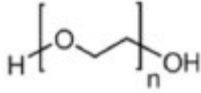


イオン交換レジン

TK202 レジン

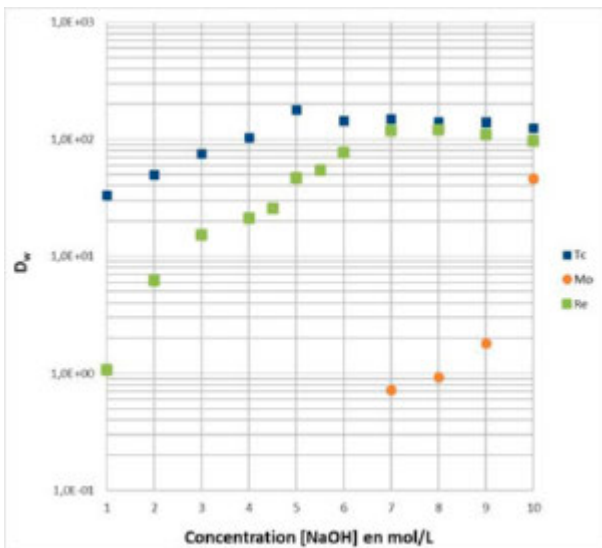
TK202 レジンは、ポリマー支持体に共有結合した高分子量のポリエチレングリコール (PEG) 基をベースにした製品です。



PolyEthyleneGlycol[PEG]

TK202 レジンは、共有結合した PEG が固相分離支持体として機能する水性二相系 (Aqueous Biphasic System: ABS) の抽出メカニズムをベースにしています。水溶液のイオン強度が高く、 SO_4^{2-} 、 CO_3^{2-} 、 OH^- および MoO_4^{2-} や WO_4^{2-} のような水構造 (コスモトロピック / kosmotropic) アニオンを多く含む条件下では、Spear 氏らによると、特に TcO_4^- や ReO_4^- といったカオトロピック (chaotropic) イオンを抽出しますが、その他の非カオトロピック (non-chaotropic) 元素は保持されません。モリブデンはその重要な例です。

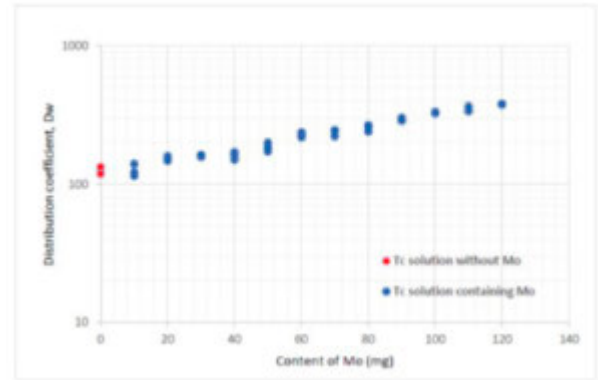
つまり、これらのアニオンの濃度の上昇とともに、Tc (および Re) の保持が向上します。次のグラフは OH 濃度を上昇させた場合の、TK202 レジンの Tc、Re、Mo の Dw 値を示しています。



水酸化ナトリウム濃度と TK202 レジンに選択された Tc、Re、Mo の Dw 値 (データ提供 : Cieszykowska 氏ら)

水酸化ナトリウム濃度は 5 ~ 7M の間が充填や洗浄で使用する際に理想的です。Tc (および Re) の保持率が最も高く、Mo の保持率は非常に低くなります。

前述のように、 MoO_4^{2-} 自体はコスモトロピックアニオンです。その濃度が上がると、TK202 レジンのような ABS システムでは、Tc (および Re) の保持率が上昇します。Mo 量の増加に伴い、Tc の保持率が明確に高くなるのがわかります。



Mo 量の増加と 5M 水酸化ナトリウムにおける Tc の Dw 値、TK202 レジン 40mg を使用 (データ提供 : Cieszykowska 氏ら)

多量の Mo (例 : 被照射 Mo ターゲット) から Tc を分離する場合に、これは特に関係します。

Cieszykowska 氏らは、TK202 レジン 1g あたり 6 ~ 8g の Mo を含むと、高い Tc 収率 (> 90%) が得られるとカラム試験から推定しました。そして、Mo の量がレジン 1g あたり 12g まで増加すると、試験での Tc 収率は 82% まで低下しました。これらの条件では、コスモトロピックアニオンの濃度が低いことで ABS システムの構造が壊れるため、保持された Tc と Re は水で溶出することができます。

