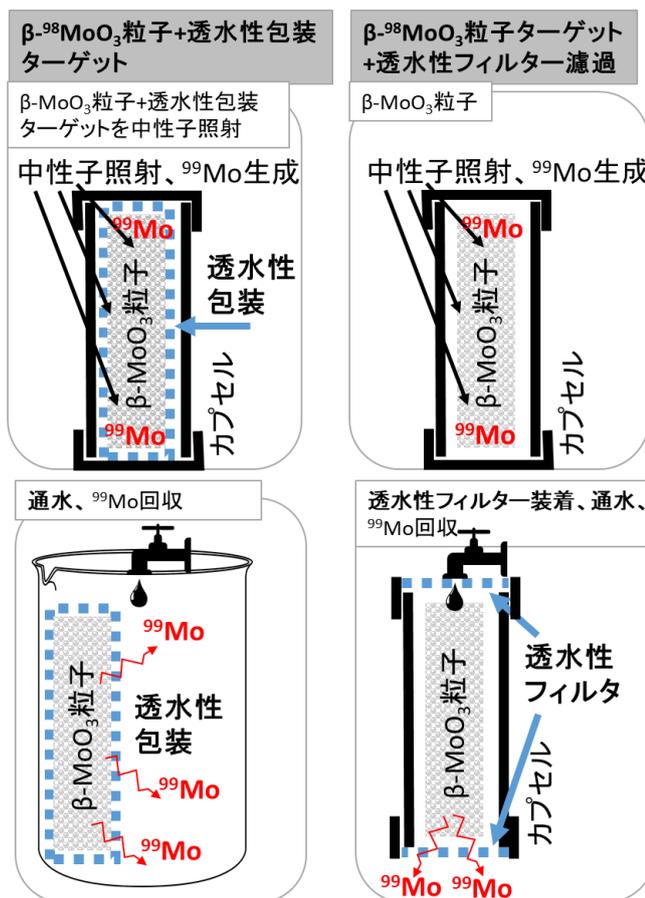


Fig. 2 透水性包装ターゲットと透水性フィルターによる、2種類の⁹⁹Mo生成・回収法

2-3 本事業の内容

小型管状成長炉で β - MoO_3 粒子を合成し、これと PTFE フィルター+ガラス繊維の透水性包装・フィルターを、京都大学およびベトナム原子力研究所で中性子照射した。照射後の粒子を水に分散した後、透水性包装・フィルターをとおしてから水中に抽出された Mo-99 の量を γ 線スペクトロスコピーにより測定した。同時に、不純物原子による放射化をも測定した。最後に、Mo-99 と Tc-99m の必要量から、中性子束と照射体積を見積り、敦賀または大洗での新しい研究用原子炉の要求性能として提案する。

3. 照射材作製・選定・中性子照射

3-1 ターゲット

1) α - MoO_3

市販の α - MoO_3 粉末と、これを粉砕して表面積を増やした粉末を用意した。この走査型電子顕微鏡 (SEM) 像を Fig.3 に示した。

2) β - MoO_3

管状炉を用いて α - MoO_3 粉末原料を蒸発させ、酸素気流中で冷却することにより、 450°C 以下でしか合成例のない β - MoO_3 粉末を合成した。この SEM 像を Fig.3 に、粉末 X 線回折 (XRD) 図形を Fig.4 に示す。 α - MoO_3 のピークは見られず、単一相の β - MoO_3 粒子の合成に成功した。

3) MoO_3 -II

キュービックアンビル型高圧発生装置を用いて、 5.5GPa 、 $500\text{--}800^\circ\text{C}$ において、 Ag_2O 酸化剤と共に熱処理し、酸素量調整を行った。酸素量と格子定数の関係は判明したが、酸化剤と MoO_3 -II が反応する場合があり、Ag が不純物として混入しやすい欠点が判明した。

3-2 中性子照射

量産性と不純物量から、 α - MoO_3 粒子と β - MoO_3 粒子をターゲット材として選定し、中性子照射に供した。Fig.3 照射は、 γ 線スペクトル測定装置の遮蔽が良好である京都大学複合原子力科学研究所の KUR にて行った。熱中性子束 $3 \times$

