

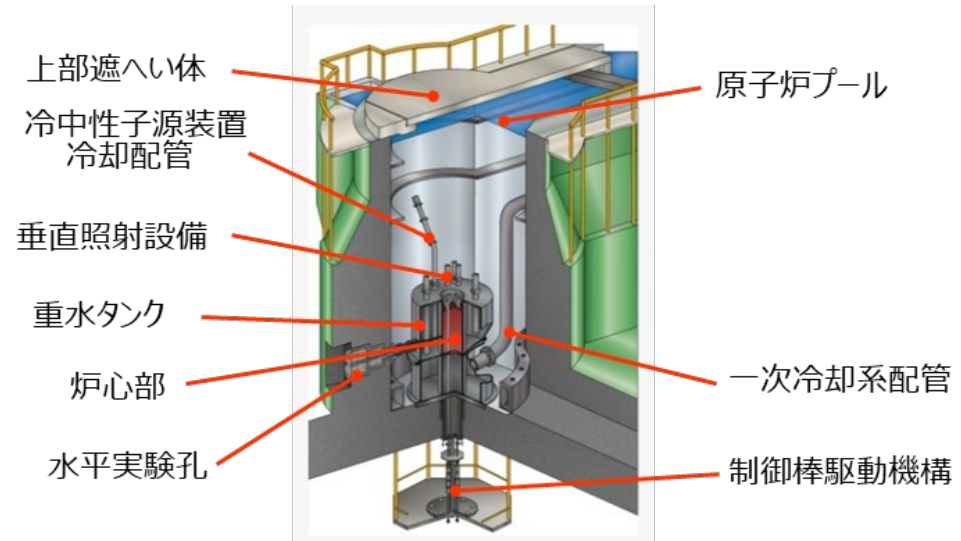
JRR-3を用いたRI製造

日本原子力研究開発機構

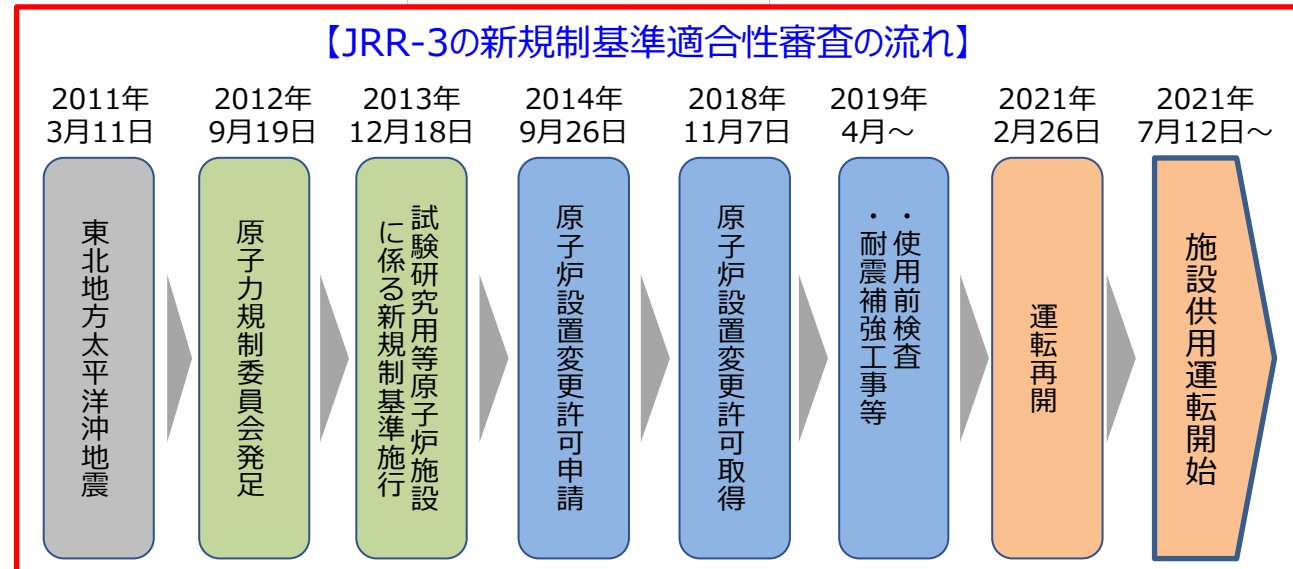
JRR-3 (研究用原子炉) の概要

世界トップレベルの高性能研究炉として中性子ビーム実験（中性子ラジオグラフィ、中性子散乱実験、即発ガンマ線分析）や中性子照射（ラジオアイソトープの製造）に利用されています。

昭和37年 国産原子炉として臨界
 昭和60年 高性能化のための改造工事開始
 平成2年3月 改造炉臨界

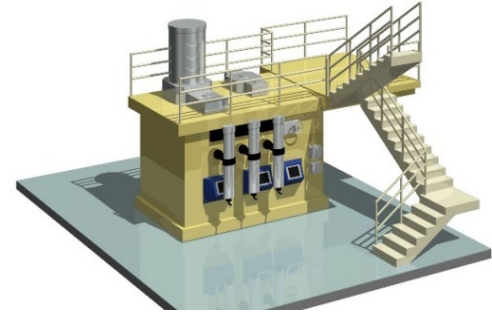


JRR-3の仕様	
目的	ビーム実験、燃料材料照射、放射化分析、RI生産 (^{198}Au 、 ^{192}Ir 、 ^{60}Co) 等
型式	濃縮ウラン軽水減速冷却プール型
燃料要素	低濃縮ウランシリコンアルミニウム分散型燃料
最大熱出力	2万kW
最大熱中性子束	約 3×10^{18} n/m ² ・s
炉心の形状等	円柱（直径：60cm、高さ：75cm）
運転形態	サイクル運転 (26日連続/cy：6~7cy/年)



