

モリブデン99/テクネチウム99m国内製造 に向けたJAEAの進捗報告



令和7年7月30日

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構



JAEA は 2025 年 10 月に
設立 20 周年を迎えます

^{99}Mo 照射試験実績

- 照射試験を継続し、前年度に引き続き ^{99}Mo 試料の供給を行った。
- ^{99}Mo の製造について、令和6年度は垂直照射孔(RG-2)を用いた生成量評価及び気送照射設備(PN-3)を用いた短寿命不純物核種の確認を実施した。

【照射試験、供給実績】

	4月		5月		6月		7月		8月		9月		10月		11月		12月		1月		2月		3月		
JRR-3 運転	15	26	7	31	10	5	定期事業者検査										25	20	6	31	10	7	17		
	01		02		03												04		05		06		07		
照射試験	▲ 1回目 RG-2 1 Cycle※1		▲ 2回目 PN-3 1or10 min※2		▲ (大洗) 1回目 HR-1 6 day		 試料：天然Mo サイズ：Φ20×10mm 重量：約10g 密度：60%T.D. 焼結方法：一軸加圧成型												▲ (大洗) 2回目 HR-1 6 day		▲ 3回目 HR-1 20 min		▲ 4回目 HR-1 2 h		
	試料※1：1g(ペレット) ※2：10 or 100 mg (粉末)																								

