(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7515547号
(P7515547)

(45)発行日　令和6年7月12日(2024.7.12)

(24)登録日　令和6年7月4日(2024.7.4)

(51)国際特許分類		FI		
G21G 4/08 (2006.01)		G21G	4/08	Z
G21K 5/08 (2006.01)		G21K	5/08	R
B01D 59/30 (2006.01)		B01D	59/30	

請求項の数　9　（全17頁）

(21)出願番号　特願2022-160430(P2022-160430)
(22)出願日　令和4年10月4日(2022.10.4)
(62)分割の表示　特願2021-529990(P2021-529990)の分割
原出願日　令和2年6月25日(2020.6.25)
(65)公開番号　特開2022-188189(P2022-188189A)
(43)公開日　令和4年12月20日(2022.12.20)
審査請求日　令和5年5月31日(2023.5.31)
(31)優先権主張番号　特願2019-123673(P2019-123673)
(32)優先日　令和1年7月2日(2019.7.2)
(33)優先権主張国・地域又は機関
日本国(JP)

(73)特許権者　000230250
日本メジフィジックス株式会社
東京都江東区新砂３丁目４番１０号
(74)代理人　110001070
弁理士法人エスエス国際特許事務所
(72)発明者　本田 芳雄
東京都江東区新砂３丁目４番１０号 日本メジフィジックス株式会社内
(72)発明者　矢納 慎也
東京都江東区新砂３丁目４番１０号 日本メジフィジックス株式会社内
審査官　後藤 大思

最終頁に続く

(54)【発明の名称】　２２６Ｒａ含有溶液の精製方法、２２６Ｒａターゲットの製造方法および２２５Ａｃの製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）を、二価陽イオンを選択的に吸着する機能を有する担体にアルカリ条件下で接触させて、^{226}Ｒａイオンを前記担体に吸着させる吸着工程（Ｒ１）と、

酸性条件下で前記担体から^{226}Ｒａイオンを溶離させる溶離工程（Ｒ２）と

を含む、^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

【請求項２】

前記担体が、二価の陽イオン交換基を有する、請求項１に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

【請求項３】

前記担体が、イミノジ酢酸基を含む、請求項１または２に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

【請求項４】

さらに、前記溶離工程（Ｒ２）で溶離された^{226}Ｒａイオンを含有する溶液を陰イオン交換樹脂に通液する陰イオン交換工程（Ｒ３）を含む、請求項１～３のいずれか一項に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

【請求項５】

前記^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）が、加速器を用いて荷電粒子、光子及び中性子から選ばれる少なくとも１種を照射した^{226}Ｒａターゲットを溶解した溶解液から^{225}Ａｃ成分を分離した後の溶液である、請求項１～４のいずれか一項に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

【請求項６】
前記担体がチューブに充填されている、請求項１～５のいずれか一項に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。
【請求項７】
請求項１～６のいずれか一項に記載の精製方法により得られた精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）を用いて電着液を調製する電着液調製工程（Ｒ４）と、
該電着液を用いて^{226}Ｒａ含有物質を基材に電着させる電着工程（Ｒ５）と
を含む、^{226}Ｒａターゲットの製造方法。
【請求項８】
前記電着工程（Ｒ５）を経た^{226}Ｒａ含有溶液（ｃ）を、二価陽イオンを選択的に吸着する機能を有する担体にアルカリ条件下で接触させて、^{226}Ｒａイオンを前記担体に吸着させる吸着工程（Ｒ６）と、
酸性条件下で前記担体から^{226}Ｒａイオンを溶離させる溶離工程（Ｒ７）と
を含む精製方法をさらに含み、
該精製方法により得られた精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｄ）を前記精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）と混合し、前記電着液調製工程（Ｒ４）で電着液を調製する、請求項７に記載の^{226}Ｒａターゲットの製造方法。
【請求項９】
さらに、前記溶離工程（Ｒ７）で溶離された^{226}Ｒａイオンを含有する溶液を陰イオン交換樹脂に通液する陰イオン交換工程（Ｒ８）を含む、請求項８に記載の^{226}Ｒａターゲットの製造方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法、^{226}Ｒａターゲットの製造方法および^{225}Ａｃの製造方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
核医学の分野では、放射線同位元素（ＲＩ）を含む薬剤を腫瘍などの病巣に選択的に取り込ませて治療するＲＩ内用療法が行われている。放射線の中でもアルファ線は、飛程が短いため周囲の正常な細胞に対する不要な被ばくの影響が小さいという特徴を有する。アルファ線放出核種の一つである^{225}Ａｃは、半減期が１０日間の放射性核種であり、近年、癌治療における治療用核種として期待されている。
【０００３】
^{225}Ａｃは、例えば、加速器を用いて^{226}Ｒａターゲットに陽子を照射することで、（ｐ，２ｎ）の核反応により製造される。特許文献１には、照射後の^{226}Ｒａターゲットを溶解して得られる、^{226}Ｒａイオンおよび^{225}Ａｃイオンを含有する溶液から^{225}Ａｃ成分を分離して精製する方法が開示されている。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００４】
【文献】特表２００９－５２７７３１号公報
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００５】
しかしながら、^{226}Ｒａターゲットから生成される^{225}Ａｃは微量であり、^{226}Ｒａの大部分が未反応のまま残るという問題があった。
【０００６】
また、^{226}Ｒａは、貴重な核種であること、廃棄は容易ではないことから、未反応の^{226}Ｒａを再利用するために、^{225}Ａｃ分離後の^{226}Ｒａイオンを含む溶液を効率的かつ簡便に

精製する方法の確立が求められていた。特許文献１に記載の技術は、蒸留や還流が必要になるなど効率性及び簡便性の点で課題があった。

【０００７】

本発明は、上記のような実情に鑑みてなされたものであり、^{226}Ｒａターゲットから^{225}Ａｃを製造する際に得られる^{226}Ｒａ含有溶液を効率的かつ簡便に精製する方法、該精製方法で得られた精製^{226}Ｒａ含有溶液を用いて^{226}Ｒａターゲットを製造する方法、およびこれらの方法を含む^{225}Ａｃの製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【０００８】