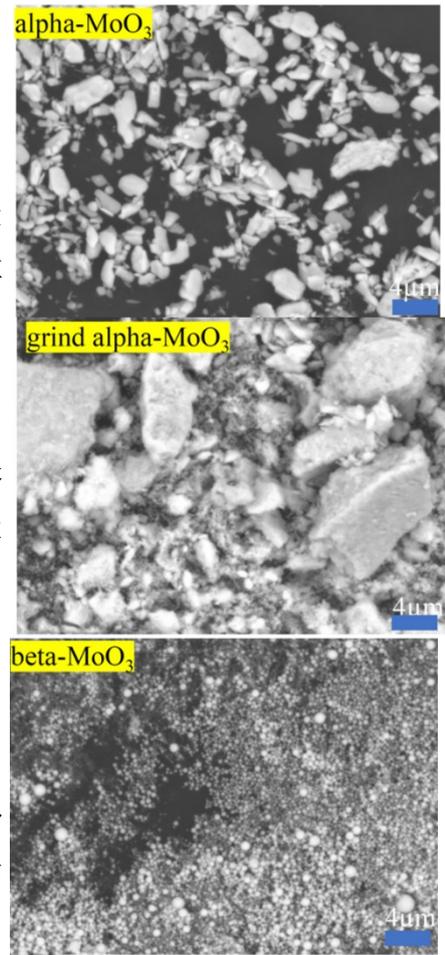


Fig. 3 ターゲット粒子のSEM像

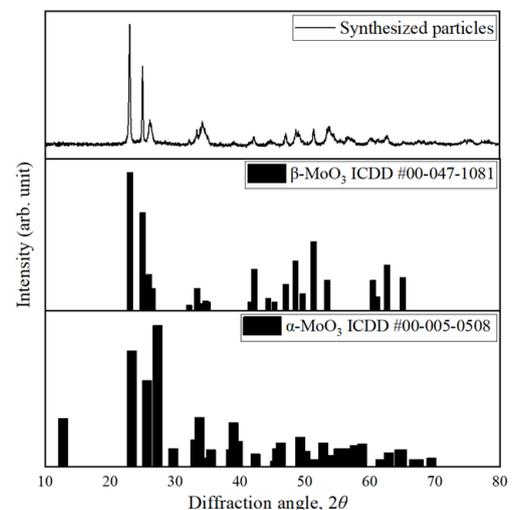


Fig. 4 β - MoO_3 粒子のXRD図形

$10^{13}\text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 、20 分照射後、3 日間冷却した。照射後のターゲット材からの放射線を γ 線検出器で測定し、Mo-99 の放射能を測定した。

中性子照射したターゲット材を室温～60°Cの純水に分散し、過去実績のある PTFE フィルター+ガラス繊維からなるフィルターで濾過した。これも、上記同様京都大学複合原子力科学研究所にて行い、放射線を γ 線検出器で測定した。これと、ターゲット材に生成した Mo-99 の量と比較することにより Mo-99 抽出率を算出した。この際、Mo-99 の半減期 (66 時間) を考慮し、両者の放射能を、ターゲットを水に分散した時点での放射能に換算した。

また、透水性包装材の不純物分析や望まれない放射性同位元素の水への溶解を調べるため、透水性包装材の中性子照射と水への分散実験を行った。これは、照射試料の自由度が高いベトナム原子力研究所の TRIGA 炉にて $2 \times 10^{12}\text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 、53 時間中性子照射し、2 日間冷却後、水に分散して γ 線スペクトル測定を行った。

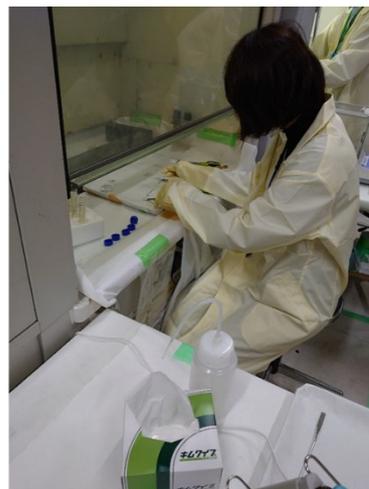


Fig. 5 KURでの中性子照射後ターゲットの水への分散実験

4. KUR でのターゲット照射結果

照射後のターゲット材を水に分散し、透水性包装・フィルター材料で濾過した時の様子を Fig.5 に示す。透水性包装・フィルターで $\alpha\text{-MoO}_3$ 、 $\beta\text{-MoO}_3$ 粒子と水を容易に分離できることが判明した。結果を Fig.6 に示す。温度が上がり、時間が経過するに従い、水中への Mo-99 の抽出率は増加し、60°C、5.5 時間で最高の 66%に達した。