【照射試験実績】

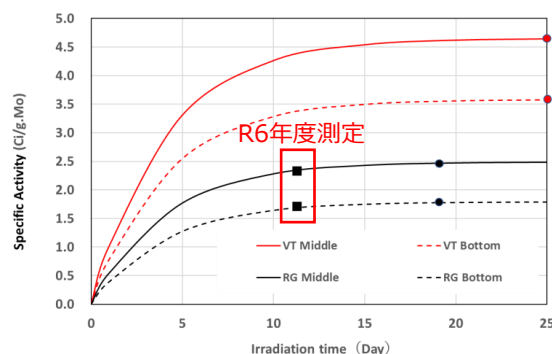


Fig.1 垂直照射設備を用いた ^{99}Mo の生成量評価

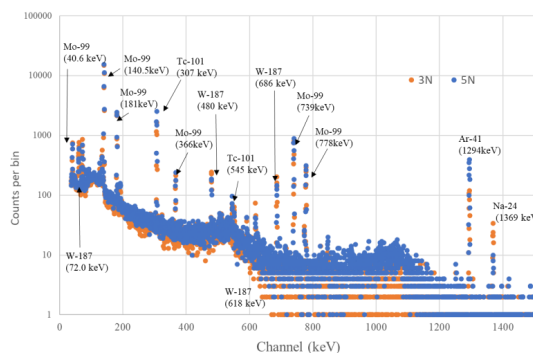


Fig.2 気送管照射設備を用いた ^{99}Mo の不純物生成量評価

天然モリブデンを用いて製作したターゲットを使用し、照射試験と不純物測定を実施した。

- ✓ 通常よりも短いサイクルを利用し、垂直照射設備の照射試験データを蓄積
- ✓ 放射化分析を行いMoペレット中の不純物測定を実施

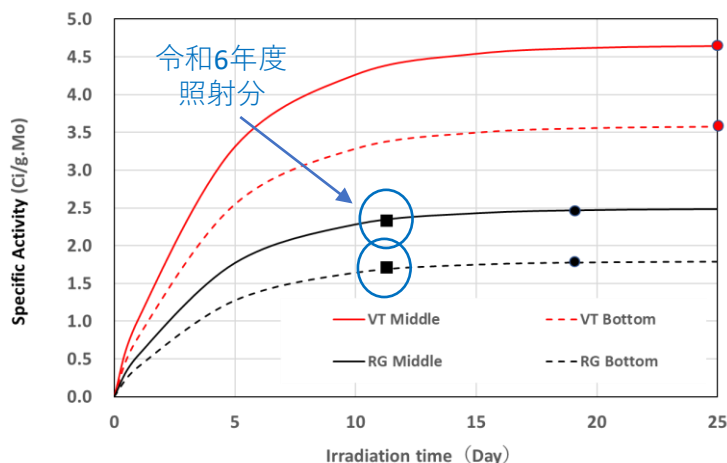


Fig. 1 垂直照射設備を用いた⁹⁹Moの生成量評価

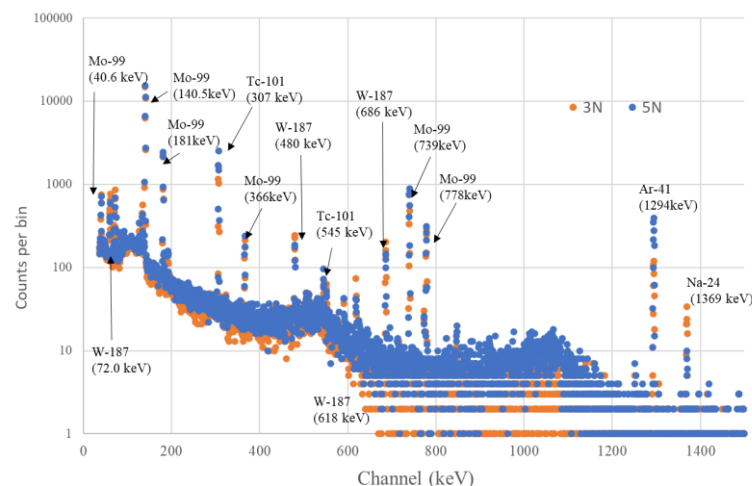


Fig. 2 気送照射設備を用いた⁹⁹Moの不純物生成量評価

- 令和5年度までの垂直照射設備での照射試験では、照射日数19日(RG孔)と25日(VT孔)のデータは得られていた。
- 垂直照射設備を使用し、実供給を想定した照射日数に近い日数(11日)の照射試験を実施した。
- 評価の結果、試料の比放射能は計算結果とよく一致することを確認した。

- 製薬メーカーにてMo/Tcの分離抽出を行うに当たり、品質上の障害となる短寿命放射性核種の有無を調査するため、気送照射設備を用いた照射及び放射化分析を実施した。
- 分離の障害及び品質に影響を及ぼす短寿命放射性核種が含まれていないことを確認した。



水力及び垂直照射設備での生成量評価は概ね終了した。今後は、キャプセルにフルで入れた場合(1キャプセルあたり10ペレット)の照射試験を計画している。

供給における課題

JRR-3の運転サイクル、照射設備ごとの製造能力と試料取出しのタイミングを考慮すると、水力照射設備では毎週100Ci(3.7TBq)、垂直照射設備ではサイクル運転終了後(月1回)に1,000Ci(37TBq)の供給が可能

JRR-3における⁹⁹Mo照射製造計画モデル

	日	月	火	水	木	金	土
第1週		1	2	3	4	5	6
		原子炉 起動日	水力照射(1回目)				
第2週	7	8	9	10	11	12	13
		照射終了 出荷(約100Ci) (3.7TBq)	水力照射(2回目)				
第3週	14	15	16	17	18	19	20
		照射終了 出荷(約100Ci) (3.7TBq)	水力照射(3回目)				
第4週	21	22	23	24	25	26	27
		照射終了 出荷(約100Ci) (3.7TBq)				原子炉 停止日	
第5週	28	29	30	31			
		出荷(約1,000Ci) (37TBq)					

JRR-3を用いた⁹⁹Moの照射・製造能力は明らかになってきたが、一方で、これまでの検討の中で供給能力については課題があることが分かっている。

製薬メーカーの希望とJRR-3からの供給能力の差

検討項目	製薬メーカーの希望(*)	水力照射	垂直照射
供給頻度	・週単位 ・曜日を固定	・週1回 ・固定曜日の出荷は可能	・月1回
供給量	・約660Ci／週 (24.4TBq／週) (2社合計)	・ 約100Ci／週 (3.7TBq／週)	・約1,000Ci／月 (37TBq／月)