ラジオアイソトープ製造棟（RI製造棟）の特徴

RI製造棟は大量のRI製造が可能な施設であり、JRR-3に隣接している。管理区域内に設置されている詰替用ホットセルはJRR-3と輸送管で直結しており、JRR-3で照射した試料を遠隔操作によってセル内に転送することができる。



602号室詰替セル

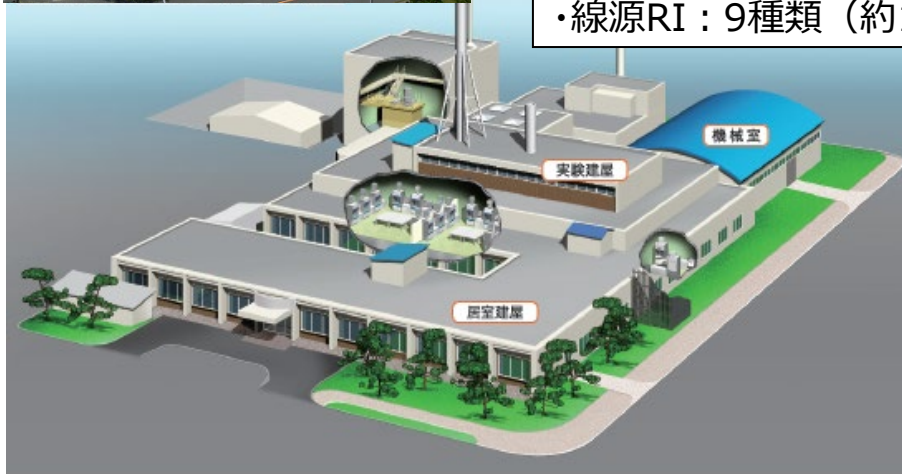


放射性同位元素の使用施設（現在）

- ・セル：28基
- ・フード：31台
- ・グローブボックス：7基
- ・RI使用核種：約100核種

RI製造実績（最盛期）

- ・精製RI：30核種（約10TBq）
- ・線源RI：9種類（約10,000個）



- 昭和39年 RI製造棟竣工
- 昭和62年 JRR-3改造に伴う照射済試料受入れ用建家の増設
- 平成7年 「特殊法人の整理合理化」閣議決定を受け、
 - ・海外から入手可能な長寿命RIの製造を中止
 - ・工業用及び医療用RI製造事業の民間移転

医療用RIの研究開発（量子科学技術研究開発機構との連携協力）

○^{99m}Tcの分離精製研究

加速器により生成した⁹⁹Moから高品質の^{99m}Tcを毎日1回以上1週間にわたり迅速・安定且つ高効率で分離精製すべく熱分離法の研究開発を行っている。

○がん治療用RIの研究開発

原子炉で製造したRIをがんの治療へ役立てることを目標に、⁶⁷Cu、¹⁸⁶Re、¹⁷⁷Luなど新しいRI薬剤の開発を進めている。

工業用RI及び医療用RIの製造・頒布（（株）千代田テクノルとの協定）

○工業用RIの製造

プラント設備等溶接部の非破壊検査や生産設備で使用されるレベル計、液面計に用いられる線源（¹⁹²Ir、⁶⁰Co）を製造している。

○医療用RIの製造

口腔内、舌、咽頭、食道などにできたがん患部に刺入される低線量率の治療用線源である金グレイン（¹⁹⁸Au）や形状の異なる7種類のイリジウム線源（¹⁹²Ir）を製造している。

試験研究炉による国内RI製造の現状

- 小線源治療用RI線源
(Au-198, Ir-192)
- 工業用RI線源
(Ir-192、Co-60)

- 放射線治療用の小線源として現在使用されているRIには、I-125、Au-198、Ir-192などがある。
- JRR-3ではAu-198 (金グレイン) と一時挿入のIr-192 (ヘアピン、シングルピン) の2核種を製造している。

RI	半減期	比放射能 kBq/g	γ線エネルギー MeV	形状放射能	特徴と治療例	線源・装置
I-125	59.4 d	6.51×10^{11}	0.028	シード (15.3MBq、 13.1MBq、 11.0MBq)	<ul style="list-style-type: none"> 低線量率線源 永久刺入、組織内照射 前立腺がん、口腔がん、中咽頭がん 	
Au-198	2.69 d	9.06×10^{12}	0.41	<u>グレイン</u> (185MBq)	<ul style="list-style-type: none"> 低線量率線源 永久刺入 口腔がん、中咽頭がん、舌がん 	
Ir-192	73.8 d	3.41×10^{11}	0.37	<u>ヘアピン</u> (740MBq) <u>シングルピン</u> (370MBq)	<ul style="list-style-type: none"> 低線量率線源 一時刺入 舌がん 	
				RALS用 (370GBq)	<ul style="list-style-type: none"> 高線量率線源 腔内照射、組織内照射 子宮がん、前立腺がん、頭頸部部がん 	

東日本大震災以前の製造実績

(個)

線源	原子炉	H12	H13	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21	H22
Au-198	JRR-3	1545	1745	1615	1275	1670	1685	1775	1682	1870	665	1466
	JRR-4	1080	880	1050	945	866	945	833	50	← トラブルにより停止 →		
	輸入								354	640	1314	412
(JRR-4の代替として輸入)												
Ir-192 (シード)	JRR-3	200	400	500	← RALSへ切替り →							
	JRR-4	398	200	100	100							
Ir-192 (ワイヤ)	JRR-3	440	595	335	284	226	176	180	58	13	← RALSへ切替り →	
	JRR-4	84	68									
Ir-192 (ピン)	JRR-3	98	86	129	86	118	95	73	69	69	81	84
	JRR-4	98	86	43	86	38	25	24	← トラブルにより停止 →			