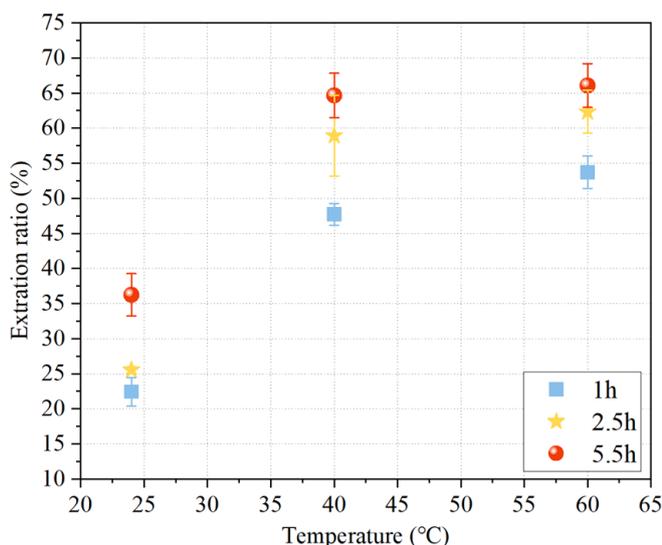


Fig. 6 中性子照射後の $\beta\text{-MoO}_3$ 粒子を水に分散した際の、水への ^{99}Mo 回収率

5. ダラットでのフィルター照射結果

ダラットでのターゲット準備中の写真を Fig.7 に示す。照射後の透水性包装・フィルター材料を Fig.8 に示す。照射中に透水性フィルター材料は気体を生じ、かつ脆くなったことが判明した。これを水に分散した後の γ 線スペクトルを Fig.9 に示す。バックグラウンドの γ 線量が高く、トリウム系列 (Th-232) やウラン系列 (Ra-226) とともに、ダラットで生産されている医療用 I-131 が検出された。また、Mo-99 と Tc-99m は、本研究で使用している MoO_3 が混入した物と考えられた。これ以外に、透水性包装・フィルター(Filter)から Au-198 が検出され



Fig. 7 ダラットでの試料準備

8. 結論

ホットアトム法を用いて、原子炉で MoO_3 ターゲットに中性子照射した通水するだけで Mo-99 を抽出する方法の実証試験を行った。透水性包装・フィルターとして PTFE フィルター+ガラス繊維を選定し、これを通して水と照射後の β - MoO_3 粒子を濾過出来ることを実証した。60°C5.5 時間で、生成した Mo-99 の 66%が水中に移行することが分かった。

一方、透水性包装・フィルター材は中性子照射により気体が発生し脆化することが分かった。また、 Na-24 が水に溶解することも判明した。このことから、ホットアトムを活用した Mo-99 の製造には、 MoO_3 ターゲットを照射後、透水性フィルターを通して通水する方法が適していると判定した。

この結果を使って試算したところ、2.4kg の β - MoO_3 粒子ターゲットを 8 時間中性子照射後、5.5 時間 60°C の水中に透水性フィルターを通して抽出するプロセスを 1 日 3 バッチずつ行えば、6 日間で目標とする 5TBq の Mo-99 を抽出出来ると算出された。

これらが実現できれば、我が国の研究用原子炉の中性子照射での核反応と容易に Mo-99 を抽出出来るターゲットを開発し、国内で Tc-99m 利用を継続できる”健康の安全保障”体制を構築が可能であると結論した。

9. 謝辞

照射実験のため、KUR では JAEA 藤田善貴博士と京都大学藤原靖幸氏に、ダラットでは Binh Nguyen Thanh 博士にご尽力いただいた。ここに深く感謝いたします。

10. 参考文献

- 1) K. Nishikata, A. Kimura, T. Ishida, T. Shiina, A. Ohta, M. Tanase, and K. Tsuchiya, JAEA-Technology 2014-034, Japan Atomic Energy Agency, (2014).
- 2) K. Tsuchiya, M. Tanase, N. Takeuchi, M. Kobayashi, Y. Hasegawa, H. Yoshinaga, M. Kamina-ga, M. Ishihara, and H. Kawamura, edited by B. Butler, Fifth International Symposium on Material Testing Reactors Columbia, MO, USA, (2012).
- 3) Y. Tachibana, Y. Yamazaki, M. Nomura, and T. Suzuki, J. Radioanal. Nucl. Chem. **303**, 1429 (2015).
- 4) M. C. Ngo, Y. Fujita, T. Suzuki, D. T. M. Do, M. Seki, T. Nakayama, K. Niihara, and H. Suematsu, Inorganic Chem. **62**, 131040 (2023).
- 5) N. M. Quach, M. C. Ngo, Y. Yang, T. B. Nguyen, V. T. Nguyen, Y. Fujita, T. M. D. Do, T. Nakayama, T. Suzuki, and H. Suematsu, J. Radioanal. Nucl. Chem. **332**, 4057 (2023).
- 6) 末松久幸, 中山忠親, 関. 美沙紀, 鈴木達也, 南. 誠, D. V. Dong, (2022), 特許 7187750.
- 7) 藤田善貴, D. T. M. Dung, 鈴木達也, N. M. Chu, 末松久幸, (2022), 特願 2022-63746.
- 8) https://www.aec.go.jp/kaigi/teirei/2023/siryu21/1_haifu.pdf, (2023).



ベトナム原子力研究所

事業者連絡先: 〒 940-2188 長岡市上富岡町 1603-1
長岡技術科学大学 極限エネルギー密度工学研究センター
末松久幸
ホームページ: <https://etigo.nagaokaut.ac.jp/>
公開日: 2024 年 12 月 28 日