課題

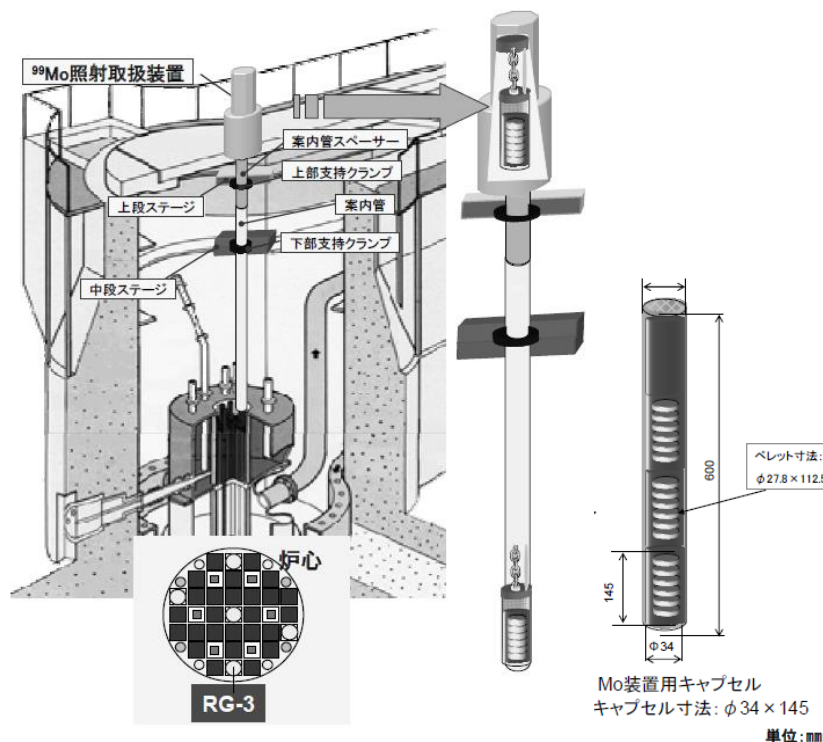
- ・水力照射では固定曜日の毎週供給は可能だが1回の供給量が少ない。
- ・垂直照射では1回の供給量が多いが頻度が少ない。

→ **現状、JRR-3単独の供給能力では、製薬メーカーが希望する頻度、量を同時に満たすのは困難である。**

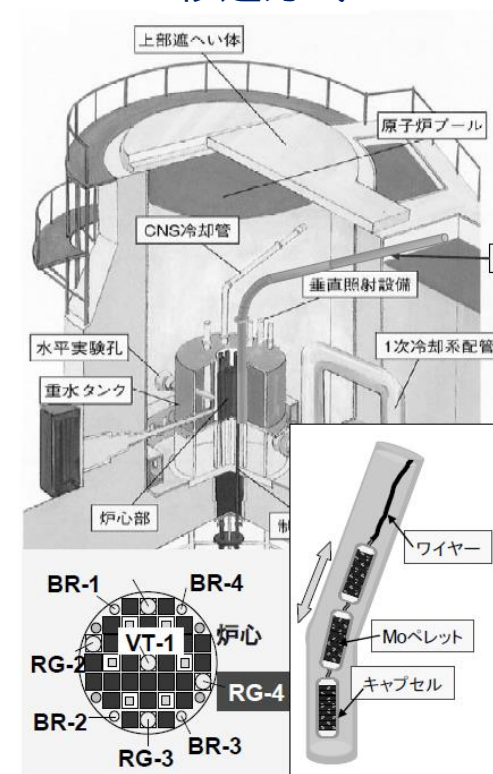
垂直照射設備に自動で試料を挿入、取り出すことができるシステムを設置することで、原子炉を停止することなく、毎週供給することは可能。

ただし、改造には高額のコストと許認可を含めた長期の工事期間を要する。

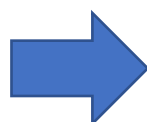
吊下げ方式



移送方式



使用する垂直照射孔 : RG孔
1回に照射するMoO₃: 500 g
照射期間 : 6～7日間



比放射能: 約2 Ci/g.Mo (約74GBq/g.Mo)
生成量 : 約650 Ci/回 (約2.41TBq/回)
供給量 : 約500 Ci/週 (約18.5TBq/週)

