

## 4-7 医用ラジオアイソトープ用吸着材の性能向上に向けて —アルミナのモリブデン酸イオン吸着メカニズムの解明—

表 4-1 アルミナの Mo 吸着容量及びミルクング溶液中の Mo と Al 量  
アルミナは溶液の pH が低いほど、多くのモリブデン酸イオンを吸着しました。同様に、Mo 脱離と Al 混入も多くなる傾向を示しました。

溶液 pH	Mo 吸着容量 (mg-Mo/g)	ミルクング		
		回数	Mo 脱離量 (mg-Mo/g-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	Al 混入量 (mg)
pH2	74.1	1回目	2.77	0.08
		2回目	2.33	0.06
pH4	61.5	1回目	0.88	0.02
		2回目	0.92	0.02
pH6	53.8	1回目	0.68	—
		2回目	0.62	—

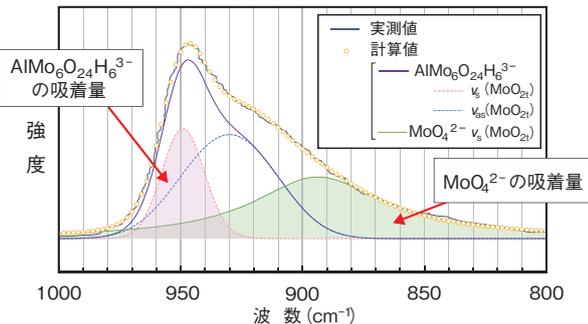


図 4-15 ラマン分光による各モリブデン酸イオン吸着量 (pH4)  
ラマン分光スペクトルを各モリブデン酸イオンピークでフィッティングして、ピーク面積から各イオン種の吸着量を比較しました。

核医学検査薬として代表的な核種であるテクネチウム 99m (<sup>99m</sup>Tc) は、モリブデン 99 (<sup>99</sup>Mo) を原料としています。現在、<sup>99</sup>Mo はウランの核分裂により製造 (核分裂法) されていますが、核セキュリティなどの観点からモリブデン 98 (<sup>98</sup>Mo) に中性子を照射して製造する放射化法が注目されています。しかし、核分裂法に比べて放射化法は <sup>99</sup>Mo を極めて少量ずつしか製造できないという欠点があります。一般に、<sup>99</sup>Mo から <sup>99m</sup>Tc を取り出す際には、<sup>99</sup>Mo を吸着したアルミナ (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) に生理食塩水を流す (ミルクング) と <sup>99m</sup>Tc のみがアルミナから溶離されるという現象を利用します。したがって、核分裂法と同等の <sup>99m</sup>Tc を取り出すためには、アルミナにより多くの <sup>99</sup>Mo を吸着できるように Mo 吸着性能の向上を図る必要があります。そこで、吸着量を増やすため、私たちは Mo がアルミナに吸着する際の形態であるモリブデン酸イオンに着目し、その吸着メカニズムの解明を目指しました。

まず、モリブデン酸イオンを含む異なる pH の溶液にアルミナを浸して Mo 吸着した後、生理食塩水を流してミルクングを行いました。その結果、pH が低いほど Mo を吸着しますが、ミルクングの際に余分な Mo 脱離及び Al 混入を生じ、得られる <sup>99m</sup>Tc の純度が下がることが分かりました (表 4-1)。次に、アルミナ表面の OH 基の量を比較しました。その結果、吸着前と比較して pH4、pH6 では OH 基が増えますが、pH2 ではほぼ変化しませんでした。これは、溶液への浸漬により表面

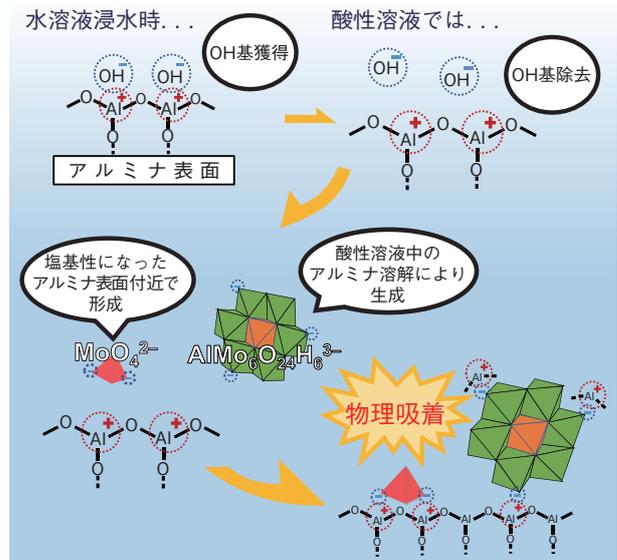


図 4-16 アルミナのモリブデン酸イオン吸着メカニズム

①アルミナは周囲条件下で水和し、水溶液に浸すと表面に OH 基を獲得します。②アルミナを酸性溶液に浸すと酸の濃度に応じて OH 基が表面から除去され、正に帯電されます。③ OH<sup>-</sup> の放出により、アルミナ表面近くが局部的に塩基性になり、MoO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の形成が促進されます。④アルミナは酸性溶液にわずかに溶解し、AlMo<sub>6</sub>O<sub>24</sub>H<sub>6</sub><sup>3-</sup> が生成されます。⑤二つの陰イオンは、アルミナ表面の正に帯電したサイトとの静電相互作用により物理吸着されます。

の OH 基が増えますが、Mo 吸着量が多いと OH 基の生成が抑制されることを示しています。さらに、吸着したモリブデン酸イオン種を調べました。その結果、吸着したイオン種は Mo (VI) を含むイオンであることが示されました。続いて、吸着するモリブデン酸イオン種の特定制及び吸着量の比較をしたところ、吸着したモリブデン酸イオン種は MoO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 及び AlMo<sub>6</sub>O<sub>24</sub>H<sub>6</sub><sup>3-</sup> であることが分かりました (図 4-15)。また、先に述べた pH が低いほど Mo 脱離及び Al 混入量が増えることと、二つのモリブデン酸イオン種の吸着量から、AlMo<sub>6</sub>O<sub>24</sub>H<sub>6</sub><sup>3-</sup> は吸着力が弱いことが推定されました。

この結果から、アルミナへの Mo 吸着メカニズム (図 4-16) を明らかにするとともに、Mo 吸着容量を向上する手法として、1) アルミナの比表面積向上による表面 OH 基の増加、2) アルミナの結晶相制御による表面 OH 基の増加、3) MoO<sub>4</sub><sup>2-</sup> のモリブデン酸イオン種で吸着するための Mo 溶液の最適化という三つの手法を見いだしました。本成果に基づく Mo 吸着容量を向上したアルミナの開発は、核セキュリティに優れた放射化法の迅速な実用化に貢献します。

本研究は、日本学術振興会科学研究費基盤研究 (B) (JP17H04256) 「<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 国産化を推進する空間構造に優れた新規アルミナ吸着剤の開発」の助成を受けたものです。

(藤田 善貴)

### ●参考文献

Fujita, Y. et al., Mechanisms Responsible for Adsorption of Molybdate Ions on Alumina for the Production of Medical Radioisotopes, Bulletin of the Chemical Society of Japan, vol.95, no.1, 2022, p.129-137.