

令和4年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

国内の原子力インフラを活用した
医用 RI の自給技術確立に向けた研究開発

成果報告書

令和5年3月

学校法人五島育英会 東京都市大学

本報告書は、文部科学省の原子カシステム研究開発事業による委託業務として、学校法人五島育英会東京都市大学が実施した令和2年度-令和4年度「国内の原子カインフラを活用した医用 RI の自給技術確立に向けた研究開発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	viii
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	2.1-1
2.2 成果の目標及び業務の実施方法	2.2-1
3. 業務の実施内容及び成果	3.1.1-1
3.1 Mo-99 製造プロセスの軽水炉(PWR)への適用性検討	3.1.1-1
3.1.1 医用 Mo-99 製造条件の設定(再委託先: NucMed) 【R2】	3.1.1-1
3.1.2 PWR 用 Mo 照射ターゲットの開発(再委託先: MHI、JAEA) 【R2-R3】	3.1.2-1
3.1.3 Mo-99 供給プロセスの開発(再委託先: MHI、JAEA) 【R2-R4】	3.1.3(1)-1
3.1.4 Mo-98 回収プロセスの開発(再委託先: MHI、JAEA) 【R2-R4】	3.1.4(1)-1
3.1.5 全体スキームの検討(再委託先: MHI) 【R2, R4】	3.1.5-1
3.2 軽水炉での Ac-225 製造	3.2-1
3.2.1 ターゲット核選定と核変換パスの検討 【R2】 (都市大)	3.2-1
3.2.2 最適照射条件や生成量の評価 【R3】 (都市大)	3.2-1
3.2.3 安全性・運転性への影響評価 【R4】 (都市大)	3.2-1
3.3 高速炉(「常陽」)での Mo-99 製造	3.3.1-1
3.3.1 最適な照射場の設置((都市大、再委託先: JAEA) 【R2-R4】	3.3.1-1
3.3.2 減速集合体等の設計(再委託先: JAEA -JOYO) 【R2-R3】	3.3.2-1
3.3.3 照射後試料の取扱手法確立(再委託先: JAEA -JOYO, FMF) 【R2-R4】	3.3.2-1
3.3.4 「常陽」での照射試験計画立案(再委託先: JAEA -JOYO) 【R3-R4】	3.3.4-1
3.4 高速炉(「常陽」)での Ac-225 製造	3.4.1-1
3.4.1 医用 Ac-225 製造条件の設定(再委託先: 金沢大学) 【R2-R4】	3.4.1-1
3.4.2 Ac-225 市場予測(再委託先: NucMed) 【R2】	3.4.2-1
3.4.3 最適な照射場の設置(都市大、再委託先: JAEA -JOYO) 【R2-R4】	3.4.3-1
3.4.4 照射済み Ra-226 からの Ac 分離、Ra-226 再利用(再委託先: JAEA) 【R2-R4】	3.4.4-1
3.4.5 「常陽」での照射試験計画立案(再委託先: JAEA -JOYO) 【R3-R4】	3.4.5-1
3.5 原子炉で生成される医用 RI の品質と普及についての検討(再委託先: 金沢大学)	
3.5.1 Ac-225 の使用・普及に係る諸問題の解決 【R2-R4】	3.5-1
3.5.2 Mo-99 及び Tc-99m の既存の医薬品との同等性評価 【R3】	3.5-2
3.6 研究推進 【R2-R4】 (都市大)	3.6-1
4. 結言(都市大)	4.1

図表一覧

表一覧

【3.1.3(1)】 MHI

表 3.1.3(1)-1	放射性不純物の生成量評価の評価条件	3.1.3(1)-5
表 3.1.3(1)-2	濃縮 MoO ₃ 焼結ペレットに含まれる不純物組成の設定値	3.1.3(1)-5
表 3.1.3(1)-3	濃縮 MoO ₃ 焼結ペレット照射後 48 時間経過時点における Tc-99m に対する生成核種の放射エネルギーの比	3.1.3(1)-6
表 3.1.3(1)-4	医薬品の放射性核種の基準値	3.1.3(1)-7
表 3.1.3(1)-5	不純物除去方法	3.1.3(1)-8
表 3.1.3(1)-6	Mo-99 供給プロセス及び Tc-99m 製剤の生成プロセス マスバランス評価における前提条件	3.1.3(1)-9

【3.1.3(2)】 MHI

表 3.1.3(2)-1	ねじジャッキ回転数（ローラカタ送りに相当）と電流値（トルクに相当）	3.1.3(2)-4
--------------	-----------------------------------	------------

【3.1.3(3)】 JAEA

表 3.1.3(3)-1	測定試料一覧	3.1.3(3)-6
表 3.1.3(3)-2	測定機器及び分析条件	3.1.3(3)-6
表 3.1.3(3)-3	X 線検出ピーク	3.1.3(3)-7
表 3.1.3(3)-4	残留応力解析結果	3.1.3(3)-7
表 3.1.3(3)-5	Mo 処理装置の基本条件	3.1.3(3)-11
表 3.1.3(3)-6	NaOH 添加量	3.1.3(3)-11
表 3.1.3(3)-7	各 Mo 重量時における SUS 製封入容器の個数	3.1.3(3)-11
表 3.1.3(3)-8	照射試料溶解時模擬体積	3.1.3(3)-11
表 3.1.3(3)-9	不溶解性残渣除去フィルター材質比較	3.1.3(3)-12
表 3.1.3(3)-10	放射化不純物除去方法調査結果	3.1.3(3)-12
表 3.1.3(3)-11	各有力除去剤に関する今後の課題	3.1.3(3)-12
表 3.1.3(3)-12	溶解処理装置に使用する機器類一覧	3.1.3(3)-13

【3.1.4(1)】 MHI

表 3.1.4(1)-1	Mo-98 回収プロセス マスバランス評価における前提条件	3.1.4(1)-3
表 3.1.4(1)-2	評価条件（共通条件）	3.1.4(1)-3
表 3.1.4(1)-3	評価条件（個別条件）及び評価結果（天然 Mo）	3.1.4(1)-4
表 3.1.4(1)-4	評価条件（個別条件）及び評価結果（濃縮 Mo）	3.1.4(1)-5

【3.1.4(2)】 JAEA

表 3.1.4(2)-1	Mo 吸着済みアルミナの各元素の含有濃度	3.1.4(2)-5
表 3.1.4(2)-2	溶離液、水洗液の分析結果	3.1.4(2)-5
表 3.1.4(2)-3	Mo 溶離後アルミナ分析結果及び Mo 回収率	3.1.4(2)-5
表 3.1.4(2)-4	溶離液の濃縮前後の分析結果	3.1.4(2)-5
表 3.1.4(2)-5	粗モリブデン酸ろ液分析結果及び粗モリブデン酸回収率	3.1.4(2)-6
表 3.1.4(2)-6	粗モリブデン酸分析結果	3.1.4(2)-6
表 3.1.4(2)-7	精製モリブデン酸ろ液分析結果及び精製モリブデン酸回収率	3.1.4(2)-6
表 3.1.4(2)-8	精製モリブデン酸分析結果	3.1.4(2)-6
表 3.1.4(2)-9	三酸化モリブデン分析結果	3.1.4(2)-7
表 3.1.4(2)-10	各工程の Mo 回収率及び総合収率	3.1.4(2)-7
表 3.1.4(2)-11	各 ^{99m}Tc 抽出方法から発生する ^{98}Mo を含む廃棄物の比較(概算値)	3.1.4(2)-8

【3.2】 都市大

表 3.2.3-1	炉心仕様	3.2-10
表 3.2.3-2	熱解析の計算条件	3.2-11
表 3.2.3-3	冷却材物性値	3.2-11
表 3.2.3-4	熱伝導率	3.2-11
表 3.2.3-5	最終ターゲット仕様	3.2-11
表 3.2.3-6	Ra-226/Th-230 装荷に伴う臨界性への影響	3.2-12
表 3.2.3-7	Th-232 混合ターゲット装荷に伴う臨界性への影響	3.2-12
表 3.2.3-8	Th-232 混合ターゲット装荷に伴うドップラー係数への影響	3.2-13
表 3.2.3-9	Th-232 混合ターゲット装荷に伴うボイド係数への影響	3.2-13

【3.3.1(5)】 JOYO

表 3.3.1(5)-1	解析結果	3.3.1-4
--------------	------	---------

【3.4.3(5)】 JOYO

表 3.4.3(5)-1	解析結果	3.4.3-5
--------------	------	---------

【3.4.4】 原科研

表 3.4.4-1	核種崩壊生成計算コード ORIGEN により計算した、高速中性子照射後の Ra 線源に含まれる元素とその放射能及び重量	3.4.4-4
-----------	---	---------

図一覧

【2.1】

- 図 2.1-1 全期間を通じた研究実施計画(1/3) 2.1-1
- 図 2.1-1 全期間を通じた研究実施計画(2/3) 2.1-2
- 図 2.1-1 全期間を通じた研究実施計画(3/3) 2.1-3
- 図 2.1-2 令和4年度研究実施計画 2.1-4

【3.1.3(1)】 MHI

- 図 3.1.3(1)-1 Mo-99 供給プロセス及び Tc-99m 製剤の生成プロセス 3.1.3(1)-10

【3.1.3(2)】 MHI

- 図 3.1.3(2)-1 カプセル開封処理部イメージ図【R3年度成果】 3.1.3(2)-5
- 図 3.1.3(2)-2 カプセル開封処理部 3D モデルイメージ図(1/4) 3.1.3(2)-5
- 図 3.1.3(2)-3 カプセル開封処理部 3D モデルイメージ図(2/4) 3.1.3(2)-5
- 図 3.1.3(2)-4 カプセル開封処理部 3D モデルイメージ図(3/4) 3.1.3(2)-6
- 図 3.1.3(2)-5 カプセル開封処理部 3D モデルイメージ図(4/4) 3.1.3(2)-6
- 図 3.1.3(2)-6 要素試験治具 3.1.3(2)-6
- 図 3.1.3(2)-7 ローラカッタ押し付け状況 3.1.3(2)-7
- 図 3.1.3(2)-8 ローラカッタによる切断状況 3.1.3(2)-7
- 図 3.1.3(2)-9 切断したカプセルの切り口 3.1.3(2)-8

【3.1.3(3)】 MHI

- 図 3.1.3(3)-1 試料及び測定位置(参考) 3.1.3(3)-5
- 図 3.1.3(3)-2 MoO₃X 線回析プロファイル 3.1.3(3)-6
- 図 3.1.3(3)-3 処理プロセスフロー 3.1.3(3)-8
- 図 3.1.3(3)-4 機器フローシート 3.1.3(3)-8
- 図 3.1.3(3)-5 溶解槽容量模擬試験 3.1.3(3)-9
- 図 3.1.3(3)-6 溶解槽概略設計図 3.1.3(3)-9
- 図 3.1.3(3)-7 照射後 MoO₃ の Ge 半導体検出器測定結果 3.1.3(3)-10
- 図 3.1.3(3)-8 Mo 溶液及び Tc-99m 溶液の Ge 半導体検出器測定結果 3.1.3(3)-10
- 図 3.1.3(3)-9 不溶性残渣除去フィルター 3.1.3(3)-10

【3.1.4(1)】

- 図 3.1.4(1)-1 Mo-98 回収プロセス 3.1.4(1)-6

【3.1.4(2)】 JAEA

- 図 3.1.4(2)-1 PWR における Mo-99/Tc-99m 製造の基本フロー(例) 3.1.4(2)-9
- 図 3.1.4(2)-2 薬価に占める Mo-99 溶液の製造コスト割合(テクネシチ注(285円/10MBq)の薬価を基準) 3.1.4(2)-9

【3.1.5】 MHI

図 3.1.5-1 全体スキーム案	3.1.5-4
-------------------	---------

【3.2.3】 都市大

図 3.2.3-1 Ra-226(3n, 2β)パス	3.2-14
図 3.2.3-2 Th-230(3n, α2β)パス	3.2-14
図 3.2.3-3 解析に用いた 17×17 型燃料集合体の燃料配置図	3.2-15
図 3.2.3-4 核解析に用いた燃料集合体装荷パターン	3.2-15
図 3.2.3-5 燃料集合体内の燃料ピンと Gd 添加燃料ピンの配置	3.2-16
図 3.2.3-6 プラギングデバイスと PWR へのターゲット装荷方法	3.2-17
図 3.2.3-7 燃料集合体内の Ra-226/Th-230 単体ターゲット配置	3.2-18
図 3.2.3-8 Ra-226/Th-230 単体ターゲットを装荷した集合体の炉心内配置	3.2-18
図 3.2.3-9 案内管内の体系図	3.2-19
図 3.2.3-10 ターゲットピン(半径 0.2 cm)径方向の温度分布	3.2-19
図 3.2.3-11 ターゲットピン(半径 0.3 cm)径方向の温度分布	3.2-20
図 3.2.3-12 案内管内円環部の圧力損失(ターゲット半径 0.2 cm)	3.2-21
図 3.2.3-13 案内管内円環部の圧力損失(ターゲット半径 0.3 cm)	3.2-21
図 3.2.3-14 案内管出口の冷却材温度(ターゲット半径 0.2 cm)	3.2-22
図 3.2.3-15 案内管出口の冷却材温度(ターゲット半径 0.3 cm)	3.2-22
図 3.2.3-16 ターゲット条件サーベイ結果(ターゲット半径 0.2cm)	3.2-23
図 3.2.3-17 ターゲット条件サーベイ結果(ターゲット半径 0.3cm)	3.2-23
図 3.2.3-18 燃料集合体内の Th-232 混合ターゲットピン配置	3.2-24
図 3.2.3-19 Th-232 混合ターゲット集合体の炉心内配置	3.2-24
図 3.2.3-20 Ra-226(1g)/Th-230 単体ターゲットの ²²⁹ 生成量	3.2-25
図 3.2.3-21 Th-232 混合ターゲットの ²²⁹ 生成量	3.2-26
図 3.2.3-22 Th-232 からの ²²⁹ 生成パス	3.2-26
図 3.2.3-23 Th-232/Th-230 比率と ²²⁹ 生成量の相関評価に用いた 集合体及びターゲット集合体の体系図	3.2-27
図 3.2.3-24 Th-232/Th-230 比率と ²²⁹ 生成量の相関	3.2-28
図 3.2.3-25 Th-229 から 30 日毎に Ac-225 をミルキングする際の 年間 Ac-225 総量	3.2-29
図 3.2.3-26 ターゲットの発熱量及び、比発熱量	3.2-30
図 3.2.3-27 ターゲットの燃焼度	3.2-31
図 3.2.3-28 Th-232 混合ターゲットの U-233 生成量	3.2-32

【3.3.1(5)】 JAEA-JOYO

図 3.3.1(5)-1 トータルモンテカルロ法に基づく解析フロー	3.3.1-2
図 3.3.1(5)-2 解析体系図	3.3.1-3

【3.3.4】 JAEA-JOYO

- 図 3.3.4-1 照射キャプセルの構造案 3.3.4-2
- 図 3.3.4-2 Mo-99/Tc-99m 製造に向けた照射工程(暫定) 3.3.4-3

【3.4.3(5)】 JOYO

- 図 3.4.3(5)-1 トータルモンテカルロ法に基づく解析フロー 3.4.3-2

【3.4.4】 原科研

- 図 3.4.4-1 抽出剤 TODGA (a) と HDEHP (b) の化学構造 3.4.4-5
- 図 3.4.4-2 吸着・溶離試験の装置 3.4.4-5
- 図 3.4.4-3 吸着・溶離試験の手順 3.4.4-6
- 図 3.4.4-4 Ln レジンへの吸着率[a]と溶離率[b]の硝酸濃度依存性 3.4.4-6
- 図 3.4.4-5 Ba 精製のプロセス 3.4.4-7
- 図 3.4.4-6 MnO₂ レジンの溶離率の硝酸濃度依存性 3.4.4-7
- 図 3.4.4-7 Ba の破過曲線 3.4.4-8
- 図 3.4.4-8 提案される Ac-225 精製プロセスと Ra-226 の再利用プロセス 3.4.4-8
- 図 3.4.4-9 DGA レジン(a)及び Ln レジン(b)の試料・分離液分画と溶離液分画中の
αスペクトル 3.4.4-9

【3.4.5】 JOYO

- 図 3.4.5(2)-1 照射キャプセルの構造案 3.4.5-4
- 図 3.4.5(2)-2 Ac-225 製造に向けた照射工程(暫定) 3.4.5-5

略語一覧

PWR	: Pressurized Water Reactor	(加圧水型軽水炉)
ECT	: Eddy Current Test	(渦電流探傷試験)
炉規法	: 核原料物質、核燃料物質、及び原子炉の規制に関する法律	
RI 法	: 放射性同位元素等の規制に関する法律	
JMTR	: Japan Material Testing Reactor	(材料試験炉)
HIP	: Hot Isostatic Pressing	(熱間等方圧加圧法)
SPS	: Spark Plasma Sintering	(放電プラズマ焼結法)
RI	: Radioisotope	(放射性同位元素)
%T. D.	: Theoretical Density	(理論密度)
atom%	: atomic percentage	(原子百分率、原子濃度)
wt%	: weight percent	(重量百分率、重量パーセント)
PIE	: Post Irradiation Experiment	(照射後試験)
DGA レジン	: N,N,N',N'-tetra-n-octyldiglycolamide を抽出剤とする抽出クロマトグラフィー樹脂	
k-eff	: effective multiplication factor	(実効増倍率)
HEU	: High Enriched Uranium	(高濃縮ウラン)
IRAF	: Irradiation Rig Assembling Facility	(照射装置組立検査施設)
FMF	: Fuel Monitoring Facility	(射集合体試験施設)
EFPY	: Effective Full Power Year	(全出力換算年)
EFPD	: Effective Full Power Day	(全出力換算日)
MEK	: methyl ethyle keton	(メチルエチルケトン)
AVLIS	: Atomic Vapor Laser Isotope Separation	(レーザー同位体分離)
MHI	: 三菱重工業株式会社	
NucMed	: 日本医用アイソトープ株式会社	
JAEA	: 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	
金沢大学	: 国立大学法人 金沢大学	

概略

本研究では、診断用の RI として最も需要の高い Mo/Tc と α 内用療法向け短寿命 α 核種として近年その有用性が注目されている Ac-225 の 2 核種の生成と供給を行う国内自給技術の検討により既存炉・次世代高速炉の運用に係る研究開発を行う。具体的には、照射ターゲットと炉心条件の検討、照射済試料からの RI 分離抽出、再利用方法などの検討により、新型原子炉の概念設計に資する研究開発を行うとともに新型炉を含んだ原子炉の二次的利用としての RI 製造というイノベーションと原子炉に対する社会受容の改善を目指す。

研究成果を項目ごとに以下に示す。

(1) Mo-99製造プロセスの軽水炉(PWR)への適用性検討

① 医用Mo-99製造条件の設定（再委託先：NucMed）

需要側（医薬品メーカー）と供給側（Mo生産業者）で取合い条件を協議・設定した。

② PWR用Mo照射ターゲットの開発

1) PWR炉特性、基本設計及び試作(再委託先：MHI)

PWRを用いたMo-99製造技術に関し、PWRの炉特性を生かし、製造効率の良い照射ターゲットの設計検討を行った。一部の検討では、MoO₃ペレット特性及び照射温度の特性の評価を行うとともに、照射ターゲットの挿入性を実証するための試作品を製作し、管への挿入にかかる荷重計測を行った。

2) 特性評価（再委託先：JAEA）

照射ターゲットの設計のため、カプセル型照射ターゲット及びチューブ型照射カプセルに直目し、基本仕様の決定に資するための特性評価を行った。PWR炉で照射を行うに当たって様々なプロセスで求められる照射ターゲットの特性評価を、机上検討を中心に行った。

③ Mo-99供給プロセスの開発

1) 概念設計（再委託先：MHI）

照射ターゲットとなるMoO₃を照射したのちに発生する放射性核種について解析計算を実施し、医薬品としての不純物の基準値と照らし合せ、基準値を超える不純物を特定した。特定した不純物について、その除去方法について整理した。令和3年度までに検討したプロセスフローの見直しを実施した。2つの製法で試作した高密度MoO₃焼結体(HIP法及びSPS法)について、製法の違いによるペレット内の残留応力の分布の違いを観測し、形成加工時の割れ等に影響を及ぼす可能性が示唆された。

2) 許認可に基づく妥当性検討(再委託先：JAEA)

PWRで照射したMoO₃試料を取出し、医薬品メーカーに供給するためのプロセスの構築について、許認可に基づく妥当性の検討を行った。

本プロセスの確立にあたっては、法体系に基づいた取合い条件を調査し、施設の概念検討をまとめるとともにPWRでRIを製造する場合の法的要件をまとめた。

3) 開封装置の概念設計（再委託先：MHI）

PWRで照射したMoO₃試料を取出し、医薬品メーカーに供給するためのプロセスの構築について、令和3年度までの検討結果を踏まえ、供給プロセス施設の検討結果を整理した。

4) 処理装置の概念設計(再委託先：JAEA)

小径の高密度MoO₃ペレットへの加工性向上の検討のため、HIP法で製作したMoO₃焼結体の残留応力を評価した。これまでの試験結果を踏まえ、医薬品メーカーに供給するためのMo溶液処理装置の概略仕様をまとめた。照射済MoO₃ペレットを溶解するためのMo処理装置について、溶解プロセスと不純物除去プロセスの2つの機能を有する装置とすることにより、実用性の可能性を得るとともに、実機装置の概略寸法を決定した。

④Mo-98回収プロセスの開発

1) 概念設計(再委託先：MHI)

医薬品メーカーから返却される使用済Mo吸着体から、照射ターゲットに使用するMoO₃粉末として回収するプロセスの構築に向け、回収プロセス施設の検討を行った。Mo吸着体からのMo回収試験の結果に基づいて、令和3年度までに検討したプロセスフローの見直しを実施した。また、天然同位体のMoO₃を使用した場合の生成量とMo-98を98%濃縮した場合の生成量を解析計算にて算出した。

2) 使用済Mo溶液からのMo-98回収(再委託先：JAEA)

予備試験として、天然同位体比のMo試料を用いて、高い回収率が達成できる回収方法を構築し、薬品メーカーから返却される使用済Mo溶液から、照射ターゲットに使用する三酸化モリブデン(MoO₃)として回収するプロセス仕様を確立した。

医療機関での使用済みMo吸着体のリサイクル量の評価及びMoを分離回収してMoO₃ペレットとして再利用するプロセスの基本概念を策定した。

3) 回収設備の検討(再委託先：JAEA)

Mo-98を再利用することを考慮した特性試験を実施し、回収装置の概念検討を行った。

4) コスト評価(再委託先：JAEA)

医薬品メーカーから返却される使用済Mo吸着体を想定し、照射ターゲットに使用するMoO₃粉末として回収するプロセスの特性結果から、回収プロセスのコスト評価を行い、天然同位体のMoO₃を使用した場合との比較を行い、その実現性の評価を行った。令和3年度の概念プロセスに基づいた予備試験及び生成量解析結果により、実際にMoを吸着させた吸着剤(Al₂O₃)からのMoO₃粉末の回収率が90%以上を有することを実証した。本結果に基づき、濃縮MoO₃原料は天然MoO₃原料より高価であるが、本回収プロセスの導入により、最終製品である単位放射能当たりのTc-99m製造費の低減に見通しが得られ、実現性が高いことを確認した。

⑤全体スキームの検討(再委託先：MHI)

令和3年度までの成果を基に、PWRを用いた医用Mo-99製造の全体スキームの適用性評価を行い、RI製造にかかわる許認可等の課題をまとめその実現性見通しを整理した。従来、医療機関からの発注により海外からの輸入品が供給されていたが、国内での生産に際して必要となる機能として生産計画・営業を営む事業体を創設し、事業体がビジネス全体を調整する全体スキームを検討した。また、Mo-99供給プロセスの確立にあたり、炉心安全や施設全体の

安全対策へ影響する事項対応を踏まえた、法体系に基づいた取り合い条件について調査し、全体スキームの実現性見通し及び課題を整理した。

(2) 軽水炉でのAc-225製造

①ターゲット核選定と核変換パスの検討

軽水炉(PWR)照射環境でAc-225を生成するための、照射ターゲット核種とその核変換パスについて検討し、効率的なAc-225生成法を検討した。照射ターゲット核種としてRa-226とTh-230の2核種を選定し、軽水炉においては、Ra-226($3n, 2\beta$)、Th-230($3n, \alpha 2\beta$)の生成パスが有効であることを明らかにした。

②最適照射条件や生成量の評価

装荷位置や中性子スペクトルの違いによるAc-225生成特性評価を行い、純度の高いAc-225を効率的に生成するための最適照射条件や生成量の評価を行った。照射条件最適化として、ターゲットピン径の細径化、周辺燃料ピン(8本)除去による水体積比の増大を検討した結果、Ac-225生成チェーンに存在する重核種の(n, γ)断面積の増大、及び熱中性子束の増大効果により、Ac-225生成が効率化されることを確認した。

③安全性・運転性への影響評価

令和2年度、令和3年度で得た知見を基に、令和4年度は、少量もしくは大量のターゲット核種(原料核種)の燃料集合体への装荷方法、ターゲットを装荷した燃料集合体の炉心内配置、ターゲット核種(Ra-226、Th-230、Th-232)の燃焼に伴う発熱量増大や除熱を考慮したターゲット仕様設定、臨界性や安全係数(ドブプラー係数、ボイド係数)の影響を評価することにより、原子炉運転や安全確保の観点からPWRにおけるAc-225生成の実施可能性を評価した。

(3) 高速炉(「常陽」)でのMo-99製造

① 最適な照射場の設置(都市大、再委託先: JAEA)

1) 炉心検討

常陽で実現可能な、中低速中性子照射場を設置する炉心構成を検討した。中低速中性子照射場を設置する炉心の炉心構成を検討し、候補の炉心を決定し、この炉心構成に基づき、詳細解析用のモンテカルロ法用の入力ファイルを作成し、試計算を完了した。また、炉心構成検討、中低速中性子照射場設置場所検討の効率化のため、並列計算機を導入し、効率的な評価が可能な解析環境を構築した。

減速集合体仕様を受けて、炉心構成を最適化した。検討された減速集合体仕様を用いて令和2年度検討した炉心構成、減速集合体装荷位置・減速集合体数でパラメータサーベイをし、最も効率的な炉心構成を確認した。

令和3年度までの検討結果を踏まえ、「常陽」減速場におけるMo-99の製造量の最確値の予測及びその不確かさを評価した。製造量の不確かさ評価のためのトータルモンテカルロ法に基づく解析コードを作成し、最確値の製造量及びその不確かさを評価した。

2) 減速集合体仕様検討

令和2年度に解析準備を行い、令和3年度は令和2年度に検討した炉心構成において、減

速集合体の減速材種類、充填割合等の仕様を検討した。また、減速集合体仕様を受けて、炉心構成を最適化した。減速集合体材料として、Be、Al 及び Graphite で、Mo-99 の核変換率の比較を行った結果、Be>Graphite>Al の順で多いことが分かった。また、ターゲットと混合させる YD₂ 減速材の中性子減速効果は小さく、核変換率向上に有効でないことが分かった。

②減速集合体等の設計（再委託先：JAEA）

1) 減速集合体設計

令和 2 年度は減速集合体の予備検討を実施した。令和 3 年度には 7 ピン型（遮蔽集合体と同構造）、六角型（外側反射体に似た構造）、1 ピン型（Sb-Be 中性子源受入集合体）の構造成立性を検討し、所定の減速材充填率に合わせて減速材の形状を調整することにより、目標とする減速性能を確保することができることを確認した。また、減速材の種類については、「常陽」の許可範囲においてはベリリウム（Be）と水素化ジルコニウム（ZrH_{1.65}）が使用可能、その他 Graphite、Al、YD₂ を検討したが、Be が最適であると結論付けている。充填割合に対する Mo-98(n, γ) 反応率は上に凸の形状で 60~80 %で極大を持つ傾向であった。これを踏まえ、Be の冷却性、アンチモン-ベリリウム中性子源の γ 線源であるアンチモンを装填した棒を受け入れる受け皿集合体として円環構造の被覆管付き Be の使用実績があることから、中性子源集合体の構造を基本として、充填割合を内部ナトリウム流路の半径すなわち、内側被覆管の内径で調整することとして構造仕様を決定した。

2) 照射試験集合体設計

a) 照射キャプセル概念設計

照射キャプセルの設計を検討した。製造する Mo-99 は半減期が約 2.6 日と短いため、集合体、キャプセルを迅速に取り出して MoO₃ の化学処理を行う必要がある。このため、照射キャプセルの構造を設計した。

b) 集合体設計

ターゲット照射用集合体及びターゲットピンの概略仕様を決定した。ターゲット照射用集合体タイプは「C 型照射燃料集合体」、試験ピンは外径 8.5 mm、被覆管厚み 0.5 mm の太径試験ピンに設定した。

③照射後試料の取扱手法確立

1) 試料取出し・払出工程の検討

照射後試験（PIE）におけるセル内での解体、グローブボックスからの払出しの迅速化を検討した。集合体を解体するまでの作業にあたっては、セル内の集合体移動に従来の実績から約 5 時間を要する見込みであったが、セル内での移送経路を最適化し、1 時間程度に短縮できる見込みを得た。また、取り出したキャプセルをグローブボックスへ搬出する作業も最適化の余地を確認している。グローブボックス内作業（化学処理工程を除く）については時間短縮の余地はなかった。

試料取出し・払出行程の検討として、照射リグの構造を踏まえ、遠隔解体の確認及びキャプセルの取扱検討を行った。照射リグの構造としては、コンパートメントを交換できるシャトル型リグと呼ばれるハンドリグヘッドなどを溶接ではなくネジ接合にした構造を採用し、表面汚染密度の制限と管理、ねじ等に関してトルク制限と管理をすることで、セル内で遠隔でターゲットピンの取出し、ターゲットピンに装填される Mo 装荷用キャプセルを

迅速にできることを確認した。

内側キャプセルの取り扱い以降をグローブボックス（GB）で実施することとし、キャプセルの解体性向上、パイプカッター等の切削紛のコンタミを極力抑えた手法で解体することで迅速かつコンタミネーションを防止することで、化学処理工程へ迅速に払い出せることを確認した。内側キャプセル開封用 GB、化学処理用 GB、検査・払い出し用 GB を準備することで、迅速な払い出しができることを確認した。

2) 解体用治具製作

解体のためのコンパートメントやキャプセルについて検討し、事前に解体方法や荷姿の詳細を確認の上、治具の事前準備が必要であることが分かった。

3) 搬出用GB等検討

搬出用グローブボックスの概念設計を実施した。

4) 取扱試験

コールド試験の準備として必要な資材の準備を行った。グローブボックスについては、令和 2 年の検討をもとに過去の実績の確認を行い、必要な作業、除染資材について検討を行った。

④「常陽」での照射試験立案（再委託先：JAEA）

照射試験計画を立案した。「常陽」運転再開後の実証試験実施に向けた作業項目、工程を具体化し、実施計画書を作成した。

(4) 高速炉（「常陽」）でのAc-225製造

① 医用Ac-225製造条件の設定（再委託先：金沢大学）

需要側（医師、薬剤師）と供給側（Ac-225 製造）で取り合い条件を協議・設定した。Ac-225の各生成法において想定される不純物について、医療用途への適用を前提とした確認を行い、実用性の高い生成法を明らかにした。

令和3年度までの検討結果を踏まえ医用Ac-225の薬剤化の検討を行った。原子炉で製造されたAc-225の研究開発・医用利用の普及を図るためには、原薬としてのAc-225を製造する事業者がDMF（日本における原薬等）登録を行うことが最適であると考えられた。

②Ac-225市場予測（再委託先：NucMed）

国内外の環境変化に合わせ、Ac-225の国内外の市場調査と市場予測を更新した。医薬品原料としてのAc-225を量的な制限なく安定的に供給できるという前提において、前立腺がんの適応を持つAc-225医薬品の日本国内のピーク時売上は、少なくとも100億円程度となるものと推計された。また、神経内分泌腫瘍についてはその半分程度、肺がんについてはこの4倍程度の市場規模となる可能性がある。なお、世界市場の規模は日本市場の10倍程度を見込むことができる。

③最適な照射場の設置（再委託先：JAEA）

1) 炉心検討

Ra-226照射直接生成法、Th-230照射間接生成法（Th-229/Ac-225ジェネレータ法）を利用するのに適した炉心構成を検討し、候補の炉心を決定した。

検討された照射試験用集合体仕様を用いて令和2年度検討した炉心構成と同様に

パラメータサーベイをし、最も効率的な炉心構成を確認した。令和3年度までの検討結果及び②の市場予測を踏まえ、「常陽」炉心中心におけるAc-225の製造量の最確値の予測及びその不確かさを評価した。製造量の不確かさ評価のためのトータルモンテカルロ法に基づく解析コードを作成し、「常陽」におけるAc-225製造量の評価を行い、不確かさを考慮しても市場予測を踏まえた医療ニーズ（製造量・頒布回数）を一定程度満足できる見通しを得た。

2) 照射試験集合体仕様検討

1)の炉心構成に基づき、詳細解析用のモンテカルロ法用の入力ファイルを作成し、試算を完了した。常陽でのAc-225製造に適した集合体仕様を検討するための解析環境、入力データの整備を行った。令和2年度に検討した炉心構成において、Ra-226照射直接生成法、Th-230照射間接生成法（Th-229/Ac-225ジェネレータ法）を利用するのに適した照射試験用集合体の構造を最適化した。減速集合体材料として、Be、Al及びGraphiteで、Ac-225の親核であるTh-229の核変換率の比較を行った結果、Be>Graphite>Alの順で多く、またターゲットと混合させるYD₂減速材の増加に伴い、核変換率向上の傾向が見られ、Ac-225生成には減速材の利用が有効であることが分かった。

④照射済みRa-226からのAc分離、Ra-226再利用（再委託先：JAEA）

1) Ac回収

Ra-226からのAc回収プロセス構築のため、Ra及びAcの溶液内挙動の特性を調査した。これまでに分離に適用された手法、分離試薬の実施例を文献調査した。JAEAに保管しているRa-226線源を利用するために必要なRa分離・精製法の検討を行うとともに、必要な装置等を整備した。

AcとRaの効率的な分離・抽出方法の検討として、代替核種を用いて要素試験を実施し、Acの回収率とRa除去を両立するプロセスの検討を行った。

Ac、Raの他、照射によりRaターゲット中に生成が予想される元素について、代替元素を用いてDGAレジンへの吸着・溶離挙動を調べた。Acの代替として用いたLaの吸着挙動から、DGAレジンカラムはAcの単離に有効であり、Ac精製プロセスに適用可能であることが分かった。トレーサー量のAc-225を用いたホット実証試験を実施し、DGAレジンカラムのAc精製プロセスへの適用性を確認した。

2) Ra-226再利用

Ra-226の再利用のための分離条件を確認する代替元素によるコールド試験を行うとともに、Ac/Ra分離条件を確認するためのトレーサー量のホット要素試験実証試験を行った。回収プロセスの技術的な成立性を確認し、子孫核種による汚染・漏洩対策を検討した。Ac、Raの他、照射によりRaターゲット中に生成が予想される元素について代替元素を用いてLnレジンへの吸着・溶離挙動を調べ、LnレジンがRaの再利用プロセスに適用可能であることが分かった。トレーサー量のホット実証試験により、AcとRaの分離を確認した。

⑤「常陽」での照射試験計画立案（再委託先：JAEA）

核変換率測定、実証のための照射試験計画、照射後試験計画を策定した。また、照射試験の実施に必要な許認可項目等を明らかにした。令和3年度までの検討結果を踏まえ実証試験に

係る照射試験計画を立案した。照射試験の実施に必要なRI変更申請書案を作成し、「常陽」運転再開後の実証試験実施に向けた作業項目、工程を具体化し、実施計画書を作成した。

(5) 原子炉で生成される医用RIの品質と普及についての検討（再委託先：金沢大学）

① Ac-225の使用・普及に係る諸問題の解決

1) 生物学的安全性の評価及び薬事関連法令上の取扱い

原子炉でAc-225生成を行う際に不純物として混入するAc-227等の薬事関連法令上の取扱いについて、関係行政機関、関係団体等と協議し、適切な規制体系について明確化した。

2) 医療関連法令上の取扱い及び普及に関する問題の解決

海外での先行事例を参考に、Ac-225を用いた放射性医薬品の医療法上の取扱いについて整理し、処理手順を検討した。

3) 廃棄に係る諸問題の解決

規制の整理として、放射性同位元素の廃棄に際してのクリアランスや適切な処理方法について明確化した。

令和3年度の成果を踏まえ、関係行政機関、関係団体等と協議し、廃棄物の適切な処理方法について明確化した。廃棄物は、購入又は製造時に a) 生体に投与できる程度の純度があるもの、b) 「ウラン・トリウム・プルトニウム及びそれらの化合物」を含まない場合に限り、RI法に基づく廃棄の委託が認められるとの結論が得られた。

② Mo-99及びTc-99mの既存の医薬品との同等性評価

$^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ によって生成されるMo-99において想定される放射化学的純度等について、海外において生成されるものとの同等性等を確認することにより、ヒトに用いる際の生物学的安全性について評価した。

(6) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、核医学界や医薬品業界から広く意見を聴きながら研究を進めた。

プロジェクトの円滑な進行を実現するために委託先と定期的にWeb会合を開催し、進捗状況の確認と問題点の議論を行った。また2回の核医学・工学シンポジウム及び原子力システム研究開発事業講演会を開催するとともに、これまでの成果を日本原子力学会「2022年春の年会」及び「2022年秋の大会」でシリーズ発表した。

また月刊エネルギーレビュー令和4年10月号に特集「医療用放射性物質の国産化、供給途絶リスクの回避を目指して全量輸入依存からの脱却を図る」というタイトルで本研究を紹介、さらに、令和5年2月に南アフリカで開催されたTAT(Targeted Alpha Therapy) 12th国際シンポジウムでポスター発表し、本研究開発を精力的に進めていることを国内、海外の様々な分野の方々にも広く示すことができた。

(7) 今後の課題、展望

3年間の研究を経て、1基のPWRもしくは高速実験炉「常陽」を用い、診断用のMo/Tcを現在の国内需要量(1000Ci/週)の半分程度生成すること、そして α 内用療

法向けAc-225を現全世界供給量(約2Ci/年)の半分程度生成することについて技術的見通しを得た。原子炉は大きな照射領域を備えており、すぐれた除熱性能を有するため、炉心性能を損なうことなく、エネルギー生産の傍ら医用RIを製造できるポテンシャルがある。

Mo/Tc 生成用に検討した計装管を用いたターゲット出し入れ機構は、Mo/Tc 以外の短寿命RI 生成にも活用可能であり、多様なRI 製造への応用が期待される。Ac-225 の需要量は今後大きく増大することが考えられるが、原料となる Ra-226 は希少であるため、持続的な安定供給に対応するには、Ra の調達や代替原料の開発が課題となる。本研究では代替原料として Th-230 を検討したが、これには大量の Th-232 が伴うため、そのまま照射すると核物質である U-233 が生成され核不拡散上の懸念となる。これを回避するには Th-230 の同位体分離が必要であり、新たな技術開発要素となる。

このように発電炉で RI 製造を行うためには、炉規法が定める要求事項を阻害しないことを示した上でRI 製造装置としての認可を受けること、RI 法についても製造時の被ばくリスクの低減措置など、発電炉を用いる際に満たすべき要求事項が下位規定にて新たに求められるものと考えられる。

1. はじめに

我が国で利用されている医用RIはほぼ全量を輸入に依存している。そのため、製造所や輸送中のトラブル、自然災害、紛争、パンデミック感染症等により、RIの医学利用や関連する研究・開発に支障をきたすことがあり、医用RIセキュリティー(安定確保・供給)の強化が望まれている。また新たな悪性腫瘍の治療法として近年注目されている「 α 内用療法」向け短寿命 α 線源へのニーズも急速に高まっている。

本研究では、放射性医薬品の基礎研究や臨床応用を行う医学分野、実験用研究炉を有する原子力研究機関、PWR設計・製造を行うメーカ及び核変換技術研究で実績のある大学の専門家が連携し、国内で既に設置されている商用炉や研究炉(具体的には商用PWR及び高速実験炉常陽)を用いて、診断用のRIとして最も需要の高いMo/Tcと α 内用療法向け短寿命 α 核種として近年その有用性が注目されているAc-225の2核種の生成と供給を行う国内自給技術の検討により既存炉・次世代高速炉の運用に係る研究開発を行う。具体的には、照射ターゲットと炉心条件の検討、照射済試料からのRI分離抽出、再利用方法などの検討により、新型原子炉の概念設計に資する研究開発を行うとともに新型炉を含んだ原子炉の二次的利用としてのRI製造というイノベーションと原子炉に対する社会受容の改善を目指す。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全期間を通じた研究実施計画及び令和4年度の研究実施計画図を図2.1-1及び図2.1-2に示す。

図2.1-1 全期間を通じた研究実施計画 (1/3)

項目	年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度
(1) Mo-99製造プロセスの軽水炉(PWR)への適用性検討(再委託先: NucMed、JAEA、MHI)				
① 医用Mo-99製造条件の設定(NucMed)		条件設定		
② PWR用Mo照射ターゲットの開発			概念設計・詳細設計・中性子照射試験の策定	
1) PWR炉特性、基本設計及び試作(MHI)		仕様検討		
a) 照射場評価			概念設計	詳細設計
b) 設計				要素試験準備
c) 要素試験準備				
2) 特性評価(JAEA)		特性試験	特性試験	
a) 要素試験/特性試験				
③ Mo-99供給プロセスの開発				
1) 概念設計(MHI)		概念検討	供給プロセス	施設の検討
2) 許認可に基づく妥当性検討(JAEA)		法体系の調査	許認可に基づく妥当性検討	
3) 開封装置の概念設計(MHI)			開封装置概念検討	開封装置概念設計
4) 処理装置の概念設計(JAEA)			処理装置概念検討	処理装置概念設計
④ Mo-98回収プロセスの開発				
1) 概念設計(MHI)		概念検討	回収プロセス	施設の検討
2) 使用済Mo溶液からのM-98回収(JAEA)		特性試験	特性試験	
3) 回収設備の検討(JAEA)			回収設備基本設計	
4) コスト評価(JAEA)				コスト評価
⑤ 全体スキームの検討(MHI)				評価結果のまとめ
(2) 軽水炉でのAc-225製造				
① ターゲット核選定と核変換パスの検討		ターゲット核選定と核変換パスの検討		
② 最適照射条件や生成量の評価			最適照射条件や生成量の評価	
③ 安全性・運転性への影響評価				安全性・運転性への影響評価

図 2.1-1 全期間を通じた研究実施計画 (2/3)

年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度
項目 (3) 高速炉（「常陽」）でのMo-99製造（Joyo、FMF） ① 最適な照射場の設置（都市大、JAEA：Joyo） 1) 炉心検討 2) 減速集合体仕様検討 ② 減速集合体等の設計（JAEA：Joyo） 1) 減速集合体設計 2) 照射試験集合体設計 a) キャプセル設計 b) 集合体設計 ③ 照射後試料の取扱手法確立（JAEA：Joyo、FMF） 1) 試料取出し・払出工程の検討 2) 解体用治具製作 3) 搬出用GB等検討 4) 取扱試験 ④ 「常陽」での照射試験計画立案（JAEA：Joyo）	炉心構成検討 解析準備 準備 キャプセル設計 集合体概念検討 既存工程整理 準備 準備 準備	炉心構成最適化 試験集合体仕様検討 減速集合体概念設計 キャプセル設計 集合体概念設計 迅速化工程検討 グローブボックス概念設計 資機材等準備 許認可性検討	製造量評価 市場予測 製造量評価 要素試験(ホット) 要素試験(コールド、ホット) 照射試験計画立案 照射試験計画立案
(4) 高速炉（「常陽」）でのAc-225製造（Joyo、原科部門、金沢大、NucMed） ① 医用Ac-225製造条件の設定（金沢大） ② Ac-225市場予測（NucMed） ③ 最適な照射場の設置（都市大、JAEA：Joyo） 1) 炉心検討 2) 照射試験集合体仕様検討 ④ 照射済みRa-226からのAc分離、Ra-226再利用（JAEA：原科研） 1) Ac回収 2) Ra-226再利用 ⑤ 「常陽」での照射試験計画立案（JAEA：Joyo）	条件設定 市場調査 炉心構成検討 解析準備 文献調査、準備	法令・環境検討 要素試験(コールド) 照射試験計画検討	薬剤化検討 市場予測 製造量評価 要素試験(ホット) 要素試験(コールド、ホット) 照射試験計画検討

図 2.1-1 全期間を通じた研究実施計画 (3/3)

年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度
項目			
(5) 原子炉で生成される医用RIの品質と普及についての検討(金沢大)			
①Ac-225の使用・普及に係る諸問題の解決			
1) 生物学的安全性の評価及び薬事関連法令上の取扱い	規制の整理		
2) 医療関連法令上の取扱い及び普及に関する問題の解決	規制の整理	処理手順の検討	
3) 廃棄に係る諸問題の解決	規制の整理		処理手順の明確化
②Mo-99及びTc-99mの既存の医薬品との同等性評価		生物学的安全性の検討	
(6) 研究推進			

図 2.1-2 令和4年度研究実施計画

題目 令和4年度「国内の原子カインフラを活用した医用RIの自給技術確立に向けた研究開発」 月別年間計画													
実施日程		4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
(1)	Mo-99製造プロセスの軽水炉(PWR)への適用性検討	供給プロセス施設の検討結果整理・開封装置の概念設計・残留応力評価・処理装置概略仕様まとめ											
	① Mo-99供給プロセスの開発 (再委託先：三菱重工、原子力機構)												
	1) 概念設計(再委託先：三菱重工)												
	2) 開封装置の概念設計(再委託先：三菱重工)												
	3) 処理装置の概念設計(再委託先：原子力機構)												
	② Mo-98回収プロセスの開発 (再委託先：三菱重工、原子力機構)	改修プロセス施設の検討・回収プロセスのコスト評価・実現性評価											
	1) 概念設計(再委託先：三菱重工)												
	2) コスト評価(再委託先：原子力機構)												
	③ 全体スキームの検討 (再委託先：三菱重工)	適用性評価・実現見直し整理											
(2)	軽水炉でのAc-225製造	発電事業への影響評価・実現可能性評価											
	①安全性・運転性への影響評価												
(3)	高速炉(「常陽」)でのMo-99製造 (再委託先：原子力機構)	製造量最確値予測と不確かさの評価											
	① 最適な照射場の設置	遠隔解体確認・キャプセル取扱検討											
	② 照射後試料の取扱手法確立	照射試験計画立案											
	③ 「常陽」での照射試験計画立案												
(4)	高速炉(「常陽」)でのAc-225製造	薬剤化検討											
	①医用Ac-225製造条件の設定 (再委託先：金沢大学)	市場調査・市場予測											
	②Ac-225市場予測 (再委託先：NucMed)	製造量最確値予測と不確かさの評価											
	③最適な照射場の設置 (再委託先：原子力機構)	コールド試験・ホット要素実証試験・成立性確認・汚染・漏洩対策の検討											
	④照射済みRa-226からのAc分離、Ra-226再利用 (再委託先：原子力機構)	照射試験計画立案											
	⑤「常陽」での照射試験計画立案 (再委託先：原子力機構)												
(5)	原子炉で生成される医用RIの品質と普及についての検討(再委託先：金沢大学)	廃棄物の適切な処理方法の明確化											
	①Ac-225の使用・普及に係る諸問題の解決												
	1) 廃棄に係る諸問題の解決												
(6)	研究推進												

2.2 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法

(1) Mo-99製造プロセスの軽水炉(PWR)への適用性検討

① Mo-99供給プロセスの開発

1) 概念設計(再委託先：MHI)

2) 開封装置の概念設計(再委託先：MHI)

PWRで照射したMoO₃試料を取出し、医薬品メーカーに供給するためのプロセスの構築について、令和3年度までの検討結果を踏まえ、供給プロセス施設の検討結果を整理する。また、令和3年度の検討結果を踏まえ開封装置概念設計を行う。

3) 処理装置の概念設計(再委託先：JAEA)