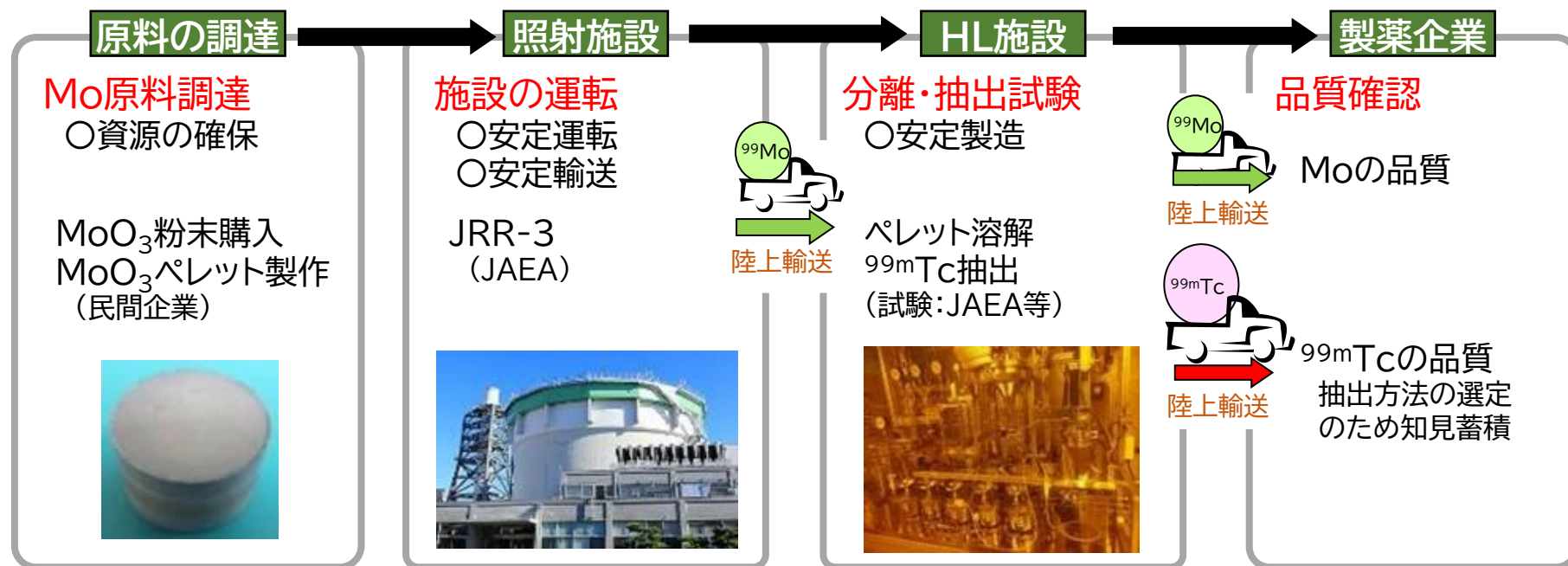
改造した垂直照射設備を使用すると、一つの照射孔で毎週500Ci(18.5TBq)(月3回)の供給が可能な見込みである。ただし、原子炉停止中は供給不可であり、定期事業者検査期間中(4～5カ月間)に長期間供給できない点は課題。

