

## 【研究開発の背景と目的】

### (1) 再稼働後の JMTR に期待される役割

再稼働後の JMTR は、図1に示すように、①現行軽水炉の高経年化対策や次世代軽水炉のような「軽水炉の長期化対策」、②核融合炉や高温ガス炉用材料開発や原子力エネルギー基盤研究のような「科学技術の向上」、③シリコン半導体や医療診断用ラジオアイソトープ製造のような「産業利用の拡大」、④「原子力人材育成」等の役割を担うことになる。

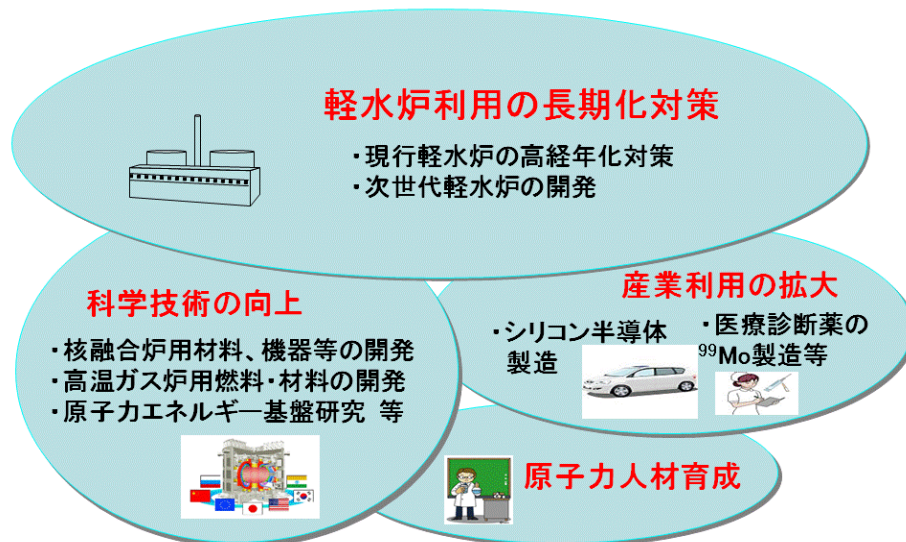


図1 再稼働後の JMTR に期待される役割

### (2) <sup>99</sup>Mo の製造計画

我が国の核医学診断件数は約140万件/年であり、そのうち約90万件については、半減期6時間のテクネチウム-99m(以下、<sup>99m</sup>Tc)を検査薬として使用している。<sup>99m</sup>Tcは半減期66時間のモリブデン-99(以下、<sup>99</sup>Mo)から製造される。我が国の<sup>99</sup>Mo需要は、米国に次ぎ世界第2位であるにもかかわらず、全量を輸入に頼っている。しかし、近年、製造用原子炉のトラブル等に伴う停止、アイスランドの火山噴火による空路障害などにより、<sup>99</sup>Moの安定に供給することが困難となったこともあり、我が国で<sup>99</sup>Mo製造することが重要な課題となっている。

<sup>99</sup>Moの95%以上は、表1に示す原子炉において、高濃縮ウラン(HEU、<sup>235</sup>U濃縮度50%以上)の核分裂を利用する(n, f)法(以下、核分裂法)にて製造されている。一方、米国が提唱するGTRI(地球的規模脅威削減イニシアティブ:2004年5月、エイブラハム米エネルギー長官が提唱)において、米国や旧ソ連より各国に対して研究炉用の燃料として提供されたHEUがテロリストの手に渡ることを防ぐため、全ての国における民生用研究炉用燃料のHEUから低濃縮ウラン(LEU、<sup>235</sup>U濃縮度20%未満)への転換が示されている。このため、核分裂法を用いた<sup>99</sup>Mo製造では、製造に用いるウランにLEUを用いる方法に移行されつつあるが、放射性廃棄物量が従来約5倍に増大すると評価されている。そのような状況から、<sup>99</sup>Mo製造方法として、放射化法が提案され、その検討が開始されている。

そのため、医療診断用ラジオアイソトープ製造の「産業利用の拡大」として、JMTRを用いて、放射化法による<sup>99</sup>Mo製造の国産化技術を確立し、<sup>99</sup>Moの安定供給の確保のための<sup>99</sup>Mo製造の実用化を目指している。なお、JMTRを用いた放射化法による<sup>99</sup>Mo製造に係る製造工程を図2に示す。