本発明の一態様は、^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）を、二価陽イオンを選択的に吸着する機能を有する担体にアルカリ条件下で接触させて、^{226}Ｒａイオンを担体に吸着させる吸着工程（Ｒ１）と、酸性条件下で前記担体から^{226}Ｒａイオンを溶離させる溶離工程（Ｒ２）とを含む、^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法である。

【０００９】

また、本発明の別の態様は、上記に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法により得られた精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）を用いて電着液を調製する電着液調製工程（Ｒ４）と、該電着液を用いて^{226}Ｒａ含有物質を基材に電着させる電着工程（Ｒ５）とを含む、^{226}Ｒａターゲットの製造方法である。

【００１０】

さらに、本発明の別の態様は、上記に記載の^{226}Ｒａターゲットの製造方法により製造された^{226}Ｒａターゲットに、加速器を用いて荷電粒子、光子及び中性子から選ばれる少なくとも１種を照射して^{225}Ａｃを生成するする照射工程（Ａ１）を含む、^{225}Ａｃの製造方法である。

【発明の効果】

【００１１】

本発明の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法によれば、^{226}Ｒａターゲットから^{225}Ａｃを製造する際に得られる^{226}Ｒａ含有溶液を効率的かつ簡便に精製することができる。また、該精製方法で得られた精製^{226}Ｒａ含有溶液を用いて効率的に^{226}Ｒａターゲットを製造することができる。また、これらの方法を含む^{225}Ａｃの製造方法により^{225}Ａｃを効率的かつ安定的に得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【００１２】

【図１】本発明に係る^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法、^{226}Ｒａターゲットの製造方法、および^{225}Ａｃの製造方法の概略を示すフロー図である。

【発明を実施するための形態】

【００１３】

以下、本発明の実施形態について、詳細に説明する。なお、図１に、本発明に係る^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法、^{226}Ｒａターゲットの製造方法、および^{225}Ａｃの製造方法の概略を示すフロー図を示す。

【００１４】

［^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法］

本発明の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法（以下「精製方法（Ｘ）」ともいう。）は、^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）を、二価陽イオンを選択的に吸着する機能を有する担体（以下「担体（ｉ）」ともいう。）にアルカリ条件下で接触させて、^{226}Ｒａイオンを担体（ｉ）に吸着させる吸着工程（Ｒ１）と、酸性条件下で担体（ｉ）から^{226}Ｒａイオンを溶離させる溶離工程（Ｒ２）とを含むことを特徴とする。これにより、^{226}Ｒａイオンを濃縮して不純物を低減することができる。精製方法（Ｘ）により得られた溶液を精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）と称する。

【００１５】

^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）は、^{226}Ｒａイオンを含有する溶液であれば特に限定されず、好ま

しくは、^{226}Ｒａイオンを含有する水溶液である。吸着工程（Ｒ１）をアルカリ条件下で行うために、^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）がアルカリ水溶液であることがより好ましく、ｐＨは８以上であることが好ましく、９以上であることがより好ましい。アルカリ水溶液として、アンモニウム水溶液、水酸化ナトリウム水溶液、水酸化カリウム水溶液などが挙げられる。これにより、^{226}Ｒａイオンを担体（ｉ）に効率的に吸着させることができる。

【００１６】

^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）として、後述する^{225}Ａｃの製造の製造方法における照射工程（Ａ１）、溶解工程（Ａ２）および分離工程（Ａ３）を経た溶液、すなわち、加速器を用いて荷電粒子、光子及び中性子から選ばれる少なくとも１種を照射した^{226}Ｒａターゲットを溶解した溶解液から^{225}Ａｃ成分を分離した後の溶液を用いてもよい。

【００１７】

＜吸着工程（Ｒ１）＞

吸着工程（Ｒ１）では、^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）を、担体（ｉ）にアルカリ条件下で接触させて、^{226}Ｒａイオンを担体（ｉ）に吸着させる。

【００１８】

担体（ｉ）としては、アルカリ条件下で金属イオンと錯形成し、酸性条件下で金属イオンを溶離することができるものであれば特に限定されないが、例えば、二価陽イオン交換基を有するものが挙げられる。二価陽イオン交換基としては、具体的には、イミノジ酢酸基、ポリアミン基、メチルグリカン基を有する担体が挙げられ、好ましくはイミノジ酢酸基である。二価陽イオン交換基を有する担体は、樹脂などの固相担体に二価陽イオン交換基が保持されていれば特に限定されない。より好ましい例として、イミノジ酢酸基を保持するスチレンジビニルベンゼン共重合体が挙げられる。このようなイミノジ酢酸基を有する樹脂の市販品としては、Ｂｉｏ－Ｒａｄ社製「Ｃｈｅｌｅｘ」シリーズ、三菱化学社製「ダイヤイオン」シリーズ、ダウケミカル社製「アンバーライト」シリーズ等が挙げられ、より具体的にはＢｉｏ－Ｒａｄ社製「Ｃｈｅｌｅｘ１００」（粒径：５０～１００ｍｅｓｈ、イオン型：Ｎａ型、Ｆｅ型）が挙げられる。なお、担体（ｉ）は、チューブに充填して用いてもよい。チューブは、担体（ｉ）を充填させることができ、柔軟性を有するものであれば特に限定されないが、好ましくはゴムまたは樹脂等からなるフレキシブルチューブ、より好ましくは医療用チューブである。

【００１９】

このようなチューブを用いることで、一般的なガラス製カラムよりも長さを長くする、すなわち理論段数を高くすることができるため、^{226}Ｒａイオンの吸着効率を高めることができる。また、放射性物質（^{226}Ｒａ含有溶液）を通液させた担体（ｉ）をチューブに充填させたまま、その他の器具や機器等を放射能汚染させることなく、簡便に廃棄することができる。

【００２０】

＜溶離工程（Ｒ２）＞

溶離工程（Ｒ２）では、酸性条件下で、担体（ｉ）から^{226}Ｒａイオンを溶離させる。具体的には、担体（ｉ）に無機酸を通液することで、担体（ｉ）に吸着させた^{226}Ｒａイオンを溶離することができる。