小径の高密度MoO₃ペレットへの加工性向上の検討のため、HIP法で製作したMoO₃焼結体の残留応力を評価する。また、これまでの試験結果を踏まえ、医薬品メーカーに供給するためのMo溶液処理装置の概略仕様をまとめる。

② Mo-98回収プロセスの開発

1) 概念設計(再委託先：MHI)

医薬品メーカーから返却される使用済Mo吸着体から、照射ターゲットに使用するMoO₃粉末として回収するプロセスの構築に向け、回収プロセス施設の検討を行う。

2) コスト評価(再委託先：JAEA)

医薬品メーカーから返却される使用済Mo吸着体を想定し、照射ターゲットに使用するMoO₃粉末として回収するプロセスの特性結果から、回収プロセスのコスト評価を行い、天然同位体のMoO₃を使用した場合との比較を行い、その実現性の評価を行う。

③ 全体スキームの検討(再委託先：MHI)

令和3年度までの成果を基に、PWRを用いた医用Mo-99製造の全体スキームの適用性評価を行い、RI製造にかかわる許認可等の課題をまとめその実現性見通しを整理する。

(2) 軽水炉でのAc-225製造

① 安全性・運転性への影響評価

原子力発電事業への影響を原子炉運転と安全確保の視点から評価し、軽水炉によるAc-225生成の実施可能性を評価する。

(3) 高速炉(「常陽」)でのMo-99製造(再委託先：JAEA)

① 最適な照射場の設置

1) 炉心検討

令和3年度までの検討結果を踏まえ、「常陽」減速場におけるMo-99の製造量の最確値の予測及びその不確かさを評価する。

② 照射後試料の取扱手法確立

1) 試料取出し・払出工程の検討

照射リグの構造を踏まえ、遠隔解体の確認及びキャプセルの取扱検討を行う。

③「常陽」での照射試験計画立案

照射試験計画を立案する。

(4) 高速炉（「常陽」）でのAc-225製造

① 医用Ac-225製造条件の設定（再委託先：金沢大学）

令和3年度までの検討結果を踏まえ医用Ac-225の薬剤化の検討を行う。

② Ac-225市場予測（再委託先：NucMed）

国内外の環境変化に合わせ、Ac-225の国内外の市場調査と市場予測を更新する。

③ 最適な照射場の設置（再委託先：JAEA）

1) 炉心検討

令和3年度までの検討結果及び②の市場予測を踏まえ、「常陽」炉心中心におけるAc-225の製造量の最確値の予測及びその不確かさを評価する。

④ 照射済み Ra-226 からの Ac 分離、Ra-226 再利用（再委託先：JAEA）

1) Ac回収

2) Ra-226再利用

Ra-226の再利用のための分離条件を確認する代替元素によるコールド試験を行うとともに、Ac/Ra分離条件を確認するためのトレーサー量のホット要素試験実証試験を行う。回収プロセスの技術的な成立性を確認し、子孫核種による汚染・漏洩対策を検討する。

⑤「常陽」での照射試験計画立案（再委託先：JAEA）

令和3年度までの検討結果を踏まえ実証試験に係る照射試験計画を立案する。

(5) 原子炉で生成される医用RIの品質と普及についての検討（再委託先：金沢大学）

① Ac-225の使用・普及に係る諸問題の解決

1) 廃棄に係る諸問題の解決

令和3年度における成果を踏まえ、関係行政機関、関係団体等と協議し、廃棄物の適切な処理方法について明確化する。

(6) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、核医学界や医薬品業界から広く意見を聴きながら研究を進める。

3. 業務の実施内容及び成果

3.1 Mo-99 製造プロセスの軽水炉 (PWR) への適用性検討

3.1.1 医用 Mo-99 製造条件の設定 (再委託先 : NucMed) 【R2】

我が国では、核医学検査、すなわちがんの診断及び臓器の機能検査等に広く活用されている Tc-99m の医薬品原料としての Mo-99 のすべてを輸入に依存している。輸入にあたり大きな問題が 2 つあり、供給の不安定性から患者への不利益がたびたび発生する事態となっている。

1 つ目には、Mo-99 生産国の原子炉 (生産設備) の老朽化に伴う稼働トラブルやメンテナンス停止により、たびたび供給停止等が発生していることが挙げられる。この供給停止は毎年のように発生しているが、近年でとりわけ深刻であった 2009 年から 2010 年にかけての供給停止は 14 か月間に及び、その間、国内で必要な検査が全く実施できない等、医療現場に大きな混乱をもたらした。今後 2024 年から 2025 年にかけて、さらなる原子炉の稼働停止等が予定されており、供給は一層先細ることが想定されている。

2 つ目には、Mo-99 製造後の精製や我が国への輸送の過程におけるトラブルが挙げられる。例えば、2010 年 4 月、アイスランドの火山噴火により欧州からの航空輸送が停止し、輸入が行えない事態となった。また 2020 年以降においても、COVID-19 の影響により、海外からの航空輸送便が確保しにくい状況にあった。

医薬品原料としての Mo-99 の全世界での使用量の約 15 %が現に我が国で使用されており、加えて将来にわたって需要の減少がさほど見込まれない状況の中で、今後とも安定的に必要な核医学診療を実施していくためにも、Mo-99 の調達先を国内外に分散し、またその結果として輸送経路を複線化することで、国内での供給を安定化させることが急務となっている。

Tc-99m 医薬品の原料としての我が国への Mo-99 の輸入量、輸入単価及び輸入額に関する公式な統計はない。輸入量は、年間 40,000 6-days Ci (Mo-99 の量の単位として用いられる生産 6 日後時点換算の放射能) 程度であるとされており、基本的には週 2 回の頻度で空輸されている。1 Ci あたり 650 米ドルの輸入単価を仮定すると、年間 30 億円強の輸入が行われていることとなる。この輸入単価は、原子炉の減価償却費等を含めた Mo-99 の生産コストのフルリカバリーには遠く及ばないと考えられており、Mo-99 の国産化を考えるうえで障害となりうる。

海外原子炉で生産された Mo-99 は、現地の空港での引き渡しとなっているケースが多いものと考えられることから、このほかに年間数億円の航空輸送費等がかかることが想定される。近年の市場環境の変化を踏まえ、輸入量は減少傾向に、また輸入単価と輸送費は上昇傾向にあるようだ。なお、最終製品としての過テクネチウム酸ナトリウムの薬価は、規格等により 1 MBq あたり 26.6 円から 28.9 円の間 (1 Ci あたり約 100 万円) に設定されている。

核分裂法で生成された輸入 Mo-99 の一部を放射化法で生成された国産 Mo-99 に切り替えて製薬原料とする場合、製薬企業において製造方法の変更にかかる薬事上の手続きが必要となるほか、比放射能が相対的に低い Mo-99 に応じた製造ラインの更新等の費用を別途要

することとなることが考えられる。これらを踏まえてもなお、輸入 Mo-99 と価格競争力がある形で供給可能であるかどうか、また輸入 Mo-99 と同等以上に安定的に供給可能であるかどうかという点が、製造条件としては重要な論点となろう。

2010 年以降、官民が一体となって Mo-99 の安定供給の在り方が議論され、その中で我が国において必要とされる Mo-99 の少なくとも一部を国産化するための検討がなされてきたところであるが、2011 年の震災の影響等もあり、これまで実現をみていない。

こうした中、2021 年 11 月に「医療用等ラジオアイソトープ製造・利用専門部会」が原子力委員会のもとに設置され、ラジオアイソトープの国産化を目指した検討が再開された。翌 2022 年 5 月には「医療用等ラジオアイソトープ製造・利用推進アクションプラン」がとりまとめられたところである。Mo-99 の国産化は我が国の医療の安全保障にかかわる重要な課題の 1 つであり、研究炉、商用炉、加速器等の手段を問わず多様な方法で国内生産された Mo-99 が供給されることにより早期に調達リスクの分散が図られることが、医療界から強く要望、期待されている

3.1.2 PWR 用 Mo 照射ターゲットの開発(再委託先：MHI、JAEA)【R2-R3】

(1) PWR 炉特性、基本設計及び試作(再委託先：MHI)【R2-R3】

PWR を用いた Mo-99 製造技術に関し、PWR の炉特性を生かし、製造効率の良い照射ターゲットとする必要がある。Mo 照射ターゲットは、駆動装置によってシングルチューブ内を通過して原子炉内に挿入され、中性子照射されることを想定する。本方式に適した構造とすべく設計検討を行った。

材質に関して、既設 PWR での使用実績を踏まえ Zr-4 と SUS304 を候補とし、両者の放射化影響を比較した結果、照射 24 時間以降の放射化影響は SUS304 の方が小さく線量はほぼ一定だった。経済性や照射後生成物への不純物混入回避等の観点も含めて、材質は SUS304 が総合的に優位と考えられる。

構造に関して、カプセル型とチューブ型の 2 案を提案したが、チューブ型はシングルチューブへの挿入荷重が大きいこと、MoO₃ の充填可能量が少なく、ひいては Mo-99 の生成量が少ないことから、主としてカプセル型について検討を行った。カプセルの連結構造はスイベル構造、オスメスはめ込み構造を候補とした。カプセル単品を実際に試作しての製作性の確認では、健全に溶接ができ、溶接部温度も MoO₃ 昇華温度以下であったことから、問題なく製作できることを確認した。2 連結の試作品を用いた強度の確認では、引張試験を行い、いずれの連結構造においても現状想定している照射ターゲット用駆動装置の最大引抜荷重(350 N)の引張荷重に耐えることを確認した。10 連結の試作品を用いた挿入・引抜性の確認では、いずれの連結構造においても現状想定している照射ターゲット用駆動装置の最大引抜荷重の引張荷重以下で、挿入・引抜可能であることを確認した。Mo-99 生成量に関して、MoO₃ ペレットを封入したカプセルを 56 個連結したものを 1 本の照射ターゲットとし、4 本の照射ターゲットを PWR 炉心内で同時に 7 日間照射した場合の Mo-99 生成量を算出した。結果、国内需要量である約 1,000[6-day Ci/週]の 5 割以上に相当する Mo-99 を生成できる見込みを得た。搬出時に必要な遮へいに関して、MoO₃ を封入したカプセルを 56 個連結した 1 本の照射ターゲットに対して、線源強度評価で得られた冷却時間 1 時間(炉から取出し、切断を開始するまでの想定時間)及び減衰を想定した冷却期間を考慮した MoO₃ 及びカプセル被覆材(SUS304)の合計線源強度を用いて、鉛遮へい体外表面の線量率が輸送基準を満足する要求厚を算出した。結果、照射後 24 時間冷却後のカプセルを搬出するための鉛遮へい体は 130 mm 程度の厚さが必要であり、この場合、340~370 kg 程度の質量となる概算結果が得られた。

これらの検討結果から、照射ターゲットの成立性を確認した。今後は実際のプラントを想定した照射設備、配置、照射プロセス等も踏まえた検討が必要である。

さらに、照射ターゲットに充填される細径 MoO₃ ペレットについて、切断研磨法及びコア抜き法の 2 種類の加工方法について調査を行い、短時間かつ安価に加工可能であるコア抜き法にて実施することとした。また、高密度 MoO₃ ペレットの照射時の温度における特性変化を調べ、PWR で想定される照射時の温度下(400 °C)においては、わずかに外観が黒色(MoO₂)へと変化するものの、組成及び粒子形状への影響はないことが確認された。このことより、PWR での照射において、本検討にて製作した高密度 MoO₃ ペレットは適用可能であることが示唆された。

(2) 特性評価（再委託先：JAEA）【R2-R3】

要素試験のための試験体の準備を行い、製作性を確認するとともに、引き続き実施する特性試験に向けた準備を行った。炉外試験は電力/規制庁等への説得力あるエビデンス整備を目的に下記の項目を実施した。

- 1) 照射ターゲットの Mo 装荷性試験
- 2) 照射ターゲット内 Mo の溶解性試験
- 3) Mo 溶解後の溶解液特性試験（外観、pH、不純物など）
- 4) 高密度 MoO₃ペレットの特性試験（X線回析、SEM観察など）
- 5) 照射ターゲット（チューブ型、カプセル型）加熱試験
- 6) 照射ターゲット加熱後の特性評価（外観観察、X線回析、SEM観察）

3.1.3 Mo-99 供給プロセスの開発(再委託先：MHI、JAEA) 【R2-R4】

【R2-R3】

法規制について、これまでの調査の結果、発電炉を用いたRI製造は、RI製造を行うことにより炉規法の求める安全性能等が損なわれない限り、否定されないと考えられる。また、本研究で検討しているPWR炉を用いたMo-99製造方法は、照射ターゲットは計測装置を取り外した計装管より挿入するものとしている。すなわち、当該計装管はRI製造に特化した設備であると見なすことができるため、Mo-99製造のために必要となる発電炉の改造部分をRI製造装置と規定し、RI製造装置としてRI法の求める認可を得ることが可能と考えられる。これより、計装管内で照射されたターゲットは、「RI生成物」として扱うことができる。よって、RI製造装置が炉規法の要求事項を阻害しないことを示した上で、RI製造装置としての認可を受けることにより、発電炉によるRI製造は可能と考えられる。また、PWRでのMo-99製造を現実するため、JMTRを参考とし、PWRでのMo製造への許認可の適用性について調査し、概念設計の方針を整理した。

プロセスの概念検討として、濃縮Mo (Mo-98:98 wt%) を照射ターゲットとしたMo-99供給プロセスのプロセスフロー検討及びマスバランス評価を行った。

また、ターゲット材のMoO₃には濃縮Mo (Mo-98 : 98 atom%) が使用されるが、モリブデンの天然同位体として、Mo-92、Mo-94、Mo-95、Mo-96、Mo-97、Mo-98、Mo-100 が含まれている。なお、始発粉末中には不純物元素として、Mg、Si、Cu、W 等が極微量含まれている。

これらの天然同位体及び、不純物元素が中性子により放射化したときに、どのような放射性核種が生成されるかを解析にて評価した。照射ターゲットで生成された Mo-99 の放射エネルギーに対して、Mo-99 供給プロセスでの処理中である炉取出しから 2 日後 (48 時間後) の放射エネルギー比が 1.0×10^{-6} を超える核種について、放射線の種類や半減期も整理した。

さらに、炉内で照射された MoO₃ 及びカプセル (SUS304) が搬出容器によりホットセルに搬入された際の取扱いセルの必要遮へい厚評価を行った。

遮へい評価においては、MoO₃ を封入したカプセルを 56 個連結した 1 本の照射ターゲットに対して、線源強度の冷却期間 3 時間 (炉から拔出し、搬出容器で搬出開始するまでの想定時間) 及び減衰を想定した冷却期間 24 時間と 36 時間を考慮した MoO₃ 及びカプセル材 (SUS304) の合計線源強度を用いて、セル外面で作業可能な放射線レベルとして、外表面の線量率が 0.01 mSv/h 以下を満足する遮へいの要求厚を算出した。その結果、照射後 24 時間冷却以降に必要な遮へい厚はほぼ一定となり、350 mm 程度の厚さとなるとの概算結果が得られた。

PWR での照射後のカプセルの開封措置の概念検討を行った。Mo カプセルの開封装置は、カプセル供給処理部とカプセル開封処理部の 2 ユニットで構成した。

供給処理部は、既に市販品として製品化されている振動搬送によるパーツフィーダ方式を採用し、照射後に搬出容器内に封入されたカプセルを投入すると、向きを揃えてカプセ

ル開封処理部へ供給する機能を有するものとした。また、供給処理部については概念図までを検討した。

【R4】

(1) 概念設計

照射ターゲットとなる MoO_3 を照射したのちに発生する放射性核種について解析計算を実施し、医薬品としての不純物の基準値と照らし合せ、基準値を超える不純物を特定した。特定した不純物について、その除去方法について整理した。また、令和3年度までに検討したプロセスフローの見直しを実施した。

①放射性核種

濃縮 MoO_3 焼結ペレット照射後に含まれる放射性不純物の除去検討のため、濃縮 MoO_3 焼結ペレットの放射化による放射性不純物の生成量の評価を実施した。評価条件を表 3.1.3(1)-1 に示す。濃縮 MoO_3 焼結ペレットに含まれる不純物の元素組成は、濃縮 Mo 性状の調査結果から設定し、調査結果にない元素については文献値より設定した。濃縮 MoO_3 焼結ペレットに含まれる不純物組成の設定値を表 3.1.3(1)-2 に示す。

評価結果については、 γ 線を放出する核種、 γ 線又は β 線を放出する核種に対して、濃縮 MoO_3 焼結ペレットの照射後 48 時間経過した時点における Tc-99m に対する生成核種の放射エネルギーの比として、表 3.1.3(1)-3 にて整理した。

②不純物除去

医薬品 Tc-99m に対する放射性核種の基準値（表 3.1.3(1)-4）と、前項の放射性核種の放射エネルギーの計算結果を比較した。 γ 線又は β 線を放出する核種の放射エネルギーが基準値を超過しており、含有量が高い核種と含有量は順に ^{187}W (7.2×10^{-5})、 ^{32}P (5.5×10^{-5})、 ^{35}S (2.4×10^{-5})、 ^{24}Na (1.3×10^{-5}) であった。

放射性核種の基準値を守るためには、これらの不純物の除去を行う必要がある。前項にて示された不純物組成（表 3.1.3(1)-2）から、照射前の濃縮 MoO_3 焼結ペレットに対する各元素の含有率は W (1.0×10^{-5})、 P (1.8×10^{-5})、 S (1.1×10^{-4})、 Na (5.6×10^{-5}) であった。

Mo-99 供給プロセスにはアルミナカラムによる精製工程（不純物除去）が含まれる。次いで上記不純物元素（ W 、 P 、 S 、 Na ）の不純物元素の濃度を低減するための不純物除去方法を調査した。

モリブデンからのタングステンの除去方法として、析出分離法、吸着法が示されている。析出分離法は、(株)アライドマテリアルの特許出願⁽²⁾に示された方法で、タングステンを含むモリブデン酸アンモニウム溶液を酸性（ $\text{pH}2.5 \sim 4.5$ ）、 50°C 以下

に調整し、モリブデン酸アンモニウムの結晶を優先的に析出し濾別するモリブデン酸化物中のタングステンを分離する方法である。析出物をアンモニアで溶解したのち、上記の析出・濾別を繰り返すことでさらにタングステンの分離が可能となり、W<10 ppm、Na<1 ppm との試験結果が示されている。吸着法はアルミナカラムによる吸着⁽³⁾⁽⁴⁾⁽⁵⁾で、アルミナカラムに陰イオンやタングステン酸イオン (WO_4^{2-}) が吸着することが示されている。また陰イオンとしてリン酸 (PO_4^{3-} 、 HPO_3^{2-} 、 $H_2PO_4^-$)、硫酸 (SO_4^{2-}) へも適用可能と推測される。

リンの除去方法として、析出分離法⁽⁶⁾が示されている。モリブデンと同じく周期律表第VIa 族に属しほぼ類似の性質をもつタングステン鉱からのリンの除去方法である。アルカリ抽出で得た Na_2WO_4 溶液中にはリンの Na 塩 (Na_2HPO_4 、 Na_3PO_4) が溶出している。さらに HCl で中和し、アンモニア性にしたのち、低温でマグネシア混液を添加し、 NH_4MgPO_4 を沈殿させ濾別する方法で、リン濃度を 0.01 %以下にすることが可能とされている。

硫黄の除去方法として、焙炒酸化法⁽⁶⁾⁽⁷⁾が示されている。モリブデンを含む主要な鉱石の一つは輝水鉛鉱 (Molybdenite、 MoS_2) であるが、これを空气中で酸化焙炒することで酸化物 MoO_3 を得られる。この際に、 SO_x ガスが発生するため処理が必要となる。なお、本方法は従来のモリブデン精鉱の製造工程であるため、今回の Mo-99 供給用の原料に既に適用されており除去性能の向上を期待できない可能性がある。

ナトリウムは、Mo-99 供給プロセスのアルカリ溶解工程で多量の NaOH で希釈され、次の精製工程 (アルミナ吸着) で分離されると考えられる。また、アルミナ吸着剤 (H^+ 形) で陽イオンを吸着⁽³⁾⁽⁸⁾する方法が示されており、ナトリウムイオン (Na^+) の吸着除去が期待できる。

また、放射性核種は半減期が異なるため、保持時間により相対比率が変化する。半減期⁽⁹⁾は、S-35(87.51 d)、P-32(14.282 d)、Mo-99(65.94 h)、W-187(23.9 h)、Na-24(15.659 h)である。時間の経過とともに、Na-24 と W-187 は減少し、S-35 と P-32 は増加を想定する必要がある。

以上の通り、不純物 (W、P、S、Na) の除去方法を調査し、表 3.1.3(1)-5 にまとめた。アルミナカラムへの吸着や、析出物・沈殿物として分離する方法などであるが、今後、Mo-99 供給プロセスへの反映方法や除去性能について、別途の評価が必要である。

③プロセスフロー

本項では、3.1.3(1)②で導出した放射性不純物や後述の生成量評価(3.1.4(1))の評価結果を踏まえて、令和3年度に検討したMo供給プロセスのプロセスフローやマスバランス評価を精緻化した結果について示す。Mo-99供給プロセス及びTc-99m製剤の生成プロセスを図3.1.3(1)-1に、マスバランス評価における前提条件を表3.1.3(1)-6に、マスバランス評価結果を図3.1.3(1)-1に示す。なお、MoO₃中の不純物は、3.1.3(1)①の解析結果を踏まえて、W、P、S、Naの4成分を代表成分とし、Mo溶液の精製工程(不純物除去)は、3.1.3(1)②の調査結果(表3.1.3(1)-5)のうち、最も簡便な手法であるアルミナカラムによる吸着処理を採用するとした。

マスバランス及びMo-99/Tc-99mの生成量評価の結果、ターゲット取出しからMo溶液出荷までの期間が1日の場合のMo生成量600 Ci/回(比放射能43 GBq/g-Mo)、2日の場合のMo-99生成量は470 Ci/回(比放射能33 GBq/g-Mo)であり、廃吸着体発生量(生理食塩水等含む)は約25 kg/回との試算結果を得た。また、Mo溶液中の不純物は数ppm~数十ppm程度となると試算結果を得た。なお、医薬品Tc-99mの基準値はβ線及びγ線の放射エネルギーによって定められており、数ppmでも基準値を超過する可能性があるため、Mo溶液精製プロセスでは、極低濃度における除去手法の適用が必要となる。ただし、今回の評価の様に、Tc製剤生成時に一度Moをアルミナに吸着させ、生理食塩水によりTc-99mを溶離させる場合は、不純物成分は溶離されない可能性があり、Tc製剤には不純物が混入しない可能性も考えられる。従って、Mo-99供給プロセスにおける不純物の取り扱い、製品形態を踏まえて除去プロセスの検討や必要性能の評価が必要である。

表 3. 1. 3 (1)-1 放射性不純物の生成量評価の評価条件

項目	条件
使用計算コード	ORIGEN2. 2-UPJ
濃縮 MoO ₃ 焼結ペレット 重量	1 (g)
照射中性子束	5. 3E+14 (n/(cm ² ・s))
照射条件	7 日
冷却条件	48 時間

表 3. 1. 3 (1)-2 濃縮 MoO₃ 焼結ペレットに含まれる不純物組成の設定値

元素	(g)/ (濃縮 MoO ₃ 焼結ペレット 1g 当たり)	備考
O	9. 7E-05	天然 MoO ₃ 不純物データ (JAEA-Technology2015-030 ^{*10}) より
Na	5. 6E-05	天然 MoO ₃ 不純物データ (JAEA-Technology2015-030) より
Mg	1. 0E-05	濃縮 Mo 性状の調査結果より
Al	5. 9E-05	天然 MoO ₃ 不純物データ (JAEA-Technology2015-030) より
Si	3. 0E-05	濃縮 Mo 性状の調査結果より
P	1. 8E-05	天然 MoO ₃ 不純物データ (JAEA-Technology2015-030) より
S	1. 1E-04	天然 MoO ₃ 不純物データ (JAEA-Technology2015-030) より
Cl	2. 2E-04	天然 MoO ₃ 不純物データ (JAEA-Technology2015-030) より
K	5. 6E-05	天然 MoO ₃ 不純物データ (JAEA-Technology2015-030) より
Ca	7. 9E-06	天然 MoO ₃ 不純物データ (JAEA-Technology2015-030) より
Fe	1. 1E-05	天然 MoO ₃ 不純物データ (JAEA-Technology2015-030) より
Cu	1. 0E-05	濃縮 Mo 性状の調査結果より
W	1. 0E-05	濃縮 Mo 性状の調査結果より
Pb	1. 1E-04	天然 MoO ₃ 不純物データ (JAEA-Technology2015-030) より

表 3.1.3(1)-3 濃縮 MoO₃ 焼結ペレット照射後 48 時間経過時点における Tc-99m に対する生成核種の放射量の比

核種	γ線放出核種	γ線又はβ線放出核種
H 3	—	1.4E-20
BE 10	—	6.2E-17
C 14	—	3.2E-13
NA 22	3.3E-11	3.3E-11
NA 24	1.3E-05	1.3E-05
MG 28	2.0E-15	2.0E-15
AL 28	1.3E-15	1.3E-15
SI 31	9.7E-12	9.7E-12
SI 32	—	4.4E-17
P 32	—	5.5E-05
P 33	—	1.2E-07
S 35	—	2.4E-05
CL 36	7.7E-10	7.7E-10
CL 38	3.0E-28	3.0E-28
AR 37	4.0E-07	4.0E-07
AR 39	—	3.0E-09
AR 41	9.9E-16	9.9E-16
AR 42	—	5.5E-18
K 40	9.8E-15	9.8E-15
K 42	1.1E-06	1.1E-06
K 43	1.5E-10	1.5E-10
CA 41	9.3E-13	9.3E-13
CA 45	9.4E-09	9.4E-09
CA 47	2.9E-10	2.9E-10
SC 46	5.2E-14	5.2E-14
SC 47	2.5E-10	2.5E-10
SC 49	2.8E-23	2.8E-23
CR 51	7.0E-10	7.0E-10
MN 54	5.9E-09	5.9E-09
MN 56	2.2E-13	2.2E-13
FE 55	1.2E-08	1.2E-08
FE 59	8.2E-09	8.2E-09
CO 58	3.5E-18	3.5E-18
CO 60	7.5E-11	7.5E-11
CO 61	1.3E-17	1.3E-17
NI 63	—	1.7E-10
NI 65	2.6E-14	2.6E-14
NI 66	—	1.0E-13
CU 64	4.2E-06	4.2E-06
CU 66	9.0E-14	9.0E-14
CU 67	1.7E-11	1.7E-11
ZN 65	5.8E-12	5.8E-12
ZN 69	3.3E-30	3.3E-30
KR 87	4.7E-26	4.7E-26
KR 88	1.4E-29	1.4E-29
RB 86	2.5E-17	2.5E-17
RB 88	1.4E-29	1.4E-29
SR 91	9.0E-18	9.0E-18

核種	γ線放出核種	γ線又はβ線放出核種
Y 89M	6.3E-07	6.3E-07
Y 90	5.0E-12	5.0E-12
Y 91	2.4E-15	2.4E-15
Y 92	9.0E-18	9.0E-18
Y 93	2.0E-17	2.0E-17
ZR 89	6.3E-07	6.3E-07
ZR 93	—	5.4E-15
ZR 95	2.1E-06	2.1E-06
ZR 97	1.8E-09	1.8E-09
NB 92	4.5E-14	4.5E-14
NB 93M	3.2E-12	3.2E-12
NB 94	2.0E-12	2.0E-12
NB 95	5.1E-07	5.1E-07
NB 95M	1.2E-08	1.2E-08
NB 96	7.4E-08	7.4E-08
NB 97	1.8E-09	1.8E-09
NB 97M	1.7E-09	1.7E-09
MO 93	5.4E-09	5.4E-09
TC 98	3.2E-17	3.2E-17
TC 99	1.2E-08	1.2E-08
RH105	9.0E-26	9.0E-26
RH106M	1.1E-27	1.1E-27
YB177	2.9E-19	2.9E-19
LU177	1.0E-20	1.0E-20
HF180M	4.7E-17	4.7E-17
HF181	1.5E-11	1.5E-11
HF182	2.6E-22	2.6E-22
TA180	3.3E-15	3.3E-15
TA182	3.7E-11	3.7E-11
TA183	2.0E-10	2.0E-10
W181	6.8E-07	6.8E-07
W185	8.8E-07	8.8E-07
W187	7.2E-05	7.2E-05
W188	4.5E-08	4.5E-08
RE186	3.7E-08	3.7E-08
RE187	—	1.9E-15
RE188	3.4E-06	3.4E-06
RE189	9.2E-10	9.2E-10
OS191	1.3E-16	1.3E-16
OS191M	9.5E-17	9.5E-17
IR192	4.1E-27	4.1E-27
HG203	6.5E-12	6.5E-12
TL204	6.5E-14	6.5E-14
TL206	3.3E-22	3.3E-22
PB205	1.2E-15	1.2E-15
PB209	—	5.0E-12
BI208	1.4E-21	1.4E-21
BI210	5.7E-14	5.7E-14
BI210M	3.4E-22	3.4E-22
PO210	1.6E-15	1.6E-15
TOTAL	1.0E-04	1.8E-04

表 3.1.3(1)-4 医薬品の放射性核種の基準値⁽¹⁾

Radionuclide	Limit (1/Tc-99m) Fission EU	Limit (1/ Tc-99m) Non-Fission EU	Limit (1/ Tc-99m) US
⁹⁹ Mo	1×10^{-3}	1×10^{-3}	1.5×10^{-4}
¹³¹ I	5×10^{-5}		5×10^{-5}
¹⁰³ Ru	5×10^{-5}		5×10^{-5}
⁸⁹ Sr	6×10^{-7}		6×10^{-7}
⁹⁰ Sr	6×10^{-8}		6×10^{-8}
α -Emitters	1×10^{-9}		1×10^{-9}
All other γ - emitters	1×10^{-4}	1×10^{-4}	
All other γ and β - emitters			1×10^{-4}

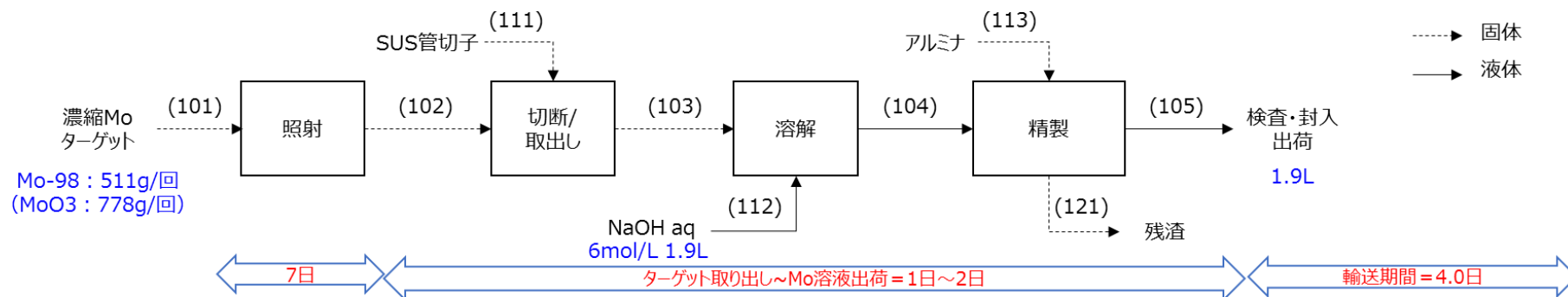
表 3.1.3(1)-5 不純物除去方法

技術名称		析出分離法	析出分離法	吸着法	焙炒酸化法
処 理 性 能	W	<10ppm	-	(記載なし)	-
	P	-	<0.01%	(記載なし)	-
	S	-	-	(記載なし)	(記載なし)
	Na	<1ppm	-	(記載なし)	-

表 3.1.3(1)-6 Mo-99 供給プロセス及び Tc-99m 製剤の生成プロセス マスバランス評価における前提条件

プロセス	項目	値	備考	
Mo-99 供給プロセス	濃縮 MoO ₃ 量	778g	Mo-98 : 98wt%	
	濃縮 Mo 中 不純物	Na	56ppm	JAEA-Technology2015-030 に基づく。
		P	18ppm	
		S	110ppm	
		W	10ppm	濃縮 Mo 性状の調査結果に基づく。
	SUS 材 組成	Fe	70wt%	JIS G 3447 ステンレス鋼サニタリー管の組成に基づく。
		Ni	10wt%	
		Cr	20wt%	
	NaOH 水溶液	濃度	6mol/L	令和 2 年度成果*11 に基づく。
		液量	2.5mL/g-MoO ₃	
		SUS 材混入率	2wt%	Mo-98 に対する比率 被覆材開封時の切子として仮定
	SUS 材溶解率	0.02wt%	SUS 材全量に対する比率 令和 3 年度成果に基づく。	
	アルミナへの不純物吸着量	37mg/g-アルミナ	Mo と同等と仮定。	
	精製工程不純物除去率	20%	令和 2 年度成果に基づく。	
Tc-99m 生成プロセス	アルミナへの Mo 吸着量	37mg/g-アルミナ	要素試験結果 (3.1.4(2)参照) に基づく。	
	アルミナへの不純物吸着率	20%	令和 2 年度成果に基づく。	
	アルミナ中の 生理食塩水含侵量	0.7g/g-アルミナ	要素試験結果 (3.1.4(2)参照) に基づく。	
	Tc-99m の溶離液量	1mL/g-アルミナ	仮定値。	

○濃縮Mo-98からのMo-99供給プロセス



○RI製造業者でのTc-99m生成

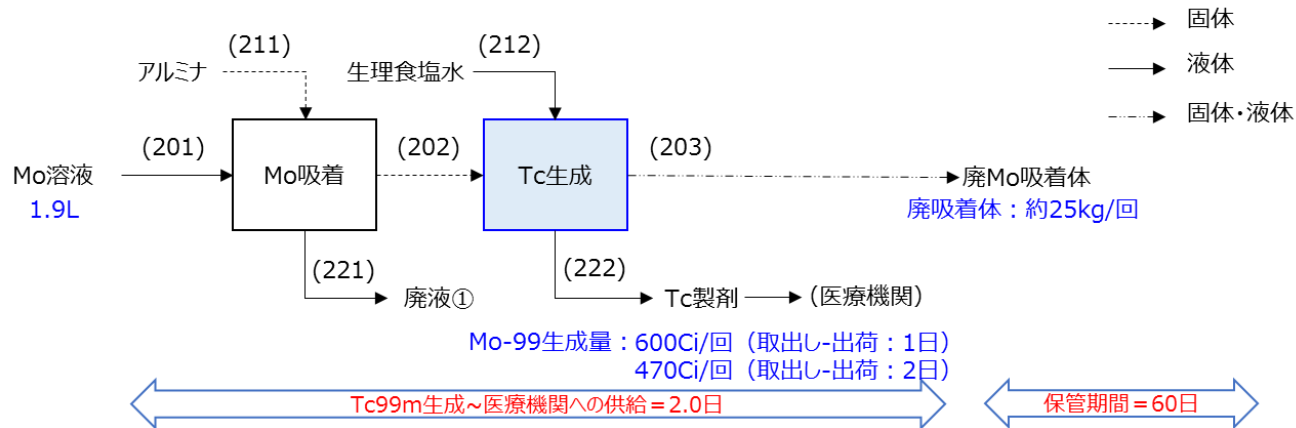


図 3. 1. 3 (1)-1 Mo-99 供給プロセス及び Tc-99m 製剤の生成プロセス

参考文献

- (1) Xiaolin Hou, “Determination of radionuclidic impurities in ^{99m}Tc eluate from $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ generator for quality control”, J Radioanal Nucl Chem 314:659-668, Denmark (2017)
- (2) 株式会社アライドマテリアル, 「日本特許 特開平5-9617 モリブデン酸化合物中のタングステンの除去方法」, 日本 (1995)
- (3) 千葉ら, 「シリカ・アルミナ吸着剤の吸着特性」, 分析化学 20 巻 8 号 (1971)
- (4) H.Kamioki, “ $^{188}\text{W}\rightarrow^{188}\text{Re}$ Generator for Biomedical Applications”, Radiochimica Acta, vol.65, 39-46 (1994)
- (5) 千葉ら, 「シリカ・アルミナ吸着剤の陰イオン吸着特性」, 化学分析 21 巻 12 号 (1972)
- (6) 森本滋, 「日本新金属 (株) のタングステン, モリブデン精錬」, 日本鉱業会誌/97 巻 1122 号 (1981)
- (7) 化学工業日報社, 「2020 年版 17120 の化学商品」, P209 (2020)
- (8) 千葉ら, 「シリカ・アルミナ吸着材の陽イオン吸着特性」, 化学分析 20 巻 11 号 (1971)
- (9) 丸善, 「化学便覧基礎編第四版」
- (10) JAEA-Technology2015-030 中性子放射化法による $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ 製造に関する試験体系の確立
- (11) 令和2年度 文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業 国内の原子力インフラを活用した医用RIの侍従技術確立に向けた研究

(2) 開封装置の概念設計

令和3年度の検討の結果、Moカプセルの開封装置は、カプセル供給処理部とカプセル開封処理部の2ユニットで構成される構造で検討することとした。これを受けて令和4年度は、ユニットの構造を具体化させるための調査・検討を行い、装置の概念設計を行った。

① カプセル供給処理部

概念設計にあたり、パーツフィーダを取り扱うメーカを調査した。調査した結果、Moカプセルの向きをそろえて開封処理部へ搬送するカプセル供給処理部は、既存技術であるパーツフィーダの技術を用いることが可能であり、放射線に対する防護として遮へい構造をMHIにて検討し実施すれば、カプセル供給処理部は比較的短期間で市販品の技術を利用して実現可能な目途を得た。

②カプセル開封処理部

令和3年度の概念検討で、カプセル開封処理部装置をイメージ図で表した（図3.1.3(2)-1）。これを3Dモデルとして各部位の構造具体化や処理フローによる干渉確認といった概念設計を行った。装置動作を以下に説明する。

動作① 装填されたカプセルを装置内に設置し、開封切断準備を行う。

（図3.1.3(2)-2）

動作② 駆動ローラ（図中緑色）と空転ローラ2つ（図中淡オレンジ色）でカプセルを挟んで保持し、駆動ローラを回転させてカプセルを回転させる。

（図3.1.3(2)-3）

動作③ カプセル両端のローラカッタをカプセルに押し付けて両端を切断開封する。その後、カプセル中央のローラカッタでカプセルを2分割し、最終的にカプセルは両端が開封した2つの短尺カプセルとなる。（図3.1.3(2)-4）

動作④ カプセルを挟んで回転させていた3つのローラを左右とも解放し、カプセルを水酸化ナトリウム水溶液槽へ落下させる。（図3.1.3(2)-5）

また、カプセル開封処理部は、不純物である切り粉が発生しないよう、せん断押切方式であるローラカッタを用いた切断方法を採用予定としている。このため、実現性を確認するために、ローラカッタによる切断の可否の確認と、カッタ押し付け力やカプセルの回転力及び回転数についての要素試験を実施した。

1) 要素試験実施条件

- ・カプセル仕様：外形φ4.8 mm、長さ53 mm、板厚0.2 mm、材質SUS304
- ・ローラカッタ型番：TCC105E（スーパーツール）
- ・駆動ローラ：φ12 mm、表面ウレタンゴム（ショアA90）
- ・駆動ローラ回転数：93 rpm（無負荷時実測値）

- ・ Mo カプセル回転数：233 rpm
- ・ 刃物荷重：約 80 N（プッシュプルゲージで確認しながら手動にて加えた荷重）
- ・ ねじジャッキ送りピッチ：約 0.08 mm
 - ※ 駆動ローラ 4 回転（Mo カプセル 10 回転）ごとに刃物 0.08 mm を送って切り込んだ
- ・ 駆動ローラ回転方向：駆動ローラの回転によってカプセルがローラカッタから逃げない方向

要素試験治具を図 3.1.3(2)-6 に示す。

2) 要素試験手順

- 手順① 装置にカプセルを設置し、上部ローラで押さえる。
- 手順② 刃物を付けたトレーをカプセルの上に設置して、刃先がカプセルの表面の高さとなるようにねじジャッキの高さ調整する。
- 手順③ モータの電源を入れカプセルを回転させる。
- 手順④ ねじジャッキを回して刃物を 0.08 mm 下げる（送る）
- 手順⑤ プッシュプルゲージで確認しながら手動にて刃物に荷重を掛ける。この時最大電流値を記録する。
- 手順⑥ 駆動ローラが 4 回転以上したら刃物荷重を止める。
- 手順⑦ カプセルが切断されるまで、手順④～⑥を繰り返す。

要素実験状況を、図 3.1.3(2)-7～図 3.1.3(2)-8 に示す。

3) 要素試験結果と考察

要素試験結果を表 3.1.3(2)-1 に示す。

今回の要素試験では、切断による切粉の発生は無かった。また、ねじジャッキの送り回数 7～8 回で Mo カプセルの切断が可能であった。カプセルの切り口を図 3.1.3(2)-9 に示す。

今回の要素試験では、刃物荷重によるカプセルの沈み込みを極力減らす目的で、駆動ローラのゴム硬度の硬いものを選定したが、刃物荷重を 80 N 程度かけると駆動ローラのゴムに若干の沈み込みが生じ、カプセルに切れ目が生じた瞬間、駆動ローラのゴムの反力によりカプセルが浮き上がり、切れ目に刃物が噛み込んでしまい、カプセルが回転できない状況が発生する場合があった。この場合は、刃物荷重を減らしてカプセルが回転可能な刃物荷重を保持することで以後の切断を継続することが可能であった。この時、カプセルが回転することによって切れ目部分の往復折り曲げが繰り返され、疲労破壊も

加味されて切断されているように見えた。

ただし、上述の刃物の噛み込みが発生しても、カプセルの回転力が大きければ、切断できる可能性があるため、今回の試験のようなローラ摩擦による回転とはべつに、チャッキングによる回転方式も有効であると感じた。

本要素試験結果から、ローラカッタによる Mo カプセル開封装置に必要と考えられる条件候補について以下に記す。

ただし、今後装置を検討する上では、より具体的な試験を実施することが必須である。

- ・ カプセルを回転させる駆動ローラのトルクは、駆動ローラが $\phi 12$ mm、表面ウレタンゴム（ショア A90）の場合、63 mNm 程度必要である。
- ・ 駆動ローラ 4 回転（Mo カプセルが 10 回転）するごとに刃物の位置を 0.08 mm 下げる動作を 7~8 回繰り返す必要がある。その時の刃物荷重は 80 N 程度である。
- ・ カプセルに刃物荷重を掛けてもカプセルが沈み込まないように、カプセルを保持するローラ等は頑丈な構造とする。
- ・ ローラカッタ送り軸は、カプセルが切断された瞬間に刃の送り込みが増える（エアシリンダやばねによる押し付け等）と、切断された部分にカッタが噛み込み、カートリッジが回転しなくなるため切断できないことから、送り込み量を確実に管理（切断されて負荷が抜けても送り込みすぎない）できるねじ式の押し付け機構が必要である。

表 3. 1. 3(2)-1 ねじジャッキ回転数（ローラカッタ送りに相当）と電流値（トルクに相当）

ねじジャッキ 送り回数	最大電流値：I (mA)
1	80
2	90
3	110
4	80
5	80
6	80
7	100
平均値	88.6

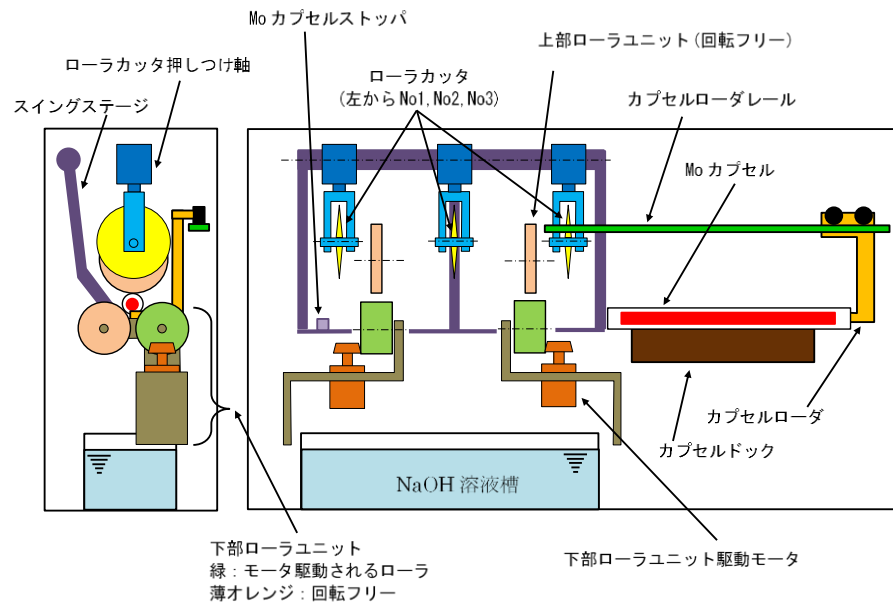


図 3. 1. 3 (2) -1 カプセル開封処理部イメージ図【R3 年度成果】

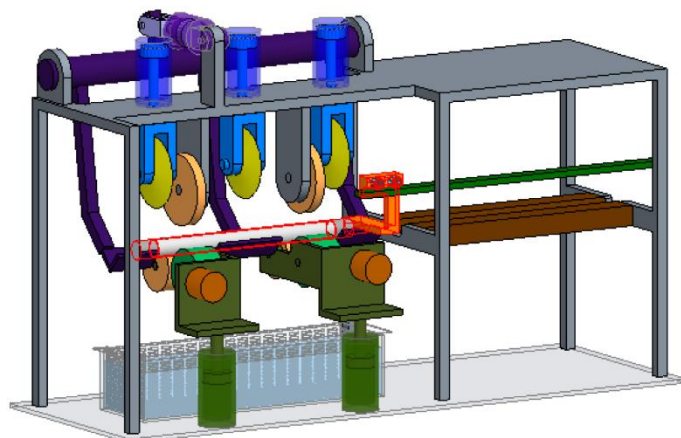


図 3. 1. 3 (2) -2 カプセル開封処理部 3D モデルイメージ図 (1/4)

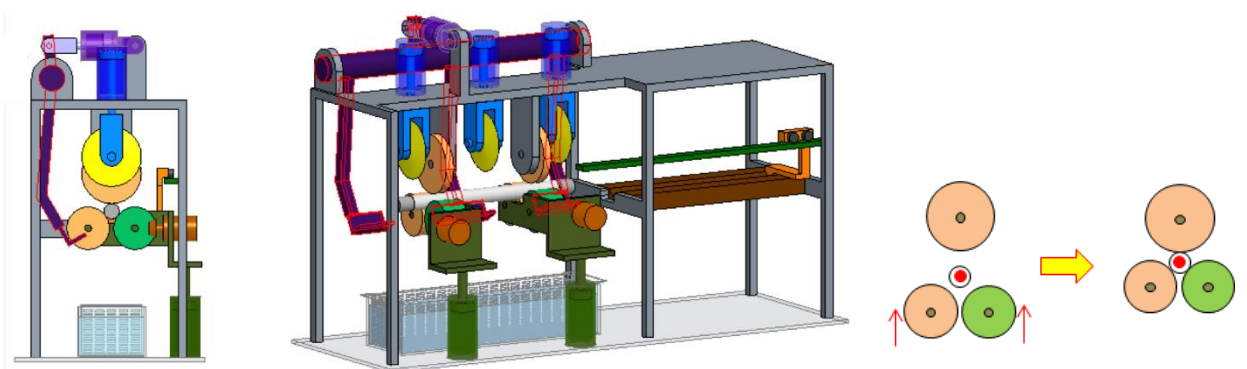


図 3. 1. 3 (2) -3 カプセル開封処理部 3D モデルイメージ図 (2/4)

