

アイソトープ事業部製造部年報

No.1

(昭和42年度)

---

1969 年 3 月

---

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

## ラジオアイソトープ事業部製造部年報

(昭和 42 年 4 月 ~ 昭和 43 年 3 月)

## 要 旨

本年報はアイソトープ事業部の製造部が昭和 42 年度中にあげた成果を総合して述べたものである。

42 年度にあげた成果のうちのおもなものは、つきのごとくである。第一に、ラジオアイソトープ製造棟における製造施設の整備はほぼ完了し、とくに I-131, P-32 については施設を完備し、量産体制に入った。その結果、施設による RI の取扱量は 4500 Ci となり、41 年度の 2.4 倍、40 年度の 18 倍に達した。この量は標準カプセルに換算して 1,229 本であり、そのうちの 60% が JRR-3 による照射（放射能の割合で 28%）、JRR-2 による照射は 37%（放射能の割合で 72%）となり、両炉が RI 生産主体炉となってきていることを示している。第二に、これらの施設を使用して生産された RI の出荷量は 41 年度の 2.7 倍の 1,735,432 mCi に達した。注目すべきことは国産化の目標の達成された Au-198, Ir 線源, S-35 のうち Au-198, Ir 線源が前年度よりはるかに大幅な出荷量の増加を示したことであり、国産化達成によって需要が伸びることを明らかにした。

第三に、上述の S-35, Au-198, Ir 線源の国産化達成、I-131, P-32 量産化達成などを主軸として、昭和 37 年 10 月に発足した、RI 製造第 1 期生産 5 ヶ年計画を予定通り完成したことであり、当初計画した 38 品目のうち C-14, Cl-36, Ni-63 など、9 品目は原子炉の稼働効率が不十分であること、需要動向が変化したことなどの理由で計画を変更せざるを得なかったが、当初計画になかった高い放射能の Br-82, K-42, Cu-64 など 10 品目の生産を達成しており、数量的には予定よりも 1 品目多く達成したこととなった。

上記の成果をさらに拡充するために、原子炉との計画調整を十分におこない、年間 47 週の安定供給目標達成への一歩をすすめるため、また JRR-3 の VC 孔を改造して ~6 Ci/g の比放射能の Co-60 大線源製造計画を開始した。

以上のほかに、台湾との共同研究の実施、Te-132, Mo-99 ジェネレータ製造技術の開発研究など基礎研究および開発研究においても相当の成果を上げることができた。

1968 年 11 月

日本原子力研究所  
アイソトープ事業部製造部

# Annual Report of Division of Radioisotope Production

(April 1967~March 1968)

## Synopsis

This annual report describes the achievements of Production Division, Radioisotope Centre during the fiscal year of 1967.

Major achievements are as follows:

First, the installation of production facilities in Radioisotope Production Laboratory was almost completed, resulting the start of the routine mass-production of I-131 and P-32. The total radioactivity handled at the laboratory reached about 4,500 Ci in the fiscal year of 1967, which was two and a half times of that in fiscal year 1966 and eighteen times of fiscal year 1965, respectively. Seventy-two per cent of radioactivity was introduced by the irradiation with JRR-2 and twenty-eight per cent came from JRR-3. This indicates that these two reactors played the main role of the irradiation work in the radioisotope production project.

Second, the amount of radioactive products shipped out from the establishment exceeded 1,735 Ci. The produced amount could meet the demands for these products, substituting Japanese makes for imported ones. It must be noted that the domestic production of Au-198 and Ir-radiation sources spurred the needs for these two products, bringing a remarkable expansion in the scale of supplies.

Third, the first five-year program of JAERI's radioisotope production started in October 1962, with the achievement of domestic and routine mass-production of S-35, Au-198, Ir-radiation source, I-131 and P-32 as the principal goal, was attained successfully in fiscal year 1967. The initially scheduled thirty-eight items, nine including C-14, Cl-36, Ni-63 had to have their start for supply delayed because of inefficient reactor operation schedule, changes in their demands and so on. However other ten items, which had not been included in the initial plan, were put in routine production. They are Br-82, K-42, Cu-64 etc. having a high specific activity. This made the total number of products one item more than that originally planned.

In order to insure the steady supply of the products achieved as above, the RI production and reactor operation plans were adjusted appropriately. Regular meetings with Reactor Operation Division were held, and both plans were coordinated.

The accomplishment of the first five-year program allowed new projects to start, the plan for developing Co-60 radiation source having a specific activity of 6 Ci/g by means of VC-hole of JRR-3 was started.

Besides those mentioned above, several achievements such as a joint research project with Tin-Hua University in Taiwan, development in Te-132 and Mo-99 generator preparation technique were made.

November, 1968

Division of Radioisotope Production  
Radioisotope Centre  
Japan Atomic Energy Research Institute

## 目 次

1. 概 説	1	5.1.5 Eu-155 製造技術の開発	29
2. 製造部の運営	3	5.1.6 (n, $\gamma$ ) 反応により製造する RI	30
3. 業務・研究・開発の計画および成果の概要	5	5.2 特殊 RI 製造技術の開発	32
3.1 42 年度製造部実行計画の大綱	5	5.2.1 高比放射能 Cr-51	32
3.2 業務・研究開発成果概要	5	5.2.2 高比放射能 Cu-64	33
3.2.1 ラジオアイソトープの製造	5	5.2.3 高比放射能 P-32	34
3.2.2 ラジオアイソトープ製造に関する技術の開発ならびに研究	6	5.2.4 その他の特殊 RI	34
3.2.3 ラジオアイソトープ製造に関する主な成果	7	5.2.5 ま と め	34
4. 業務の成果	8	5.3 有機標識化合物の製造技術の開発	34
4.1 カタログ	8	5.3.1 接触反応による標識化合物の製造技術の開発	35
4.1.1 カタログの推移	8	5.3.2 分析および放射能測定技術の開発	37
4.1.2 第4版カタログの特徴	8	5.3.3 ま と め	38
4.1.3 カタログ作成の経過	9	5.4 線源製造技術の開発	38
4.1.4 カタログの編集, 発行	10	5.4.1 大線源製造技術の開発	38
4.1.5 第5版カタログ作成準備	10	5.4.2 小線源製造技術の開発	40
4.2 照 射	10	5.5 無機標識化合物製造技術の開発	42
4.2.1 原子炉運転計画と製造部の使用計画との調整	12	5.5.1 硫酸- <sup>35</sup> S の還元法とその装置	42
4.2.2 42 年度原子炉運転と生産の関連	12	5.5.2 標識元素状イオウの計数試料の調整とイオウの揮発	43
4.2.3 生産関係事故	12	5.5.3 無機標識化合物の化学形の同定法と合成上の問題点	44
4.2.4 43 年度照射計画について	13	5.6 短寿命 F. P. 製造技術の開発	44
4.3 製 造	14	5.6.1 アルミナ法による Tc-99m の製造法	44
4.3.1 精製 RI, 基準照射物質の製造	14	5.6.2 イオン交換法による系統的分離法	46
4.3.2 特殊 RI の製造	16	5.7 RI 検定技術の開発	47
4.3.3 有機標識化合物の製造	18	5.7.1 放射能検定技術の開発	47
4.3.4 線源の製造	18	5.7.2 化学検定技術の開発	50
4.4 検査 (定常検査)	19	5.8 RI 照射技術の開発	52
4.4.1 製品の検定	19	5.8.1 JRR-2 および JRR-3 における照射技術の開発	52
4.4.2 測定器精度確認試験	20	5.8.2 JMTR による照射試験	54
4.5 出荷状況	20	5.9 RI 製造研究	54
4.5.1 精製ラジオアイソトープの出荷状況	20	5.9.1 RI 製造に有用なホットアトム効果の研究	54
4.5.2 有機標識化合物の出荷状況	24	5.9.2 RI 製造に有用な核反応の研究	55
4.5.3 線源ラジオアイソトープの出荷状況	24	5.10 そ の 他	58
4.5.4 基準照射物質の出荷状況	24	5.10.1 IAEA 提案による日中共同研究「低温照射による反跳原子の化学的行動」	58
4.6 試験依頼	24	5.10.2 第4回国際ホットアトム・シンポジウムへの貢献	60
5. 開発・研究の成果	25	5.10.3 核構造国際会議への参加	60
5.1 RI 製造技術の開発	25	5.10.4 IAEA スタディグループ・ミーティング	60
5.1.1 I-131 製造技術	25		
5.1.2 P-32 製造技術の開発	26		
5.1.3 Tc-99m 製造技術の開発	27		
5.1.4 C-14 製造技術の開発	27		

5.10.5 化学系若手研究員による原子炉利用 に関する将来計画作成作業 .....	60	6.2 安全・施設管理 .....	62
6. 施設の整備と安全・施設管理 .....	61	6.2.1 安全・施設管理体制 .....	62
6.1 施設の整備 .....	61	6.2.2 安全・施設管理の運営 .....	62
6.1.1 I-131 製造施設の整備 .....	61	6.2.3 安全・施設管理の実施状況 .....	63
6.1.2 P-32 製造施設の整備 .....	62	6.3 ま と め .....	65
6.1.3 RI 製造棟放射線事故警報装置の整 備 .....	62	付 録 .....	66
6.1.4 そ の 他 .....	62	付 図 .....	70
		付 表 .....	71

## Contents

1. Introduction .....	1	radioisotope .....	16
2. Operation of radioisotope production division .....	3	4.3.3 Production of organic labelled compound .....	18
3. Outline of programme and achievement for production, research and development .....	5	4.3.4 Production of radiation source .....	18
3.1 Fundamentals of executive programme of radioisotope production division in the fiscal year of 1967 .....	5	4.4 Quality control business .....	19
3.2 Outline of achievements in production, research and development works .....	5	4.4.1 Routine examination for radioisotope products .....	19
3.2.1 Radioisotope production .....	5	4.4.2 Routine check of instrument for products examination .....	20
3.2.2 Research and development on radioisotope production techniques .....	6	4.5 Shipping of radioisotope products .....	20
3.2.3 Main accomplishments in radioisotope production .....	7	4.5.1 Shipping of processed radioisotope .....	20
4. Achievement in radioisotope production business .....	8	4.5.2 Shipping of organic labelled compound .....	24
4.1 Catalogue of radioisotopes .....	8	4.5.3 Shipping of radiation source .....	24
4.1.1 Development in catalogue issuing .....	8	4.5.4 Shipping of irradiation unit .....	24
4.1.2 Characteristics of catalogue of 4th edition .....	8	4.6 Utility test of products .....	24
4.1.3 Progress of catalogue framing .....	9	5. Achievements in research and development .....	25
4.1.4 Editing of catalogue .....	10	5.1 Development of radioisotope production techniques .....	25
4.1.5 Preparation for catalogue of 5th edition .....	10	5.1.1 Development of iodine-131 production techniques .....	25
4.2 Irradiation business .....	10	5.1.2 Development of phosphorus-32 production techniques .....	26
4.2.1 Adjustment of reactor operation programme and radioisotope production programme .....	12	5.1.3 Development of technetium-99 m production techniques .....	27
4.2.2 Relevancy of reactor operation and radioisotope production in the fiscal year of 1967 .....	12	5.1.4 Development of carbon-14 production techniques .....	27
4.2.3 Accident in practice of radioisotope production schedule .....	12	5.1.5 Development of europium production techniques .....	29
4.2.4 Irradiation programme for the fiscal year of 1968 .....	13	5.1.6 Development of production techniques of (n, $\gamma$ ) products .....	30
4.3 Radioisotope production business .....	14	5.2 Development of production techniques for special radioisotopes .....	32
4.3.1 Production of processed radioisotope and irradiation unit .....	14	5.2.1 Production techniques for chromium-51 of high specific activity .....	32
4.3.2 Production of special		5.2.2 Production techniques for copper-64 of high specific activity .....	33
		5.2.3 Production techniques for phosphorus-32 of high specific activity .....	34

5.2.4 Others .....	34	for radioisotope production .....	52
5.2.5 Summary for section 5.2 .....	34	5.8.1 Development of irradiation techniques with JRR-2 and JRR-3 .....	52
5.3 Technical development for preparation of organic labelled compounds .....	34	5.8.2 Irradiation test with JMTR .....	54
5.3.1 Preparation technique for labelled compounds by catalytic reaction .....	35	5.9 Research for radioisotope production .....	54
5.3.2 Technical development for radio- and chemical-assay of organic labelled compounds .....	37	5.9.1 Studies on hot-atom effect usable for radioisotope production .....	54
5.3.3 Summary for section 5.3 .....	38	5.9.2 Studies on nuclear reactions usable for radioisotope production .....	55
5.4 Technical Development for production of radiation source .....	38	5.10 Miscellaneous .....	58
5.4.1 Development on production techniques of multicurie radiation source .....	38	5.10.1 Chemical behavior of recoil atom produced by low temperature irradiation —International Collaboration with Tsin Hua University (Republic of China) .....	58
5.4.2 Development on production techniques of special radiation source .....	40	5.10.2 Contribution to 4th international hot-atom symposium .....	60
5.5 Technical development for preparation of inorganic labelled compounds .....	42	5.10.3 Participation in international conference on nuclear structure .....	60
5.5.1 Method and apparatus of reduction of S-35 labelled sulfuric acid .....	42	5.10.4 IAEA study group meeting .....	60
5.5.2 Preparation of counting samples of S-35 labelled elementary sulfur and volatilization of sulfur .....	43	5.10.5 Participation in working group for framing the future utilization plan of research reactor in chemical problem .....	60
5.5.3 Identification of chemical form of inorganic labelled compounds and problems on their synthesis .....	44	6. Management of production facilities and safety control .....	61
5.6 Development on production techniques of short-lived radioisotopes from fission products .....	44	6.1 Adjustment of production facilities .....	61
5.6.1 Production techniques of technecium-99m by means of alumina column technique .....	44	6.1.1 Adjustment of iodine-131 production facility .....	61
5.6.2 Systematic separation of fission products by ion exchange method .....	46	6.1.2 Adjustment of phosphorus-32 production facility .....	62
5.7 Development on examination techniques for radioisotope products .....	47	6.1.3 Adjustment of radiation incident alarm system in radioisotope production lab. ....	62
5.7.1 Development of radio-assay technique .....	47	6.1.4 Others .....	62
5.7.2 Development of chemical-assay technique .....	50	6.2 Safety and facilities control .....	62
5.8 Development on irradiation techniques		6.2.1 Organization .....	62
		6.2.2 Operation of safety and facilities control system .....	62
		6.2.3 Progress of safety and facility control .....	63
		6.3 Summary for chapter 6 .....	65
		Appendix .....	66
		Supplement of figures .....	70
		Supplement of tables .....	71

## ま え が き

本年報は、日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部の昭和 42 年度の活動を記録し、かつ公開することを目的として編集された。

昭和 42 年度は、製造部が実施してきたラジオアイソトープ製造第 1 期 5 ヶ年計画の最終年度に当り、本文中にも触れているように、当初の大目標であった、製造施設の完成、短寿命ラジオアイソトープならびに大需要ラジオアイソトープの国産化、一部特殊ラジオアイソトー

プの生産などを達成した年度でもある。

製造部としては、年報の形式でその活動を公表するのは本年報が最初であるので、本文中では可能な限り過去 5 ヶ年の活動についても触れながら、42 年度中の活動を記述してゆくようにつとめた。

最初の企てであるため、編集その他に不十分な点が多々あると考えるが、大方の御叱声をまっけて、よりよいものに仕上げてゆきたいと考えている。



## 1. 概 説

はじめて JRR-1 で照射し、ラジオアイソトープの製造開発を開始した時を、印象深く昨日のように思い出すが、それからはや 10 年の星霜を閲した。

ラジオアイソトープの製造開発ならびに初期の生産に非常に役立ってくれた JRR-1 はすでに使命を完了し、生産に使用することはなくなった。しかしこれによって培われたラジオアイソトープ（以下 RI と略す）の製造は徐々にではあるが、大型研究炉の運転稼働の進歩を確実に追跡しつつ発展してきている。

この間、もっともうれしかったことは、41 年度から JRR-3 による RI 生産が可能となったことである。RI の大量生産を目的とした国産 1 号炉 JRR-3 により、RI の全国産化を実現することは、われわれ RI 製造グループが松濤さざめく東海村に居を占めたときから夢寐にも忘れなかったことであった。

ここに 41 年度までに築かれた製造の体制について振り返ってみよう。TABLE 1.1 にその概略を示した。昭和 33 年 4 月 JRR-1 の共同利用がおこなわれると同時に、RI を生産するための準備としての開発研究と製品を検査するための準備とが開始された。この時の人員は 11 名であった。昭和 35 年 5 月に RI 製造工場準備室が RI 製造研究室より分離新設された時は両室の人員をあわせて 25 名になり、現在の技術、製造、施設の設計、生産事務の基幹要員はすでにほとんどそろっていた。試験製造を開始し、RI 試験製造工場を建設したのはこの時期である。

この試験製造によって作られた製品は使用者に試験依

頼がおこなわれ、その報告の結果をまわって、昭和 37 年 6 月 RI 販売の許可をうけ頒布を開始した。この時期には放射線応用部に 3 つの研究室が所属しており、そのうち RI の生産に関係のある上記 2 室が一体となって生産体制を確立するため班編成をおこなった。この編成は現在の係の前身をなすもので、とくに技術班は両室より人員を出しあって編成した。またこの時に第 1 回運営会議が開かれた。

試験製造が開始された昭和 35 年には運転開始の近い JRR-2、建設中の JRR-3、および計画立案中の JMTR までを含めた原子炉による生産、さらには燃料再処理プラントによる RI の生産までをも考慮した「RI 生産に関する基本計画」が当時の木村健二郎理事の下に策定された。この基本計画にそってこれを実現するため、生産頒布を開始した昭和 37 年の 10 月より生産第 1 期 5 ヶ年間を設定した。これは近い将来運転稼働を予定されている JRR-2、および RI 生産炉である JRR-3 によって精製 RI の国産化をはかる計画であった。

昭和 42 年はその 5 ヶ年計画の最終年にあたり、先に運転を開始した JRR-2、JRR-3 によって国産化を実現させる時であった。

この 42 年度の記録は 5 ヶ年計画の成果、さらにさかのぼって創立以来の 10 年間に結集した努力の賜であると同時に、日本の RI の国産化にとって記念すべき年の貴重な記録であると信じている。



## 2. 製造部の運営

昭和42年度はアイソトープ事業部5ヵ年計画の第2年目であり、同時に生産第1期5ヵ年計画の最終年にあたっている。このため P-32 セルの残工事を仕上げ、ラジオアイソトープ製造棟の内装工事を完了し、今までにおこなってきた研究開発の成果を製品化してカタログの大幅な増補をおこない、生産することが必要であった。

製造部の組織はこれを実施するため強化された。新たに次長の席を設け、製造技術課検査係を昇格して検査課を新設し、これに放射能検査係と化学検査係をおき、また同課研究係より特殊アイソトープ係を分離独立して設けた。

42年度の組織および分掌を TABLE 2.1 に示した。この組織は運営会議、部内会議と課内会議によって審議され運営された。運営会議は課長（代理）以上および生産事務係長によって構成される部の決定機関である。これは昭和 37 年初めて生産頒布をおこなった時より始められたもので、第 208 回より第 249 回にいたる 42 回の会議が年度内におこなわれた。部内会議は係長以上および委

員よりなる会議で、各課にわたる共通事項について月1回の討議がなされた。

残工事を完成して施設全体の運転を可能にするためには施設管理と安全管理とは特に重要な事柄であった。このため前年度に引き続き担当課長を任命するとともに、新たに衛生管理担当を設け強化した。施設を本格的に運転し RI を生産することは原子炉の協力なくしてはできない。このため、原子炉との関係をより密にし、画期的に前進させることが必要であり、照射担当の任務は重大であった。前年度に引き続き研究炉管理部と月1回の定例打合せ会をおこない、さらに企画室の主催により材料試験炉部との月1回の定例打合せ会が12月より開催された。その他の担当課長ならびに委員制度は前年と同様に運営された。その担当者一覧を TABLE 2.2 に示した。

10月1日における人員配置は TABLE 2.3 に、研究嘱託の一覧は TABLE 2.4 に示した。また各級別の配置は TABLE 2.5 に示すごとくであった。42年度の人員の移動は TABLE 2.6 に示した。年度末人員は54名であった。

TABLE 2.1 製造部の組織および分掌一覧

(ライン)			
製造部	製造課	— 製造 第1係	①精製 RI, 基準照射物質の製造に関すること。 ②精製 RI 製品の配分および貯蔵に関すること。
		— 製造 第2係	① } 同上 ② }
		— 製造 第3係	RI 製造施設の開発整備に関すること。
		— 製造 第4係	有機標識化合物の製造法の開発および製造に関すること。
		— 製造 第5係	線源 RI の製造技術の開発および製造に関すること。
	製造技術課	— 技術 第1係	①精製 RI, 基準照射物質の製造技術の開発に関すること。 ②核分裂生成物からの RI 製造技術の開発に関すること。
		— 技術 第2係	精製 RI, 基準照射物質の製造技術の開発に関すること。
		— 研究係	RI の製造研究に関すること。
		— 特殊アイソトープ係	特殊 RI の製造技術の開発および製造に関すること。
	検査課	— 放射能検定係	RI の放射能検定および検定技術の開発に関すること。
— 化学検定係		RI の化学検定および検定技術の開発に関すること。	
	— 生産事務係	①製造部の運営事務に関すること。 ②RI 生産照射の事務に関すること。 ③外部との折衝の事務に関すること。	
(スタッフ)			
.....	運営会議	製造部の業務計画, 運営方針について審議し, 部長に答申する。	
.....	部内会議	製造部内において特に意思統一, 周知をはかる必要のある事項について, 審議および報告する。	
.....	委員	— 図書委員	製造部の図書に関すること。
		— 厚生委員	製造部の厚生に関すること。
		— 共通器材委員	製造部の器材室の運営に関すること。
		— 教育委員	製造部の教育訓練の方針の立案に関すること。

(註) ラインの会議についてはここには記載していない。  
ただし、各課長は月2回程度係長会議を主催するものとする。

本年度も職員の技術の養成に大きな努力をはらった。所外には、名古屋大学渡辺教授のもとに研究生（半年間）、理化学研究所有機微量分析技術習得（2週間）に1名ずつ派遣し、所内では RI 研修所基礎課程3名、放射

化分析コースに2名を派遣した。また新入職員の訓練のほかに、放射線取扱主任者資格取得のため教育委員のもとで講習会を開き、5名の第1種取扱主任資格者を得た。

TABLE 2.2 42年度担当課長ならびに委員一覧表 (担当課長)

区分	担当課長	補助者
安全・施設管理	望月	ホット区域 井口 セミホット区域 田中 コールド区域
安全・衛生管理	鈴木	工事区域 立川 研究棟 吉原, 保泉
照射	天野	伊藤, 中村
技術資料	天野	吉原
(スタッフ) 委員		
区分	代表委員	委員
図書	馬場	久保田
厚生	守屋	田沼, 松岡
共通器材	四方	本石
教育	海老原	山林, 石川

TABLE 2.5 各級別人員一覧

所属		級							計
		7	6	5	4	3	2	1	
製造課	部次長	2							2
	製造 1		1		1	1	2	2	7
	" 2			1		1	2	3	7
	" 3			1	1		1		3
	" 4			2		1			3
	" 5						1	1	2
生産事務計		2	1	5	3	4	7	7	29
製造技術課	課長	1							1
	研究 1		1	1	1	1			4
	技術 1			1		2	1		4
	2		1			1	1	1	4
	特殊アイソトープ計			2			1	1	4
計		1	2	4	1	4	3	2	17
検査課	放射能検定				1		2	1	4
	化学検定		1			1	1	1	4
	計	1		1	1	3	2	8	

TABLE 2.3 人員配置表 (42.10.1 現在)

製造部	人員数	部長	次長
製造部	54 (常臨1)	柴田	望月
製造課	28 (常臨1)	課長 (兼) 望月	課長代理 伊藤
製造第1係	7	係長 (兼) 伊藤, 山本, 山林, 小野間, 小林, 岡根, 本石	
製造第2係	7	係長 井口, 新井, 出雲, 山口, 佐藤, 本木, 赤石	
製造第3係	3	係長 立川, 小野寺, 青山	
製造第4係	3	係長 保泉, 守屋, 茂木	
製造第5係	2	係長 (兼) 立川, (兼) 小野寺, 加藤, 武藤	
生産事務係	5 (常臨1)	係長 成井, 沼田, 田沼, 高田, 島根, 照沼 (常臨)	
製造技術課	17	課長 天野, (兼) 夏目 (放化第2研究室)	
研究係	4	係長 吉原, 馬場 (宏), 馬場, 工藤, 楊 (台湾清華大 招へい 研究員)	
技術第1係	4	係長 中村, 久保田, 高橋, 館盛	
技術第2係	4	係長 四方, 畑, 棚瀬, 加瀬	
特殊アイソトープ係	4	係長 田中, 海老原, 黒沢	
検査課	8	課長代理 鈴木	
放射能検査係	4	係長 (兼) 田中, 源河, 石川, 竹内, 松岡	
化学検査係	4	係長 (兼) 鈴木, 大久保, 照沼, 上沖	

TABLE 2.4 研究嘱託一覧

氏名	所属	委嘱テーマ
後藤秀弘	東北大学 金属材料研究所教授	RI の化学検定技術の開発 (723-1-2)
斎藤信房	東京大学 理学部教授	ホットアトム効果の研究 (722-1-1) 核反応の研究 (722-1-2)
音在清輝	大阪大学 理学部教授	核反応の研究 (722-1-1) FP よりの RI 製造法の開発 (722-6)
塩川孝信	東北大学 理学部教授	ホットアトム効果の研究 (722-1-1) 特殊 RI 製造技術の開発 (722-2)
渡辺 鏗	名古屋大学 工学部教授	RI の放射能検定技術の開発 (723-1-1)

TABLE 2.6 人員移動表

事項	氏名	年月日	所属	備考
採用	武藤 利雄	42. 4. 1付	製造第5係	42. 7. 1 配属
	工藤 博司	"	研究係	"
	棚瀬 正和	"	技術第2係	"
移動	島根恵美子	42. 5. 1付	生産事務係	42. 5. 6 配属
	椎名 勝子	42. 5. 1付	動力炉開発部	旧生産事務係
	海老原 寛	42. 7. 17付	特殊アイソトープ係	旧研究係
	加藤 岑生	"	"	"
退職	正木 典夫	42. 10. 1付	燃料開発部	旧技術第2係
	照沼 勝市	43. 3. 31付	—	常用臨時員

### 3. 業務・研究・開発の計画および成果の概要

#### 3.1 42年度製造部実行計画の大綱

昭和42年度は、アイソトープ事業部5ヵ年計画の第2年目、ラジオアイソトープ製造第1期5ヵ年計画の最終年にあたった。

したがって、前年度より引続いたP-32製造セルの建設を第1四半期内(5月末)に終了し、製造棟の内装を完了し、すみやかに整備をおこなうとともに、全面稼動をはかることを最重点目標とした。

第1期計画の目標である精製アイソトープについては、同計画の仕上げとして下記の各項が策定された。

(1) Au-198の全国産化をおこなう。(2)新設のセルによるI-131、P-32の量産化につとめ、43年1月に国産切替化を目標とする。(3)その他の精製アイソトープについては研究炉の効率稼動化に即応し、国際的品質レベルに達しうるすべてのアイソトープのサービス化をはかる。(4)日本独自の製造技術による特殊アイソトープのサービスの充実化をはかるため、特殊アイソトープ係を新設し、サービス種目を拡大する。(5)以上のサービスを円滑かつ適正におこなうため、検査部門を独立させ、検査課を新設する。

上記のほかに、第2期計画で開始された諸計画については(1)線源アイソトープは前年に引き続きCo-60小線源のほかに、新たにIr-192の頒布を開始する。また高崎研、炉管理部と共同し、JRR-3による放射線化学用大線源の製造計画に着手すること、(2)有機標識化合物については、前年までに開発した4種目のC-14標識基幹体の生産をおこなうこと、(3)FPアイソトープについては、ウランを照射し、短寿命FPの製造開発をおこなうこと、(4)無機標識化合物については、S-35標識化合物の製造開発を開始すること、が定められた。

#### 3.2 業務・研究開発成果概要

製造部の運営ならびに多年にわたる技術、技能の習得による充実の結果、42年度は非常に多くの成果をあげることができた。その成果の概要を次に述べる。

##### 3.2.1 ラジオアイソトープの製造

##### (a) 製造施設の完成とその運転

P-32製造セルを第1四半期完成後、ただちにホット区域全面を放射線管理区域にした。空気送排量の調整、安全警報系統の整備など安全性に関する点検と作業要領の整備をしつつ、放射能取扱量の増大にそなえ、年間4,500Ciの取扱いに成功することができた。これによって本施設設計当初の目的を達成したことを確認した。

##### (b) ラジオアイソトープの製造および検査

##### (1) 精製ラジオアイソトープの製造

大需要核種では、 $^{131}\text{I}$ は施設を整備後1Ci/バッチ以下で5回ホットランをおこない8Ci/バッチに達した。使用施設等運転委員会の審査に合格し、第3四半期に量産の体制確立に成功した。第4四半期には4回本格生産をおこない、年間17バッチ、35,000mCiを生産した。 $^{32}\text{P}$ は旧試験装置により約1Ci/バッチの生産をおこなうとともに、新装置の整備、コールドラン、ホットのレベルアップを6回実施し、第3四半期に量産体制の確立に成功した。年間17バッチ、23,200mCiの生産をおこなった。 $^{35}\text{S}$ は年間9バッチ、5,290mCiを生産し、国内全需要をみたした。 $^{198}\text{Au}$ は年間33バッチ、279,000mCiを生産し、国内全需要をみたした。この量は国産化によって需要が上昇していることを示している。

短寿命核種では $^{24}\text{Na}$ 、 $^{42}\text{K}$ 、 $^{64}\text{Cu}$ については毎週見込生産、その他は注文生産をおこなった。また比放射能が従来の製品より1桁高い $^{42}\text{K}$ をカタログ化した。総計年間116バッチ、15,800mCiの生産をおこなった。

中寿命核種では新たに $^{45}\text{Ca}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 $^{204}\text{Tl}$ をカタログに追加し、これらの核種について総計年間6バッチ、454mCiを生産した。

##### (2) 基準照射物質の製造

注文に応じて、年間18バッチ、32単位の生産をおこなった。

##### (3) 特殊ラジオアイソトープの製造

新たに高比放射能 $^{51}\text{Cr}$ および $^{33}\text{P}$ を含まない $^{32}\text{P}$ をカタログに追加した。これらホットアトム効果を利用する高比放射能 $^{32}\text{P}$ 、 $^{51}\text{Cr}$ 、および $^{64}\text{Cu}$ について定常的な試験製造および製造をおこなった。製造量は総計年間14バッチ、1,930mCiである。高比放射能 $^{64}\text{Cu}$ は外部に試験を依頼し、きわめて良好な結果をえた。 $^{132}\text{Cs}$ は注文がなく生産をおこなわなかった。