【００２１】

無機酸としては、担体（ｉ）に吸着した^{226}Ｒａ成分を溶解してイオンとすることができるものであれば特に限定されず、例えば、塩酸や硝酸が挙げられる。

【００２２】

なお、^{226}Ｒａイオンを担体から効率的に溶離できる点や、後の工程で無機酸由来の陰イオンを効率的に除去できる点から、無機酸の濃度は好ましくは０．１～１２ｍｏｌ／Ｌ、より好ましくは０．３～５ｍｏｌ／Ｌ、さらに好ましくは０．５～２ｍｏｌ／Ｌ、特に好ましくは０．７～１．５ｍｏｌ／Ｌである。

【００２３】

＜陰イオン交換工程（Ｒ３）＞

本発明の精製方法（Ｘ）は、さらに、溶離工程（Ｒ２）で溶離された^{226}Ｒａイオンを含有する溶液を陰イオン交換樹脂に通液する陰イオン交換工程（Ｒ３）を含んでいてもよい。

【００２４】

溶離工程（Ｒ２）で用いた無機酸（例えば塩酸等）に由来する陰イオン（例えば塩化物イオン等）が溶液に残存すると、後述する電着工程（Ｒ５）における^{226}Ｒａイオンの電着率に影響を及ぼすことがある。そのため、溶離工程（Ｒ２）で溶離された^{226}Ｒａイオンを含有する溶液を陰イオン交換工程（Ｒ３）で処理することが、無機酸に由来する陰イオンを水酸化物イオンに交換することで減少させることができ、電着工程（Ｒ５）における^{226}Ｒａイオンの電着効率を向上することができることから、好ましい。

【００２５】

陰イオン交換樹脂としては、無機酸に由来する陰イオン（例えば塩化物イオン等）を水酸化物イオンに交換することができれば特に限定されないが、強塩基性陰イオン交換樹脂が好ましく、四級アンモニウム塩を有する樹脂がより好ましい。このような陰イオン交換樹脂の市販品としては、例えば、ダヴ・ケミカル社製「モノスフィア」シリーズ、Ｂｉｏ－Ｒａｄ社製「ＡＧ」シリーズ等が挙げられ、より具体的には「モノスフィア５５０Ａ」（粒径：５９０±５０ｍｅｓｈ、イオン型：ＯＨ形）等が挙げられる。

【００２６】

なお、陰イオン交換樹脂は、担体（ｉ）と同様にチューブに充填して用いてもよい。用いることができるチューブとしては、前述した担体（ｉ）を充填させるチューブと同様のものが挙げられる。

【００２７】

＜その他の工程＞

精製方法（Ｘ）において、工程（Ｒ１）と工程（Ｒ２）との間に担体（ｉ）を洗浄する工程を含んでいてもよい。具体的には、担体（ｉ）に水を通液することが挙げられる。そうすることで、精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）に含まれる不純物の割合を低減できる。

【００２８】

［^{226}Ｒａターゲットの製造方法］

本発明の^{226}Ｒａターゲットの製造方法は、精製方法（Ｘ）により得られた精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）を用いて電着液を調製する電着液調製工程（Ｒ４）と、該電着液を用いて^{226}Ｒａ含有物質を基材に電着させる電着工程（Ｒ５）とを含むことを特徴とする。

【００２９】

本発明の^{226}Ｒａターゲットの製造方法は、電着工程（Ｒ５）を経た^{226}Ｒａ含有溶液（ｃ）を、二価陽イオンを選択的に吸着する機能を有する担体（以下「担体（ii）」ともいう。）にアルカリ条件下で接触させて、^{226}Ｒａイオンを担体（ii）に吸着させる吸着工程（Ｒ６）と、酸性条件下で、担体（ii）から^{226}Ｒａイオンを溶離させる溶離工程（Ｒ７）とを含む精製方法（以下「精製方法（Ｙ）」ともいう。）をさらに含むことが好ましい。精製方法（Ｙ）により得られた溶液を精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｄ）と称する。

【００３０】

＜電着液調製工程（Ｒ４）＞

電着液調製工程（Ｒ４）では、精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）を用いて電着液を調製するが、この際、精製方法（Ｙ）により得られた精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｄ）を精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）と混合して電着液を調製してもよい。これにより、^{226}Ｒａの回収率をさらに高めることができ、より効率的に^{226}Ｒａを回収できる。

【００３１】

精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）または精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）と精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｄ）との混合液に、必要に応じて緩衝剤または酸などを加えることにより、後述する電着工程（Ｒ５）で用いる電着液を調製することができる。

【００３２】

緩衝剤としては、例えば、塩化アンモニウムなどの塩化物塩；炭酸アンモニウム、炭酸

ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウムなどの炭酸塩；炭酸水素アンモニウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウムなどの炭酸水素塩；酢酸アンモニウム、酢酸ナトリウム、酢酸カリウムなどの酢酸塩；コハク酸一ナトリウム、コハク酸二ナトリウム、コハク酸一カリウム、コハク酸二カリウム、コハク酸一アンモニウム、コハク酸二アンモニウムなどのコハク酸塩；安息香酸ナトリウム、安息香酸カリウム、安息香酸アンモニウムなどの安息香酸塩が挙げられ、これらの中でも、電着液のｐＨを後述する所望の範囲に維持することが容易であり、^{226}Ｒａイオンをより効率良く基材に電着させることができる等の点から、酢酸アンモニウムが好ましい。

【００３３】

酸としては、例えば、無機酸、炭素数２～６のカルボン酸が挙げられる。無機酸としては、硝酸、塩酸、ホウ酸が挙げられる。また、炭素数２～６のカルボン酸としては、酢酸、コハク酸、安息香酸が挙げられる。

酸は、^{225}Ａｃの収量を向上させる等の点から、１価又は２価の酸であることが好ましい。

【００３４】

^{226}Ｒａイオンをより効率良く基材に電着させることができる等の点から、電着液のｐＨは、好ましくは４～７、より好ましくは５～６である。緩衝剤や酸を適宜加えることにより、電着液のｐＨを前記範囲内とすることができる。