被照射 Mo ターゲットからの Tc-99m 分離は、TK202 レジンにおける潜在的アプリケーションの 1 つです。Tc に対して Mo を超える高い選択性がある上、溶液中の多量の Mo が Tc の保持率を上げるため、TK202 レジンはこの種のアプリケーションに特に適していると言えます。

U-235 核分裂法を用いた Mo-99/Tc-99m ジェネレータによる Mo-99 の製造の他に、Mo-99 そして Tc-99m を製造する方法は実際のところ多数存在します。これらのうち 3 つは、Mo ターゲットの照射に基づくものです :

- ① (n, γ) 反応 (Mo-98 (n, γ) Mo-99) による Mo-98 の中性子放射化、高中性子束炉における実施が好ましい
- ② 重ターゲット (コンバータ) に電子ビームを照射して得られる光子 (γ) を利用した Mo-100 (Mo-100 (γ , n) Mo-99) の光核 (γ , n) 反応
- ③ Mo-98 ターゲット (Mo-98 (p, 2n) Tc-99m) を用いたサイクロトロンによる Tc-99m の直接製造

後者③の方法では Tc-99m の半減期が短い点で物流上の問題があり、一般的に製造施設の近くのユーザーにのみ供給が可能です。また、ターゲット物質から生成された Tc-99m を非常に迅速にきれいに分離することが求められます。

前者①②の方法で製造される Mo-99 の比放射能は、U 核分裂によって得られる Mo-99 と比べると低くなる傾向があります。従って、アルミナカラムをベースにしたジェネレータの場合、カラムへの Mo 吸着量が限定され、Mo-99/Tc-99m ジェネレータで製造される比放射能は低くなります。

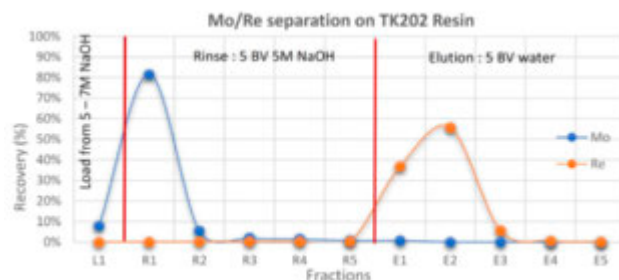
上記のような場合に TK202 のようなレジンを使用し、Mo-99 崩壊を起源とする Tc-99m を抽出して Mo を通過させる (“inverted generator”) 方式は好ましい選択肢となることがあります。

また、上記 3 つの方法すべてにおいて、濃縮された Mo の回収と再利用がターゲット物質の費用と希少性を考慮すると、非常に重要であることがわかります。多量の Mo の中で Tc に対して高い選択性を持つレジンの使用が上記の生成方法すべてで求められます。Mo ターゲットは高濃度の水酸化ナトリウム溶液に溶解してしまうことが非常に多いので、レジンはこのような条件下でこの選択性を発揮する必要があります。

これは TK202 レジンに当てはまります。前述のように、Tc は水を用いて回収できる可能性がありますが、最終生成物の pH と Na⁺ 濃度を調製するために追加の分離ステップが必要になります。

Tc の代わりに Re を用いた初期の溶出試験では、Mo よりも Re (別の試験においては Tc でも確認済み) に対して高い選択性が確認されました。

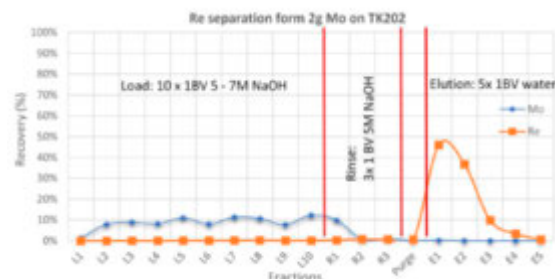
次の図は微量の Mo と Re を用いた溶出試験です。両元素がきれいに分離されているのがわかります。Mo は充填とその後の洗浄 (どちらも 5 ~ 7M 水酸化ナトリウム水溶液で実施可能) で除去され、Re は少量の水に溶出します。