##### (4) 有機標識化合物の製造

シアン化カリウム- $^{14}\text{C}$ 、メタノール- $^{14}\text{C}$ 、酢酸ソーダ- $^{14}\text{C}$ のカタログを発行するとともに、それぞれ45mCi、80mCi、50mCiの生産をおこなった。

## (5) 特殊線源ラジオアイソトープの製造

$^{60}\text{Co}$  針状線源 (1, 5, 10, 20 mCi/本),  $^{192}\text{Ir}$  線源 (10 Ci/個) のカタログを発行し生産をおこなった。 $^{60}\text{Co}$  針状線源については 1 mCi/本の線源を 750 本, 10 mCi/本を 58 本, 20 mCi/本を 211 本生産した。 $^{192}\text{Ir}$  線源については 174 個生産し, 74 個の照射をおこなっている。 $^{60}\text{Co}$  針状線源は JRR-3 の VR 孔照射より VG 孔の照射に切替えた。

## (6) 製品の検査

精製ラジオアイソトープ (特殊アイソトープを含む) については頒布製品 20 核種, 試験製品 5 核種の 219 件について検定項目数 864 の検定をおこなった。

有機標識化合物については頒布製品 3 種について 3 件の検定をおこなった。

特殊線源ラジオアイソトープについては,  $^{192}\text{Ir}$  線源,  $^{60}\text{Co}$  針状線源について検定をおこなった。

以上検定を実施した製品はすべて製品規格に合格していることを確認した。

## (c) 出荷および試験依頼

## (1) 出荷

出荷量は 1,735,465 mCi, 基準照射物質 32 単位で前年度実績の 2.7 倍に達した。

Au-198, Ir 線源は S-35 とともに国産化の目的を達した。Au-198, Ir 線源の出荷量は前年度にくらべ前者は 7.7 倍, 後者は 2.5 倍におよんだ。一方, 短寿命 RI は前年度の半量にとどまった。

## (2) 試験依頼

本年度の試験依頼は特殊ラジオアイソトープ, 高比放射能 Cu-64 について 8 件 89 mCi であった。

試験結果は良好で 43 年 6 月に製品化する予定である。

## 3.2.2 ラジオアイソトープ製造に関する技術の開発ならびに研究

## (a) 精製ラジオアイソトープの製造技術の開発

第 1 期 5 年計画にもとづく技術開発をほぼ予定通り終了した。主な点は, JRR-3 による照射技術の完了, JRR-2 インコア照射技術の完了, 水銀の長期照射方式の確立, JRR-3 気送管中の温度測定などである。また  $^{75}\text{Se}$  の製造技術の開発を完了し,  $^{82}\text{Br}$  については, ターゲットを  $\text{NH}_4\text{Br}$  から  $\text{KBr}$  に変更し, 製品の品質を大幅に改善した。

$^{14}\text{C}$  の製造開発では窒化アルミニウムの燃焼条件の検討,  $^{131}\text{I}$  の乾留法による製造開発では小型装置の作動試験を完了した。しかし第 2 四半期に窒化アルミニウム封入キャプセルが JRR-2 ケーブ内で破損したため, 圧着型キャプセルの試験に全力を集中して各種試験をおこなった。その結果キャプセルならびに照射物質の分解が破損の直接の原因ではないとの結論に達した。

短寿命核分裂生成物のうちからとくに  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{132}\text{Te}$  を

効率よく取り出し, ミルキングカウを作るための技術開発について化学的分離法の骨子を定め, ケーブ内での操作法の検討を開始した。

$^{35}\text{S}$  の硫化水素, 硫化ナトリウム, 元素状イオウなどの製造法を確立し, 製品保存方式の検討をおこなった。

## (b) 特殊アイソトープの製造技術の開発

高比放射能  $^{51}\text{Cr}$  は JRR-3 による試験製造をおこない, 10 月より製造サービスを開始した。しかし照射時間の変化による影響に今後検討すべき点を残している。また JRR-2 による軽水浸漬照射試験を開始した。高比放射能  $^{64}\text{Cu}$  は短半減期のため, 製造操作の効率化を目標として, 製造装置の改良に多くの時間を費し, 装置を組立て, これによる試験製造を実施した。試験製品の一部は医学界に出荷し好評を得た。これらのほか, 高比放射能  $^{32}\text{P}$ , 放射化学第 2 研究室による高純度  $^{155}\text{Eu}$  などの開発ならびに試験製造をおこなった。

## (c) 有機標識化合物の製造技術の開発

炭酸ガスより常圧気相接触反応によるベンゼン- $^{14}\text{C}$  の合成法を開発し, 完了した。アセチレンより高压接触反応によるベンゼンの合成については, アセチレンの合成のコールドランを終了し, ホットランに入った。

## (d) 特殊線源ラジオアイソトープの製造技術の開発

JRR-3 による Co-60 大線源の国産化計画を研究炉管理部, 高崎研究所と協力して策定し, アルミニウムクラッドターゲットを発注し, 準備実験を開始した。これは JRR-3 の VC 孔 2 本を改造し, 約 6 Ci/g の線源を年間 20kCi 生産する計画である。

## (e) ラジオアイソトープ検定技術の開発

前年度試作した  $4\pi\text{X}$  計数器は  $^{55}\text{Fe}$  によってその有用性を実証し, その使用にあたって重要な因子となる試料の調製法について検討をおこない, その技術の確立をはかった。

また高比放射能  $^{64}\text{Cu}$ ,  $^{32}\text{P}$  製品の測定法の検討もおこなった。

新規カタログに掲載される中長寿命核種など ( $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{185}\text{W}$ ,  $^{204}\text{Tl}$  など) の新製品の検査法の確立をはかった。以上のほか, とくに高比放射能製品などについて主元素量の定量など感度の高い分析法の確立, ホット用発光分光装置の使用法の確立など多くの進歩があった。

## (f) ラジオアイソトープ製造研究

ラジオアイソトープ製造に有用なホットアトム効果の研究; Zn などのフタロシアニン系醋塩のホットアトム効果について研究し, とくに結晶形の影響を Cu の場合と比較検討した。また, 台湾清華大学とクロム酸マグネシウムなどのホットアトム効果について共同研究をおこない, これによる成果ならびに前者の成果を第 4 回国際ホ

ットアトムシンポジウムに報告した。

ラジオアイソトープ製造に有用な核反応の研究；核分裂反応の研究については今までのデータについてとくに測定法を改良し、核分裂収率の絶対値を求めるための検討をおこなっている。中性子スペクトルの解析技術の開発では、Cu, Rb, Cs, La による準熱中性子領域、(n, 2n)<sup>22</sup>Na, <sup>54</sup>Fe (n, 2n) <sup>54</sup>Mn による速中性子領域の測定をおこない、スペクトルの微細化の測定を検討した。

#### (g) 大線源製造開発計画と JMTR による照射計画の推移

前年度秋より当部、研究炉管理部、高崎研究所と大線源の製造開発に関して意見の交換をおこなった。JMTR その他の高出力原子炉による大線源の生産可能な時期が間近になってきたこと、日本における大線源の需要は非常に高く、そのすべてを国外より輸入しているが、輸入された各国の線源の規格はいたずらに種類が多く、減衰後の処置に困ることなど多くの問題点があり、できるだけ早期に国産化の計画に着手する必要があることが確認された。なお技術的見地、原子炉の有効利用などの見地より、JRR-3 による約 6 Ci/g 程度の比放射能の <sup>60</sup>Co の生産から開始することが妥当であるとの結論に達した。

材料試験炉部よりの要請によって、JMTR によるラジオアイソトープの生産を試用期間中早期に実現するように推進することとなった。次年度の JRR-2 下半期停止時における JMTR での生産について検討を開始した。

#### (h) 台湾との共同研究そのほかの国際交流

国際原子力機関による台湾との共同研究は燃料開発部の協力でおこなわれた。短期間ながら、10月京都で開催された国際ホットアトム化学シンポジウムに、この共同研究の成果を発表しうるに至った。また、同シンポジウムならびにこれに引続き東海研究所で開催された国際原子力機関主催の研究炉利用専門家会議に参加し、さらに出席各国専門家を招いてラジオアイソトープの製造に関して意見の交換をおこなった。

また国際原子力機関給費研究員であるスリ・ハルトノ氏(インドネシア)、楊末雄氏(中国)を受け入れ、それぞれラジオアイソトープ製造および製造技術の開発研究を指導した。

### 3.2.3 ラジオアイソトープ製造に関する主な成果

(1) 第1期生産5ヵ年計画を予定通り完成した。

第1期5ヵ年計画は昭和37年10月ラジオアイソトープ生産原子炉 JRR-3 による精製アイソトープの国産のために策定した計画である。このためラジオアイソトープ製造棟を昭和39年完成し、その後3ヵ年計画をもって、その内装設備を完成し、本年度その運転稼動につとめこれに成功した。42年10月第4版カタログを発行した。大需要ラジオアイソトープ4品目、短寿命ラジオアイソトープ12品目、中長寿命ラジオアイソトープ8品目、特殊ラジオアイソトープ3品目、有機標識化合物3品目、特殊線源5品目、基準照射物質32品目を含んでいる。さらに43年度初め4品目を増補して本格的カタログを発行し、原子炉の照射技術の開発をまってさらに3品目を追加する予定となっている。計画中 <sup>14</sup>C, <sup>55</sup>Fe, <sup>63</sup>Ni, <sup>36</sup>Cl は原子炉の効率の高い稼動をまつため JMTR などへ変更、また、需要量の変動によるカタログ化の延期など10品目の予定変更がおこなわれたが、12品目の計画外の需要者の要望による新製品が増補され、計画品目予定数以上の製品の供給が可能となった。

(2) 出荷量は1,735,465 mCi、基準照射物質32単位で昨年度の2.7倍に達した。

<sup>198</sup>Au, Ir 線源は <sup>35</sup>S とともに国産化の目的を達した。<sup>198</sup>Au, Ir 線源の出荷量は前年度に比し、前者は7.7倍、後者は2.5倍におよんだ。一方、短寿命ラジオアイソトープは前年の半量にとどまった。

(3) 施設の整備はほぼ完了し、とくに <sup>131</sup>I, <sup>32</sup>P の施設を完備し、第3四半期に量産体制に入った。放射能取扱量は4,500 Ci におよび昨年度の2.4倍、一昨年度の18倍であった。

本年度の取扱量は標準カプセル相当1,229本(うちJRR-1 3%, JRR-2 37%, JRR-3 60%), 放射能4,509 Ci (うちJRR-1 微量, JRR-2 72%, JRR-3 28%) であり、施設での安全性は確保された。なお、41年度の取扱量は1,750 Ci でその2.6倍である。

(4) JRR-3 による大線源製造計画を策定し着手した。

この計画は、JRR-3 の VC 孔2本を改造し、約6 Ci/g の比放射能の <sup>60</sup>Co の大線源を製造するもので、研究炉管理部、高崎研究所の協力のもとに進められた。本年度はターゲットの発注を終った。

## 4. 業務の成果

### 4.1 カタログ

42年度は製造部生産第1期5ヵ年計画の最終年度にあたる。第4版カタログは、その成果をまとめて発行されたものである。このカタログには従来頒布されていた精製ラジオアイソトープ、基準照射物質のほか、有機標識化合物、線源ラジオアイソトープが加わり、構成は精製ラジオアイソトープ 27 製品、有機標識化合物 3 製品、線源ラジオアイソトープ 5 製品、基準照射物質 32 製品となっており、41年度の製品数（精製ラジオアイソトープ 19 製品、基準照射物質 32 製品）にくらべて、16 製品増加している。

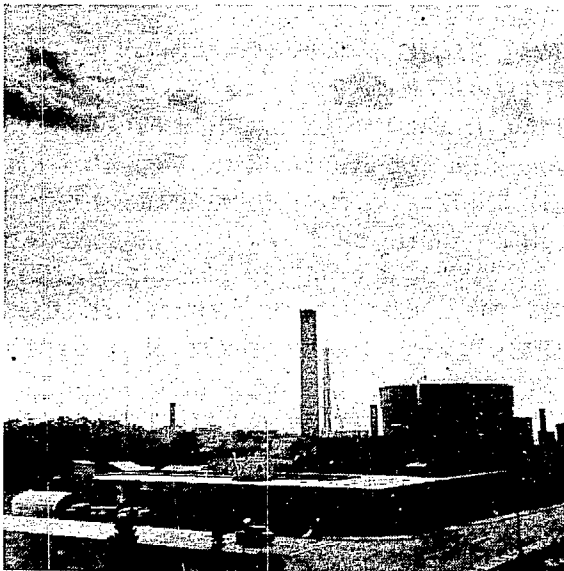


Photo 4.1 ラジオアイソトープ製造棟

建家は昭和 39 年 2 月に竣工したが、その後製造施設の内装をおこない、41年度でほぼ完了した。これらの施設によって製造部生産第1期5ヵ年計画（37 年 10 月～42 年 9 月）を完了し、精製ラジオアイソトープの国産化の体制を確立することに成功した。

とくに精製ラジオアイソトープの仕様内容は先進諸国のそれと同等のものであり、さらにわが国独自の製造法による「P-33 を全く含まない P-32」「高比放射能 Cr-51」などすぐれた製品が含まれている。

製造部生産第1期5ヵ年計画の掉尾をかざるにふさわしい内容のものであり、国産ラジオアイソトープ発展史上に特記すべき事項である。

#### 4.1.1 カタログの推移

カタログに掲載されたラジオアイソトープ製品数の推移を TABLE 4.1 に、また第1期5ヵ年計画と実行の対比を TABLE 4.2 に示した。計画残の核種は需要者からの要求があまりないものと、原子炉の稼動条件の向上をはからなければ需要者ののぞむような仕様にならないものである。

当初の計画にはなかったが需要者の要望によりとくに製造開発をすすめる製品としたものを含めて、当初の計画に比して実行（43年 6 月製品化分を含む）は核種数では -9、製品数で +1 の 30 核種 41 製品となっている。（詳細は「精製ラジオアイソトープ国産化報告——生産第1期5ヵ年計画実行報告」を参照されたい。）

当初の計画にくらべて増減はあるが、日進月歩のラジオアイソトープ界においてはまず需要に適應して製品を出すことが第一義と考えるべきであり、その意味から大いに評価されて然るべきであろう。以下参考までに、37 年カタログ発行以来の推移について簡単に述べる。

39年度前半までは JRR-1 の照射による製品であった。39 年 10 月から JRR-2（5 MW）による製品となったので、品質は JRR-1 のそれにくらべてはるかに向上した。また、40 年はじめより JRR-2 の 8～10 MW 運転が開始されたことにより、さらに品質は向上した。

40 年度はじめより JRR-2 の照射条件を最大限に活用し、国際的に比肩しうるカタログ編集がおこなわれ成案を得た。しかし、40 年 7 月から 12 月の期間 JRR-2 が不時の事故により運転休止したため、この資料は同年 9 月に原研で開催された IAEA 総会に発表されたにとどまり、これによる製品は頒布されなかった。しかし、JRR-2 の運転休止により JRR-3 の利用を促進し、JRR-2 復旧後は JRR-2 および JRR-3 を併用して生産がつづけられることになり、両炉の製品仕様を共通にするための努力がはらわれた。41 年はじめ業務通信により発表されたカタログにはその成果が十分現われている。

なお、第3版カタログ発行以降は製品数が短期間に増加するため、その都度業務通信により紹介する方式をとり、本格カタログは第1期5ヵ年計画の成果をまとめて発行することとなった。

#### 4.1.2 第4版カタログの特徴

42 年 6 月より 10 月発行を目途に第4版カタログの作成を開始した。内容は、精製ラジオアイソトープ、基準



TABLE 4.1 カタログ製品の推移 (記入されている核種は新製品のみ)

年度・事項	区分	精製ラジオアイソトープ				有機標識化合物	線源ラジオアイソトープ	基準照射物質
		大需要	短寿命	中長寿命	特殊			
1962 (昭37)	6月15日 カタログ第1版 JRR-1 製品	P-32 Au-198	Na-24, K-42 Cu-64, Br-82					21項目
1963 (昭38)	11月1日 カタログ第2版 JRR-1 製品 *LINAC 製品		Mn-56, Ga-72 As-76, Y-90 La-140, Sm-153 Lu-177		*Cs-132			1項目
1964 (昭39)	10月1日 カタログ第3版 JRR-2(5MW)製品に切換	S-35						10項目
	3月 業務通信 No. 10 JRR-2(10MW)製品に切換							
1965 (昭40)								
1966 (昭41)	5月 業務通信 No. 19 JRR-3(10MW)製品を追加			Rb-86, Tm-170				
	9月 業務通信 No. 20			W-185				
	2月 業務通信 No. 23	I-131						
1967 (昭42)	6月 業務通信 No. 25			Ca-45, Zn-65 Ag-110m				
	10月 カタログ第4版		K-42(高比放射能)	Co-60 Tl-204	**P-32 **Cr-51	C-14標識3製品	Co-60針状線源 Ir-192特殊線源	
1968 (昭43)	カタログ第5版(発行予定)		Br-82(高比放射能)	Sb-124, Cs-134	**Cu-64			

\* LINAC による製品

\*\* Szilard-Chalmers 法による製品

照射物質のほか、特殊ラジオアイソトープ、有機標識化合物、線源ラジオアイソトープにより構成され先進諸国に劣らぬものをめざした。本カタログの特徴を列記すると次のとおりとなる。

まず精製ラジオアイソトープについては

- i) P-32, S-35, I-131, Au-198 の大需要ラジオアイソトープがそろった。
- ii) 特殊ラジオアイソトープである高比放射能 Cr-51 および P-33 をまったく含まない P-32 が掲載された。
- iii) JRR-2 の時間照射装置を用いて 17 時間照射による高比放射能の K-42 が掲載された。
- iv) Br-82 をのぞき、製品仕様はすべて先進諸国の域に達した。(Br-82 は 43 年 6 月に改訂の予定)

有機標識化合物と線源ラジオアイソトープは本カタログではじめてとりあげられた製品である。そのうち有機標識化合物では、長年製造開発がつづけられてきた 3 種類の基幹物質シアン化カリウム-<sup>14</sup>C、酢酸ナトリウム-<sup>14</sup>C、メタノール-<sup>14</sup>C が採用された。また線源ラジオアイソトープは、針状の Co-60 を 4 種類(それぞれ約 1 mCi, 5 mCi, 10 mCi および 20 mCi) と Ir-192 (約 10

Ci) があげられている。いずれも長時間にわたり品質の検討をおこなった自信のある製品である。とくに Ir-192 は非破壊検査用として今後需要は急増する傾向にあり、量産がのぞまれている。

製品数は精製ラジオアイソトープ 27 製品(うち特殊ラジオアイソトープ 3 製品)、有機標識化合物 3 製品、線源ラジオアイソトープ 5 製品、基準照射物質 32 製品である。

#### 4.1.3 カタログ作成の経過

カタログ作成は分類項目別に総括担当者を設けて 6 月はじめより前後 8 回にわたって編集会議を開き原案を作成した。原案作成に際して特記すべきことは次のとおり、

- i) 従来のおとり数回にわたって実施した試験製造のデータにもとづき仕様内容を決定したが、先進諸国のカタログ値を十分解析し、それに比肩しうるかどうかをとくに詳細に検討した。
- ii) 新たに掲載された有機標識化合物および線源ラジオアイソトープについては、精製ラジオアイソトープと仕様記載様式が異なるため、先進諸国の例をで

TABLE 4.2 第1期5ヵ年計画における製品化実施状況

	核種数	製品数					製品数合計
		精製RI 特殊RI	精製RI	特殊RI	特殊線源	有機標識化合物	
計 画 量 (19)	39	40	—	—	—	40	
実 行 量	カタログ第4版	25	24	3	5	3	35
	追加準備中	+5	*+5	**+1	—	—	+6
	計	30	29	4	5	3	41

\* Sb-124, Cs-134 (1968年6月)

Se-75, Hg-197, Hg-203 (照射許可を得るために掲載しえなかったもの)

\*\* Cu-64 (HSA) (1968年6月)

	順位	計画より遅れた理由	対 策
C-14	A	JRR-2, 3 の稼働率が低い	JMTR に切替
Cl-36	A	同 上	原子炉の高率年間稼働
Cr-51(Cr <sup>+3</sup> )	A	”	原子炉の高率年間稼働またはCr-51(Cr <sup>+6</sup> )よりの生産
Fe-59	A	”	原子炉の高率年間稼働
Ni-63	A	”	同 上
I-132	A	照射技術開発中需要が減少してきている	再検討
Fe-55	B	JRR-2, 3 の稼働率が低い	高い稼働率の原子炉に期待
In-114m	C	需要微少	再検討
Eu-152, 154	C	同 上	同 上
Ir-192, 194	C	”	”

きるだけ多く参照し、審議の結果、決定した。

iii) 「製品記号」の記載方法のうち使用原子炉を示す -b および -c (それぞれ JRR-2 および JRR-3 をあらわす) の表示法は両者の製品仕様統一がなされたので削除した。

照射条件の特により製品 N (Neutrons)

Szillard Chalmers 法による製品 R (Recoil)

加速器による製品 A (Accerlator)

濃縮ターゲットを使用 E (Enrich)

無担体製品 F (Carrier Free)

高純度製品 P (Purity)

したがって、照射条件をよくして比放射能を高めた K-42 の製品は K-42-2N, Szillard Chalmers 法による P-32 は P-32-1R, 線型加速器により製造された製品は Cs-132-1A のように表示されることとなったわけである。有機標識化合物については Carbon-14 Labelled Compound の頭文字をとり CLC と表示し、製品となった順序に -1, -2, -3, …… の番号を付することとした。線源ラジオアイソトープについては、被覆のない Co-60 針状線源を C (Cobalt-60) N (Needle) B (Bare), また被覆のない Ir-

192 線源を I (Iridium-192) P (Pellet) B (Bare) と表現した。

iv) 特殊ラジオアイソトープは精製ラジオアイソトープに組み入れることとした。ただし iii) に述べたよう、に記号をもってその特殊性を表現することに努めることとした (例 Cr-51-2R)。

#### 4.1.4 カタログの編集、発行

以上にもとづき原案が作成され、8月16日にアイソトープ事業部長、事業課担当を交えて最終的な審議をおこない、原案どおり発行することが決裁された。以後、編集および装ていについては事業課が担当してすすめ、予定どおり10月1日付をもって第4版カタログが発行された。

カタログの内容については、付表1を参照されたい。

#### 4.1.5 第5版カタログ作成準備

第4版カタログ編成時に資料など不十分であった Sb-124, Cs-134, 高比放射能 Cu-64, Br-82 (ターゲットを変更し従来の製品より比放射能の1桁高いもの) および原子炉の照射許可がえられなかったため掲載できなかった Se-75, Hg-197, Hg-203 などを集録し、さらに体裁を整えた本格的なカタログを目指して、第5版カタログ作成の準備を開始した。(Sb-124, Cs-134, 高比放射能 Cu-64, Br-82 は43年6月に製品化し業務通信で周知する予定である。)

これはラジオアイソトープの製造、利用および製造用の原子炉等の紹介も記載し、需要者になじみやすくするとともに、利用促進のPRに重点をおくことが企画されている。現在事業課を中心に編集がすすめられている。

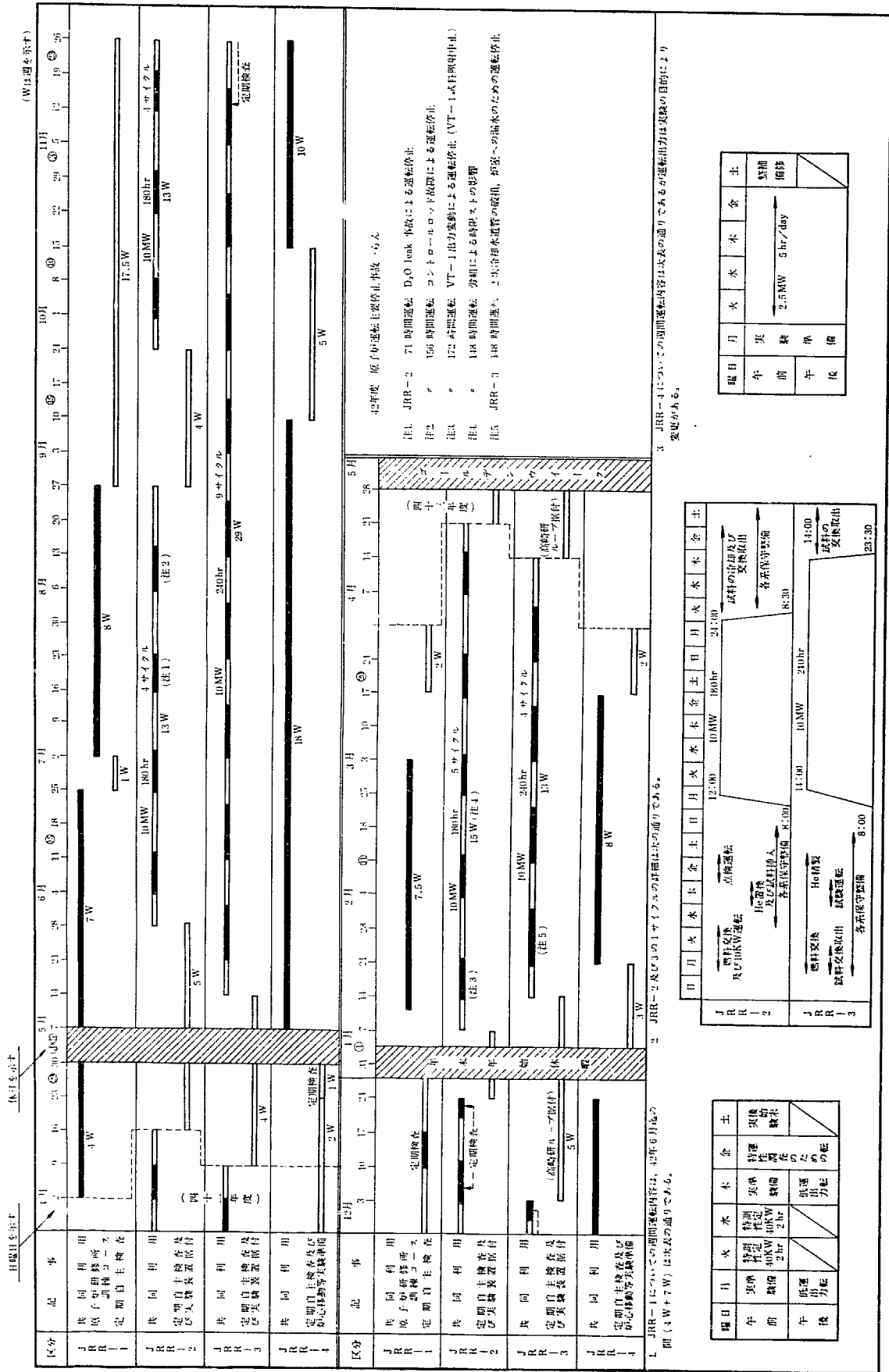
## 4.2 照 射

42年度は製造部生産第1期5ヵ年計画の最終年度にあたり、生産、出荷の定常化を確立すべき時期であるので、とくに P-32, I-131, Au-198, Ir-192 特殊線源など大需要製品の大量かつ定常的な生産、出荷の対策に重点をおき、その他新製品の製造技術開発にも適した照射計画を立案、実施した。

照射技術および照射計画については、研究炉管理部および材料試験炉部と緊密な連絡をとり、遺漏なきを期した。

新製品製造のための照射技術開発および材料試験炉部との照射技術打合せに関することは 5.8 RI 照射技術開発の章にゆずり、本章では生産、頒布に直接関係のある事項について述べる。

TABLE 4.3 昭和42年度研究運転実績表 (運転および共同利用)



4.2.1 原子炉運転計画と製造部の使用計画との調整

41年度から研究炉管理部と緊密な連絡をとり、とくにカタログ掲載製品の定常生産および出荷のため、ラジオアイソトープ製造用原子炉 (JRR-2 および JRR-3) の稼働率をたしかめるよう要望をつづけてきた。その結果42年度は3週間1サイクルの運転体制で合意に達し、JRR-2 は 10 MW・180 時間・13 サイクル、JRR-3 は 10 MW・240 時間・13 サイクルの運転計画が確立された。また両炉の運転時間が重なることはできるだけ避けるように配慮され、カタログ掲載核種の安定供給への道が開かれた。

このように原子炉運転計画と製造部の使用計画との調整を実施したのは今年度が最初であり「原子炉を使用してラジオアイソトープを生産する体制」が確立されはじめたといえることができる。

TABLE 4.3 に「42年度研究炉運転スケジュールおよび実績表」を掲げる。

4.2.2 42年度原子炉運転と生産の関連

41年度の原子炉運転体制 (JRR-2, 10 MW・130時間・17 サイクル、JRR-3, 10 MW・130時間・15 サイクル) にくらべて42年度のそれは1サイクルあたりの照射時間は延長されたが、反面サイクル数が減じた。

照射時間の延長により、とくに I-131, P-32 など大需要ラジオアイソトープの大量生産は可能となった。

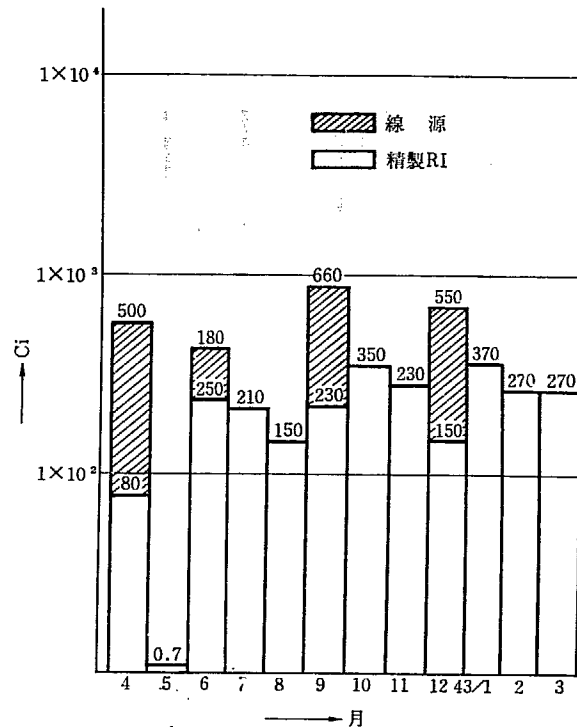
サイクル数の減じたことによりとくに影響をうけるのは、Au-198 のほか、Na-24, K-42, Cu-64 などの短寿命ラジオアイソトープであったが、Au-198 については JRR-2 によって1サイクル中に照射試料の2回取出し (時間照射装置により1回、1サイクル照射により1回) また JRR-3 によって1サイクル中に照射試料の1回取出しを合わせて、年間39回の生産が可能となり、41年度の生産可能回数32回を上回った。短寿命ラジオアイソトープのうち比較的需要の多い Na-24, K-42, Cu-64 についても、JRR-3 の HR 照射孔を使用して1サイクル中に2回照射試料の取出しが可能となり、JRR-2 の1サイクル1回照射試料の取出しと合わせて、年間39回の生産が可能となり、41年度の生産可能回数32回を上回った。