【００３５】

電着液は、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、従来の電気めっき等に用いられてきた成分を含んでいてもよい。その他の成分は、１種を用いてもよく、２種以上を用いてもよい。

【００３６】

＜電着工程（Ｒ５）＞

電着工程（Ｒ５）では、電着液調製工程（Ｒ４）にて調製した電着液を用いて^{226}Ｒａ含有物質を基材に電着させる。

【００３７】

^{226}Ｒａ含有物質としては、^{226}Ｒａ金属または^{226}Ｒａ塩が挙げられる。得られた^{226}Ｒａターゲットは、後述する^{225}Ａｃの製造方法における照射工程（Ａ１）にて再利用することができる。

【００３８】

基材に用いられる金属としては、アルミニウム、銅、チタン、銀、金、鉄、ニッケル、ニオブおよびこれらの金属を含む合金（例：リン青銅、黄銅、洋白、ベリリウム銅、コルソン合金、ステンレス鋼）が挙げられる。

また、基材としては、これらの金属が導電性の支持体にめっきされていてもよい。

【００３９】

基材としては、加速器を用いた荷電粒子、光子及び中性子から選ばれる少なくとも１種の照射の際にも該加速器等に悪影響を及ぼし難く、照射時やターゲット溶解時に、該基材由来の金属の混入を抑制できる点、および、^{226}Ｒａイオンをより効率良く基材に電着させることができる点などから、金板が好ましい。

【００４０】

電着工程（Ｒ５）は、公知の方法にしたがって行なうことができる。具体的には、電着液を通電させることで、^{226}Ｒａ含有物質が基材に電着される。

【００４１】

通電する際の電源としては特に限定されず、直流電源、交流電源、パルス電源、ＰＲパルス電源等を使用することができる。これらの中でも、^{226}Ｒａイオンの拡散を改善して^{226}Ｒａ含有物質を均一に電着させることが容易となり、熱の発生を抑制でき、小型の電源で電着できる等の点から、パルス電源やＰＲパルス電源を用いることが好ましい。

【００４２】

電着工程（Ｒ５）の際の温度（電着液の温度）は特に限定されないが、例えば１０～８

０℃程度の温度が挙げられる。
【００４３】
＜吸着工程（Ｒ６）＞
吸着工程（Ｒ６）では、電着工程（Ｒ５）を経た、残留^{226}Ｒａイオンを含有する^{226}Ｒａ含有溶液（ｃ）を担体（ii）にアルカリ条件下で接触させて、^{226}Ｒａイオンを担体（ii）に吸着させる。
【００４４】
担体（ii）としては、精製方法（Ｘ）における吸着工程（Ｒ１）で用いられる担体（i）と同様のものを用いることができ、精製方法（Ｘ）と同様に、担体（ii）をチューブに充填して用いてもよい。
【００４５】
＜溶離工程（Ｒ７）＞
溶離工程（Ｒ７）では、酸性条件下で、担体（ii）から^{226}Ｒａイオンを溶離させる。具体的には、担体（ii）に無機酸を通液することで、担体（ii）に吸着させた^{226}Ｒａイオンを溶離することができる。
【００４６】
溶離工程（Ｒ７）で用いられる無機酸としては、溶離工程（Ｒ２）で用いられる無機酸と同様のものを用いることができ、無機酸の濃度も同様の濃度とすることができる。
【００４７】
＜陰イオン交換工程（Ｒ８）＞
精製方法（Ｙ）は、さらに、溶離工程（Ｒ７）で溶離された^{226}Ｒａイオンを含有する溶液を陰イオン交換樹脂に通液する陰イオン交換工程（Ｒ８）を含んでいてもよい。
【００４８】
溶離工程（Ｒ７）で用いた無機酸（例えば塩酸等）に由来する陰イオン（例えば塩化物イオン等）が残存すると、電着液調製工程（Ｒ４）にて電着液を調製して電着工程（Ｒ４）を行なった際に、^{226}Ｒａイオンの電着効率に影響を及ぼすことがある。そのため、溶離工程（Ｒ７）で溶離された^{226}Ｒａイオンを含有する溶液を、陰イオン交換工程工程（Ｒ８）で処理することが、無機酸に由来する陰イオンを水酸化物イオンに交換して減少させることができ、再度、電着工程（Ｒ４）の電着液として用いられた場合、^{226}Ｒａの電着率を向上させることができることから、好ましい。
【００４９】
＜その他の工程＞
精製方法（Ｙ）において、工程（Ｒ６）と工程（Ｒ７）の間に担体（ii）を洗浄する工程を含んでいてもよい。具体的には、担体（ii）に水を通液することが挙げられる。そうすることで、精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｄ）に含まれる不純物の割合が減少する。
【００５０】
［^{225}Ａｃの製造方法］
本発明の^{225}Ａｃの製造方法は、前述した本発明の^{226}Ｒａターゲットの製造方法により製造された^{226}Ｒａターゲットに、加速器を用いて荷電粒子、光子及び中性子から選ばれる少なくとも１種を照射する照射工程（Ａ１）を含むことを特徴とする。本発明の^{225}Ａｃの製造方法は、照射工程（Ａ１）で照射された^{226}Ｒａターゲットを溶解する溶解工程（Ａ２）と、溶解工程（Ａ２）で得られた溶解液をアルカリ化することによりコロイド化した^{225}Ａｃ成分を分離する分離工程（Ａ３）をさらに含むことが好ましい。
【００５１】
＜照射工程（Ａ１）＞
照射工程（Ａ１）では、前述した本発明の^{226}Ｒａターゲットの製造方法により製造された^{226}Ｒａターゲットに、加速器を用いて荷電粒子、光子及び中性子から選ばれる少なくとも１種の粒子を照射して核反応により^{225}Ａｃを生成させる。粒子としては、陽子、重陽子、α粒子又はγ線が好ましく、陽子がより好ましい。
なお、照射方法および照射条件については、公知の方法および条件を採用することがで