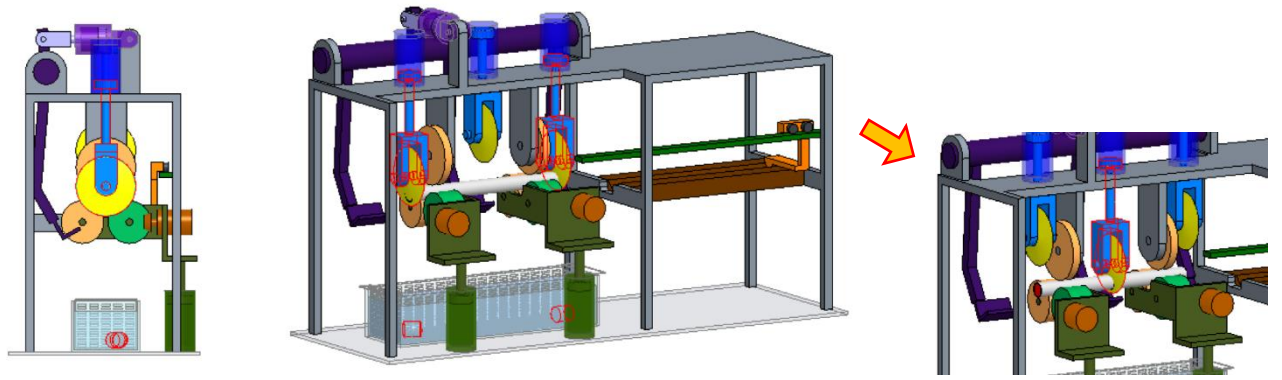


図 3.1.3(2)-4 カプセル開封処理部 3D モデルイメージ図 (3/4)

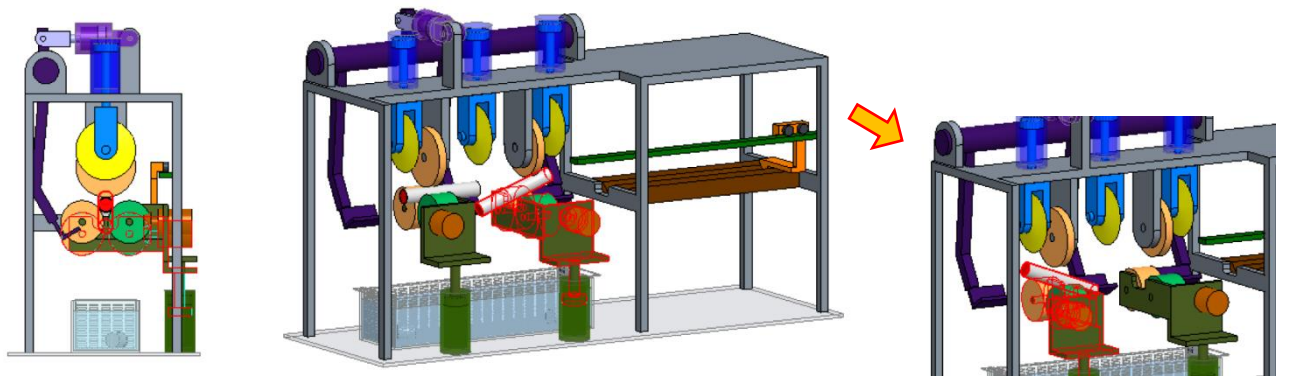


図 3.1.3(2)-5 カプセル開封処理部 3D モデルイメージ図 (4/4)

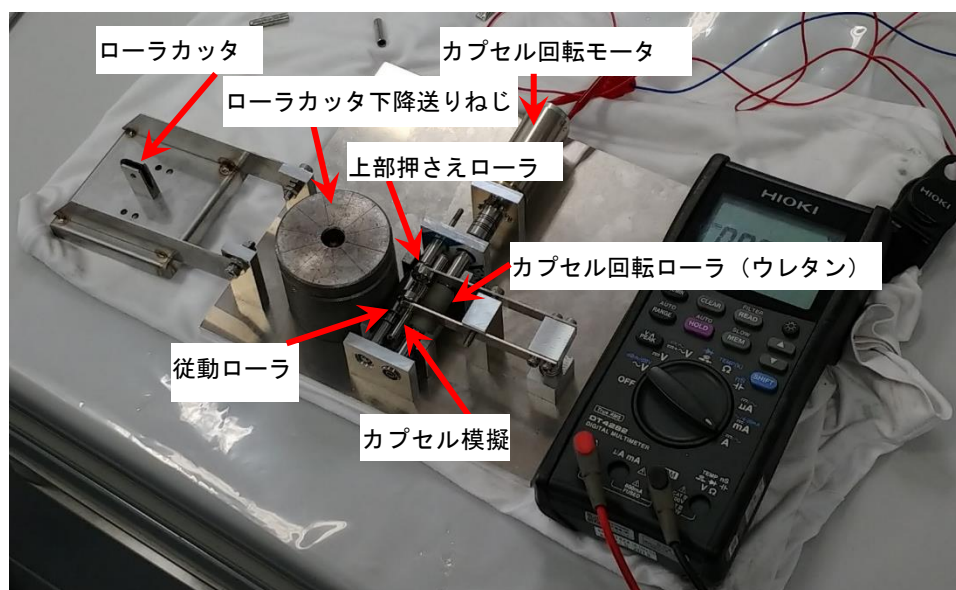


図 3.1.3(2)-6 要素試験治具

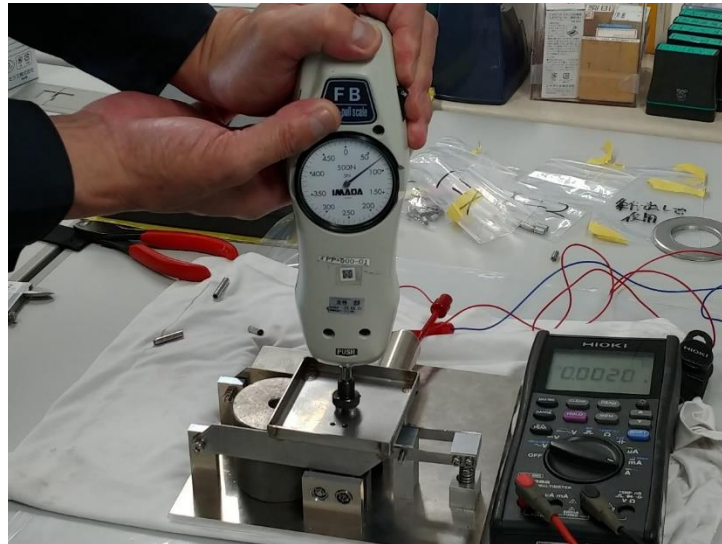


図 3. 1. 3(2)-7 ローラカッタ押し付け状況

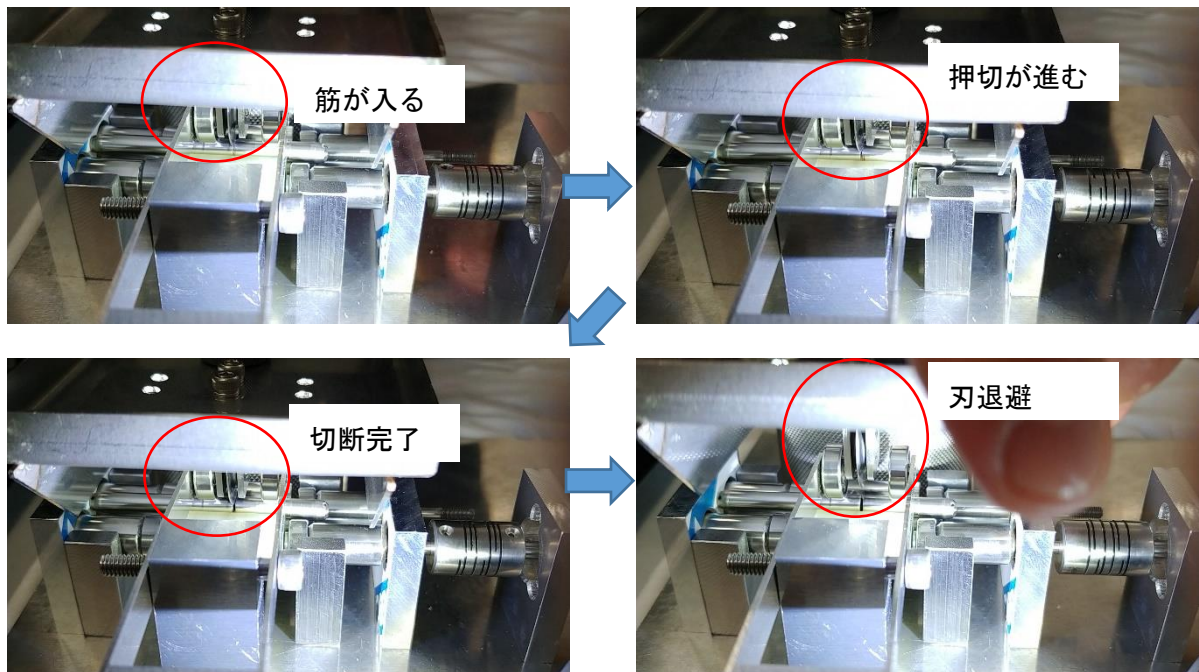


図 3. 1. 3(2)-8 ローラカッタによる切断状況



図 3. 1. 3 (2) -9 切断したカプセルの切り口

(3) 処理装置の概念設計

① MoO₃焼結体の応力測定

1) 目的

熱間等方圧加圧装置（HIP）法にて製作した高密度MoO₃焼結体について、照射試料形状（ペレット状（φ18～20×10 mm））へ加工する際に亀裂が発生し、加工作業が困難な状況となっている。このため、HIP焼結体について、焼結時に発生が予想される応力（残留応力）が加工時に与える影響を調べる。

2) 測定試料

応力測定に使用した試料について、表3.1.3(3)-1に示す。応力測定には、HIP焼結体（熱処理無（「HIP_M」と呼ぶ）及び熱処理有（「HIP_M(HI)」と呼ぶ）、放電プラズマ焼結法焼結体（SPS）、MoO₃始発粉末及びシリコン（Si）標準試料を用いた。測定ポイントを図3.1.3(3)-1に示す。なお、HIP_Mについて、応力測定に影響のあると思われる試料切断時の細かなキズが確認されたことより、試料表面の研磨前後についても測定を実施した。

3) 測定方法

本分析では、微小部X線回折分析（XRD）方法により残留応力の解析を行った。微小部XRD分析方法では、X線回折により得られたプロファイル（図3.1.3(3)-2）を基に、残留応力の算出に用いる回折ピークを選定し、残留応力値を算出する。なお、本測定にて使用した装置は、リガク社製微小部X線回折装置SmartLabである。測定機器及び分析条件については表3.1.3(3)-2に示す

4) 結果

各試料の測定結果を表3.1.3(3)-3～4に示す。

MoO₃始発粉末を含め、各焼結体試料において得られたX線回折プロファイルパターン（図3.1.3(3)-2）は類似しており、メインピークがOrthorhombic構造、サブピークがMonoclinic構造の2種類のMoO₃ピークが混在した構造であることが推測された。また、参考試料であるSPS焼結体及びMoO₃粉末については、HIPでの焼結体に比べMonoclinic構造のピークが弱い結果が得られた。これは、焼成時の圧力のかけ方の違い（SPS）及び試料ホルダーへの充填方法（粉末）が影響しているものと考えられる。得られたX線回折プロファイルパターンを基に、MoO₃(320)回折ピークを残留応力の算出に使用した。

各測定箇所について応力を算出した結果、HIP_Mにおいて測定位置による引張応力（試料中間）及び圧縮応力（試料外側、中央）の違いが観察された。他の試料については、主に圧縮応力が観察された。なお、標準試料である

Siの測定値は-13.5 MPaであった。

参考試料であるSPSにおいては、Si標準試料の誤差範囲内付近の数値であることより(MoO₃ ヤング率/ポアソン比：58 GPa/0.18)、試料の残留応力がほぼ存在しないと考えられ、そのため亀裂等が発生しないと推測される。

また、HIP_M(HT)においては、HIP焼結試料について焼戻し処理を施したことで、応力方向のバラつきが改善されたものと考えられる。その結果、焼戻し処理を行っていないHIP_Mと比べ、被覆除去等加工時の破損率が低下したものと推測される。

5)まとめ

HIP焼結体について、測定箇所によって応力方向に違いがあるが、焼戻し処理によって緩和される可能性が示唆された。安定して加工が可能であるSPS焼結体の残留応力値が-25~-29 MPa程度とSi標準試料の誤差範囲内程度であることより、この付近の残留応力値であれば、加工時の破損が減少することが考えられる。

HIP法とSPS法では、焼結時の圧力方向が異なっており(HIP法：全方向、SPS法：上下方向)、この圧力の差が残留応力に現れ、ペレット状への加工時の破損発生につながっている可能性が示唆された。

②Mo溶液処理装置の概念検討

1) 検討条件

a) 基本条件

照射済MoO₃ペレットを溶解するためのモリブデン(Mo)溶液処理装置の概念検討にあたっての基本条件を表3.1.3(3)-5に示す。

本検討では、放射化法による⁹⁹Mo/^{99m}Tc製造で有望とされている活性炭法及び溶媒抽出法の双方で使用可能な処理装置について実施した。

b) 処理プロセス

照射済MoO₃を溶解するためのMo溶液処理装置の検討にあたって、基本的な処理プロセスは、以下に示す3点とした。

- i) MoO₃を封入した照射済みターゲット(ステンレス鋼(SUS)容器)の6 M-水酸化ナトリウム(NaOH)での溶解
- ii) 得られたMo溶液からの不溶解残渣の除去
- iii) 放射化不純物の除去(操作システムは可能な限り自動化し、ホットセル内での遠隔操作に対応させる)

なお、溶解槽など接液部の材質は耐放射線、耐食性の材質を選定する。また、溶解槽は効率的にMoO₃を溶解できる機能(還元された不溶解MoO_{3-x}についても溶解可能とする)とする。溶解後の処理液については、不溶解性残渣及び不純物より生成する放射性元素Cs-134、Co-60、Nb-92mの除去機能について検討するものとした。

c) 照射ターゲットの溶解条件

照射ターゲットを溶解するにあたっての、照射ターゲットの形状等の条件及び溶解に使用する溶解液の条件を以下に示す。

i) 溶解する照射ターゲットの条件

封入容器材質：SUS304

封入容器寸法(切断時)：約45 mm(OD：約φ5 mm、ID：約φ4.5 mm)

封入容器内容積：0.72 cm³/SUS 容器1 個当り

容器内に封入するMoO₃量：600 g (864 g[※])

※：MoO₃量864 g 条件は参考として検討を行う。

ii) 使用する溶解液の条件

溶解液：6M-NaOH

溶解液量：MoO₃ 量の2倍当量(MoO₃+2NaOH→Na₂MoO₄+H₂O)

各MoO₃量の溶解に使用する 6M-NaOH 量を表3.1.3(3)-6 に示す。

2) 検討内容

処理装置の概念検討については、下記6項目について実施した。

- a) 処理プロセスにおけるフロー図の作成
- b) 溶解液量等を算出し、処理装置の溶解槽の概略寸法の決定
- c) 照射後に発生が予想される不純物の状態等の調査
- d) Mo溶液中の不溶性残渣及び不純物核種除去のための機能の検討
- e) Mo溶液処理装置の概略仕様をまとめ及び構成品リストの作成
- f) 検討結果を踏まえたMo溶液処理装置実機製作に係る課題点のまとめ

3) 検討結果

a) 処理プロセスフロー

今回の検討における基本の処理プロセスフローを図 3.1.3(3)-3 に、想定される機器フローシートを図 3.1.3(3)-4 に示す。

処理プロセスとしては、切断された照射試料を受取り、溶解槽へ添加・溶解し、不溶性残渣を除去した後、放射化不純物を除去していく。

本処理に必要なと想定される機器類は、照射試料を溶解するための溶解槽、ヒーター、攪拌機及び攪拌・酸化ガス挿入管、Mo 溶解液からの不溶性残渣除去用フィルター、Mo 溶解液用貯留タンク、放射化不純物除去装置、各液送・循環ポンプ及びガス排気用部である。

b) 溶解槽

照射試料溶解のための溶解槽について、概略寸法を決定するため、想定される MoO_3 照射試料重量(600 g 及び 864 g)が充填された SUS 製封入容器の個数を算出した。その結果を表 3.1.3(3)-7 に示す。各 MoO_3 照射試料を溶解する際の 6M-NaOH 溶液の添加量は表 3.1.3(3)-6 に示したとおりとした。

MoO_3 照射試料封入 SUS 容器を模擬した $\phi 5 \times 45$ mm 円筒を使い、5 L ビーカーを用いて必要容積の確認を行った。模擬試験時の写真(5L ビーカー)を図 3.1.3(3)-5 に、模擬試料及び 6M-NaOH 溶液を設定量添加した際の体積を表 3.1.3(3)-8 示す。

上記による検討の結果より、溶解槽は、 $\phi 200$ mm、高さ 270 mm、容積 5,000 mL とし、パイレックス製の冷却管と 6M-NaOH 供給口及び温度測定口を装備した設計とした。また、溶解槽は、中央に攪拌羽を置き、下部は液攪拌用と不溶性 MoO_{3-x} を酸化させるための酸素ガス等が通気できる構造とし(図 3.1.3(3)-6)、溶解を促すため溶解槽用マントルヒーターを設置した。

c) 照射後試料に含まれる放射化不純物

原子炉にて、原料である MoO_3 を照射した際に生成する放射化不純物についての調査を行った。JRR-3 水力照射設備にて MoO_3 を 7 日間照射した際の γ 線測定結果を図 3.1.3(3)-7 に示す。この結果、照射により、Mo-99 及び Tc-99m 以外の放射化元素として Cs-134、Co-60、Nb-92m の生成が確認された。

d) 不溶性残渣の除去

不溶性残渣としては、照射試料を封入している SUS 容器切断時に発生する金属屑及び不溶性 MoO_{3-x} を対象とした。不溶性残渣の除去フィルター材質として、ガラス製及び SUS 製を候補とした。各材質における比較結果を表 3.1.3(3)-9 に示す。この結果、内部状況の目視確認は不可であるが、耐圧性、耐アルカリ性及びコスト面において SUS 製がすぐれていることより、本検討においては SUS 製の焼結フィルターを選定することとした(図 3.1.3(3)-9)。

e) 放射化不純物の除去

MoO_3 照射による放射化不純物は、前述のとおり Cs-134、Co-60、Nb-92m が確認されている。これらの放射化不純物について、除去効率のデータのある有効な方法を調査した結果を表 3.1.3(3)-10 に示す。

一方、照射後試料を 6M-NaOH にて溶解した Mo 溶解液及び MEK による溶媒抽出後の γ 線測定結果を図 3.1.3(3)-8 に示す。この結果、Mo 溶解液には、Mo-99、Tc-99m の他に Nb-92m 及び K-40 が検出されたが、Tc-99m 回収液については Tc-99m のみが検出されており、溶媒抽出及びカラム通液により不純物核種が除去されたことが確認されている。

以上の結果、Tc-99m 製剤の基準を満たすための製薬メーカーに供給する Mo-99 溶液の仕様を決定する必要があるが、Mo-99 溶液の純度を上げるための各有力除去剤に

関する今後の課題を表 3. 1. 3(3)-11 に取りまとめた。

f) 溶解処理装置の仕様

前述までの検討結果より、溶解処理装置に使用する機器類について選定した。一覧を表 3. 1. 3(3)-12 に示す。溶解槽、冷却管及び溶解液タンクの材質をガラス製(パイレックス)、不溶性残渣等の除去フィルターや放射化不純物除去用フィルター等については SUS 製とした。なお、放射化不純物除去カラムへの充填剤については、今回の検討では未実施である。

4) まとめ

本検討の実施により、不純物の少ない Mo 溶解液を得るためのフロー及び使用機器類について見通しを得ることができた。

また、本検討により以下に示す課題が抽出された。今後、実機製作を行う場合においては、新たに検討を進めていく必要がある。

- ・ 放射化不純物 Cs-134、Co-60、Nb-92m 除去の最適条件の確立
- ・ 照射試料溶解後の SUS 製容器取出し方法
- ・ 交換部品(フィルター、残渣除去カラム)の取付け、取外し方法
- ・ 自動バルブの動作シーケンスの確立
- ・ 異常発生時(動作不良、漏洩)の対応策

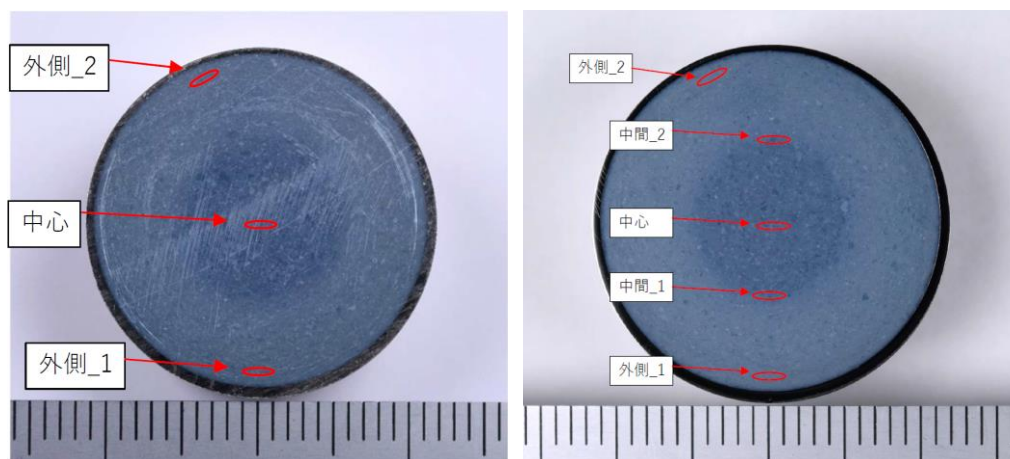


図3. 1. 3(3)-1 試料及び測定位置 (参考)

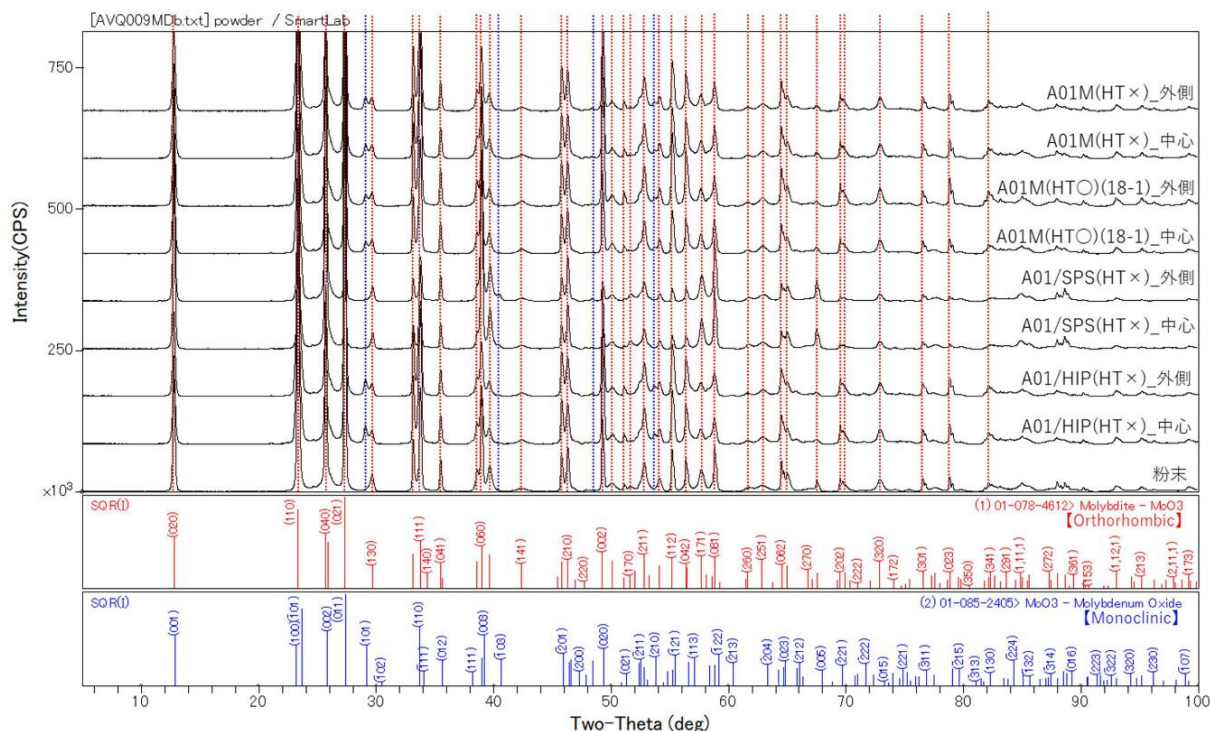


図3.1.3(3)-2 MoO₃X線回折プロファイル

表3.1.3(3)-1 測定試料一覧

試料名		状態・処理等
HIP_M		外被付
HIP_M(HT)		外被付 熱処理(200°C、6h)
HIP		外被無
SPS		参考試料
粉末	MoO ₃	始発粉末、参考試料
	Si標準粉末	参考試料

表3.1.3(3)-2 測定機器及び分析条件

広角X線回折測定(リガク社製 微小部X線回折装置 SmartLab)			
測定波長	CrK α (0.15418nm)	走査軸	2 θ / θ 連動
X線出力	45kV-200mA	走査法	連続走査
光学系	多層膜ミラー	走査範囲	5 \leq 2 θ \leq 100deg
ビーム径	500 μ m ϕ	走査速度	1.0deg/min
検出器	2次元半導体検出器	サンプリング	0.01deg
残留応力測定			
測定波長	CrK α (0.15418nm)	測定方法	側傾法

X線出力	45kV-200mA	測定指数	MoO ₃ (320)
光学系	多層膜ミラー	sin ² φ	0.1~0.6(等間隔6点)
ビーム径	500μm φ	走査範囲	68.5 ≤ 2θ ≤ 77.5deg
検出器	2次元半導体検出器	サンプリング	0.01deg
		積算時間	3600sec
X線回折プロファイル			
縦軸	回折強度 (cps)		
横軸	回折角度 (deg)		
回折条件	2d sin θ = n λ	d : 格子面間隔 (nm) θ : 回折角度 (deg) n : 反射時数 λ : 解析時のX線波長 CuK α (0.15406nm)	
X線回折標準データ集			
ICDD	International Center for Diffraction Data		

表3.1.3(3)-3 X線検出ピーク

試料名	測定位置	配向 (MoO ₃)		備考
		Orthorhombic	Monoclinic	
HIP_M	外側	◎	○	外被付、熱処理無
	中心	◎	○	
HIP_M(HT)	外側	◎	○	外被付、熱処理有
	中心	◎	○	
HIP	外側	◎	○	熱処理無
	中心	◎	○	
SPS	外側	◎	△	熱処理無
	中心	◎	△	
粉末 (MoO ₃)	—	◎	△	—

◎ : メインピーク ○ : サブピーク (確定) △ : サブピーク (不確定)

表3.1.3(3)-4 残留応力解析結果

試料名	測定領域	測定面	残留応力 (MPa)		備考 残留応力算出時の ヤング率/ポアソン比 (MoO ₃)
			58Gpa/0.18	210GPa/0.315	
HIP_M	外側_1	研磨前	+22.64±5.48	+34.22±8.28	外被付、 熱処理無
		研磨後	-38.21±1.37	-57.77±2.07	
	外側_2	研磨前	-22.64±4.21	-34.22±6.36	
		研磨後	-5.19±2.64	-7.85±3.99	
	中間_1	研磨後	+4.57±3.20	+6.90±4.84	
	中間_2	研磨後	+17.24±5.55	+26.06±8.40	

	中心	研磨前	$+5.19 \pm 3.05$	$+7.85 \pm 4.61$	
		研磨後	-4.98 ± 3.74	-7.53 ± 5.65	
HIP_M(HT)	外側	-	-16.82 ± 3.99	-25.42 ± 6.03	外被付、 熱処理有
	中心	-	-34.06 ± 5.22	-51.49 ± 7.89	
HIP	外側	-	-44.23 ± 3.96	-66.87 ± 5.89	熱処理無
	中心	-	-43.81 ± 3.45	-66.24 ± 5.21	
SPS	外側	-	-29.90 ± 4.31	-45.21 ± 6.51	熱処理無
	中心	-	-25.55 ± 3.56	-38.62 ± 5.38	
粉末 (参考値)	MoO ₃	-	$+28.45 \pm 1.77$	$+43.01 \pm 2.68$	
	Si 標準	-	-13.5 ± 16.57		

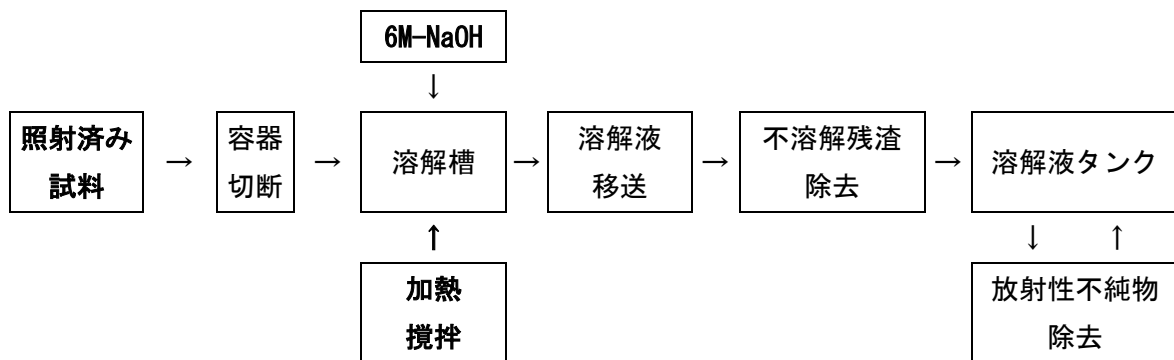


図 3.1.3(3)-3 処理プロセスフロー

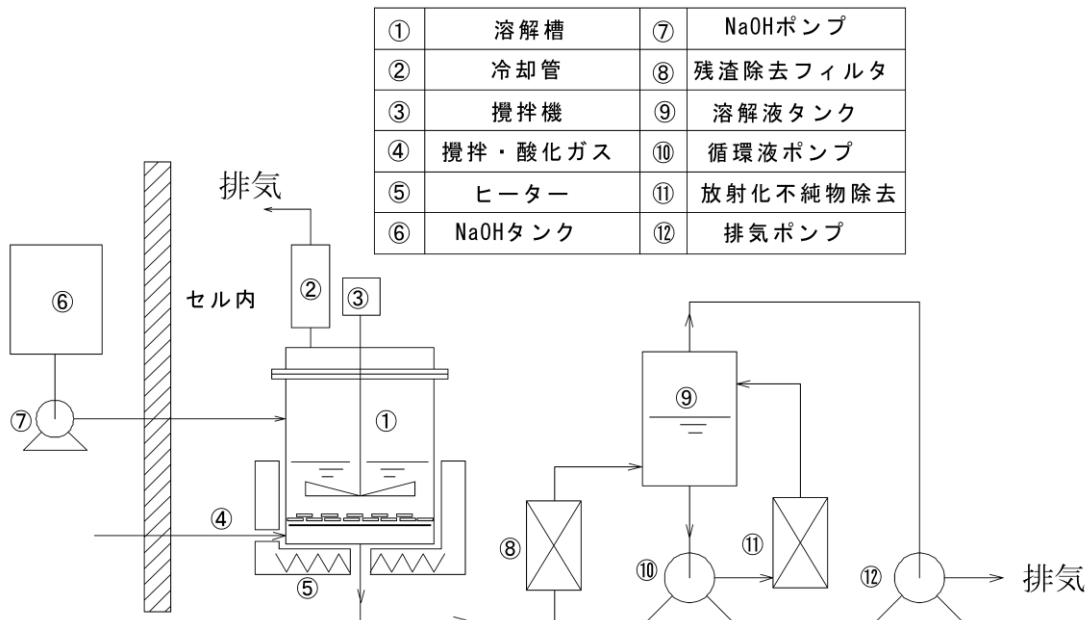


図 3.1.3(3)-4 機器フローシート



図 3.1.3(3)-5 溶解槽容量模擬試験

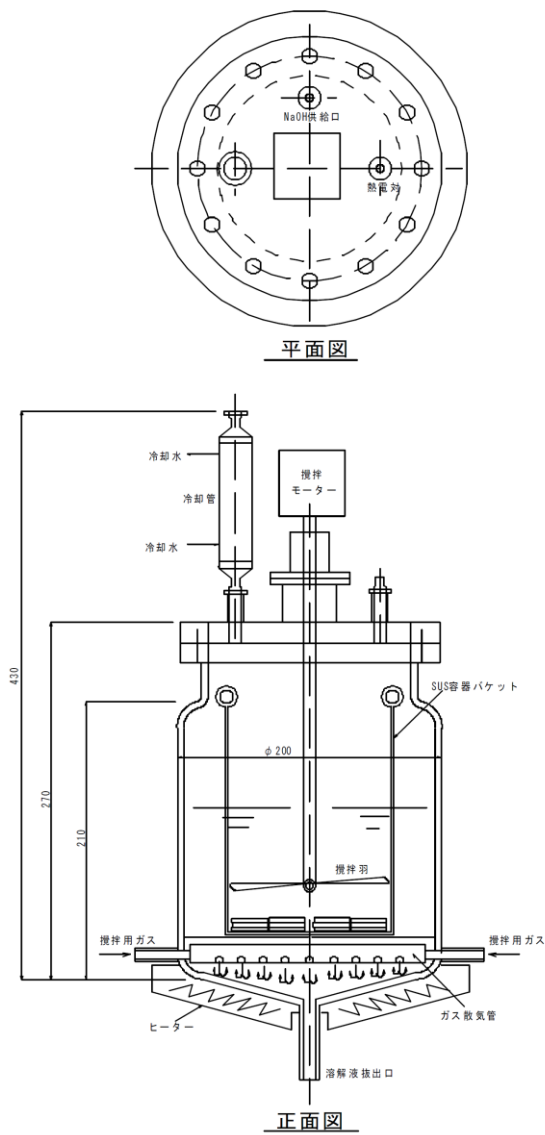


図 3.1.3(3)-6 溶解槽概略設計図

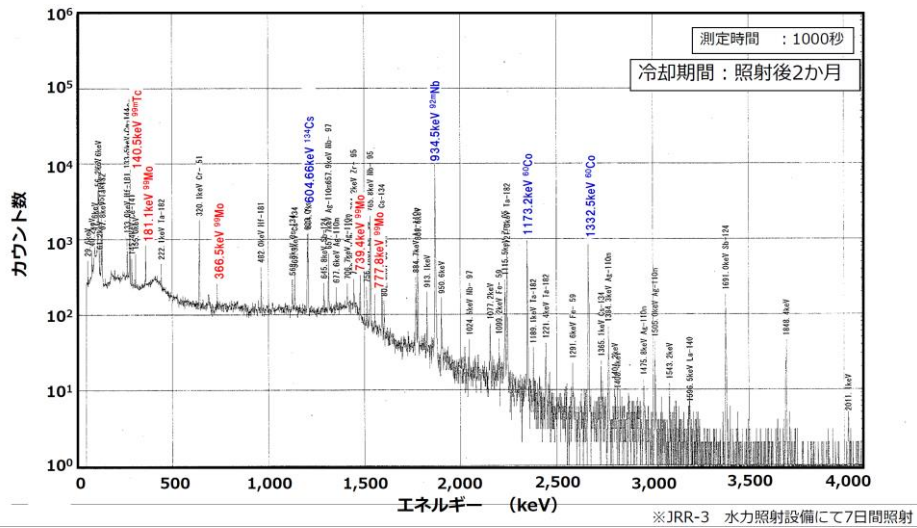
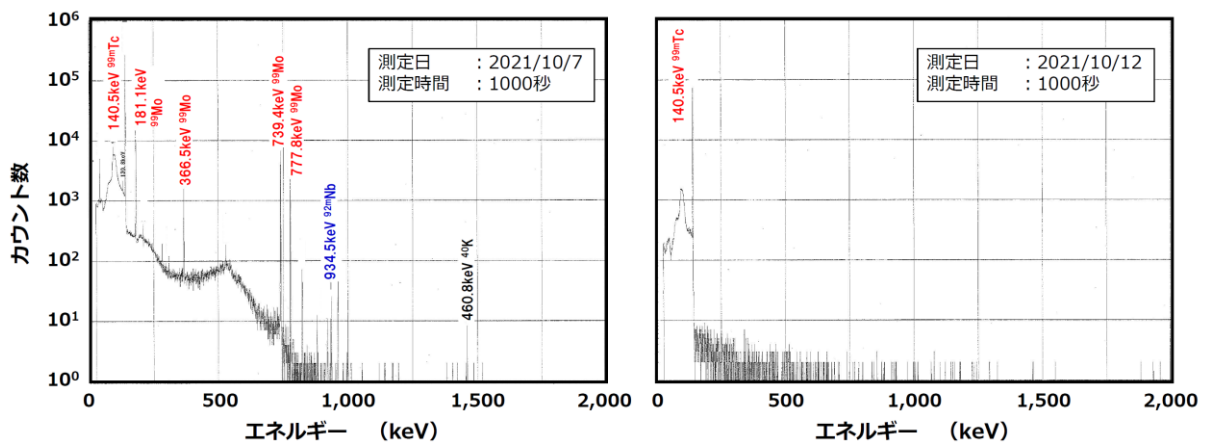


図 3. 1. 3 (3)-7 照射後 MoO₃ の Ge 半導体検出器測定結果

Mo溶液のγ線スペクトル(溶媒抽出前)

^{99m}Tc溶液のγ線スペクトル(Run 1)



測定時期：照射後 1～2週間程度

図 3. 1. 3 (3)-8 Mo 溶液及び Tc-99m 溶液の Ge 半導体検出器測定結果

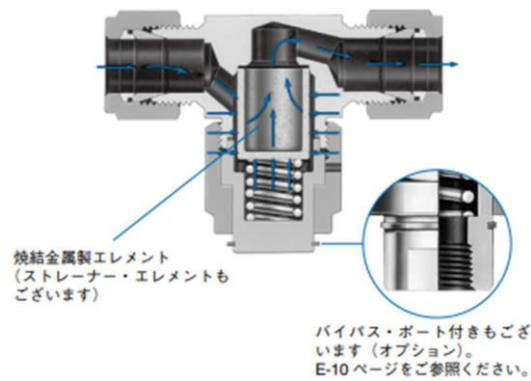


図 3. 1. 3 (3)-9 不溶性残渣除去フィルター

表 3.1.3(3)-5 Mo 処理装置の基本条件

	活性炭法	溶媒抽出法
MoO ₃ 仕様	純度 99.9% (太陽鋇工社製)	純度 99.99% (太陽鋇工社製)
溶解 MoO ₃ 重量	750 g	600 g
6M-NaOH 液量	1735 mL	1500 mL
Mo 溶液量	約 2 L	約 2 L
Mo 濃度	250 mg/cc	200 mg/cc
スペクトル (Mo 溶液)	あり	あり
スペクトル (^{99m} Tc 回収液)	あり	あり

表 3.1.3(3)-6 NaOH 添加量

溶解 NaOH 濃度 (N)	6	
溶解 MoO ₃ 重量 (g)	600	864
溶解 MoO ₃ 当量 (mol)	4.2	6.0
6M-NaOH 量 (ml)	1389	2001

Mo : 95.95 g/mol、 MoO₃ : 143.95 g/mol

表 3.1.3(3)-7 各 Mo 重量時における SUS 製封入容器の個数

MoO ₃ 重量	600g		864g	
MoO ₃ 充填 SUS 容器 個数	194	個	279	個

表 3.1.3(3)-8 照射試料溶解時模擬体積

	MoO ₃ 600g		MoO ₃ 868g	
SUS 容器充填個数	194	個	279	個
ビーカー容積	5	L	5	L
6M-NaOH 仕込み	1,400	mL	2,000	mL
全体容積	1,750	mL	2,350	mL

※ 5L ビーカー : 外径 φ200mm、高さ 250mm

表3.1.3(3)-9 不溶解性残渣除去フィルター材質比較

材質	ステンレス	ガラス
内部可視化	内部状況確認不可	内部状況確認可
強度	耐圧性有	耐圧性無
耐食性(酸)	特定の酸(HNO ₃)に耐食性有	HF以外への耐食性有
耐食性(アルカリ)	耐食性有	強アルカリには耐食性無
コスト	既製品があり比較的安価	形状によっては製作コスト高
耐放射線性	放射化不純物生成の可能性有	耐放射線性有

表3.1.3(3)-10 放射化不純物除去方法調査結果

No.	材料(除去剤)	対象元素	概要	性能
1	活性炭	Nb	活性炭を充填した除去カラムに高濃度Mo溶液中にNb-95を添加した液を除去カラムに通	90%以上の除去性能が得られた。
2		Cs	活性炭を充填した除去カラムに海水中にCs-137を添加し、除去カラムに通液	10%以上の除去性能が得られた。
3		Co	活性炭を充填した除去カラムに海水中にCo-60を添加し、除去カラムに通液	50%程度の除去性能が得られた。
4	還元鉄添着活性炭	Cs	還元鉄活性炭を充填した除去カラムに海水中にCs-137を添加し、除去カラムに通液	数%程度の除去性能が得られた。
5		Co	還元鉄活性炭を充填した除去カラムに海水中にCo-60を添加し、除去カラムに通液	30%程度の除去性能が得られた。
6	タリオン酸添着活性炭	Cs	タリオン酸活性炭を充填した除去カラムに海水中にCs-137を添加し、除去カラムに通液	数%程度の除去性能が得られた。
7		Co	タリオン酸活性炭を充填した除去カラムに海水中にCo-60を添加し、除去カラムに通液	数%程度の除去性能が得られた。
8	紺青活性炭(PB-AC)	Cs	紺青活性炭を充填した除去カラムに高濃縮海水中にCs-137を添加し、除去カラムに通液	除染効率(DF)は10E+4が得られた。

表3.1.3(3)-11 各有力除去剤に関する今後の課題

対象元素	有力な材料(除去剤)	今後の課題
Nb	活性炭	空塔速度SVなどを変えて最適な通水条件を探す。循環運転の効果を確認する
Cs	紺青活性炭	高濃度Mo溶液中での性能を確認。また、溶出成分の確認。
Co	活性炭	空塔速度SVなどを変えて最適な通水条件を探す。循環運転の効果を確認する

表3.1.3(3)-12 溶解処理装置に使用する機器類一覧

機材	区分	仕様
溶解槽	セル内	容積：5 L、材質：パイレックス
冷却管	セル内	リービッヒ型、材質：パイレックス
攪拌器	セル内	20～200rpm、羽根材質：SUS
ガス供給部	セル内	0.5～5L/min、酸素・窒素ガス
ヒーター	セル内	マントル式ヒーター、2 kW程度
NaOHタンク	セル外	容積：5 L、材質：PP
NaOH供給ポンプ	セル外	0.2～2L/min、材質：SUS
残渣除去フィルタ	セル内	金属焼結フィルタ、ラインフィルタ、材質：SUS316
溶解液タンク	セル内	容積：5 L、材質：パイレックス
循環液ポンプ	セル内	流量未定、材質：SUS
放射化不純物除去カラム	セル内	充填物、充填量これから検討、材質：SUS
排気ポンプ	セル内	ダイヤフラム型、排気量：50L/min
バルブ	セル内	自動弁open/shut、接液部PP、ピーク

3.1.4 Mo-98 回収プロセスの開発(再委託先：MHI、JAEA) 【R2-R4】

【R2-R3】

供給コストの低減を図るためには使用済みMoからMo-98を回収・再利用することが望ましいことから、医薬品メーカーから回収するMoからのMo-98回収プロセスの基本概念について検討を行った。また、医薬品メーカー等へのヒアリング結果から、医療機関からの使用済みMo回収形態はジェネレータ用アルミナ吸着体として、回収プロセスの検討を行った。

使用済みMoリサイクル装置の概念検討では、MoO₃を回収するまでの工程をMo溶離プロセス、Mo酸回収プロセス、Mo酸精製プロセス、MoO₃焼成プロセスの4つのプロセスに分け、各工程における処理条件により、93.3%のMo回収率を得られることを明らかとした。また、得られたMoO₃中の不純物は少なく、高純度であった。さらに、これらの結果から各工程におけるMo回収率を算出し、1 kgのMoO₃を回収するために必要となる使用済みMoリサイクル装置の規模を概算した。

(1) 概念設計 (MHI) 【R4】

本項では、医薬品メーカーから回収したマスターミルクから回収した廃アルミナ吸着体からMo-98を回収することを前提として、3.1.4(2)のコスト評価の中で実施した処理装置検討の要素試験結果を踏まえて、令和3年度に検討したプロセスフローやマスバランス評価を精緻化した結果を示す。Mo-98回収プロセスを図3.1.4(1)-1に、マスバランス評価における前提条件を表3.1.4(1)-1に、マスバランス評価結果を図3.1.4(1)-1に示す。なお、要素試験等で評価していない項目(オフガスへのNH₃、HCl移行率等)は、仮定を設定して評価した。

マスバランス評価の結果、Mo-99供給プロセスにおける1バッチ分の廃吸着体(約25 kg)からのMo-98回収量は476 gとの試算結果を得た。従って、回収後に同量のMo-98ペレットを作製するためには、Mo-98として35 gの追加が必要となる。また、Mo-98回収に必要な試薬等として、1 mol/L NH₃水溶液が59 L、洗浄水が238 L、11.3 mol/L HCl水溶液が4 L必要との試算結果を得た。

Mo-98回収プロセスにおける廃棄物としては、主に塩化物イオンやアンモニウムイオンを含む希薄水溶液である廃液が約43 L発生すると想定される。また、オフガス①では水蒸気、オフガス②では塩化アンモニウムを含む蒸気が発生すると推察される。オフガス②には水蒸気とともに塩化物イオンやアンモニウムイオンが排気系統に移行する可能性が高いため、オフガスの洗浄塔や吸収塔等の設置を検討する必要がある。従って、実機プロセスにおける排気系統を検討する際は、オフガスへの各成分移行率を把握するための基礎データを取得する必要がある。

また、回収したMoO₃中の不純物は主にAlやNaと想定されるが、含有量は1%未満であり純度の高いMoO₃が回収可能と考えられる。加えて、本評価においては、要素試験で実施した精製工程を考慮していないため、精製工程を実施することでより純度の向上が見込まれる。なお、本評価では、3.1.3項で検討したMo-99供給プロセスで排出される廃アルミナ吸着体のみの回収を想定しているため、廃アルミナ吸着体以外の発生要因となる不純物(プロセスフロー上の(311))は考慮していない。さらに、放射化核種の崩壊に伴う不純

物についても質量比としては微量のため、本評価では考慮していない。

また、Mo生成事業のコスト評価にあたり、コスト評価の入力となるMo-99生成量を評価した。本評価では、MoO₃ペレットを封入したカプセルを56個連結したものを1本の照射ターゲットとし、4本の照射ターゲットをPWR炉心内で同時に7日間照射した場合のMo-99の生成量を評価した。

Mo-99の生成量は、MoO₃が炉心内に装荷された後、中性子照射され、取り出し後に冷却されるまでの期間において、Mo-98を起点とした核種の崩壊及び生成を考慮して評価した。次に生成量の評価時点は、取り出し直後、取り出してから1日冷却した後6日経過（取り出し後7日経過）した時点（6-day Ci/週の評価時点）、及び2日冷却した後6日経過（取り出し後8日経過）した時点（6-day Ci/週の評価時点）とした。さらに、取り出し直後にMo-99の生成量が10%減少（ターゲットからMo-99を抽出するまでの減少分として想定）した場合も評価した。