Au-198

- 毎週50個、年間50週、合計約2500個の線源を製造していた。
- JRR-3とJRR-4で相補的に製造され、年間を通して安定供給されていた。
- JRR-4反射体要素割れによりJRR-4停止期間中は海外から輸入した。

Ir-192

- シード、ワイヤは遠隔操作密封小線源治療（RALS）に治療方法が移行したため、海外からの輸入に切り替わった。
- ピンの一部はRALSに移行したが、年間約80本の需要は残った。

【JRR-3停止中】

東日本大震災後、国内の試験研究炉が停止中は、代替炉として海外の研究炉（HFR、OPALなど）で照射した線源を輸入。

（海外炉照射の影響）

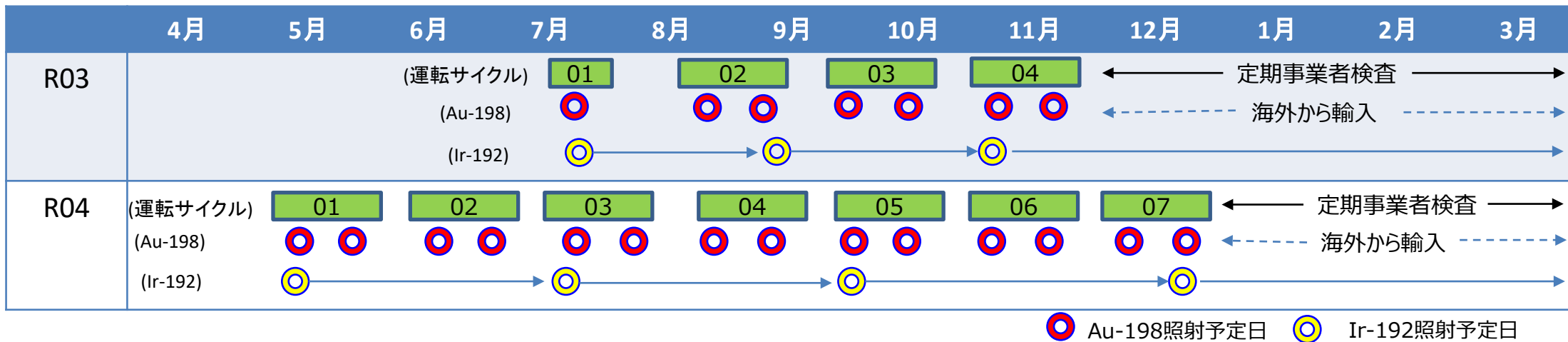
- 輸送コスト（製造費の約半分が輸送コスト）や照射料金の違いにより、線源製造費が照射する炉によって大きく変動するが、小線源治療は保険適用治療のため、販売価格を大きく変更することは難しい。
- 事前に年間照射利用申込をする必要があり、需要と供給のつり合いがとりづらい。JRR-3の場合、その都度照射申込み可能。

（その結果）

- Au-198：製造量が以前の半数に減少（隔週50個、年間20回、合計約1000個）
- Ir-192：年間約70本を輸入していたが、海外炉と折り合いがつかず令和2年度以降は海外照射を断念。

【JRR-3運転再開後】

- 令和3年7月12日からの供用運転再開後ただちに国内製造を再開する。
- Au-198：隔週50個を製造予定。JRR-3が点検等で停止中は、海外から輸入する。（国内製造率70%）
- Ir-192：半減期74日のためストックが可能。年4回照射し、発注に合わせて出荷する。（国内製造率100%）



平成7年2月の閣議決定（「特殊法人の整理合理化について」）を踏まえ、平成8年1月に当時の科学技術庁が示した「海外からの輸入可能な中長寿命 RI は製造中止」、「安定、大量需要の工業用 RI 線源は民間移転」との政策により、工業用RI の国内製造は大量需要のあった以下の核種に限定された。



東日本大震災以前の製造実績

(個)

用途	線源	半減期	原子炉	H12	H13	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21	H22
レベル計 液面計	Co-60	5.27年	JRR-3	90	40	120	50	50	110	50		50	150	53
			JRR-4		50		50				← トラブルにより停止 →			
非破壊検査	Ir-192	73.2日	JRR-3		480	680	650	440	460	255	940	1060	280	690
			JMTR	1200	660	470	690	1330	960	780	← 改修のため停止 →			
非破壊検査	Yb-169	32.0日	JRR-3	32	69	30	← 需要が減少したため国内製造中止、海外から輸入に切り替え →							
			JMTR	17	15	3								