また JRR-2 の時間照射装置の使用開始は前述したとおり Au-198 の安定供給への道を開いたとともに、高比放射能の K-42 および As-76 の製造も可能とした。

以上のように、42年度における原子炉の運転体制はラジオアイソトープの生産によく対応したものであり、安定供給への道を開いたといえる。

TABLE 4.4 に42年度放射能取扱量、TABLE 4.5 に照射済試料取出数、TABLE 4.6 に放射能取扱量の推移を掲げた。なお41年度、42年度の放射能取扱量を比較すると

TABLE 4.4 42年度製造部放射能取扱量 (照射申込書数値による)



次のとおりとなる。

項目	比較	増加事由
取出カプセル数	42年度 1,229本 41年度 829本 48.3%増	ホットアトムの研究などの気送管利用、P-32 製造のための VT-1 照射、I-131 製造のための耐圧カプセル試験などで増加した。
取扱放射線量	42年度 4,510Ci 41年度 1,850Ci	Ir-192, P-32 製造のための VT-1 照射、Au 照射量の増加、I-131 製造のためテル酸照射で増加した。

4.2.3 生産関係事故

42年度において生産に関係のあった主な運転停止事故はつぎのとおりである。括弧内は停止時間。

- 1) JRR-2 関係
  - 42年7月 D<sub>2</sub>O 漏水 (～109時間)
  - 42年8月 コントロールロッド故障 (～24時間)
  - 43年1月 VT-1出力変動 (～8時間)
  - 43年2月 労組時限ストの影響 (～32時間)
- 2) JRR-3 関係
  - 43年1月 2次冷却水主配管破損 (～93時間)

上記のとおり、3～4 サイクルに1回の割合で生産に影響のある事故があった。とくに JRR-2 重水漏えい、VT-1 の出力変動にともなう P-32 生産停止、および JRR-3 の2次冷却水主配管の破損事故の I-131 生産停止は大きな影響があった。

TABLE 4.5 42年度製造部照射済試料取出数  
(標準型カプセル換算)

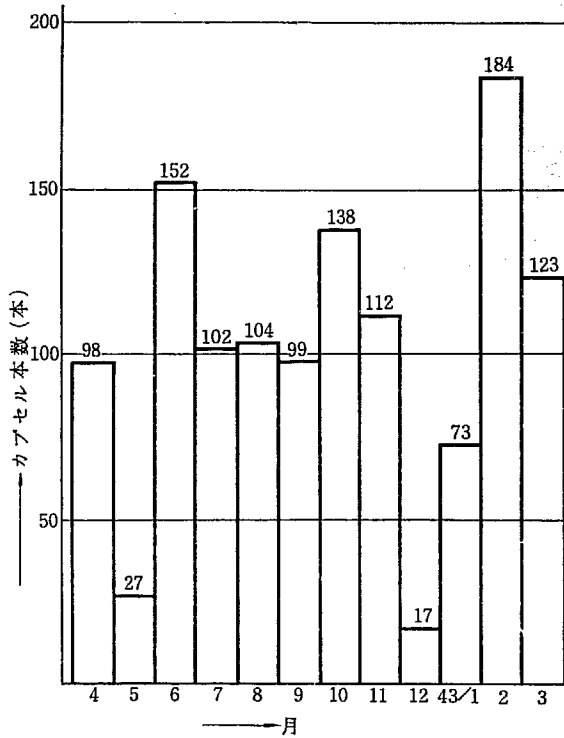
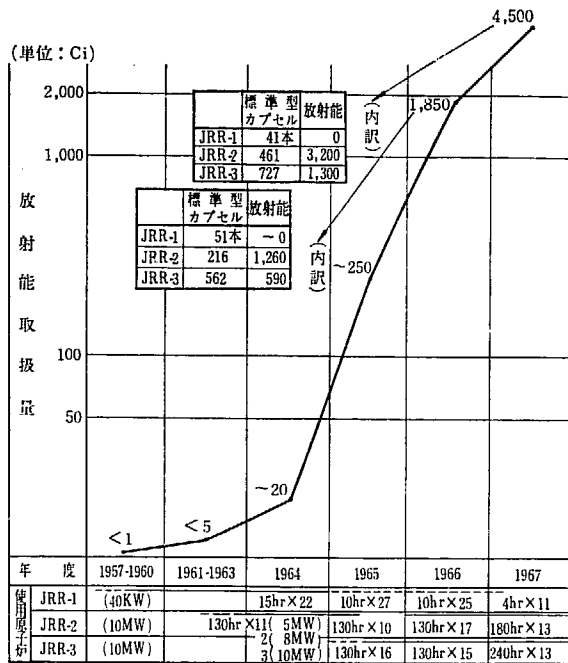


TABLE 4.6 製造部における放射能取扱量の推移



4.2.4 43年度照射計画について

43年度研究炉運転計画については、42年12月から研究炉管理部と打合せを重ねてきたが、43年3月に成案を得た。それによれば JRR-2 は 10 MW・200 時間・13 サイクルとなっている。JRR-2 のサイクル数が 42 年度にくらべて減っているのは、12 月以降下段プラグの修復作業をおこなうため運転停止をすることによる。このように全体としてサイクル数が減ることは製品の安定供給上多大の支障となるが、44 年度の効率的な原

TABLE 4.7 42年度ラジオアイソトープ製造量一覧表  
(1) 精製ラジオアイソトープ (数量単位 mCi)

	製品記号	製造回数	製造量
大 需 要	P-32-1	17	23,200
	S-35-1	9	5,290
	I-131-1	14	33,400
	I-131-1-c-t	3	1,560
	Au-198-1	33	279,000
	Au-198-1-t	2	450
	小 計	78	343,000
短 寿 命	Na-24-2	36	4,230
	K-42-2	28	5,830
	Cu-64-1	27	3,830
	Ga-72-1	7	280
	As-76-1	6	650
	Br-82-1	6	200
	La-140-1	2	220
	Sm-153-1	1	67
	Lu-177-1	3	510
	小 計	116	15,800
中 寿 命	Ca-45-1	1	9
	Zn-65-1	1	37
	Rb-86-1	1	19
	Ag-110m-1	1	320
	W-185-1	1	63
	Tl-204-1	1	6
小 計	6	454	
特 殊 RI	Cr-51 (H. S. A.)	4	1,241
	Cu-64 (H. S. A.)	2	73
	小 計	6	1,310
そ の 他	Co-60 溶液	1	173 $\mu$ Ci
合 計		207	361,000

(2) 有機標識化合物 (数量単位 mCi)

	製品記号	製造回数	製造量
有機標識化合物	シアン化カリウム- <sup>14</sup> C	1	45
	酢酸ナトリウム- <sup>14</sup> C	2	50
	メタノール- <sup>14</sup> C	2	80
合 計		5	175

(3) 線源ラジオアイソトープ

	製品記号	製造回数	製造量
線源ラジオアイソトープ	イリジウム線源	3	{ 11Ci×50 8Ci×55 13Ci×69
	小 計		1,887Ci
	コバルト針状線源 (1 mCi)	1	~1 mCi×750
	" (~10mCi)	1	~10mCi×58
	" (~20mCi)	1	~20mCi×211
	小 計	3	5,550mCi
合 計		6	1,890,000mCi

子炉運転を期待したい。

## (4) 基準照射物質

(数量単位 unit)

製品記号	製造回数	単位数	製品記号	製造回数	単位数
Cr-1-b	2	2	Ag-1-c	1	1
Fe-1-b	2	16	Sb-1-c	1	1
Fe-1-c	1	1	Pr-1-b	2	2
Cu-1-c	1	1	Eu-1-b	2	2
Zn-1-b	1	1	Hf-1-b	1	1
Ge-1-b	1	1	Ir-1-b	1	1
Ge-1-c	1	1			
Mo-1-c	1	1	合計	18	32

## 4.3 製造

42年度は製造部生産第1期5ヵ年計画の最終年度にあたるが、それにふさわしく施設の整備をほぼ完了した。とくに I-131, P-32 製造施設を完備し、第3四半期にはその量産体制を確立した。

また Au-198, Ir-192 の製造量も飛躍的に増加し、S-35 とともに国産化の目的を果たした。42年10月には生産第1期5ヵ年計画の成果をまとめた第4版カタログを発行した。これによって精製 RI の核種の追加のみでなく、新たに特殊 RI, 有機標識化合物, 線源 RI も本格的に製造に移行した。

42年度の製造量の一覧を TABLE 4.7 に示した。精製 RI (特殊 RI を含む), 有機標識化合物で約 360 Ci, 線源 RI で約 1,900 Ci, 他に基準照射物質 32 単位である。

## 4.3.1 精製 RI, 基準照射物質の製造

## (a) 概要

主要核種である I-131, P-32 の本格製造施設の完成により、いずれも約 10 Ci/バッチの大量製造が下半期に開始され、S-35, Au-198 の年間需要量をみたく定常製造化とともに、大需要 RI 製造の本格化はその緒について。また中長寿命 RI のカタログ記載核種は 8 核種に増加し、短寿命 RI の 11 核種をふくめて、年間製造量の合計は約 360 Ci に到達した。またカタログ記載 32 核種について、基準照射物質の注文製造をおこなった。

取扱量の増加にともない、機器、装置類および貯蔵配分設備の整備をおこなうとともに、高放射性廃棄物容器の整備、クレーンの取扱訓練など安全管理面の充実につとめた。

## (b) I-131 の製造

I-131 の製造は、前年度までは試験製造 (404 室) によって約 1 Ci までの製造をおこなってきたが、この結果にもとづいて設計された大量製造セル (鉛 11 cm 309 室) が 41 年度末に完成した。これに伴い第1四半期には、鉛セルおよび排気チャコールフィルター設備、廃液

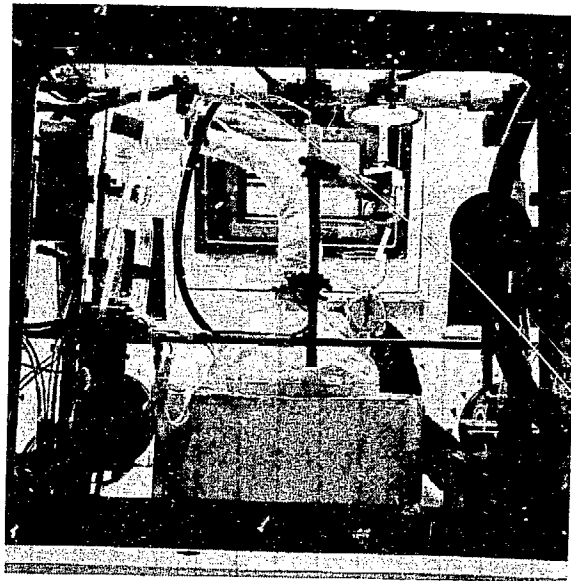


Photo 4.2 I-131 製造装置

I-131 製造用セルの内部に組込まれた I-131 製造装置の一部 (照射済ターゲットの溶解・蒸溜槽) である。I-131 製造施設はコールドラン, ホットランを実施した結果, 使用施設運転委員会で 10 Ci/バッチの取扱いを承認され, 第4四半期から本格的な製造に移行した。

一時保管設備など付属施設の総合調整を、工務第1課員の協力を得て細心の注意のもとにおこなうとともに、これと併行して製造装置の組込をおこなった。

第2四半期よりコールドランを開始し、0.1 Ci~1 Ci/バッチのホットラン5回を実施、9月より12月までの期間に1 Ci~10 Ci/バッチのレベルアップをおこなった。これらの試験運転においては施設の稼動状況、製造データは勿論のこと、特に放射線管理面について放射線管理課員と協同でスタックからの排出空中濃度、室内空中濃度、作業者の体内摂取量などについて測定をおこなうなど、安全性についても綿密な検討をおこない、きわめて満足すべき結果のもとに量産体制の確立に成功した。これらの結果は併行して作成した使用要領とともに、使用施設運転委員会で検討審議され、I-131, 10 Ci/バッチの取扱いに安全であることが承認され許可された。

第4四半期には、この施設による本格生産を4回実施した。I-131 の年間製造量は計 17 バッチ 35,000 mCi である。

本格製造施設による製造結果を TABLE 4.8 に示した。

新しい製造施設、装置の特徴、主な改良点としては次のようなことがあげられる。

- 1) インナーボックス内減圧度 (-100 mmaq) を保つとともに、さらにその外側遮蔽体との間を換気して -60 mmaq の減圧にして安全を保てるようにした。
- 2) チャコールフィルターを4基設置し、常時セル内排気は3基を通過後スタックに放出されるようにした。
- 3) 製造装置よりのホット排水はいずれも専用の廃液一時保管設備に流すようにした。
- 4) セルの換気の流量、減圧度制御を自動化し、警報

TABLE 4.8 本格装置による I-131 製造結果

製造番号	項目 取扱量 (Ci)		製造量 (Ci)	放射能濃度 (mCi/ml)	収率 (%)
	Aセル	Bセル			
T-703		0.6	0.41	6.9	68
T-704	0.6		0.50	11	89
T-705		1.1	0.84	14	76
C-706	1.1	2	0.84	13	76
C-707		2.2	1.5	18	68
C-708	2.4		1.7	16	71
C-709		3.5	3.0	40	86
C-710	3.3		3.1	44	94
C-711		4.0	3.2	45	78
C-712	6.6		5.4	76	82
C-713		4.0	3.3	42	83
C-714	8.0		7.0	85	88
C-801		8.0	6.2	93	98
C-802	4.0		3.3	45	83
C-803		8.0	5.6	*430	70
C-804	4.0		3.5	*270	88

\* 高濃度製品

装置を完備した。

5) 製造装置は、照射したテルル酸 200 g を処理できるように溶解蒸留槽、加熱装置、捕集容器などを大型化し、製品量のチェックのためのモニターの設置、冷却水の流れと加熱装置の電流断続の連動、必要箇所の温度測定装置の設置などの改良を加えた。

(c) P-32 の製造

P-32 は前年度にひきつづいて 404 室試験製造装置により 10 月まで約 1 Ci/バッチの生産をおこなうとともに、第 1 四半期末に新たに完成した大量製造セル（鉛 5 輦遮蔽 2 個 310 室）に製造装置の組込み、コールドラン、ホットランを実施し、第 3 四半期には本格製造の体制を確立した。第 4 四半期には本格製造を 3 回実施した。年間製造量は計 17 バッチ 23,200 Ci である。

この大需要セルには減圧蒸留装置を組込み、イオウを減圧（約 2 mmHg）下、発火点以下の温度で蒸留する方法を実用化した。（Photo 4.3）

大量の P-32 を発火などの危険を伴わずに安定生産をすることができた。1 回の操作で 10 Ci 程度を処理し、放射能濃度 100 mCi/ml 以上、全放射能 4 Ci 程度の製品を得ることができる。通常の製品出荷には JRR-2、VT-1 照射を利用し 180 g のイオウ（照射直後 P-32 生成量 22 Ci）を処理することによりおこなうが、JRR-2 のオーバーホールによる運転休止期間中は直前のサイクルで中空円筒燃料内照射をし、照射直後で 45 Ci/240 g・S の P-32 を得、これを処理することによりこの期間の製品の定常出荷を確保した。

新しい製造装置の技術的改良点としては、

- i) 燃焼のおそれのある空室中でのイオウ蒸留法から発火点以下で蒸留できる減圧蒸留装置への切りかえ



Photo 4.3 P-32 製造用セル

P-32 製造用セルは第 1 四半期に完成した。これを最終としてラジオアイソトープ製造棟の製造施設の内装はほぼ完了した。このセルは約 10 Ci/バッチの P-32 を取扱うもので、コールドラン、ホットラン完了後、第 3 四半期から国内需要を満す量産体制の確立に成功した。

- ii) 製品濃縮ができる二重フラスコ型濃縮装置の設置
  - iii) 遠隔操作でイオン交換樹脂の交換のできる装置の設置
  - iv) 冷却水が流れていない時はヒーター電流が流れないリレー、真空度が上昇しないと加熱できないリレー、設定温度以上に温度が上昇しない温度調節リレーなど種々の自動制御装置の設置
- などが主なものとしてあげられる。

製造作業にともなう問題点の検討としては、カプセルに付着する P-32 の定量、イオン交換樹脂に付着する不純物核種の検討、放射能量と線量率の検討、ターゲットおよび製品の放射能分析などをおこなった。TABLE 4.9 に 42 年度中の大量装置による製造結果を示す。収率の向上と安定化について解決の目的をえた。

TABLE 4.9 本格装置による P-32 製造結果

製造番号	取扱量 (Ci)	製造量 (Ci)	放射能濃度 (mCi/ml)	収率 (%)
T-703	$1.4 \times 10^{-3}$	$5.8 \times 10^{-3}$	$6.9 \times 10^{-2}$	41
T-704	$3.5 \times 10^{-3}$	$1.6 \times 10^{-3}$	$2.0 \times 10^{-2}$	46
T-705	1.6	0.4	11	26
b-710	5.2	0.62	62	12
b-711	3.2	1.4	41	44
b-712	9.9	2.3	59	23
b-801	4.6	2.5	82	54
b-802	8.6	1.7	180	20
b-803	7.1	4.4	310	62

(d) S-35 の製造

年度計画にしたがい、JRR-2 および 3 の両炉の多サイ

クル照射を併用して 500 Ci/バッチの製造を 9 回、5,290 mCi の生産をおこない全需要をみたした。

詳細な操作マニュアルを完成したことにより、操作、製品の品質は全く安定し、何ら問題はなかった。

#### (e) Au-198 の製造

本年度、製造は定常的におこなわれ、その全製造量は 33 バッチ 279 Ci と飛躍的に増大した。ほぼ同じ品質(約 20 Ci/gAu 出荷時)で毎週火曜日の出荷を可能にするため、JRR-2 では VT-4 および VT-2 照射孔で 180 時間照射、また時間照射孔では 17~20 時間照射を、JRR-3 では VT-1-8 の照射位置で、240 時間照射をおこなった。いずれの場合も 0.35 g のターゲットを使用し約 5 Ci を毎週製造出荷した。JRR-2 による 180 時間照射では、はじめ VT-4 照射孔を使用した、炉の熱中性子束の変動により比放射能が規定に達しないばあいがあるため、途中から照射孔を VT-2 に変更した。

製造操作および製品の品質の一定化、操作時間の短縮をはかるために、製造装置については、従来金線を王水に溶解、蒸留する際に使用していた水流ポンプを真空ポンプに変え、自動温度調節装置を採用するなどの改良をはかった。その他、蒸発排気ガスによる汚染防止のためガラスフィルター付トラップを使用するなどの工夫も加えた。

42年度使用したターゲット(石福金属 KK 製 1 mmφ 金線)について不純物の検討をおこなった。その結果、従来使用してきたターゲットとはほぼ同様の純度であることがわかった。

原研炉の休止期間中の代替炉を探す目的をもって、TAIG および武蔵工大の原子炉で 5 時間の試験照射をおこなったが、実測の結果いずれの炉を使用した場合にも 50 時間照射をおこなったとしても約 10 Ci/gAu 程度の比放射能しかえられないことが判定され、実用化にいたらなかった。

#### (f) 短寿命 RI の製造

前年度にひきつづき需要の多い Na-24、K-42 および Cu-64 の 3 核種について毎週 JRR-2 および 3 による照射を併用して見込生産をおこない、その他の核種については注文生産を実施した。このさい JRR-2 の気送管による 20 分、JRR-3 の HR-2 による 17 時間および 41 時間の照射がおこなわれた。

従来カタログ化されている核種のうち比放射能の低い K-42 および Br-82 の品質向上をはかった。前者については JRR-2 の時間照射(17時間)により比放射能を 1 桁あげることになり成功し、10 月カタログ化をおこなった。Br-82 については、臭化カリウムをターゲットとする比放射能の高い製品の製造法を開発し、43 年度にカタログ化の予定である。短寿命 RI の製造は総計で 116 バッチ 15,800 mCi である。

#### (g) 中長寿命 RI の製造

41 年度は Au グループが主体となって開発、製造をおこなったが、本年度は多核種のカタログ化を計るため 2 つの目標を設定した。第 1 に各グループが均等に製造核種数を分担すること、第 2 に製造装置の改良をおこない、定常生産体制の確立を目指した。4 月には前年度より試験製造をおこなってきた Ca-45、Zn-65 および Ag-110m の 3 核種を定常化した。ひきつづき本年度上半期において 10 月にカタログ化すべき核種として Co-60、Eu-154 および Tl-204 の 3 核種を選定し、さらに 43 年度 4 月には Sb-124 および Cs-134 を定常化することを計画した。上記計画に並行して、Hg-197、-203 および 44 年度開発予定核種の長時間照射のさいに得られる比放射能の測定データの集積を計画した。

これらの計画を実施するにあたって、製造核種のセル内組合せを変更する必要が生じたため、各担当グループは製造装置の大幅な組替えをおこなった。その結果計画通り 10 月には Co-60 および Tl-204 のカタログ化をおこなうことができた。Eu-154 については、製造法は検査法のみを残し完了している。Sb-124 および Cs-134 は製造施設および製造装置について十分な検討をおこなったが、I-131 の製造から得られた経験を生かすことによってセルの改造をしないで可能であるという結論を得た。Sb-124 のほか Zn-65 および Cs-134 の 2 核種をも同一セル内で製造できる装置を開発した。これを Fig. 4.1 に示す。

カタログ記載済み核種についても、製造装置の改良を完了し、また照射時間の延長にともなう技術開発も良好な成果をおさめている。本年度にカタログ化された核種の受注件数も増加し、製造計画の順調な実施と合わせ今後の計画遂行に大きな期待が寄せられている。

#### (h) 基準照射物質の製造

本年度は JRR-2 および JRR-3 の運転時間延長に伴い、照射時間が延長されることとなったためカタログ記載の 32 核種の全部についてターゲット量の変更をおこなった。

定常的製造について問題はなかった。年間総計 18 バッチ 32 単位である。カタログ記載全核種の線量測定、微量ターゲット用カプセルの改良等については 43 年度もひきつづき実測、検討をおこなう予定である。

### 4.3.2 特殊 RI の製造

#### (a) 概要

前年度までに技術開発を進めてきた高比放射能 Cr-51 および Cu-64 は、本年度量産化のために遠隔操作による装置の試作をおこなうとともに、定常的な試験製造へと移行した。ホットアトム効果を実際の RI 製造に応用す



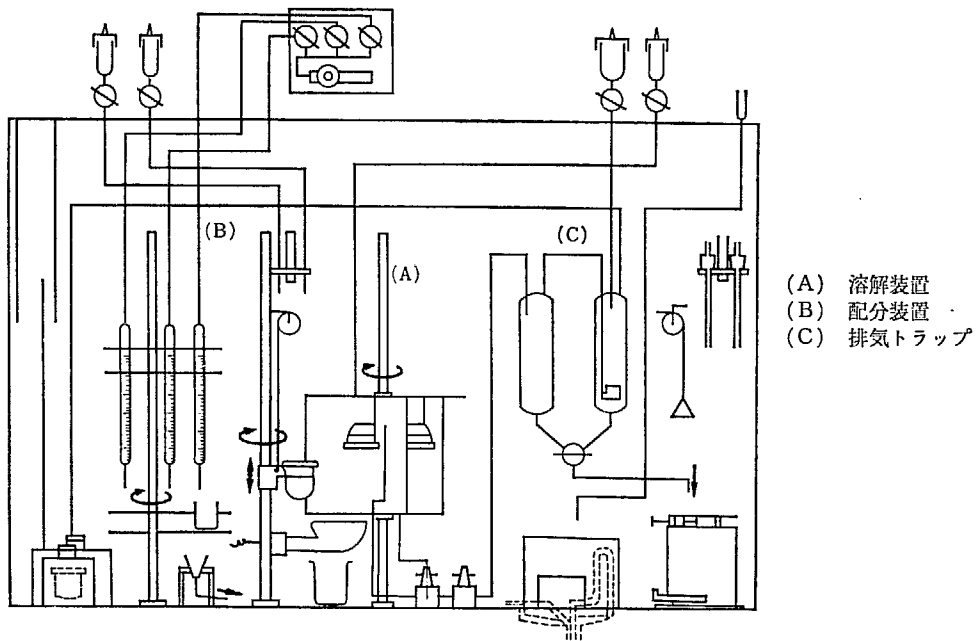


Fig. 4.1 Zn-65, Cs-134, Sb-124 製造装置配置図

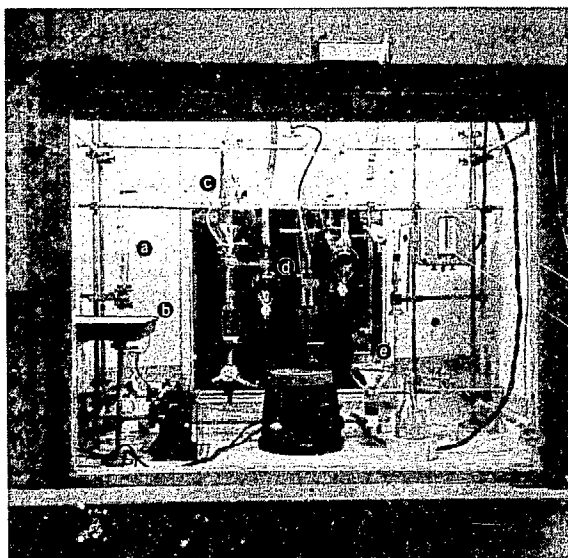


Photo 4.4 高比放射能 Cu-64 製造装置  
 ①ターゲット溶解槽                      ④分別沈殿浴  
 ②氷水希釈槽                              ⑤酢酸処理浴  
 ③鉄酸化物による共沈槽

高比放射能 Cu-64 製造操作

照射フタロシアニン銅 → 濃硫酸溶解① → 氷水希釈②

→ 鉄水酸化物共沈③ → 分別沈殿④ → 酢酸処理⑤ → 酢酸銅製品

(b) 製造

上記の核種の製造装置は 305 室汎用フード内に組込まれた。この汎用フードは元来比較的少量の RI の取扱い用に設計されたものであるが、ホットアトム効果を利用する製造の場合には、比較的収率が低いため取扱量がキューリーレベルに達するので、放射線管理上遮への強化、放射性試料の搬出入装置の設置などをおこなった。Cr-51, Cu-64, P-32 について試作装置を完成し、それぞれ 20 mCi/バッチ、15 mCi/バッチ、25 mCi/バッチの製造が可能となった。このうち Cr-51 および Cu-64 の製造結果を TABLE 4.10 に示した。

TABLE 4.10 特殊 RI 製造結果

高比放射能 <sup>51</sup>Cr

製造番号	取扱量 (Ci)	製造量 (mCi)	放射能濃度 (mCi/ml)	比放射能 (mCi/g)
T-701	2.7	270	16	4.6 × 10 <sup>4</sup>
T-702	4.7	400	22	6.7 × 10 <sup>4</sup>
T-703	4.4	330	26	1.7 × 10 <sup>4</sup>
701	11.7	750	32	4.5 × 10 <sup>4</sup>

高比放射能 <sup>64</sup>Cu

T-702	~50 (mCi)	9.7	8.1	—
T-703	~50	4.0	0.7	—
T-704	~50	6.3	1.4	5.1 × 10 <sup>4</sup>
T-705	~50	13	2.5	—
T-706	~50	6.1	1.9	1.0 × 10 <sup>5</sup>
T-707	290	34	5.6	9.3 × 10 <sup>4</sup>
T-708	300	42	8.6	3.4 × 10 <sup>5</sup>
T-709	230	25	3.8	2.0 × 10 <sup>5</sup>
T-801	490	19	4.0	2.0 × 10 <sup>5</sup>
T-802	430	24	4.4	1.8 × 10 <sup>5</sup>

るさいには、原子炉内の照射条件などによって品質収率が著しく変化する。世界各国でもこれによる定常製造はその例がきわめて少ないものであるが、製造部ではこの定常化に成功した。P-33 を含まない P-32 の特殊製品（ホットアトム効果を利用する製造方法による）も定常化の目途を得たので、これらのうち Cr-51 と P-32 を 42 年 10 月においてカタログ化した。

Cu-64 は試験製品を東大医学部に試験依頼をおこない好評であったので、43 年度カタログ化する予定である。

表でみられるように Cr-51 については、医用に使用する最低レベルである比放射能  $10 \text{ mCi/mgCr}$  をこえており、Cu-64 については JRR-3 の照射によるものよりも 100 倍以上の高い比放射能となっている。Cu-64 については医用にとくに重点をおいているために酢酸塩として調製している。

P-32, Cs-132 は注文がなく製造をおこなわなかった。特殊 RI の製造量は年間総計 14 バッチ 1,390 mCi であった。

#### 4.3.3 有機標識化合物の製造

##### (a) 概要

有機標識化合物の製造については、これまでに  $^{14}\text{C}$  標識化合物の製造に関して、製造法、精製法などの技術開発、つづいて試験製造をおこなってきた。そのうち 3 種の標識化合物が製品として出荷できる段階に達したので、昭和 42 年 10 月のカタログ改訂に際して、これを載せることにした。品目はシアン化カリウム- $^{14}\text{C}$ 、酢酸ソーダ- $^{14}\text{C}$ 、メタノール- $^{14}\text{C}$  である。カタログ発行以後は常時保有の必要があるので、酢酸ソーダおよびメタノールはあらたに製造し、シアン化カリウムは以前に合成した粗生成物を精製して製品とした。その後、年度中に酢酸ソーダとメタノールの出荷があり、メタノールは保有量不足のため再度製造した。

##### (b) 製造

本年度に製造した上記の  $^{14}\text{C}$ -標識化合物はシアン化カリウム- $^{14}\text{C}$  45 mCi (1 バッチ)、酢酸ソーダ- $^{14}\text{C}$  50 mCi (2 バッチ)、メタノール- $^{14}\text{C}$  80 mCi (1 バッチ) の計 175 mCi である。

これらの化合物の製造方法、精製方法の大略は下記のとおりである。

##### (1) シアン化カリウム (CLC-1)

$\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ , K(Metal),  $\text{NH}_4\text{Cl}$  を石英ガラスの封管中で反応させる。