きる。

【００５２】

＜溶解工程（Ａ２）＞

溶解工程（Ａ２）では、照射工程（Ａ１）で照射された^{226}Ｒａターゲットを酸性溶液に溶解する。これにより、^{226}Ｒａイオンおよび^{225}Ａｃイオンを含有する溶解液が得られる。

【００５３】

酸性溶液としては、^{225}Ａｃおよび^{226}Ｒａをイオンとして溶解させることができるものであり、具体的には、塩酸や硝酸など無機酸の水溶液が挙げられ、好ましくは塩酸である。

【００５４】

＜分離工程（Ａ３）＞

分離工程（Ａ３）では、溶解工程（Ａ２）で得られた溶解液をアルカリ化することによりコロイド化した^{225}Ａｃ成分を分離する。

【００５５】

酸性条件下では、^{225}Ａｃイオンとして水に溶解している^{225}Ａｃは、アルカリ条件下では、水酸化アクチニウム（^{225}Ａｃ（ＯＨ）$_3$）となり、水溶液中ではコロイド化する。コロイド化した水酸化アクチニウムは、メンブレンフィルター等で濾過することでフィルター上に捕集され、溶解液から分離することができる。

【００５６】

一方、^{226}Ｒａ成分は、アルカリ溶液を添加した溶解液中にイオンとして存在し、分離工程（Ａ３）により^{225}Ａｃ成分と分離され、^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）が得られる。得られた^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）は、精製方法（Ｘ）における吸着工程（Ｒ１）に供給される。

【００５７】

＜回収工程（Ａ４）＞

分離工程（Ａ３）で分離された^{225}Ａｃを酸性溶液で溶解することにより、^{225}Ａｃ含有溶液が得られる。得られた^{225}Ａｃ含有溶液は、必要に応じて、公知の方法により、さらに精製処理してもよい。

【００５８】

≪溶解≫

分離工程（Ａ３）で分離された水酸化アクチニウムは、酸性溶液を用いて溶解することができる。溶解に使用する酸性溶液としては、水酸化アクチニウムをイオンとして溶解することができるものであれば特に限定されず、例えば、溶解工程（Ａ２）で使用したものと同じものを使用することができる。また、濃度としては好ましくは１～６ｍｏｌ／Ｌ、より好ましくは２～５ｍｏｌ／Ｌであることが、水酸化アクチニウムをイオンとして溶解しやすい点や、担体が^{226}Ｒａを吸着しやすくなる観点から好ましい。

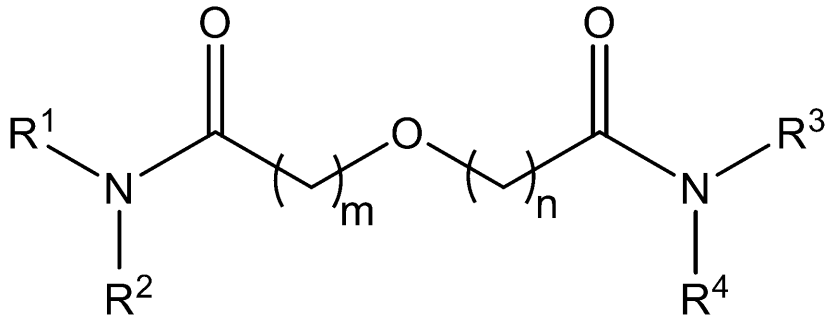
【００５９】

≪精製≫

酸性溶液で溶解された^{225}Ａｃイオンを含有する溶液を、例えば、固相抽出法により精製することができる。固相抽出法に用いられる固相抽出剤としては、^{225}Ａｃイオンを捕捉した後、所定の条件下で溶離することができるものであれば特に限定されないが、例えば、式（１）で表される化合物を含むものが挙げられる。

【００６０】

【化１】



（１）

式（１）中、ｍおよびｎは、独立して０または１であり、好ましくは１であり、R^1、R^2、R^3およびR^4は、独立して、炭素数８以上１２以下からなる直鎖または分岐鎖のアルキル基であり、好ましくは、独立して、オクチル基または２－エチルヘキシルである。このような固相抽出剤は、例えば、ｅｉｃｈｒｏｍ社製より「ＤＧＡレジン」として市販されている。

【００６１】

具体的な精製方法としては、まず、^{225}Ａｃ含有溶液を固相抽出剤に通液することで^{225}Ａｃイオン等を固相抽出剤に捕捉する。次いで、塩酸などの無機酸で固相抽出剤に通液することで、捕捉された不要な^{226}Ｒａを溶離する。このとき、^{225}Ａｃは溶離しないように、無機酸の濃度を相対的に高濃度に設定する。その後、相対的に低濃度の無機酸を通液することで固相抽出剤から^{225}Ａｃイオンを溶離することができる。

以上、実施形態に基づいて説明した本発明は、以下の技術思想を包含する。

［１］　^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）を、二価陽イオンを選択的に吸着する機能を有する担体にアルカリ条件下で接触させて、^{226}Ｒａイオンを前記担体に吸着させる吸着工程（Ｒ１）と、

酸性条件下で前記担体から^{226}Ｒａイオンを溶離させる溶離工程（Ｒ２）と

を含む、^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

［２］　前記担体が、二価の陽イオン交換基を有する、項［１］に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

［３］　前記担体が、イミノジ酢酸基を含む、項［１］または［２］に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

［４］　さらに、前記溶離工程（Ｒ２）で溶離された^{226}Ｒａイオンを含有する溶液を陰イオン交換樹脂に通液する陰イオン交換工程（Ｒ３）を含む、項［１］～［３］のいずれか一項に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

［５］　前記^{226}Ｒａ含有溶液（ａ）が、加速器を用いて荷電粒子、光子及び中性子から選ばれる少なくとも１種を照射した^{226}Ｒａターゲットを溶解した溶解液から^{225}Ａｃ成分を分離した後の溶液である、項［１］～［４］のいずれか一項に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