原子力機構理事長の諮問機関であるJMTR運営・利用委員会の下に設置された「<sup>99</sup>Mo国産化検討分科会」の最終報告(平成23年3月9日)においては、JMTR稼働時において、1000Ci/週の<sup>99</sup>Mo製造が可能であり、これは国内における需要量の2割に相当すると報告されている。こうしたことから、

<sup>99</sup>Mo 製造の国産化を早期実現することにより、日本における <sup>99</sup>Mo 需要に対して、天然 Mo を用いた場合 20%、高濃縮(約 98%) <sup>99</sup>Mo を用いた場合 100%の供給が期待できる。

表 1 世界の主な <sup>99</sup>Mo 生産炉と供給の状況について

| 国       | 炉      | 運転年数 <sup>※1</sup> | <sup>99</sup> Mo 供給率 <sup>※2</sup> | 最近の主なトラブル等   |
|---------|--------|--------------------|------------------------------------|--|
| カナダ     | NRU    | 54                 | 35-70%                             | H21 年 5 月の重水漏れにより、平成 22 年 8 月下旬頃まで停止。                                    |
| オランダ    | HFR    | 50                 | 35-70%                             | H22 年 2 月 19 日から8月中旬まで、一次冷却系配管修理のため停止。次期炉として PALLAS を計画中。                |
| ベルギー    | BR2    | 50                 | 25-65%                             | 次期炉として、加速器駆動炉 MYRRHA を計画中。   |
| 南アフリカ   | SAFARI | 46                 | 10-20%                             | LEU ターゲットへ移行済み。RI 製造専用炉を検討中。   |
| フランス    | OSIRIS | 45                 | 10-20%                             | 次期炉として JHR(100MW、2015 年稼働)を建設中。OSIRIS は JHR 稼働時に停止予定。                    |
| オーストラリア | OPAL   | 4                  | -                                  | LEU ターゲット使用 (H21 年 9 月に <sup>99</sup> Mo 製造に係る運転が許可され、数 10Ci/週を製造。増産予定。) |

※1:平成 23 年 3 月 9 日現在

※2:<sup>99</sup>Mo 供給率/週

‘The Supply of Medical Radioisotopes’,OECD 2010 NEA No.6967 より転載

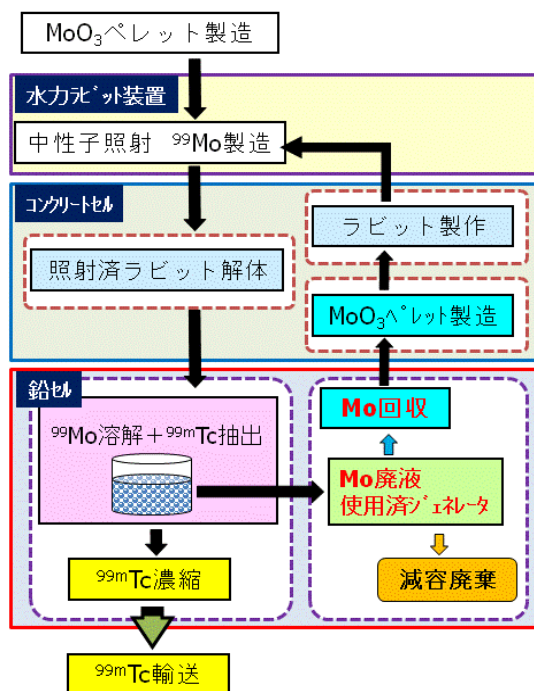


図 2 JMTR を用いた放射化法による <sup>99</sup>Mo 製造に係る製造工程

### (3) 求められている課題

GTRI の下活動している RERTR プログラムにおいて、HEU の利用を限定するために Mo-99 製造用ターゲットを LEU で代替することが検討されており、IAEA も本プログラムをサポートしている。昨年開催された RERTR 会合(RERTR 2010-32nd International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors)においても、HEU から LEU への移行に重点がおかれている。しかしながら、LEU であったとしてもウランを用いる  $^{99}\text{Mo}$  製造方法では、放射性廃棄物量が増大することなど危惧すべき課題点も多い。このため、放射化法による  $^{99}\text{Mo}$  製造方法の技術的確立は、国民の健康維持、すなわち「健康の安全保障」のためにも非常に大きな意義があるとともに、核不拡散及びテロの脅威低減、すなわち「国家の安全保障」にも資することとなる。

放射化法では、核分裂法と比較して、検査薬にするための  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の放射能濃度が低いこと、希少資源の一つである Mo の有効利用などの技術的課題があり、実用化のためにはこれらの課題を早急に解決しなければならない。そのため原子力機構ではこれらの課題を解決するための取り組みを行い、今回発表する技術を開発した。