【JRR-3停止中】

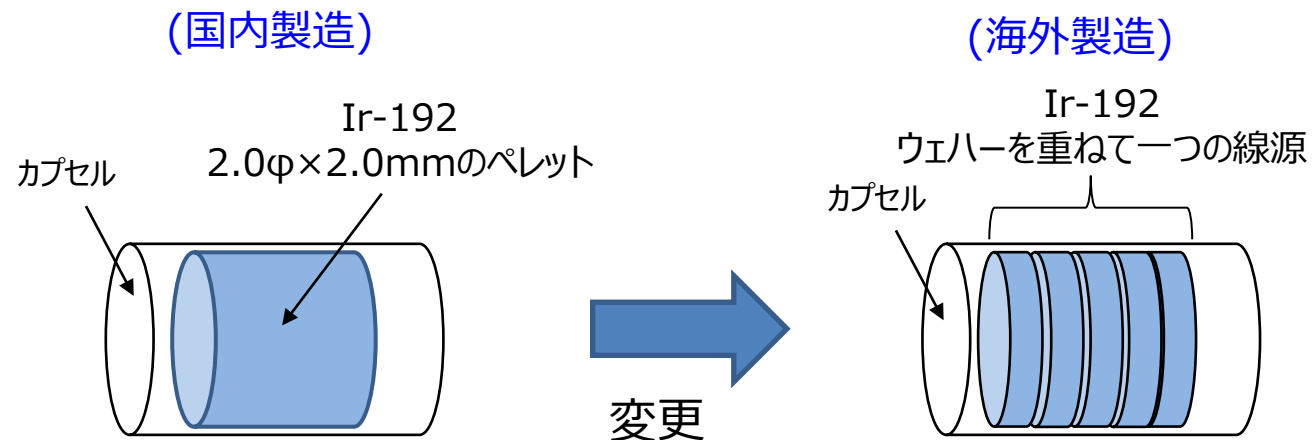
東日本大震災後、国内の試験研究炉が停止中は、代替炉として海外の研究炉で照射した線源を輸入。

(海外炉照射の影響)

- 需要は震災前から大きく変動はないが、海外製造により非破壊検査用線源Ir-192の仕様が変更になった。



非破壊検査用線源



【JRR-3運転再開後】

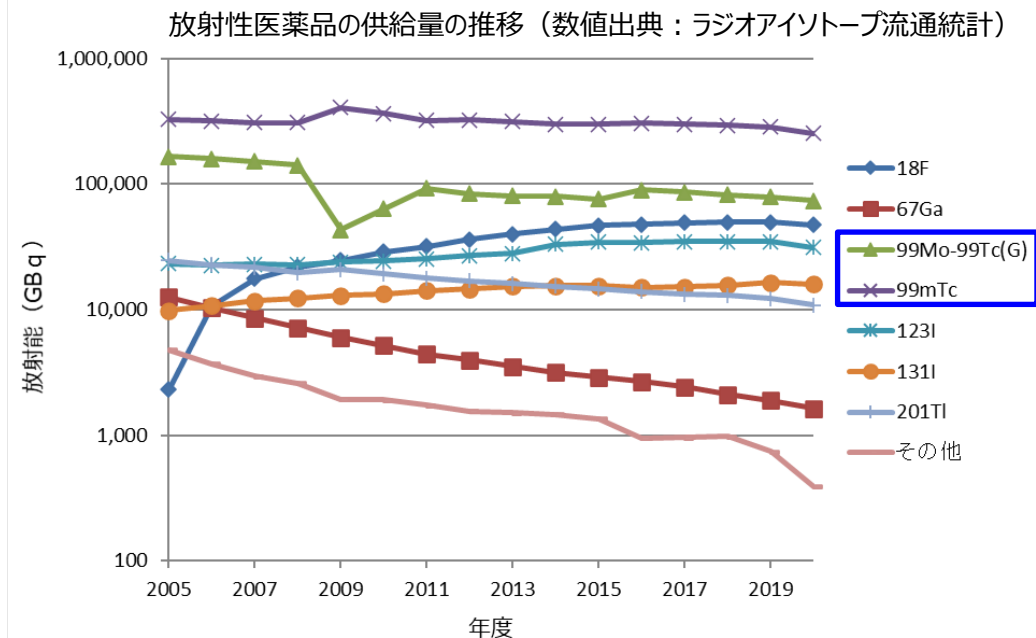
- 計測器用線源Co-60：海外から輸入した在庫がなくなり次第、国内製造を再開する。
- 非破壊検査用線源Ir-192：現在流通している輸入線源と同様の線源を国内で製造するため、JRR-3でのウェハー照射試験を実施する。

Mo-99の国内安定供給に向けた取組み

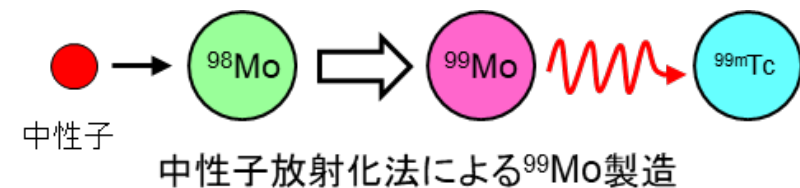
- 99Moの娘核種である99mTcは、核医学検査薬（SPECT検査）として世界中で最も需要がある医療用放射性同位元素である。
- 2009年のカナダNRU炉の計画外停止による供給不足により、18Fを用いたPET検査が急増したためSPECT検査は減少傾向にあったが、現在は下げ止まっている。
- 日本は、欧米につぐ世界第3位の消費国である。