［６］　前記担体がチューブに充填されている、項［１］～［５］のいずれか一項に記載の^{226}Ｒａ含有溶液の精製方法。

［７］　項［１］～［６］のいずれか一項に記載の精製方法により得られた精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）を用いて電着液を調製する電着液調製工程（Ｒ４）と、

該電着液を用いて^{226}Ｒａ含有物質を基材に電着させる電着工程（Ｒ５）と

を含む、^{226}Ｒａターゲットの製造方法。

［８］　前記電着工程（Ｒ５）を経た^{226}Ｒａ含有溶液（ｃ）を、二価陽イオンを選択的に吸着する機能を有する担体にアルカリ条件下で接触させて、^{226}Ｒａイオンを前記担体に吸着させる吸着工程（Ｒ６）と、

酸性条件下で前記担体から^{226}Ｒａイオンを溶離させる溶離工程（Ｒ７）と

を含む精製方法をさらに含み、

該精製方法により得られた精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｄ）を前記精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ）と混合し、前記電着液調製工程（Ｒ４）で電着液を調製する、項［７］に記載の^{226}Ｒａターゲットの製造方法。

［９］　さらに、前記溶離工程（Ｒ７）で溶離された^{226}Ｒａイオンを含有する溶液を陰イオン交換樹脂に通液する陰イオン交換工程（Ｒ８）を含む、項［８］に記載の^{226}Ｒａターゲットの製造方法。

［１０］　項［７］～［９］のいずれか一項に記載の製造方法により製造された^{226}Ｒａターゲットに、加速器を用いて荷電粒子、光子及び中性子から選ばれる少なくとも１種を照射して^{225}Ａｃを生成する照射工程（Ａ１）を含む、^{225}Ａｃの製造方法。

［１１］　前記照射工程（Ａ１）で照射された^{226}Ｒａターゲットを溶解する溶解工程（Ａ２）と、

前記溶解工程（Ａ２）で得られた溶解液をアルカリ化することによりコロイド化した^{225}Ａｃ成分を分離する分離工程（Ａ３）と、

をさらに含む、項［１０］に記載の^{225}Ａｃの製造方法。

［１２］　二価陽イオンを選択的に吸着する機能を有する担体または陰イオン交換樹脂が充填されており、^{226}Ｒａ含有溶液を精製するために用いられるチューブ。

【実施例】

【００６２】

以下、実施例に基づいて本発明をより具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に何ら限定されるものではない。

【００６３】

［実施例１および２］

＜評価項目１．精製方法（Ｘ）における^{226}Ｒａの物質収支＞

照射済みの^{226}Ｒａターゲット（大きさ：Φ１０ｍｍ、厚み：２～３ｍｍ、^{226}Ｒａ質量：０．３～１ｍｇ）を１ｍｏｌ／Ｌの塩酸５ｍＬで溶解した後、メンブレンフィルターで濾過して不溶物を除去した。濾液に２８質量％アンモニア水（関東化学（株）製、製品名：アンモニア水（２５．０～２７．９％）原子吸光分析用）１ｍＬを添加してｐＨ１０～１２にし、水酸化アクチニウムのコロイドを生成させた。次いで、生成した水酸化アクチニウムをメンブレンフィルターを用いて流速１～２ｍＬ／ｍｉｎで濾過して、^{226}Ｒａ含有溶液（ａ－１）を回収した。得られた^{226}Ｒａ含有溶液（ａ－１）についてＥＵＲＩＳＹＳ　ＭＥＳＵＲＥＳ社製のゲルマニウム半導体検出器で放射能測定を行った。

【００６４】

次に、後述する精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ－１）にＮａが混入するのを防ぐためＣｈｅｌｅｘ１００（Ｂｉｏ－Ｒａｄ社製、粒径：５０～１００ｍｅｓｈ、イオン型：Ｎａ型、使用量：３ｍＬ）をNH_4^+型に変換したものを用いて、内径３．２ｍｍ、外径４．４ｍｍ、長さ５０ｃｍの医療用チューブ（エックステンションチューブ、八光、３．２×４．４×５００ｍｍ（４ｍＬ）、ＭＳ－ＦＬ）に充填して、得られた^{226}Ｒａ含有溶液（ａ－１）（ｐＨ＞９）５０～８０ｍＬを流速１～２ｍＬ／ｍｉｎで通液し、その溶出液を廃液（Ｗ１）とした。次いで、水１０ｍＬをＣｈｅｌｅｘ１００に流速１～２ｍＬ／ｍｉｎで通液し、その溶出液を廃液（Ｗ１）に合流させた。

【００６５】

次に、モノスフィア５５０Ａ（ダヴ・ケミカル社製、粒径：５９０±５０ｍｅｓｈ、イオン型：ＯＨ形、使用量：２０ｍＬ）を、塩酸、水、水酸化ナトリウム、水の順番で洗浄後、内径３．２ｍｍ、外径４．４ｍｍ、長さ２００ｃｍの医療用チューブ（エックステンションチューブ、（株）八光製、３．２×４．４×５００ｍｍ（４ｍＬ）、ＭＳ－ＦＬ）に充填し、Ｃｈｅｌｅｘ１００を充填したチューブに接続した。１ｍｏｌ／Ｌの塩酸１０ｍＬをＣｈｅｌｅｘ１００およびモノスフィア５５０Ａの順に流速１～２ｍＬ／ｍｉｎで通液した後、さらに水８ｍＬを流速１～２ｍＬ／ｍｉｎで通液し、精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ－１）１８ｍＬを得た。

【００６６】

得られた精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ－１）についてゲルマニウム半導体検出器で放射能測定を行った。また、廃液（Ｗ１）、Ｃｈｅｌｅｘおよびモノスフィア５５０Ａの資材についても、残留した^{226}Ｒａの分布量を調べるため放射能測定を行った。

