

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 19 日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K15445

研究課題名(和文) 本邦初の99Mo/99mTc国産化を目指した99Mo/99mTcジェネレータ開発

研究課題名(英文) 99Mo/99mTc generator development aiming for domestic production of 99Mo/99mTc for the first time in Japan

研究代表者

福光 延吉 (FUKUMITSU, Nobuyoshi)

筑波大学・医学医療系・准教授

研究者番号：40277075

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：Mo吸着材アルミナにメソポーラス加工を行った。焼成温度を500 - 1200度まで段階的に変化させ、走査型顕微鏡で表面に多くの細孔を伴ったメソポーラス構造を確認した。Mo吸着能は600度で焼成した場合に比表面積275m²/g、700度では比表面積230m²/g、Mo吸着量40mg/gと高く、比表面積やMo吸着量は、既存のアルミナ製剤の比表面積110m²/g、Mo吸着量10-20mg/gと比べて約3倍高い数値であった。一方、900度では比表面積139m²/gと既存のアルミナと同等であり、表面積及びMo吸着能は焼成温度などの条件を変えることで大きく変化することが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：Mesoporous processing was performed on Mo adsorbent alumina. The firing temperature was gradually changed to 500 - 1200 degrees and mesoporous structure with many pores on the surface was confirmed with a scanning microscope. The specific surface area is 275 m² / g when baked at 600 ° C., the specific surface area is 230 m² / g at 700 ° C. and Mo adsorption amount was as high as 40 mg / g, which was about 3 times higher than that of the existing alumina which specific surface area is 110 m² / g and Mo adsorption amount is 10 - 20 mg / g. On the other hand, at 900 ° C, the specific surface area was 139 m² / g, which is equivalent to that of existing alumina, and it became clear that the surface area and Mo adsorption ability greatly changed by changing the conditions such as firing temperature.

研究分野：放射線治療学

キーワード：99Mo 99mTc ジェネレータ 国産化

1. 研究開始当初の背景

画像診断は病態把握や治療効果判定に重要で、中でも核医学検査はCT、MRIと並んで高いウェイトを占めている。最も使用頻度の高い放射性核種は ^{99m}Tc で、約7割を占めている。本邦は、その原料である ^{99}Mo を100%輸入に頼っている。 ^{99}Mo は、 ^{235}U の核分裂により生成され、ヨーロッパなど世界数か所の原子炉で生成されている。そのため、海外の原子炉や輸入を取り巻く環境の変化により供給が停止するという事態が生じうる。記憶に新しいところでは、原子炉トラブルに伴う停止(2005年)、アイスランドの火山噴火による空路障害(2010年)などがある。そのような背景から、つくば国際戦略総合特区の重点課題として、「本邦初の ^{99}Mo 国産化計画」が選出された。この計画で、つくば市、茨城県の支援のもと、産官学共同プロジェクトとしてのプロジェクトチームが結成され、本研究課題の代表者の福光と分担者の土谷は、このプロジェクトメンバーとなった。

天然同位体比を有するモリブデン原料に含まれる ^{98}Mo を中性子照射することで ^{99}Mo を生成する方法[放射化法]は確立し、現時点で国内需要の約20%の ^{99m}Tc が生成可能なレベルにまで達した。しかし、同時に多くの種類の放射化 Mo が生成されるため、 ^{99}Mo の比放射能は低く、 ^{235}U の核分裂から生成される ^{99}Mo [核分裂法]と比べて約1000倍の開きがあり、比放射能の高い ^{99m}Tc を抽出できないという大きな課題があることがわかった。

2. 研究の目的

核医学検査の中で、 ^{99m}Tc は圧倒的に使用頻度が高い。わが国は、 ^{99m}Tc の原料である ^{99}Mo を100%輸入に頼っているため、海外の ^{99}Mo 製造、輸送のトラブルで長期的に ^{99m}Tc の供給が途絶えるといった深刻な事象を過去に何度か経験した。