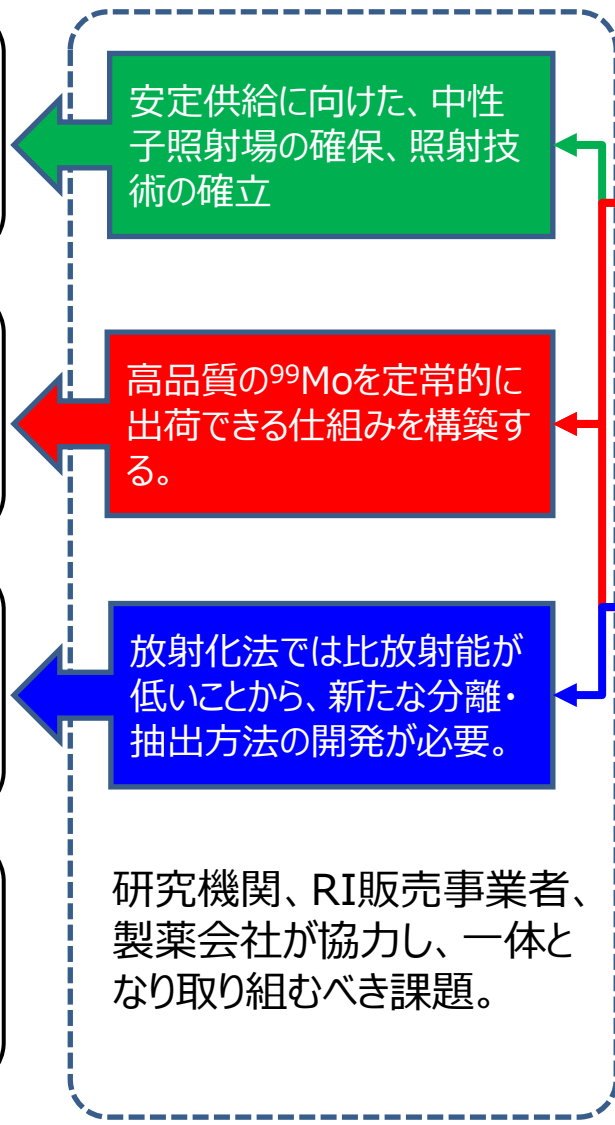
【現状】

- 99Moは100%外国から輸入
海外の研究炉の老朽化、天候や社会情勢等による輸送への影響
- 99MoはU-235の核分裂法により製造
核分裂性廃棄物処理及び核不拡散上の問題



U-235を用いない放射化法による99Mo製造技術を確立し、99Mo/99mTc国産化を目指し、99Moを安定に供給することが重要な課題である。





JAEAの取組み

- 運転を再開したJRR-3を用いた99Mo製造試験を実施。
 - 「常陽」を活用した製造方法を検討。
 - 照射後試料を扱うためのホットセルの整備
- つくば国際戦略総合特区**
「核医学検査薬(テクネチウム-99m)の国産化」
99Mo/99mTc製品の基礎基盤技術の確立
- 照射ターゲットの製造技術開発
 - 99Mo/99mTc 分離・抽出・濃縮技術開発
 - Mo リサイクル技術開発
 - 99mTc 製剤化に向けた技術開発

ラジオアイソトープ製造棟では⁹⁹Moを国内製造するため、1972年（昭和47年）から1985年（昭和60年）にかけ、[JRR-2（廃止措置中）](#)、[JRR-3（改造前）](#)、[JMTR（廃止措置中）](#)を用いて、[核分裂法](#)及び[中性子放射化法](#)の両方式の技術開発を進めていた。

項目	核分裂法	(n,γ)法
試験研究炉	JRR-2、JRR-3(改造前)	JRR-2、JMTR
ターゲット	UO ₂ ペレット (²³⁵ U 2.6%)	MoO ₃ ペレット(天然Mo)
照射時間	4～7 day	4～7 day
冷却時間	1～3 day	30 min
処理時間	3 day	2 h
比放射能	1000 Ci/g.Mo	2 Ci/g.Mo
出荷実績	20 Ci/週(年間39週)	300 Ci/週(年間26週)
製造期間	1972年～1979年	1979年～1985年

- ❑ 低濃縮UO₂ターゲットでは⁹⁹Moの絶対量が不足し、当時の国内需要の1/10に満たなかった。また、製造規模を拡大するには、放射性廃液の処理能力等の多くの課題があり製造を中止した。
- ❑ 年間最大 26 週の出荷が限度であり、需要を十分に満足させられないこと、さらにカナダからの供給が確保されたことが相まって原研製品の需要がなくなり製造を中止した。

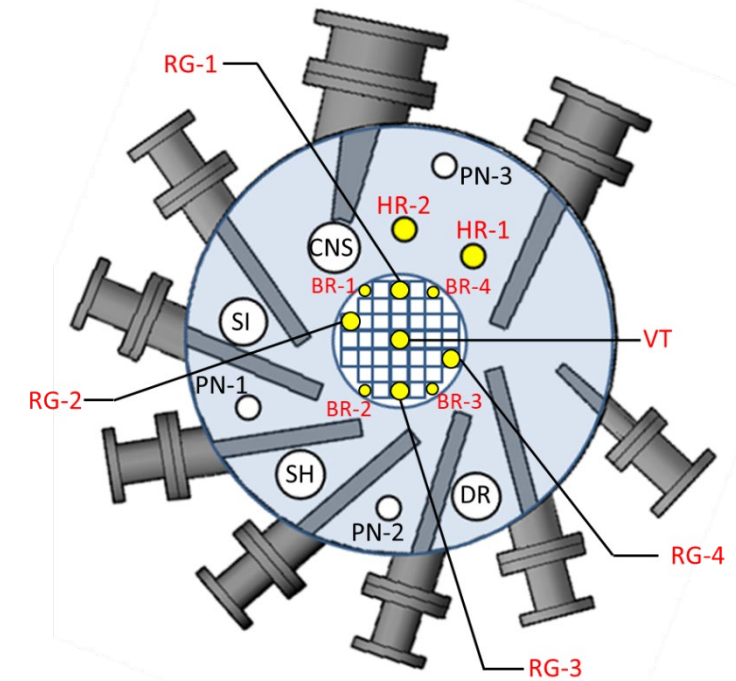
JRR-3を用いた⁹⁹Mo製造に係る取組み

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（平成23年7月7日）において、発電炉及びJMTRを用いたMo-99/Tc-99mの安定供給に向けた国産化方策が記されたが、東京電力福島第一原子力発電所の事故以降、発電炉の長期停止、JMTRの廃止措置により、これらの計画が凍結された。