同様の操作を合計２回行い（実施例１，２）、それぞれの^{226}Ｒａの物質収支を算出した。結果を表１に示す。

【００６７】

【表１】

		実施例１		実施例２	
		数値	割合	数値	割合
^{226}Ｒａ含有溶液（a-1）（計算値）		9.13 MBq	100%	2.97 MBq	100%
廃液（Ｗ１）		N.D.	＜0.2%*1	N.D.	＜0.7%*1
資材への残留	溶離後のChelex	N.D.	＜0.2%*1	N.D.	＜0.7%*1
	溶離後のモノスフィア550A	N.D.	＜0.2%*1	N.D.	＜0.7%*1
精製^{226}Ｒａ含有溶液（b-1）		9.13 MBq	＞99.3%	2.97 MBq	＞98.0%

【００６８】

表１において、^{226}Ｒａ含有溶液（ａ－１）については、下記の計算式（１）から算出した。

【００６９】

^{226}Ｒａ含有溶液（ａ－１）の^{226}Ｒａ（計算値）＝精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ－１）＋Ｃｈｅｌｅｘ１００への残留^{226}Ｒａ＋モノスフィア５５０Ａへの残留^{226}Ｒａ＋廃液（Ｗ１）・・・（１）

【００７０】

ただし、実施例２の精製^{226}Ｒａ含有溶液（ｂ－１）については、Ｒａ吸着したＣｈｅｌｅｘとＲａ溶離後のＣｈｅｌｅｘの放射能差から算出した値を用いた。

なお、表１中に記載されている＊１の値は、実測値はＮ．Ｄ．であったが、０．０２ＭＢｑ未満の測定の可否が不明なため、最大０．０２ＭＢｑ検出したとして計算した。

【００７１】

実施例１および２のように、^{226}Ｒａ含有溶液（ａ－１）をＣｈｅｌｅｘ１００に通液することで、^{226}Ｒａ以外の不純物（塩化アンモニウム（塩酸＋アンモニア）、アンモニア等）を除去することができる。また、これらの吸着工程（Ｒ１）、溶離工程（Ｒ２）および陰イオン交換工程（Ｒ３）により、塩化物イオンはほとんど取り除くことができる。

【００７２】

［実施例３～８］

＜評価項目２．溶解工程（Ａ２）および分離工程（Ａ３）を経た^{226}Ｒａの物質収支＞

照射済みの^{226}Ｒａターゲット（大きさ：Φ１０mm、厚み：２～３mm、^{226}Ｒａ質量：０．３～１ｍｇ）を１ｍｏｌ／Ｌの塩酸を５ｍＬで溶解した後、メンブレンフィルターで濾過して不溶物を除去した。濾液に２８質量％アンモニア水（関東化学（株）製、製品名：アンモニア水（２５．０～２７．９％）原子吸光分析用）１ｍＬを添加してｐＨ１０～１２にし、水酸化アクチニウムのコロイドを生成させた。次いで、生成した水酸化アクチニウムをメンブレンフィルターを用いて流速１～２ｍＬ／ｍｉｎで濾過して、^{226}Ｒａ含有溶液（ａ－２）を得た。

【００７３】

次に、ＤＧＡレジン（ｅｉｃｈｒｏｍ社製、ＤＧＡノーマルレジン、１ｍＬカートリッジ）をメンブレンフィルターに接続した。４ｍｏｌ／Ｌ硝酸６ｍＬをメンブレンフィルターおよびＤＧＡレジンの順に流速１～２ｍＬ／ｍｉｎで通液し、その溶出液を廃液（Ｗ２）とした。

【００７４】
溶解工程（Ａ２）後の溶液についてゲルマニウム半導体検出器で放射能測定を行った。また、廃液（Ｗ２）、メンブレンフィルターおよびＤＧＡレジンの資材についても、残留した^{226}Ｒａの分布量を調べるため、ゲルマニウム半導体検出器で放射能測定を行った。同様の操作を合計３回行い（実施例３～５）、それぞれの^{226}Ｒａの物質収支を算出した。結果を表２に示す。
【００７５】
＜評価項目３．^{225}Ａｃの物質収支＞
次に、ＤＧＡレジンをメンブレンフィルターから外し、８ｍｏｌ／Ｌ塩酸６ｍＬをＤＧＡレジンに流速１～２ｍＬ／ｍｉｎで通液して、その溶出液を廃液（Ｗ３）とした。その後、０．０１ｍｏｌ／Ｌ塩酸１０ｍＬをＤＧＡレジンに流速１～２ｍＬ／ｍｉｎで通液し、^{225}Ａｃ含有溶液を得た。
【００７６】
得られた^{225}Ａｃ含有溶液についてゲルマニウム半導体検出器で放射能測定を行った。また、廃液（Ｗ３）、メンブレンフィルターおよびＤＧＡレジンの資材についても、残留した^{225}Ａｃの分布量を調べるため、ゲルマニウム半導体検出器で放射能測定を行った。同様の操作を合計３回行い（実施例６～８）、結果を表３に示す。
【００７７】

【表２】

		実施例３		実施例４		実施例５	
		数値	割合	数値	割合	数値	割合
溶解工程（Ａ２）後の溶液		11.70 MBq	100%	17.03 MBq	100%	35.90 MBq	100%
資材への残留	メンブレンフィルター	N.D.	<0.2%*1	N.D.	<0.1%*1	0.02 MBq	0.1%
	ＤＧＡレジン	N.D.	<0.2%*1	N.D.	<0.1%*1	N.D.	<0.1%*1
廃液（Ｗ２）		0.18 MBq	1.5%	0.03 MBq	0.2%	0.46 MBq	1.3%
回収量	廃液（Ｗ２）を含まない^{226}Ｒａ含有溶液（a-2）（計算値）	11.52 MBq	>98.1%	17.00 MBq	>99.6%	35.43 MBq	>98.6%
	廃液（Ｗ２）を含む^{226}Ｒａ含有溶液（a-2）（計算値）	11.70 MBq	>99.7%	17.03 MBq	>99.8%	35.88 MBq	>99.9%