#### 【 $^{99}\text{Mo}$ 製造に係る Mo リサイクルの実用化のための目標】

放射化法は、 $^{98}\text{Mo}$  を中性子照射することにより  $^{99}\text{Mo}$  を製造するが、 $^{99}\text{Mo}$  の濃度が低いこと、希少資源の一つである Mo の有効利用などの課題を解決することにより、核分裂法による  $^{99}\text{Mo}$  製造の代替方法としてより有望となる。特に、 $^{99}\text{Mo}$  製造の国産化を目指すためには、天然に存在する  $^{98}\text{Mo}$  の存在比(約 24%)よりも存在比を高めた濃縮  $^{98}\text{Mo}$  を有効利用することが求められているが、この濃縮  $^{98}\text{Mo}$  は非常に高価である。このため、 $^{99}\text{Mo}$  を吸着させた吸着剤からの Mo 分離・回収技術を確立し、原料の  $^{98}\text{Mo}$  を安定に保持することが必要不可欠である。そのため、モリブデンリサイクル手法の開発にあたっては、 $^{99}\text{Mo}$  を吸着させた吸着剤からの Mo 回収方法を確立し、その Mo 回収率の評価を行うことを目標とした。

#### 【Mo リサイクル手法の開発】

Mo リサイクルは、排ガス浄化用触媒については、湿式により行われている。しかしながら、この方法は、使用済触媒を焙焼、粉碎、溶出、ろ過、脱水、酸沈などという複雑な工程を必要とするため、使用済触媒の Mo リサイクル設備をそのままホットセル内に設置することは困難である。このため、ホットセル内に設置し、遠隔で容易に操作できる手法を開発することとした。開発にあたっては、まず、Mo 吸着剤の化学構造を調べた。この結果、吸着剤に吸着した Mo はアルカリ溶液を用いることにより容易に溶解できることを、また、吸着剤を高温で加熱することにより吸着した Mo を  $\text{MoO}_3$  に容易にできることを明らかにした。これにより、2 つの回収方法、すなわち、使用済吸着剤中に含まれている Mo を化学的溶離による回収方法(溶離法)と比較的低い温度で昇華する  $\text{MoO}_3$  の特性を生かした回収方法(昇華法)の 2 つの方法を考案した。

溶離法に関しては、Mo を吸着させた吸着剤(PZC) 5.0g をカラムに充填し、所定濃度の NaOH 溶液をカラム上部から滴下し、得られる溶離液を 10ml ずつ分取して Mo 濃度を測定した。溶離法による Mo 溶離特性測定結果を図3に示す。0.1N-NaOH 溶液では Mo が PZC からほとんど溶離しないこと、1N-NaOH 溶液では少ない通液量で 98%の Mo 回収率が得られることを明らかにし、本方法で使用済 Mo 吸着剤から Mo を 98%以上回収できることを実証した。

昇華法に関しては、Na 濃度が  $\text{MoO}_3$  の昇華に与える影響をみるため、PZC を濃度の異なる食塩水に浸漬した後、濾別、80℃乾燥させ、得られた PZC を石英管中で 950℃×2 時間の加熱試験を行い、Mo 回収率を測定した。昇華法による使用済 PZC からの Mo 回収率の結果を図4に示す。その結果、

PZC 中に含まれる Na 含有量が Mo 回収率に大きく影響することを明らかにした。このため、PZC を希塩酸で洗浄し、PZC 中の Na 含有量を 0.01%以下に除去する操作を追加することにより、98%以上の Mo 回収率が得られた。

今後は、本成果を基に、次の段階である実用化を目指した高 Mo 回収率を有するリサイクル試験装置を製作し、JMTR ホットラボにあるホットセル内に本装置を設置し、JMTR で照射した Mo 原料を用いて実証試験を行っていく。

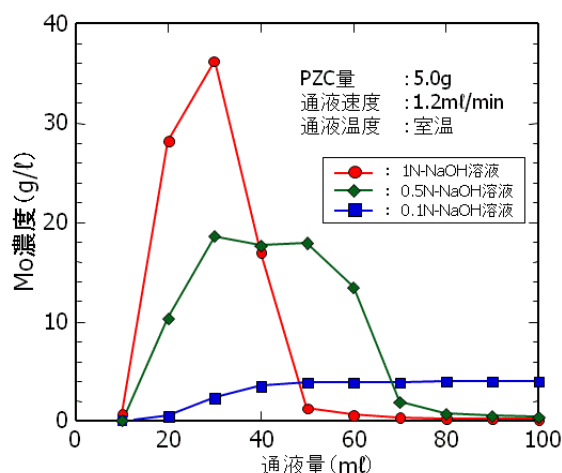


図3 使用済PZCからのNaOH濃度によるMo溶離曲線(溶離法)