現在、国内で唯一⁹⁹Moを製造可能な研究炉であるJRR-3を使用した照射試験を実施し、照射手法の確立、国内安定供給に向けた実行可能性について検討する。

○JRR-3の水力照射設備（HR）及び垂直照射設備（VT、RG）を用いて照射試験を実施。

照射試験スケジュール（案）



JRR-3炉心配置図

(垂直照射孔における中性子束)

VT 熱中性子束： 3.0×10^{14} (n/cm²/s)
 速中性子束： 2.0×10^{14} (n/cm²/s)
 RG, BR 熱中性子束： 2.0×10^{14} (n/cm²/s)
 速中性子束： 1.0×10^{14} (n/cm²/s)

(垂直照射設備による⁹⁹Moの生産量)

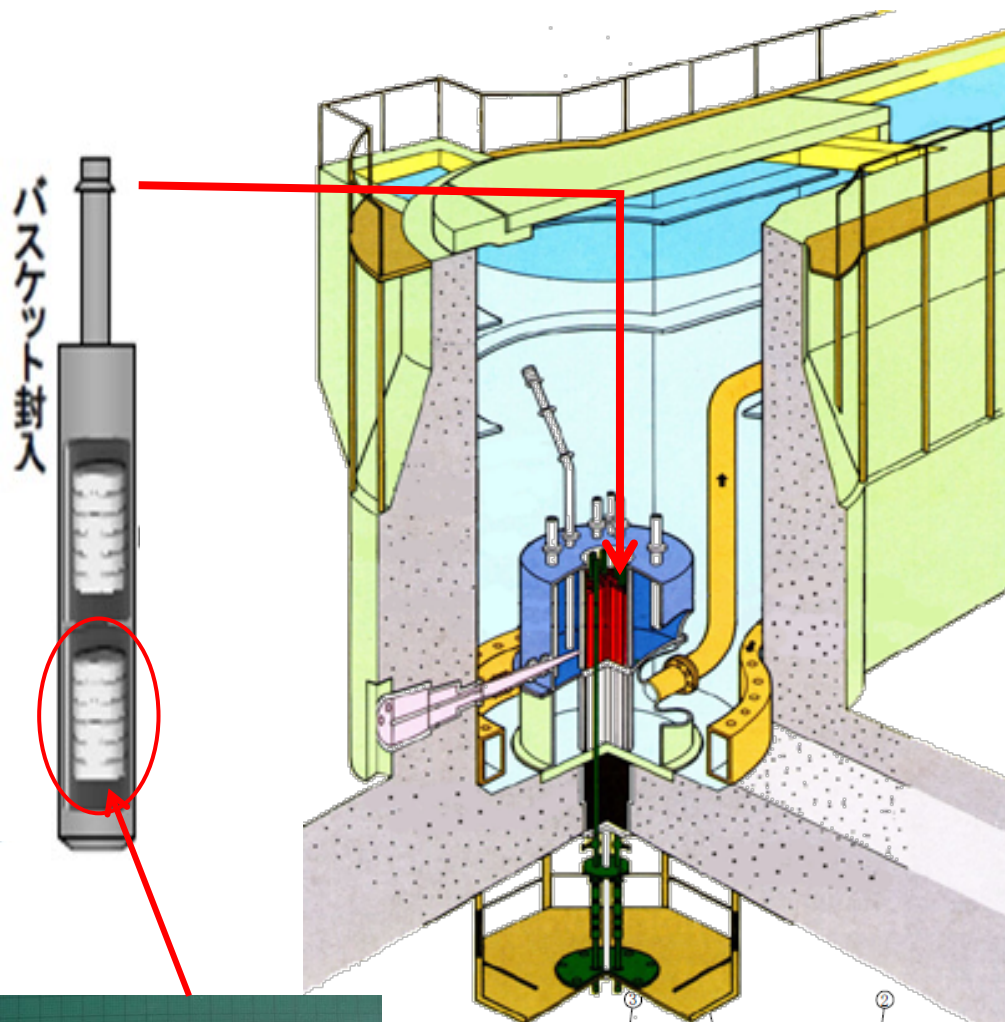
照射孔	照射日数	冷却時間	比放射能 (Ci/g-Mo)	1照射あたりの放射能量 (Ci)
VT	25日	0 hr	4.7	3000
		67 hr	2.35	1500*
RG	25日	0 hr	2.7	1740
		67 hr	1.35	870*
BR	25日	0hr	2.4	1550
		67 hr	1.2	775*