評価ケースは令和3年度評価と同じく、3ケースとし、Mo-98の組成は天然Mo及び98%濃縮Moの2種類とした。

評価条件（共通条件）を表3.1.4(1)-2に、評価条件（個別条件）及びMo-99生成量評価結果を表3.1.4(1)-3～表3.1.4(1)-4に示す。

表 3.1.4(1)-1 Mo-98 回収プロセス マスバランス評価における前提条件

項目		値	備考
廃吸着体	Mo-98 含有量	511g	Mo-99 供給プロセス 1 回分
	吸着体量	約 25kg	
NH ₃ 水溶液	濃度	1 mol/L	要素試験結果 (3.1.4(2)参照) に基づく。 *1 : 生理食塩水や吸着 Mo 含む
	液量	2.4mL/g-アルミナ*1	
洗浄水	液量	9.6mL/g-アルミナ*1	
Mo 溶離率		96%	要素試験結果 (3.1.4(2)参照) に基づく。
アルミナ中 Al の溶出量		0.04wt%	令和 2 年度成果に基づく。
蒸発濃縮倍率		7.4 倍	要素試験結果 (3.1.4(2)参照) に基づく。
HCl 水溶液	濃度	11.3 mol/L	要素試験結果 (3.1.4(2)参照) に基づく。 *2 : 処理液量に対する添加液量比
	濃縮時添加量	0.0066mL/mL*2	
	酸沈時添加量	0.049mL/mL*2	
オフガス①への NH ₃ 移行率		0%	仮定値 ※HCl により中和しており、 オフガス①は水蒸気のみと仮定
オフガス①への HCl 移行率		0%	
ろ過後 MoO ₃ の含水率		7wt%	要素試験結果 (3.1.4(2)参照) に基づく。
Mo 回収率		97 %	要素試験結果 (3.1.4(2)参照) に基づく。 ※ろ過工程等の損失含む
オフガス②への NH ₃ 移行率		99%	仮定値 ※MoO ₃ 中の塩化アンモニウムは 焼成時に熱分解され除去されると仮定
オフガス②への HCl 移行率		99%	

表 3.1.4(1)-2 評価条件 (共通条件)

項目		条件
MoO ₃ 密度		4.7[g/cm ³]
Mo-98 組成 (初期組成)	天然 Mo	24.4[atom%]
	濃縮 Mo	98[atom%]
理論密度 (%T. D.)		97[%]
カプセル材質		SUS304
中性子束		PWR の中性子束を想定

表 3.1.4(1)-3 評価条件（個別条件）及び評価結果（天然 Mo）

項目		ケース 1	ケース 2	ケース 3
MoO ₃ ペレット外径[mm]		3.9	4.4	4.4
MoO ₃ ペレット高さ[mm] (カプセル内の装荷部長さ)		43.4	45.6	50.0
MoO ₃ 装荷重量[g]		517	709	778
Mo-99 生成量 評価値	取り出し直後 [Ci] ([Bq])	780 (2.9E+13)	1030 (3.8E+13)	1130 (4.2E+13)
	取り出してから 1 日冷却後、 6 日経過時点[6-day Ci/週] ([Bq])	130 (4.9E+12)	180 (6.5E+12)	190 (7.1E+12)
	取り出してから 2 日冷却後、 6 日経過時点[6-day Ci/週] ([Bq])	100 (3.8E+12)	140 (5.0E+12)	150 (5.5E+12)
Mo-99 生成量 評価値 (減少割合 10% を考慮)	取り出し直後[Ci] ([Bq])	700 (2.6E+13)	920 (3.4E+13)	1010 (3.7E+13)
	取り出してから 1 日冷却後、 6 日経過時点[6-day Ci/週] ([Bq])	120 (4.4E+12)	160 (5.8E+12)	170 (6.4E+12)
	取り出してから 2 日冷却後、 6 日経過時点[6-day Ci/週] ([Bq])	90 (3.4E+12)	120 (4.5E+12)	130 (5.0E+12)

表 3.1.4(1)-4 評価条件（個別条件）及び評価結果（濃縮 Mo）

項目		ケース 1	ケース 2	ケース 3
MoO ₃ ペレット外径[mm]		3.9	4.4	4.4
MoO ₃ ペレット高さ[mm] (カプセル内の装荷部長さ)		43.4	45.6	50.0
MoO ₃ 装荷重量[g]		517	709	778
Mo-99 生成量 評価値	取り出し直後 [Ci] ([Bq])	2470 (9.1E+13)	3220 (1.2E+14)	3530 (1.3E+14)
	取り出してから 1 日冷却後、 6 日経過時点[6-day Ci/週] ([Bq])	420 (1.6E+13)	550 (2.0E+13)	600 (2.2E+13)
	取り出してから 2 日冷却後、 6 日経過時点[6-day Ci/週] ([Bq])	330 (1.2E+13)	430 (1.6E+13)	470 (1.7E+13)
Mo-99 生成量 評価値 (減少割合 10% を考慮)	取り出し直後[Ci] ([Bq])	2220 (8.2E+13)	2890 (1.1E+14)	3170 (1.2E+14)
	取り出してから 1 日冷却後、 6 日経過時点[6-day Ci/週] ([Bq])	380 (1.4E+13)	500 (1.8E+13)	540 (2.0E+13)
	取り出してから 2 日冷却後、 6 日経過時点[6-day Ci/週] ([Bq])	290 (1.1E+13)	380 (1.4E+13)	420 (1.6E+13)

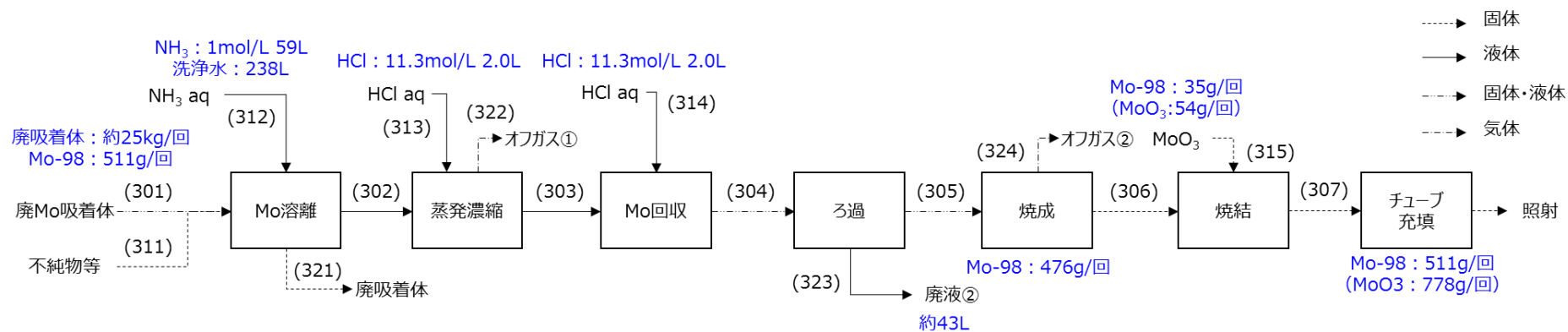


図 3.1.4(1)-1 Mo-98 回収プロセス

(2) コスト評価 (JAEA) 【R4】

① モリブデン吸着済アルミナからのMo溶離/回収の検討

1) 目的

これまでの成果では、模擬Mo溶離液から高い回収率でMoO₃を得られることを明らかにし、Moリサイクル装置の規模の概念検討まで実施した。しかし、実用的にMo吸着体からMoO₃を回収する場合、Mo吸着体であるアルミナへのMo吸着量は一定とは限らず、個体によって、ある程度のバラつきが生じると推測される。そこで、本項目では実際にMo吸着させたアルミナを準備し、令和3年度に概念検討した処理条件によってMoO₃として得られるMo回収率を調査した。

2) 試験

a) Mo吸着済みアルミナの準備

Mo吸着済みアルミナとして、合計500 gのアルミナを処理した。まず、500 gの内300 gについては、アルミナ50 gに対してモリブデン酸ナトリウム水溶液(10 g-Mo/L, pH4)を1 L添加し、30分ごとに攪拌しながら室温で3時間Mo吸着させた。Mo吸着後、イオン交換水3 L(500 mL×6回)で洗浄し、模擬ミルク操作として生理食塩水200 mL(50 mL×4回)に浸漬した後、デカンテーションにより生理食塩水を抜き取った。残りの200 gについては、アルミナ100 gに対してモリブデン酸ナトリウム水溶液を2 L添加し、30分ごとに攪拌しながら室温で3時間 Mo吸着後、イオン交換水6 L(500 mL×12回)で洗浄した。その後、同様に模擬ミルク操作として生理食塩水400 mL(100 mL×4回)に浸漬後、デカンテーションにより生理食塩水を抜き取った。

デカンテーション後のアルミナはすべて混ぜ合わせ、湿潤状態のままMo回収試験に用いた。この時、湿潤状態のMo吸着済みアルミナは864.6 gであった。

Mo吸着済みアルミナのMoとNaの含有濃度を表3.1.4(2)-1に示す。Mo吸着済みアルミナのMo吸着量は37 mg-Mo/gであった。

b) モリブデン溶離プロセス

この工程では、Mo吸着済みアルミナからMoを溶離し、Mo溶離液を得た後、溶液を加熱させることでMoを濃縮させる。

まず、Mo吸着済みアルミナをガラスビーカーへ移し、Mo吸着済みアルミナに残存している生理食塩水量を考慮して、1 mol/Lアンモニア水2 Lとなるようにイオン交換水と25 %アンモニア水を投入した。これを90 °Cで4時間攪拌して、Moを溶離させた。冷却後、デカンテーションにより上澄み液を抜き取り、ろ過した。次に、洗浄処理として、イオン交換水2 Lを投入し、室温で30分間攪拌後に静置した後、デカンテーションにより上澄み液を抜き取り、ろ過した。この洗浄操作を4回繰返した。洗浄後は残ったアルミナに対して吸引ろ過を施した。Mo溶離後の上澄み液と洗浄液を合わせてMo溶離液とした。Mo溶離液の全量は9805 mLであった。Mo溶離後のアルミナ

は105 °Cに設定した恒温槽で1晩乾燥させた。

Mo溶離液の分析結果を表3.1.4(2)-2に、Mo溶離後アルミナの分析結果及びMo溶離率を表3.1.4(2)-3に示す。Mo溶離処理と洗浄処理の結果、Mo溶離率は96.1 %であった。

その後、昨年度20 mg-Mo/gのMo吸着量と仮定したアルミナにおいて最適回収条件であったMo濃度13.6 g/LとなるようにMo溶離液を加熱濃縮(濃縮倍率7.37倍)した。この際、濃縮時のアンモニアの蒸発や水酸化物の生成などを抑えるため、35 %塩酸(11.3 mol/L HCl)を65 mL投入して中和した後に濃縮を行った。さらに、Mo濃縮後にろ過を行った。Mo溶離液の濃縮前後の分析結果を表3.1.4(2)-4に示す。

c) モリブデン酸回収プロセス

本工程では、加熱濃縮したMo溶離液から、MoO₃の原料となるモリブデン酸を得る。

80 °Cに昇温したMo濃縮後液に35 %塩酸(11.3 mol/L HCl) 65 mLを投入後、1時間攪拌を行い、モリブデン酸を沈殿生成させた。冷却後、吸引ろ過を行い、得られた粗モリブデン酸を105 °Cの恒温槽内で1晩乾燥させた。

Mo濃縮後液とろ液の分析結果及び粗モリブデン酸の回収率を表3.1.4(2)-5に示す。粗モリブデン酸回収の結果、回収率は97.3 %であった。得られた粗モリブデン酸の分析結果を表3.1.4(2)-6に示す。粗モリブデン酸中のNa含有量は0.033 wt%と低く、次工程の精製工程を省略可能な不純物量であった。

d) モリブデン酸精製プロセス

前工程で不純物含有量の少ない粗モリブデン酸が得られたが、令和3年度概念検討した処理手順に従い、本工程では粗モリブデン酸に残存する不純物元素を除去する。

粗モリブデン酸にイオン交換水300 mLとアンモニア水24 mLを投入して溶解した。溶解後、80 °Cに昇温して35 %塩酸(11.3 mol/L HCl) 35 mLを投入し、1時間攪拌を行うことでモリブデン酸を沈殿生成させた。冷却後、吸引ろ過を行い、得られた精製モリブデン酸を105 °Cに設定した恒温槽内で1晩乾燥させた。

ろ液の分析結果及び精製モリブデン酸の回収率を表3.1.4(2)-7に示す。Mo回収率は99.5 %と高い結果が得られた。得られた精製モリブデン酸の分析結果を表3.1.4(2)-8に示す。得られた精製モリブデン酸中の不純物含有量は、Al <0.001 %、Na 0.001 %と極めて高純度であった。

e) 三酸化モリブデン焼成プロセス

最終工程として、得られた精製モリブデン酸を焼成して三酸化モリブデンとする。

まず、精製モリブデン酸を磁製皿に乗せ、電気炉に挿入した。焼成温度470 °C、昇温2時間、保持3時間の条件で焼成させた結果、三酸化モリブデン22.80 gを回収した。

得られた三酸化モリブデンの分析結果を表3.1.4(2)-9に示す。不純物はほぼ含まれていなかった。また、三酸化モリブデン焼成プロセスでのMo回収率は、取扱いロスなどを加味して99.9%とした。

3) まとめ

一連の処理プロセスにおける、各工程のMo回収率及び総合収率を表3.1.4(2)-10に示す。

令和3年度概念検討した4つのプロセスからなるMo回収処理の総合収率は92.9%となり、回収したMoO₃粉末の不純物も極めて低い量であった。この結果から、令和3年度検討した20 mg-Mo/gのMo吸着量から今年度実施したMo吸着量37 mg-Mo/gのMo吸着量の間のアルミナであれば、令和3年度概念検討したMoリサイクル装置により、Mo回収率90%以上かつ極めて高純度のMoO₃粉末を回収可能な見通しが得られた。

② 各Tc-99m抽出方法への適応性

現在、Mo-99からTc-99mを抽出する方法として、本項目で検討したクロマトグラフィー法⁽¹⁾の他、国内においては溶媒抽出法⁽¹⁾及び活性炭法⁽²⁾が検討されている。各方法から発生するMoを含む廃棄物の比較(概算値)を表3.1.4(2)-11に示す。ここで、クロマトグラフィー法については、令和3年度の概念検討を元にMoリサイクル装置規模を決定していることから、令和3年度の模擬Mo溶離液による値を示している。表に示すとおり、溶媒抽出法及び活性炭法から発生するモリブデン酸ナトリウム水溶液のMo濃度はクロマトグラフィー法から得られるMo溶離液よりも極めて高いため、希釈することでMo濃度を調整することが可能である。また、溶媒抽出法のモリブデン酸ナトリウム水溶液に不純物として含まれるMEKは、Mo回収率に大きく影響しないことが報告されており⁽¹⁾、なおかつ希釈操作によってMEKの影響はより小さくなると推測できる。したがって、本項目で検討したMo回収プロセスは、その他のTc-99m抽出方法に対しても適用可能な見通しを得ている。

③ Mo回収結果に基づくコスト評価

本研究で実施したMo-99/Tc-99m製造基本フローに基づき、Mo回収に係る有効性評価を行った。Mo-99/Tc-99m製造基本フロー(案)を図3.1.4(2)-1に示す。本コスト評価にあたっては、図3.1.4(2)-1に示す「当該事業で実施した範囲」、「今後、更に検討が必要な範囲」における想定額を設定し、現在のTc-99mの薬価(テクネシンチ注(285円/10 MBq)の薬価を基準)⁽³⁾との比較を行うことで検討した。Mo-99溶液の製造コストの評価に係る主な前提条件を以下に示す。

- ・ 照射ターゲット費に含まれる原料費の試算は、Mo-98濃縮度98%、Mo回収率は90%とする。Mo-99製造期間は、30年間として、必要となる濃縮Mo-98原料を平均化する。
- ・ PWRでのターゲットの照射期間を7日間、照射は4本のカプセルを用い、毎週照射し、1年間に生成するMo-99量を用いる。

- ・ 照射後、Mo-99溶液を製造し、製薬メーカーがMo-99溶液を受け取るまでの期間を3日後、5日後、7日後として、Tc-99m溶液を製造するために必要なMo-99溶液の製造コストを評価し、現行のTc-99m製品の薬価に占める比率として比較する。
- ・ Mo-99製造施設等の設備関係は30年、装置関係は15年の耐用年数を想定し、これらの設備・装置の年間維持費は考慮する。
- ・ PWRでの照射料金などの現時点で評価が困難なものについては、任意の想定額とする。なお、Mo-99溶液からTc-99m溶液を精製・抽出する費用については、Tc-99m精製・抽出方法が選定されていないことから考慮しない。
- ・ 濃縮Mo-98原料と天然Mo原料との比較は、Mo回収のための設備・装置の整備に係る有無、Mo回収費、ターゲット製作費等を想定した評価とする。なお、天然Mo原料を使用する場合、Mo回収は想定しない。

製薬メーカーがMo-99溶液の受取り期間を考慮したTc-99m溶液を製造するまでの薬価に占めるMo-99溶液の製造コストの割合を図3.1.4(2)-2に示す。この結果、濃縮Mo-98原料費は高価であるが、使用後に回収し、回収した濃縮Mo-98原料をリサイクルすることにより、Mo-99溶液の製造コストの割合は、天然Mo原料の場合と比較して、減少できることが分かった。また、国内での照射によるMo-99溶液の製造を可能とすることにより、製薬メーカーへの受取り期間の短縮も見込まれ、Mo-99溶液の製造コストの占める比率も抑えられる可能性を見出した。

参考文献

- (1) つくば特区プロジェクト6 会合メンバー、「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)—」, JAEA-Rev. 2021-016, 2021, 102p.
- (2) K. Tatenuma, et al., A Mass-Production Process of a Highly Pure Medical Use ^{99m}Tc from Natural Isotopic $\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ without Using Uranium, RADIOISOTOPES, vol. 63, no. 11, 2014, pp. 501-513
- (3) 薬価基準および材料価格基準改定のお知らせ, 日本メジフィジックス, 2020年3月 (https://www.nmp.co.jp/sites/default/files/member/news/pdf/2020_03_05_1.pdf)

表3. 1. 4 (2)-1 Mo吸着済みアルミナの各元素の含有濃度

	Mo (wt%)	Na (wt%)
Mo吸着済みアルミナ (500g)	3. 754	0. 324

表3. 1. 4 (2)-2 溶離液、水洗液の分析結果

	液量 (mL)	pH	Mo (g/L)	Al (mg/L)	Na (mg/L)
Mo溶離液	9. 805	9. 83	1. 84	0. 74	139

表3. 1. 4 (2)-3 Mo溶離後アルミナ分析結果及びMo回収率

	Wet (g)	Dry (g)	水分 (wt%)	Mo (wt%)	Na (wt%)
Mo溶離後アルミナ	646. 40	487. 65	24. 56	0. 15	0. 053
Mo回収率 (%)	—	—	—	96. 1	—

表3. 1. 4 (2)-4 溶離液の濃縮前後の分析結果

	液量 (mL)	pH	Mo (g/L)	Al (mg/L)	Na (mg/L)
濃縮前	9805	9. 83	1. 84	0. 74	139
濃縮後	1330	5. 98	13. 5	4. 1	988

表3.1.4(2)-5 粗モリブデン酸ろ液分析結果及び粗モリブデン酸回収率

	液量 (mL)	pH	Mo (g/L)	Al (mg/L)	Na (mg/L)	NH ₃ (g/L)
Mo濃縮後液	1330	5.98	13.5	4.1	988	≒26.6
ろ液	1380	0.44	0.346	4.0	—	—
モリブデン酸 回収率(%)	—	—	—	97.3	—	—

表3.1.4(2)-6 粗モリブデン酸分析結果

	Wet (g)	Dry (g)	水分 (wt%)	Al (wt%)	Na (wt%)
粗モリブデン酸	28.96	26.89	7.15	<0.001	0.033

表3.1.4(2)-7 精製モリブデン酸ろ液分析結果及び精製モリブデン酸回収率

	液量 (mL)	pH	Mo (g/L)	Al (mg/L)
ろ液	335	0.55	0.277	<0.1
精製モリブデン酸 回収率(%)	—	—	99.5	—

表3.1.4(2)-8 精製モリブデン酸分析結果

	Wet (g)	Dry (g)	水分 (wt%)	Al (wt%)	Na (wt%)
精製モリブデン酸	26.96	25.41	5.75	<0.001	0.001

表3.1.4(2)-9 三酸化モリブデン分析結果

	重量 (g)	Al (wt%)	Na (wt%)
三酸化モリブデン	22.80	<0.001	0.001

表3.1.4(2)-10 各工程のMo回収率及び総合収率

工程	Mo回収率(%)
モリブデン溶離	96.1
モリブデン酸回収	97.3
モリブデン酸精製	99.5
三酸化モリブデン焼成	99.9
総合収率	92.9

表3.1.4(2)-11 各^{99m}Tc抽出方法から発生する⁹⁸Moを含む廃棄物の比較(概算値)

^{99m} Tc抽出方法	⁹⁸ Mo含有廃棄物	Mo溶液(Mo溶離液)			
		pH	液量 (L)	Mo濃度 (g/L)	不純物
クロマト グラフィー法	モリブデン吸着 アルミナ	10.1	737.4	0.998	Al:2.34mg/L NH ₄ :3.60g/L Na:0.175g/L Cl:0.266g/L
溶媒抽出法	モリブデン酸 ナトリウム水溶液	塩基性	0.620	215	Na:110g/L MEK:2mL
活性炭法	モリブデン酸 ナトリウム水溶液	中性	1.0	195.6	Na:93.7g/L

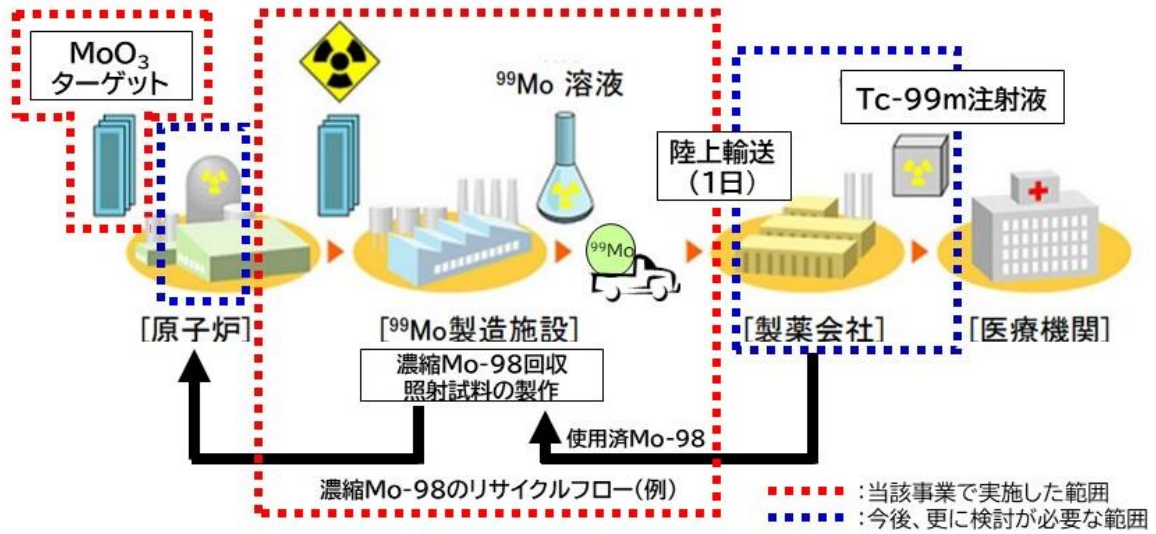


図3. 1. 4 (2)-1 PWRにおけるMo-99/Tc-99m製造の基本フロー(例)

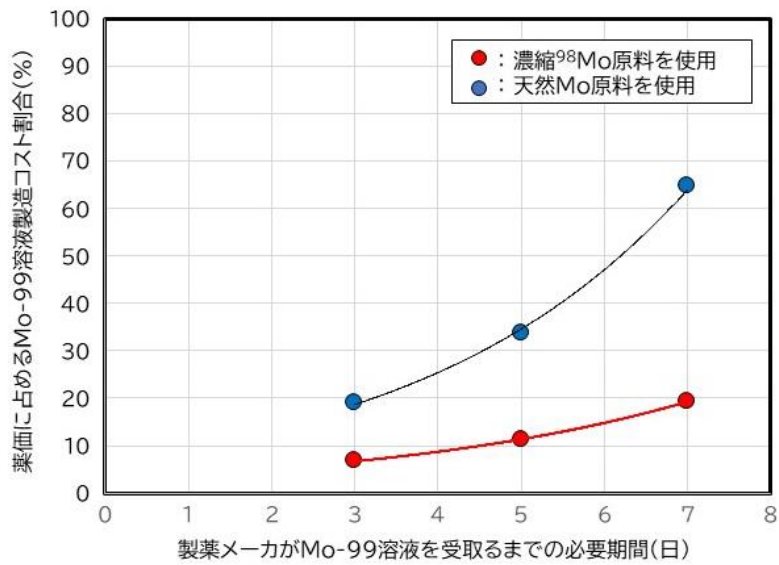


図3. 1. 4 (2)-2 薬価に占めるMo-99溶液の製造コスト割合
(テクネシチ注 (285円/10MBq)の薬価を基準)

3.1.5 全体スキームの検討(再委託先：MHI) 【R2, R4】

令和 2 年度には、従来まで医療機関からの Mo 発注により海外からの輸入品が供給されていたところ、国内での生産に際しては生産計画・営業を営む事業体を創設し、医薬品メーカーから注文を受け、照射ターゲットの製造、照射、販売、Tc 抽出後の Mo 回収のビジネスを取りまとめ、全体を管理する全体スキームを検討した。

【R4】

令和 2 年度の検討に引き続き、Mo-99 供給プロセスの確立にあたり、炉心安全や施設全体の安全対策へ影響する事項対応を踏まえた、法体系に基づいた取り合い条件について調査し、全体スキームの実現性見通し及び課題を整理した。

(1) 法体系に基づいた取り合い条件の調査及び整理

Mo-99 供給プロセスの確立にあたり、炉心安全や施設全体の安全対策へ影響する事項対応を踏まえた、法体系に基づいた取り合い条件について調査及び整理を行った。

既存発電炉を Mo-99 供給プロセスに用いることを想定し、以下の 4 法について調査を実施した。

【調査対象とした法】

- ▶ 原子力基本法
- ▶ 電気事業法
- ▶ 核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律（以降、「炉規法」と記す）
- ▶ 放射性同位元素等の規制に関する法律（以降、「RI 法」と記す）

以下、これらの法が要求する内容について考察する。

【原子力基本法】

原子力基本法は主として原子力利用の理念を示したものであり、平和利用を求めている。今回検討する RI 製造は、医療貢献であることから、基本理念に即したものであると考えられ、原子力基本法の要求から外れていない。このため、原子力基本法については、改正などの特別の対応は必要ないと考えられる。

【電気事業法】

電気事業法は、安定的に電気を供給するために事業者求められる事項を定めたものであるが、RI 製造はこれに関係しないと考えられる。このため、電気事業法については、改正などの特別の対応は必要ないと考えられる。

【炉規法】

炉規法では、炉の使用目的について規定があり、発電を目的とした炉とする発電炉、発電以外を目的とする研究炉に大別している。すなわち、研究炉は RI 製造に用いたとしても、目的外使用とはならない。これに対し発電炉は、発電を目的とすることは定められているが、それ以外の用途に使用することは否定されておらず、

原則的には RI 製造も可能と考えられる。

ここで、炉規法のそもそもの趣旨は、『原子炉を発電目的で安全に運転するための各種規制を適用するもの』と考えられる。すなわち、現炉規法の規制の元で発電炉を用いた RI 製造を行うには、原子炉の安全性に照らして問題ないとする所管官庁の確認（承認）が必要と考えられる。

これには、炉規法の下位規定において、以下の要求事項を定め、あわせて具体的な検証方法などを、付随する規約で定める必要があると考えられる。

- ・ RI 製造を行うために設置する機器
- ・ これらの機器が満たすべき基準
- ・ これら機器の設置により発電炉の特性（耐震特性等）が変化しないこと（変化が、炉規法が発電炉に求める安全性を満たす範囲であること）
- ・ 原子炉の緊急停止機能に影響を与えないなど、緊急時の対応に影響を与えないこと

【RI 法】

RI 法は、RI の製造について要求事項を定めているが、発電炉による製造を念頭に置いた条文はおかれていない。これは、現状では発電炉による RI 製造が行われていないから規定していないものであり、発電炉による RI 製造を容認しているとは考えられない（発電炉による RI 製造を想定した法令又は下位規則がない）。

ここから、RI 法についても炉規法と同様に、発電炉による RI 製造により新たに生じるリスク（例：製造時の被ばくリスク）、とその低減措置、管理方法など、発電炉を用いて RI 製造をする際に満たすべき要求事項が下位規定にて定める必要があると考えられる。

【小括】

発電炉による RI 製造は、原子力基本法の定める目的から逸脱するものではなく、現在の法規制も発電炉で RI 製造を行うことを否定していないと考えられる。しかし、これは発電炉による RI 製造を現行法が想定していないことが要因と考えられるため、炉規法及び、RI 法の下位規定において、発電炉により RI 製造を行うために満たすべき技術的基準を定める必要があると考えられる。

(2) 全体スキーム

令和 2 年度の検討に引き続き、事業者を中心とした全体スキームについて検討した。事業者では需要予測や注文量に応じて PWR での照射計画・Mo 精製計画を立てるとともに、必要量の照射ターゲットを Mo 供給メーカーに発注する。

Mo 供給メーカーでは、必要量の濃縮 Mo ペレットを製造し、照射ターゲット会社へ供給する。その際、不純物除去を可能な限り除去することで、その後の放射性不純物の発生を抑える。事業者は、Mo 供給メーカーから入手した濃縮 Mo を使用し、Mo ペレット製造・照射ターゲット加工し、PWR に供給し、PWR 炉内計装を利用して照射を行う。この際、

炉内計装は、医用 RI 製造専用の管を利用する。

また照射後の Mo を精製装置に移送し所定の精製プロセスを経て医薬品メーカーに精製 Mo を納入する。使用済 Mo 溶液を医薬品メーカーから回収するに当たっても事業者が回収・再使用し、MoO₃ 試料を生成し照射ターゲット製造に供する（図 3.1.5-1）。

現状の全体スキームでは、海外からの輸入時と同様に、精製処理後の出荷から病院へ到着するまでに 6 日かかることを想定している。しかしながら、国内生産のメリットである輸送時間を短縮することが可能なため、より短期間でより多くの医薬品を提供することが可能となると考えられる。

また、コスト低減のために、本検討においては、照射ターゲットの炉内からの搬出は、人力を想定しているが、この搬出作業を自動化することにより、さらなる作業時間短縮も可能となると考えられる。

これらのことを受け、本全体スキームを実現するためには、電力会社の協力を得た上で、より検討を進めていくことが重要である。

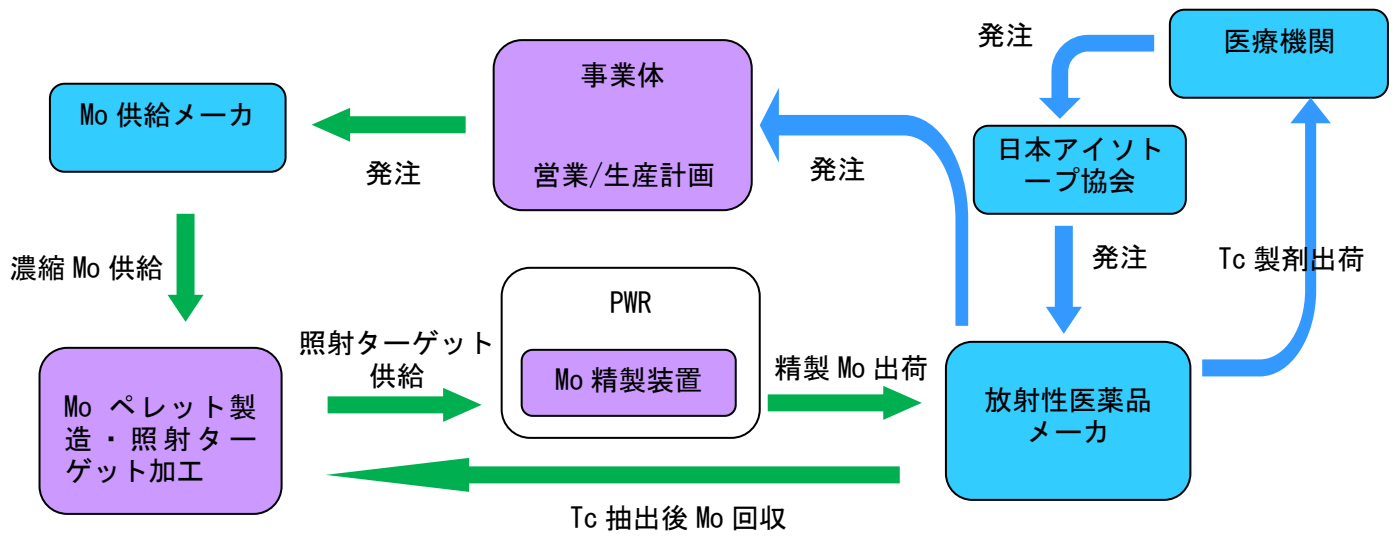


図 3.1.5-1 全体スキーム案

3.2 軽水炉での Ac-225 製造（都市大）

3.2.1 ターゲット核選定と核変換パスの検討【R2】

軽水炉(PWR)照射環境でAc-225を生成するための、照射ターゲット核種とその核変換パスについて検討し、効率的なAc-225生成法を検討した。照射ターゲット核種としてRa-226とTh-230の2核種を選定し、軽水炉においては、図3.2.3-1、図3.2.3-2に示すRa-226($3n, 2\beta$)、Th-230($3n, \alpha 2\beta$)の生成パスが有効であることを明らかにした。

3.2.2 最適照射条件や生成量の評価【R3】

装荷位置や中性子スペクトルの違いによるAc-225生成特性評価を行い、純度の高いAc-225を効率的に生成するための最適照射条件や生成量の評価を行った。照射条件最適化として、ターゲットピン径の細径化、周辺燃料ピン（8本）除去による水体積比の増大を検討した結果、Ac-225生成チェーンに存在する重核種の（ n, γ ）断面積の増大、及び熱中性子束の増大効果により、Ac-225生成が効率化されることを確認した。

3.2.3 安全性・運転性への影響評価【R4】

令和2年度、令和3年度で得た知見を基に、令和4年度は、少量もしくは大量のターゲット核種（原料核種）の燃料集合体への装荷方法、ターゲットを装荷した燃料集合体の炉心内配置、ターゲット核種（Ra-226、Th-230、Th-232）の燃焼に伴う発熱量増大や除熱を考慮したターゲット仕様設定、臨界性や安全係数（ドブプレー係数、ボイド係数）の影響を評価することにより、原子炉運転や安全確保の観点からPWRにおけるAc-225生成の実施可能性を評価した。

(1) 解析体系・条件

炉心の核解析には、連続エネルギーモンテカルロコード MVP-3.0^[1]及びその燃焼計算モジュールである MVP-BURN^[1]を用い、定格熱出力 3411 MWt の PWR^[2]全炉心体系解析を実施した。炉心仕様を表 3.2.3-1 に示す。17×17 型燃料集合体の燃料棒、制御棒/核計装案内管はピン単位でモデル化した（図 3.2.3-3）。1 サイクルを 390 日、定検期間を 90 日とし、193 体の燃料集合体を 3 バッチで運用する平衡炉心の装荷パターン（図 3.2.3-4）を想定した。燃料組成は 4.1 wt%の濃縮 UO₂ 燃料と濃縮度 8 wt%^[3]の Gd 添加燃料の 2 種類とし、それぞれのバッチにおける集合体の燃料組成は、1 集合体無限体系の燃焼解析から求めた値を使用した。Gd 添加燃料集合体の燃料ピン配置を図 3.2.3-5 に示す。ケミカルシム制御については、ホウ酸濃度を 300～1200 ppm の範囲で燃焼度に応じて調整した。

ターゲットの原料核種としては、令和3年度までと同様な①Ra-226/Th-230 単体ケースに加え、Th-230 に Th-232 が付随する②Th-232 混合ケースの 2 通りを検討した。天然ウラン 3 ton 中には Ra-226 がおよそ 1 g、Th-230 がおよそ 50 g 存在する。ここで Th-230 はウラン系列の娘核種であるが、鉱物学上、ウラン鉱石は必ず幾分かトリウム(Th-232)を含有するため、純粋な Th-230 同位体を得るには Th-232 と Th-230 の同位体分離が必要となる。そこで本検討では、原料の入手容易性に考慮し、Th-230 に対して 600 倍の Th-232 が随伴する②Th-232 混合ケースを設定した。Ac-225 の効率的生成には

できるだけ Th-232 が少ない (Th-230 含有率の高い) のトリウム原料を用いる事が望ましいことから、U : Th 比率比が 100:1 の堆積性リン鉱石 (Florida-8b)^[4]を想定した。このリン鉱石中の 3 ton のウラン中には約 50 g の Th-230 と約 30 kg の Th-232 が含まれるため、両同位対比 Th-230/Th-232 は 50/30,000=1/600 を想定した。

PWR 炉心において、運転中に使用しない制御棒案内管は、冷却材の無駄流量を減らすため、プラグングデバイス (図 3.2.3-6) が装着され止水されている。そこで、このプラグをターゲットピンに置き換え照射する方法を検討した。

(2) ターゲット仕様/配置

① Ra-226/Th-230 単体ケース

令和 3 年度の検討から、ターゲットピンは細径化し、分散配置することで Th-229 生成効率が向上する結果が示されている。加えて、細径化ピンは除熱にも有利であることから Ra-226、Th-230 いずれもターゲット部半径は 0.1 cm と設定した。装荷量はそれぞれ 1 g、50 g と少量であるため、1 集合体内でターゲットを装荷する位置は対称性にも配慮し 4 カ所 (図 3.2.3-7)、この集合体を炉心内に 4 カ所 (図 3.2.3-8) の計 16 箇所に限定的に配置することとした。これにより、ターゲットの高さは Ra-226、Th-230 それぞれ 0.53 cm、11.31 cm となり、これを炉心高さ中心に配置することを想定した。

② Th-232 混合ケース

Th-232 混合ケースでは、Th-230 の 600 倍の Th-232 を伴いターゲット体積が増大するため、より多くの制御棒案内管や集合体への装荷が必要となる。さらに大量の Th-232 が装荷されることとなるため、中性子捕獲反応によって核分裂性核種である U-233 等が生成され、ターゲットピンの温度が上昇し健全性が損なわれる可能性がある。そこで、制御棒案内管内へ配置するターゲットピンの仕様を定めるための熱流動解析を実施した。

1). 熱流動解析によるターゲットピン仕様の決定

燃焼にともない増大するターゲットピン発熱を考慮し、炉心への熱流動的影響を最小限にするターゲット仕様を評価した。仕様の決定にあたっては、i) ターゲット中心温度、ii) 円環部圧力損失 (案内管内側とターゲットピンの間の円環部の圧力損失)、iii) 円環部出口冷却材温度の 3 つを制約条件として、ターゲット半径と高さ、冷却材流速を決定した。

a) 解析体系・条件

制御棒案内管内に装荷されたターゲットピン 1 本を解析対象とし、案内管壁面は断熱条件とした。体系図と解析条件をそれぞれ図 3.2.3-9、表 3.2.3-2 に示す。

ターゲット半径は、自己遮蔽低減による Th-239 生成効率化や徐熱性能の向上からは細径化が望ましい一方、十分な量の Th ターゲットを装荷する必要もあるため、0.2 cm と 0.3 cm の 2 ケースを想定した。ターゲット高さは炉心有効高さ 3.6 m を上限として 0.5~3.5 m の範囲で計算を行った。案内管内側円環部の冷却材流速

は、案内管底部の冷却材流入孔の径や数により調整することを想定し、炉心平均流速 4.5 m/s を上限として 0~4.5 m/s の範囲で検討した。

ターゲットの線出力は軸方向位置に依存するとともに、照射時間により変化するため、炉心上下中心部かつ照射期間内で最大値（ターゲット半径 0.2 cm の場合 4.4 kW/m、半径 0.3 cm の場合 8.8 kW/m）から燃料健全性を評価した。ここで軸方向ピーキング係数は 1.5、燃焼にともなう軸方向平均線出力の時間変化は燃焼計算コード ORIGEN2 (Version 2.2) より算出した。この際、1 群断面積は別途、MVP-3.0 によって求めた自己遮蔽を考慮した断面積を用いた。冷却材温度には炉心平均温度と炉心最高温度の 2 種類の物性値を使い分けており、使用した冷却材物性値を表 3.2.3-3 に示す。

案内管内の圧力損失計算には冷却材物性値を使用するが、物性値は冷却材温度に依存し、冷却材温度は軸方向に分布を持つ。本検討では代表的に炉心平均温度時の物性値を使用することで圧力損失を算出した。

案内管出口温度は、ターゲットの軸方向出力分布を考慮せず、平均線出力から計算した。

i) ターゲット中心温度評価

ターゲット中心温度評価には、偏微分方程式ソルバ FlexPDE を用いて熱伝導方程式よりターゲット径方向の 2 次元温度分布を導出した。ターゲット線出力には軸方向最大線出力、冷却材温度には炉心出口温度を用いることで現実より厳しい条件で徐熱性能を評価した。解析に使用した熱伝導率を表 3.2.3-4 に示す。ターゲット (ThO_2) 及び案内管材料 (ジルカロイ-4) の熱伝導率は温度 $T[\text{K}]$ を変数とする関数を用い、ターゲットピンのギャップ部 (He) の熱伝導率は圧力及び温度の 2 変数によって変化するため定数とした。

熱伝達係数の算出には水力等価直径で円管内の熱伝達に近似でき、円管内の熱伝達係数 h は式 (3.2.3-1) ^[6] より求めた。

$$h = \frac{k}{D_e} \times \text{Nu} \quad \text{式(3.2.3-1)}$$

k : 冷却材熱伝導率

D_e : 水力等価直径

Nu : ヌセルト数

また、ヌセルト数 Nu は Dittus-Boelter の式 (3.2.3-2) ^[6] より算出した。

$$\text{Nu} = 0.023\text{Re}^{0.8}\text{Pr}^{0.4} \quad \text{式(3.2.3-2)}$$

Re : レイノルズ数

Pr: プラントル数

解析の結果、ターゲット半径 0.2 cm、0.3 cm の結果を図 3.2.3-10、図 3.2.3-11 に示す。冷却材流速 0.5~4.5 m/s の範囲では、ターゲット中心温度は燃料ピン中心温度 (1800 °C) ^[5] を約 1200~900 °C の余裕をもって下回り、十分に除熱可能であるということが分かった。

ii) 案内管-ターゲット円環部の圧力損失評価

ターゲットと案内管内冷却材との間の円環部に生じる圧力損失は、冷却材流速とターゲット半径、高さに依存する。このターゲット円環部の圧力損失が燃料ピンと同等になる冷却材流速とターゲット寸法を評価した。冷却材温度には炉心平均温度^[5]、ターゲット線出力には平均線出力を用いた。また、比較対象である燃料ピンの圧力損失計算の冷却材流速には平均流速である 4.5 m/s ^[6] を用いた。

圧力損失 Δp は式 (3.2.3-2) ^[6] より算出される。

$$\Delta p = 2 \frac{L}{D_e} \sigma \bar{u}_z^2 f \quad \text{式(3.2.3-2)}$$

L : 流路の長さ

D_e : 熱水力等価直径

ρ : 冷却材密度

u_z : 流路に沿った平均流速

f : 摩擦係数

摩擦係数 f は原子炉で使われる滑らかな円管ではレイノルズ数 $Re[-]$ を用いて Blasius の式 (3.2.3-3) ^[6] より求められる。

$$f = 0.0791 Re^{-0.25} \quad \text{式(3.2.3-3)}$$

冷却材流速と圧力損失の関係を図 3.2.3-12、図 3.2.3-13 に示す。図中横線 (燃料ピンの圧力損失) と曲線 (ターゲット高さ、流速毎の圧力損失) の交点は、燃料ピンと同等の圧力損失となるターゲット高さ、冷却材流速の組み合わせ (例: ターゲット半径 0.3 cm の際、冷却材流速 2.5 m/s、ターゲット高さ 2.36 m) を示している。ターゲット高さを高くする場合、案内管と燃料ピンの圧力損失を一致させるためには、冷却材流速を減少させる必要のあることが分かる。

iii) 案内管-ターゲット円環部の出口温度評価

案内管内円環部を通る冷却材はターゲットの発熱により温度が上昇し、案内管出口で他の燃料ピンから出てきた冷却材と混合する。この際、円環部出口温度

と炉心冷却材出口温度に大きな差があると、プラント熱効率を悪化させるなどの問題が生じる。そこで、案内管-ターゲット円環部の冷却材出口温度が炉心出口温度と同等となるターゲット寸法、冷却材流速を評価した。

案内管における入口と出口の冷却材温度差 ΔT を次の式(3.2.3-4)より算出する。

$$\Delta T = \frac{\chi \cdot h}{\rho \cdot A \cdot V \cdot C_v} \quad \text{式(3.2.3-4)}$$

χ : ターゲット線出力

h : ターゲット高さ

ρ : 冷却材密度

A : 流路断面積

V : 冷却材流速

C_v : 定圧比熱

案内管出口の冷却材温度を図 3.2.3-14、図 3.2.3-15 に示す。図中黒線（炉心出口温度）と曲線（ターゲット高さ、流速毎の出口温度）の交点は、炉心出口温度と同等となるターゲット高さ、冷却材流速の組み合わせ（例：ターゲット半径 0.3 cm の際、冷却材流速 2.5 m/s、ターゲット高さ 2.36 m）を示している。ターゲット高さを高くする場合、案内管出口温度と炉心出口温度を一致させるためには、冷却材流速を増加させる必要のあることが分かる。

b) ターゲットピンの最適化仕様

上の i) ターゲット中心温度評価、ii) 円環部圧力損失評価、iii) 円環部出口温度評価で得られたそれぞれの条件を満たすターゲット高さ、冷却材流速の組み合わせを図 3.2.3-16、図 3.2.3-17 にプロットした。その結果、ターゲット半径 0.2 cm のケースでは圧力損失と冷却材出口温度の条件が一致する点が存在しなかったが、半径 0.3 cm の際は、ターゲット高さ 2.36 m、冷却材流速 2.5 m/s で圧力損失と冷却材出口温度が炉心燃料と同等となる設計ポイントが存在することが分かり、これを最終仕様とした（表 3.2.3-5）。

ターゲットを冷却するには、炉心を通る冷却材の一部を案内管に分配することになるが、その必要流量はターゲット 1 本あたり炉心全流量の $6.52 \times 10^{-4} \%$ と僅かであり、炉心への影響性は小さいと考えられる。

以上のことから照射期間にわたって除熱可能かつ炉心運転への影響が十分小さいターゲットピン仕様を確認できた。

2). Th-232 混合ケースの集合体内ピン配置と炉心内集合体配置

Th-232 混合ケースでは、Ra-226/Th-230 単体ケースに比べ、装荷ターゲット量が多い。ターゲット半径/高さは上記 b) の熱流動解析で得られたそれぞれ 0.3 cm、

2. 36 m としつつ、1 集合体あたり 24 か所存在する制御棒装荷案内管の全てに装荷することとした。またターゲットを装荷する集合体数については、炉心内 193 体の燃料集合体の内、a) 制御棒を装荷しない集合体であること、b) ターゲット集合体が互いに隣接せず対症的配置できること、の 2 つの条件を満足する 36 体とした。ターゲットピン配置を図 3.2.3-18 に、ターゲット集合体の装荷位置を図 3.2.3-19 に示す。

従って、1 炉心あたり $24[\text{本}/\text{集合体}] \times 36[\text{体}/\text{炉心}] = 864$ 本のターゲットピンを装荷することとし、この時のターゲット総装荷量は約 577 kg-ThO₂ となり、この内 Th-230 のみの重量は約 845 g となった。

(3) Th-229 生成量評価

① Ra-226/Th-230 単体ケース

単体ケースでは、炉心当たりの Ra-226 装荷量が 1 g、Th-230 が 50 g と少なく、ターゲット体積が炉心体積に比べて極めて小さい。よって全炉心を対象としたモンテカルロ解析ではターゲットへの入射粒子数が少なく、計算誤差が大きくなる傾向となる。そこで Th-229 生成量評価では、周期境界条件（完全反射）での 1 集合体体系解析を行った。この際ケミカルシム制御は、全炉心解析と同条件にするため、ホウ酸濃度を 300～1200 ppm の範囲で燃焼ステップに応じて変化させた。1 集合体解析での各ケースの Th-229 の生成量を図 3.2.3-20 に示す。Ra-226 の場合は 4 サイクル(1920 日)照射で Th-229 生成量は頭打ちとなり約 300 MBq、Th-230 の場合は 8 サイクル(3840 日)照射で 570 MBq となることが分かった。