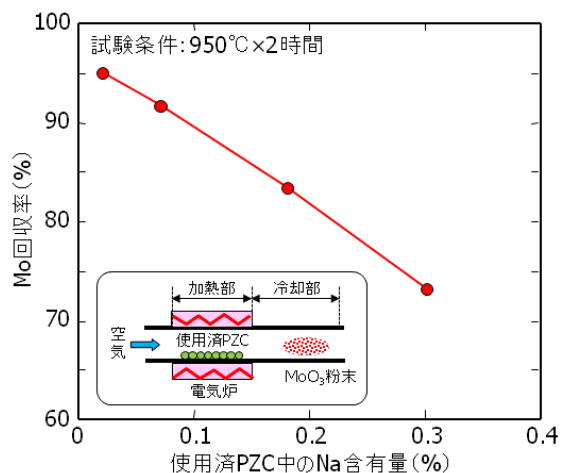


図4 Na含有量によるMo回収率の依存性(昇華法)

### 【<sup>99</sup>Mo 製造に係る Mo リサイクルへの適用】

医療診断用 RI の市場規模は 2008 年度およそ 485 億円(放射性医薬品流通統計 2009)である。最も多いのが <sup>99m</sup>Tc であり、これを国産化し、安定的に供給できるシステムを構築することは、国内における <sup>99</sup>Mo の安定供給の確立という社会的要求に対して、大きく貢献することが出来る。

今回開発した Mo リサイクル技術は、JMTR を用いた放射化法による医療診断用 <sup>99</sup>Mo 製造サイクル(図5)の確立に適用できる。この Mo リサイクルの確立により、JMTR を用いた <sup>99</sup>Mo 製造の国産化を

可能とし、核医学検査に用いられる放射性同位元素の 60%以上を占める  $^{99m}\text{Tc}$  を安定的に供給する道を開くことになる。

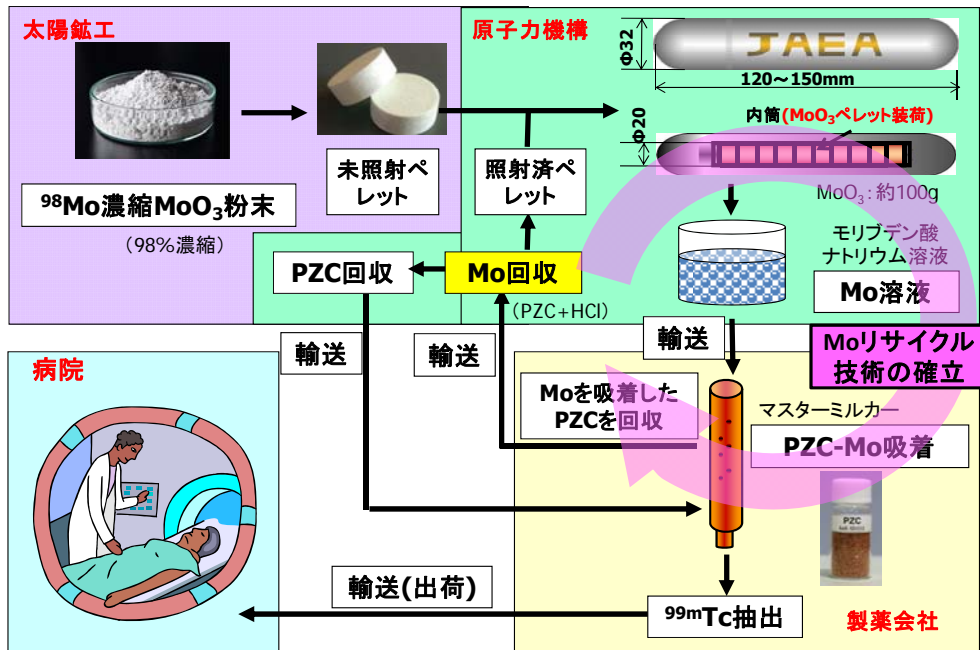


図5 放射化法を用いた医療診断用  $^{99}\text{Mo}$  製造サイクルの概要