反応生成物を硫酸酸性にして水蒸気蒸留によりとり出し、過剰の KOH 水溶液を加え、濃縮する。

粗生成物を液体アンモニアに溶かし抽出し結晶化させる。

##### (2) 酢酸ソーダ (CLC-2)

$\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$  から発生させた  $^{14}\text{CO}_2$  を  $\text{CH}_3\text{MgI}$  と反応させる。反応生成物を硫酸酸性にして水蒸気蒸留によりとり出し、NaOH 水溶液で中和し濃縮する。

粗生成物をメタノールに溶かし再結晶させる。

##### (3) メタノール (CLC-3)

$\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$  から発生させた  $^{14}\text{CO}_2$  を  $\text{LiAlH}_4$  の高沸点エーテル溶液で還元する。

真空蒸留に続いて分取用ガスクロマトグラフ法で精製する。

42年度の製造では、開発実験・製造試験の段階では取

扱わなかった高比放射性物質を取扱い、貴重な経験と資料を得ることができた。

C-14 標識化合物の製造については、なお放射能測定精度の向上、ガスクロマトグラフィによる定量精度の向上、製品保管中の放射線自己分解の検討、製品保管条件の確立など、今後とも検討すべき点があり検討をつけている。

#### 4.3.4 線源の製造

##### (a) 概要

昭和 41 年より新たに線源製造担当係が発足し、Co-60, Ir-192 などの小線源の製造を開始した。41 年 12 月までは製造技術課からの技術的な引継ぎ期間であり、同期間中には Co-60 は約 5 Ci, Ir-192 は約 600 Ci を製造した。当係による本格的生産は 41 年 12 月の Ir-192 製造からである。同時に製造施設も従来の 10 cm 鉛セルから汎用ケーブに切替えをおこなった。42年度は Co-60 および Ir-192 の小線源について 10 月にカタログ化するとともに、その定期製造および試料開封機、冷具など製造装置の準備および JMTR による Ir-192 の製造のための準備、2 次カプセル密封技術の開発、第 4 四半期から開始された  $^{60}\text{Co}$  針状線源の見込生産およびそれに伴う製造装置の改良などは来年度に継続する。

##### (b) Co-60 針状線源の製造

線源の形状は  $0.46\phi \times 10\text{mm}$  および  $0.91\phi \times 15\text{mm}$  の針状 2 種類で、メッキ、クラッドなどの表面処理はなされていない。JRR-3 の VR および VG 孔で 1 ないし 3 サイクル (10 MW, 200~600 hr) 照射をおこなう。生成する放射能は 1 ないし 20 mCi/針 である。照射カプセルには JRR-3 コールドウェルド型 ( $23.4\phi \times 150\text{mm}$ ) をもちいる。ターゲットはたがいにジグザグ状に配列された針を 40 ないし 50 本を単位としてアルミニウム箔で包装して用いる。42年度の製造実績は 1 mCi/針  $\times$  750 個、10 mCi/針  $\times$  58 個、20 mCi/針  $\times$  211 個、計 5,550 mCi である。

##### (c) Ir-192 線源の製造

形状は  $2\phi \times 2\text{mm}$  のペレット状でターゲットの表面処理をおこなっていない。生成放射能はペレット当たり約 10 Ci である。 $10^{14}\text{n/cm}^2\text{sec}$  以上の熱中性子束を必要とするので、JRR-2 の VT-1 照射孔をもちい多サイクル (10 MW 約 800 hr) の照射をおこなっている。照射試料は重水中に浸されるので、照射容器 ( $94\phi \times 40\text{mm}$ , 2S アルミニウム製) は照射前にヘリウム気密試験およびエチレングリコール発泡試験をおこなっている。自己遮蔽効果、 $\gamma$  線自己吸収効果の関係で生成量と照射個数の関係に未知の点が多く、ターゲットの配列に検討を加えながらターゲット量を段階的にふやした。現在約 10 Ci/ペレットの生成量を保ちながら 74 本のターゲットを一時に照射

できるまでにいたっている。

43年9月の照射からは照射孔のスペースが2倍程度確保できたので、照射密器も従来の2倍の容積のものに改造をおこない、約150個の製造をおこなう予定である。JMTRによる製造も01サイクルから始まる予定であり、照射技術について検討中である。その他 Ir-192 のガスシールドアーク溶接法による2次カプセル密封技術の開発もおこなう予定である。42年度の製造実績は174個1,887 Ciであった。

#### 4.4 検査（定常検査）

定常検査業務においては、製品（頒布製品および試験製品）の検定、およびこれら検定に使用する機器の精度維持のための確認試験などが主な内容であり、これらを通して頒布される全製品にたいし品質の保証をおこなった。

精製 RI 関係にたいする検定項目は、放射能検定における放射能濃度 (mCi/ml)、比放射能 (mCi/g 元素) の測定および放射化学的純度の測定などが主要な項目であり、また化学検定では、主元素の定量 (mg/ml) 酸性度（あるいは pH 値）の測定、重金属不純物元素の定量、全固形分および不揮発性成分の定量などのほか、必要に応じ非放射性不純物の定量、化学形の測定などをおこなった。

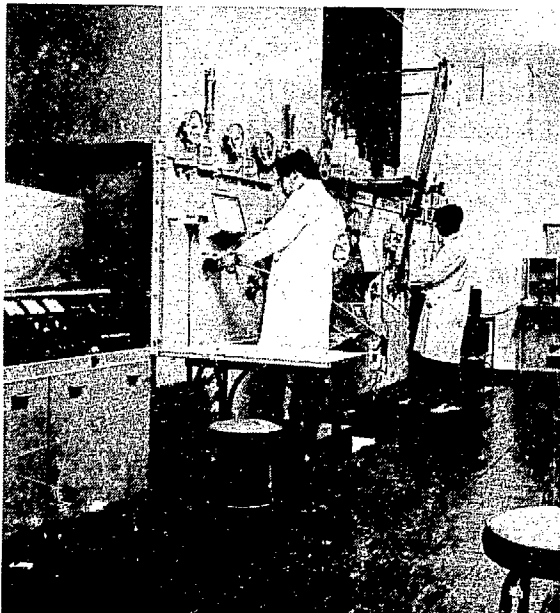


Photo 4.5 機器検定用セル

製品検定では放射能濃度、比放射能、放射化学的純度の放射能検定および主元素量、酸性度、重金属不純物元素、全固形分、不揮発性成分の化学検定のほかに、発光分光分析法、ポーラログラフ法、分光光度法による機器検定によって非放射性不純物の定量をおこなっている。

手前から発光分光分析用セル、試料調整用セル、分光光度計およびポーラログラフ用セル。

線源 RI については放射能強度の測定を主項目とし、有機標識化合物の検定項目は放射能強度の測定、放射化学的純度、物質の同定試験などである。

またこれら検定に使用する測定器にたいしては、つねに精度の確認試験をおこなう必要があり、放射能絶対測定法あるいは標準試料による相対測定法などを併用しおこなっている。全製品の検定結果を附表2に示した。全製品について製品規格に合格していることを確認した。

##### 4.4.1 製品の検定

###### (a) 検定内容

41年度にひきつづき、本年度も頒布製品および試験製品の全核種にたいして放射能検定、化学検定の各項目について実施した。

精製 RI 製品（特殊 RI を含む）については、検定対象核種は種類にして頒布製品 20 核種、試験製品は 5 核種であった。検定した全核種の数 は 219 件、検定項目件数にして総計 864 件である。

これら精製 RI のほか、線源関係では 166 個の Ir-192 および 690 個の Co-60 について、また有機標識化合物の 3 件について検定を実施し、全製品の品質の保証をおこなった。

###### (b) 製品別特記事項、その他

###### (1) 大需要 RI

P-32, I-131 は従来のものに比しより高品質の、非常に高放射能濃度の製品が得られてきており、これの検定には特に留意しておこなった。またこれら製品の検定項目のうち、主元素の定量、放射性不純物の定量などの項目については以前よりのすべての製品で充分確認されており、とくに必要とするもの以外はおこなわなかった。減衰後のものについて確認をおこなったものはある。

このうち I-131 製品は年度後半より次第に高濃度のものとなり、ヨウ素はとくに揮発、拡散による影響が大きいため、濃度測定にさいしては試料瓶の密封巻しめをおこなったうえで実施した。また化学検定には I-131 専用セルをもうけ、セル自体できるかぎり密封状態としたうえで、放射線管理課の協力のもとに洩えいテストなどを実施し万全を期した。今後さらに高濃度製品の製造が予定されるので、各種定量法についても充分検討し、より高度のものを確立する必要がある。

P-32 製品も、つねに 100 ないし 200 mCi/ml 以上のものが得られており、放射能濃度測定にさいしては、適当な強度まで希釈する操作などすべて鉛セル内での遠隔操作によることとした。2 $\pi$  ガスフロー比例計数法による現行法は、測定自体の精度は非常に良いが、測定試料調製のさいのこれら高度の希釈、操作の複雑さなど改良すべき点も多く、現在たとえば制動放射線を利用する測定法の開発などについて、開発業務としておこなっている。

## (2) Tl-204 製品

Tl-204 製品(製造番号 701)の放射能濃度については、絶対測定法について検討すべき点があったので定常的な測定法によらず、効率トレーサー法による絶対測定を用いおこなった。検討事項は従来法に比しより少ない自己吸収の測定試料の調製法にたいし検討をおこなったもので、ほぼ所期の目的を達することができた。トレーサー核種としてはCo-60を用い、自己吸収を少なくするための分散剤としてはテフロン微粉剤を用いた。

## (3) Ca-45, W-185 などのβ放射体製品

これらの製品の比放射能値を、計算(製造に用いたターゲット重量および放射能濃度よりの値)によって求めるのは危険であるため、本年度確立した定量法により製品溶液を用い、主元素を定量して求めた。各製品の計算値と実測して得られた値との比較を TABLE 4.11 および TABLE 4.12 に示した。なお特殊 RI の Cu-64 についても比放射能値は主元素定量値より求めた。

## 4.4.2 測定器精度確認試験

## (a) 定常検定用の測定機器の校正試験

主として放射能検定用機器、とくに現行ほとんどの製品の測定に使用される井戸型電離函(Tracerlab 社製 Source Calibrator 2機)について校正試験をおこなった。本年度は Na-24, K-42, Au-198 などの核種を対象とし、絶対測定は  $4\pi\beta\gamma$  同時計数法を用いた。前回の値に比し異状値は認められず、十分な精度の得られていることを確認した。

なお測定器の経時変化については、以前よりの値を含めたデータの集積をはかり、解析をおこなっている。

## (b) 線源測定用機器にたいする校正値確認試験

線源製造用ケーブ内の Ir-192 測定用ラドコン(Victoreen 社製)については、井戸型電離函測定器に比し検討すべき多くの要因がある。現在鉛レンガを用いた測定台によりおこなっている。本測定法では同じケーブ内に共存する他の試料からの影響を除ける利点を有する。同時にせまいジオメトリーにおける中心位置の調整、散乱γ線の影響などによる逆二乗則の適用の可否などについて検討をおこなった。

最終的な測定値の確認には計数法による絶対測定法の併用が必要となるが、本年度は主として標準線源による相対測定および他の標準測定器との比較測定などによりその校正値の確認をおこなった。

Co-60 測定用の井戸型電離函(大倉電気一武田理研製)については、他の測定器(Source Calibrator)との比較測定をつねに実施することにより、校正値を確認した。なお溶液試料と固体試料の相違からの測定値におよぼす影響にたいしては、少なくとも現行の線源形状のものについては、計数法による絶対測定をおこない確認済みである。

TABLE 4.11 W-185製品中の主元素の定量

製品番号	主元素量 (mg·W/ml)		放射能濃度 (mCi/ml)	比放射能値 (mCi/g·W)		収率 (%) (W定量値/計算値)
	計算値*	定量値		計算値*	実測値	
b-702	67.7	69.4	2.6	37.8	36.9	102
b-703	97.3	77.7	1.1	12.0	14.2	82
b-704	63.2	59.9	1.6	26.7	27.5	95
c-701	76.4	63.6	1.0	13.2	15.5	84
c-702	89.8	88.8	0.93	10.3	10.5	99
c-703	93.5	98.9	0.83	8.9	8.4	105
c-704	84.7	90.0	2.0	23.5	22.2	106

\* 計算値(W量、および比放射能値とも)は、製造のさいの化学収率を100%として求めたもの。

TABLE 4.12 Ca-45製品中の主元素の定量

製品番号	主元素量 (mg·Ca/ml)		放射能濃度 (mCi/ml)	比放射能値 (mCi/g·Ca)		収率 (%) (Ca定量値/計算値)
	計算値*	定量値		計算値*	実測値	
b-t-701	25.9	26.4	0.11	4.3	4.3	102
b-t-702	80.6	78.5	0.20	2.5	2.6	97
b-t-703	80.4	46.5	0.11	1.9	3.3	58
c-t-701	85.2	81.9	0.20	2.4	2.5	96
c-t-702	81.0	53.1	0.34	4.2	6.5	70
c-801	102.9	103.3	1.1	10.3	10.3	100

\* 計算値(Ca量および比放射能値とも)は、製造のさいの化学収率を100%として求めたもの。

## 4.5 出荷状況

42年度の総出荷量は1,735,465 mCi および基準照射物質32単位、出荷件数340件である。

出荷状況の総括を TABLE 4.13 に、製品項目ごとに出荷先を所内外の別に集計したもの、および月別に出荷量を集計したものを TABLE 4.14 および TABLE 4.15 に示した。また出荷1件ごとに出荷先、送付量をまとめたものを附表3に示した。

## 4.5.1 精製ラジオアイソトープの出荷状況

精製ラジオアイソトープの出荷量は160,546 mCi で前年度実績28,324 mCi に対して約5.6倍と増加している。精製ラジオアイソトープの約96%を占めているのは、Au-198 (154,753 mCi) で、前年度実績(20,518 mCi)の約7.7倍となっている。これは国内需要のすべてをまかなう安定供給の努力が進められたためである。S-35 (2,237 mCi) は従来より国内全需要を満しているが、前年度実績(3,198 mCi)に比して若干減少している。S-35の国内需要が2~3 Ciの間で変動していることが判る。

P-32 (2,140 mCi) および I-131 (227 mCi) は、本格装置による量産比を第4四半期から実施したが、大量需要者への継続した供給が契約上などの理由でなされなかったため、前年度実績(2,207 mCi および 1,270 mCi)

TABLE 4.13 42年度ラジオアイソトープ出荷総括表

(数量 単位 mCi)

項目	所外・所内 件数・数量	規格製品				特殊サービス				合計									
		所外		所内		所外		所内		所外		所内							
		件数	数量	件数	数量	件数	数量	件数	数量	件数	数量	件数	数量						
精製ラジオアイソトープ	大需要 RI	126	159,044	30	313	156	159,357					126	159,044	30	313	156	159,357		
	短寿命 RI	116	556	24	75	140	631					116	556	24	75	140	631		
	中寿命 RI	1	2	4	4	5	6					1	2	4	4	5	6		
	特殊 RI							9	542	1	10	10	552	9	542	1	10	10	552
	その他									1	2.02	1	2.02		1	2.02	1	2.02	
小計	243	159,602	58	392	301	159,994	9	542	2	10	11	552	252	160,144	60	402	312	160,546	
有機標識化合物		3	26			3	26	1	5		1	5	4	31			4	31	
線源ラジオアイソトープ		1	670,000	1	10,000	2	680,000	4	894,888		4	894,888	5	1,564,888	1	10,000	6	1,574,888	
基準照射物質		9	23単位	9	9単位	18	32単位						9	23単位	9	9単位	18	32単位	
合計		247	829,628	59	10,392	306	840,020	14	895,435	2	10	16	895,445	261	1,725,073	61	10,392	322	1,735,465
		9	23単位	9	9単位	18	32単位						9	23単位	9	9単位	18	32単位	

TABLE 4.14 ラジオアイソトープ出荷状況集計表

(1) 精製ラジオアイソトープ (数量 単位 mCi)

分類	項目	所外・所内 件数・数量		所外		所内		累計	
		件数	数量	件数	数量	件数	数量	件数	数量
大需要	P-32-1	27	2,118	5	22	32	2,140		
	S-35-1	29	2,076	5	161	34	2,237		
	I-131-1	1	100	17	127	18	227		
	Au-198-1	69	154,750	3	3	72	154,753		
	小計	126	159,044	30	313	156	159,357		
短寿命	Na-24-2-b	12	64	4	8	16	72		
	Na-24-2-c	24	136	10	48	34	184		
	K-42-2-b	9	28		9	28			
	K-42-2-c	19	79		19	79			
	Cu-64-1-b	8	83	3	6	11	89		
	Cu-64-1-c	17	80	6	12	23	92		
	Ga-72-1	7	7		7	7			
	As-76-1	6	6		6	6			
	Br-82-1	7	23	1	1	8	24		
	La-140-1	3	13		3	13			
	Sm-153-1	1	20		1	20			
	Lu-177-1	3	17		3	17			
	小計	116	556	24	75	140	631		
中寿命	Ca-45-1			1	1	1	1		
	Zn-65-1			1	1	1	1		
	Rb-86-1			1	1	1	1		
	Ag-110m-1	1	2		1	2			
	W-185-1			1	1	1	1		
	小計	1	2	4	4	5	6		
特殊 RI	Cr-51(H.S.A)	4	512	1	10	5	522		
	Cu-64(H.S.A)	5	30		5	30			
	小計	9	542	1	10	10	552		
その他	Co-60 溶液			1	2.02	1	2.02		
合計		252	160,144	60	402	312	160,546		

\* 特殊 RI の項 Cr-51, Cu-64 (H.S.A) およびその他の項 Co-60 溶液は特殊サービス。

(2) 有機標識化合物 (数量 単位 mCi)

項目	所外・所内 件数・数量		所外		所内		累計	
	件数	数量	件数	数量	件数	数量	件数	数量
酢酸ソーダ -1- <sup>14</sup> C	1	1					1	1
*メタノール- <sup>14</sup> C	3	30					3	30
計	4	31					4	31

\* 所外のうち 1 件 5 mCi はカタログ発行前の特殊サービス。

(3) 線源ラジオアイソトープ (数量 単位 mCi)

項目	所外・所内 件数・数量		所外		所内		累計	
	件数	数量	件数	数量	件数	数量	件数	数量
*Co-60 針状線源 (~1mCi)	2	888					2	888
*Ir-192 線源 (~10mCi)	3	1,564,000	1	10,000	4	1,574,000		
計	5	1,564,888	1	10,000	6	1,574,888		

\* Co-60 針状線源 (~1mCi) 全部および Ir-192 線源 (~10mCi) の所外 2 件 894,000 mCi はカタログ発行前の特殊サービスである。

(4) 基準照射物質 (数量 単位 unit)

分類	項目	所外・所内 件数・数量		所外		所内		累計	
		件数	数量	件数	数量	件数	数量	件数	数量
基準照射物質	Cr-1-b	1	1	1	1	2	2		
	Fe-1-b	1	15	1	1	2	16		
	Cu-1-c	1	1			1	1		
	Zn-1-b	1	1			1	1		
	Ge-1-c			1	1	1	1		
	Mo-1-c	1	1			1	1		
	Ag-1-c	1	1			1	1		
	Sb-1-c	1	1			1	1		
	Pr-1-b			2	2	2	2		
	Eu-1-b			2	2	2	2		
	Hf-1-b			1	1	1	1		
合計	Ir-1-b	1	1			1	1		
	Fe-1-c	1	1			1	1		
	Ge-1-b			1	1	1	1		

TABLE 4.15 月別出荷表

(1) 精製ラジオアイソトープ

(数量 単位 mCi)

分類	項目	月別												計	
		4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	43年1月	2月	3月		
大需要	P-32-1	106	1		231	2	50	680	110	250	200	130	380	2,140	
	S-35-1	121	225	215	126	70	180	240	145	175	520	100	120	2,237	
	I-131-1						6	6	3	31	13	5	163	227	
	Au-198-1	3,600		15,361	13,372	13,516	5,110	24,633	19,351	9,594	10,393	19,353	20,470	154,753	
	小計	3,827	226	15,576	13,729	13,588	5,346	25,559	19,609	10,050	11,126	19,588	21,133	159,357	
短寿命	Na-24-2-b			15	2	4		7	5	11	12	15	1	72	
	Na-24-2-c		8	12	24	18	12	24	15		12	20	39	184	
	K-42-2-b			9	3	2			2	2	1	9		28	
	K-42-2-c		5	8	11	5	2	4	4		5	11	24	79	
	Cu-64-1-b			14	8				14	4	42	5	2	89	
	Cu-64-1-c		20	18	19	6	1	4			10	6	8	92	
	Ga-72-1										2	3	2	7	
	As-76-1							1			2	1	2	6	
	Br-82-1				6	13		3					1	1	24
	La-140-1			10							2		1	13	
	Sm-153-1			20										20	
	Lu-177-1				4						3		10	17	
	小計		33	106	77	48	15	43	40	22	86	82	79	631	
中寿命	Ca-45-1											1		1	
	Zn-65-1											1		1	
	Rb-86-1									1				1	
	Ag-110m-1								2					2	
	W-185-1										1			1	
	小計								2	2	2	2		6	
特殊 RI	Cr-51 (H. S. A)	22			200		290						10	522	
	Cu-64 (H. S. A)										15	15		30	
	小計	22			200		290				15	15	10	552	
その他	Co-60 溶液									2.02 $\mu$ Ci				2.02 $\mu$ Ci	
合計		3,849	259	15,682	14,006	13,636	5,651	25,602	19,651	10,074	11,227	19,687	21,222	160,546	

(2) 有機標識化合物

(数量 単位 mCi)

項目	月別												計	
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	43年1月	2月	3月		
CLC-2											1			1
CLC-3				5						20	5			30
合計				5						20	6			31

\* 9月までのものはカタログ発行前に出荷されたものである。

(3) 線源ラジオアイソトープ

(数量 単位 mCi)

項目	月別												計	
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	43年1月	2月	3月		
CNB-1					200	688								888
IPB-1	530,000					364,000					680,000			1,574,000
合計	530,000				200	364,688					680,000			1,574,888

\* 9月までのものはカタログ発行前に出荷されたものである。

に比して延びを示すことができなかった。海外から輸入している製品、とくに外国との長期契約のもとに輸入している製品を国産製品におきかえることが、いかに難事であるかを如実に語るものである。現在事業課において大量需要者との長期契約打合せが進行中であるので、43

年度には飛躍的な増大が期待される。

短寿命ラジオアイソトープ (631 mCi) は前年度実績 (1,114 mCi) に比して約半量となっている。毎週見込生産をおこなっている Na-24, K-42, Cu-64 は計 544 mCi で前年度実績 (1,031 mCi) の約半量である。

(4) 基準照射物質

(数量 単位 unit)

項目	月別													計
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	43年1月	2月	3月		
Cr-1-b									1	1				2
Fe-1-b										1		15		16
Cu-1-c								1						1
Zn-1-b												1		1
Ge-1-c					1									1
Mo-1-c								1						1
Ag-1-c								1						1
Sb-1-c									1					1
Eu-1-b										1	1			2
Pr-1-b]											1	1		2
Hf-1-b											1			1
Ir-1-b												1		1
Fe-1-c								1						1
Ge-1-b					1									1
合計					2		2	3	1	4	2	18		32

TABLE 4.16 精製ラジオアイソトープ利用機関別出荷表

(数量 単位 mCi)

分類	項目	利用機関		大 学										民間研究所		国、公立研究所		所 内		計	
		件数	数量	理		工		農		医		付 属 研 究 所		件数	数 量	件数	数 量	件数	数 量	件数	数 量
				件数	数量	件数	数量	件数	数量	件数	数量	件数	数量								
大 需 要	P-32-1	3	60	2	65	5	135	5	1,005	1	20	9	830	2	3	5	22	32	2,140		
	S-35-1	2	35	1	12	4	85	7	348	1	46	12	1,525	2	25	5	161	34	2,237		
	I-131-1											1	100			17	127	18	227		
	Au-198-1			3	9			4	7			53	154,422	9	312	3	3	72	154,753		
	小 計																				
短 寿 命 RI	Na-24-2-b							8	57	1	2	3	5			4	8	16	72		
	Na-24-2-c	1	5			1	4	13	94	3	12	1	5	5	16	10	48	34	184		
	K-42-2-b	1	1						8	27								9	28		
	K-42-2-c					1	1	13	63	1	5		4	10				19	79		
	Cu-64-1-b	1	36					3	27			1	1	3	19	3	6	11	89		
	Cu-64-1-c			1	1	1	1	6	18	2	6	1	10	6	44	6	12	23	92		
	Ga-72-1													7	7			7	7		
	As-76-1				1	1								5	5			6	6		
	Br-82-1							6	22					1	1	1	1	8	24		
	La-140-1							1	1	1	2			1	10			3	13		
	Sm-153-1													1	20			1	20		
	Lu-177-1	1	10					2	7									3	17		
	小 計																				
中 寿 命 RI	Ca-45-1															1	1	1	1		
	Zn-65-1															1	1	1	1		
	Rb-86-1															1	1	1	1		
	Ag-110m-1												1	2				1	2		
	W-185-1															1	1	1	1		
小 計																					
特 殊 RI	Cr-51(H. S. A)								2	72	2	440			1	10	5	522			
	Cu-64(H. S. A)						1	5	1	10	3	15					5	30			
	小 計																				
そ の 他	Co-60 溶液														1	2.02 $\mu$ Ci	1	2.02 $\mu$ Ci			
合 計		9	147	8	88	12	226	77	1,681	13	175	86	157,353	47	474	60	402	312	160,546		

\* 大需要 RI の P-32, S-35 については放射性同位元素協会受注分が同協会から先の出荷利用機関が不明であり、確実に分類することが困難であるので、過去の実績を勘案して、大学(医学)、民間研究所の数値の中に 70 : 30 の割合で按分した。

中寿命ラジオアイソトープ (5 mCi) は前年度実績 (3 mCi) と比して大差ない。中寿命ラジオアイソトープの大部分は 42 年 10 月よりカタログ化されたものである。まだ周知されていないためと思われる。

特殊ラジオアイソトープも 42 年 10 月に高比放射能 Cr-51 などがカタログに追加されたが、出荷量は Cr-51, Cu-64 の 552 mCi であった。Cr-51 は現在相当量輸入されているので、これに代ってこの出荷が大幅にのびることが期待される。

これら精製ラジオアイソトープの利用機関別出荷表などを TABLE 4.16 および Fig. 4. 2, Fig. 4. 3 に示す。精製ラジオアイソトープの大部分を占める Au-198 を大口に出荷している医薬品会社 (原研製品を原料として医薬品としての処理をおこなっている) を別格として大学および附属研究所 (約 2.3 Cim 1.4%), 国公立研究所 (約 470 mCi 0.3%), 所内 (約 400 mCi 0.3%) の順となっている。

4.5.2 有機標識化合物の出荷状況

有機標識化合物の出荷は 31 mCi で前年度実績 (80 mCi) に比して半減している。原研で製造している有機標識基幹体は二次製造業者など大量需要者に対する大量供給を目途としているが、これら大量需要者への供給計画がまとまらないために出荷量がのびていない。

4.5.3 線源ラジオアイソトープの出荷状況

コバルト針状線源は ~1 mCi/本のものを 888 mCi 出荷した。前年度実績 (2,892 mCi) の約 31% である。

イリジウム線源は 1,574,000 mCi で、前年度実績 (632,500 mCi) に比して約 2.5 倍である。イリジウム線源は X 線にかわって非破壊試験に使用されるもので、関係研究機関の開発用の他に非破壊試験線源メーカーに大量に出荷されており、今後もその需要は急激に増加する見込である。

4.5.4 基準照射物質の出荷状況

基準照射物質 (32 単位) は前年度実績 (33 単位) と同程度である。内容は前年度 Au-198, 10 単位, Ir-192, 7 単位, Ce-141, 7 単位その他であったが、本年度は Fe-55.59, 16 単位その他である。

4.6 試験依頼

本年度の試験依頼は特殊ラジオアイソトープ、高比放射能 Cu-64 について 8 件 89 mCi であった。

高比放射能 Cu-64 は、従来の (n, γ) 反応で製造する

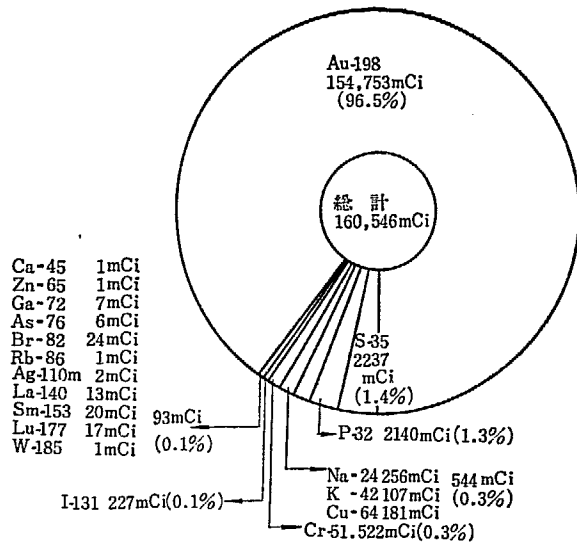
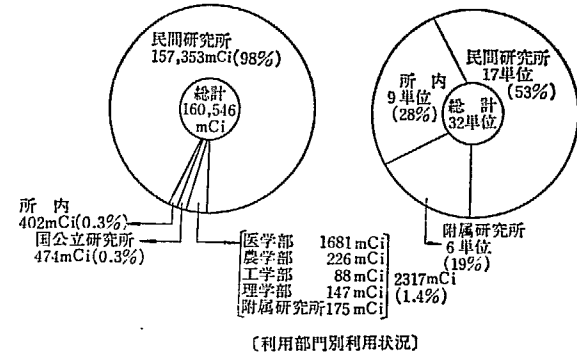


Fig. 4.2 精製ラジオアイソトープ頒布状況



(利用部門別利用状況)

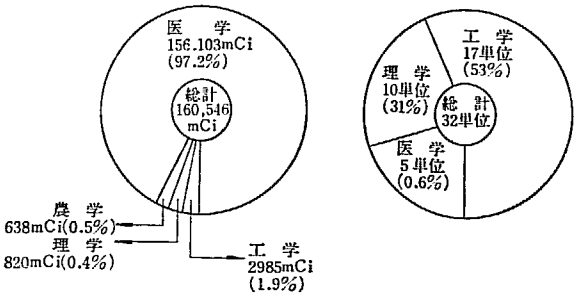


Fig. 4.3 精製ラジオアイソトープ利用機関別出荷表

Cu-64 に比して比放射能が 200 倍のもので、従来の Cu-64 が Cu 自身の生物学的毒性のために医学的な利用範囲が限定されたのに対して、高比放射能 Cu-64 ではその問題が解決し、広い利用が期待されるものである。一方高比放射能 Cu-64 は、ホットアトム効果を利用して製造するものであるが、ホットアトム効果を利用する方法は原子炉内での照射条件その他で微妙な影響があるので、実際に定常的製造に利用することはきわめて高度の技術を必要とし、世界的にも誇りうるものである。