② Th-232 混合ケース

このケースは、先述の Ra-226/Th-230 単体ケースとは対照的にターゲットの総体積が大きいため、全炉心解析にて Th-229 生成量の評価した。全炉心解析での Th-229 の生成量を図 3.2.2-21 に示す。その結果、8 サイクル(3840 日)照射にて、25.3 GBq の Th-229 を生成できる結果となった。この量を Th-230 の総装荷量で割った 1 g あたりの生成率は約 29.9 MBq/g-Th-230 となる。

一方で 50 g の Th-230 単体照射での生成率は 11.4 MBq/g-Th-230 と Th-229 生成量が Th-230 装荷量に比例していないことが分かった。これは、Th-230 からのパスだけではなく、Th-232 の (n, γ) 反応から生成された U-233 の崩壊による Th-229 生成パスが加わったことが要因の一つであると考えられる。Th-232 から U-233 を経由して Th-229 を生成するパスを図 3.2.3-22 に示す。

Th-230 に Th-232 が混合する効果について考察を深めるため、トリウム装荷量を固定し、Th-232/Th-230 比率を変化させた場合の Th-229 生成量を検討した。解析体系は炉心を簡素化した 3 体×3 体の 9 燃料集合体体系、中心の 1 集合体をターゲット集合体とした（図 3.2.3-23）。燃料組成は全て新燃料、ターゲット仕様は上述の全炉心解析と同等であり、全トリウム装荷量は酸化物として約 16 kg-ThO₂、トリウム金属として約 14.1 kg、Th-230 のみの重量はその含有比率に応じて約 23 g～14 kg である。結果を図 3.2.2-24 に示す。Th-232/Th-230 比率を小さくする（Th-230 を濃くする）ほど Th-229 生成量は指数関数的

に増大し、一方で Th-229 生成率(Th-230 1 g あたりの Th-229 生成量)は指数関数的に減少した。生成率の減少は、Th-230 の自己遮蔽効果の増大によるものと考えられる。

(4) ミルキング間隔と年間 Ac-225 供給可能量

Th-229 の半減期は 7940 年と非常に長いため、一旦これを生成した後はミルキングを行うのみで Ac-225 を生成できる。このミルキング間隔として、Ac-225 の投与間隔である 8 週(約 60 日)^[9]及び Ac-225 の親核の Ra-225 の半減期 (15 日) を考慮し、ここでは 30 日毎に行うことを想定して年間の Ac-225 生成量を評価した。図 3.2.3-25 の通り、Th-229 放射能の約 10 倍の Ac-225 を毎年供給することができる。

(5) ターゲット装荷による原子炉運転への影響

① Ra-226/Th-230 単体ケース

1) 反応度への影響

Ra-226/Th-230 をそれぞれ装荷した際の反応度影響を表 3.2.3-6 に示す。ターゲット装荷量は Ra-226 の場合 1 g、Th-230 の場合 50 g と少量であるため、各々の反応度影響はいずれも 0.002 %dk/kk' 以下と微小であった。

② Th-232 混合ケース

1) 反応度及び、反応度係数への影響

Th-232 混合ケースの核的影響を表 3.2.3-7 に示す。本ケースでは 193 体の燃料集合体の内 36 体に Th-232 混合ターゲットを装荷するが、反応度への影響は燃焼期間を通じて 0.3 %dk/kk' 以下となった。

なお本ケースでは、ターゲットの装荷量が 577 kg-ThO₂ と Ra-226/Th-230 単体ケースに比べて桁違いに多く、核分裂性核種である U-233 を生成する Th-232 が 516 kg も存在するため、安全特性への影響が懸念される。そこで、ドップラー係数及びボイド係数の評価を行った。ドップラー係数は燃料温度を 900 K→1300 K へ変化させ、ボイド係数はボイド変化量 $\Delta \alpha$ を 50 Void% として計算を行った。それぞれの結果を表 3.2.3-8 と表 3.2.3-9 に示す。その結果、ドップラー係数への影響は -2×10^{-6} 以下、ボイド係数への影響も -6×10^{-5} 以下と僅かであった。以上より、600 kg 程度の Th-232 混合ターゲットを 36 体の集合体に分割装荷することによる安全係数への影響は軽微であることが分かった。

2) 中性子照射によるターゲット発熱量及び燃焼度

Th-232 混合ケースではトリウムターゲットの装荷量の大きさから、長期照射にともない発熱量や燃焼度が大きくなることが予想される。集合体あたりの発熱量、ターゲット 1g あたりの発熱量を、Ra-226/Th-230 単体ケースと比較して図 3.2.3-26 に、また燃焼度の結果を図 3.2.3-27 に示す。

Th-232 混合ケースの集合体最大熱出力 (トリウムターゲットピン 24 本分のみ、燃料部を含まず) は 0.4 MW/集合体と、通常の燃料集合体の平均出力 17.7 MWt の 2 %程度に満たず、Ra-226/Th-230 単体ケースではさらにその 1/100 以下と小さい。ターゲット 1 g あたりの最大発熱量は、Ra-226 単体ケースで約 32 W/g、Th-230 単体ケースで約 120

W/g に対し、Th-232 混合ケースで約 27 W/g と、Th-230 単体ケースの発熱が一番大きかった。なお、この Th-232 混合ターゲットの発熱量は、3.2.2-(2)-②でのターゲットピン温度解析で使用した ORIGEN2 による簡易計算の値より約 15 %小さい。すなわち、熱解析ではやや過大評価された発熱量に基づいた保守的な評価となっていることが MVP 解析により確認された。燃焼度については、Ra-226 単体ケース燃焼は末期でも 1 GWd/ton に満たないが、Th-230 単体ケースや Th-232 混合ケースで数 10~100 GWd/t 以上と高くなる。

3) Th-232 混合ターゲットでの U-233 生成量

Th-232 混合ターゲットでの生成が懸念される U-233 は、1 個の核爆発装置の製造の可能性を排除しえない量である有意量が 8 kg とされている。Th-232 混合ターゲットでの U-233 の生成量を評価し結果を図 3.2.3-28 に示した。Th-232 混合ターゲットを装荷した 36 集合体全体で 577 kg-ThO₂ (516 kg-Th) を照射する場合、960 日で有意量の 8 kg を超え、1920 日照射で約 10 kg の生成となることが分かった。U-233 生成を抑制しつつ Th-229 を得るには、Ra-226 もしくは同位体濃縮した Th-230 を用いるなどの方策を講じる必要がある。

(6) 軽水炉での Ac-225 製造まとめ

Ra-226 単体、Th-230 単体、Th-232 混合のそれぞれ 3 ケースについて、ターゲット装荷による PWR 炉心の反応度や安全係数への影響、集合体発熱量、ターゲットピンの燃焼度、を評価した。特に、原料の調達性に配慮しトリウム装荷量の多くなる Th-232 混合ケースについては、燃料温度、冷却材温度、冷却材圧力損失を考慮した熱流動解析を実施した。

36 体の集合体に全 577 kg-ThO₂ のトリウムを装荷する Th-232 混合ケースでは、0.3 %dk/kk' 程度の反応度への影響があるものの除熱性能や安全特性には大きな影響がないこと、また装荷量の少ない Ra-226/Th-230 単体ケースでは、ターゲットの装荷影響が極めて軽微である結果を得た。

いずれのケースも Ac-225 の親核 Th-229 の生成を意図しており、1 回の照射のみで半永久的に Ac-225 を生成できる方式である。Ra-226/Th-230 単体ケースの Ac-225 生成量はそれぞれ約 3 GBq/y、6 GBq/y となった。一方、Th-230 の同位体濃縮無しに大量のトリウムを装荷する、Th-232 混合ケースの Ac-225 生成量は 250 GBq/y となった。この場合は有意量以上の U-233 が生成されることに留意が必要である。

参考文献

- [1] Y. NAGAYA, K. OKUMURA, T. SAKURAI and T. MORI: "MVP/GMVP Version 3 General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations Based on Continuous Energy and Multigroup Methods," JAEA-Data/Code 2016-018 (2017).
- [2] 実務テキストシリーズ3「軽水炉燃料のふるまい」財団法人原子力安全研究会 平成10年7月、(1998)
- [3] 日本原子力学会制作「炉物理教科書：中級編 原子炉物理(シリーズ：現代核科学の基礎)」2008年4月
- [4] 高田 稔、小橋 浅哉、佐藤 純、齋藤 信房 「リン鉱石中のウランとトリウムの含有量およびウラン系列核種の放射平衡」 RADIOISOTOPES, 36, 213-220 (1987)
- [5] 軽水炉発電所のあらまし(版数等要確認)
- [6] 秋本肇 他 (2009) 原子力熱流動工学 オーム社
- [7] C.G.S. Pillai et al. "Thermal conductivity of ThO₂ and Th_{0.98}U_{0.02}O₂" (2000). Journal of Nuclear Materials, 277(1), 116-119, [https://doi.org/10.1016/S0022-3115\(99\)00237-8](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(99)00237-8)
- [8] M. Masayuki et al. "Thermal Conductivity and Heat Capacity of Zircaloy-2, -4 and Unalloyed Zirconium" (1975). Journal of Nuclear Science and Technology, 12(10), 661-662, <https://doi.org/10.1080/18811248.1975.9733170>
- [9] Clemens Kratochwil, Frank Bruchertseifer, Frederik L. Giesel, Mirjam Weis, Frederik A. Verburg, Felix Mottaghy, Klaus Kopka, Christos Apostolidis, Uwe Haberkorn, and Alfred Morgenstern, ²²⁵Ac-PSMA-617 for PSMA-Targeted α -Radiation Therapy of Metastatic Castration-Resistant Prostate Cancer. J Nucl Med. 2016; 57, (12): 1941-1944

表 3. 2. 3-1 PWR 炉心仕様

熱出力	3411 [MWt]	
濃縮度	4.1 [wt%]	
燃料集合体	17×17 型	
運転サイクル	運転 : 390 日 + 冷却 : 90 日	
燃料ペレット径 (スミア密度)	0.820 (0.96 TD%)	[cm]
被覆管径	0.950	
計装案内管径	1.220	
制御棒被覆管径	0.972	
燃料棒ピッチ	1.260	
炉心高さ	366	
ガスプレナム長さ	17	
冷却材中 ホウ素濃度	300~1200	

表 3. 2. 3-2 熱解析の計算条件

項目	単位	ターゲット半径	
		0. 2 cm	0. 3cm
ターゲットピンのギャップ厚	cm	0. 01	←
被覆管肉厚	cm	0. 07	←
案内管内冷却材厚	cm	0. 29	0. 19
案内管厚	cm	0. 04	←
炉心有効高さ	m	3. 66	←
冷却材入口温度	K	562	←
冷却材出口温度	K	598	←
ターゲット部の平均線出力	W/cm	43. 94	88. 29
ターゲット部の最大線出力	W/cm	65. 36	131. 32
ターゲット組成		ThO2	←
案内管組成		ジルカロイ-4	←

表 3. 2. 3-3 冷却材物性値

項目	単位	炉心平均温度	炉心出口温度
温度	°C	300	327
圧力	Mpa	15. 5	←
密度	kg/m ³	726. 5	661. 1
粘度	μ Pa · s	88. 5	77. 5
熱伝導率	W/(m · K)	0. 56	0. 52
定圧比熱容量	kJ/(kg · K)	5. 46	6. 53

表 3. 2. 3-4 熱伝導率

組成	熱伝導率 [W/(m · K)]
ThO2 ^[7]	$\frac{1}{0.0216 + 0.000212T}$
ジルカロイ-4 ^[8]	$0.138 * 10^2 + 2.25 * 10^{-3}T + 0.725 * 10^{-6}T^2$
He ^[6]	0. 30

表 3. 2. 3-5 最終ターゲット仕様

ターゲット寸法	半径 [cm]	0. 3
	高さ [m]	2. 36
冷却材流速 [m/s]		2. 5

表 3. 2. 3-6 Ra-226/Th-230 単体ケースの臨界性への影響

		装荷前	Ra-226	Th-230
BOC	k-eff	1. 06264	1. 06248	1. 06239
	ρ (%dk/kk')		-0. 014	-0. 022
EOC	k-eff	1. 00116	1. 00125	1. 00115
	ρ (%dk/kk')		0. 009	-0. 001

表 3. 2. 3-7 Th-232 混合ケースの臨界性への影響

		装荷前	Th-232 混合 ターゲット
BOC	k-eff	1. 06264	1. 05906
	ρ (%dk/kk')		-0. 32
EOC	k-eff	1. 00116	0. 99845
	ρ (%dk/kk')		-0. 27

表 3. 2. 3-8 Th-232 混合ケースのドップラー係数影響

	BOC		EOC	
	装荷前	装荷後	装荷前	装荷後
反応度 $\Delta \rho$ [dk/kk']	-9.54E-03	-9.74E-03	-7.62E-03	-8.36E-03
Th-232 混合ターゲット装荷による ドップラー係数への影響 [装荷後-装荷前]	-4.97E-07		-1.84E-06	

表 3. 2. 3-9 Th-232 混合ケースのボイド係数影響

	BOC		EOC	
	装荷前	装荷後	装荷前	装荷後
反応度 $\Delta \rho$ [dk/kk']	-1.30E-01	-1.33E-01	-1.45E-01	-1.47E-01
ボイド係数[dk/kk' /Void%]	-2.60E-03	-2.66E-03	-2.91E-03	-2.94E-03
Th-232 混合ターゲット装荷による Void 係数への影響 [装荷後-装荷前]	-6.03E-05		-3.34E-05	

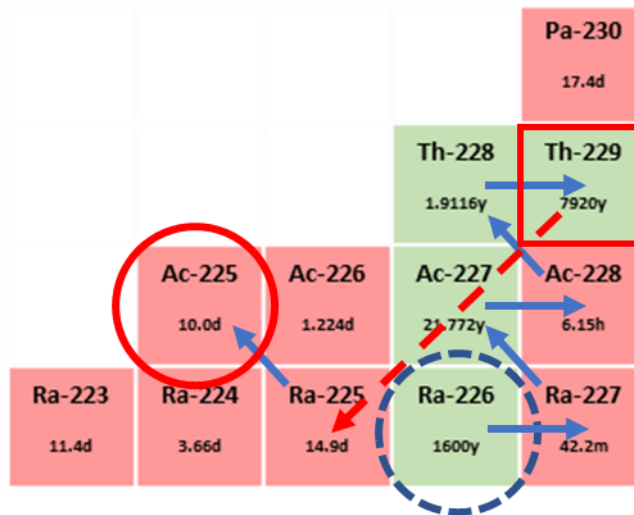


図 3. 2. 3-1 Ra-226(3n, 2β)パス

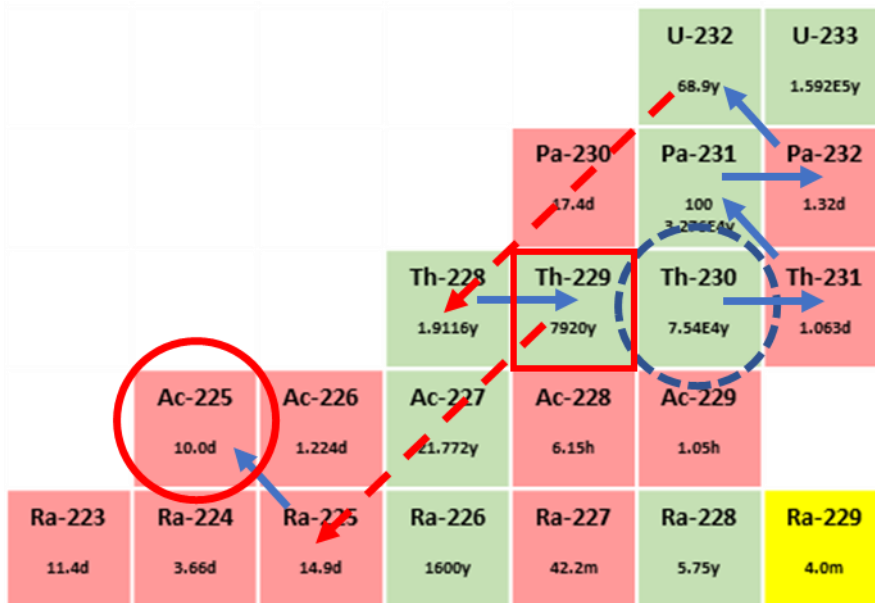
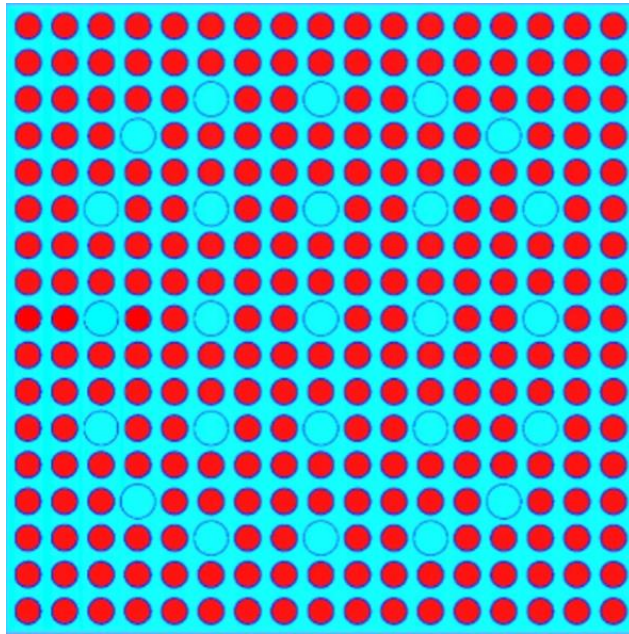


図 3. 2. 3-2 Th-230(3n, α2β)パス





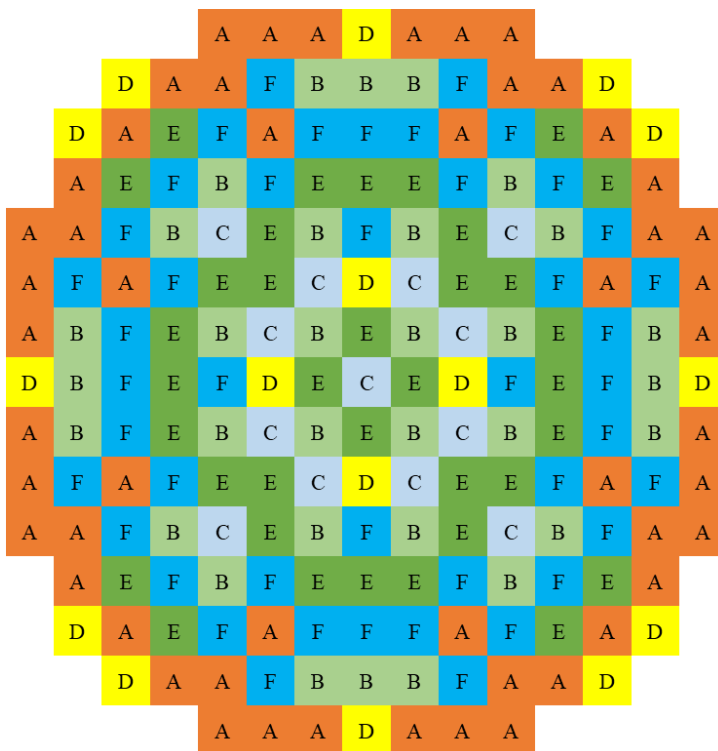
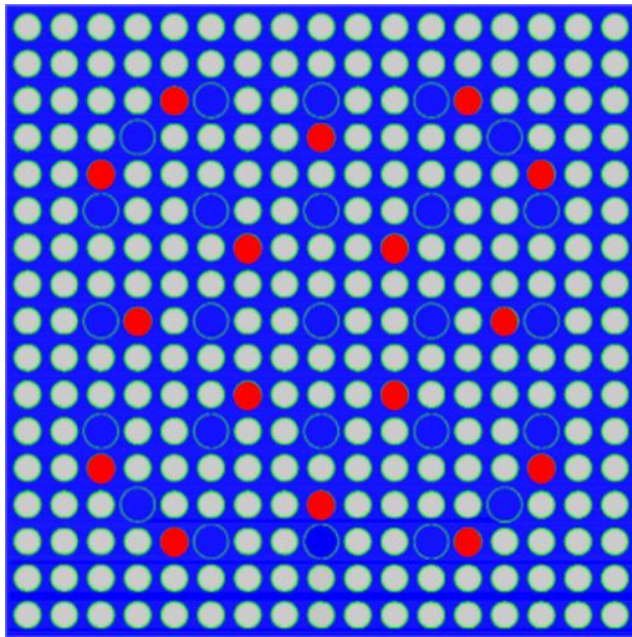
	本数	要素
	264	燃料
	25	制御棒案内管 核計装案内管
合計(本)	289	

図 3. 2. 3-3 解析に用いた 17×17 型燃料集合体の燃料ピン配置図



識別 ID	体数	燃料種類
A	52	新燃料
B	32	1cycle 燃料
C	13	2cycle 燃料
D	16	新燃料(Gd)
E	36	1cycle 燃料(Gd)
F	44	2cycle 燃料(Gd)
合計(体)	193	

図 3. 2. 3-4 解析に用いた燃料集合体装荷パターン






	本数	要素
	248	燃料
	25	制御棒案内管 核計装案内管
	16	Gd(8wt%)添加燃料
合計(体)	289	

図 3. 2. 3-5 燃料集合体内の燃料ピンと Gd 添加燃料ピンの配置

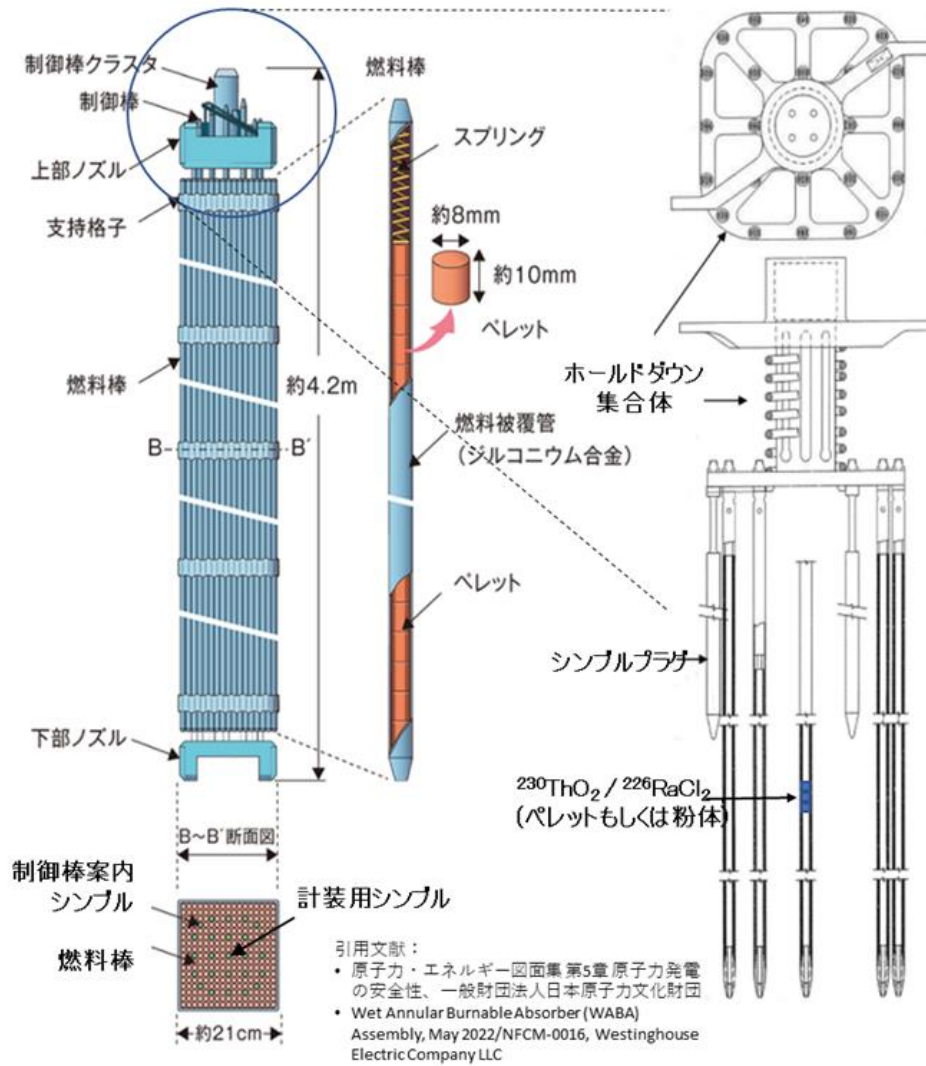


図 3. 2. 3-6 プラギングデバイスと PWR へのターゲット装荷方法

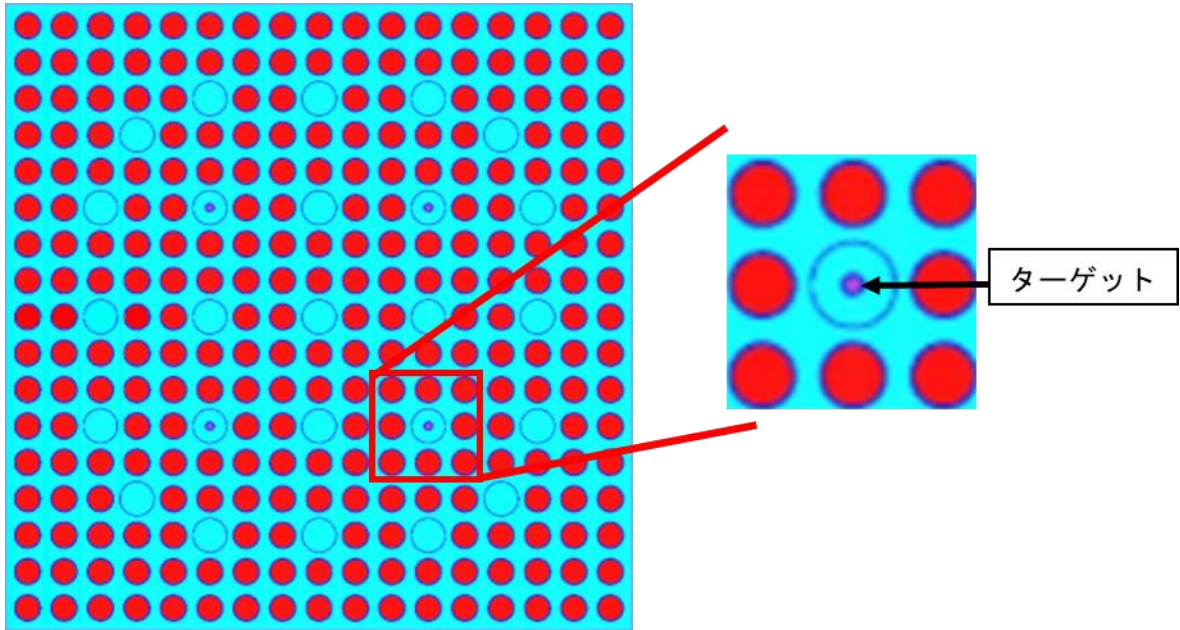
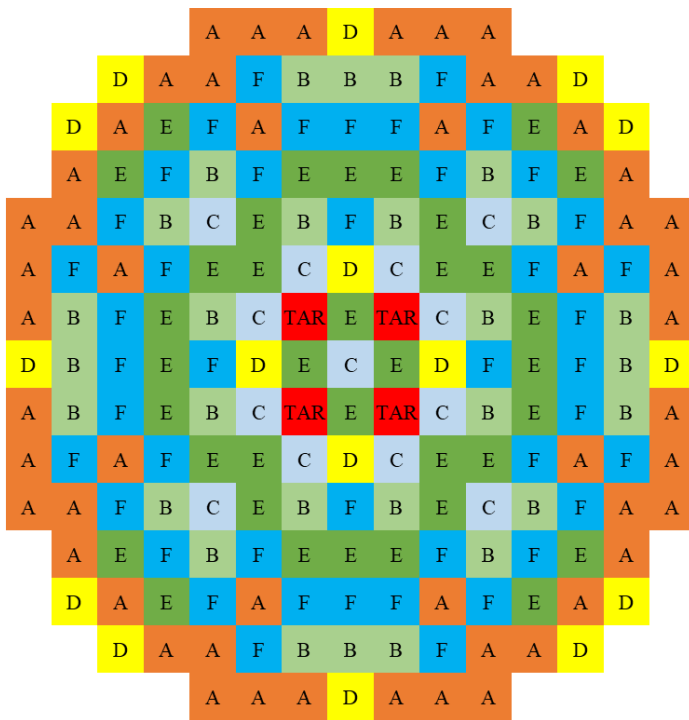


図 3. 2. 3-7 燃料集合体内の Ra-226/Th-230 単体ターゲット配置



識別 ID	体数	燃料種類
A	52	新燃料
B	32	1cycle 燃料
C	13	2cycle 燃料
D	16	新燃料(Gd)
E	36	1cycle 燃料(Gd)
F	44	2cycle 燃料(Gd)
TAR	4	Ra-226/Th-230 Target
合計(体)	193	

図 3. 2. 3-8 Ra-226/Th-230 単体ターゲットを装荷した集合体の炉心内配置

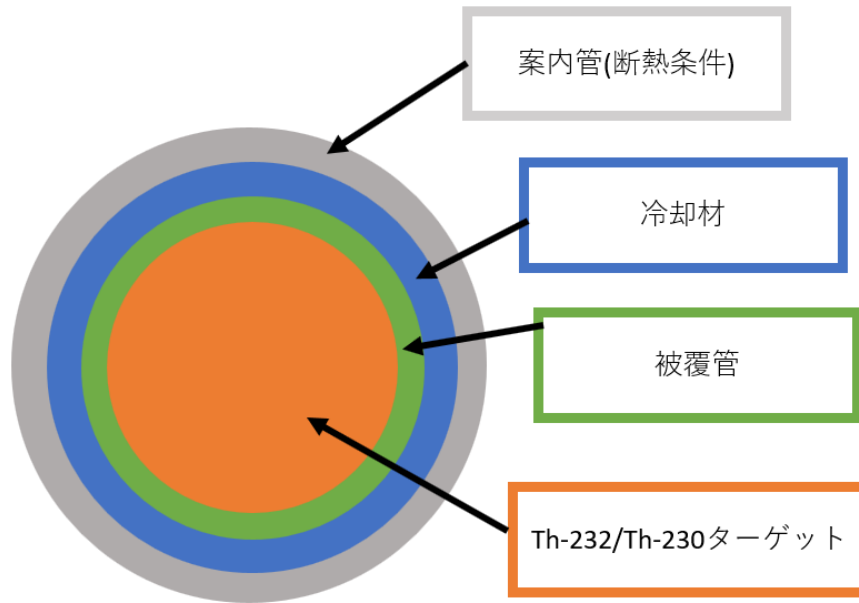


図 3. 2. 3-9 案内管の体系図

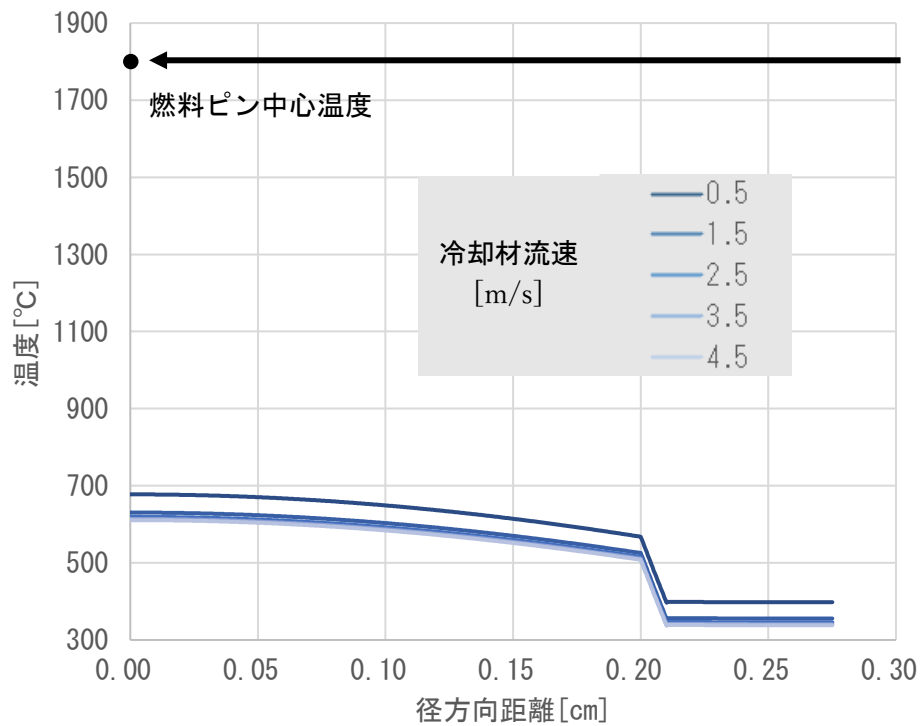


図 3. 2. 3-10 ターゲットピン (半径 0.2 cm) 径方向の温度分布

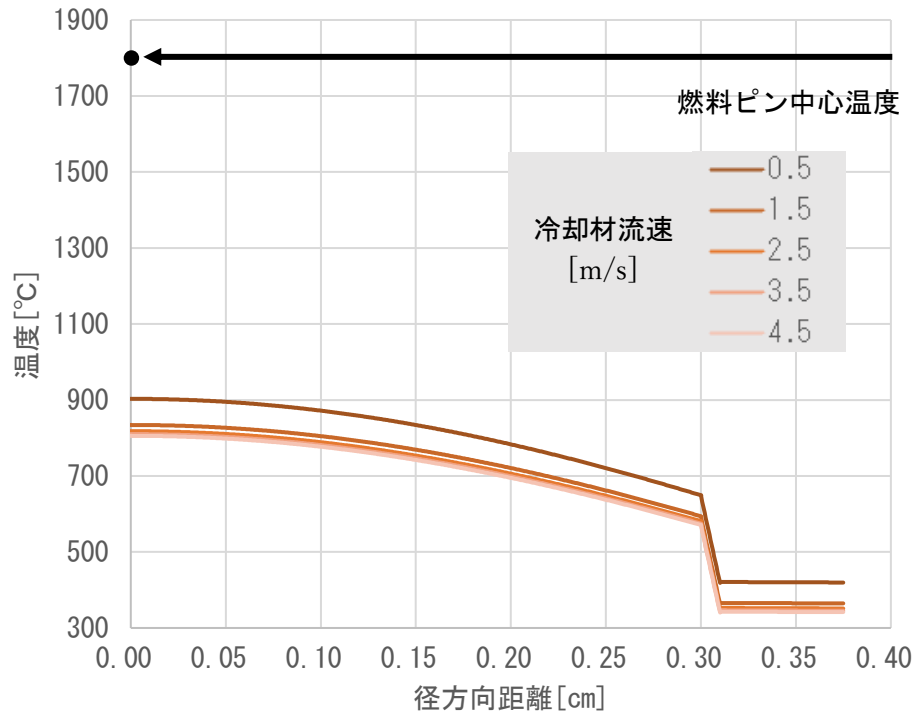


図 3. 2. 3-11 ターゲットピン(半径 0.3 cm) 径方向の温度分布

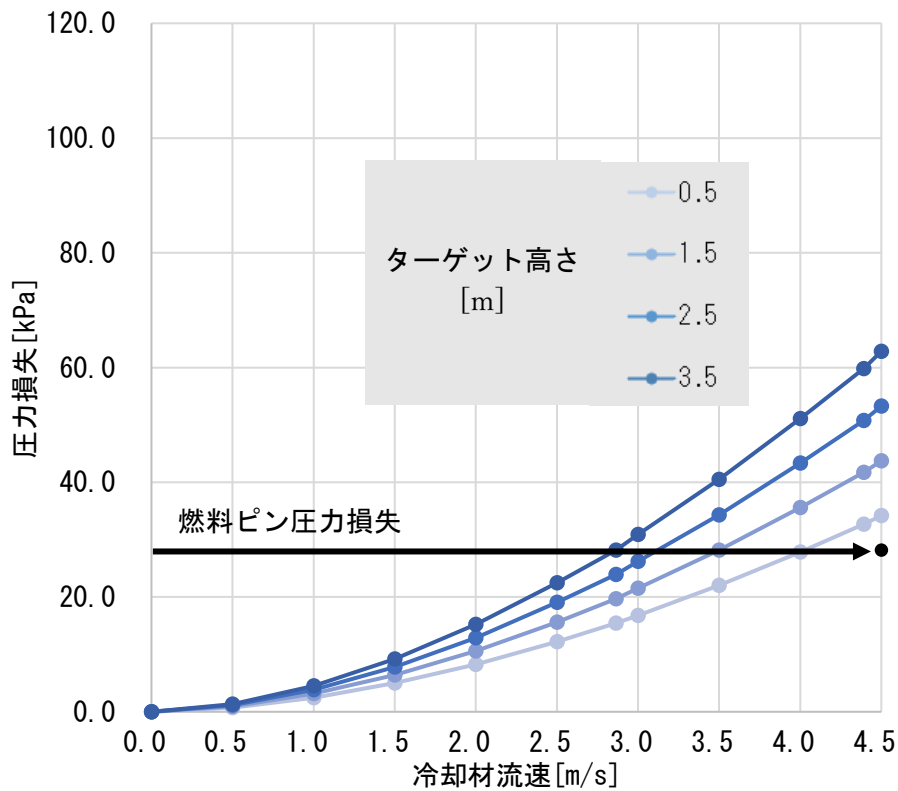


図 3. 2. 3-12 案内管内円環部の圧力損失(ターゲット半径 0.2 cm)

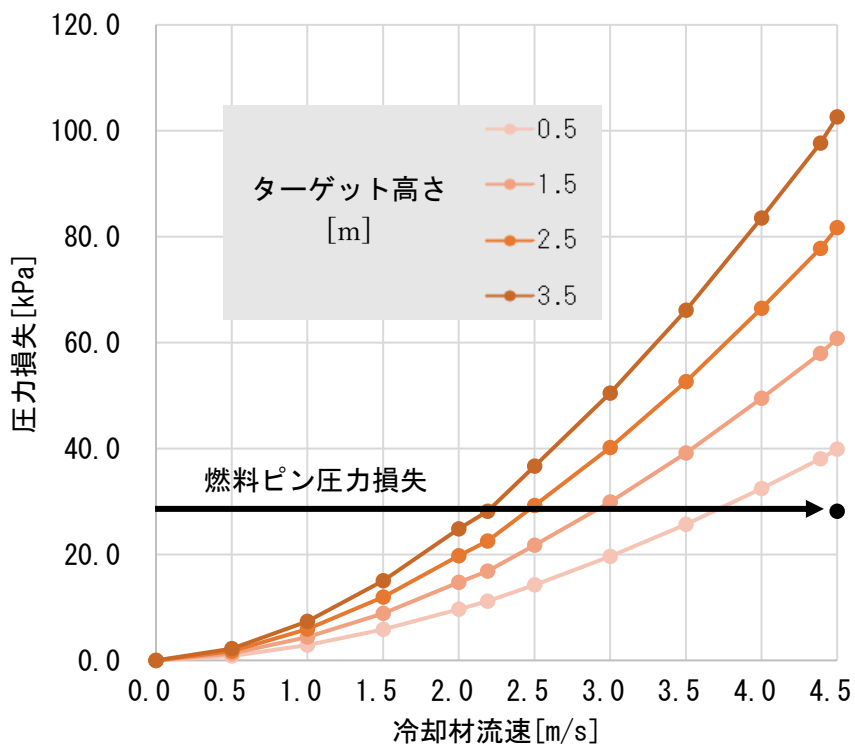


図 3. 2. 3-13 案内管内円環部の圧力損失(ターゲット半径 0.3 cm)

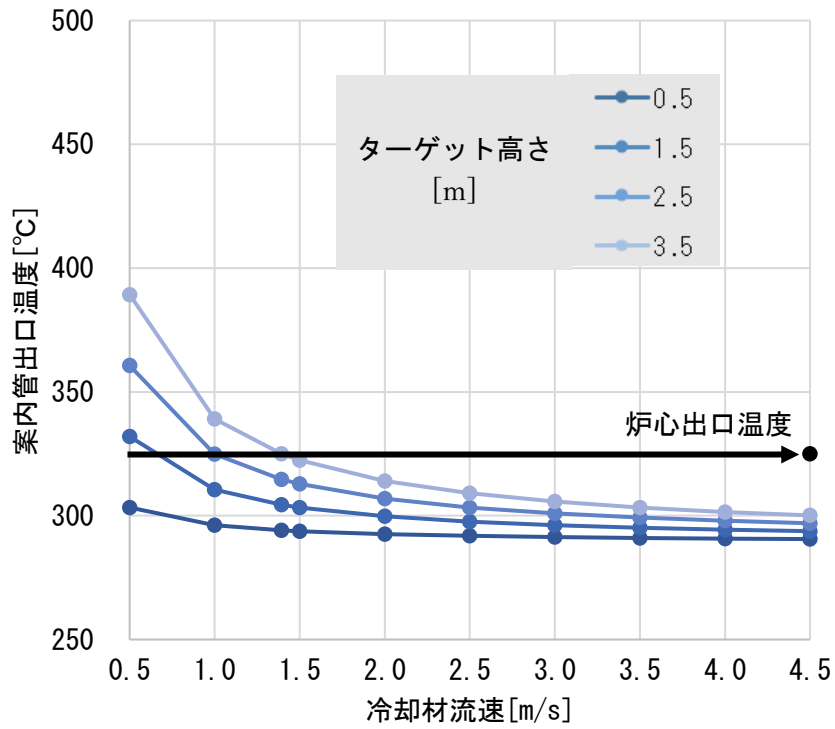


図 3.2.3-14 案内管出口の冷却材温度 (ターゲット半径 0.2 cm)

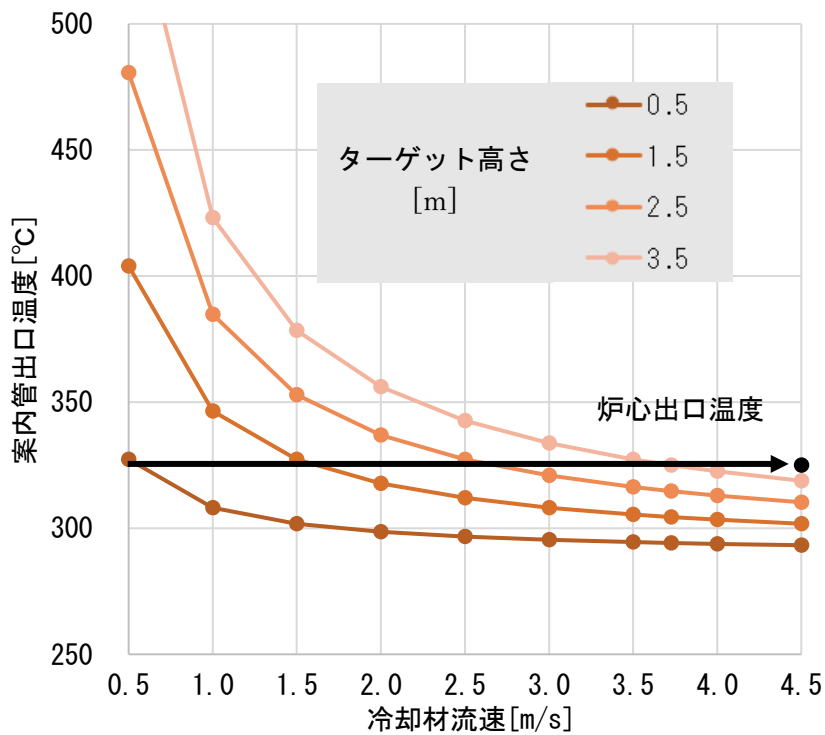


図 3.2.3-15 案内管出口の冷却材温度 (ターゲット半径 0.3 cm)

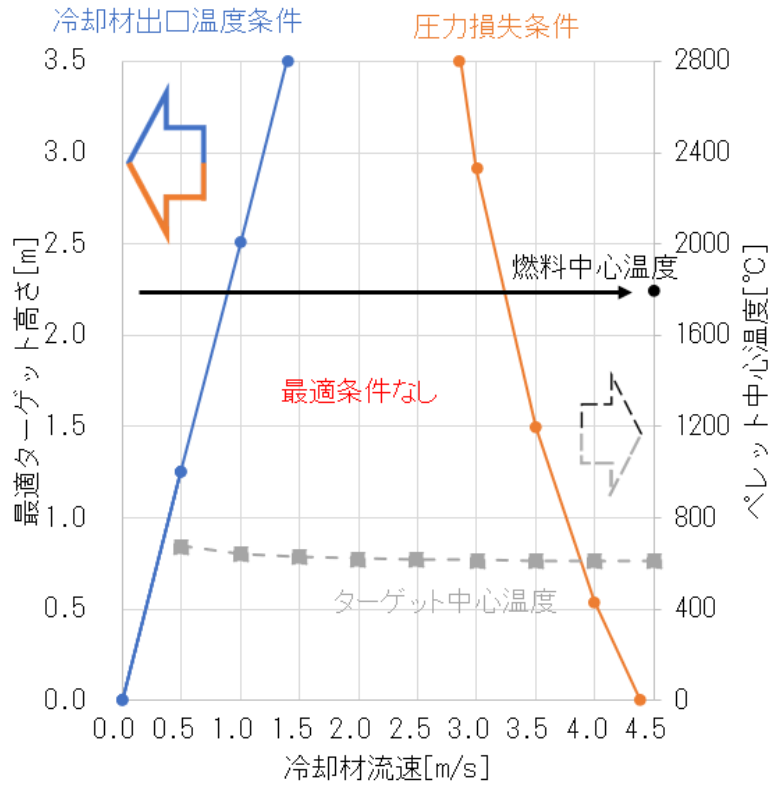


図 3.2.3-16 ターゲット仕様サーベイ結果 (ターゲット半径 0.2cm)

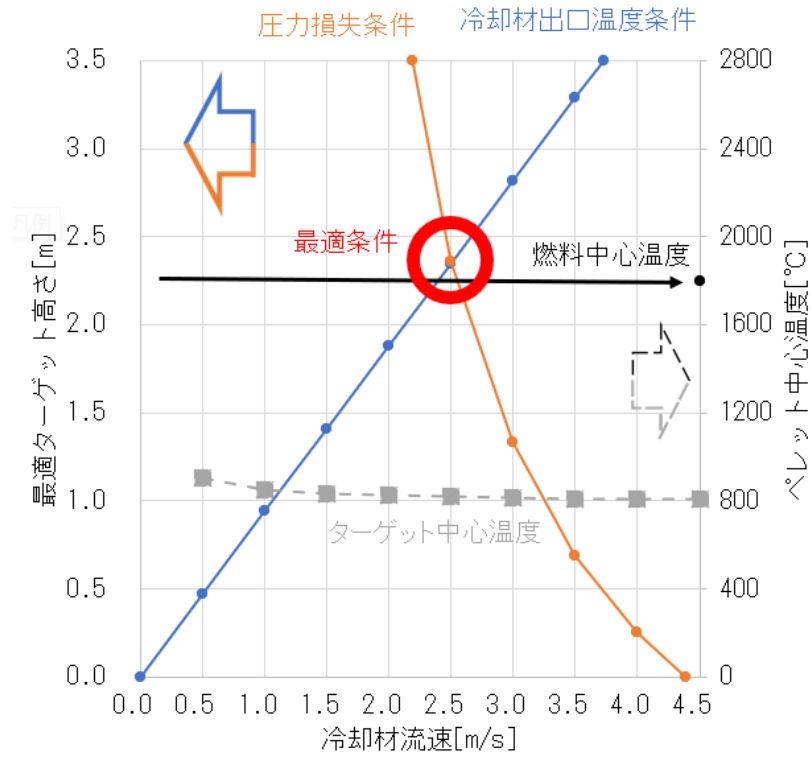


図 3.2.3-17 ターゲット仕様サーベイ結果 (ターゲット半径 0.3cm)