照射設備改造後の⁹⁹Mo照射製造計画モデル

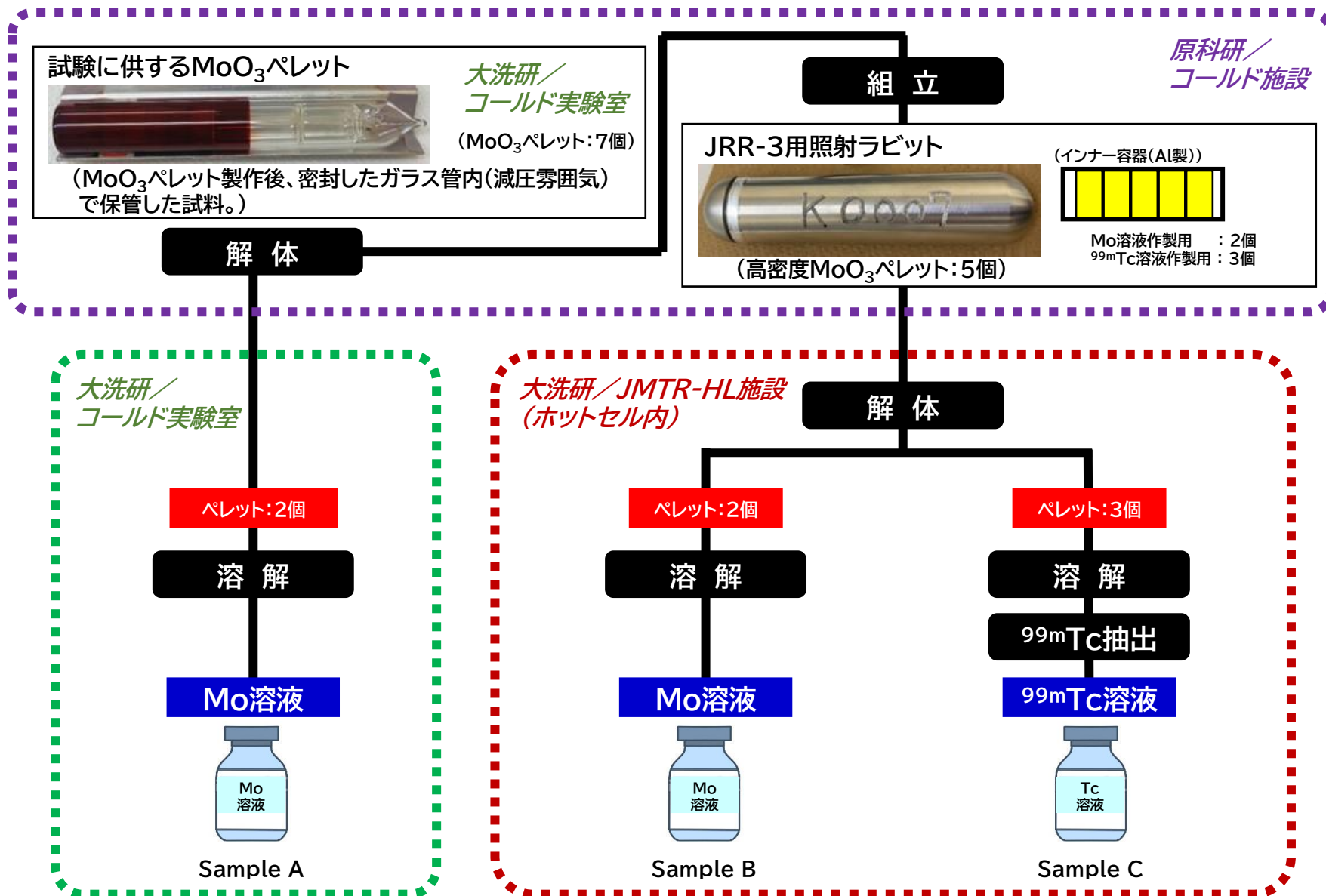
	日	月	火	水	木	金	土
第1週		1	2	3	4	5	6
		原子炉起動日	照射開始（1回目）				
第2週	7	8	9	10	11	12	13
	照射終了 出荷		(約500Ci) (18.5TBq)	照射開始（2回目）			
第3週	14	15	16	17	18	19	20
	照射終了 出荷		(約500Ci) (18.5TBq)	照射開始（3回目）			
第4週	21	22	23	24	25	26	
	照射終了 出荷		(約500Ci) (18.5TBq)				
第5週							
	原子炉停止						

$^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離抽出試験実績

○ 溶媒抽出法(MEK)による試験フロー



- 1) 令和6年6月に実施した^{99m}Tc分離抽出試験のMo溶液及び^{99m}Tc溶液について、トライアル試験(品質確認)を実施。
- 2) 品質確認試験結果の評価。
- 3) 令和6年9月及び令和7年1月の^{99m}Tc分離抽出試験は、^{99m}Tc回収率の向上のための改善試験を実施。
- 4) 有機溶媒である使用済MEKを製薬メーカーで処分できないという課題がある。



トライアル試験において、品質確認の一環として照射済MoO₃溶液の不純物測定を行った他、JAEAにおいてもMoO₃粉末及び未照射MoO₃溶液の不純物測定を実施した。