本年度高比放射能 Cu-64 について試験製造をおこない、その製品は東京大学医学部上田内科で実際に使用試験をおこなったが、その結果は良好であった。高比放射能 Cu-64 は 43 年 6 月にカタログ化する予定である。

試験依頼の詳細については「40, 41, 42 年度試験報告」を参照されたい。



## 5. 開発・研究の成果

### 5.1 RI 製造技術の開発

42年度においては I-131 および P-32 製造法の改良、C-14, Hg-203, Br-82, Eu-155, Tc-99m の製造技術の開発を実施した。

#### 5.1.1 I-131 製造技術

I-131 の製品仕様について需要者から要望のあった3項目について検討を実施した。

##### (a) 製品の放射能濃度の向上

需要者の要望は 200 mCi/ml 以上の I-131 製品仕様の確保であったが、現在の炉の稼働率で照射を実施し、既設の製造装置で製造をおこなうかぎりには、60 mCi/ml が限界であった。炉の稼働率の改善は、一朝一夕には実現が不可能であるので、製造装置の部分的改良と、製造工程の一部手直しで解決を計った。すなわち、JRR-3 の 10MW 240hr/cycle 運転で 200g のテルル酸を照射した場合、ターゲット取出週の製造作業では 4 Ci、その翌週の製造作業では 2 Ci の I-131 が製造でき、そのときの最終製品容量を現在の 50 ml から 5 ml に濃縮できれば 200 mCi/ml の製品供給は可能となる。そこで現在の製造装置の最終段に、もう一段濃縮装置を組みこむことで高濃度製品の製造をおこなうこととした。

43年2月初旬に2段目の濃縮装置の組込みを完了し、

コールドランにより操作条件を定め、さらに 400 mCi の取扱い量で4回のホットランを実施して、製品の回収率、スタックからの放出率などを検討・確認したのちに定常製造作業工程での検討をおこなった。

その結果、第2段濃縮装置によって、約 350 mCi/ml まで濃縮可能であるが、濃縮フラスコからの放射能回収率を 80% 以上に保つためには、TABLE 5.1 に見るように洗滌回数を増さねばならず、回収率よく高い濃度の製品を製造することは難しいことが判明した。この点を解決するために、回収方法を2段に分け、最初に 10 ml で高濃度製品 (~350 mCi/ml) を取り出し、ついで 50 ml の水で残りを回収して低濃度製品 (~30 mCi/ml) を取り出すこととした。

##### (b) 非還元性溶液製品の製造技術

現在頒布中の製品は (NaOH+NaHSO<sub>3</sub>) 溶液であって、還元剤を含んでいる。これに対し使用者からは還元剤を含まない製品形を希望してきている。その要望にこたえるため (Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>+NaHCO<sub>3</sub>) 溶液を吸収剤とする製品製造の可能性を検討した。吸収液の組成は Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 0.025 mol に対して NaHCO<sub>3</sub> 0.2 mol であった。前述の高濃度製品がこの溶液の製品についても要望されているため濃縮工程の組み入れは不可欠であり、加熱濃縮にもなう溶液組成の変化の有無の検討が本実験の主な検討項目であった。

現在頒布中の (NaOH+NaHSO<sub>3</sub>) 溶液の pH は 8~11 であるが、(Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>+NaHCO<sub>3</sub>) 溶液の pH は濃縮操作の前後を通じて 9~10.5 であり、現在の製品仕様と変る点はない。また濃縮にあたっては、溶液を煮沸するため

TABLE 5.1 I-131 製造における再濃縮回収率について

回収項目	製造週					
	I	II	I	II	I	
	処理量 Ci	~8	~4	~8	~4	~0.6
	使用セル	B	A	B	A	B
製造番号	C-803	C-804	C-805	C-806	T-805	
製品	4.32 ml (32.3%)	2.4 ml (19.4%)	9.35 ml (49.4%)	7.87 ml (54.0%)	6.51 ml (43.5%)	
水洗 (1)	5.14 " (27.6")	3.62 " (32.1")	3.33 " (15.1")	5.22 " (24.2")	6.87 " (26.5")	
再々濃縮		4.33 " (21.5")	3.49 " (6.67")			
水洗 (2)	4.9 " (9.4")			4.52 " (6.5")	4.02 " (6.4")	
水洗 (3)	~5.0 " (38.0")	7.43 " (9.0")	12.0 " (4.65*)	14.5 " (2.9")	7.1 " (2.06")	
水洗 (4)	~4.0 " (13.6")	14.6 " (2.0")	12.4 " (1.0")	12.5 " (0.41")	12 " (0.33")	
水洗 (5)		~3.0 " (0")	~3.0 " (2.85")	~3.0 " (0")	~3.0 " (0")	
全回収率 (%)	108	84	80	88	79	

( ) 内は収率を示す。

NaHCO<sub>3</sub> の分解がおこり、ヨウ素の捕集効率を低下させ、ヨウ素の一部が捕集されずにセル中に放出され7 SE フィルタを経てスタックから逃れ出るおそれがあった。この点をたしかめるために、煮沸による NaHCO<sub>3</sub> 量の変化を混合アルカリ定量法で実施したが、減少量は当初存在量の 30% 以内であり、ヨウ素の捕集効果を大きく減少させる惧れはないことをたしかめた。ついで、200 mCi から 800 mCi の I-131 を取扱って実際の製造工程を実施した。製品の品質は予備実験結果と完全に一致し、かつスタックからの放出もなく、作業の安全性が確認できた。

#### (c) JRR-2 によるテルル酸照射技術の開発

従来 I-131 生産のためのテルル酸照射は、JRR-3 によってのみ実施されていた。その理由としては、蒸留法による I-131 製造技術の開発の過程で、JRR-2 において照射したテルル酸が、照射中の温度上昇に起因するとおもわれる変化をおこし、蒸留収率を甚しく低下させたことである。JRR-3 には照射孔に炭酸ガス冷却装置を有するものがあり、その位置での照射を実施してテルル酸の照射中の変質はさけられる。

しかしながら、I-131 の頒布開始後、その需要量は急速に増加したため、JRR-2 による照射を併用しなければ必要量の確保は困難となってきた。

JRR-2 照射中にテルル酸のうける変質は、照射中の試料温度の上昇によると推定されることから、テルル酸 200g 当りの I-131 生成量が 4 Ci 以上で照射中の温度が低く保てるような照射孔の選定に重点をおいた。

その結果、JRR-2 の VT-2 照射孔で静止軽水中に浸して照射する方式を完成し、最大出荷量 3 Ci の確保が可能となった。43 年度以降の I-131 出荷計画においては JRR-2 も I-131 生産炉として組み入れてある。

### 5.1.2 P-32 製造技術の開発

#### (a) 中空円筒燃料内照射の実用化

<sup>32</sup>S (n, p) <sup>32</sup>P 反応の核反応断面積は 60 mb であり、しきい値 (threshold energy) は 0.96 MeV である。したがって速中性子束の高い炉心内燃料の近傍で照射することが P-32 を大量製造するためにのぞましい。こうした照射方法を開発するべく、41 年度当初より、JRR-2 の中空円筒燃料内でのイオウターゲットの照射技術の開発をおこなってきた。しかし、照射中にイオウが発熱溶解し、カプセル内圧が高くなり、さらに照射後カプセルにイオウが付着するなどの問題点が発見されたため、ただちに実用化するには至らなかった。42 年度には上記問題点についての炉外実験を実施した結果にもとづいて 1 カプセル中のイオウの重量を 60 g に制限し、1 回に 4 カプセルを照射するように照射条件を定めたうえで数回の照射を実施し、照射直後でイオウ 200 g について 45

Ci の P-32 を製造することができた。この中空円筒燃料照射孔の速中性子束の値は  $2.2 \times 10^{13} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  で VT-1 照射孔における速中性子束  $1.4 \times 10^{13} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  の約 1.5 倍であることを実測した。

#### (b) 減圧蒸留法の実用化

従来、P-32 を S-35 から分離する方法としては窒素雰囲気中でイオウを加熱蒸留する方法を採用してきた。この方法ではイオウの発火点 (360°C 空気中) 以上の温度で蒸留 (沸点 445°C) をおこなうので、放射性イオウの発火、燃焼の危険が常にある。42 年度より、大量の放射性イオウ (S-35 および P-32 を含む) を安全に処理するため、減圧下において 200°C 程度の比較的低温でイオウを蒸留する方法を採用した。数多くのコールドランの結果、下記のような蒸留条件を設定した。イオウターゲットの処理量 (蒸留ルツボは 60~500 g まで処理可能) は通常 180 g とする。減圧度が 3 mmHg 以下になったら蒸留操作をおこなう (蒸留温度は 10 mmHg で 288°C, 3 mmHg で 208°C である)。この条件下での蒸留時間は 20~30 分間であり、これは窒素雰囲気中での蒸留時間と同程度の蒸留時間である。10 mmHg 以上の減圧度が出なければ加熱源が働かないよう自動制御装置を設定した。亜硫酸ガスおよび酸による腐蝕を考慮して装置はすべて密閉化した。

10 月よりセミホットランおよびホットランをそれぞれ 3 回および 6 回おこない、2 ないし 4 Ci の P-32 を出荷することが可能になった。イオウ減圧蒸留について努力した点は、i) 蒸留中真空ポンプの方へ飛散してくるガス状イオウの捕集トラップの形状、ii) 減圧度が定常的に 3 mmHg 程度になるよう装置の気密性の保持、iii) 自動温度調節器、水流警報装置、真空警報装置などを取り入れた安全な操作法の探究、であった。

#### (c) 製品収率向上のための実験

大需要装置を使用しての P-32 大量製造の結果、製品収率は 20 ないし 60% であり、変動がはげしくしかも低収率であることが問題となった。こうした収率の低下変動の原因と考えられる点について、下記のような種々の実験・検討をおこなった。

- i) カプセルに付着する P-32 の定量
- ii) 煮出し後ルツボに残存する P-32 の定量
- iii) イオン交換樹脂に付着する P-32 の定量
- iv) ガラス装置に吸着する P-32 の定量
- v) 濃縮装置に付着する P-32 の定量

これらのうち ii), iii) および iv) については各々 2% 以下の値しか検出されず、主としてカプセルおよび濃縮器に P-32 が残存することがわかった。アルミニウムカプセルには 25% 前後の P-32 が残存することがわかった。カプセル付着量を少なくするようにカプセルを処理するか、あるいはターゲット溶出後、付着する P-32

を塩酸で溶解，分取し製品部分に加えて製造するかどうかは現在検討中である。また濃縮操作によって濃縮器に20%前後のP-32が付着することがわかった。この付着については操作を改良することにより10%以下にすることが可能になった。したがって，現在では40%程度の比較的安定した収率を得ることに成功している。

### 5.1.3 Tc-99m 製造技術の開発

Tc-99m は医薬用に使用される需要の多い核種である。一般にはMo-99をアルミナカラムに吸着させ，Tc-99mジェネレーターとして市販されている。

原研でTc-99mを供給する場合，2つの方法が考えられる。

i) F.P.よりMo-99を分離し，ジェネレーターとして供給する。

ii)  $^{98}\text{Mo}$  ( $n, \gamma$ )  $^{99}\text{Mo}$  反応により生成したMo-99からTc-99mを分離し，Tc-99m溶液を供給する。

上記のi)による方法については，5.6に述べるように開発が進んでいるが，Mo-99以外にI-131, Ru-103などの化学挙動の複雑な核種を取り扱わなければならないので，ターゲットの照射技術，製造施設の開発など解決すべき問題が山積していて，急速な進展は望み難い。できるだけ速やかに当面の要求に応ずるためにii)の行き方を採用することとして，下記の二方式について検討を実施した。

(a) 沈澱分離と陰イオン交換分離を組合わせた方法  
できるだけ現在までに習得した製造操作技術の組合わせた製造することを目的とする方法である。

i) 照射した約50gの酸化モリブデンを加熱したアンモニア水に溶解する。

ii) 塩酸でpH2とし，大部分のモリブデンを沈澱として除去する。

iii) アルミナカラムに通して残りのモリブデンを吸着させ，引きつづき陰イオン交換樹脂カラムに通してTc-99mを吸着させる。

iv) 陰イオン交換樹脂からTc-99mを6規定硝酸で分離する。

v) 蒸発乾固したのち0.1規定塩酸に溶解する。

上記操作法において，沈澱分離のさいに約10%のTc-99mが失われるほかiv)の操作までは良好な結果をえた。しかし医薬用として供給するさいに生理食塩水または薄い塩酸溶液とし，硝酸イオンの存在はさけることが必要である。そのために最後のステップで蒸発乾固して硝酸を除くのであるが，そのさいTc-99mの大部分が揮発し去ってしまうこともある。この難点を解決すべく多くの工夫を試みたが，硝酸イオンをほとんど完全に除き，しかもTc-99mを常に一定の高収率で得る方法はえられなかった。

### (b) 有機溶媒抽出法

有機溶媒抽出法は現在まで製造操作としての経験がなく，装置の複雑化，有機溶媒の火災に対する危険性などがあるため，できるだけ溶媒抽出法をさける方向で検討したのであるが，(a)の方法は最後の蒸発操作において失敗したので溶媒抽出法について検討した。

i) 照射した酸化モリブデンを5規定苛性ソーダに溶解する。

ii) メチルエチルケトンで抽出し，有機溶媒を蒸発させる。

iii) 水に溶解し，陽イオン交換樹脂に通してナトリウムイオンを除く。引き続きアルミナカラムに通してTc-99mおよび混入した微量のモリブデンを吸着する。

iv) 0.1規定の塩酸でTc-99mを溶離し，引き続き陽イオン交換樹脂を通して溶解した微量のアルミニウムイオンを除く。

上記全操作を通じてTc-99mの収率は90%以上であって，かつ(a)法にくらべはるかに高かった。

上記の検討結果にもとづいて，有機溶媒抽出法を採用することとし，同法の装置化を43年9月完成を目標として推進中である。

### 5.1.4 C-14 製造技術の開発

#### (a) 製造法の検討

窒化アルミニウムを流速350~500cc/minの酸素気流中でいろいろの温度において加熱し，加熱時間と窒化アルミニウムの酸化の割合の関係を求めた。結果をTABLE 5.2に示す。1,100°Cで8時間加熱した場合，いくつかの実験が一致して98%の酸化割合を示した。この温度で照射した窒化アルミニウムを処理すればC-14の高い収率が期待できる。ここで使用した装置は高温での運転が困難なので，新しい装置を製作してさらに検討を続ける。しかし一方では高温で100g量の窒化アルミニウムを処理する装置の設計には種々の難点があるので，比較的低温で窒化アルミニウムを酸化する助燃剤の使用を考えた。そのために錫粉末の使用を試みたが効果がなく，さらに酸化鉛PbOまたはPbO<sub>2</sub>の利用を試験する予定である。

TABLE 5.2 加熱温度とAINの酸化の割合(単位は%)

時間 hr \ 温度°C	0.7	2	4	6	8
900	9.6	32.8	—	—	—
950	—	53.6	64.8	72.3	—
1,000	—	—	73.8	74.1	70.2
1,050	—	—	85.6	—	—
1,100	—	—	—	—	98.0

#### (b) 照射法の検討

窒化アルミニウム 20 g を冷間圧接型カプセル (5.1.4 (c) 参照) につめ、JRR-2 で 10 サイクル 1,300 時間、 $nvt 2 \times 10^{20}$  で照射した試料 4 本のうち 1 本が炉より取出直後に破損する事故が起きた。この原因として窒化アルミニウムの照射中に起る分解が考えられ、窒化アルミニウムの分解試験をおこなった。この試験は 1) 熱分解試験、2) 事故を起したカプセルと同時に照射した窒化アルミニウム用カプセルおよび JRR-2 で同様の照射条件で照射した窒化アルミニウム用カプセル内の気体圧の測定とその成分の分析、3) 照射した窒化アルミニウム中の窒素含量の分析の 3 種類から成る。Fig. 5.1 に熱分解試験の結果加熱温度・時間と窒化物から放出される気体量の関係を示す。図の結果からみられるように放出される気体の量は時間によって変化していないので、窒化物の分解生成物でなく、単なる吸蔵気体が放出されたものと考えられる。TABLE 5.3 に照射した窒化アルミニウムの試験結果を示す。照射後に 0.08~0.35 cc/gAlN の窒素

の発生が認められた。したがって、事故発生当初に考えられたよりも窒化アルミニウムは安定であることがわかった。照射後のカプセル内圧・窒素量および照射した窒化アルミニウムの窒素含量のいずれから、カプセルの破損が窒化アルミニウムの分解によるとは考えられない。C-14 は JMTR により製造する予定なので、窒化物の照射、とくに高中性子束の照射にたいする安定度についてさらに JRR-2 および JMTR でおこなう予定である。

(c) 気密冷間圧接型カプセルの開発

窒化アルミニウム、テルル酸など照射中に放射性気体を発生する恐れのある物質の照射のために開発してきた気密冷間圧接型カプセルは、種々の試験も終了して C-14, I-131 などの製造に用いられるようになった。

窒化アルミニウム 20 g をつめて JRR-2, VT-8 実験孔で約 1,300 時間照射したカプセルの 1 本が取出直後に破損するという事故が起きた。破損したカプセルの状況を Photo 5.1 から 5.3 に示す。このカプセルは厚さ 2 mm の 2S 級アルミニウムを Fig. 5.2 (a) のような装置で圧接したもので、圧接後のおおよその形は同図 (b) のようになる。破損したカプセルは図に示した破損箇所 c で蓋と本体が水平に切断されている。この部分は圧接後歪の最も大きい所である。この破損事故原因の解明は照射中の窒化アルミニウムの分解によるカプセル内圧の上昇とカプセルの材料力学的欠陥の二面からおこなわれた。(窒化アルミニウムの分解については 5.1.4 (b) 参照)。

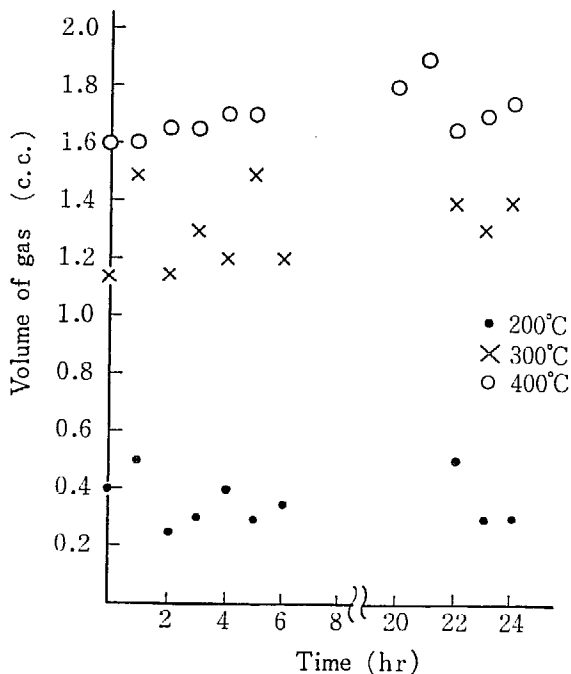


Fig. 5.1 Volume of gas emitted from AlN heated in vacuum

TABLE 5.3 照射した AlN の試験結果

照射 試料 No.	JRR-2				JRR-3	
	1	2	3	4 <sup>1)</sup>	1	2
AlN 含量 (%) <sup>2)</sup>	97.0 ±0.1	93.6 ±0.3	95.8 ±0.4	96.7 ±0.2	96.7 ±0.2	96.6 ±0.4
カプセル内圧 (mmHg <sup>3)</sup> )	1,700	1,780	1,756	—	1,530	1,490
カプセル内 N <sub>2</sub> 容積 (cc)	6.85	5.98	3.06	—	3.28	1.45
カプセル内 N <sub>2</sub> 分圧 (mmHg)	212	185	94.5	—	103	44.8

- 1) 破損事故を起したカプセル
- 2) 照射前の AlN 含量 97.7±.7%
- 3) He 雰囲気中で圧接したカプセル内の推定内圧は 918~1,052 mmHg



Photo 5.1 Broken capsule

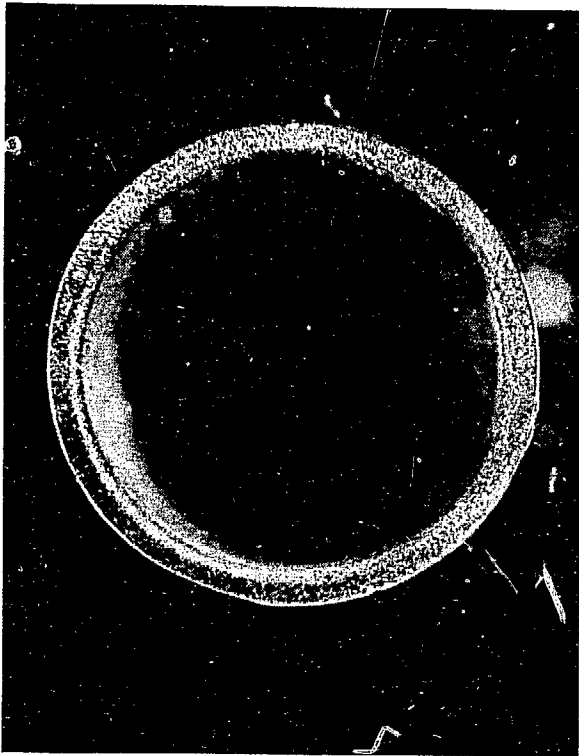


Photo 5.2 Profile of broken capsule

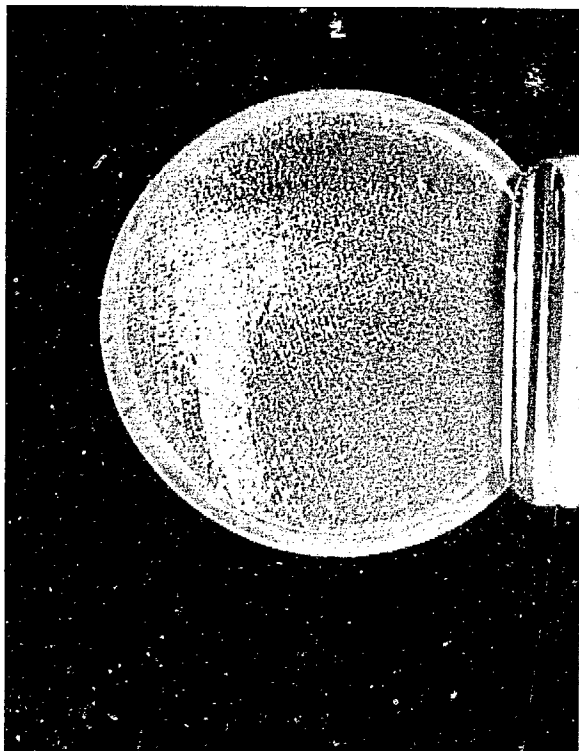


Photo 5.3 Inner-side of the cover

カプセル開発の段階では、気密に重点を置き耐圧は検討されていなかったため、まず圧接部位の油圧による耐圧試験を実施した。その結果を TABLE 5.4 に示す。2回の試験で破損箇所の違いが目立ち、これはそれぞれの試験に用いたカプセル材質の相違によるものと解釈された。耐圧の違いは、試験に用いた圧力計の指示の誤差があるため有意の値かどうか不明である。第2回の試験で

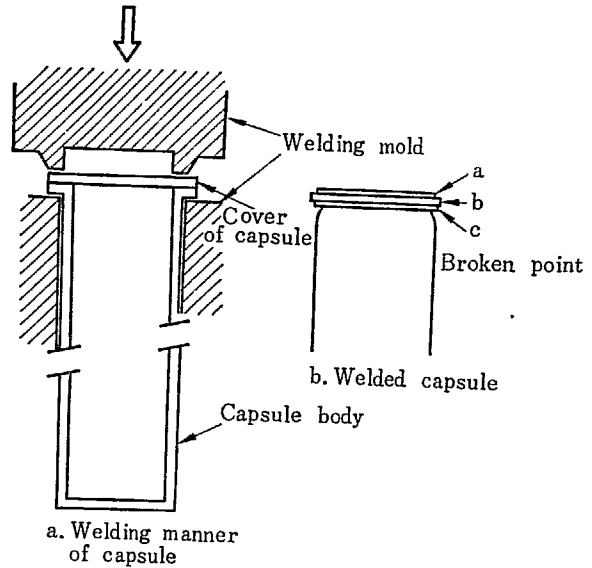


Fig. 5.2

TABLE 5.4 圧着したカプセルの耐圧試験結果

破 損 箇 所	第 1 回		第 2 回	
	数	壊圧 kg/cm <sup>2</sup>	数	壊圧 kg/cm <sup>2</sup>
ツバ上部, (a)	0	—	5	82
圧 接 面, (b)	6	53	14	78
ツバ下部, (c)	8	66	8	78
圧接面とツバ下部, (b)-(c)	4	61	0	—

は圧接したカプセルを 140°C に 180 時間連続および断続に加熱したものと JRR-2 で 1 サイクル  $\sim 0.4 \times 10^{20}$  の nvt で照射したものを試験したが、予想どおり無処理のカプセルと有意の差は認められなかった。事故の起きたカプセルは放射線量の減少を待ち、構造強度試験室に依頼して事故原因の解析をおこなう。このカプセルは本来気密を目標とし、高い耐圧は必要としないが、信頼度をより高めるために耐圧試験の結果にもとづいてカプセル材料の吟味と圧接状態、耐圧の関連を検討する予定である。

### 5.1.5 Eu-155 製造技術の開発

Eu-155 は Tm-170 に比較して、半減期、 $\gamma$  線分岐比などすべての点で優れているので、早くから低エネルギー  $\gamma$  線源として注目された。ことに比放射能については  $(n, \gamma)$  反応により無担体で製造しうるので比較にならぬほど有利である。しかしながら後述のように濃縮安定同位元素 Sm-154 を使用すること、サマリウムとユウロピウムの分離は希土類元素相互の分離のうちでも最も困難なものに属すること、したがって試料の損失を考慮に入れる必要のあるためか著しく高価であって実用に供されるに至っていない。これらの事項に留意して、分離操作の再現性、放射性不純物、不揮発性残渣、目的の放射性同位元素の収率、ターゲット希土類元素の回収率を検討し、製造方法を完成した。

## (a) 試料

Sm-149 の自己遮蔽効果をさげ、イオン交換分離における希土類元素の吸着量を最少とするため、濃縮安定同位元素 Sm-154 (濃度 99.21%) を輸入して用いた。この酸化物をアルミニウム箔または銅箔に包んで照射する。後述のように後者の方が製造に適している。

## (b) 分離

照射後硝酸を用いてアルミニウム箔を残してターゲットを溶解する。銅箔を用いたときには箔とともに酸化剤を含む塩酸に溶解する。これを塩について 0.3 規定、酸について 0.1 規定程度の塩酸溶液としてイオン交換樹脂に吸着させる。

500~600 mg の酸化サマリウムに対して、ダイアイオン SK-1, 100~200 メッシュ, NH<sub>4</sub>R 型樹脂をつめた 18 mm  $\phi$   $\times$  15 cm, 12 mm  $\phi$   $\times$  31 cm 2 本を連続したカラムを用いた。溶離液としてはあらかじめ用意した濃厚原液, 2.5 モル  $\alpha$  ヒドロキシイソラク酸 (HB) およびそのアンモニウム塩溶液 (NH<sub>4</sub>B) から, HB 77.5: NH<sub>4</sub>B 22.5 の割合に混合して, 0.5 モル溶液をつくって使用した。

Eu-155 の流出開始, ピーク, 流出終了の位置は原液の混合比, 希釈のわずかな差, ならびに室温の差などのために 20% 程度の変動があるので毎回流出液の放射能を監視する必要がある。銅箔を用いたときには Eu-155 の流出までに銅イオンは流出し, 銅イオンの流出終了と Eu-155 の流出開始の間に数十 ml の溶離液のみの部分が認められる。ただしテーリングによる微量の銅は Eu-155 フラクシオンに含まれるが, 後述の最終精製操作で完全に除去される。

## (c) Sm-154 の回収

Eu-155 の流出後, カラムを水洗し, 0.5 モルクエン酸 4.0-クエン酸第 2 アンモン 60 の混合溶液で, カラムに残っている Sm-154 を溶離する。この溶液を塩酸酸性として, 飽和シュウ酸の熱溶液を同量加えて一夜放置し, 生じたシュウ酸サマリウムをろ過, 洗浄, 焼灼して, 酸化物に転換する。白金ルツボ内で得た酸化物はろ紙灰ごとつきの照射に使用する。

Sm-154 の回収率は 99% 程度であったが, これには液滴試料として採取した分を含まないので, 実損失量は 1% を超えることはない。本質的な Sm-154 の損失は上記沈殿操作における溶解度に基因するものに限られるから, この溶液からイオン交換により回収すれば Sm-154 は定量的に回収されるであろう。

## (d) 濃縮と最終精製

上記分離操作でえられる Eu-155 を含む溶液は 600~700 ml に達するので濃縮しておくのが有利である。この溶液に含まれるアンモニウム塩と当量の塩酸を加え,

ダイアイオン SK-1, 100~200 メッシュ, 8 mm  $\phi$   $\times$  20 cm の NH<sub>4</sub>R 型カラムに通す。水洗後 0.25 モルクエン酸混合溶液 (酸 4: 第 2 アンモニウム塩 6) で Eu-155 を溶離する。加えた塩酸の過不足により流出は多少前後するが, 流出液 10 ml に定量的に流出する。

この Eu-155 溶液から含まれる有機酸, アンモニウム塩を除去するため最終精製をおこなう。同様に塩酸を添加し, HR 型の同じ樹脂をつめた 4 mm  $\phi$   $\times$  15 cm のカラムに通す。水洗後 2 規定塩酸 12~15 ml で洗えば, 上記の成分は除去される。随伴した微量の銅などもここで完全に除かれる。その後 4 規定塩酸 15 ml 程度で Eu-155 を定量的に流出することができる。注意して乾固すればほとんど残渣を認めない Eu-155 製品がえられる。ガラス容器の秤量再現性のため不揮発性残渣の重量は 50  $\mu$ g 以下程度としか確認しえなかった。この試料中に含まれる Eu-155 の重量は約 30  $\mu$ g と計算される。

## (e) 放射性不純物

原試料は一般に純粋であるが, バッチにより Sc-46, Eu-154 が認められた。前者は分離操作で溶離開始直ちに溶離されるのでさしつかえない。後者は試料中に Eu-153 を含むためであり, 第 1 回の製品は不純となるが, 回収した Sm-154 試料を用いた第 2 回照射試料には含まれない。