溶出試験：TK202 レジン 2 mL カートリッジによる微量の Mo と Re の分離
1 BV/ 分で充填および洗浄、0.25 BV/ 分で溶出

一般的な選択性が確認できたので、より多量の Mo を用いて追加試験を実施しました。

下の溶出試験は、2g の Mo から微量の Re を分離した例です。これは通常、サイクロトロンにおける Mo-98 照射による Tc-99m 製造の際に必要なとなると Bénard 氏らは述べています。

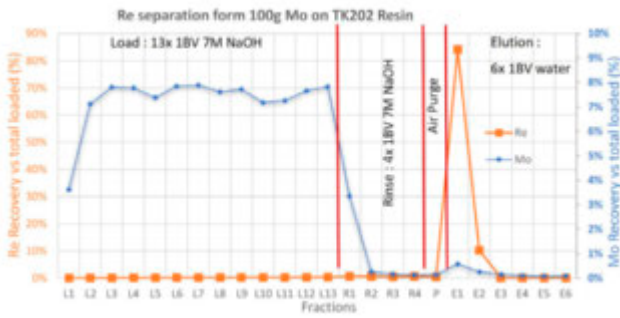


溶出試験：TK202 レジン 2 mL カートリッジによる微量の Re と 2g Mo の分離
1 BV/ 分で充填および洗浄、0.25 BV/ 分で溶出

洗浄後、水で溶出する前に、レジンエアパージしてカートリッジ/カラムから水酸化ナトリウムを除去することは、最終 Tc/Re フラクションの Na⁺ および OH⁻ の負荷を減らすために非常に重要です。

さらに、TK202 レジンの溶出時の流速が遅いと溶出ピークが狭くなり、その結果、溶出量が少なくなることがわかります。

前述のように、TK202 レジンは Mo-99 崩壊で生成されたアルカリ性溶液中に存在する Tc-99m を抽出するために使用できる可能性があります。このような場合、比較的大きな Mo ターゲットを一般的に照射します。これに関連して、100g の Mo から微量の Re を分離する試験を実施したところ、Mo と Re はきれいに分離しました。しかし、存在する Mo は非常に大量のため、得られた Tc を追加精製する必要があります。



溶出試験：TK202 レジン 75 mL カートリッジによる微量の Re と 100g Mo の分離
0.5BV/分 で充填、1BV/分 で洗浄、0.2BV/分 で溶出

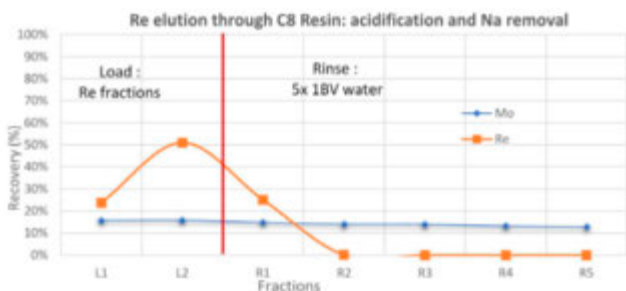
さらに多量の Mo (例：≥ 200g) から Tc を分離する方法を現在試験しています。

Bénard 氏らが示すように、この追加 Tc 精製のための便利な選択肢の 1 つとして、陽イオン交換レジン (Na⁺ の除去と pH を 7 未満に調製) の使用と、その後のアルミナカートリッジ (Re/Tc の濃縮と Mo の追加除去) の使用があります。

特に陽イオン交換カートリッジは、サンプル中に元々存在する Mo の量にあわせてカートリッジのサイズを調整するため、使用する TK202 レジンのカートリッジサイズの調整も必要です。

一方、アルミナカートリッジのサイズについては、残留する Mo の量が決定的なパラメータとなります。

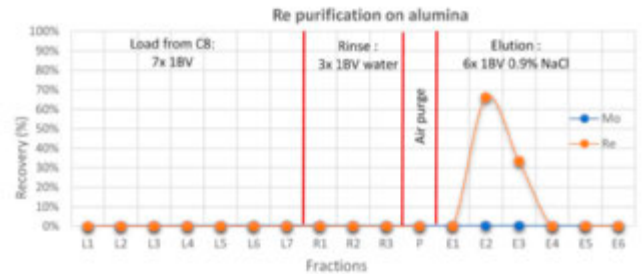
下のグラフは、前述の 2g Mo 分離試験の続きです。得られた Re フラクション (E1 ~ E4) を 1 つに集めて C8 陽イオン交換レジンカートリッジに充填し、水で洗浄しました。充填フラクションと最初の洗浄液にすべての Re (または Tc) が含まれているため、それらを回収、分析し、分離の最終ステップでまとめました。