【００７８】

【表３】

		実施例６		実施例７		実施例８	
		数値	割合	数値	割合	数値	割合
メンブレンフィルター捕集量（計算値）		49.30 kBq	100%	47.55 kBq	100%	73.45 kBq	100%
資材への残留	メンブレンフィルター[*2]	N.D.	<1.2%[*1]	N.D.	<1.2%[*1]	0.93 kBq	1.27%
	ＤＧＡレジン[*2]	N.D.	<1.2%[*1]	N.D.	<1.2%[*1]	N.D.	<0.8%[*1]
ＤＧＡレジン通液後の廃液（Ｗ３）[*2]		N.D.	<1.2%[*1]	1.67 kBq	3.50%	N.D.	<0.8%[*1]
回収量	メンブレン捕集後以降[*2]	49.30 kBq	>96.5%[*3]	45.88 kBq	>94.1%[*3]	72.51 kBq	>97.1%[*3]

【００７９】

表２中に記載されている＊１の値は、実測値はＮ．Ｄ．であったが、０．０２ＭＢｑ未満の測定の可否が不明なため、最大０．０２ＭＢｑ検出したとして計算した。

表２中の分離工程（Ａ３）後の廃液（Ｗ２）を含まない^{226}Ｒａ含有溶液（ａ－２）については、下記の計算式（２）から算出した。

【００８０】

廃液（Ｗ２）を含まない^{226}Ｒａ含有溶液（ａ－２）（計算値）＝溶解工程（Ａ２）後の溶液に含まれる^{226}Ｒａ－分離工程（Ａ３）後の資材への^{226}Ｒａ残留（メンブレンフィルター）－分離工程（Ａ３）後の資材への^{226}Ｒａ残留（ＤＧＡレジン）－分離工程（Ａ

３）後の廃液（Ｗ２）の^{226}Ｒａ量・・・（２）

【００８１】

溶解工程（Ａ２）後の溶液に含まれる^{226}Ｒａは、一部を分取して測定を行い、それを全体液量分に換算して算出した。

【００８２】

表３中に記載されている＊１の値は、実測値はＮ．Ｄ．であったが、０．５８ｋＢｑ未満の測定の可否が不明なため、最大０．５８ｋＢｑ検出したとして計算した。

表３中に記載されている＊２の値は、分離工程（Ａ３）後の^{225}Ａｃメンブレンフィルター捕集量の算出のために用いている。

表３中のメンブレンフィルター捕集量は、下記の計算式（３）から算出した。

【００８３】

分離工程（Ａ３）後のメンブレンフィルター捕集量（計算値）＝^{225}Ａｃ回収工程（Ａ４）後の資材への^{225}Ａｃ残留（メンブレンフィルター）＋^{225}Ａｃ回収工程（Ａ４）後の資材への^{225}Ａｃ残留（ＤＧＡレジン）＋^{225}Ａｃ回収工程（Ａ４）のＤＧＡレジン通液後の廃液（Ｗ３）の^{225}Ａｃ量＋精製^{225}Ａｃ含有溶液における^{225}Ａｃ回収量・・・（３）

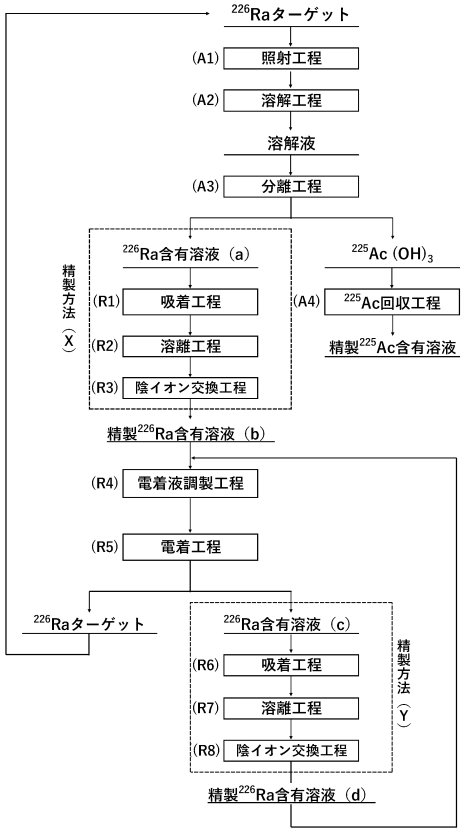
【００８４】

ただし、実施例６の精製^{225}Ａｃ含有溶液における^{225}Ａｃ回収量については、Ａｃ吸着したＤＧＡとＡｃ溶離後のＤＧＡの放射能差から算出した値を用いた。

【００８５】

表３中の＊３は、メンブレンフィルターで捕集した以降の物質収支であり、メンブレンフィルターでの未捕集分は考慮していない。また、^{226}Ｒａの影響でメンブレンフィルター通液前後の^{226}Ｒａ溶液中の^{225}Ａｃの放射能が測定できないため、分母を「分離工程（Ａ３）後のメンブレンフィルター捕集量（計算値）」として回収率を求めた。

【図面】
【図１】


226Raターゲット
(A1) 照射工程
(A2) 溶解工程
溶解液
(A3) 分離工程
226Ra含有溶液（a）
225Ac (OH)3
精製方法 (X)
(R1) 吸着工程
(R2) 溶離工程
(R3) 陰イオン交換工程
(A4) 225Ac回収工程
精製225Ac含有溶液
精製226Ra含有溶液（b）
(R4) 電着液調製工程
(R5) 電着工程
226Raターゲット
226Ra含有溶液（c）
精製方法 (Y)
(R6) 吸着工程
(R7) 溶離工程
(R8) 陰イオン交換工程
精製226Ra含有溶液（d）

フロントページの続き

(56)参考文献 特開平１１－２６２６６１（ＪＰ，Ａ）
特開２０１５－１１４３１５（ＪＰ，Ａ）
特表２０１０－５０２９６５（ＪＰ，Ａ）
特表２０１９－５０９４６７（ＪＰ，Ａ）
特表２００９－５２７７３１（ＪＰ，Ａ）
特表２００７－５０８５３１（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野 (Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｇ２１Ｇ　１／００－７／００
Ｇ２１Ｈ　１／００－７／００
Ｇ２１Ｊ　１／００－５／００
Ｇ２１Ｋ　１／００－７／００