回収した Sm-154 試料を用いた場合の分離試験では, 白金ルツボに由来すると考えられる Ir-192, ロ紙灰に由来すると考えられる Co-60, Zn-65 が認められた。いずれも Eu-155 流出位置から遠いので, このフラクシオンに混入する恐れはない。また濃縮, 最終精製操作には他の放射能は何れのフラクシオンにもこれまで認められていない。

なお照射後の冷却期間が短いときには中性子 2 次吸収による Eu-156 が含まれるが, 放置すれば消滅する。

## (f) その他の分離例

他の (n,  $\gamma$ )  $\beta$  反応試料およびサイクロトロンを用いる (p, m), ( $\alpha$ , m) 反応試料も類似の方法で処理した。これらの場合ターゲット元素の種類とその重量により, 分離操作のみイオン交換カラムの寸法と溶離液の濃度, 組成を変更する。以下の操作は全く同一でよい。

5.1.6 (n,  $\gamma$ ) 反応により製造する RI

## (a) Br-82 製造技術の開発

従来 Br-82 製造用のターゲットとして臭化アンモニウムを使用していた。このターゲットは熱や放射線によって分解されやすいため照射条件が厳しく制限されていた。したがって比放射能の低い Br-82 しか得られなかった。そこでもっと比放射能の高い Br-82 を得ることを目的として, 臭化カリウムターゲットを使用し長時間照射

した時の Br-82 製造法を検討した。

照射は JRR-2 の VT-4 照射孔で 180 時間または JRR-3 の VR-2-10 照射孔で 240 時間おこなった。得られた Br-82 の比放射能は、JRR-3 照射の場合約 3.6 Ci/g であった。5 日後出荷するとしてこの時点で約 0.35 Ci/g となり、現在の Br-82 製品 (15 mCi/g) の 20 倍の高比放射能 Br-82 が得られる。同時に生成する Br-80m は出荷時までには減衰してしまい問題にならない。また K-42 は、のちに述べるように陽イオン交換樹脂によって除去される。ペーパークロマト法 (展開剤: エタノール 80, 1 規定アンモニア水 20) で測定した結果、照射したターゲット中の Br-82 の化学形は 99.5% 以上が臭素イオンであることがわかった。

製品の化学形を臭化ナトリウムの水溶液とし、かつカリウムイオンを除去するため、陽イオン交換樹脂を用いる二通りの方法を検討した。

すなわち、

i) 臭化カリウム水溶液に H 型陽イオン交換樹脂を通し、続いて Na 型陽イオン交換樹脂を通す方法、

ii) 臭化カリウム水溶液を直接 Na 型陽イオン交換樹脂を通す方法、

の二通りである。

いずれの場合にも 1g のターゲットは約 15 ml のイオン交換樹脂によりほとんど完全に臭化ナトリウム水溶液にかえられることがわかった。

ターゲット中の不純物としては、小宗化学社製臭化カリウム特級試薬を用いた場合、塩素が 370 ppm, ルビジウムが 8 ppm 検出された。このターゲットでは塩素により生成する S-35 の混入が問題となる。

このため J. M. 社製臭化カリウムのターゲットについて検討中である。

これらの実験結果から設定した製造法を TABLE 5.5 に示す。

TABLE 5.5 Br-82 製造プロセス

照射	炉	照射孔	照射時間	出荷日
	JRR-2	VT-4	200 時間	翌週火曜日
JRR-3	VR-2-10	240 時間	翌週木曜日	
製造法	KBr 0.1 g を水 5 ml に溶解し、Na 型陽イオン交換樹脂 (~1.5 ml) に通し、水 10 ml を流し全量を 15 ml にする。			
比放射能	200~400 mCi/g・Br (出荷時)			
放射能濃度	~2 mCi/ml			
化学形	NaBr 水溶液			

## (b) Hg-203

### (1) 照射技術の開発

原子炉を利用して水銀の放射性同位元素 (Hg-197, 197m および 203) を製造する場合、水銀は昇華・揮散しやすく、また種々の材料とアマルガムを作り原子炉材

料を腐蝕させることなどが問題となってくる。このため水銀の照射には特別の安全性が要求される。ターゲットの化学形の選定から始まって主としてカプセルの問題点について照射技術の開発を進めた。

41年度第2四半期にターゲットに酸化第二水銀を採用し、石英、鉄およびアルミニウム製カプセルによる3重の包装で充分安全に照射ができるかどうかを検討することに決定した。同年度第4四半期に酸化水銀ターゲット (J. M. 製朱色) の不純物分析、光による分解実験および熱天秤による分解量測定をおこなった。その結果酸化水銀ターゲットには問題となる程度の不純物はなく、光による分解量も無視できる程度であるが、380°C 以上の温度で熱分解することがわかった。

42年度第1四半期にステンレスカプセルの He リークテスト、耐熱テスト、落下テスト、溶接時の試料部分の温度測定、誘導放射能計算等をおこなった。第2四半期にステンレス製カプセルの耐圧テストをおこない、第3四半期にカプセルの照射により誘導される放射能の測定をおこなった。これらの結果、包装条件としては酸化水銀を石英管に減圧封入し、ステンレス製カプセルに溶封した上でさらに冷間圧接型アルミニウム製カプセルに入れて減圧圧着すれば、320°C 程度で 240 時間放置しても外見上の変化もなく、ヘリウム・リークも  $10^{-9}$  A. cc/sec 以下であり、5m の自然落下にも充分耐えることがわかった。またステンレス製カプセルは 200 kg/cm<sup>2</sup> 以上の内圧に耐え、これは 1g の酸化水銀が 300°C で全部分解気化したと仮定した場合の4倍であることがわかった。誘導放射能の値も実測値と計算値は比較的良好一致し、5cm の鉛容器および鉛セルを使用すれば充分操作できることがわかった。第4四半期に 10, 50 および 100 mg の酸化水銀を JRR-2 の VT-4 および VT-9 で 180 時間照射した。

これらの照射試料について 43 年度第1四半期に分解量の測定をおこない、異常がなければ 1g までの酸化水銀を照射できることになる予定である。

### (2) Hg-203 製造技術の開発

Hg-203 の製造装置については、42 年度第3四半期にアルミニウム製カプセル、ステンレス製カプセルおよび石英アンプルの開封が遠隔操作で確実にできるような装置を試作した。また水銀製品の化学形を硝酸形と塩酸形のどちらでもできるように溶解実験をおこない、溶解方法を確立した。第4四半期に 304 室の 5cm の鉛でしゃへいしたインナーボックスセルに上記開封装置、溶解装置、配分装置、トラップ類、真空ポンプおよびコック類の組込を完了し、コールドランをおこなった。

この Hg-203 製造装置の特徴は以下に述べるようなことである。

i) 多種類のカプセル (アルミニウム、ステンレス、石英) の遠隔開封操作ができること。

ii) Hg-203 の揮散を充分考慮してセルの換気・気密

を満足できるものとした。

ⅲ) ステンレス製カプセルの切りクズでセル内を汚染させないためにカッターをボックス内に入れ、カッターボックスをセルより減圧に保つことにした。

ⅳ) ターゲット溶解操作は気密系でセルより減圧下で操作できる。

ⅴ) 溶解中の蒸気は液体トラップおよび固体トラップを通して排気し、液体トラップは遠隔交換が可能でしかも採取できる。

ⅴ) セル上のフィルターには通常のプレフィルター、アブソリュートフィルターにさらに銅片を加え、気化した金属水銀をアマルガムとして捕集することにした。

ⅴ) 石英管の粉末が混入した場合ろ過できる装置をさらに加えた。

ⅴ) 将来 Hg-197, 197m の製造ができるような考慮をつけ加えた。

ⅴ) 気送管用ポリエチレン製カプセルも開封できるようにニクロムカッターを装備した。

この Hg-203 製造装置でのコールドランの結果は満足すべきものであった。

## 5.2 特殊 RI 製造技術の開発

特殊アイソトープ製造技術は、昭和 38 年に製造研究室の小テーマとして発足して以来、RI 製造第 1 次 5 年計画当初より計画された核種 1 種、未計画核種 3 種の実用化に成功した。42 年度においてはこれらをすべてカタログ化し、頒布を開始するに至った。

しかし特殊アイソトープ製造技術において検討している製法の特異性、製品仕様の特異性という 2 つの特色を発揮するためには、その基礎となるホットアトム効果自体の研究にはじまる数多くの基礎的課題を今後ともさらにつきつめて解決してゆく必要がある。

### 5.2.1 高比放射能 Cr-51

ホットアトム効果を利用して高比放射能 Cr-51 を製造しようとする試みは昭和 35 年以来実施され、初期には Cr-51 の収率、プロセスの基礎的な問題の検討がおこなわれた。以後は量産化を目指して中間規模への取扱い量のレベルアップが実施され現在に至っている。

今年度においては、40, 41 年度に継続実施された製造プロセスの決定、製造装置の試作をうけ、年度の前半において製造プロセスの要綱を確立し、試作した製造装置によるプロセスを反復実施した。しかしながら、定常生産に関しては、製品品位の向上という需要者の要望、原子炉照射パターンの変更、試作装置にみられた若干の欠点などの問題が生じたため、年度後半において試作装置

の全面的な更改を実施し、次年度に若干の問題を引継ぐことになった。

#### (a) 照射およびターゲット

今年度においては安定定常生産に資するため、JRR-3 ばかりでなく、JRR-2 についても照射を実施した。JRR-3 については製品の品位向上を目指して、照射孔、照射位置を種々変更して照射条件の相異による製品品位への影響を追求した。また JRR-3 の 1 サイクルの運転時間が 130 時間から 240 時間へと延長されたことによって従来おこなわれてきた照射条件ではターゲット物質の分解量が増加し、製品の比放射能の低下が認められたものがあった。照射条件の差異が製品品位におよぼす影響について検討した結果を TABLE 5.6 に示した。この問題を解決して比放射能  $1.0 \times 10^5$  mCi/g-Cr の製品々質を確保するようにさらに検討中である。

ターゲット物質としては市販関東化学製特級クロム酸カリウムを使用している。

TABLE 5.6 Cr-51 試作結果

照射条件 炉, 孔, 段	全熱中性子数 (nvt)	<sup>51</sup> Cr 化学収率 (%)	<sup>51</sup> Cr 収量/ 50 g ター ゲット (mCi)	比放射能 mCi/gCr (照射終 了直後)
R3, VR, 11	$5 \times 10^{18}$	6.1	16	$7.2 \times 10^4$
" , " , "	$9 \times 10^{18}$	7.5	340	$2.5 \times 10^4$
" , " , "	$9 \times 10^{18}$	8.5	400	$9.3 \times 10^4$
" , " , "	$8 \times 10^{18}$	8.6	360	$2.5 \times 10^4$
" , " , "	$9 \times 10^{18}$	8.4	390	$1.1 \times 10^5$
" , " , "	$9 \times 10^{18}$	7.6	350	$2.6 \times 10^4$
" , " , "	$6.5 \times 10^{18}$	11.9	460	$4.6 \times 10^4$
" , " , 17	$9 \times 10^{17}$	17.8	82	$6.0 \times 10^4$
" , " , "	$9 \times 10^{17}$	19.7	85	$4.9 \times 10^4$
R2, VT, 9	$8 \times 10^{18}$	8.1	320	$9.4 \times 10^3$
" , " , "	$6.5 \times 10^{18}$	4.4	140	$7.2 \times 10^3$

#### (b) 製造プロセス

照射したクロム酸カリウムを水溶液とする。ついで高比放射能に濃縮された Cr-51 成分の沈殿を生成し、これを分離するという共沈分離方式により、現在の照射条件では 15,000 mCi/gCr 以上の比放射能を保証する製品の供給が可能となっている。しかし、医薬用品としてはさらに高い比放射能をとる要望もあり、ホットアトム効果の基礎的な問題点を再検討することによって若干の改善の余地があると考えているので、これを次年度に実施する。

#### (c) 製造施設および製造装置

Cr-51 の製造には、製造棟 305 室の汎用フードを製造施設として使用している。このフードはベンチが固定しており、フードの側面および後面に 5 cm 厚みの鉄製遮蔽体をもつ独立した 1 基のインナボックスからなる。したがって前面遮蔽体は取扱核種に応じて適宜組立てて使用できるようになっている。



ホットアトム効果を利用する高比放射能 RI 製造のプロセスは、一般的に精製 RI のなかでもっとも複雑な、たとえば I-131 などと等しいか、場合によってはそれよりもさらに複雑であり、当然工程数も多い。Cr-51 もその例に洩れず 40 年度に考案され、42 年度にひきついで製造装置は 2 基のフードを使用し、製造プロセスの途中で中間生成物をフードからフードへと搬送する作業が必要となっていた。この操作のため後面アクセス扉を開閉することは安全対策上問題があった。このため年度後半において後面扉への試料搬出入口の設置、および 1 基のフード内で大半の作業を完結する新装置の設計、製作、フード内への組込作業を実施し、問題点を一挙に解決できた。本作業の実施により施設面ではキュリーレベルの Cr-51 の取扱いが可能となった。次年度本装置の運転実績をみて定常化へと移行できよう。新装置は大需要 RI と同様に全密閉方式を採用し、汚染要因を大幅に減じている (4.3.2 特殊 RI 製造参照)。

#### (d) 作業および品質管理

オペレーションマニュアルおよび作業工程表を作成した。

品質管理の対象には、Cr-51 化学収率の測定、熱中性子束測定、製品および半製品 pH の測定、製品放射能濃度検定がある。品質面ではさらに医療用への使用という観点から、食塩濃度検定 (Osmolarity) の必要と放射能濃度上昇に対処する微量クロム定量法の確立が急務となっている。

#### 5.2.2 高比放射能 Cu-64

Cu-64 については、フタロシアニン銅のホットアトム効果が 7 年来研究され、フタロシアニン銅の結晶形の相違によりリテンションが異なるという新しい知見が得られた。昭和 41 年度にこの研究を基礎として高比放射能 Cu-64 を製造しようとする実用化研究に着手した。昭和 42 年度には年度前半において製造プロセスの確立につとめ、後半にはこの量産化を計り成果を得た。年度後半にプロセスの決定、製造装置の設計、試作、フードへの組込み、改造および照射条件の検討と量産化を目標とした全作業が集中し、他の核種の作業に若干影響を与えたが、問題点はほぼ解決し今後定常作業への移行をまっところまで到達した。

#### (a) 照射およびターゲット

JRR-3 の HR 孔による 17 時間照射および JRR-2 気送管による 20 分照射を実施したが、後者については Cu-64 の生成量が十分でないで、年度後半に新たに JRR-2 で運転が開始された気送管による 1 時間照射を追加実施した。

これらの結果によれば、製品品位の上では JRR-3 の

HR 孔、JRR-2 の気送管 1 時間照射のいずれも使用可能であることが TABLE 5.7 より明らかである。

ターゲット物質としては市販の工業用フタロシアニン銅を購入し、これを濃硫酸に溶解後氷水中に滴下して生成した沈殿をろ過し水洗乾燥したものを使用している。

TABLE 5.7 Result on test production of Cu-64

照射条件 炉, 孔, 照射 時間	全熱中性子数 (nvt)	<sup>64</sup> Cu 化 学収率 (%)	<sup>64</sup> Cu 収量/ グラムタ ーゲット (mCi)	比放射能 mCi/gCu (照射直後)
R3, HR, 17	—	18	46	—
" , " , "	—	8.8	22	2.4×10 <sup>5</sup>
" , " , "	—	41	120	3.3×10 <sup>5</sup>
" , " , "	—	52	150	1.2×10 <sup>6</sup>
" , " , "	2.3×10 <sup>17</sup>	16	68	7.0×10 <sup>5</sup>
" , " , "	2.2×10 <sup>17</sup>	12	51	—
" , " , "	2.3×10 <sup>17</sup>	21	89	6.1×10 <sup>5</sup>
" , " , "	3.1×10 <sup>17</sup>	30	106	9.7×10 <sup>5</sup>
" , " , "	—	34	170	—
R2, pn, 1	1.3×10 <sup>17</sup>	4.8	12	—
" , " , "	—	12	22	9.5×10 <sup>5</sup>
" , " , "	—	38	89	6.9×10 <sup>5</sup>
" , " , "	—	31	150	4.7×10 <sup>5</sup>

#### (b) 製造プロセス

高比放射能 Cu-64 製造プロセスについては

i) 濃硫酸溶解→氷水滴下→過塩素酸分解→濃縮→イオン交換カラム処理→製品,

ii) 濃硫酸溶解→氷水滴下→陽イオン交換カラム処理→陰イオン交換カラム処理→製品,

iii) 濃硫酸溶解→氷水希釈→鉄水酸化物共沈→分別沈殿→酢酸処理→製品,

の 3 通りの方法について検討し、iii) の方法を採用することに決定した。この方法の最大の特徴は分別沈殿法の実施によって不純物混入の面からみても、異形の化学種の混入の面からみても製品の純度がきわめて高いことが保証できた点である。またプロセス所要時間は i), ii) に比べて大幅に短縮され、照射試料受取後平均 4.5 時間となった。

製造プロセス上現在の問題点は鉄水酸化物共沈のさいの Cu-64 の共沈率が予想外に低いことで、そのため前 2 法と比較してワンバッチあたりの製品収量が少ないことが欠点である。

#### (c) 製造施設および製造装置

製造施設としては Cr-51 と同じように 305 室の汎用フードを使用している。製造時のオペレーションエリア表面線量率は最大 1 mR/hr に止まるが、予算の不足から試料搬出入口が設置されなかったために安全作業上の問題がのこり、この作業を次年度にひきつぐ。

試作した製造装置は、カプセルロック、溶解槽、ロート、中和沈殿槽、ろ過器、分別沈殿浴、銅沈殿浴 (酢酸処理槽と兼用)、製品ろ過器、配分装置、廃液槽および

真空ラインから成り、これに pH メータヘッドが付属している(装置図は製造の項参照)。オペレーションエリアのフード前面に高さ約 120 cm の 5 cm 鉛遮蔽体をつみ、処理溶液の一部はフード前面上部に設置された分液ロータよりビニール管によってフード内に導入されるようになっている。本装置によりワンバッチ 15 mCi の Cu-64 の生産が可能となった。

これら装置内各部の適否については今後検討する。

#### (d) 作業および品質管理

オペレーションマニュアルおよび作業工程表を作成した。JRR-3 の HR 孔照射については技術的には定常作業を組むことが可能であるので、月間作業日程表を作成し、これに従ってプロセスをおこなっている。

品質管理対象は、分別沈殿のさいの溶液 pH 測定、製品 pH 測定、熱中性子束測定、Cu-64 化学収率測定および放射能濃度検定があり、比放射能測定のための主元素である銅の迅速定量、製品化学種の判別および純度検定などは今後早急に解決を迫られる問題となっている。

### 5.2.3 高比放射能 P-32

昭和 42 年度当初の開発計画が実行され、特殊な仕様の P-32 を P-32-2R としてカタログに記載し、頒布実施という成果を得た。しかし Cr-51 および Cu-64 における問題点処理の影響を受け、P-32 製造技術とくに製造装置の試作を完了するに到らず、これを次年度に繰越した。

ターゲット物質の照射には JRR-3 の VR 孔を使用しているが、P-32 の収率が低く、将来はさらに効率の高い照射条件を探索する必要がある。

ターゲット物質自体はすでに基礎的検討を終了し、市販特級リン酸 1 カリウムを再結晶法により繰返し精製して使用している。本年度中に約 3 キログラムのターゲットを精製した。

製造プロセスは陰イオン交換樹脂による分離をその骨子とする方法で、トリポリリン酸以上の高縮合リン酸形に含まれる P-32 を選択的に分離するもので、すでにマニュアル化されている。しかし量産化の過程で次に述べるように装置に問題点があるため定型化は繰延べる。

製造施設としては RI 棟 305 室のフードを使用している。β 放射体であるので、取扱量が極端に増加しないかぎり施設には問題はない。

製造装置は、溶解槽、陰イオン交換樹脂カラム、濃縮浴、液量計量浴、廃液槽、配分器および真空ラインからなる。このうち濃縮浴は現在の装置では濃縮状況の判別に支障があり、現在新設計分を製作中である。

製品品質の保障のため製品および未精製ターゲット物質の放射化学分析を実施した結果、ターゲット物質中には微量のアンチモンが存在し、このうち約 1 割が製品中に

混入してくることが明らかとなった。このためターゲット物質の精製がおこなわれた。

### 5.2.4 その他の特殊 RI

中性子不足核種の製造を目標とする加速器による RI 製造については従来の結果の整理をおこない、As-74 について基礎的な問題である ( $\gamma$ , n) 反応のさいのホットアトム効果についてまとめをおこなった。また特殊仕様アイソトープに関する研究においては、有機ハロゲン化合物、とくに Br-82 についてプロモホルムのホットアトム効果について研究結果のまとめをおこなった。

これらの問題については、今後実用化を目指して検討する予定である。

### 5.2.5 まとめ

本年度において特殊アイソトープ製造技術の開発のためにおこなった主要業務は RI 棟 305 室汎用フードの整備と量産化の実施であった。量の取扱いの面では不馴れもあって問題もあったし、技術的な問題点についてもこれまで未経験の装置、施設面に集中したために戸惑いもあったが、これらは近い将来克服され、次年度において定常生産体制の整備を図ることが可能となろう。

## 5.3 有機標識化合物の製造技術の開発

基幹物質製造の定常作業化のための技術的諸問題、製品の品質・量をより正確に把握するための分析・測定の技術、有用な新製品を開発するための特殊技術の導入のいずれについても常に検討しなければならない問題を数多く含んでいる。今日、100 mCi、2 ないし 10 mM 程度の規模による製造技術として固められたものは基幹物質としてカタログ化され一定操作に従って製造作業を進められるようになっているが、なお精製方法、品質検定技術の改良とか製品保管にともなう経時変化の追跡など今後とも検討を続けるべき問題を含んでいる。一方、技術開発の主要項目としてすでに“気相、高圧を含む接触反応による製造技術の検討”をとりあげてきた。そして、当初の目標をアセチレン、一酸化炭素の反応に置き、基礎調査、装置の設計組立、安全取扱い等の検討経過を経て 42 年度は原料合成や触媒調製に主目標を定めると同時にアセチレンの環化重合によるベンゼンの合成実験に着手した。標識化合物の取扱時、とくに製品についての放射化学純度を確認する場合、ラジオガスクロマトグラフィ、ペーパー(薄層)クロマトグラフィなどが有力な手段となるので、その定量的扱いを満足させる技術の確立が急務である。42 年度はそれまでに得られた定性

技術をもとにして定量技術の確立へと進んだ。放射能の測定は、従来もっとも簡単におこなえる方法、すなわち湿式酸化から  $BaCO_3$  の測定試料を調製し、端窓型 GM 管により計数する方法をとっていたが、測定精度が不十分であること、単一方式のみたよるのは危険であることなどの理由から、精度のよい2つ以上の放射能測定法を併用することにして液体シンチレーション計数とガスサンプル計数の両方式を採用し、ある程度実用化した技術を土台に、より精度の高い測定技術の習得に力をそそいだ。

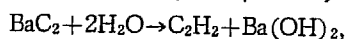
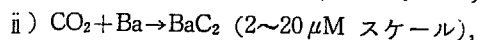
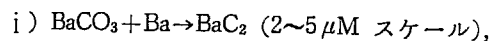
### 5.3.1 接触反応による標識化合物の製造技術の開発

標識有機化合物の出発物質は簡単な有機あるいは無機化合物である。C-14 の場合は  $Ba^{14}CO_3$  によって供給され、実際には  $^{14}CO_2$  の形で反応させ、有機基幹体を経て合成の段階を進めていくものであるが、炭酸ガスが直接反応する例は有機化合物の合成ではごくわずかの例に限られ、多くは炭酸ガスを変形した単純な有機化合物による反応である。したがって、炭素数1個または2個の単純な構造の化合物の反応を広く検討することが、多種多様の標識化合物の合成に役立つものと考えられる。

たとえばアセチレン、一酸化炭素などは反応性に富み、有用な化合物を生み出す物質であり、しかも他の方法で代替しえぬ反応例を示す。ただし時として高压を必要としたり特殊な触媒を使用するうえ、放射性気体物を加圧下で取扱うことは技術的に困難な問題が多いので高压下を含めた接触反応技術を確立し、これら2物質の反応を中心に有用な標識化合物の製造への道を開くべく計画を立てた。すでに検討を加えた各種装置を利用し反応条件の調製に関する検討とアセチレンの合成を42年度の目標として作業を進めた。

#### (a) アセチレン- $^{14}C$ の合成

アセチレン- $^{14}C$  の合成条件の検討はすでに41年度に文献調査を経てアセチレン取扱いのための装置、単位操作技術の2点について進められてきたが、42年度に入って文献の方法を参考に検討し反応の特性を知るための実験をおこない基礎的な資料を得た。既知の方法は



の2通りで、ともに収率は90%以上である。

#### (1) バリウムと炭酸ガスの反応

金属バリウムは融点  $850^\circ C$  で、熱炭酸ガスと反応してバリウムカーバイドと炭素とになる反応性を示す。しかし両者の反応の明確な情報は文献からは得られず実験によって求めた。実験はバリウム小片を Fig. 5.3 に示す装置で炭酸ガスと接触させた状態で加熱し、各温度におけ

る接触ガスの組成変化と、得られたバリウム化合物の水による分解生成物を調べて次の事実を得た。

i)  $300\sim 400^\circ C$  の附近では一酸化炭素が増加し、バリウムカーバイドを生ぜず。

ii)  $600\sim 800^\circ C$  附近では一酸化炭素、炭酸ガスともに減少し、分解ガスはアセチレンが主成分であるが遊離の炭素もできてくる。

また炭酸バリウムとバリウムの反応では、遊離の炭素はできないが未反応の炭酸バリウムが残る。生成したバリウム化合物を水で分解した時の生成ガス中のアセチレン以外の成分はエチレン、エタン、一酸化炭素等でその量はわずかである。

#### (2) ホットランによるアセチレンの合成

上記の結果を参考にし、装置も次の点に留意して組立てた (Fig. 5.4 参照)。

i) バリウムと炭酸ガスを直接反応させるための装置であること。

ii) 全行程を連続的におこなえる装置であること。

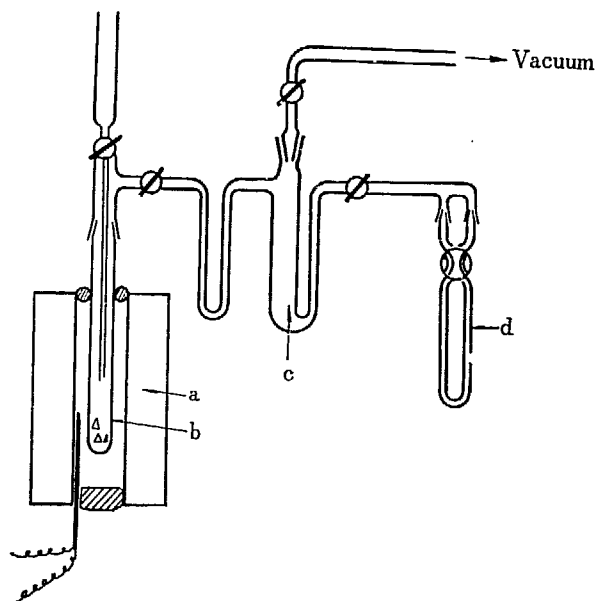
全行程とは、炭酸ガスの発生から、アセチレンを精製分取するまでであり、この装置により定量的にしらべた結果、

i) バリウムの量を炭酸ガスに比して充分過剰に使用すると、ほとんどの炭酸ガスはバリウムの表面で反応する。

ii) 炭素の遊離分が多く収率は60~70%止まりであった。

iii) Ba を前処理する時、空気に触れないようにすることで比放射能の低下をふせぎえた。

#### (3) 結果の考察



- a. Electric furneth
- b. Reaction tube
- c. Drying tube
- d. Trap

Fig. 5.3 Apparatus for the reaction of carbon dioxide with barium

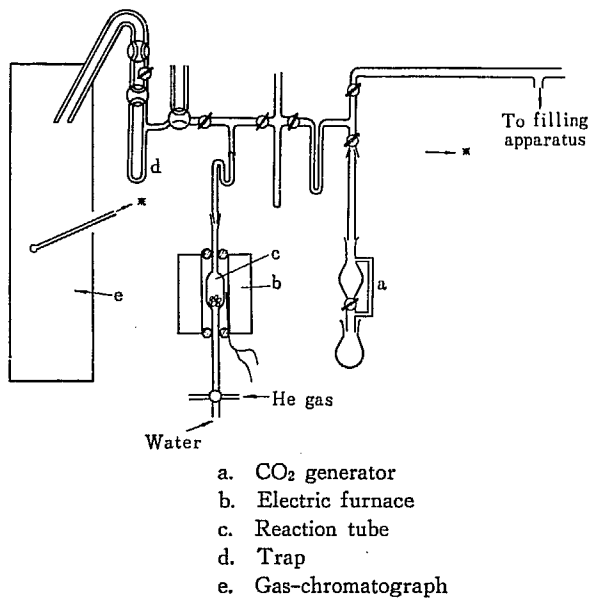


Fig. 5.4 Apparatus for the preparation of acetylene

この実験を通じてアセチレン合成の目的の大半を達成した。とくに気体物質の反応、生成物の精製分取、定量を一貫して取扱える装置の基本形が得られ、ガス反応装置の一貫システム化に貴重な経験を得た。ただしアセチレンの収率を高めるための検討はさらに続けるが、これも解決できる見込である。小型ガスクロマトグラフをプロセス用として利用することも一考の余地があるように思われる。

#### (b) アセチレンの環化重合

ベンゼンの合成についてはすでに基幹物質製造の一部として技術的検討を終了し、環内炭素原子1個を標識したベンゼン- $1-^{14}\text{C}$ は得られるようになったが、比放射能の高いベンゼンは炭素原子6個を標識することによって得られる。このベンゼンはアセチレン- $1, 2-^{14}\text{C}$ の三分子環化重合によって合成されるものであり、特殊な触媒を使用し加圧下で反応させるため特別な装置と技術とを必要とする。しかしこの技術はベンゼンのみならず、他の芳香族化合物の合成にも適用できると同時に、放射性物質を加圧下で手軽に反応させる道を開くものであり、技術開発上の意義は大きいものと考えられる。40年度以降すでに計画をすすめ基礎的調査をおこない、41年度には整備したうえで加圧方法、圧縮ガスの処理について種々の角度から検討し、まず安全取扱い技術の基礎をかためた。42年度に入り、初歩的加圧条件の反復に続いて触媒調製の問題を検討することを目標として、ベンゼン合成の実験をおこなった。