*：出荷可能な放射能量

- 高い中性子フラックスにより、十分な⁹⁹Moを製造することは可能である。
- 原子炉運転中は、試料を挿入・取出しができない。

【課題】

垂直照射設備では出荷が1回/月に制限される。



バスケット封入



垂直照射キャプセル

3	試料	
2	端栓	A1050
1	本体	A1050
	品番	部品名 材質

垂直照射用溶接キャプセル

ペレット寸法：φ27.8×12.5h(mm)
 収納個数：9個

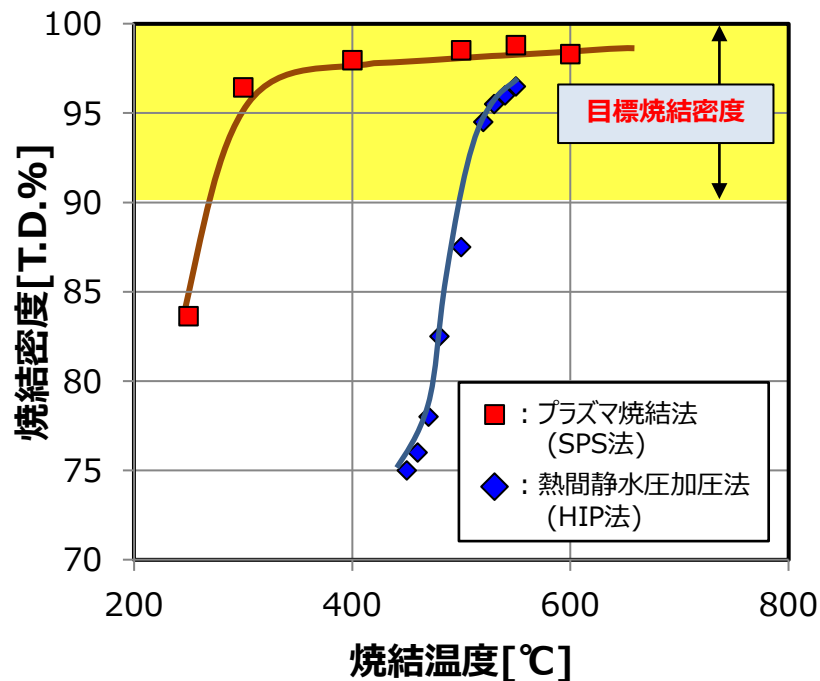
つくば国際戦略総合特区のプロジェクトとして、「**核医学検査薬(テクネチウム製剤)の国産化**」が平成25年10月11日に追加。

【目的】 ウランを用いない ^{99}Mo 製造の基礎基盤技術を確認し、JAEAの研究炉を活用して核医学検査薬の国産化を図る。

【項目】 ①照射ターゲットの製造技術開発、② $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離・抽出・濃縮技術開発、③Moリサイクル技術開発、④ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 製剤化に向けた技術開発、⑤代替炉による照射試験（JMTR廃止決定による新たな項目）。