本研究課題では、

1. 核医学検査で最も使用頻度の高い

$^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ を国産化するためのシステムを構築する。

2. 特に、 ^{99}Mo の吸着材の品質改良を行うことで、比放射能の高い ^{99m}Tc を抽出する技術を開発する。

3. 研究の方法

(1) 多孔性アルミナの試作

吸着性を高めるために表面積の大きい吸着材を製作する。具体的には、新しいアルミナ化合物である多孔性アルミナを試作する。多孔性アルミナは、連携研究者の有賀が専門としているメソポーラス物質作成技術(文献1)に従い、適当なアルミニウム塩を界面活性剤やブロックコポリマーの存在下、酸触媒で反応させて得たゾルを熱処理することによって合成する。試薬混合比や反応温度の調節によって孔系・比表面積が多様な素材を作成する。

(2) アルミナ試料の吸着能評価

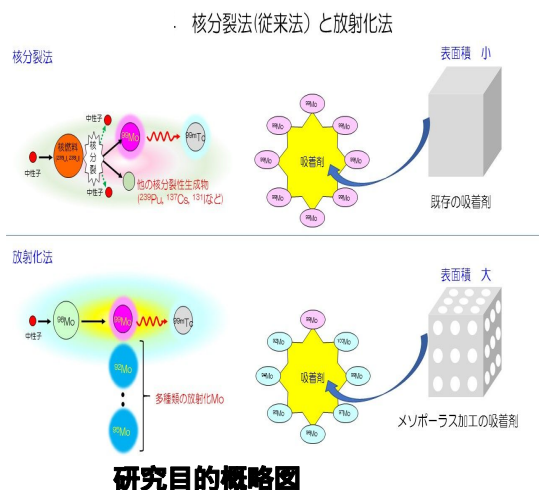
抽出液よりアルミナ試料の吸着能を評価する。方法は、吸着性能の良いアルミナ試料について、モリブデンを吸着させ、その吸着性能を評価するとともに、モリブデンを吸着させた試料に生理食塩水を流し、発光分光分析(ICP分析)により通液後の生理食塩水中のモリブデン、アルミニウム、その他の元素を測定し、試料から不純物が脱離しないことを確認する。得られた結果により、アルミナ試料のモリブデン吸着メカニズムを構築し、最適の多孔性アルミナの製造方法等の選定を行う。

(3) 放射化モリブデンの吸着性評価

放射化モリブデンでの吸着能を評価する。方法は、平成27年度の研究で選定したアルミナ試料について、中性子照射したモリブデン原料を用いて、試料に照射したモリブデンを吸着させる。放射能測定及び不純物分析により、アルミナ試料のモリブデン吸着性能を調べ、平成27年度の未照射モリブデンを用いた結果

と比較する。

核分裂法と放射化法の違い、および、今回の研究目的の概略図を下に示す。



4. 研究成果

Mo 吸着材アルミナの吸着能に直結すると予想されるアルミナの表面積を増やすためにメソポーラス加工を行った。メソポーラス加工は試料の表面に小さな孔を多数作ることによって表面積を拡大させる技術である。多数の穴を複雑な構造で作ることによって、表面積の大きな資料の作成が可能になる。アルミナにメソポーラス加工を行う際に焼成が必要になる。その焼成条件を少しずつ変えて、焼成後に粉末状としてとりだし、カラムに充填させたのち Mo 溶液を流入し、Mo 吸着能を評価した。今年度はアルミナ作成の際の焼成温度を 500 - 1200 度まで段階的に変化させた。X 線プロファイルでは、700 度で焼成した場合にはメソポーラス加工が可能であるが、900 度で焼成し場合にはメソポーラス加工は作れず構造が崩れていることが推察された(図 1)。さらに、走査型顕微鏡でも表面にナノメートルサイズの径を有する多くの細孔を伴ったメソポーラス構造が確認された(図 2)。