2g Mo からの Re 分離試験の続き
C8 レジン 2 mL カートリッジで Re フラクションの Na⁺ 除去と pH 調製
2BV/分 で充填および洗浄

この段階では、Re フラクションは pH7 未満 (通常 3 ~ 5) であり、Na⁺ の陽イオンをほとんど含んでいません。これらの条件で、酸性アルミナは Re/Tc (および Mo) を保持します。0.9% の塩化ナトリウム溶液は、Re/Tc を少量 (2 ~ 3 BV) 内に溶出し、Mo は非常にしっかり保持できるため、回収した Re/Tc の純度をさらに向上させます。

なお、AlOxAl レジン (酸性アルミナ) を使用する場合は、エアパージの必要はありません。

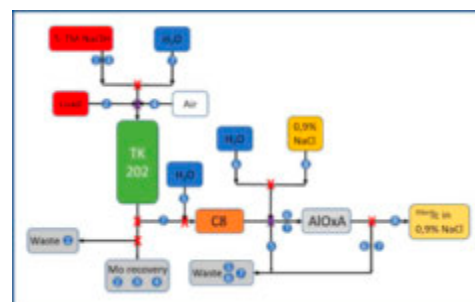


AlOxAl 1 mL レジンによる Re の濃縮、精製、0.9% の塩化ナトリウム溶液へ置き換え (2 BV/分)

これはまた、Mo-99/Tc-99m ジェネレータから供給されるものと同じマトリックス (0.9% 塩化ナトリウム) で Tc を得ることができるという利点もあります。

コールドテストでは、全体として > 90% ほどの Re 回収率を得ることができました。

推奨する分離技法の概略図は次の通りです。この技法は様々なサイズの Mo ターゲットからの Tc の分離に適用でき、それに応じてカートリッジ / カラムの容量を調整する必要があります。



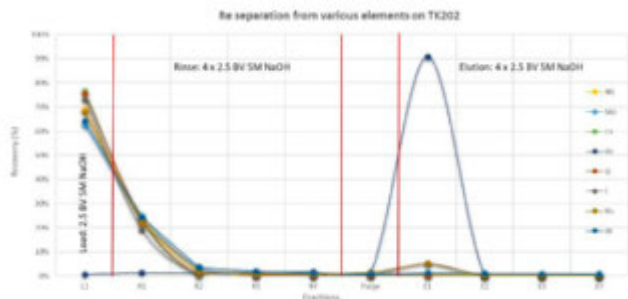
- ① Pre-cond. TK202 - 5-7M NaOH → alkaline waste
- ② Load Mo/Tc on TK202 → Mo recovery
- ③ Rinse TK202 - 5-7M NaOH → Mo recovery
- ④ Purge TK202 - Air → Mo recovery
- ⑤ Pre-cond. C8 - H₂O → Aq. waste
- ⑥ Pre-cond. AlOxAl - H₂O → Aq. waste
- ⑦ Elute Tc from TK202 on C8 then on AlOxAl - « H₂O »
- ⑧ Elute Tc from Al₂O₃ - 0.9% NaCl → Tc recovery

概略図：Mo からの Tc 分離

TrisKem 社では TK202 レジンに加えて、C8 レジンや AlOxAl レジンも取り扱っています。レジンは (Mo ターゲットのサイズに応じて) 様々なカラムおよび / またはカートリッジサイズをご用意しています。

TK202 レジンは、放射性医薬品の分野以外にも、アルカリ融解で可溶化したサンプル中の Tc-99 分析といった放射分析アプリケーションにも使用できます。可溶化したサンプル（例：廃炉作業から生じるコンクリートサンプル）は、不溶性物質を除去した後、水酸化ナトリウム溶液を 5 ~ 7 M に調製し、TK202 レジンを使用して Tc を分離することができます。

得られた Tc フラクシオンの純度を高めるために、C8 レジン、そして状況により AlOxA レジンの使用が考えられます。



TK202 レジン 2 mL カートリッジに
選択された元素からの Re 分離
1 BV/分で充填と洗浄、0.25 BV/分で溶出



主なアプリケーション

- テクネチウムの分離に…
- レニウムの分離に…