##### (1) 装置と加圧の方法

反応装置はマイクロまたはセミマイクロの高圧反応容器とガラス製密封容器とからなり、反応生成物の処理には真空系装置を使用した。Fig. 5.5 (B) のガラス製アンプル内にアセチレンを封入する場合一時的に内圧が高くなるので、アンプル先端の形はとくに注意して作製した。ま

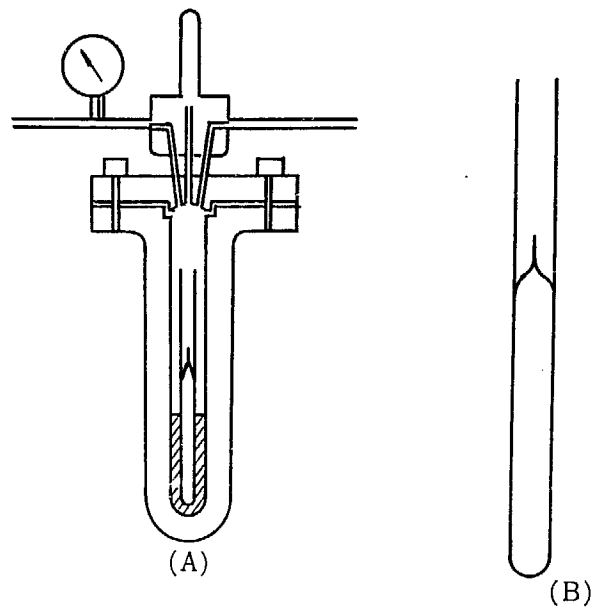


Fig. 5.5 Autoclave and sealed tube

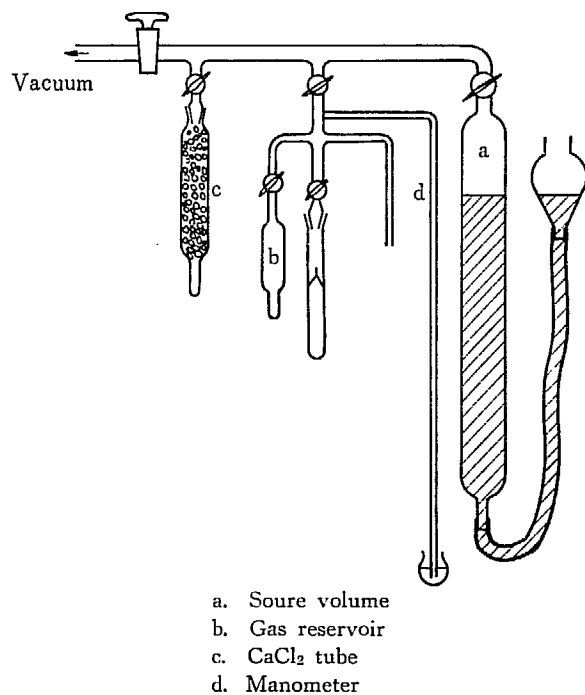


Fig. 5.6 Apparatus for filling dry acetylen

た反応中破損を防ぐため、高圧反応容器内に入れ不活性気体によりアンプルに外圧をかけ内圧が高まっても安全な状態で反応させられる方法を講じた。アンプルは外圧に対して相当強く、テストの結果普通100気圧前後まで耐えられることがわかった。そしてアセチレンを加圧下で反応させることができた。反応終了後、生成物は Fig. 5.6 の真空装置によって別のアンプル管に移し、ガスクロマトグラフ装置によって分析をおこなった。

##### (2) 触媒の選択

アセチレンをある種の Ni 系触媒の存在下に環化重合させると、シクロオクタテトラエン (COT) が得られる場合とベンゼン、スチレンを生ずる場合が知られている。Ni(CN)<sub>2</sub>, Ni(CO)<sub>4</sub> 等では COT が、これにトリフェニルホスフィンを配位させた触媒だとベンゼンが得られ

る。文献上にこれら触媒の使いわけが報じられているが、実際に簡単な実験をおこなったが充分の量のベンゼンが得られるには到っていない。文献で最も活性の高い触媒とされているビス(トリフェニルホスフィン)ニッケルジカルボニルは調製時に被毒の危険性が大きいので、安全取扱いのできる装置を組立てた上で触媒調製の検討をおこない、漸時他の触媒との比較をしながら合成条件の確立をする計画である。

### (3) 問題点と今後の計画

加圧下での安全取扱い技術の基本形がほぼまとまり実質的反応結果が出だした段階で、今後の検討の対象となる最大の問題は最適触媒と最適条件を決めることである。第2には、より高い圧力を適用する場合に備えるブレーカブルシールアンブルでない容器を考慮しておく必要があることである。すなわち、この関係の合成技術の発展の鍵になるのは放射性物質をつかって高圧反応が安全におこなえる装置の開発にあると思われるからである。

### 5.3.2 分析および放射能測定技術の開発

通常、有機化合物の合成には、定性分析・定量分析が不可欠の技術であるが、標識した有機化合物となると放射性物質をマイクロ規模で操作するので、種々の特殊条件が加わって技術上継続して検討すべき問題が多い。またこの技術は製品検査技術に関係するものであって、現に42年度、3種の製品をカタログ化した時点では、ラジオガスクロマトグラフィ、ペーパー(薄層)クロマトグラフィで製品の放射化学的純度を求め、液体シンチレーション計数法と端窓型GM管計数法とにより、放射能強度を求めた。これらの方法を確実にこなせば製品検査の役は一応果たすことができるが、検定作業効率や技術水準を高めるためにはさらに積極的にこれらの技術の検討を続けなければならない。

ラジオガスクロマトグラフ装置による放射化学的純度の検討はこれまで定性的性格が強かったが、42年度は定量的取扱いに重点を置いて実験し製品検定に必要な種々の資料を得た。放射能測定は製品の比放射能が高くなるにつれて精度を高く保つことはむずかしいが、マイクロ技術を充分習熟させて相当良好な結果が得られるようになった。液体シンチレーション計数法、ガスサンプル計数法による測定技術を検討した結果、測定値の信頼度は高くなった。

#### (a) ラジオガスクロマトグラフィによる放射化学的純度の測定

メタノール- $^{14}\text{C}$ の放射化学的純度(化学的純度を含む)の検定は現在ラジオガスクロマトグラフ装置を用いておこなっている。42年度以前すでに定性的実験をおこなっていたが、42年度はカタログ化にともなう製品の品質検定に必要な検討のまとめをおこない、第1段階に相

当する技術を確立した。

メタノール- $^{14}\text{C}$ の放射化学的純度の検定技術は基礎的な測定条件を検討したものであり、得られた結果を要約すると、次の2点である。

i) PEGカラムにより、温度、流速、注入量との関係で定量性のよい条件が定まった。

ii) PEGカラムでもアルコール類のテーリングは避けられないが、メタノール中に想定される混合物との分離のさまたげにならない条件が得られた。実際の試料に適用して放射化学的純度を調べた結果いくつかの資料が得られたが、いずれも放射化学的不純物の検出方法として充分利用できるものなので製品のスペックとして取入れた。この技術も正確な定量という面からみると必ずしも満足なものではなく、放射能検出部の検出感度とか放射能強度に対する応答の正確さを把握するための装置の機能を最高に生かす条件を求める検討を進めたい。

#### (b) 液体シンチレーション計数器によるC-14標識化合物の放射能測定

従来、主として使用したGM計数管による測定には

i) C-14化合物を炭酸バリウムの測定試料にするまでには、時間と手間が多くかかる、

ii) 再現性があまりよくない、

iii) 炭酸バリウム $^{14}\text{C}$ の標準試料を多く消耗する、といった欠点があった。液体シンチレーション計数法によると上記i)、ii)の欠点は非常に改善され、チャンネル比法が確立できればiii)の問題も解決できるので有利である。42年度はメタノール、酢酸、炭酸バリウムの測定を中心に技術的検討をすすめ、精度よく測定できるようになった。

##### (1) 測定器

i) Packard 314-E(炉化学所有)。

ii) 神戸工業GSL-152(体内放射能課所有)。

前半はi)を用いたが故障勝ちのため後半はii)を用いている。

##### (2) メタノール- $^{14}\text{C}$ の測定

シンチレーターと溶媒は通常用いられるPOP-POPOPとトルエンを用い、内部標準法により測定した。主にクエンチングについて検討したが実用的範囲内では問題はなかった。またチャンネル比法も同時に検討したが検量線(チャンネル比-計数効率)と一致した。

##### (3) 酢酸ナトリウム- $^{14}\text{C}$ の測定

酢酸ナトリウムはトルエンに不溶なので、可溶性の酢酸エチルに誘導して測定した。この測定もメタノールの場合と同様に実用上問題はなかった。

##### (4) 炭酸バリウム- $^{14}\text{C}$ の測定

これはトルエンや水に対して不溶性なため、ゲル化剤を加えゲル状として測定を試みた。不均一系の測定でどの程度の精度、再現性が得られるかを検討したが、期待した結果は得られなかった。

## (5) 問題点と今後の展望

i) 酢酸ナトリウムの場合、化学反応により誘導体に導くので非常に手間と時間がかかり、誤差の要因ともなる。

ii) 内部標準法では標準試料を消費し、測定に多くの時間を要し、誤差をまねく。

このような問題点を改善するために、酢酸ナトリウムをそのまま水溶液として親水性の *p*-ジオキサンに溶かした均一系で測定する方法を検討している。液体シンチレーション計数による測定には、i) 内部標準法、ii) チャンネル比法、iii) 外部線源法、iv) 外部 $\gamma$ 線チャンネル比法、その他の方法があるが、C-14 標準試料の必要がなくて簡単なものは ii), iii), および iv) である。これらのうち最初にチャンネル比法の検討を始めた。その他測定器自体の性能によるバラツキ、溶媒・シンチレーターなどの選択、統計誤差の取扱い等もさらに注意してみていきたい。

(c) ガスサンプル計数管による C-14 放射能の測定  
ガスサンプル計数管による測定の利点は、計数効率の高いこと、ガス試料の取扱いになれば再現性もよい、乾式酸化と組み合わせれば連続して測定ができるなど種々ある。今後気体有機物を多くとり扱うようになるのでこの技術は必要であり、すでに計数管の特性などを調べていたが、42年度は乾式酸化部分の検討を中心に定量的精度を上げるための検討をおこない、基本的技術と装置とを完成することができた (Fig. 5.7 参照)。

## (1) 検討事項と結果

i) CO<sub>2</sub> ガスの混入量の影響を調べて、混入の適量を得た。

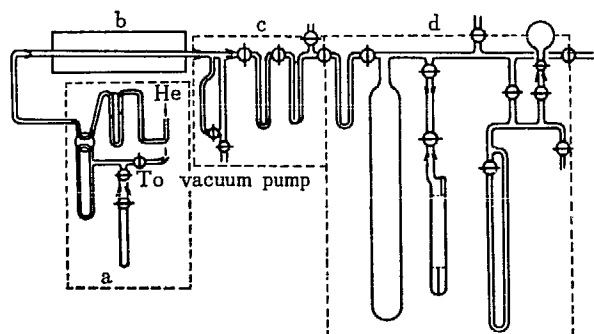
ii) 装置の定量性を調べ、誤差 0.5% 以下であった。

iii) 試料ガスの減量法を試み、計数値が大きすぎても測定は可能であった。

iv) CuO だけで完全酸化の可能性を確かめた。

v) 気体試料導入部を付けて気体の酸化も容易である。

## (2) 問題点と今後の検討



a. Sample inlet  
b. Combustion tube  
c. CO<sub>2</sub> trap  
d. Gas filling-up part

Fig. 5.7 Gas-counting apparatus for <sup>14</sup>C labelled compounds

標識化合物(製品)の検定技術の向上に目標をおくので、簡便で多種多様な化学形のものに適用でき、必要な精度が得られることが望ましい。42年度の実験で貴重な資料も得られ精度も高くなったが、アルカリ塩類の酸化が不十分であること、活栓のグリスの欠点、計数管の改良などの問題点があるのでさらに検討を続ける。

## 5.3.3 まとめ

製造技術の開発を接触反応の部と分析測定の部の2節にわけて述べたが、これら以外に液体アンモニアによる KCN の精製法の改良、ペーパークロマトスキャンニング技術の検討等基幹物質の精製・分析に関する検討もおこなってそれぞれよい結果を得た。新技術の導入も基本形がまとまり生成物の出だす段階に達し、有用な化合物も得られる条件が整ってきた。一方、測定技術の精度も高くなり広い範囲の物質の測定に適用できるので、製造技術開発の内容をさらに実のあるものにできると思う。最後に複雑な反応結果を迅速確実に解析する総合的反應解析システムの開発がなされるならば、新しい標識化合物の開発に多大の貢献をすると考えられる。元素分析、ラジオガスクロマトグラフ、ガスサンプル計数管等の組合せに成るこのシステムは、現在の技術的蓄積の上に立って達成の可能性は充分にあり興味ある問題である。

## 5.4 線源製造技術の開発

線源の製造技術開発は、その内容から2つに区分できる。すなわち、小線源の製造技術開発と大線源の製造技術開発である。前者は Ir-192 (約 10Ci/個) と Co-60 (1~20mCi/個の各種) の製造に伴う技術開発である。後者はいわゆる照射用線源の製造技術の開発であり、年間約 300kCi の製造を目指している。

小線源は昭和 41 年度から試験製造をおこない現在は定期生産をおこなっている。一方大線源については、昭和 43 年度から JRR-3 の VC 孔で照射する大線源国産化計画がたてられ、技術開発がはじめられた。現在製造部で使用している RI 生産用施設は取扱い容量が小さいために、大線源の製造をおこなうための施設が必要とされた。施設は JRR-3 の生産を対象としたが、JMTR による生産も並行して検討し、現在設計中である。

小線源の製造上の問題としてはターゲット、照射技術および取扱い技術に関するものがあるが、これらは現在検討中である。

## 5.4.1 大線源製造技術の開発

## (a) 施設的设计

大線源を製造するための基礎的な条件を定め、製造過程を Fig. 5.8 に示すようなフローチャートとした。このフローチャートに従って作業内容、作業量、使用機器を分類し、必要なケーブルの個数と配列を決めた。昭和 43 年度では建屋、ケーブル、その他主要機器の設計をおこなう予定である。

(b) 線源の各種試験

2次容器に密封した後の気密試験および機械的、熱的な各種試験について諸外国の例を文献によって調査した。とくに気密試験についての検討をおこない、昭和 43 年度に試験用機器の設計および購入をおこなう。

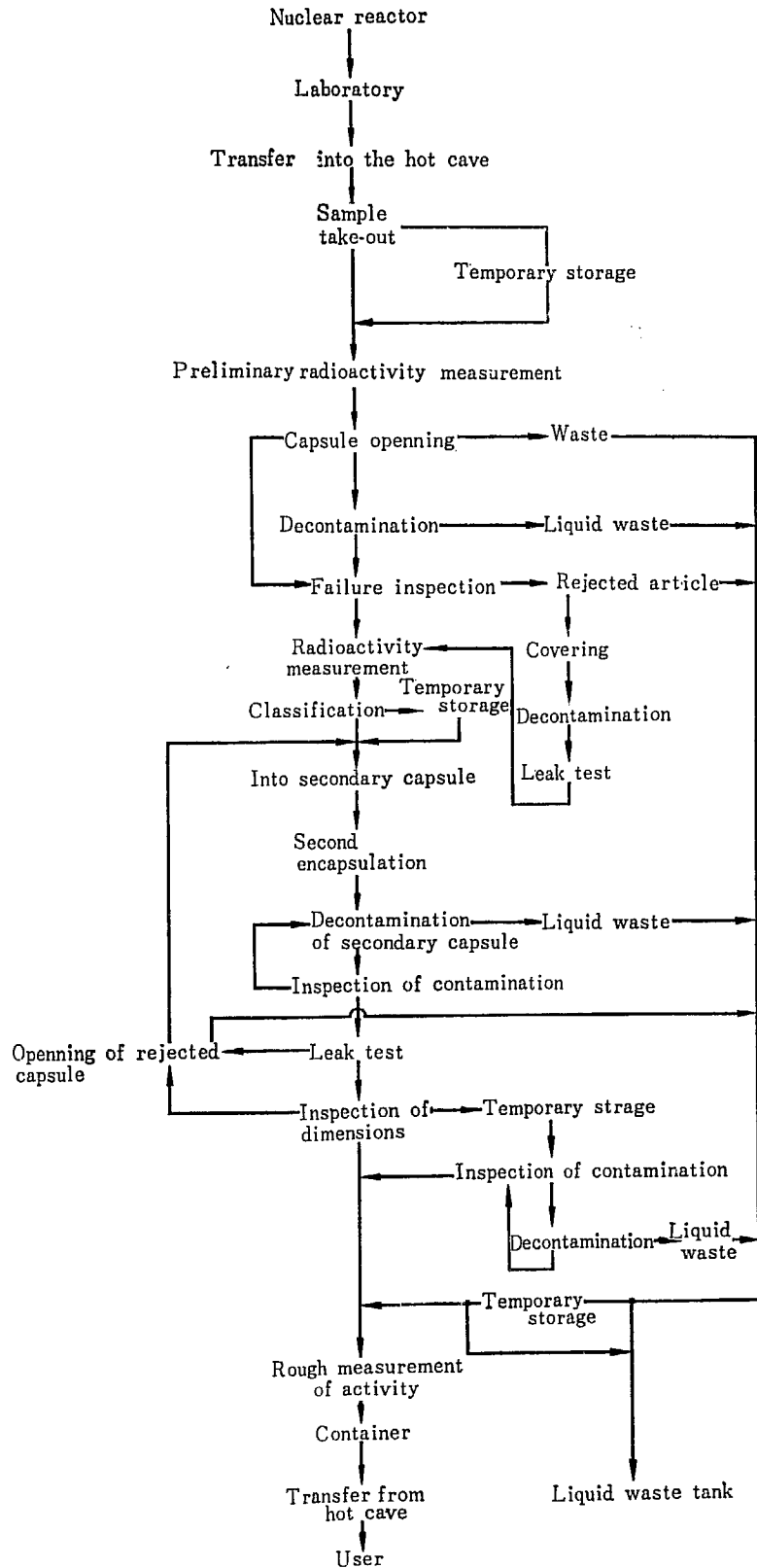


Fig. 5.8 Flowchart for the production of multicurie radiation sources

## (c) JRR-3 による照射

昭和 43 年度後半から JRR-3 の VC 孔でコバルトの長期照射を開始する。予定量は 1 年照射で約 1,000 Ci (比放射能は 5~6 Ci/g) である。この長期照射のために VG 孔を用いて、1 サイクル照射の予備実験をおこなう。

昭和 42 年度は実験計画をたて、JRR-3 側との意見調整を完了した。またターゲットの仕様を決めて業者への発注を完了した。ターゲットの仕様は TABLE 5.8 に示すとおりである。汚染を妨ぐためのアルミニウム被覆について今回は溶接法でおこなうが、圧接法による技術も検討中である。

予備実験の目的は次のとおりである。

i) ウェファヤスラグのような形状の大きい試料を多量に取扱う技術を修得しておく。

ii) 多量のターゲットを照射した時の中性子束密度のゆらぎを検討する。

iii) ターゲットの中性子自己遮蔽効果を検討する。

iv) アルミニウム被覆が原子炉での長期照射に耐えるかどうかについて検討する。

43 年度では、VG 孔による予備実験のうち長期にわたる事項を除き全部完了させ、さらに VC 孔での照射を開始する予定である。

TABLE 5.8 Co-60 大線源ターゲット仕様書

1. 被覆なし製品
  - (i) 形状; Slug, Wafer
  - (ii) 寸法; Slug  $(6.0^{+0.0}_{-0.2})\phi \times (25.0 \pm 0.5)$  (mm)  
Wafer  $(20.0 \pm 0.2)\phi \times (1.0 \pm 0.1)$  (mm)  
Wafer  $\sim 8\phi \times 23$  (mm)
  - (iii) 製法; 高純度コバルトインゴットより所定の形状寸法に仕上げ、さらに脱ガス、歪除去をおこなうこと。
  - (iv) 純度; コバルト含有量 98.5% 以上。含有ガスおよび不純物はできるだけ少ないこと。
  - (v) 比重; 8.7 以上。
  - (vi) 疵 亀裂、すりきず、かえりなどのないこと。
2. 被覆製品
  - (1) Ni メッキ
    - (i) 形状; Slug, Wafer
    - (ii) 被覆前製品の寸法、製法、純度、比重、疵について; 被覆なし製品に準ずる。
    - (iii) Ni メッキ;  $\sim 50\mu$  厚でメッキ層が均一なること。メッキの密着状況がよく、かつピンホールがないこと。
  - (2) Al クラッド
    - (i) 形状; Wafer
    - (ii) 寸法;  $10\phi \times 3.5$  (mm)
    - (iii) 被覆前製品の製法、純度、比重、疵について; 被覆なし製品に準ずる。
    - (iv) Al 純度は 2S 以上、クラッド厚  $\sim 6$  mm、素材と Al 材との密着状況がよく、間隙にガン保有等がないこと。
3. 検査
  - (i) コバルト含有量につき分析をおこなう (抜取検査)。
  - (ii) 比重および重量検査をおこなう (全数、ただし被覆製品については被覆前)。
  - (iii) 寸法検査をおこなう。
  - (iv) 被覆製品については、ピンホール検査 (全数) およびメッキ厚および密着状況、Al クラッドの間隙の有無等の検査 (以上抜取) をおこなう。

## 5.4.2 小線源製造技術の開発

## (a) Ir-192 線源の製造技術の開発

## (1) 照射カプセルの改造

従来使用していた JRR-2 の VT-1 による Ir-192 生産用照射カプセルは、原子炉の照射孔へ入れる時に裏返しになることがあり、その場合、照射後の取り出しは非常に困難となる。このような欠点を直すに当り、あわせて照射ターゲットの個数増加をはかった。カプセルの改造によって照射個数は現在の 2 倍程度になる見込みである。今年度は第 3 係と協力して設計製作をおこなった (Fig. 5.9 参照) ので、昭和 43 年度の第 1 サイクルからこの改良型のカプセルを使用して照射する予定である。

従来のカプセルについてはターゲットの詰め合わせ効果についての検討は今年度で完了した。結果は Fig. 5.10 に示す。しかしカプセルの内容積を大幅に変えたために、再度ターゲットの詰め合わせ効果について検討しなければならないことになった。昭和 43 年度は生産と並行してこの効果を検討しつつバレットあたりの放射能が 10 Ci を下らない製品を生産し、かつ製造数量を多くするように仕事をすすめる予定である。

(2) 中性子の自己遮蔽効果と  $\gamma$  線の自己吸収効果の検討

Ir-191 の放射化断面積は  $960 \pm 300$  barn と非常に大きいため、中性子の自己遮蔽効果が著しい。

また、イリジウムの比重が大きいために  $\gamma$  線の自己吸

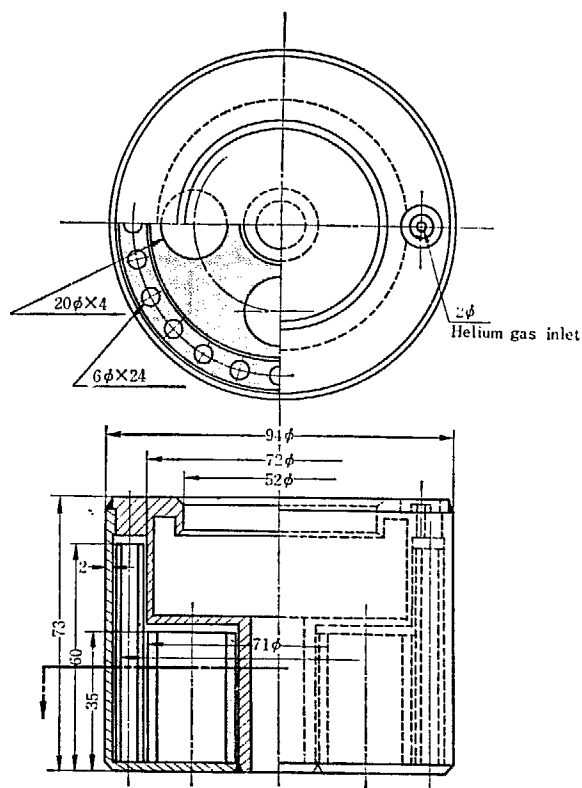


Fig. 5.9 Ir-192 irradiation capsule



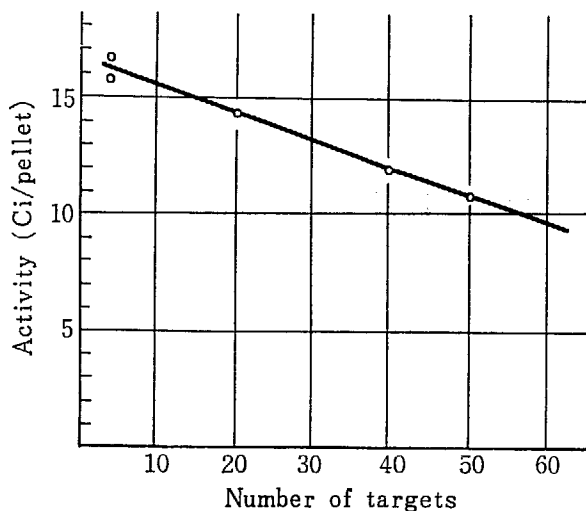


Fig. 5.10 Radioactivity as a function of the number of iridium targets

収効率があらわれる。結果として、原子炉で照射されたイリジウムの $\gamma$ 線出力から求められた放射能は、理論値より小さな値を示す。この放射化効率について以下に示す方法により検討した。

$2\phi \times 2$  (mm) の円筒形金属イリジウムと少量の粉末イリジウムを原子炉で同時に照射した。粉末イリジウムの比放射能は理論値とほぼ同一の値が得られた。この比放射能と円筒形金属イリジウムの比放射能との比から放射化効率を得られた。また  $2\phi \times 0.25$  (mm) の薄板金属イリジウムを8枚重ねて  $2\phi \times 2$  (mm) の試料を作り、前記の粉末イリジウムと同時に原子炉で照射した。照射後それぞれの薄板金属イリジウムの放射能を測定した。末端の薄板から内部へいくに従って比放射能が減少しているのが確認され、中性子の自己遮蔽効率が求められた。放射化効率は中性子の自己遮蔽効率と $\gamma$ 線の自己吸収効率の積として与えられるので、得られた放射化効率と中性子の自己遮蔽効果とから $\gamma$ 線の自己吸収効率が求まる。また放射化されていない薄板金属イリジウムでイリジウム金属の $\gamma$ 線吸収係数を求めた。

得られた結果は次の通りである。

中性子の自己遮蔽効率	0.25
$\gamma$ 線の自己吸収効率	0.73
イリジウム金属の線吸収係数	$3.38 \text{ cm}^{-1}$

### (3) 2次カプセル化技術の開発

ラジオグラフィ用のイリジウム線源を1個ずつカプセルに密封する技術を検討した。昭和42年度に溶接機の機種を選定を完了し、昭和43年度では購入とその他の治具の設計をおこない、さらに遠隔操作のための改良とケーブル内組み込みをおこなう予定である。この計画は気密試験の計画と関連し、さらにCo-60大線源の2次カプセル化の技術にも関連してくる。

### (4) カプセル開封器の開発

Ir-192用の照射用カプセルの直径は  $94 \text{ mm} \phi \times 73 \text{ mm}$  であり、Co-60用のは  $25 \text{ mm} \phi \times 120 \text{ mm}$  である。この

ためにカプセル開封器は2種類用いられていた。今後、 $30 \text{ mm} \phi$  ないし  $40 \text{ mm} \phi$  のJMTR用照射カプセル、長さ  $600 \sim 800 \text{ mm}$  のJRR-2用の照射カプセル等の開封が必要になる。このため、 $10 \text{ mm} \phi$  から  $100 \text{ mm} \phi$  までの各種の直径で、ある程度長いカプセルも切断できる開封器を第3係と協力して設計し発注した。現在はアルミニウムカプセルを使用しているが、今後長期照射でステンレス鋼カプセルを使用した場合の開封器は別途設計しなければならない。

### (5) JMTRによるIr-192の製造技術の開発

高い熱中性子束密度を必要とするIr-192の製造は今後JMTRを用いることによって完全に国内需要を充すことになる。JMTRは昭和43年12月から照射開始の予定なので照射カプセル、輸送用鉛容器および核模擬実験装置の利用等についてJMTR側と打合せをしている。

### (b) Co-60針状線源の製造技術の開発

#### (1) 照射技術の開発

従来の製品の1カプセル当りの標準偏差が10%に及ぶ場合もあり、かつ一定の値を示さなかったので、この検討をした。問題点として、ターゲットの包装状態、1カプセル当りのターゲット数および照射位置の3点が考えられる。今年度はターゲットの包装状態について検討した。

従来の包装状態ではまず針状コバルト金属を約50本板状に並べてアルミニウム箱で包んでいる。さらにこの板状のものを5ないし6個直列に並べて、さらにアルミニウム箱で包み、じくざぐ状に曲げてカプセルに入れ密封する。

実験のための包装は次のようにした。 $20 \text{ mm} \phi \times 20 \text{ mm}$  のグラファイトブロックの円周に  $1.2 \text{ mm}$  の孔を25個あけ、この孔へターゲットを入れる。このようなブロックを4段重ねてカプセルへ入れ照射した。グラファイトブロックのほかにアルミニウムブロックでも実験した。結果は各ブロックについていずれも標準偏差  $0.8 \sim 1\%$  であった。グラファイトブロックを用いた場合の比放射能はアルミニウムの場合に較べて若干高い値が得られた。しかし定量的な検討は今後の課題である。

カプセルについての標準偏差の検討は、ターゲット数および照射位置との関係も含めて来年度引き続きおこなう予定である。

#### (2) 照射孔の選定

Co-60針状線源は主としてJRR-3のVR孔を用いて照射していた。所定の放射能がある程度正確に得られ、かつ照射数量を増加させるために、VG孔照射を検討した。

VG孔で熱中性子束の測定と試験照射をおこなった。その結果、ラジオアイソトープカタログに記載されている放射能をVG孔照射で得ることが可能であることを確認した。VR孔とVG孔の両者を使用することによ

て、所定の放射能の線源を多量に生産することが今後可能である。

## 5.5 無機標識化合物製造技術の開発

41年度までの技術的調査の結果、42年度から S-35 標識化合物の製造開発を始め、まず標識した元素状イオウの製造開発に着手した。S-35 標識無機化合物の国内需要量は明らかでないが、欧米諸国の RI のカタログでは無機化合物中最も種類が多い。S-35 の化合物は理学の分野でトレーサーとして直接利用され、また生化学、生理学、ゴム、表面活性剤工業などに数多く利用されている S-35 標識有機化合物合成の出発物質として用いられる。今年度着手した、製造課から生産供給される硫酸の形の S-35 を硫化水素をへて元素イオウに転換する方法の開発は、硫酸から亜硫酸ガスをへて亜硫酸塩を合成する方法の開発とあいまって多くの S-35 標識化合物の合成の基礎となる。