元素	MoO ₃ 粉末 (ppm)		Mo溶液 (ppm)		元素	MoO ₃ 粉末 (ppm)		Mo溶液 (ppm)	
	ミルシート	GD-MS	照射済*2	未照射*3		ミルシート	GD-MS	照射済*2	未照射*3
Pb	<10	<1	162	—	K	<5	0.40	23.4	—
V	—	<0.05	99	<1	Mg	1.2*1	0.19	31.9	—
Sb	—	—	36.9	<1	Cr	—	<0.1	28.8	—
Ir	—	<0.05	2,700*4	—	Ti	—	<5	7.92	—
Cu	1	<0.1	121.1	<1	Te	—	<0.5	82.8	—
Re	—	<0.05	1,440*4	—	Gd	—	<0.01	10.8	—
Th	—	<0.005	1,260*4	—	Mo	(matrix)	—	135,000	178,000
Al	5.3*1	1.1	3,510*4	—	*1：酸化物の測定結果から算出した換算値。 *2：ICP-AES分析による半定量分析結果(トライアル試験で実施)。 *3：ICP-AES分析による定量分析結果。 *4：Mo標準液でも検出。干渉による影響と予想。				
Si	<10	0.07	198	—					

：元素不純物ガイドライン (クラス1:Pb、クラス2A:V、クラス2B:Ir、クラス3:Sb、Cu)

NaOH試薬(特級)の主な不純物(参考値)

Al (<0.002%)、K(<0.05%)、Mg(<5ppm)、Pb(<5ppm)、SiO₂(0.01%)等

- ・粉末及び未照射のMo溶液には不純物はほとんど含まれていないが、照射済Mo溶液では不純物が検出されており、少なくともMo溶液の調製までは不純物混入はないと示唆される。
- ・一方、照射済Mo溶液についても、干渉による影響があった可能性もある。
⇒ 干渉の影響を精査するとともに、ICP-AES分析方法の標準化・精度向上が必要。

【純度試験：⁹⁹Mo】

⁹⁹Moの放射能は基準値(0.015%以下)から逸脱(支給時においても⁹⁹Moが検出)。

【純度試験：全元素】

Mo溶液中の不純物は溶媒抽出法で概ね除去が可能。

試験項目	基準	6回目・ ^{99m} Tc溶液
性状	無色澄明の液	無色澄明の液
不溶性異物試験	不溶性異物が確認されない	異物を認めなかった
浸透圧	約1(280mOsm)	1.02
確認試験： ^{99m} Tc	0.141MeVにピークを認める	0.141MeVにピーク
確認試験：ろ紙	Rf = 0.6 ~ 0.7	0.62
純度試験：RCIP	5%以下	0.0%
純度試験： ⁹⁹ Mo	0.015%以下	0.975%
pH	4.5 ~ 7.0	6.82
純度試験：アルミニウム	10ppm以下	10ppm以下
純度試験：全元素	—	右表

元素	補正濃度(ppm)
B	0.139
Ba	0.046
Ca	0.059
Cu	0.010
Fe	0.132
K	0.086
Mg	0.038
Mn	0.005
Mo	15.3
Si	0.18
Sr	0.003
Yb	0.002
Zn	0.004

⁹⁹Moの基準値逸脱は、Mo溶液とMEKを分離する際にMEK側にMo溶液が混入したことによるものと推測。

⇒ Mo溶液とMEKの分離操作を改善(切替バルブの時間設定を最適化)する必要がある。

進捗まとめと課題

【 ^{99}Mo の照射試験】

- 前年度に引き続き照射試験及び ^{99}Mo 試料の供給を継続するとともに、従来と照射時間を変えて照射試験を行い、 ^{99}Mo 生成量のデータを蓄積した。
- その結果、照射時間を変えても計算通りの生成量が得られることを確認した。
- 照射ターゲットとなる MoO_3 ペレットの放射化分析を行い、製剤の支障となる放射性不純物が含まれないことを確認した。
- JRR-3の供給能力について、JRR-3単独では製薬メーカーの希望を満たすのは困難であることが分かっている。
- 照射設備の改造により供給量を増やすことも考えられるが、高額のコストと長期間を要する。定期事業者検査等による原子炉停止期間に供給できない点も課題である。

【 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離抽出試験】

- 製薬メーカーとのトライアル試験(品質確認)を通じて、 Mo 溶液の分析方法の改善やMEK法で抽出した Tc 溶液の製剤化への可能性について検討を進めた。
- 品質確認における分析手法の精度向上と標準化及び $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の分離操作の改善が必要である。

《今後の検討課題》

- ・ JRR-3の製造能力については、現実的な上限が明らかになってきており、供給のあり方や原子炉以外での製造等、情報収集と認識のすり合わせが必要である。
- ・ 使用済MEKの処分については、引き続き関係者間の協議が必要である。