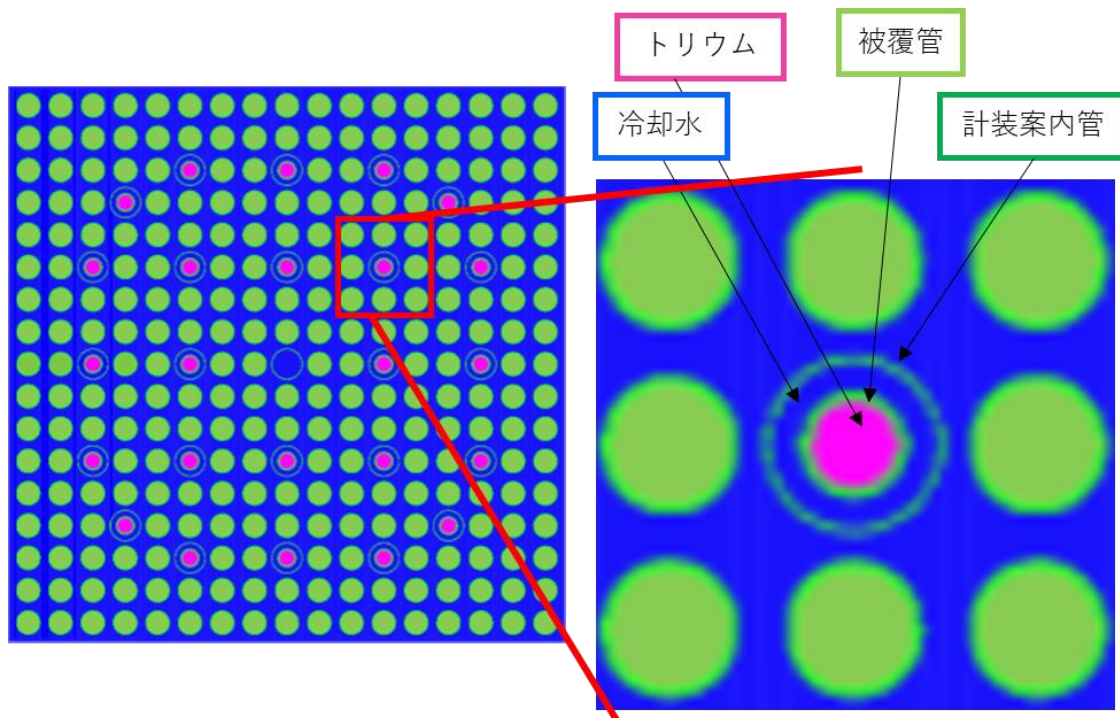
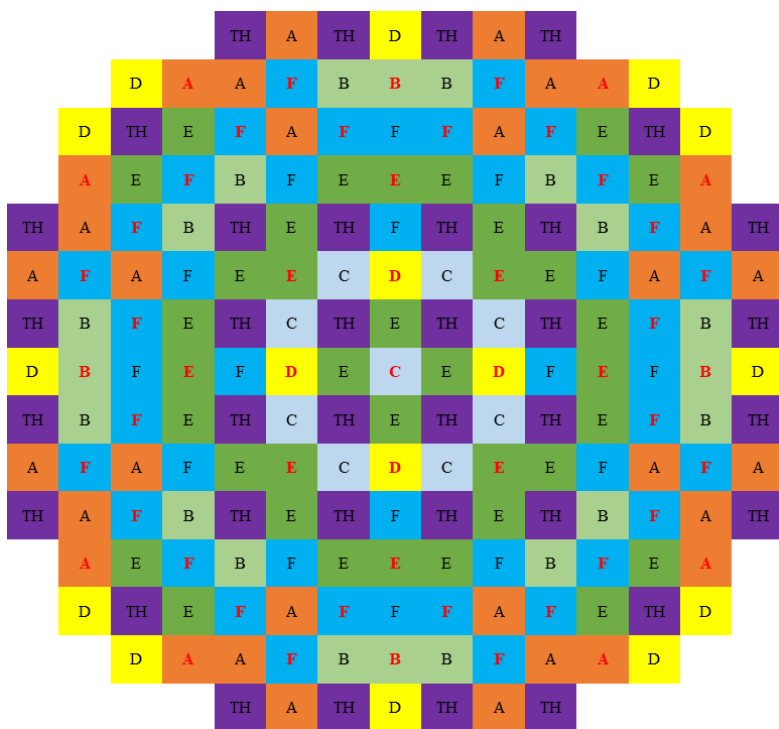


図 3. 2. 3-18 燃料集合体内の Th-232 混合ターゲットピン配置



識別 ID	体数	燃料種類
A	32	新燃料
B	20	1cycle 燃料
C	9	2cycle 燃料
D	16	新燃料 (Gd)
E	36	1cycle 燃料 (Gd)
F	44	2cycle 燃料 (Gd)
TH	36	Th (Th-230+Th-232) ターゲット集合体
赤字	53	制御棒クラスタ 装荷位置
合計(体)	193	

図 3. 2. 3-19 Th-232 混合ターゲット集合体の炉心内配置

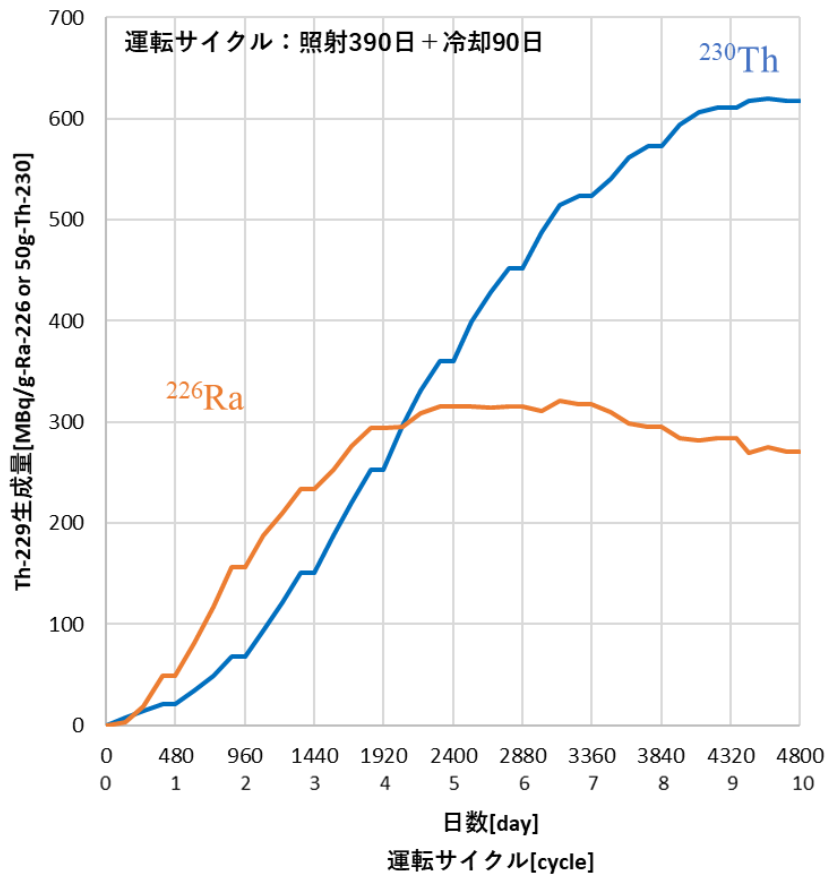


図 3. 2. 3-20 Ra-226/Th-230 単体ターゲットの Th-229 生成量
 (4 集合体へ Ra-226 (1g) もしくは Th-230 (50g) を装荷)

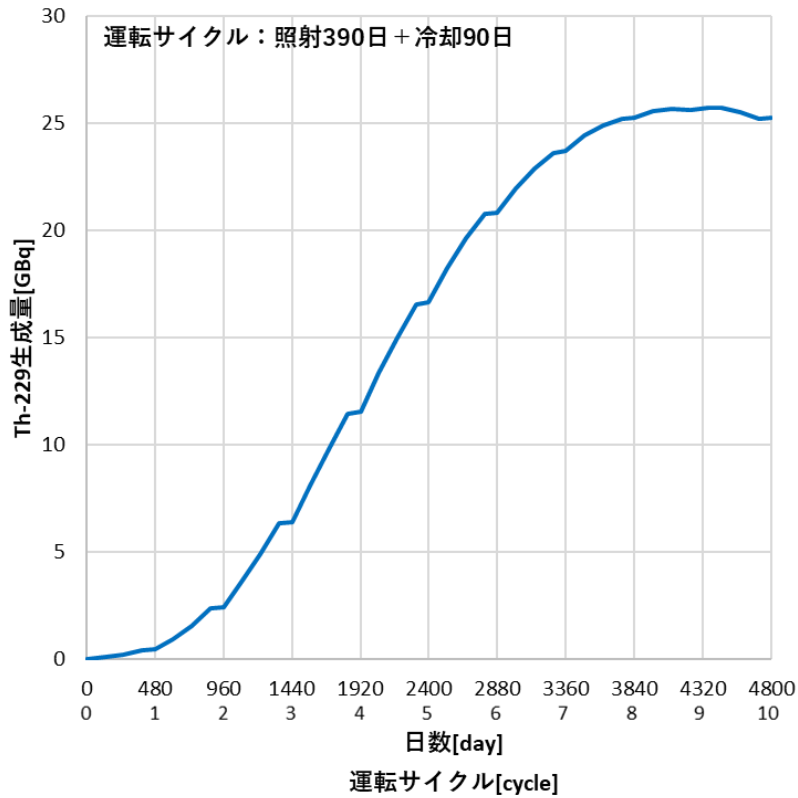


図 3. 2. 3-21 Th-232 混合ターゲットの Th-229 生成量
(36 集合体へ合計 577[kg-ThO₂] (Th-230 : 845[g]) を装荷)



図 3. 2. 3-22 Th-232 からの Th-229 生成パス

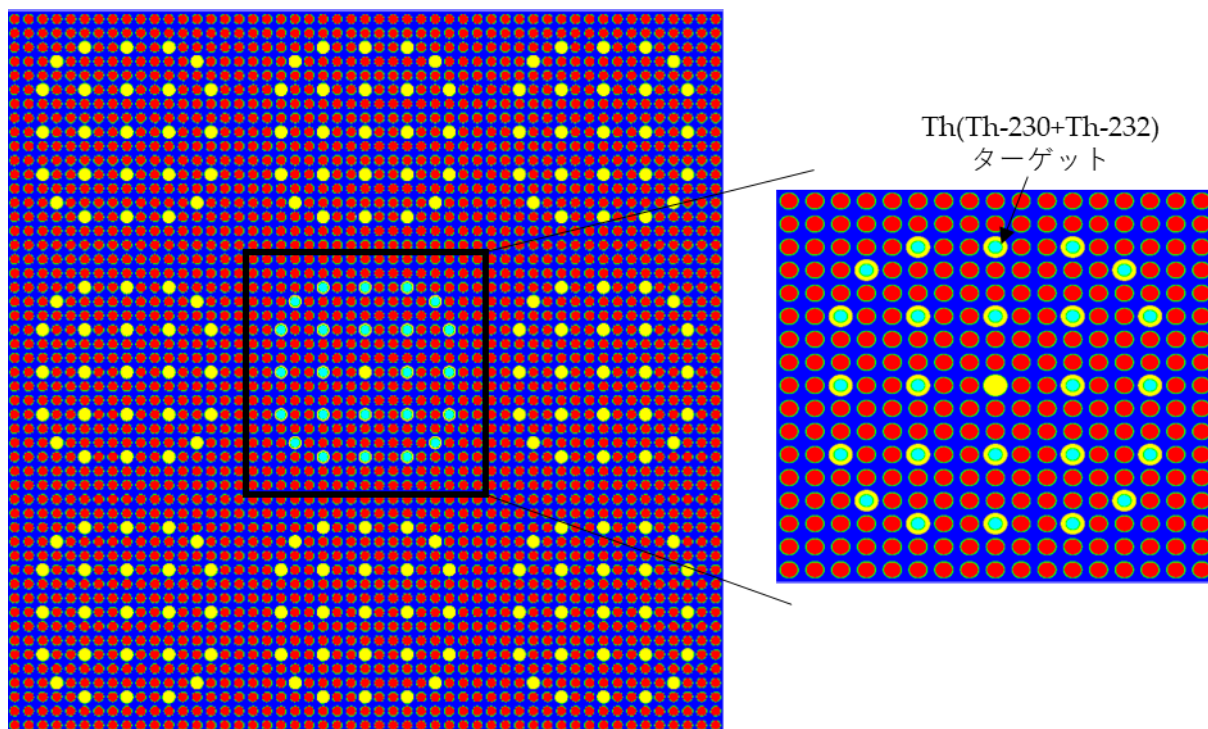


図 3. 2. 3-23 Th-232/Th-230 比率と Th-229 生成量の相関評価に用いた
集合体及びターゲット集合体の体系図

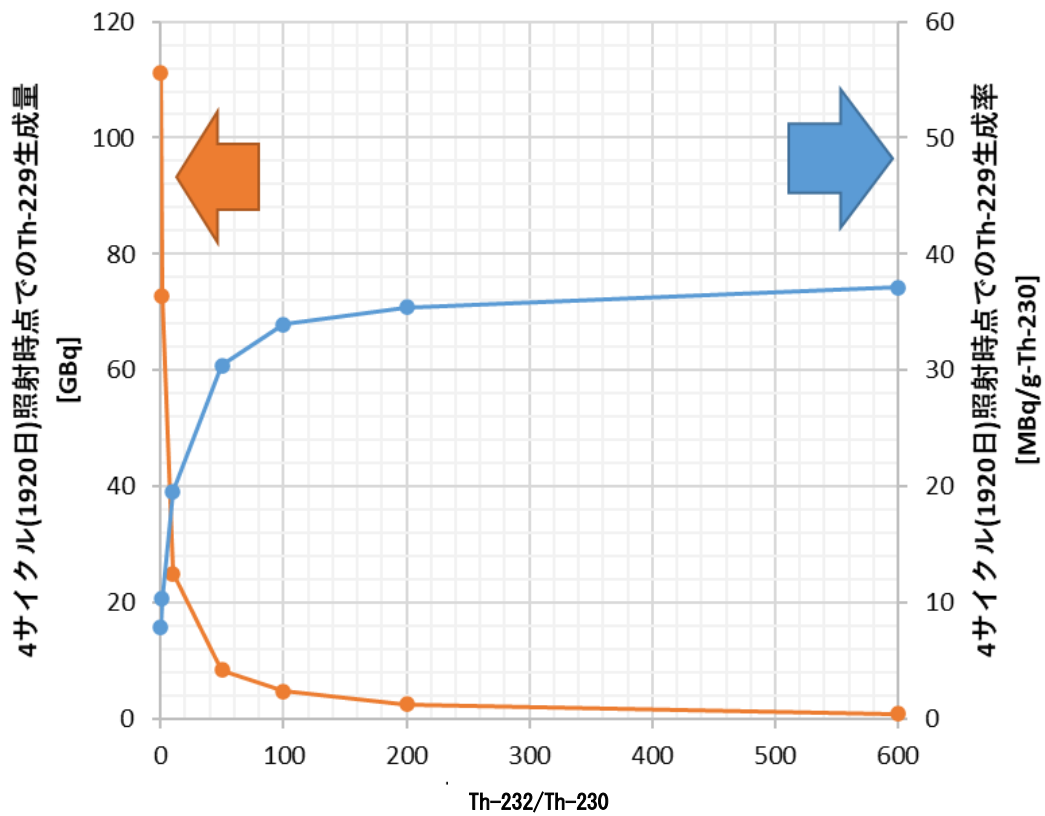


図 3. 2. 3-24 Th-232/Th-230 比率と Th-229 生成量の相関
 (14.1 kgのトリウムを4サイクル(1920日)照射時)

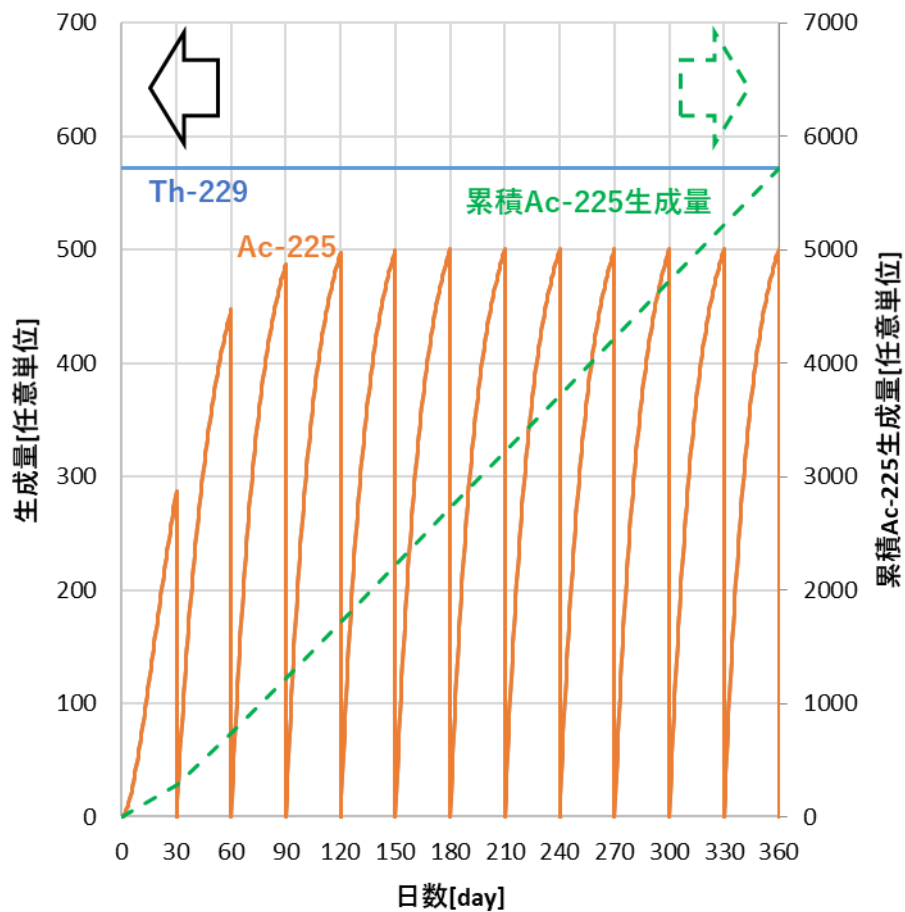


図 3. 2. 3-25 Th-229 から 30 日毎に Ac-225 をミルクキングする際の年間 Ac-225 総量

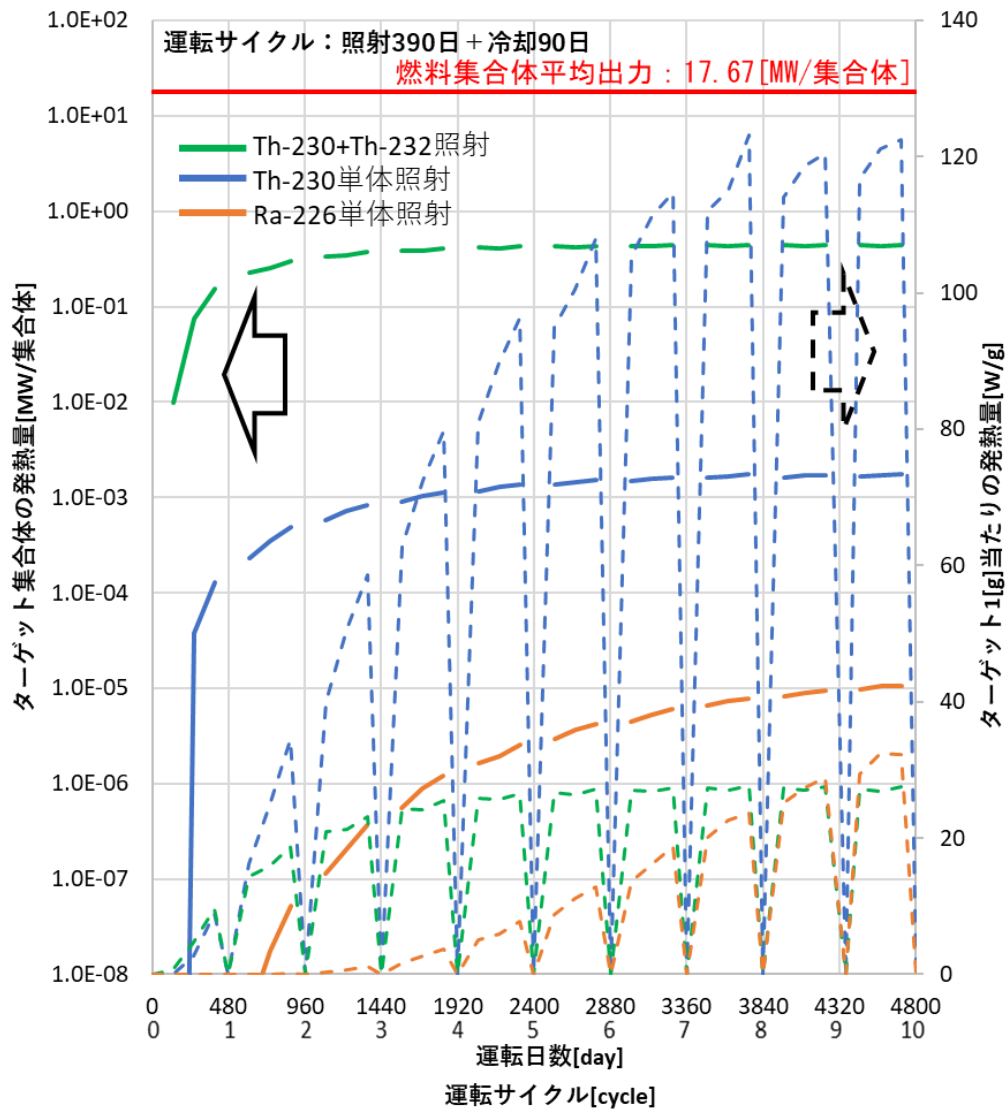


図 3. 2. 3-26 ターゲットの発熱量及び比発熱量
 (Th-232:577 kg, Th-230:50 g, Ra-226:1 g)

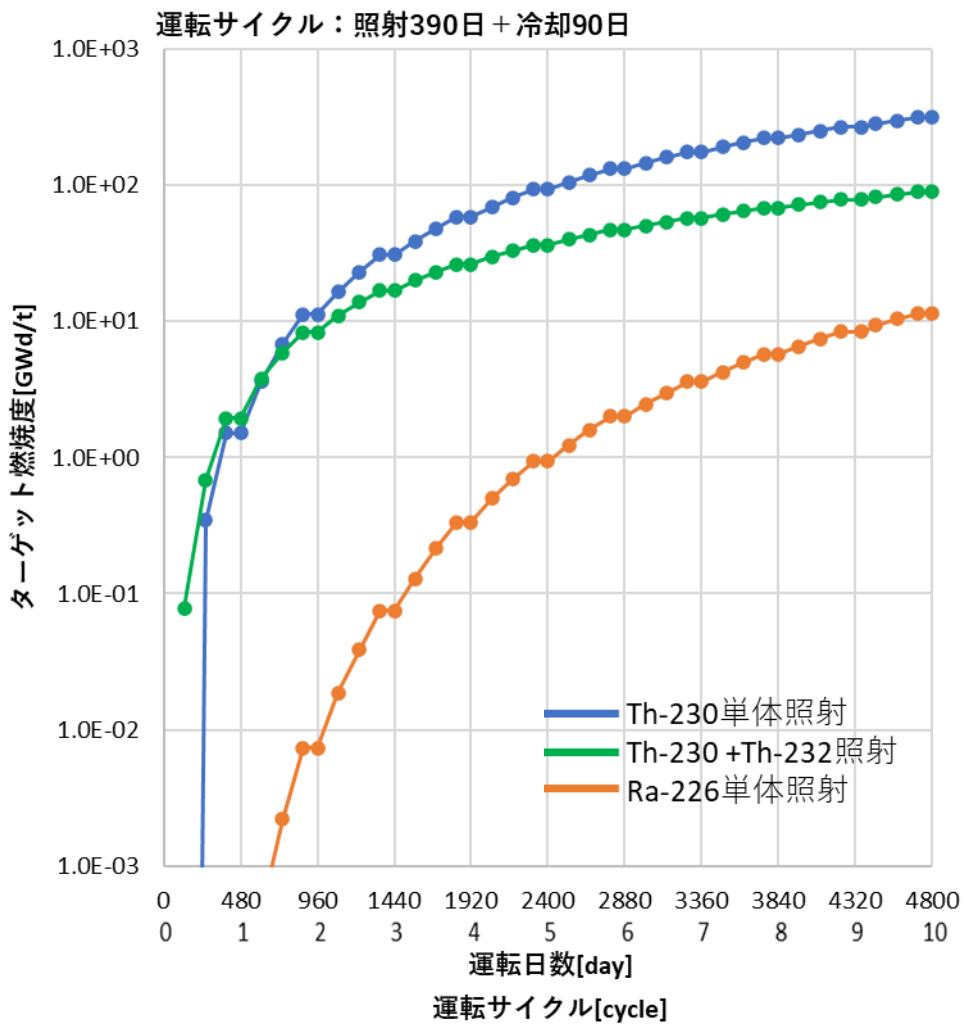


図 3. 2. 3-27 ターゲットの燃焼度
(Th-232:577 kg, Th-230;50 g, Ra-226 1g)

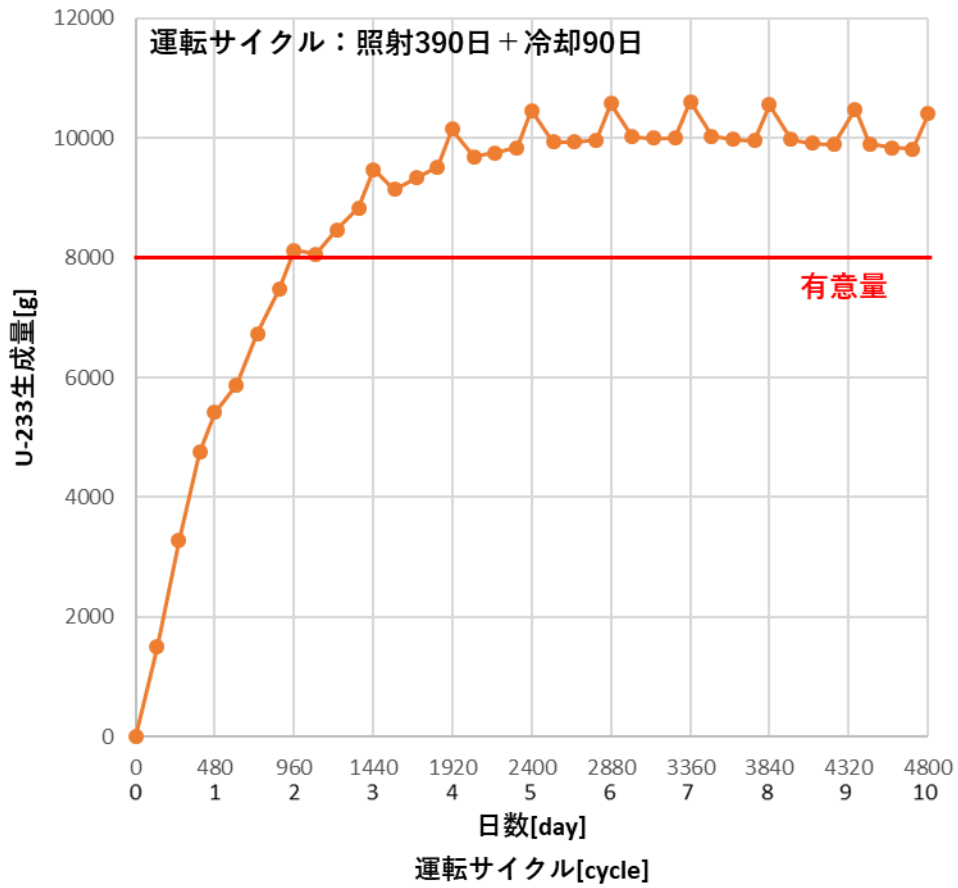


図 3. 2. 3-28 Th-232 混合ターゲットの U-233 生成量
 (36 集合体合計で 577 [kg-ThO₂] (Th-230 : 845 g を装荷時))

3.3 高速炉（「常陽」）での Mo-99 製造・

3.3.1 最適な照射場の設置（（都市大、再委託先：JAEA）【R2-R4】

(1) 炉心検討【R2-R4】

令和 2 年度は、常陽で実現可能な、中低速中性子照射場を設置する炉心構成を検討した。中低速中性子照射場を設置する炉心の炉心構成を検討し、候補の炉心を決定した。この炉心構成に基づき、詳細解析用のモンテカルロ法用の入力ファイルを作成し、試計算を完了した。また、炉心構成検討、中低速中性子照射場設置場所検討の効率化のため、並列計算機を導入し、効率的な評価が可能な解析環境を構築した。常陽での Mo-99 製造に適した集合体仕様を検討するための解析環境、入力データの整備を行い、Mo/Tc 生成量の評価を開始した。

(2) 減速集合体仕様検討【R2-R3】

令和 2 年度に解析準備を行い、令和 3 年度は令和 2 年度に検討した炉心構成において、減速集合体の減速材種類、充填割合等の仕様を検討した。また、減速集合体仕様を受けて、炉心構成を最適化した。減速集合体材料として、Be、Al 及び Graphite で、Mo-99 の核変換率の比較を行った結果、Be>Graphite>Al の順で多いことが分かった。また、ターゲットと混合させる YD₂ 減速材の中性子減速効果は小さく、核変換率向上に有効でないことが分かった。検討された減速集合体仕様を用いて令和 2 年度に検討した炉心構成、減速集合体装荷位置・減速集合体数でパラメータサーベイをし、最も効率的な炉心構成を確認した。

(3) 炉心検討【R4】

令和 3 年度までの検討結果を踏まえ、「常陽」減速場における Mo-99 の製造量の最確値の予測及びその不確かさを評価した。

① 不確かさ評価解析コード

製造量の不確かさ評価のためのトータルモンテカルロ法に基づく解析コードを作成した。図 3.3.1(5)-1 に解析フローを示す。中性子スペクトルから全中性子束を、中性子スペクトルと核データライブラリから 1 群断面積を不確かさ付きで算出する。不確かさの範囲で正規分布乱数を用いて全中性子束及び 1 群断面積の多量のサンプルセットを作成し、これらのサンプルで行列指数法による燃焼計算（ORIGEN2.2 相当）を実施し、Mo-99 生成量の平均値と標準偏差を、製造量の最確値及びその不確かさとする解析コードを作成した。

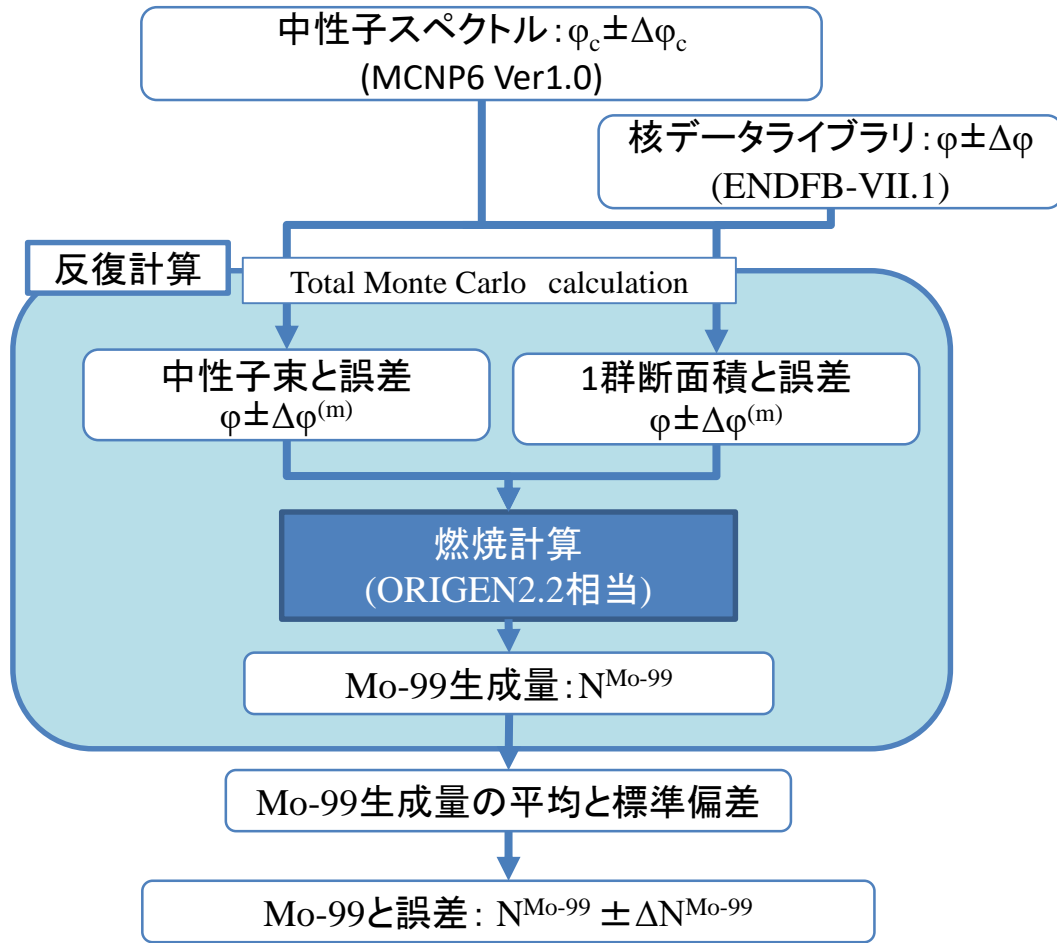


図 3.3.1(5)-1 トータルモンテカルロ法に基づく解析フロー

② 製造量評価及びその不確かさ評価

上記で作成した解析コードを用いて、「常陽」減速場における Mo-99 の製造量の最確値の予測及びその不確かさを評価した。

1 群断面積は式 (3.3.1(5)-1) を用いて、MCNP コードで求めた多群中性子スペクトルと NJOY コードで処理した多群断面積から算出した。なお、Mo-99 製造においては、燃焼計算において $^{98}\text{Mo}(n, g)$ 反応と $^{100}\text{Mo}(n, 2n)$ 反応の寄与割合を確認し、 $^{98}\text{Mo}(n, g)$ 反応が 99.9 % を占めることから、トータルモンテカルロ法において乱数で振る 1 群断面積は $^{98}\text{Mo}(n, g)$ 反応のみとすることとした。また、製造量評価用の Mo 断面積データは、炉心解析で用いている JENDL4,5 が共分散データを有していないため、ここでは ENDF/B-VII.1 を用いることとした。

$$\sigma_{1Gr} = \int (\sigma \times \varphi_{Mk-IV}) dE / \int \varphi_{Mk-IV} dE \quad \text{式 (3.3.1(5)-1)}$$

中性子束については、MCNP コードによる中低速スペクトル場の解析を図 3.3.1(5)-2 に示す体系で実施した。減速集合体は、3.3.2 項で詳細に述べるが、本解析では、Be 減速要素の加工性を踏まえて、円柱コンパートメント封入タイプの 7 本クラスタ構造とし、減速材の充填率（集合体ラップ管内面積に対する値）は 60.2 % とした。また、照射ターゲット

である MoO_3 は炉中心±25 cm の 50 cm に各コンパートメントに装填した。 MoO_3 ペレットの理論密度比は 95 TD%とし、ターゲット集合体には天然組成の Mo を使用した MoO_3 ペレットを 5.15 kg 装填した。

解析に使用した断面積ライブラリは JENDL-4 に遅発 γ 線データを付加した「常陽」において独自に作成した AceLib を用いた。本ライブラリを用いることで、1 度の中性子・ γ 線結合計算において 1 発生中性子当たりの発熱量が算出でき、炉出力への規格化が容易になるメリットがある。

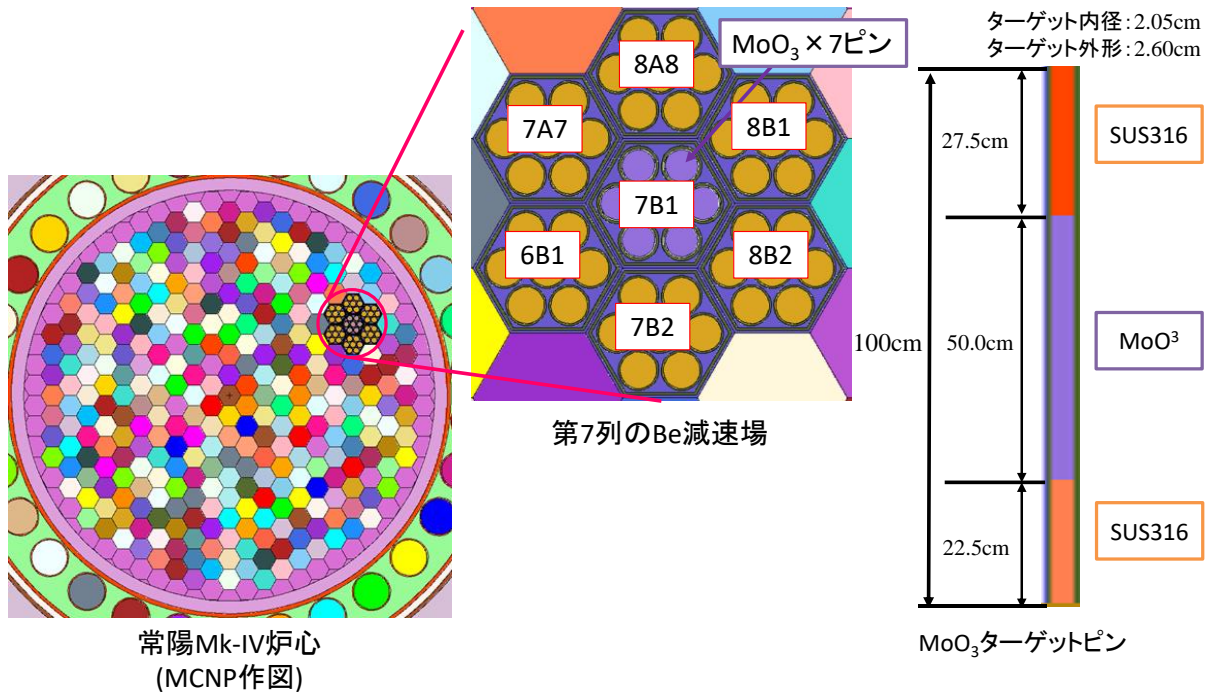


図 3.3.1(5)-2 解析体系図

1 群断面積の核データ由来の不確かさは、共分散データ及び MCNP で求めた中性子スペクトルから式(3.3.1(5)-2)により求めた。なお、本評価においては中低速スペクトル場におけるドシメータ等による照射場の実測データがないため、中性子スペクトルの不確かさに起因する 1 群断面積の不確かさは考慮しなかった。

$$\Delta\sigma_{1Gr} = \sqrt{\frac{\int (\varphi_{Mk-IV_i} \times \Delta\sigma_i \Delta\sigma_j \times \varphi_{Mk-IV_j}) dE}{\int \varphi_{Mk-IV_i} dE \times \int \varphi_{Mk-IV_j} dE}} \quad . \text{式(3.3.1(5)-2)}$$

照射日数を 7 日とし、Mo-99 の化学処理における回収率を 90 %とした解析結果を表 3.3.1(5)-1 に示す。1 群断面積は 0.449 barn、核データ由来の不確かさは 4.02 %であった。中性子束の不確かさは 14 %を想定した。Mo-99 の生成量の評価をした結果は、照射直後で比放射能 324.6 ± 47.0 GBq/g-Mo、1 集合体あたり 1,115 TBq となった。「常陽」から FMF への

移送 5 日及び化学処理 1 日の計 6 日を照射終了から Mo 出荷までの減衰期間とした場合、比放射能は 68.0 GBq/g-Mo、1 集合体あたり 233.3 TBq となった。

表 3. 3. 1 (5)-1 解析結果

	試行回数	1.0×10^8
Neutron Flux	Total Flux	5.88×10^{14} [n/cm · s]
	Error	14.0%
X-sec	Reaction	(n,γ)
	1Gr.X-sec	0.449 [barn]
	1Gr.X-sec error	4.02%
生成量	^{99}Mo 生成量	324.6 ± 47.0 [GBq / g-Mo]
	Error	14.6%

3.3.2 減速集合体等の設計(再委託先：JAEA -JOYO) 【R2-R3】

(1) 減速集合体設計

令和2年度は3.3.1項の結果を受けて、減速集合体の予備検討を実施した。

令和3年度には7ピン型(遮蔽集合体と同構造)、六角型(外側反射体に似た構造)、1ピン型(Sb-Be中性子源受入集合体)の構造成立性を検討し、所定の減速材充填率に合わせて減速材の形状を調整することにより、目標とする減速性能を確保することができることを確認した。また、減速材の種類については、「常陽」の許可範囲においてはベリリウム(Be)と水素化ジルコニウム($ZrH_{1.65}$)が使用可能、その他 Graphite、Al、 YD_2 を検討したが、Beが最適であると結論付けている。

充填割合に対するMo-98(n, γ)反応率は上に凸の形状で60~80%で極大を持つ傾向であった。これを踏まえ、Beの冷却性、アンチモン-ベリリウム中性子源の γ 線源であるアンチモンを装填した棒を受け入れる受け皿集合体として円環構造の被覆管付きBeの使用実績があることから、中性子源集合体の構造を基本として、充填割合を内部ナトリウム流路の半径すなわち、内側被覆管の内径で調整することとして構造仕様を決定した。

(2) 照射試験集合体設計

照射キャプセルの設計を検討した。製造するMo-99は半減期が約2.6日と短いため、集合体、キャプセルを迅速に取り出して MoO_3 の化学処理を行う必要がある。このため、照射キャプセルの構造を設計した。

3.3.3 照射後試料の取扱手法確立(再委託先：JAEA -JOYO, FMF) 【R2-R4】

(1) 試料取出し・払出工程の検討【R2-R3】

照射後試験(PIE)におけるセル内での解体、グローブボックスからの払出しの迅速化を検討した。集合体を解体するまでの作業にあたっては、セル内の集合体移動に従来の実績から約5時間を要する見込みであったが、セル内での移送経路を最適化し、1時間程度に短縮できる見込みを得た。また、取り出したキャプセルをグローブボックスへ搬出する作業も最適化の余地を確認している。グローブボックス内作業(化学処理工程を除く)については時間短縮の余地はなかった。

(2) 解体用治具製作【R2】

解体のためのコンパートメントやキャプセルについて検討し、事前に解体方法や荷姿の詳細を確認の上、治具の事前準備が必要であることが分かった。

(3) 搬出用GB等検討【R2-R3】

搬出用グローブボックスの概念設計を実施し、コールド試験の準備を行った。

(4) 取扱試験【R2】

コールド試験の準備として必要な資材の準備を行った。グローブボックスについては、令和2年の検討をもとに過去の実績の確認を行い、必要な作業、除染資材について検討を行った。

(5) 試料取出し・払出工程の検討【R4】

試料取出し・払出行程の検討として、照射リグの構造を踏まえ、遠隔解体の確認及びキャプセルの取扱検討を行った。

照射リグの構造としては、コンパートメントを交換できるシャトル型リグと呼ばれるハンドリグヘッドなどを溶接ではなくネジ接合にした構造を採用し、表面汚染密度の制限と管理、ねじ等に関してトルク制限と管理をすることで、セル内で遠隔でターゲットピンの取出し、ターゲットピンに装填される Mo 装荷用キャプセルを迅速にできることを確認した。

内側キャプセルの取り扱い以降をグローブボックス (GB) で実施することとし、キャプセルの解体性向上、パイプカッター等の切削紛のコンタミを極力抑えた手法で解体することで迅速かつコンタミネーションを防止することで、化学処理工程へ迅速に払い出せることを確認した。

内側キャプセル開封用 GB、化学処理用 GB、検査・払い出し用 GB を準備することで、迅速な払い出しができることを確認した。

3.3.4 「常陽」での照射試験計画立案（再委託先：JAEA-JOY0）【R3-R4】

令和3年度には照射試験の実施に必要な許認可項目について検討し、「常陽」の使用の目的に RI 製造の明記、材料照射用反射体もしくは実験装置に MoO₃ の装荷を明記する必要がある、FMF においては、RI（非密封）の使用、貯蔵、廃棄の許可取得が必要と確認された。

【R4】

照射試験計画として、「常陽」運転再開後の実証試験実施に向けた作業項目、工程等を具体化し、実施計画書（暫定版）を作成した。

(1) 照射試料

照射試料は、ホットプレス焼結法又は SPS 法により焼結された MoO₃（三酸化モリブデン）の焼結ディスクとしている。表面積が大きいほど定性的に化学処理に有利とされていることから寸法をφ16×H10 mm/個とし、これを50個積層することで試料長さを500 mmとする。焼結密度は、JMTR におけるφ10×1 mmディスクの SPS 法による焼結試験実績（96.7 %T.D.（出典：JAEA-Tech. 2014-034））から、95 %T.D.（目標）としている。

(2) 照射キャプセル

照射キャプセルの構造案を図 3.3.4-1 に示す。照射試料である MoO₃ は、冷却材 Na と激しく反応するとされていること、また、照射後、MoO₃ ディスクの化学処理にキャプセル構成材料であるステンレス鋼との接触による不純物の混入を避けるため、内側キャプセルは、Mo 製とし、ステンレス鋼製外側キャプセル内を He ガス雰囲気中で溶封する二重構造としている。また、内側キャプセル組立性に配慮し、上下試料ホルダー及び Mo 製ワイヤで MoO₃ ディスクを固定し、Mo 製内側キャプセルに組込む予定である。なお、外側キャプセル溶封時に、内側キャプセル内部についても He ガスに置換できる構造とする。照射中の中性子反応によるガス発生はなく、ガスプレナムは不要であるが、MoO₃ の積層高さが 500 mm であることから、外側キャプセル全長は、700 mm を超える見込みである。

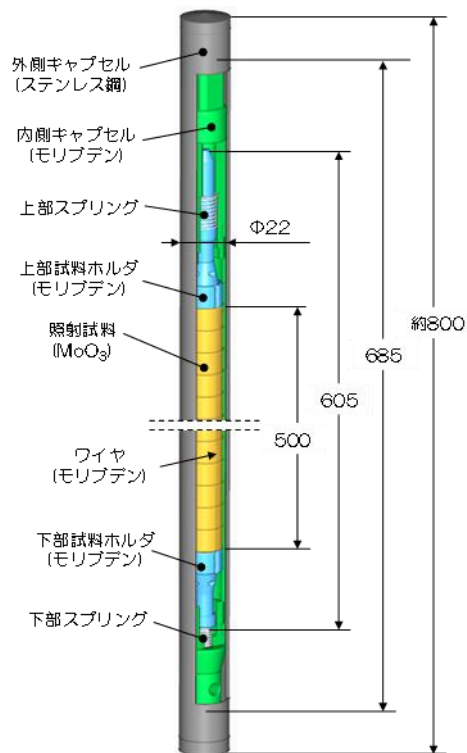


図 3. 3. 4-1 照射キャプセルの構造案

(3) 照射温度

照射中におけるキャプセル内温度は、 MoO_3 の昇華温度とされる $600\text{ }^\circ\text{C}$ 以下になるよう、照射キャプセル内は He ガスで満たし、外筒の上下に端栓を溶接する。

(4) 照射工程 (暫定)

照射試験までの暫定照射工程を図 3. 3. 4-2 に示す。照射後の分離・抽出技術開発は被ばく低減、処理の迅速化のために自動化も含めて継続した検討が必要である。また、キャプセル組立性の確認、 MoO_3 焼結試作、模擬集合体による照射リグの急速取出しの実証試験により確認が必要である。RI 製造に係る許可申請、製作のための設工認申請、照射キャプセル及び照射リグ製作を計画的に進める必要である。