① 照射ターゲットの製造技術開発

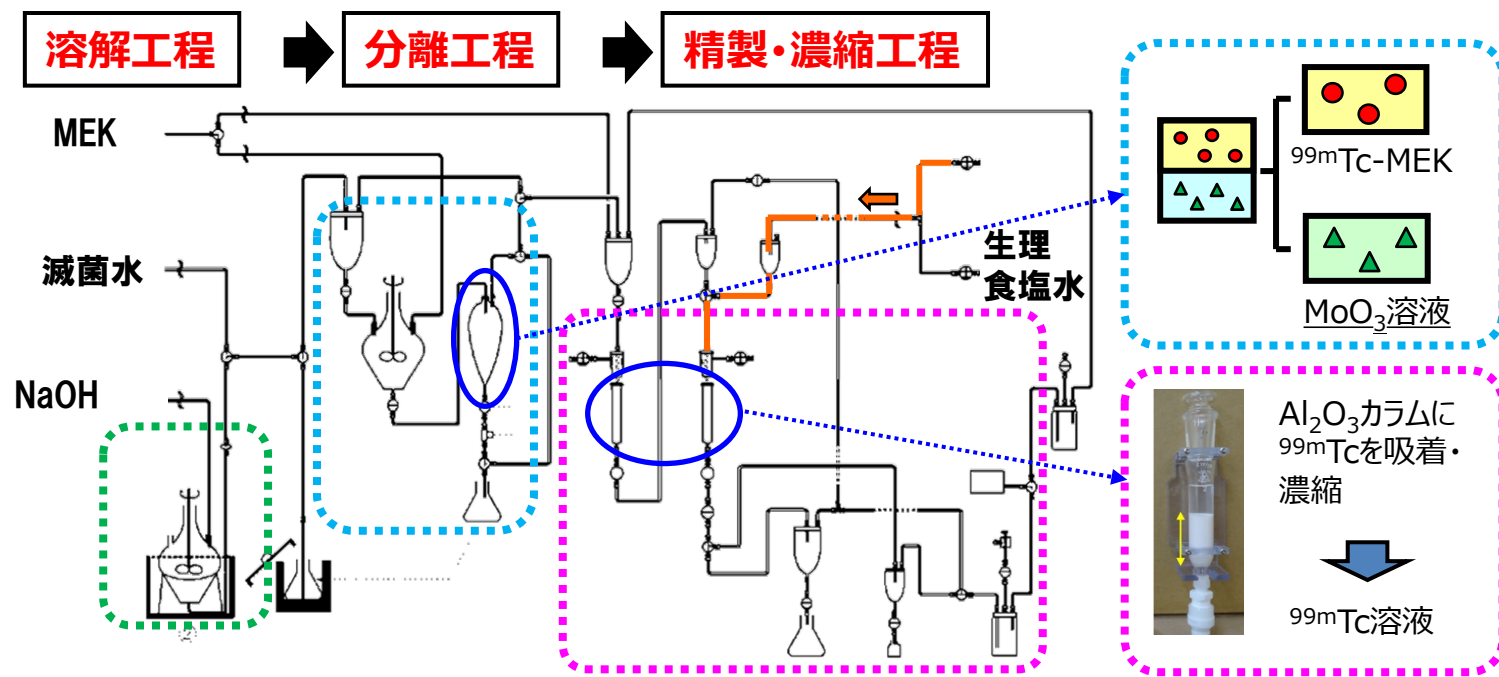
【目標】 高い焼結密度を有する MoO_3 ペレットの安定製造技術の確立



HIP法による大量生産が可能

② $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離・抽出・濃縮技術開発

【目標】 溶媒抽出法による $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離・抽出・濃縮技術の確立

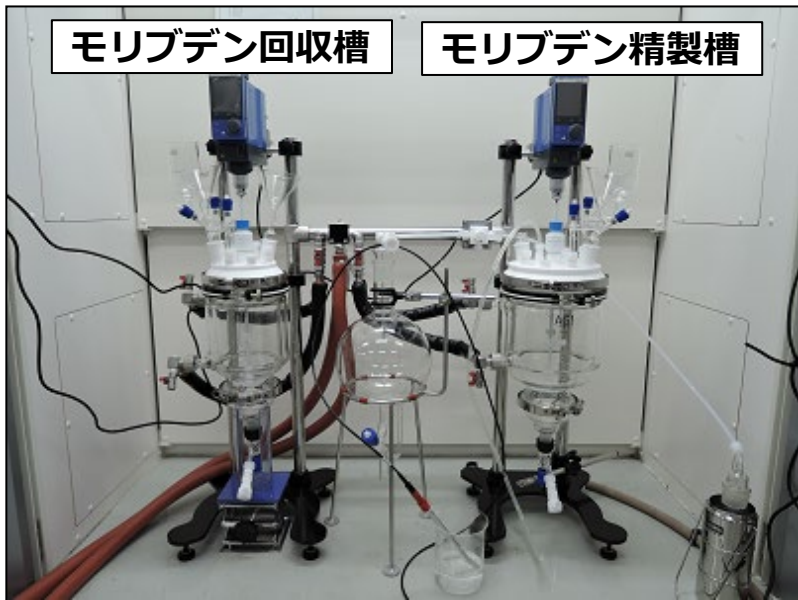


高純度・高濃縮 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶液の回収が可能。

$^{99\text{m}}\text{Tc}$ を安定して回収(回収率 $80 \pm 5\%$)する技術開発を実施中。

③ Moリサイクル技術開発

【目標】 Mo含有廃液から高い収率でMoを回収する技術の確立



JMTRホットラボ施設内に設置したMoリサイクル装置
処理量：最大250g(MoO₃換算量)

**高濃度Mo含有廃液からMo回収
(回収率 95%以上) を実証**

④ ^{99m}Tc製剤化に向けた技術開発

【目標】 得られた^{99m}Tc溶液を核医学検査薬として用いることができることの確認

項目	放薬基*1	USP *2	EP(non-fission) *3
^{99m} Tc量(%)	90~110	90~110	90~110
放射化学的異物(%)	< 5	< 5	< 5
放射核的純度 (μ Ci/mCi ^{99m} Tc)			
⁹⁹ Mo	<0.15 (<0.015%)	<0.15	(<0.1%)
¹³¹ I	—	<0.05	—
¹⁰³ Ru	—	<0.05	—
⁸⁹ Sr	—	<0.006	—
⁹⁰ Sr	—	<0.00006	—
他核種	—	<0.1, α emitter	(<0.01%)
pH	4.5 ~ 7.0	4.5 ~ 7.5	4.5 ~ 8.0
非放射性不純物			
Al(ppm)	<10	<10	<5
MEK(%)	—	<0.1	—
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	—	—
浸透圧(mOsm)	285	—	—

基準値を設定



目標基準値	予備結果*4
—	(58MBq)
<5	5.0
<0.15 (<0.015%)	0.0
—	—
—	—
—	—
—	—
—	—
4.5~7.5	6.27
<10 <0.5	<10 0.078
<0.03 270~300	>3 282

*1：放射性医薬品基準、*2：米国薬局方(USP)、*3：欧州薬局方(EP)、*4：京大炉で照射したMoO₃試料を用いた試験結果

**国内外の^{99m}Tc溶液の医薬品基準を参考に基準値を設定
基準値を概ね満足(洗浄及び高純度の試薬使用で対応可能)。**

⑤ 代替炉による照射試験 ⇒ スケールアップ試験に必要な⁹⁹MoをJRR-3で製造する (アイデア)

国内研究炉の運転再開に伴い、つくば国際戦略総合特区のプロジェクトで得られた成果に基づいて、社会実装のための研究開発 (スケールアップ試験) を継続し、「**核医学検査薬(テクネチウム製剤)の国産化**」を目指す。

【 ^{99}Mo の安定供給に向けた課題】

- 定期事業者検査など原子炉停止期間中は ^{99}Mo 製造が停止する。
- 現在のJRR-3の製造能力では、国内需要の20～30%に留まる。
- 高品質かつ大量の ^{99}Mo を取り扱うための設備が不足。
- RI製造に携わった研究者・技術者が減少。

方策（JRR-3）

- 他の中性子ビーム利用者、照射利用者への影響を考慮した、 ^{99}Mo 製造に適した運転計画の立案。
- 製造能力向上に向けた、新規照射設備の設計・設置。
- ^{99}Mo 製造専用のホットセルの設計・設置。

方策（国内）

- 国産化の割合を設定し、海外からの輸入と併用したサプライチェーンの構築。
- 「常陽」、新試験研究炉、発電炉、加速器など国内製造の多重化・多様化。
- 技術・ノウハウを国内の関連業界で共有し、技術者を育成する。

JRR-3の安定した運用によるRI製造の国内生産への貢献

- 計画外停止を極力低減
- 長期的な円滑運用を実現する燃料マネジメント

^{99}Mo 製造技術を適時に導入・実装

- JRR-3における照射技術を開発（JAEAにて実施）
- 照射後処理技術開発（つくば特区）の成果反映（事業者殿との協力）

サプライチェーンの確立（全関係各署との協力）

- オールジャパンとしての医療用RIの供給のあり方についての政策が必要