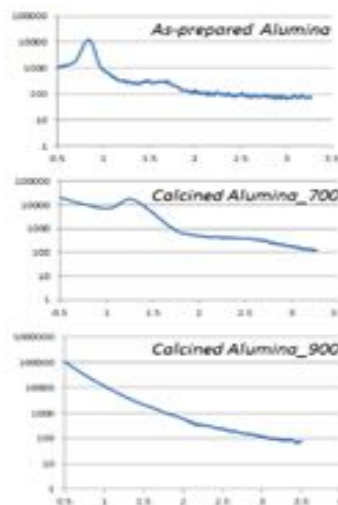


図 1 X線プロファイル解析

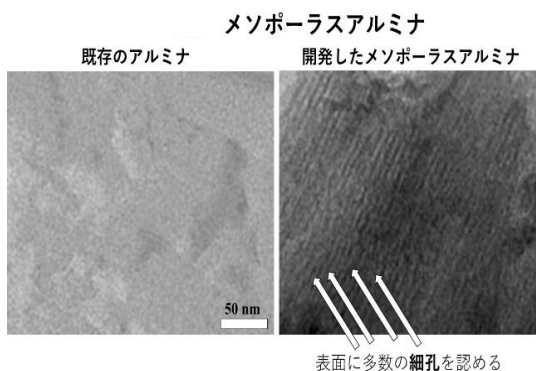


図 2 既存のアルミナとメソポーラスアルミナの走査型顕微鏡写真

Mo 吸着能を測定した結果、600 度で焼成した場合に比表面積 $275\text{m}^2/\text{g}$ 、700 度で焼成した場合に比表面積 $230\text{m}^2/\text{g}$ 、Mo 吸着量 $40\text{mg}/\text{g}$ と高く、比表面積や Mo 吸着量は、既存のアルミナ製剤の比表面積 $110\text{m}^2/\text{g}$ 、Mo 吸着量 $10\text{-}20\text{mg}/\text{g}$ と比べて約 3 倍高い数値であった。一方、900 度で焼成した場合の比表面積 $139\text{m}^2/\text{g}$ と既存のアルミナと同等であり、X 線プロファイルで得られた結果と矛盾しない結果であった(図 3)。

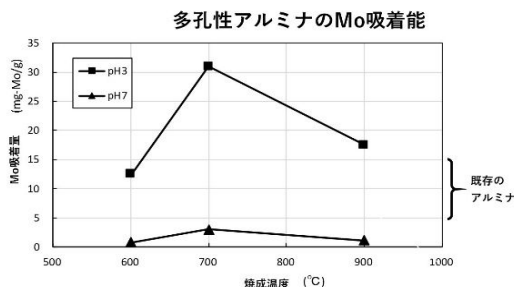


図 3 条件の違いによる吸着能の比較

表面積及び Mo 吸着能は焼成温度や pH などの条件を変えることで大きく変化した。また、データの再現性についても検証するために同一条件での同様の実験を複数回行ったが、焼成する際の試料の炉内の設置位置によってもデータのばらつきがあった。その中でも、炉の中心に試料を設置して周囲から均一に焼成された場合に表面積が大きく、Mo 吸着能が高いメソポーラス加工アルミナが作成できることが分かった。したがって、一度に大量に作成しようとして炉内に多数の試料を設置するよりも試料を炉内の中心に設置し、少量ずつ作成したほうが品質性に優れたメソポーラス加工アルミナが作成できることが明らかになった。

5. 主な発表論文等
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 2件)

1. 福光 延吉:モリブデン-99/テクネチウム-99m($^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$)国産化と吸着剤の開発. 臨床核医学 49, 74-77, 2016.
2. 福光 延吉、土谷 邦彦、有賀 克彦、山内 悠輔:研究用原子炉により $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ 国産化を目指した $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ ジェネレータ開発. Isotopenews Vol1742, 20-24, 2016.

[学会発表](計 2件)

1. 福光延吉、山内悠輔、有賀克彦、土谷邦彦、蓼沼克嘉:アルミナのメソポーラス加工による Mo 吸着能の変化. 第 56 回日本核医学会, 2016 年 11 月 3 日. 名古屋国際会議場・愛知県名古屋市
2. Tsuchiya K, Kawamata K, Takeuchi N, Ishizaki H, Niizeki T, Kakei, S Fukumitsu N, Araki M. Research and Development of $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ Production Process by (n,) Reaction under

Tsukuba International Strategic Zones.
8th International Symposium on
Material testing Reactors, 2015 年 10
月 3 日. シドニー・オーストラリア

[図書](計 0件)

[産業財産権]

出願状況(計 0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計 0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

[その他]
ホームページ等
なし

6. 研究組織

(1)研究代表者
福光 延吉(FUKUMITSU, Nobuyoshi)
筑波大学・医学医療系・准教授
研究者番号: 40277075

(2)研究分担者
土谷 邦彦(TSUCHIYA Kunihiko)
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 大洗研究開発センター 照射試験炉センター・グループリーダー
研究者番号: 50343926

(3)連携研究者
なし()

研究者番号:

(4)研究協力者
なし()