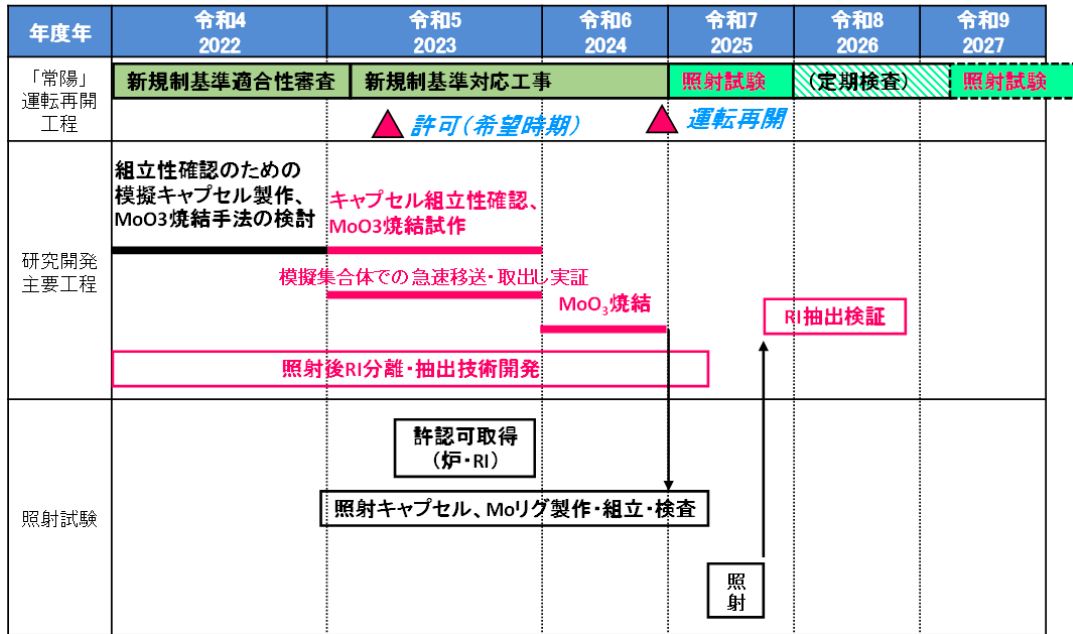


図 3. 3. 4-2 Mo-99/Tc-99m 製造に向けた照射工程(暫定)

3.4 高速炉（「常陽」）での Ac-225 製造

3.4.1 医用 Ac-225 製造条件の設定（再委託先：金沢大学）

【R2-R3】

令和2年度は、需要側(医師、薬剤師)と供給側(Ac-225 製造)で取り合い条件を協議・設定した。

令和3年度は、Ac-225 の各生成法において想定される不純物について、医療用途への適用を前提とした確認を行い、実用性の高い生成法を明らかにした。

【R4】

医薬品の開発の製造販売承認に際しては、当該医薬品が放射性か非放射性かにかかわらず、当該医薬品の原薬から完成品に至るまでの製造過程をすべて規制当局に提出する必要がある。しかしながら、原薬製造と完成品製造の事業者が異なる場合、原薬製造業者が原薬製造過程を完成品製造業者に開示する必要があり、原薬製造業者の原薬の製造等に関するノウハウ流出の恐れがある。原薬等登録原簿 (Drug Master File: DMF) とは、国内又は外国の原薬等製造業者が原薬等の製造方法・製造管理・品質管理等に係る製造販売承認申請審査に必要な情報を事前に登録するものである。これにより、原薬製造業者が完成品の承認申請者に対し審査に必要な情報のうち知的財産（ノウハウ）に関わる情報を開示することなく、完成品の製造業者が承認申請を行うことが可能である。

現在、Ac-225 を使用した放射性薬剤の臨床試験（治験）は日本においては行われていないが、欧米においては複数の薬剤の臨床試験が行われている。その原薬としての Ac-225 については、米国（アメリカ食品医薬品局：FDA）においてすでに2021年4月に Oak Ridge National Laboratory (ORNL) が DMF 登録を行っており、米国の治験においては本 DMF に基づく Ac-225 の供給が行われている。これにより、Ac 製剤の製造を企図する医薬品メーカーは、ORNL で製造された Ac-225 を原薬として製造販売承認申請が可能であり、DMF は幅広い医薬品開発に寄与するものである。

日本における Ac-225 製造はサイクロトロンによる製造、原子炉による製造が検討されているが、サイクロトロン製造は各医薬品メーカーが保有するサイクロトロンが利用可能であるのに対し、原子炉を各医薬品メーカーが保有することは極めて困難であり、原子炉で製造された Ac-225 の研究開発・医用利用の普及を図るためには、原薬としての Ac-225 を製造する事業者が DMF（日本における原薬等）登録を行うことが最適であると考えられる。欧州の U-233 由来の Ac-225 及び米国の U-233 由来の Ac-225 ならびに Th-232 をターゲットとした核破砕法由来の Ac-225 については、ドイツ超ウラン元素研究所（ITU）または米国国立アイソトープ開発センター（NIDC）において製造されたものが臨床研究に用いられている。ITU、NIDC が保証されている品質は以下のとおりである。

ITU：

- Th-229/U-233 < 90 ppm（測定方法：α線スペクトロメトリ）
- Ra-225 < 20 ppm（測定方法：γ線スペクトロメトリ）
- 娘核種の混入率を評価（測定方法：ICP-MS）

NIDC :

【²³³U 由来】




- Ac-225 純度 > 98 %
- Ra-225 < 2 %

【核破砕法】

- Ac-225 純度 ≥ 99 % (測定方法：γ線スペクトロメトリ)
- Ac-227 とその娘核種を含まないこと (出荷時の Ac-227 ≤ 2 %)

国外での²³³U由来の²²⁵Ac供給について

医薬品名	対象疾患	現状
²²⁵ Ac-PSMA-617	前立腺癌	Phase III
²²⁵ Ac-aCD38	多発性骨髄腫	Phase I
²²⁵ Ac-FPX-01	非小細胞肺癌等	Phase I

米国 (ORNL, Oak Ridge)	EU (JRC, Karlsruhe, Germany)	ロシア
 <p>2021年4月にFDAにおいてDMFの登録済み。 米国内の治験に供給中</p> <p>【²³³U由来】</p> <ul style="list-style-type: none"> • ²²⁵Ac純度 > 98% • ²²⁵Ra < 2% <p>【核破砕法】</p> <ul style="list-style-type: none"> • ²²⁵Ac純度 ≥ 99% (測定方法：γ線スペクトロメトリ) • ²²⁷Acとその娘核種を含まないこと (出荷時の²²⁷Ac ≤ 2%) 	 <p>基礎研究用に加え、臨床研究 (治験薬) のための²²⁵Acを供給中</p> <ul style="list-style-type: none"> • Th-229/U-233 < 90 ppm α線スペクトロメトリ • Ra-225 < 20 ppm γ線スペクトロメトリ • 娘核種の混入率を評価 ICP-MS 	 <p>実験目的の²²⁵Acを供給</p> <p>?</p>

- 医用²²⁵Acの国内製造にあたっては、その後のペプチド・抗体等のリガンドに標識可能な純度で提供できることが必要
- 加えて、製造ノウハウの知財保護、多くの医薬品メーカーへの供給体制確立のためには、原薬登録簿 (Drug Master File) への登録が最適

3.4.2 Ac-225 市場予測（再委託先：NucMed）【R2、R4】

【R2】

Ac-225 医薬品は、現時点で薬事承認されているものがない。従って、医療分野における Ac-225 の需要は、研究目的に限られている。世界における年間の供給総量及び輸入単価についての公式な統計はないが、Th-229 を原料として年間 63 GBq 程度が供給されているものと推測され、その我が国への輸入単価は、1 MBq あたり 50,000 円前後であるようだ。Ac-225 の臨床応用の可能性に世界的な注目が集まっている現状においては、医薬品の市販後の製造に必要な量の Ac-225 の確保はおろか、治験用の Ac-225 を安定的に入手することすら困難な状況にある。

令和 2 年度は、Ac-225 医薬品の適応疾患の一つとして海外で開発が進んでいる前立腺がんを例に、我が国における医用 Ac-225 の将来的な市場規模の推計を試みた。

前立腺がんの日本における年間新規罹患者数は約 9 万人（2019 年）であり、年々増加している。前立腺がんは、男性ホルモンに依存して発生し進行することから、一般的な薬物治療はこれを遮断することを目的としている。その一方で、いわゆる去勢抵抗性前立腺がんも、治療開始時点で 10 %程度みられ、この頻度は治療が進行するにつれて上がっていくところ、こうした症例が予後不良となりやすい。Ac-225 治療薬がこの去勢抵抗性前立腺がんをターゲットにして開発されると仮定した場合、将来的に、日本においては毎年約 1 万人程度が対象となることが想定される。

Ac-225 医薬品の薬価を現時点で想定することには困難を伴うが、前立腺がんを対象とした重粒子線治療の保険診療としての技術料が 160 万円に設定されており、またラジウム 223 (Ra-223) 医薬品であるゾーフイゴ®の薬価が 1 回分 697,614 円であって最大 6 回まで投与可能であることに鑑み、いったん 200 万円から 400 万円の間の薬価を想定する。このとき、対象となる前立腺がん患者の約半分が Ac-225 医薬品による治療を受けると仮定した場合、日本国内におけるピーク時の売り上げは 100 ないし 200 億円程度であろうと推計される。多くの医薬品について、日本国内における市場は世界市場の 1 割程度であることから、世界市場としては 1,000 ないし 2,000 億円程度であろう。乳がんその他の疾患への応用、適応拡大を考慮すれば、この 1.5 倍程度の市場規模を想定しうる。

Ac-225 医薬品の価格の内訳としての Ac-225 自体のコストをどのように考えるかという点についても、現時点で正確な想定を行うことは容易ではない。医用ラジオアイソトープのコストとして売り上げの 20 %程度を想定しうるのかもしれないが、一般的には薬の「材料費」はもっと低く、また新薬であればその割合はより低くなることを踏まえれば、最大でも 10 %程度であると見積もっておくべきであろう。これらの前提を、最大値と最小値の幅を含めて是とした場合の売り上げピーク時の Ac-225 の RI としての価値は、国内で 10 から 80 億円程度、世界で 100 から 800 億円程度であると考えられる。

【R4】

令和 4 年度は、年間新規罹患者のうち Ac 医薬品治療の対象となる国内患者数が約 3,400 人である神経内分泌腫瘍及び約 43,000 人である肺がんについて新たに分析の対象とした。患者一人あたりの Ac 必要量から見積もった神経内分泌腫瘍の市場規模については前立腺が

んの半分程度、肺がんについては 4 倍程度となることが予想された。結果として、これら 3 適応症のピーク時の国内売上の合計は保守的に見積もって 550 億円程度、またグローバル売上は国内売上の 10 倍程度となりうる。なお、放射性医薬品の RI の原価率を保守的に 10 %程度と見積もった場合の Ac225 の国内市場規模は、55 億円程度となる。

各治療分野における Ac-225 医薬品の開発状況及び上市後の浸透度、また医薬品原料としての Ac-225 の供給量及び安定性等の多様な要因によって、Ac-225 医薬品の市場規模予測は大きく影響を受けることが、本推計の限界となる。

Ac-225 医薬品に関しても、「医療用等ラジオアイソトープ製造・利用推進アクションプラン」において、国産化を検討すべき医用アイソトープであるとされており、高速実験炉「常陽」、加速器等を用いた製造が検討されている。現時点では、原料となる Ra-226 の入手が困難であることが障壁の一つとなっており、2022 年に成立した経済安全保障推進法中の重要物資に位置付ける等、原料確保にあたり、今後は国が中心的な役割を担っていく必要がある。

3.4.3 最適な照射場の設置(都市大、再委託先：JAEA-JOYO) 【R2-R4】

【R2-R3】

令和2年度は、(1)炉心検討として、「常陽」において、Ra-226 照射間接生成法 (^{226}Ra (n, 2n)反応)、Th-230 照射間接生成法 (Th-229/Ac-225 ジェネレータ法： ^{230}Th (n, 2n)反応) を利用するのに適した炉心構成を実際の「常陽」において実現可能な範囲で検討した。

(2)照射試験集合体仕様検討では、常陽でのAc-225 製造に適した集合体仕様を検討するための解析環境、入力データの整備を行うとともに、常陽 MK-IV のAc-225 製造能力評価を実施した。令和3年度は令和2年度に検討した炉心構成において、Ra-226 照射直接生成法、Th-230 照射間接生成法 (Th-229/Ac-225 ジェネレータ法) を利用するのに適した照射試験用集合体の構造を最適化した。照射試験用集合体仕様を受けて、炉心構成を最適化した。減速集合体材料として、Be、Al 及び Graphite で、Ac-225 の親核である Th-229 の核変換率の比較を行った結果、 $\text{Be} > \text{Graphite} > \text{Al}$ の順で多く、またターゲットと混合させる YD_2 減速材の増加に伴い、核変換率向上の傾向が見られ、Ac-225 生成には減速材の利用が有効であることが分かった。炉心構成の最適化では、検討された照射試験用集合体仕様を用いて令和2年度に検討した炉心構成と同様にパラメータサーベイを実施し、最も効率的な炉心構成を確認した。

(1) 炉心検討 (JAEA-JOYO) 【R4】

令和3年度までの検討結果及び3.4.2項の市場予測を踏まえ、「常陽」炉心中心におけるAc-225の製造量の最確値の予測及びその不確かさを評価した。

① 不確かさ評価解析コード

製造量の不確かさ評価のためのトータルモンテカルロ法に基づく解析コードを作成した。図3.4.3(5)-1に解析フローを示す。中性子スペクトルから全中性子束を、中性子スペクトルと核データライブラリから1群断面積を不確かさ付きで算出する。不確かさの範囲で正規分布乱数を用いて全中性子束及び1群断面積の多量のサンプルセットを作成し、これらのサンプルで行列指数法による燃焼計算 (ORIGEN2.2相当) を実施し、Ac-225の親核種であるRa-225の生成量の平均値と標準偏差を、製造量の最確値及びその不確かさとする解析コードを作成した。

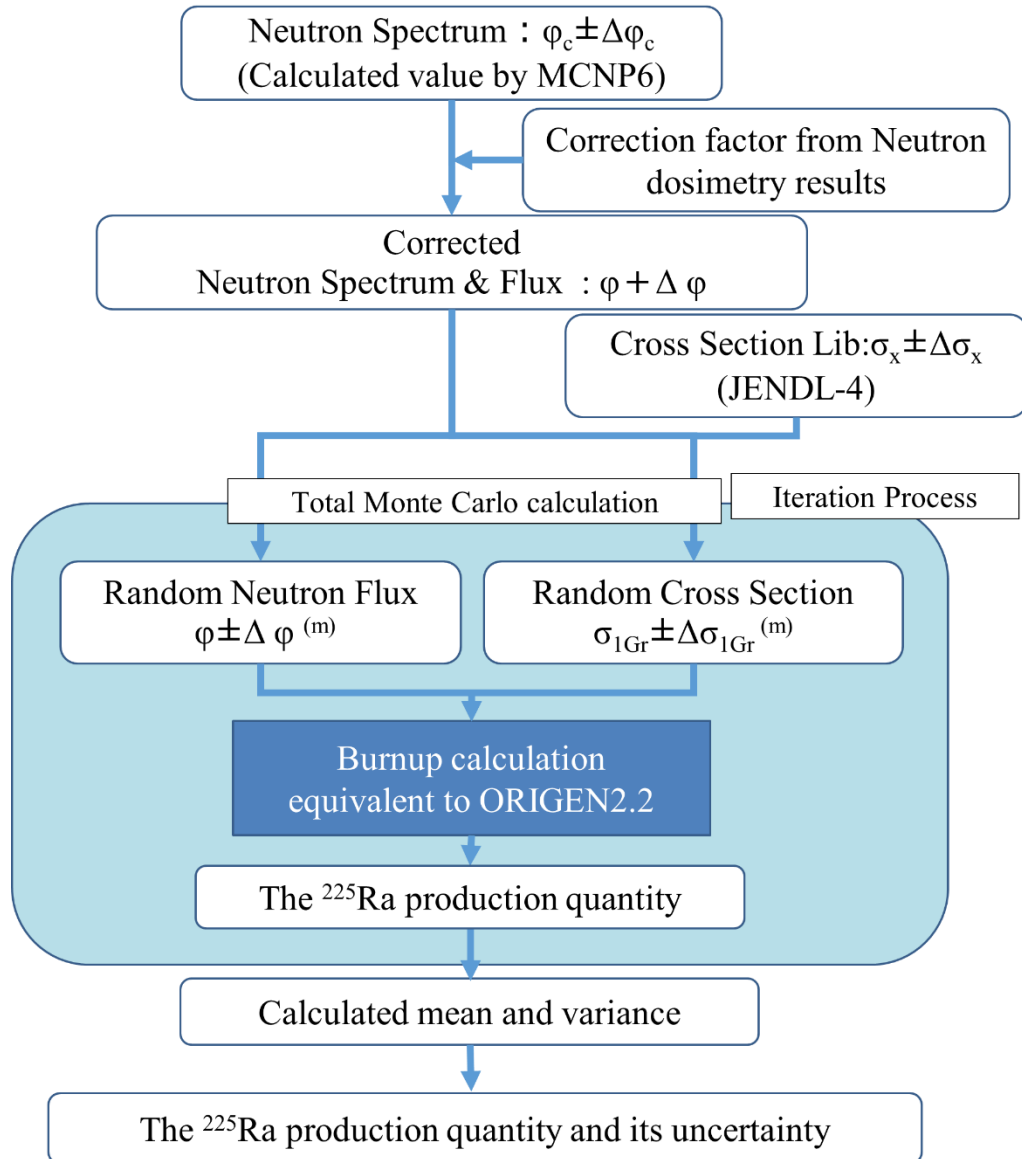


図 3.4.3(5)-1 トータルモンテカルロ法に基づく解析フロー

② 製造量評価及びその不確かさ評価

上記で作成した解析コードを用いて、「常陽」炉中心における Ra-225 の製造量の最確値の予測及びその不確かさを評価した。

中性子スペクトルは MCNP コードにより解析し、MK-III 炉心で実施した核特性ドシメータによる実測した（多重放射化箔法によるスペクトルアジャストメントした）中性子スペクトルで補正し、最確値とした式 (3.4.3(5)-1)。

$$\varphi_{Best\ estimated_Mk-IV} = \varphi_{Calculated_Mk-IV} \times \frac{\varphi_{Calculated_Mk-III}}{\varphi_{Expreimented_Mk-III}} \quad \text{式(3.4.3(5)-1)}$$

ここで、

$\varphi_{Calculated_Mk-IV, Mk-III}$: MCNPの計算値
 $\varphi_{Experimeted_Mk-III}$: 核特性試験の結果

である。

中性子スペクトルの不確かさは、MCNP コードによる MK-IV 炉心での統計誤差、核特性試験を実施した MK-III 炉心での解析における統計誤差及び核特性測定試験による中性子スペクトルの実験誤差を式(3.4.3(5)-2)により評価した。

$$\Delta\varphi_{Best\ estimated_Mk-IV} = \sqrt{(\Delta\varphi_{C_Mk-IV}^2 + \Delta\varphi_{C_Mk-III}^2 + \Delta\varphi_{E_Mk-III}^2)} \quad \text{式(3.4.3(5)-2)}$$

1 群断面積は式(3.3.1(5)-1)を用いて、MCNP コードで求めた多群中性子スペクトルと NJOY コードで処理した多群断面積から算出した式 (3.4.3(5)-3)。なお、Ra-225 製造においては、燃焼計算で $^{226}\text{Ra}(n, 2n)$ 反応以外に (n, γ) 、 $(n, 3n)$ 、 (n, f) 反応も考慮し、同様にトータルモンテカルロ法において乱数で振ることとした。また、製造量評価用の Ra 断面積データは、炉心解析で用いている JENDL4,5 が共分散データを有していないため、JAEA 核データ評価 Gr. の協力の下、不確かさ付きの評価済みライブラリを作成して用いることとした。

$$\sigma_{1Gr} = \int (\sigma \times \varphi_{Mk-IV}) dE / \int \varphi_{Mk-IV} dE \quad \text{式(3.4.3(5)-3)}$$

縮約する中性子スペクトル由来の不確かさは、断面積データ及び MCNP で求めた中性子スペクトルの不確かさから式(3.4.3(5)-4)により求めた。

$$\Delta\sigma_{1Gr_neutron\ spectrum} = \sqrt{\frac{\int (\sigma_i \times \Delta\varphi_{Mk-IV_i} \Delta\varphi_{Mk-IV_j} \times \sigma_j) dE}{\int \varphi_{Mk-IV_i} dE \times \int \varphi_{Mk-IV_j} dE}} \quad \text{式(3.4.3(5)-4)}$$

1 群断面積の核データ由来の不確かさは、共分散データ及び MCNP で求めた中性子スペクトルから式(3.3.1(5)-5)により求めた。

$$\Delta\sigma_{1Gr_nuclear\ date} = \sqrt{\frac{\int (\varphi_{Mk-IV_i} \times \Delta\sigma_i \Delta\sigma_j \times \varphi_{Mk-IV_j}) dE}{\int \varphi_{Mk-IV_i} dE \times \int \varphi_{Mk-IV_j} dE}} \quad \text{式(3.4.3(5)-5)}$$

最終的に 1 群断面積の不確かさは、縮約する中性子スペクトル由来の不確かさと 1 群断面積の核データ由来の不確かさを式(3.4.3(5)-6)で足し合わせて評価した。

$$\Delta\sigma_{1Gr} = \sqrt{(\Delta\sigma_{1Gr_neutron\ spectrum})^2 + (\Delta\sigma_{1Gr_nuclear\ date})^2} \quad \text{式(3.4.3(5)-6)}$$

解析結果を表 3.4.3(5)-1 に示す。「常陽」で 60 日照射した Ra-225 の生成量の評価をした結果は、照射直後で比放射能 18.7 ± 7.5 GBq/g-²²⁶Ra となった。「常陽」においては、照射終了後（原子炉停止後）から FMF の GB まで 5 日間、化学処理で 1 日の計 6 日間が必要で、6 日後においては 14.1 GBq/g-²²⁶Ra となる。ここから、最も効率的なミルキングとして 17.5 日間隔で Ac-225（初回の Ac-227 混入分は除く）を分離すると、42 回抽出の合計で 16.5GBq の Ac-225 を得られる。

アクチニウム製剤は、8 週間隔で 3 回の 6.4 MBq 投与との報告がある。このため、「常陽」の運転パターンも医療ニーズを考慮して、照射期間は Ra-225 の半減期を考慮して 3 半減期である 45 日、8 週間おきの頒布に対応すべく燃料交換期間を 2 週間として、年間 6 サイクルの運転パターンを考える。この運転工程は最短工程として実現可能である。また、45 日照射の場合は、1 照射あたりの Ra-225 の生成量は、 15.4 ± 6.2 GBq/g-²²⁶Ra となり、照射する Ra-226 ターゲットを数 g 準備すれば、国内の前立腺がん (UICC TNM stage IV) 罹患者数：約 14,500 人/年の需要を満たせる可能性がある。

「常陽」における Ac-225 製造量の評価を行い、不確かさを考慮しても市場予測を踏まえた医療ニーズ（製造量・頒布回数）を一定程度満足できる見通しを得た。

表 3. 4. 3 (5)-1 解析結果

試行回数		1.0×10 ⁸			
Neutron Flux	Total Flux [n/cm/s]	3.9×10 ¹⁵			
	Error	14.0%			
X-sec	Reaction	(n,γ)	(n,2n)	(n,3n)	(n,f)
	1Gr.X-sec [barn]	2.6E-01	2.0E-03	5.2E-06	3.8E-05
	Error : $\sqrt{(1.^2+2.^2)}$	39.9%	37.0%	59.7%	25.4%
	1. Neutron spectrum	35.0%	32.1%	54.4%	23.3%
	2. Nuclear data	19.0%	18.4%	24.6%	10.2%
生成量	²²⁵ Ra 生成量 [GBq / g- ²²⁶ Ra]	18.7±7.5			
	Error	40.0%			

3.4.4 照射済み Ra-226 からの Ac 分離、Ra-226 再利用（再委託先：JAEA）【R2-R4】

令和2年度は、高速炉で中性子照射した Ra 線源から Ac-255 を選択的に分離回収し、また、Ra を再利用するための分離剤候補を文献調査した。多孔性レジン基材に抽出剤 *N,N,N',N'*-tetra-*n*-octyldiglycolamide (TODGA, 図 3.4.4-1(a)) を導入した DGA レジン及び抽出剤 di(2-ethylhexylorthophosphoric acid (HDEHP, 図 3.4.4-1(b)) を導入した Ln レジン、並びに多孔性レジン基材に MnO₂ を還元析出して調製した MnO₂ レジンを選定した。

令和3年度は、DGA レジンによる Ac 精製プロセスを構築するためのコールド要素試験を実施した。DGA レジンカラムに対して、La (Ac の代替) は、0.5~4 M で 100 % 吸着するが、Ba (Ra の代替) は、0.01~4 M 硝酸濃度で吸着しない。レジンに吸着させた La は、0.001~0.01 M 硝酸でほぼ 100 % 溶離できる。また、1 M 硝酸で La (Ac) をレジンに吸着した場合共存する Pb、Th、Bi が同伴するが、0.1 M 硝酸溶離液を通過することで Pb を選択的に溶離させ分離することが可能である。その後、0.01 M 硝酸溶離液を通過することで La (Ac) のみを溶離させ共存元素から単離することができる。DGA レジンカラムは La 精製に有効であることが確認できたが、Ba (Ra) については Cs、Te、Tl が類似の吸着挙動をとり同伴するため、DGA レジンによる単離は困難である。DGA レジンへの La 吸着容量は、DGA レジンカラム 2 mL あたり 12.6 mg であることを確認した。

Ac 回収・Ra 再利用【R4】

令和4年度は、Ra 再利用プロセスを構築するため、Ln レジン及び MnO₂ レジンを用いる要素試験を実施した。Ac、Ra 及び照射により Ra ターゲット中に生成予測される不純物元素の吸着・溶離挙動を、表 3.4.4-1 に示す非放射性の代替元素を用いるコールド試験により調べた。また、令和3年度及び令和4年度に実施したコールド要素試験で構築したプロセスを実証するために Ac と Ra を用いるホット試験を実施した。

(1) 吸着・溶離試験

① 試験方法

分離剤として、Ln レジン (Eichrom 社製, 粒径 50-100 μm, 容量 2 mL) 及び MnO₂ レジン (Eichrom 社製, 粒径 75-150 μm, 容量 2 mL) のカートリッジを用いた。図 3.4.4-2 に吸着・溶離試験に用いた装置を示す。レジンカラムへの通液は、吸引マニホールドを用いて約 1 mL/min の一定流速で行った。

吸着・溶離試験の手順を図 3.4.4-3 に示す。Ln レジンは、使用前に 1~4 M 硝酸 10~50 mL を通液して混入元素を除去した。Ac 及び Ra の代替元素である La 及び Ba のほか、Tl、Pb、Bi、Te、Cs、Th 等 (各 20 ppb) を含む混合溶液を模擬試料溶液として用いた。最初に、レジンのコンディショニングとして、試験する試料溶液と同じ濃度の硝酸溶液 10 mL をカラムに通液した。次に、試料溶液を通液し流出溶液を「試料・分離液分画」として回収した。その後、試料溶液と同じ濃度の硝酸溶液 (分離液) を 10 mL 通液してカラムに吸着しない元素を洗い流し、この流出溶液を先の「試料・分離液分画」と合わせた。カラムに吸着した元素の溶離するため濃度の異なる硝酸溶液 (溶離液) を 10 mL 通液して溶離する元素を回収し「溶離液分画」とした。各分画の元素濃度を、ICP-MS により定量した。

吸着の酸濃度依存性を調べるため、Ln レジンについては、試料溶液（分離液）の硝酸濃度を 0.002~1 M の濃度範囲で、溶離の酸濃度依存性は、予め試料溶液の硝酸濃度を 0.002 M に固定して吸着させ、溶離液の硝酸濃度を 0.01~2 M の濃度範囲で変化させた。MnO₂ レジンについては、試料溶液の吸着条件は硝酸濃度を 1×10⁻⁴ M に固定し、溶離液の硝酸濃度を 3×10⁻⁴ ~2 M の濃度範囲で変化させた。

②解析

各元素の吸着率及び溶離率は以下の式から算出した。

$$\text{吸着率 (\%)} = \frac{\text{試料・分離液分画中の元素濃度}}{\text{試料液分画中の元素濃度}} \times 100$$

$$\text{回収率 (\%)} = \frac{\text{溶離液分画中の元素濃度}}{\text{試料溶液中の元素濃度}} \times 100$$

③結果

1) Ln レジン

Ln レジンカラムに対する各元素の吸着率の硝酸濃度依存性を図 3.4.4-4(a) に示す。La (Ac) は、0.002~0.1 M 硝酸濃度で 100 % 吸着するが、1 M で吸着しなかった。Ba (Ra) は、0.002 M 硝酸濃度で 100 % 吸着するが、0.01 M 以上の酸濃度で吸着しなかった。他の共存元素については、Th は 0.002~1 M 硝酸濃度でほぼ 100 % 吸着し、Bi は 0.002~0.1 M 硝酸濃度でほぼ 100 % 吸着し 1 M 硝酸濃度で約 50 % まで吸着率が低下し、Te、Cs 及び Tl は 0.002~1 M 濃度範囲で吸着されなかった。Pb は 0.002~0.01 M 硝酸濃度ではほぼ 100 % 吸着するが、0.1 M 以上の硝酸では吸着しなかった。

0.002 M 硝酸の条件でレジンに吸着させた元素を溶離させた時の回収率の硝酸濃度依存性を図 3.4.4-4(b) に示す。La は、0.01~0.1 M では溶離せず、1 M 以上の硝酸でほぼ 100 % 溶離した。Ba は 0.01 M 以上の濃度範囲でほぼ 100 % 溶離した。0.002 M 硝酸で吸着、0.1 M 硝酸で溶離して回収した Ba (Ra) 溶液の La (Ac) の除染係数は >100 であった。また、0.002 M 硝酸でレジンに吸着した Ba (Ra) には La、Pb、Th、Bi が同伴するが、予め 0.01 M 硝酸条件で同伴元素を選択的に吸着させた後、0.002 M 硝酸条件で Ba (Ra) のみを吸着させ単離することができる（図 3.4.4-5）。従って、Ln レジンカラムは Ba 精製に有効であることが確認できた。La (Ac) については、Bi が類似の吸着挙動をとり同伴するため、Ln レジンによる単離は困難である。

2) MnO₂ レジン

酸濃度 1×10⁻⁸~1×10⁻⁴ M で Ba が吸着することが知られているため、硝酸濃度 1×10⁻⁴ M 条件でレジンに吸着させた元素を溶離させた時の回収率の硝酸濃度依存性を調べた。結果を図 3.4.4-6 に示す。レジンに吸着した La (Ac) 及び Ba (Ra) は、硝酸濃度が上昇するにつれて溶離率は高くなり、La (Ac) は 0.1 M より高濃度の硝酸濃度で、Ba (Ra) は 0.5 M 以上の硝酸濃度で 100 % 溶離し、類似の溶離挙動であることから相互分離は困難である。また、吸着した Cs の 10 % 以上が Ba に同伴して溶離する。さらに、硝酸濃度が上昇するにつれて分離剤自身の Mn が溶解し溶離液に混入することから、精製法として利用することは困難である。

(2) 吸着容量の測定

①試験方法

Ln レジンカラムは、吸着・溶離試験と同様に予め洗浄し、0.002 M 硝酸でコンディショニングした後、試料溶液 (Ba:509 ppm を含む 0.002 M 硝酸溶液) を通液し、流出溶液を一定量ごとに回収した。回収した各溶液に含まれる La 及び Ba を、ICP-OES により定量し、破過曲線を得た。

②解析

吸着容量は破過曲線から以下の式を用いて算出した。

$$\text{吸着容量} = \text{試料溶液中 La 濃度} \times \int_0^V \frac{\text{流出溶液中La濃度}}{\text{試料溶液中La濃度}} dV$$

③結果

得られた破過曲線を図 3.4.4-7 に示す。Ba は、試料通液量が 8 mL 以上で流出が始まり、試料通液量が 40 mL 以上ではほぼ吸着されずに流出した。得られた Ln レジンの Ba 吸着容量は、Ln レジンカラム 2 mL あたり 7.0 mg であった。

(3) 提案される精製プロセス

図 3.4.4-8 に令和 3 年度に実施した要素試験から提案される Ac-225 の精製プロセスと令和 4 年度に実施した要素試験から提案される Ra の再利用プロセスを示す。照射後の Ra 線源を溶解した試料溶液を 1 M 硝酸濃度とし、DGA レジンカラムで Ac-225, 227 を吸着させる。この時、Pb、Bi、Th も DGA レジンに吸着される。流出液を回収した Ra 分画を Ra-225/Ac-225 ジェネレータとする。経時的に新たに生成する Ac-225 を 1 M 硝酸濃度で DGA レジンに吸着させ Ra-225 と分離し、0.01 M 硝酸溶離液で回収する。また、La の吸着容量から換算すると Ac-225 の吸着容量は DGA レジン 2 mL あたり 22 mg であり、Ra 線源 1 g から得られる Ac を回収するには 0.5 mL のレジンが必要であると推察される。

Ra の再利用プロセスについては、Ac-225 の分離後、0.002 M 硝酸濃度で Ra を Ln レジンに吸着させ Fr 等の不純物と分離し、0.1 M 硝酸溶離液で回収する。また、Ba の吸着容量から換算すると Ra-226 の吸着容量は DGA レジン 2 mL あたり 11.4 mg であり、Ra 線源 1 g から得られる Ra を回収するには 175 mL のレジンが必要であると推察される。

代替元素を用いたコールド試験で得た分離挙動を確認するために、Ac-225 と Ra-226 を用いるホット試験を実施した。DGA レジン及び Ln レジンの試料・分離液分画と溶離液分画を α 線測定して得た α スペクトルを図 3.4.4-9 に示す。DGA レジンでは、試料・分離液分画から Ra-226 に帰属されるピークのみが検出された。また、溶離液分画には Ac-225 のピークのみが検出された。Ln レジンでは、試料・分離液分画には Ac 及び Ra は検出されず、溶離液分画から Ra-226 ピークのみが検出された。これにより、コールド試験同様の分離挙動をとることが確認できた。

表 3.4.4-1 核種崩壊生成計算コード ORIGEN により計算した、高速中性子照射後の Ra 線源に含まれる元素とその放射能及び重量

元素	放射能 /Bq	重量 /g	使用した代替元素
He	0	9.64×10^{-6}	-
Tl	8.43×10^9	1.14×10^{-9}	Tl
Pb	8.23×10^{10}	7.60×10^{-5}	Pb
Bi	8.22×10^{10}	4.68×10^{-5}	Bi
Po	1.19×10^{11}	1.39×10^{-7}	Bi, Te
At	3.71×10^{10}	6.15×10^{-13}	-
Rn	4.49×10^{10}	6.39×10^{-6}	-
Fr	3.73×10^{10}	5.58×10^{-9}	Cs
Ra	7.55×10^{10}	9.94×10^{-1}	Ba
Ac	5.19×10^{10}	5.54×10^{-3}	La
Th	1.13×10^{10}	4.99×10^{-5}	Th

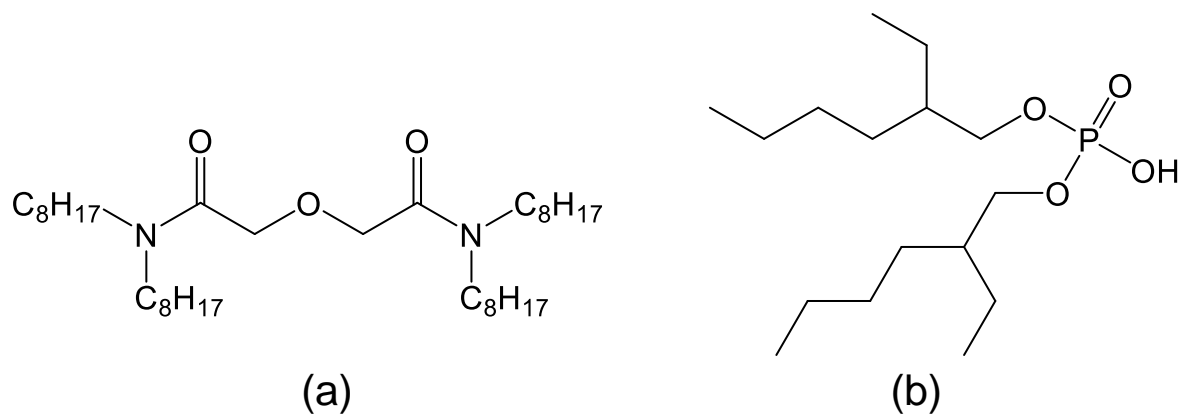


図 3. 4. 4-1 抽出剤 TODGA(a) と HDEHP(b) の化学構造

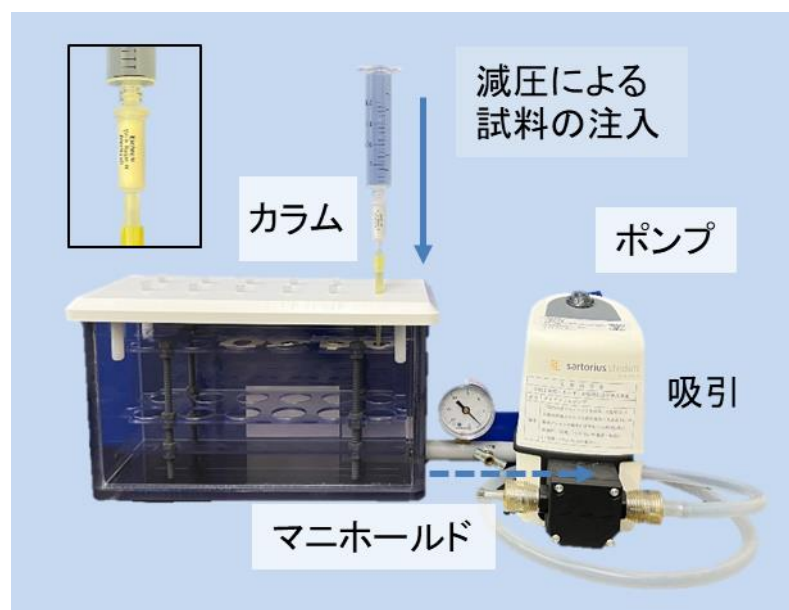


図 3. 4. 4-2 吸着・溶離試験の装置

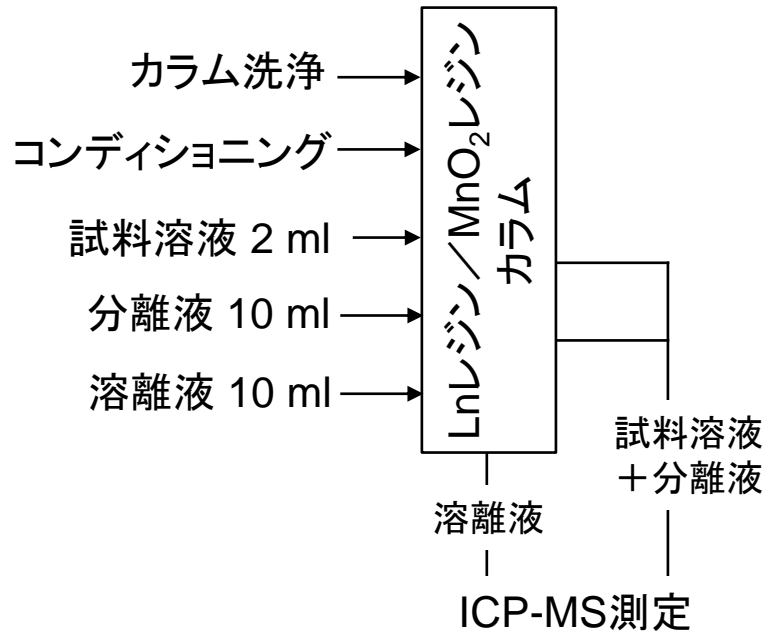


図 3. 4. 4-3 吸着・溶離試験の手順

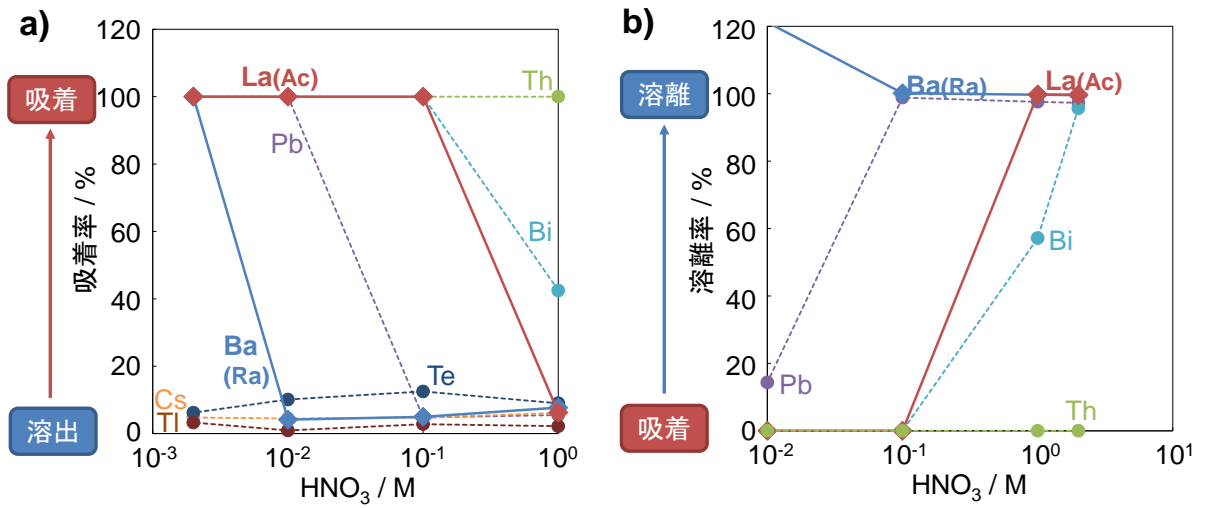


図 3. 4. 4-4 Ln レジンへの吸着率[a]と溶離率[b]の硝酸濃度依存性

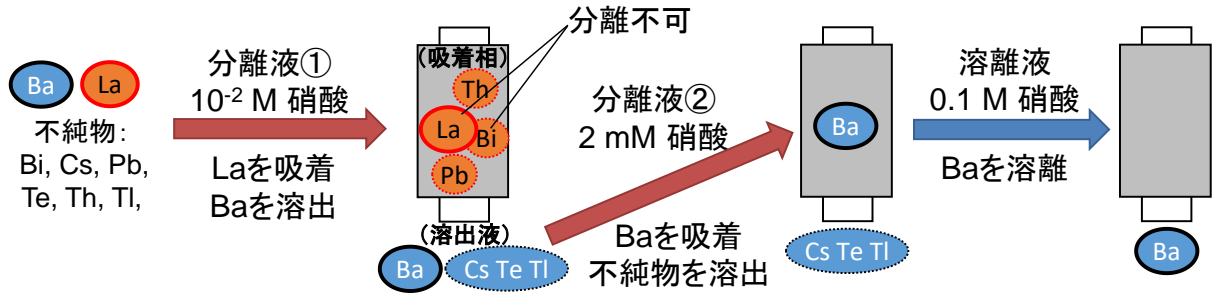


図 3. 4. 4-5 Ba 精製のプロセス

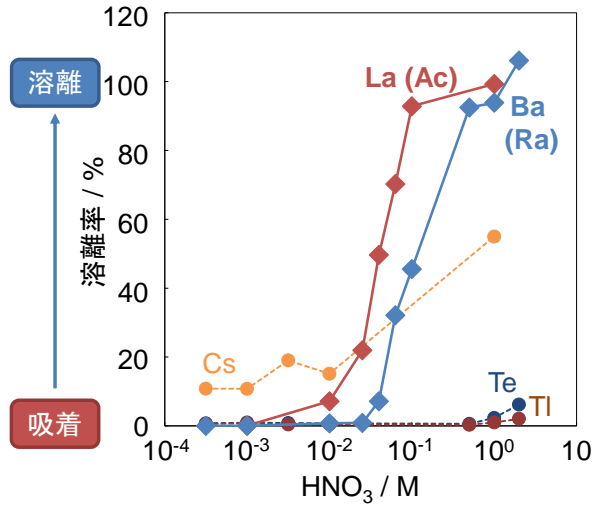


図 3. 4. 4-6 MnO₂ レジンの溶離率の硝酸濃度依存性

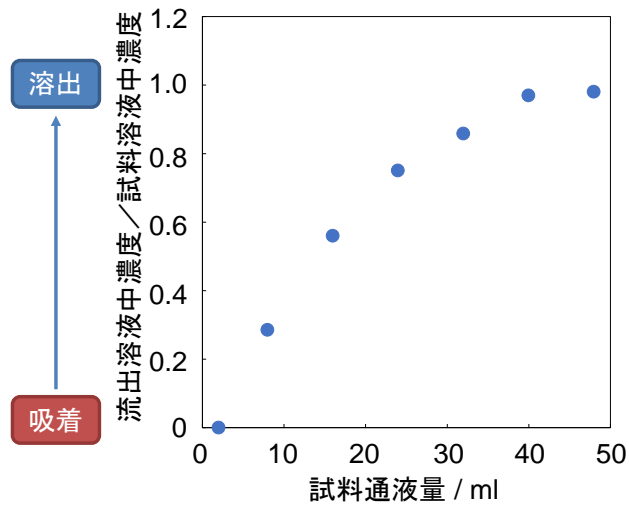


図 3. 4. 4-7 Ba の破過曲線

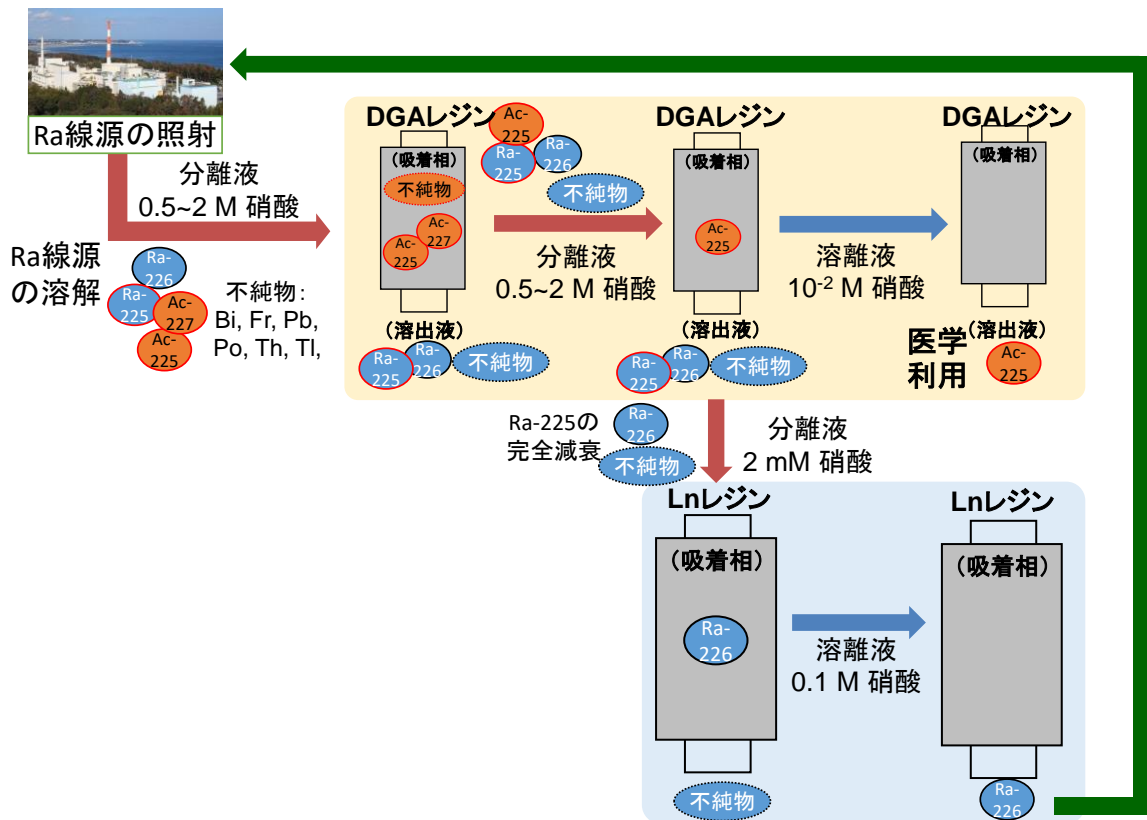


図 3. 4. 4-8 提案される Ac-225 精製プロセスと Ra-226 の再利用プロセス

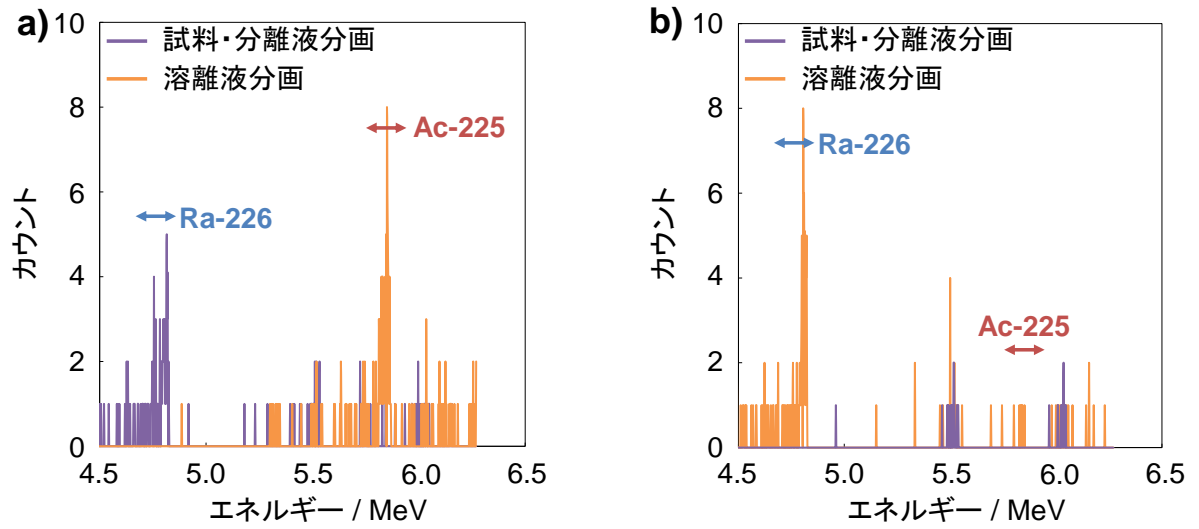


図 3. 4. 4-9 DGA レジン (a) 及び Ln レジン (b) の試料・分離液分画と溶離液分画中の α スペクトル

3.4.5 「常陽」での照射試験計画立案（再委託先：JAEA-JOYO）【R3-R4】

「常陽」において、Ra-226 照射直接生成法 ($^{226}\text{Ra}(n, 2n)$ 反応) の実証試験（核変換率測定、化学処理を含めた収率評価）のための照射試験計画、照射後試験計画を検討した。MK-IV炉心（100 MW）として運転再開後、純粋な原理実証のための Ra-226 10 mCi の実証試験 1 及びスケールアップによる課題摘出のための 100 mCi の実証試験 2 の 2 段階を策定した。

照射試験の実施に必要な許認可項目について検討し、「常陽」の使用の目的に RI 製造の明記、材料照射用反射体もしくは実験装置に RI として Ra-226 の装荷を明記する必要があるが、FMF においては、RI（非密封）の使用、貯蔵、廃棄の許可取得が必要と確認された。また、照射ターゲットが Ra-226 でラジオアイソトープ(RI)である。このため、「常陽」の RI 許可においても Ra-226 を追加する必要があることが確認された。

【R4】

令和 3 年度までの検討結果を踏まえ、照射試験の実施に必要な RI 変更申請書案（骨子）を作成し、「常陽」運転再開後の実証試験実施に向けた作業項目、工程等を具体化し、実施計画書（暫定版）を作成した。

(1) RI 変更申請書案（骨子）

「常陽」及び FMF での医療用 RI 製造に係る変更許可申請を行うため、RI 法施行規則別記様式第 1 中別紙様式イの項目ごとに必要事項を検討し、変更許可申請書の骨子を作成した。

① 使用の目的について

1) 使用の目的を設定する核種

Ra-226 からの壊変系列の子孫核種でその半減期から数量的に存在することを考慮しなければならない核種は、Pb-210（半減期 22.2y）と Po-210（半減期 138.376d）である。途中生成物の Ra-227・Ac-227 及びその子孫核種で、半減期から数量的に存在することを考慮しなければならない核種は Ac-227（半減期 21.772y）である。また、Ra-226 の子孫核種でその半減期から数量的に存在することを考慮しなければならない核種は、Ac-225（半減期 9.92d）であるが、当該核種の製造が目的のため、照射済 Ra-226 の取り出し時から遮へい計算上考慮することになる。

Ra-226 を受入れた後、炭酸ラジウムに加工した上で、密封線源と同等の密封容器に封入し、原子炉で 45～60 日照射するため、放射平衡時の実効線量率定数を用いれば子孫核種について遮へい計算上考慮する必要はない。使用の目的を設定する核種は、あくまでも被照射物である Ra-226 及び照射による製造目的核種の Ac-225 であるため、基本的には当該両核種を使用の変更許可申請の対象とする。ただし、Ac-227 を研究用に使用する場合には、今後の計画により、使用の場所等が明確になった時点で検討する。

i) 使用の目的

Ra-226 の使用の目的：Ac-225 製造のための照射

Ac-225 の使用の目的：放射性医薬品の原料としての照射済 Ra-226 からの分離抽出及び精製

② 使用の場所について

①において、使用の目的を設定した Ra-226、Ac-225 の使用の場所を指定する。

1) 受入れた密封されていない Ra-226 を炭酸ラジウムに処理する場所

グローブボックス（グローブボックスを設置した FMF3 階サービスエリアの区画された場所を作業室とする）。

2) 1) で処理された Ra-226 を照射キャプセル（第 1 容器）に封入する場所

グローブボックス（グローブボックスを設置した FMF3 階サービスエリアの区画された場所を作業室とする）。

3) 照射キャプセル（第 1 容器）を照射キャプセル（第 2 容器）に封入する場所

クリーンセル（セル内を作業室とする）。

4) 燃料集合体試験装置に組み込む場所

クリーンセル（セル内を作業室とする）。

5) 燃料集合体試験装置を照射する場所

常陽原子炉容器（炉心を使用の場所とする）。

6) 燃料集合体試験装置から照射キャプセル（第 2 容器）を取り出す場所

試験セル（セル内を作業室とする）。

7) 照射キャプセル（第 2 容器）から照射キャプセル（第 1 容器）を取り出す場所

除染セル（セル内を作業室とする）。

8) 照射キャプセル（第 1 容器）から照射された Ra-226（以下「照射済 Ra-226」という。）を取り出す場所

グローブボックス（グローブボックスを設置した FMF3 階サービスエリアの区画された場所を作業室とする）。

9) 照射済 Ra-226 から Ac-225 を抽出するための分離・精製をする場所

グローブボックス（グローブボックスを設置した FMF3 階サービスエリアの区画された場所を作業室とする）。

10) Ac-225 の使用の場所について

グローブボックス（グローブボックスを設置した FMF3 階サービスエリアの区画された場所を作業室とする）。

③使用の方法について

1) Ra-226

i) Ra-226 を容器に封入し、燃料集合体装置に組み込む。

ii) Ra-226 を組み込んだ燃料集合体装置に高速中性子を 45～60 日間照射する。

iii) 燃料集合体装置から容器を分離し、さらに容器から照射済 Ra-226 を取り出す。

iv) 照射済 Ra-226 から Ac-225 を分離・精製する。

2) Ac-225

抽出クロマトグラフィーにより照射済 Ra-226 から Ac-225 を分離抽出及び精製する。

その他詳細については割愛するが、許可申請書及びその添付資料（遮へい計算書含む）を作

成する上で基礎となる放射性同位元素の使用数量を外部被ばく線量限度や空气中濃度限度、排気・排水中濃度限度から逆算して求めた。

Ra-226 の取扱いの利便性を考慮し、1 日最大使用数量を 14,000 MBq とするための措置として今後以下の検討が必要と考えられる。

- a) グローブボックス 1 台（照射キャプセル（第 1 容器）への封入用と照射済 Ra-226 の取り出し・分離・精製用を分けるのであればその GB2 台）につき作業室を 1 つとする。作業室を隔離する壁に遮蔽体は必要ない。
- b) 作業室の排気の出口（天井上部）付近に通常の排気設備とは別に HEPA フィルターによる浄化設備を設置する。
- c) Ac-227 の空气中濃度限度が余りにも低いため、照射済 Ra-226 を取り扱う作業室には取り扱う作業時の空気を一時的に貯めるタンクが必要と思われ、この取扱い時の 2 時間はグローブボックス内の空気をゆっくりとタンク内に溜め込むような設備の設置が望ましい。すなわち、少なくとも照射済 Ra-226 に係わる作業を行う作業室内に設置されるグローブボックスに関してはグローブボックス内の空気容量の 10 倍くらいを圧縮して溜め込む容量を持つタンクの設置を検討すること及び Rn-222 の外気への放出を考慮して一定期間タンク内の圧縮空気を隔離することが可能であるような設備の設置も検討の対象となる。作業室は 2 部屋、それぞれに Ra-226 を照射キャプセル（第 1 容器）に封入するグローブボックスと照射済 Ra-226 を照射キャプセル（第 1 容器）から取り出し、分離・精製するグローブボックスをそれぞれに設置することが遮蔽計算上必要となりそうである。
- d) 一日最大使用数量と 3 月間使用数量及び年間使用数量の関係は 2 倍、8 倍となっているが、常陽の運転間隔の関係から実際の使用及び廃棄（特に排気、排水）はこの倍数にはならない。許可申請時には説明に工夫が必要と思われる。

(2) 実施計画書

①照射試料

照射試料は、炭酸ラジウムの粉体（粉末又は顆粒）約 13 mg、Ra-226 の放射能は約 10 mCi（約 0.37 GBq）であり、Ra-226 が特定 RI となる指定数量 4×10^{-2} TBq を下回る。

②照射キャプセル

照射キャプセルの構造案を図 3.4.5(2)-1 に示す。外側キャプセル外径寸法は、 $\phi 21 \sim 22$ mm に製作できる見込みであり、材料照射用反射体（SMIR）コンパートメント及び炉心材料照射用反射体（CMIR）軸心管のいずれにも装填可能である。内側及び外側キャプセルの組立て作業が FMF グローブボックス内となるため、いずれの上部端栓もねじ込み構造を採用している。図 3.4.5(2)-1 左に示した(A)の外側キャプセルについては、1/4 インチサイズの内側キャプセルが装填可能であるが、寸法上の制約もあり O リング等のシール機能は設けていないことから、照射中又はその前後で少量ナトリウムの侵入が予想される。一方、内側キャプセルには、シール機能性が高いスウェージロック継手を採用しており、内側キャプセル内部へのナトリウム侵入の可能性は、ほとんどないものと考えている。

内側キャプセル組立性確認の結果、図 3.4.5(2)-1 (A) 及び (B) に示すいずれの管外径であってもグローブボックス内での組立が可能であることを確認した。炭酸ラジウム粉体の挿入性を考慮し、内側キャプセル内径が大きい (A) (1/4 インチ (外径 6.35 mm、内径 4.93 mm)) に基づき、キャプセル設計が必要である。

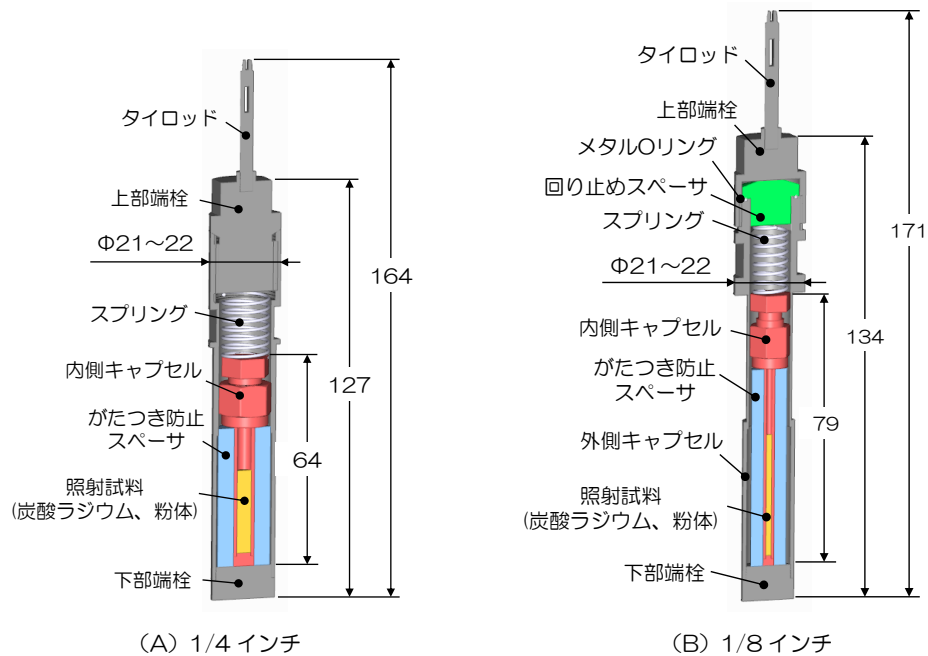


図 3.4.5(2)-1 照射キャプセルの構造案

③ 照射リグ及び照射アドレス

照射リグの基本構造は、従来の炉心材料照射用反射体 (CMIR) 又は構造材料照射用反射体 (SMIR) とするが、照射目的が RI 製造であることから、実験装置のカテゴリになる。Ac-225 製造に必要な照射日数は、45~60 EFPD とされており、「常陽」1 サイクル運転後、炉心から取出し、PIE 施設に急速移送する。このため、高照射量を要望する試料との相乗りは回避する。照射キャプセルは、任意コンパートメント又は軸心管に装填し、炭酸ラジウム組込み部位を炉心中心部になるようスペーサーにより調整する。照射リグの装荷アドレスは、生成量評価に基づき第 1 列を予定する。

④ 照射工程

照射試験までの暫定照射工程を図 3.4.5(2)-2 に示す。照射リグの急速取り出し実証試験、RI 製造及び使用に関する許認可取得を進めるとともに、キャプセル及び照射リグの製作を計画的に進めていく必要がある。

3.5 原子炉で生成される医用 RI の品質と普及についての検討（再委託先：金沢大学）【R2-R4】

3.5.1 Ac-225 の使用・普及に係る諸問題の解決【R2-R4】

令和 2 年度は、1) 生物学的安全性の評価及び薬事関連法令上の取扱いとして、原子炉で Ac-225 生成を行う際に不純物として混入する Ac-227 等の薬事関連法令上の取扱いについて、関係行政機関、関係団体等と協議し、適切な規制体系について明確化した。また 2) 医療関連法令上の取扱い及び普及に関する問題の解決では、海外での先行事例を参考に、Ac-225 を用いた放射性医薬品の医療法上の取扱いについて整理した。3) 廃棄に係る諸問題の解決では、放射性同位元素の廃棄に際してのクリアランスや適切な処理方法について明確化した。

令和 3 年度は、医療関連法令上の取扱い及び普及に関する問題の解決について、海外での先行事例を参考に、Ac-225 を用いた放射性医薬品の医療法上の取扱いについて処理手順を検討した。

廃棄に係る諸問題の解決【R4】

Ac-225 医薬品の製造・使用に際しては、原薬製造に際しての放射性汚染物（放射性同位元素等の規制に関する法律）、医薬品製造に際しての汚染物（医薬品医療機器等の品質有効性及び安全性の確保等に関する法律）、医療機関での使用に際しての医療用放射性汚染物（医療法）それぞれの所管法令における廃棄物が発生する。所管は異なるものの、廃棄に関する濃度限度に係る規制は斉一化されており、かつ、廃棄物の廃棄は公益社団法人日本アイソトープ協会（RI 協会）一社に委託されていることから、RI 法における Ac-225 の廃棄及び臨床試験等（医療法）における Ac-225 の廃棄について原子力規制庁及び RI 協会の見解を考慮して以下の考察を行った。

原子力規制庁としては、医療目的の短半減期アルファ線核種についてはその規制合理化の要望があると承知しているが、まずは「令和 4 年度放射線対策委託費（減衰を考慮した放射性同位元素等の廃棄に係る合理的な管理及び規制に関する調査）事業」において廃棄にかかる課題抽出を行い、その結果を踏まえて判断することになると考えられた。また、医療法における Ac-225 の廃棄については、RI 協会としては回収可能であるが、従前の医療用放射性廃棄物と同様に、協会施設における減衰保管になると考えられた。

また、減衰保管後の取り扱いに関して、RI 法におけるクリアランス制度については現時点では適用がなく、また、欧米において制度化されている減衰保管後廃棄（Decay in Storage: DIS）については、厚生労働省を事務局とする「医療放射線の適正管理に関する検討会」において掲題されているものの、その後の進捗はない。理由としては、クリアランス又は DIS 適用後の放射線汚染物、すなわち規制免除された廃棄物は、廃棄物の処理及び清掃に関する法律の所管である通常の非放射性的廃棄物とみなされるが、廃棄物処理施設の設置に際しては、廃棄物の処理内容等に関して住民同意又は住民説明のいずれかを求めている自治体が大半であり、放射性汚染物から規制免除された廃棄物の処理について、住民同意等を得ることが極めて困難であるためであると考えられた。

以上より、Ac-225 の廃棄物の取り扱いについては、現時点では従前どおりの対応が必要であるが、原子力規制庁の実施する調査事業の結果を踏まえて、今後、より合理的な廃棄のあり方が検討されると考えられる。

3.5.2 Mo-99 及び Tc-99m の既存の医薬品との同等性評価【R3】

医薬品としての Tc-99m の安全性等に関する基準は放射性医薬品基準（平成 25 年厚生労働省告示第 83 号。以下「放薬基」という。）において厳密に規定されており、本基準及び生物学的同等性が確保された Tc-99m については基本的に後発品とみなすことが可能である。Tc-99m の親核種である Mo-99 自体には基準が規定されていないが、Mo-Tc ジェネレータに使用する Mo-99 の化学型及びジェネレータから生成される Tc-99m に要求される基準として間接的に規定されている。ここでは、放薬基に規定される確認試験及び米国薬局方（The United States Pharmacopeia: USP）における基準を記載した。放薬基と USP では記載方法が若干異なるが、求められている基準としては同等であることから、日本における基準に準拠すれば、米国の先発品とも同等性があると言える。

3.6 研究推進【R2-R4】

令和2年度は、研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、核医学界や医薬品業界から広く意見を聴きながら研究を進めた。プロジェクトの円滑な進行を実現するために委託先と定期的にWeb会合を開催し、進捗状況の確認と問題点の議論を行った。また医薬品業界の2社と協議し、メーカー側の意向を聴取した。

令和3年度は、定期的Web会合の他、2回の核医学・工学シンポジウムを、核医学/加速器/原子力分野の研究者・技術者、大学生・大学院生等を対象にオンラインで開催した。また日本原子力学会「2022年春の年会」では、これまでの研究の成果を、東京都市大学、NucMed、JAEA、MHIでシリーズ発表（7件）し、本研究開発を精力的に進めていることを様々な分野の方々に広く示すことができた。

【R4】

令和4年度は研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、核医学界や医薬品業界から広く意見を聴きながら研究を進めた。プロジェクトの円滑な進行を実現するために定期的に会合を開催（令和4年8月8日、11月28日）し、進捗状況の確認と問題点の議論を行った。個別打合せを（令和4年11月18日、12月1日）MHIと実施した。これらの会合を通して相互の進捗状況と課題を共有化し、事業の進捗管理を実施した。定期会合の議事を(1)に示すとともに議題を示した。

一方で、会合だけでは把握しきれない課題解決のため、個別打合せや、必要に応じて電子メールを使用したコミュニケーションにより課題解決を図った。

また第17回未来エネルギーフォーラムシンポジウム（令和4年11月3日）では、「原子の力を医療へ：核医学によるがん治療とRI 国内製造」と題し、畑澤順（日本アイソトープ協会専務理事）氏に我が国における本研究に係わる最新動向について解説いただくとともに、令和4年12月5日には、日本核燃料開発株式会社の専門家に医用RI生成研究でのトリウムの扱いに関するインタビューを実施し、ThとRaを分離する技術の見通しや課題についての知見を得た。

日本原子力学会「2022年秋の大会」では、「既設原子炉による医用RIの生成」と題し、東京都市大学と原子力機構でシリーズ発表（3件）するとともに、2回の原子力システム研究開発事業講演会を開催（令和5年1月20日、2月22日）した。講演会の概要を(2)に示す。

また今まで成果を月刊エネルギーレビュー10月号（令和4年9月20日発行）に特集「医療用放射性物質の国産化、供給途絶リスクの回避を目指して全量輸入依存からの脱却を図る」というタイトルで本研究を紹介、さらに、令和5年2月に南アフリカで開催されたTAT(Targeted Alpha Therapy)12th国際シンポジウムでポスター発表し、本研究開発を精力的に進めていることを国内、海外の様々な分野の方々にも広く示すことができた。

また本原子力システム研究開発事業における人材育成への寄与に関しては(3)に示す。

(1) 各会合の議事

第1回会合

日時：2022年8月8日

方式：Zoom 会議

参加者(順不同、敬称略)：

金沢大：稲木

NUCMED：川田、諸岡

MHI：小林、中原、高橋、塚本（高砂）

JAEA：前田（茂）、板垣（JOYO）、土谷、藤田（JMTR）、

北辻、大内（原科研：原子力化学研究 Gr.）、佐々木（FMS）

都市大：高木、矢野

議題：

- ・R4年度計画について
- ・R4年度進捗状況について
- ・7/21都市大原子力セミナー「商用原子炉の発電以外への応用」報告
- ・エネルギーレビュー特集号について

第2回会合

日時：2022年11月28日

方式：Zoom 会議

参加者(順不同、敬称略)：

MHI：野田、小林、中原、高橋、塚本（高砂）

JAEA：前田（茂）、矢代（JOYO）、土谷、藤田（JMTR）、

北辻、大内（原科研：原子力化学研究 Gr.）、佐々木（FMS）

都市大：高木、矢野

議題：

- ・中間フォロー（12/19）に向け、R4年度の進捗状況について
- ・研究管理表記載事項について

第3回会合

日時：2023年3月28日

方式：Zoom 会議

参加者(順不同、敬称略)：

金沢大：稲木

NUCMED：川田、諸岡

MHI：小林、野田、中原、高橋、塚本（高砂）

JAEA：前田（茂）、板垣（JOYO）、土谷、藤田（JMTR）、

北辻、大内（原科研：原子力化学研究 Gr.）、佐々木（FMS）

都市大：高木、Liem Peng Hong、矢野

議題：

- ・各組織のR4年度の成果報告会

(2) 原子力システム研究開発事業講演会概要

第1回講演会

- ・日時：2023年1月20日（金）10：00～12：00
- ・講師：日本核燃料開発（株）深澤哲生様
- ・題目：照射済 Th 試料の化学処理について
- ・形式：ZOOM
- ・参加者：原シス関係者、学生等 12 名（講師含む）
 - ・ NUCMED：諸岡
 - ・ MHI：野田
 - ・ JAEA：前田（茂）、矢代（JOYO）、北辻、森井（東海研:分析化学研究 Gr.）
 - ・ 都市大：高木、岩橋、佐々木、篠原、矢野
- ・議題
 - ・ Th 照射による Ac-225 製造
 - ・ Th 試料の入手
 - ・ ThO₂ 試料の化学前処理
 - ・ 照射済み Th 試料の化学処理
 - ・ 今後の取り組みなど

・議事（主な内容）

Th を大量に処理する場合には一般的には溶媒抽出法が用いられることや使用済 ThO₂ 燃料の再処理技術である THOREX 法は工学的に確立されていること、また小規模の場合、Th と Ra/Ac の分離には陰イオン交換法、Ac と Ra の分離には陽イオン交換法か抽出クロマトグラフィーが用いられることが多いことについて説明を受けた。さらに必要量の Th-229 を核反応で製造・精製する場合には、大量処理が必要であり THOREX 法（溶媒抽出法）が適していることや、Th-229 から Ac-225 をミルキングする場合はイオン交換法や抽出クロマトグラフィーが適しており Ra-225 等の不純物核種の分離も必要となることなど、幅広い項目についての説明を受けた後、原子力システム研究開発事業での今後の取り組みも含め意見交換を実施した。

第2回講演会

- ・日時：2023年2月22日（水）14：00～16：00
- ・講師：吉田正先生（元東京都市大学教授）
- ・題目：Th-230 の同位体濃縮について
- ・場所：都市大 高木研究室（10号館517室）
- ・参加者：10名（講師含む）
 - 日本原燃株：山本（経営企画本部）、空本、佐々木（濃縮計画部 計画G）

都市大：高木、Liem Peng Hong、岩橋、佐々木、篠原、矢野

・議題：

- ・ Th-230 の同位体濃縮について
- ・ 今後の進め方

・ 議事（主な内容）

吉田先生より、日本原燃株の同位体濃縮関係者と都市大関係者を対象に「Th-230 の同位体濃縮の可能性について」ご講演をいただいた。

今までに試みられた大規模同位体分離法（電磁法、原子レーザー法（AVLIS）、ガス拡散法、遠心分離法等）の簡単な紹介の後、実際に原子レーザー濃縮の開発に従事されていたご経験を基に「AVLIS」プラントの概念、「AVLIS」の同位体分離法等について詳細な説明がなされた。「AVLIS」は単体原子の励起レベルのエネルギーが同位体ごとに僅か（4～5桁目）に異なることを利用した同位体分離法であり、真空中で発生させた原子流にレーザーを照射し、同位体シフトを利用して目当ての同位体だけを励起し電離させ、これを電場印加により選択的に回収するものであるとの事。また Th-230 の同位体濃縮については、開発要素は多々あるが AVLIS 適用の可能性はかなりあるとの説明を受けた後、原シスでの今後の取り組みも含め意見交換を実施した。

(3) 人材育成

令和 2 年度～令和 4 年度の本研究に最初から業務参加者として携わった都市大の学生は、学部 3 年後期の事例研究（プレ卒業研究）、4 年での卒業研究、大学院での修士研究として一貫して「原子炉を用いた医用 RI 生成」のテーマに取り組み、核医学会、原子力学会で多くの研究発表を行った。2023 年春、修士終了後には、JAEA へ「研究職」として就職し、「常陽」にて Ac-225 生成を主業務として担当している。2023 年 7 月には JAEA からの出張としてカナダで開催された 11th International Conference on Isotopes へ出席し、Ac-225 生成に関する口頭発表を行い、奨励賞を受賞した。また同 8 月、日本原子力学会誌の査読あり英文誌に Ac-225 関連論文が受理された。

同じく令和 2 年度～令和 4 年度の三年間、業務参加者として携わった都市大博士後期課程（社会人博士）の学生は、「原子炉を用いた Ac-225 生成」を主題として研究を行い、これまで査読あり論文（1 本）の他、国際会議、原子力学会、核医学会で成果報告を行い、2023 年度末に終了の予定である。

以上の他にも、3 年間で 10 名程度の学部生、修士生が「原子炉を用いた医用 RI 生成」関連の研究を卒業研究、修士研究として取り組んでおり、本原子力システム研究開発事業の遂行は、原子炉や医用 RI 分野の人材育成に寄与した。

4. 結言

研究課題「国内の原子力インフラを活用した医用RIの自給技術確立に向けた研究開発」に関して、3カ年計画の主要な成果を項目ごとに以下にまとめる。

(1) Mo-99製造プロセスの軽水炉(PWR)への適用性検討

①医用Mo-99製造条件の設定（再委託先：NucMed）

需要側（医薬品メーカー）と供給側（Mo生産業者）で取合い条件を協議・設定した。

②PWR用Mo照射ターゲットの開発

1) PWR炉特性、基本設計及び試作(再委託先：MHI)

PWRを用いたMo-99製造技術に関し、PWRの炉特性を生かし、製造効率の良い照射ターゲットの設計検討を行った。一部の検討では、MoO₃ペレット特性及び照射温度の特性の評価を行うとともに、照射ターゲットの挿入性を実証するための試作品を製作し、管への挿入にかかる荷重計測を行った。

2) 特性評価（再委託先：JAEA）

照射ターゲットの設計のため、カプセル型照射ターゲット及びチューブ型照射カプセルに直目し、基本仕様の決定に資するための特性評価を行った。PWR炉で照射を行うに当たって様々なプロセスで求められる照射ターゲットの特性評価を、机上検討を中心に行った。

③Mo-99供給プロセスの開発

1) 概念設計（再委託先：MHI）

照射ターゲットとなるMoO₃を照射したのちに発生する放射性核種について解析計算を実施し、医薬品としての不純物の基準値と照らし合せ、基準値を超える不純物を特定した。特定した不純物について、その除去方法について整理した。令和3年度までに検討したプロセスフローの見直しを実施した。2つの製法で試作した高密度MoO₃焼結体(HIP法及びSPS法)について、製法の違いによるペレット内の残留応力の分布の違いを観測し、形成加工時の割れ等に影響を及ぼす可能性が示唆された。

2) 許認可に基づく妥当性検討(再委託先：JAEA)

PWRで照射したMoO₃試料を取出し、医薬品メーカーに供給するためのプロセスの構築について、許認可に基づく妥当性の検討を行った。

本プロセスの確立にあたっては、法体系に基づいた取合い条件を調査し、施設の概念検討をまとめるとともにPWRでRIを製造する場合の法的要件をまとめた。

3) 開封装置の概念設計（再委託先：MHI）

PWRで照射したMoO₃試料を取出し、医薬品メーカーに供給するためのプロセスの構築について、令和3年度までの検討結果を踏まえ、供給プロセス施設の検討結果を整理した。

4) 処理装置の概念設計(再委託先：JAEA)

小径の高密度MoO₃ペレットへの加工性向上の検討のため、HIP法で製作したMoO₃焼結体の残留応力を評価した。これまでの試験結果を踏まえ、医薬品メーカーに供給するためのMo溶液処理装置の概略仕様をまとめた。照射済MoO₃ペレットを溶解するためのMo処理装置につ

いて、溶解プロセスと不純物除去プロセスの2つの機能を有する装置とすることにより、実用性の可能性を得るとともに、実機装置の概略寸法を決定した。

④Mo-98回収プロセスの開発

1) 概念設計（再委託先：MHI）

医薬品メーカーから返却される使用済Mo吸着体から、照射ターゲットに使用するMoO₃粉末として回収するプロセスの構築に向け、回収プロセス施設の検討を行った。Mo吸着体からのMo回収試験の結果に基づいて、令和3年度までに検討したプロセスフローの見直しを実施した。また、天然同位体のMoO₃を使用した場合の生成量とMo-98を98%濃縮した場合の生成量を解析計算にて算出した。

2) 使用済Mo溶液からのMo-98回収（再委託先：JAEA）

予備試験として、天然同位体比のMo試料を用いて、高い回収率が達成できる回収方法を構築し、薬品メーカーから返却される使用済Mo溶液から、照射ターゲットに使用する三酸化モリブデン(MoO₃)として回収するプロセス仕様を確立した。医療機関での使用済みMo吸着体のリサイクル量の評価及びMoを分離回収してMoO₃ペレットとして再利用するプロセスの基本概念を策定した。

3) 回収設備の検討（再委託先：JAEA）

Mo-98を再利用することを考慮した特性試験を実施し、回収装置の概念検討を行った。

4) コスト評価（再委託先：JAEA）

医薬品メーカーから返却される使用済Mo吸着体を想定し、照射ターゲットに使用するMoO₃粉末として回収するプロセスの特性結果から、回収プロセスのコスト評価を行い、天然同位体のMoO₃を使用した場合との比較を行い、その実現性の評価を行った。令和3年度の概念プロセスに基づいた予備試験及び生成量解析結果により、実際にMoを吸着させた吸着剤(Al₂O₃)からのMoO₃粉末の回収率が90%以上を有することを実証した。本結果に基づき、濃縮MoO₃原料は天然MoO₃原料より高価であるが、本回収プロセスの導入により、最終製品である単位放射能当たりのTc-99m製造費の低減に見通しが得られ、実現性が高いことを確認した。

⑤全体スキームの検討（再委託先：MHI）

令和3年度までの成果を基に、PWRを用いた医用Mo-99製造の全体スキームの適用性評価を行い、RI製造にかかわる許認可等の課題をまとめその実現性見通しを整理した。従来、医療機関からの発注により海外からの輸入品が供給されていたが、国内での生産に際して必要となる機能として生産計画・営業を営む事業体を創設し、事業体がビジネス全体を調整する全体スキームを検討した。また、Mo-99供給プロセスの確立にあたり、炉心安全や施設全体の安全対策へ影響する事項対応を踏まえた、法体系に基づいた取り合い条件について調査し、全体スキームの実現性見通し及び課題を整理した。

(2) 軽水炉でのAc-225製造

①ターゲット核選定と核変換パスの検討

軽水炉(PWR)照射環境でAc-225を生成するための、照射ターゲット核種とその核変換パス

について検討し、効率的なAc-225生成法を検討した。照射ターゲット核種としてRa-226とTh-230の2核種を選定し、軽水炉においては、Ra-226($3n, 2\beta$)、Th-230($3n, \alpha 2\beta$)の生成パスが有効であることを明らかにした。

②最適照射条件や生成量の評価

装荷位置や中性子スペクトルの違いによるAc-225生成特性評価を行い、純度の高いAc-225を効率的に生成するための最適照射条件や生成量の評価を行った。照射条件最適化として、ターゲットピン径の細径化、周辺燃料ピン（8本）除去による水体積比の増大を検討した結果、Ac-225生成チェーンに存在する重核種の(n, γ)断面積の増大、及び熱中性子束の増大効果により、Ac-225生成が効率化されることを確認した。

③安全性・運転性への影響評価

令和2年度、令和3年度で得た知見を基に、令和4年度は、少量もしくは大量のターゲット核種（原料核種）の燃料集合体への装荷方法、ターゲットを装荷した燃料集合体の炉心内配置、ターゲット核種（Ra-226、Th-230、Th-232）の燃焼に伴う発熱量増大や除熱を考慮したターゲット仕様設定、臨界性や安全係数（ドップラー係数、ボイド係数）の影響を評価することにより、原子炉運転や安全確保の観点からPWRにおけるAc-225生成の実施可能性を評価した。

(3) 高速炉（「常陽」）でのMo-99製造

① 最適な照射場の設置（都市大、再委託先：JAEA）

1) 炉心検討

常陽で実現可能な、中低速中性子照射場を設置する炉心構成を検討した。中低速中性子照射場を設置する炉心の炉心構成を検討し、候補の炉心を決定し、この炉心構成に基づき、詳細解析用のモンテカルロ法用の入力ファイルを作成し、試計算を完了した。また、炉心構成検討、中低速中性子照射場設置場所検討の効率化のため、並列計算機を導入し、効率的な評価が可能な解析環境を構築した。

減速集合体仕様を受けて、炉心構成を最適化した。検討された減速集合体仕様を用いて令和2年度検討した炉心構成、減速集合体装荷位置・減速集合体数でパラメータサーベイをし、最も効率的な炉心構成を確認した。

令和3年度までの検討結果を踏まえ、「常陽」減速場におけるMo-99の製造量の最確値の予測及びその不確かさを評価した。製造量の不確かさ評価のためのトータルモンテカルロ法に基づく解析コードを作成し、最確値の製造量及びその不確かさを評価した。

2) 減速集合体仕様検討

令和2年度に解析準備を行い、令和3年度は令和2年度に検討した炉心構成において、減速集合体の減速材種類、充填割合等の仕様を検討した。また、減速集合体仕様を受けて、炉心構成を最適化した。減速集合体材料として、Be、Al及びGraphiteで、Mo-99の核変換率の比較を行った結果、Be>Graphite>Alの順で多いことが分かった。また、ターゲットと混合させるYD₂減速材の中性子減速効果は小さく、核変換率向上に有効でないことが分かった。

②減速集合体等の設計（再委託先：JAEA）

1) 減速集合体設計

令和2年度は減速集合体の予備検討を実施した。令和3年度には7ピン型（遮蔽集合体と同構造）、六角型（外側反射体に似た構造）、1ピン型（Sb-Be中性子源受入集合体）の構造成立性を検討し、所定の減速材充填率に合わせて減速材の形状を調整することにより、目標とする減速性能を確保することができることを確認した。また、減速材の種類については、「常陽」の許可範囲においてはベリリウム（Be）と水素化ジルコニウム（ZrH_{1.65}）が使用可能、その他 Graphite、Al、YD₂を検討したが、Beが最適であると結論付けている。充填割合に対するMo-98(n, γ)反応率は上に凸の形状で60~80%で極大を持つ傾向であった。これを踏まえ、Beの冷却性、アンチモンベリリウム中性子源のγ線源であるアンチモンを装填した棒を受け入れる受け皿集合体として円環構造の被覆管付きBeの使用実績があることから、中性子源集合体の構造を基本として、充填割合を内部ナトリウム流路の半径すなわち、内側被覆管の内径で調整することとして構造仕様を決定した。

2) 照射試験集合体設計

a) 照射キャプセル概念設計

照射キャプセルの設計を検討した。製造するMo-99は半減期が約2.6日と短いため、集合体、キャプセルを迅速に取り出してMoO₃の化学処理を行う必要がある。このため、照射キャプセルの構造を設計した。

b) 集合体設計

ターゲット照射用集合体及びターゲットピンの概略仕様を決定した。ターゲット照射用集合体タイプは「C型照射燃料集合体」、試験ピンは外径8.5mm、被覆管厚み0.5mmの太径試験ピンに設定した。

③照射後試料の取扱手法確立

1) 試料取出し・払出工程の検討

照射後試験（PIE）におけるセル内での解体、グローブボックスからの払出しの迅速化を検討した。集合体を解体するまでの作業にあたっては、セル内の集合体移動に従来の実績から約5時間を要する見込みであったが、セル内での移送経路を最適化し、1時間程度に短縮できる見込みを得た。また、取り出したキャプセルをグローブボックスへ搬出する作業も最適化の余地を確認している。グローブボックス内作業（化学処理工程を除く）については時間短縮の余地はなかった。

試料取出し・払出行程の検討として、照射リグの構造を踏まえ、遠隔解体の確認及びキャプセルの取扱検討を行った。

照射リグの構造としては、コンパートメントを交換できるシャトル型リグと呼ばれるハンドリグヘッドなどを溶接ではなくネジ接合にした構造を採用し、表面汚染密度の制限と管理、ねじ等に関してトルク制限と管理をすることで、セル内で遠隔でターゲットピンの取出し、ターゲットピンに装填されるMo装荷用キャプセルを迅速にできることを確認した。

内側キャプセルの取り扱い以降をグローブボックス（GB）で実施することとし、キャプセルの解体性向上、パイプカッター等の切削紛のコンタミを極力抑えた手法で解体することで迅速かつコンタミネーションを防止することで、化学処理工程へ迅速に払い出せることを確認した。内側キャプセル開封用GB、化学処理用GB、検査・払い出し用GBを準備す

ることで、迅速な払い出しができることを確認した。

2) 解体用治具製作

解体のためのコンパートメントやキャプセルについて検討し、事前に解体方法や荷姿の詳細を確認の上、治具の事前準備が必要であることがわかった。

3) 搬出用GB等検討

搬出用グローブボックスの概念設計を実施した。

4) 取扱試験

コールド試験の準備として必要な資材の準備を行った。グローブボックスについては、令和2年の検討をもとに過去の実績の確認を行い、必要な作業、除染資材について検討を行った。

④「常陽」での照射試験立案（再委託先：JAEA）

照射試験計画を立案した。「常陽」運転再開後の実証試験実施に向けた作業項目、工程を具体化し、実施計画書を作成した。

(4) 高速炉（「常陽」）でのAc-225製造

① 医用Ac-225製造条件の設定（再委託先：金沢大学）

Ac-225の各生成法において想定される不純物について、医療用途への適用を前提とした確認を行い、実用性の高い生成法を明らかにした。

令和3年度までの検討結果を踏まえ医用Ac-225の薬剤化の検討を行った。原子炉で製造されたAc-225の研究開発・医用利用の普及を図るためには、原薬としてのAc-225を製造する事業体がDMF（日本における原薬等）登録を行うことが最適であると考えられた。

②Ac-225市場予測（再委託先：NucMed）

国内外の環境変化に合わせ、Ac-225の国内外の市場調査と市場予測を更新した。医薬品原料としてのAc-225を量的な制限なく安定的に供給できるという前提において、前立腺がんの適応を持つAc-225医薬品の日本国内のピーク時売上は、少なくとも100億円程度となるものと推計された。また、神経内分泌腫瘍についてはその半分程度、肺がんについてはこの4倍程度の市場規模となる可能性がある。なお、世界市場の規模は日本市場の10倍程度を見込むことができる。

③最適な照射場の設置（再委託先：JAEA）

1) 炉心検討

Ra-226照射直接生成法、Th-230照射間接生成法（Th-229/Ac-225ジェネレータ法）を利用するのに適した炉心構成を検討し、候補の炉心を決定した。

検討された照射試験用集合体仕様を用いて令和2年度検討した炉心構成と同様にパラメータサーベイをし、最も効率的な炉心構成を確認した。令和3年度までの検討結果及び②の市場予測を踏まえ、「常陽」炉心中心におけるAc-225の製造量の最確値の予測及びその不確かさを評価した。製造量の不確かさ評価のためのトータルモンテカルロ法に基づく解析コードを作成し、「常陽」におけるAc-225製造量の評価を行い、不確かさを考慮しても市場予測を踏まえた医療ニーズ（製造量・頒布回数）を一定程度満足できる見通しを得た。

2) 照射試験集合体仕様検討

1)の炉心構成に基づき、詳細解析用のモンテカルロ法用の入力ファイルを作成し、試算を完了した。常陽でのAc-225製造に適した集合体仕様を検討するための解析環境、入力データの整備を行った。令和2年度に検討した炉心構成において、Ra-226照射直接生成法、Th-230照射間接生成法（Th-229/Ac-225ジェネレータ法）を利用するのに適した照射試験用集合体の構造を最適化した。減速集合体材料として、Be、Al及びGraphiteで、Ac-225の親核であるTh-229の核変換率の比較を行った結果、Be>Graphite>Alの順で多く、またターゲットと混合させるYD2減速材の増加に伴い、核変換率向上の傾向が見られ、Ac-225生成には減速材の利用が有効であることが分かった。

④照射済みRa-226からのAc分離、Ra-226再利用（再委託先：JAEA）

1) Ac回収

Ra-226からのAc回収プロセス構築のため、Ra及びAcの溶液内挙動の特性を調査した。これまでに分離に適用された手法、分離試薬の実施例を文献調査した。原子力機構に保管しているRa-226線源を利用するために必要なRa分離・精製法の検討を行うとともに、必要な装置等を整備した。

AcとRaの効率的な分離・抽出方法の検討として、代替核種を用いて要素試験を実施し、Acの回収率とRa除去を両立するプロセスの検討を行った。

Ac、Raの他、照射によりRaターゲット中に生成が予想される元素について、代替元素を用いてDGAレジンの吸着・溶離挙動を調べた。Acの代替として用いたLaの吸着挙動から、DGAレジncラムはAcの単離に有効であり、Ac精製プロセスに適用可能であることが分かった。トレーサー量のAc-225を用いたホット実証試験を実施し、DGAレジncラムのAc精製プロセスへの適用性を確認した。

2) Ra-226再利用

Ra-226の再利用のための分離条件を確認する代替元素によるコールド試験を行うとともに、Ac/Ra分離条件を確認するためのトレーサー量のホット要素試験実証試験を行った。回収プロセスの技術的な成立性を確認し、子孫核種による汚染・漏洩対策を検討した。Ac、Raの他、照射によりRaターゲット中に生成が予想される元素について代替元素を用いてLnレジンの吸着・溶離挙動を調べ、LnレジncラムがRaの再利用プロセスに適用可能であることが分かった。トレーサー量のホット実証試験により、AcとRaの分離を確認した。

⑤「常陽」での照射試験計画立案（再委託先：JAEA）

核変換率測定、実証のための照射試験計画、照射後試験計画を策定した。また、照射試験の実施に必要な許認可項目等を明らかにした。令和3年度までの検討結果を踏まえ実証試験に係る照射試験計画を立案した。照射試験の実施に必要なRI変更申請書案を作成し、「常陽」運転再開後の実証試験実施に向けた作業項目、工程を具体化し、実施計画書を作成した。

(5) 原子炉で生成される医用RIの品質と普及についての検討（再委託先：金沢大学）

① Ac-225の使用・普及に係る諸問題の解決

1) 生物学的安全性の評価及び薬事関連法令上の取扱い

原子炉でAc-225生成を行う際に不純物として混入するAc-227等の薬事関連 法令上の取扱いについて、関係行政機関、関係団体等と協議し、適切な規制体系について明確化した。

2) 医療関連法令上の取扱い及び普及に関する問題の解決

海外での先行事例を参考に、Ac-225を用いた放射性医薬品の医療法上の取扱いについて整理し、処理手順を検討した。

3) 廃棄に係る諸問題の解決

規制の整理として、放射性同位元素の廃棄に際してのクリアランスや適切な処理方法について明確化した。

令和3年度の成果を踏まえ、関係行政機関、関係団体等と協議し、廃棄物の適切な処理方法について明確化した。廃棄物は、購入又は製造時にa)生体に投与できる程度の純度があるもの、b)「ウラン・トリウム・プルトニウム及びそれらの化合物」を含まない場合に限り、RI法に基づく廃棄の委託が認められるとの結論が得られた。

②Mo-99及びTc-99mの既存の医薬品との同等性評価

^{98}Mo (n, γ) ^{99}Mo によって生成されるMo-99において想定される放射化学的純度等について、海外において生成されるものとの同等性等を確認することにより、ヒトに用いる際の生物学的安全性について評価した。

(6) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、核医学界や医薬品業界から広く意見を聴きながら研究を進めた。

プロジェクトの円滑な進行を実現するために委託先と定期的にWeb会合を開催し、進捗状況の確認と問題点の議論を行った。また2回の核医学・工学シンポジウム及び原子力システム研究開発事業講演会を開催するとともに、これまでの成果を日本原子力学会「2022年春の年会」及び「2022年秋の大会」でシリーズ発表した。

また月刊エネルギーレビュー10月号（令和4年9月20日発行）に特集「医療用放射性物質の国産化、供給途絶リスクの回避を目指して全量輸入依存からの脱却を図る」というタイトルで本研究を紹介、さらに、令和5年2月に南アフリカで開催されたTAT(Targeted Alpha Therapy)12th国際シンポジウムでポスター発表し、本研究開発を精力的に進めていることを国内、海外の様々な分野の方々にも広く示すことができた。

(7) 今後の課題、展望

3年間の研究を経て、1基のPWRもしくは高速実験炉「常陽」を用い、診断用のMo/Tcを現在の国内需要量(1000Ci/週)の半分程度生成すること、そして α 内用療法向けAc-225を現全世界供給量(約2Ci/年)の半分程度生成することについて技術的見通しを得た。原子炉は大きな照射領域を備えており、すぐれた除熱性能を有するため、炉心性能を損なうことなく、エネルギー生産の傍ら医用RIを製造できるポテンシャルがある。

Mo/Tc 生成用に検討した計装管を用いたターゲット出し入れ機構は、Mo/Tc 以外の短寿命

RI 生成にも活用可能であり、多様な RI 製造への応用が期待される。Ac-225 の需要量は今後大きく増大することが考えられるが、原料となる Ra-226 は希少であるため、持続的な安定供給に対応するには、Ra の調達や代替原料の開発が課題となる。本研究では代替原料として Th-230 を検討したが、これには大量の Th-232 が伴うため、そのまま照射すると核物質である U-233 が生成され不拡散上の懸念となる。これを回避するには Th-230 の同位体分離が必要であり、新たな技術開発要素となる。

このように発電炉で RI 製造を行うためには、炉規法が定める要求事項を阻害しないことを示した上で RI 製造装置としての認可を受けること、RI 法についても製造時の被ばくリスクの低減措置など、発電炉を用いる際に満たすべき要求事項が下位規定にて新たに求められるものと考えられる。