### 5.5.1 硫酸-<sup>35</sup>S の還元法とその装置

硫酸を硫化水素に還元する方法については数多くの報告がある。ここでは若干の不便さがあるが、標識イオウの製品純度を下げる恐れのないことから、強リン酸-スズ(II)混合系を用いて還元する方法を採用した。この還元剤はリン酸に塩化スズ(II)を加え、加熱して水と塩化水素を駆出して調製する。使用する還元装置を Fig. 5.11 に示す。

S-35 約 50 mCi を含む硫酸 ( $H_2^{35}SO_4$ )、担体硫酸塩 (1~50 mgS) および還元剤を反応容器 b に入れ c より窒素を流しながらマントルヒーター a で加熱する。約 200°C で  $H_2SO_4 \rightarrow S \rightarrow H_2S$  の 2 段階の反応が始まる。発生した硫化水素は薄い水酸化ナトリウム水溶液を含む第一捕集瓶 d に運ばれ、大部分の S-35 はここで捕集される。反応液の温度が約 280°C で終了する。分液ロートに第一捕集剤と第二捕集ビン e に含まれるフェリシアン酸カリウムのアルカリ性溶液とを移し、ベンゼンを加えてふりませ硫化物から酸化されて生じた元素状イオウを抽出する。幾つかの製造実験の結果を TABLE 5.9 に示す。

製品の比放射能の点から、固体の標識イオウの製造には S-35 50 mCi とイオウ担体 50 mg、またベンゼン溶液の製造には S-35 50 mCi と担体 1 mg の処理が必要である。表に見られるように担体が少なくなると収率がいちじるしく低下して実用にならない。収率低下の原因には水酸化ナトリウム水溶液に硫化物として捕集した S-35 が元素状イオウとして抽出されるまでに硫酸に酸化されて抽出されなくなるものと推定されている。現在の現象の確認と対策の検討を進めている。

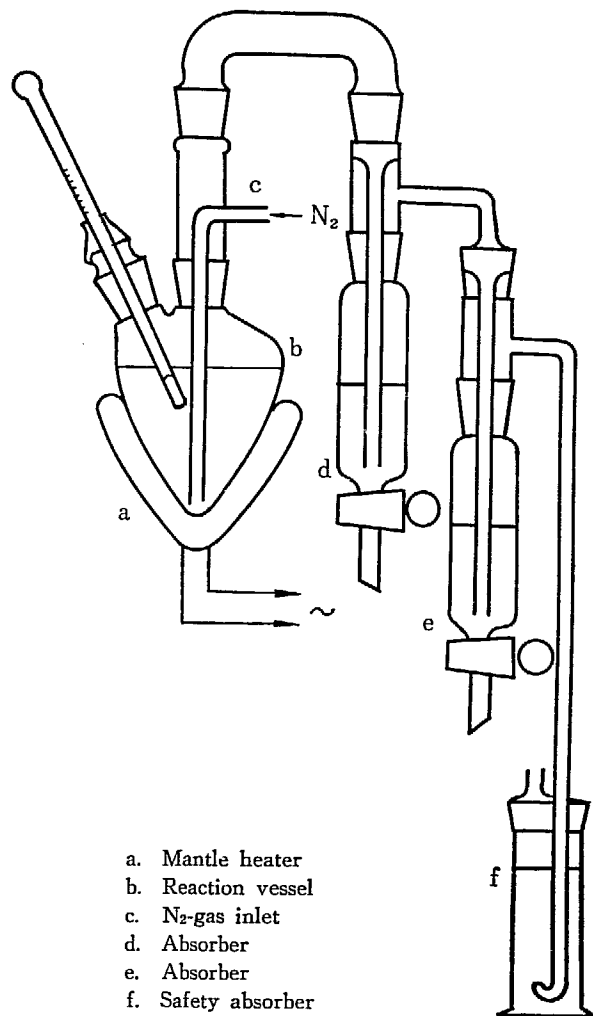


Fig. 5.11 Apparatus for the production of sulfur labelled with S-35

TABLE 5.9 標識イオウ製造実験結果

実験	1	2	3	4	5	6	7
S-35 使用量 (mCi)	1	1	1	1	1	1	1
担体イオウ量 (mg)	49.4	19.8	19.8	9.88	9.88	0.99	0
収率 (%)	75.4	35.4	63.9	45.9	40.1	12.1	0

装置の反応フラスコから第一捕集瓶にいたる途中の部分に S-35 の強い吸着が認められる。還元反応と、硫化物の酸化、抽出はほとんど完全におこなわれている。硫酸の還元により発生した硫化水素は直接フェリシアン酸カリに吸収酸化させていたが、この方法では生じたイオウをベンゼンで抽出し難い。硫化水素を酸化剤とベンゼンの混合物に導いて吸収・酸化・抽出の段階を同時におこなえば、収率が高く、作業能率は向上するが、装置の設計が困難であり、今後検討する必要がある。現在の段階では標識イオウをベンゼンで抽出したところで操作を打切っているが、今後この溶液を凍結乾燥することにより固体イオウを調製する方法を検討する。

Fig. 5.11 に示したように、第二捕集瓶 e の後に酢酸カドミウム水溶液を含む第三捕集瓶 f が置いてある。この装置をおさめたグローブボックスの排気口に活性炭フィ

ルターを備えているが、放射線管理室の測定では約 0.2 % の S-35 が建家排気筒から排出されている。3 段階の捕集剤を通過する部分があることは考え難いが、将来大量の S-35 を処理するためには解決しなくてはならない。将来 100~200 mCi の S-35 を処理することを目標にして処理法、装置の改良をおこなう予定であるが、気体の放射性物質を扱うために十分な機能を持つ開発実験用の施設が必要である。

5.5.2 標識元素状イオウの計数試料の調製とイオウの揮発

担体を加えた S-35 放射能の正確な測定には気体計数法、液体シンチレーション計数法などやや複雑な方法が必要となる。しかし日常の開発実験の結果を吟味するためには、それほど精度を必要とせず手軽に測定できるような方法が望ましい。イオウのベンゼン溶液を十分に薄め一部を計数皿にとり蒸発乾固して端窓型 GM 計数管で測定することを試みた。測定直後に GM 管にきわめて強い汚染があり、測定試料の放射能が時間の経過とともに急速に減少することがわかった。この原因には

- i) イオウの昇華,
  - ii) 化学変化により気体化合物として散失,
  - iii) 放射性壊変による i), ii) の促進,
- が考えられる。この原因を追求するために
- i) 放射能量一定で担体量を変えた時の放射能の減少,
  - ii) いろいろな雰囲気中の貯蔵と放射能の減少,
  - iii) 担体量一定で放射能量を変えた時の放射能の減少,
  - iv) 密閉容器中での標識イオウから無標識イオウへの S-35 放射能の移動,
- の実験をおこなった。

Fig. 5.12 は、異なる量の担体を含む 40 mCi の S-35 を計数皿にとり、貯蔵条件を変えて経過時間と放射能の散失量の関係調べた結果である。貯蔵法と担体量の影響は明らかである。同様の実験を担体量を 1 μg に定め S-35 量を 4~80 mCi に変えておこなったが、放射能の影響は見られなかった。GM 管の性能から広い範囲で放射能量を変えることは困難であるし、GM 管に強い汚染が現われたため精度の高い測定ができなかった。

Fig. 5.13 は 1 μg の担体を含む 80 mCi のイオウをいろいろの雰囲気中に貯蔵した時の放射能の散失量を示す。真空中に貯蔵したものがとくに顕著な散失を示し、酸素中に貯蔵したものは空気中に貯蔵した場合とほとんど差がない。図では窒素中に貯蔵したものが他の場合より散失が少ないように見えるが、この場合も GM 管の汚染などのため精度が下がり、有意の差を見いだすことはできない。100 μCi の S-35 を含む 500 μg の標識イオウと 500 μg の無標識イオウを別々のステンレス製放射能

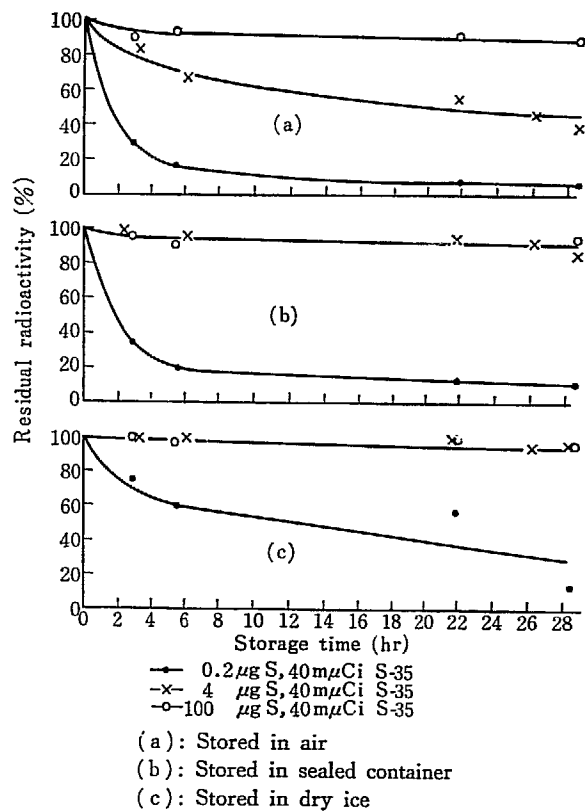


Fig. 5.12 Loss of S-35 in various storing modes

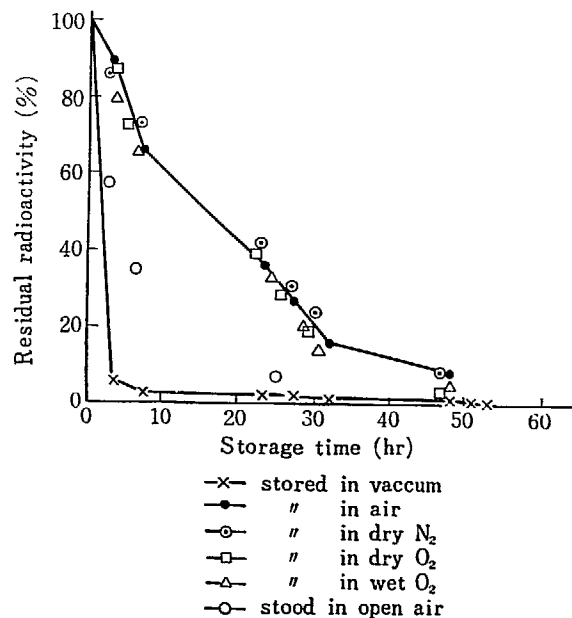


Fig. 5.13 Loss of S-35 in various atmospheres

皿にとり、直径 5 cm の蓋をしたシャーレ中で室温および -25°C に貯蔵した。

Fig. 5.12~14 は無標識イオウの放射能の増加を示す。室温ではこの現象は顕著で約 80 時間で平衡に達する。空の放射能皿の吸着も明らかである。Fig. 5.12~14 の結果を考え合わせると、放射能皿からの S-35 放射能は化学変化よりも固体イオウの揮発によるものが大部分であるといえる。古くからイオウは固体として比較的顕著な揮発性を持つことが知られているが、常温における蒸気圧の大きさ、蒸発の速さなどは明らかでない。S-35 散

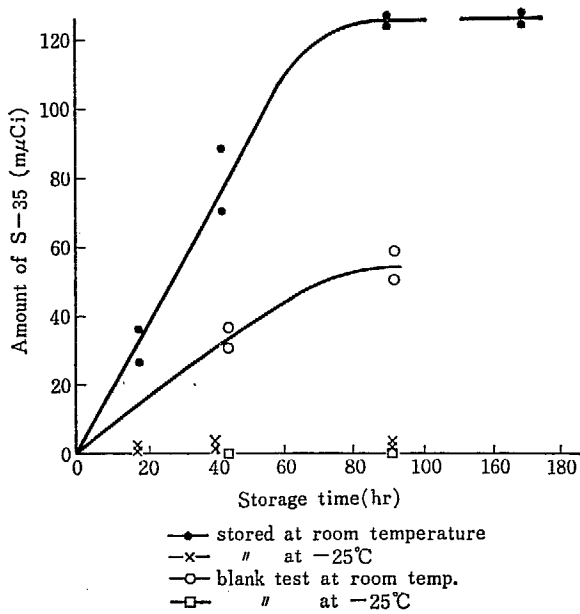


Fig. 5.14 Exchange of S-35 between labelled elementary sulfur and unlabelled one

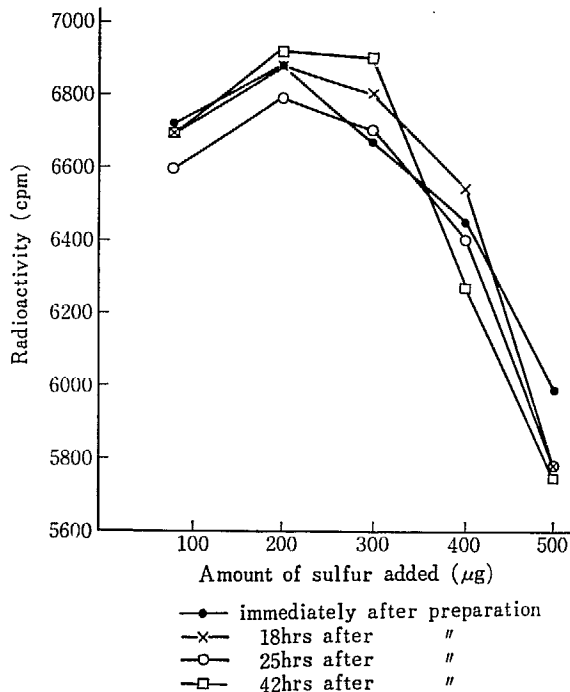


Fig. 5.15 Self-absorption effect due to addition of unlabelled sulfur

失の機構を明らかにすることは興味のあることであるが、相当の日時・労力を要すると思われるので、この問題はここで打切った。

Fig. 5.12 から明らかになうにある程度担体を増すと放射能の散失を防ぐことができる。S-35 放射能の簡易測定法として、標識イオウのベンゼン溶液を適宜薄め放射能皿にとる際に無標識イオウを加えて散失を減らすことを試みた。この際加えるイオウが多過ぎると自己吸収が大きくなる。標識イオウのベンゼン溶液に無標識イオウを加え 0.04 ml に 80 mμCi の S-35 と 100~500 μg のイオウを含むようにし、これを計数皿の上で直径 0.6 mm の円に蒸発乾固し GM 計数器で放射能を測定した。結果

を Fig. 5.15 に示す。種々の誤差の影響で同一試料を時間をおいて測定すると計数値に大きな変動を示すが経時変化はない。イオウの添加量が多くなると自己吸収の影響が明らかになる。この結果から標識イオウの計数は便宜的に試料が 100 μg のイオウを含むよう調製することにした。

### 5.5.3 無機標識化合物の化学形の同定法と合成上の問題点

一般に標識化合物を合成する際には、合成した化合物の化学形の確認と放射化学的純度の検定が必要である。また標識化合物は自己放射線分解・化学変化を起こしやすく、貯蔵中の分解・変化の程度の検査とこのような現象の基礎的研究が必要である。この目的のための化学形の同定法・放射化学的不純物の検出法としてはペーパークロマトグラフィ、ロ紙電気泳動法、薄層クロマトグラフィなどが適当である。標識イオウの製造に関する化学種の同定には、吉原らによるロ紙電気泳動法 (*Radiochimica Acta* 3, 185-191 (1964)) を利用している。その他の化学種の同定のために薄層クロマトグラフィ、イオン交換ロ紙を用いたクロマトグラフィ、電気泳動法の開発研究をおこなっている。

標識化合物の安定度・分解は種々の因子に支配される。有機化合物については多数の報告があるが、無機化合物についてはほとんどない。この問題に関する報告は一般に経験的なものである。無機標識化合物の製造を開始するさいにこのような知識の収集が必要で、現在この種の資料を纏めている。S-35 標識イオウ製造法を確立した後で標識イオウ・硫化物について安定度の問題の解明に着手する予定である。

### 5.6 短寿命 F.P. 製造技術の開発

F.P. 中には多くの有用な核種が含まれており、とくにいくつかの短寿命核種に対しては、医療用などの用途が開発されていて、我が国でも供給が強く要望されている。

本テーマはこれらの要望に応えるとともに、将来展開される核燃料再処理からの廃棄物中に含まれる長寿命の有用 F.P. を取り出すための技術開発の基礎をきずくことを目的としている。

#### 5.6.1 アルミナ法による Tc-99m の製造法

42 年度は諸外国で F.P. から製造されている核種、製造法などについて調査した。その結果需要が多く、比較的小規模な設備で製造できる Mo-99 を親核種とする

Tc-99m ジェネレーターの製造を第1目的として実験をおこなった。

Mo-99 の製造法としては  $^{98}\text{Mo}$  ( $n, \gamma$ )  $^{99}\text{Mo}$  反応により製造する方法もあるが、高中性子束の原子炉を使用しないかぎり、Tc-99m ジェネレーターを製造するに十分な比放射能を得ることは困難である (5.1.3 参照)。そこで F.P. からの分離精製が必要となる。

F.P. から Mo-99 を分離する方法については、1957年 BNL で開発されたアルミナカラムによる吸着分離法が諸外国で採用されている。当部においてもこの方法を追試した。しかしこの方法によると精製した Mo-99 中への I-131, Ru-103 などの混入が認められた。そこでアルミナによる分離法の改良を試みた。一方イオン交換樹脂を使うことにより F.P. から多くの核種が分離できる。Mo-99 もこの一連の分離操作の一部として分離し、取り出すことができる。この方法については次節でのべる。

アルミナカラムを使って Mo-99 を分離する代表的な処理法は大略次のようである。

- i) ウラン-アルミニウム合金を照射、6 規定硝酸に溶解、2 モル硝酸第二水銀を加え溶解を促進する。
- ii) 水を加え、1 規定硝酸になるよう調整する。
- iii) アルミナカラムに通し Te-132, Mo-99 を吸着させる。
- iv) 1 規定硝酸、水、0.01 規定アンモニア水の順に通し、テルル、モリブデン以外の F.P. を洗い出す。
- v) 1 規定アンモニア水でモリブデンを溶離する。
- vi) 硝酸を溶離液に加え、pH 1~2 に調整する。
- vii) アルミナカラムに吸着させ、0.1 規定塩酸で洗浄し、ジェネレーターとする。

20% ウラン-アルミニウム合金を JRR-2 の垂直実験孔 (VT-4) で照射し、上記操作法により分離したところ、約 1% の I-131 が分離したモリブデン中に混入した。そこで後述する操作 I~IV のごとく、分離操作の一部を改良することを試みた。

ターゲットとしては今後の入手のしやすさ、ターゲット量の増加による照射時の温度上昇などを考え、八三酸化ウランを使用することとした。照射は 5~50mg の八三酸化ウラン粉末を石英アンブルに封入し、JRR-2 の気送管での 20 分、または垂直実験孔での 180 時間をおこなった。

分離の各ステップで得られるフラクションについては 3"φ×3" NaI (Tl) クリスタルを検出器とする 256 チャンネル波高分析器でγ線スペクトルを測定し、また GM カウンタによるβ放射能の減衰の測定も併用して核種の同定をおこなった。混入する元素が多種にわたるフラクションについてはさらに 2 規定塩酸で飽和したブタノールを展開剤とするペーパークロマトグラフィで Mo-99, I-131, Ru-103 などを定量した。

操作 I~IV で分離した Mo-99 およびジェネレーターから分離した Tc-99m 中の I-131 および Ru-103 の量

TABLE 5.10 Mo-99, Tc-99m 中の不純物

	不純物	操作 I	操作 II	操作 III	操作 IV
$^{99}\text{Mo}$	$^{131}\text{I}$	0.58%	0.07%	0.007%	<0.02%
	$^{103}\text{Ru}$	0.15%	<0.012%	0.054%	0.015%
$^{99m}\text{Tc}$	$^{131}\text{I}$	0.15%	$1.3 \times 10^{-3}\%$	—	$<7.8 \times 10^{-4}\%$
	$^{103}\text{Ru}$	0.013%	$<3.4 \times 10^{-5}\%$	—	$<2.7 \times 10^{-4}\%$

を 20 分照射直後の値に換算して TABLE 5.10 に示した。

操作 I: 蒸発乾固

前記の処理 i) と ii) の間に蒸発乾固の操作を加え、I-131 の揮発除去を試みた。この方法で除去できる I-131 は全体の 80% であり、あまり効果はなかった。

操作 II: カラムのアルコール洗浄

I-131 および Ru-103 をできるだけ低い酸化状態に保つとともに希釈操作をはぶくため、八三酸化ウランを 1 規定硝酸に溶解した。また  $\text{I}_2$  の化学形で吸着されている I-131 を除くため、iv) のステップにおけるアルミナカラムのアルコールによる洗浄操作を追加した。

この操作により Ru-103 からの分離はほぼ完全であった。しかしながら、I-131 の除去は完全にはおこなわれず、そのための操作が必要であった。

操作 III: 白金黒カラムによる I-131 の吸着

アルミナカラムから溶離した Mo-99 フラクションを 1 規定硝酸溶液とし白金黒カラムに通した。白金黒は塩化白金酸アンモン溶液を石英綿に浸した上でヒドラジンを加えることにより調整した。I-131 は白金黒によりほぼ完全に除去されるが、同時に 1 規定硝酸溶液では約 90% の Mo-99 が白金黒に吸着されてしまう。6 規定硝酸溶液としても 60% の Mo-99 が吸着されるので、この方法によると Mo-99 の収率が低くなり、よい方法ではない。

操作 IV: 塩酸溶解と蒸発除去

全体の操作を通じ硝酸のかわりに塩酸を使用することとした。しかし塩酸のみで八三酸化ウランを溶解することはできないので、9 規定塩酸に硝酸を 0.1 規定になるように加えた溶液に溶解した。この溶液を蒸発乾固し

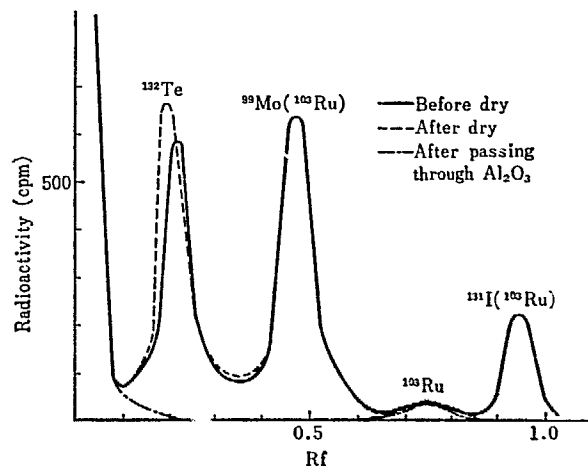


Fig. 5.16 Paper chromatogram of F.P. soln. dissolved in 9N HCl+0.1N HNO<sub>3</sub>

I-131 および Ru-103 を除く。その後の処理は硝酸を塩酸にかえたほかは前記処理法と同じである。

この操作法による各ステップで分離された各フラクションのペーパークロマトグラムは Fig. 5.16 に示すようであった。この図から  $R_f=1$  の I-131 および Ru-103 は蒸発により完全に除去できることがわかった。また分離された Mo-99 または Tc-99m に I-131 は検出できなかった。しかし Ru-103 は微量ではあるが混入が認められる。操作 IV がアルミナ法を採用するかぎり最もよい方法と考えられたので、くり返し実験し安定した純度で Tc-99m がえられることを確認した。

### 5.6.2 イオン交換法による系統的分離法

核分裂生成物を分離精製する方法にはイオン交換法、溶媒抽出法、沈殿法、ペーパークロマトグラフ法などいろいろある。このうちイオン交換法は操作が簡単であること、系統的分離が容易であること、分離の程度が他の方法にくらべてすぐれていることなどから、核分裂生成物中に含まれるアイソトープを系統的に分離製造する方法としてより良い方法と考えられる。

ここでは放射化学第2研究室において過去数年にわたって検討されてきた方法を製造の立場から検討した。またこの方法による一連の短寿命アイソトープ製造の一環として I-132 および Tc-99m ジェネレーターの調製についても検討した。

#### (a) 酸化ウランの溶解法と Zr-95, Ru-103 および Te-132 のイオン交換挙動

核分裂生成物から短寿命アイソトープをイオン交換分離する場合に含まれてくる不純物としては、複雑な化学的挙動を示し比較的生成量の多い Zr-95, Ru-103, Te-132 などが考えられる。これらの核種の挙動を検討することはターゲットの溶解法を決定するため、あるいは分離後の各フラクションから目的のアイソトープを精製する場合に必要なことである。ここでは天然組成の八三酸化ウラン約 10mg を用い JRR-2 で 20 分照射したのち TABLE 5.11 の欄外に示した各法で溶解し、さらに 0.2 規定の酸溶液として陽イオン交換樹脂で処理しフラクションに分離した。

得られた各フラクションから 2ml をポリエチレン製棒ピンに分取しその  $\gamma$  線スペクトルを測定した。Te-132 の定量のためには分離後 1 日経過してからのスペクトルを用い、Zr-95 および Ru-103 の定量のためには 1 ヶ月経過した時の  $\gamma$  線スペクトルを使用した。この結果得られた Zr-95, Ru-103 および Te-132 の量を TABLE 5.11 に示す。

Zr-95 および Ru-103 の挙動は 1 規定硝酸、過塩素酸を用いた場合、塩酸処理の場合と比べて著しく変化することが確認された。Te-132 の挙動については過塩素酸、

TABLE 5.11 Zr-95, Ru-103, Tc-132 のイオン交換挙動

		陰イオン フラク ション	Mo フラク ション	Te フラク ション	Zr フラク ション	UO <sub>2</sub> フラク ション	Cs フラク ション	樹脂層
<sup>95</sup> Zr	1	9.1	1.7	0.36	83	3.0	1.7	1.5
	2	6.1	1.5	0.42	81	8.2	1.4	1.5
	3	73	1.2	0.37	23	1.3	1.1	1.2
	4	15	1.4	0.44	78	3.6	1.4	0.96
	5	37	0.33	0.23	58	3.5	1.1	—
	6	—	—	—	—	—	—	—
<sup>103</sup> Ru	1	98	1.0	0.06	—	—	0.51	0.15
	2	96	1.3	0.40	—	—	1.9	0.43
	3	42	18	0.51	—	—	40	—
	4	98	0.69	0.13	—	—	0.91	0.26
	5	8.0	33	8.7	0.91	1.7	48	—
	6	—	—	—	—	—	—	—
<sup>132</sup> Te	1	4.0	—	95	—	—	0.39	0.74
	2	7.4	—	93	—	—	0.12	0.10
	3	89	—	11	—	—	0.06	—
	4	13	—	87	—	—	0.15	0.12
	5	6.9	—	93	—	—	0.52	—
	6	31	—	69	—	—	—	—

1. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, 7N HNO<sub>3</sub> 5ml → 蒸発乾固 → 濃 HCl → 蒸発乾固 → 1N HCl 2ml → 全容積 10ml
  2. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>\*, 7N HNO<sub>3</sub> 10ml → 蒸発乾固 → 濃 HCl → 蒸発乾固 → 1N HCl 5ml → 全容積 25ml
  3. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, 7N HNO<sub>3</sub> 5ml → 蒸発乾固 → 60% HClO<sub>4</sub> → 蒸発濃縮 → 容積 10ml
  4. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>\*, 濃 HCl 14ml + 1N HNO<sub>3</sub> 1ml → 蒸発乾固 → 濃 HCl → 蒸発乾固 → 1N HCl 5ml → 全容積 25ml
  5. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, 1N HNO<sub>3</sub> 2ml → 全容積 10ml
  6. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>\*, 1N HNO<sub>3</sub> 5ml → 全容積 25ml
- \* はより微粉末の U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> を示す

硝酸のような酸化性の溶液においてテルルの原子価は 6 価になる傾向がみられるが、塩酸処理の場合にはテルルの原子価は低い値となった。またテルルの挙動は 1 規定硝酸処理の場合に明らかなように、ターゲットによって大きく変化した。この原因は使用したターゲットの粒子の大きさに依存していると考えられる。

#### (b) I-132 ジェネレーターの調製

上記の実験から Te-132 の製造法として、酸化ウランを 7 規定硝酸に溶解した後、濃塩酸処理をおこない 0.2 規定塩酸溶液としてイオン交換カラムに通す方法を採用することにした。分離された 0.75 規定塩酸フラクションには TABLE 5.11 に示したように 0.4% 程度の Zr-95, Ru-103, Np-239 などが含まれる。これらの不純物と Te-132 を分離するため、アルミナカラム法を用いた。すなわち、0.75 規定塩酸フラクションを同じ塩酸濃度で処理した 3ml のアルミナカラム (10mm  $\phi$  × 38mm) に通して 99% 以上の Te-132 を吸着させたのち 30ml の 0.75 規定塩酸によってカラムを洗浄した。この操作によって Zr-95 および Ru-103 は 90% 以上アルミナカラムを通過した。さらに吸着された Mo-99 などの不純

物を溶出するため1規定アンモニア 30 ml を通しそのまま一夜放置した。生成してくる I-132 は 0.01 規定アンモニア 30 ml で溶離した。

I-132 の収率は1週間以上にわたってほとんど変化せず、8.7% となった。この値は別の実験においては78% 程度となり大きく変化した。この原因はアルミナの処理条件によって変化したものと思われるので今後さらに検討を加える必要がある。しかしこれら2つの結果は、HILMAN らの報告している“初期収率が74% であるが milking を繰返すか放置しておくとも3日間で53% に低下する”という現象とは著しく異なった。I-132 中に含まれてくる不純物としては I-131 があるが、これは Te-131 の壊変の結果生成してくるものであり除くことはできない。I-131 の量をより少なくするためには照射後冷却期間を適当に選ぶことが必要である。

### (c) Tc-99m ジェネレーターの調製

イオン交換分離された0.5規定塩酸フラクションには不純物として90% 程度の Np-239, 1~2% 程度の Zr-95 および Ru-103 が含まれる。これらの不純物を除くために Te-132 の場合と全く同様に0.5規定塩酸 30 ml のフラクションから Mo-99 を99% 以上アルミナカラムに吸着させ0.5規定塩酸 30 ml で洗浄した。この操作によって Np-239 の 99.98% 以上、Zr-95 および Ru-103 の90% 以上がアルミナカラムを通過した。Mo-99 より生成してくる Tc-99m は99% 以上が0.1規定塩酸 30 ml によって溶出した。第1回の milking の際には不純物として Np-239 がわずかに検出されたが、その後はいかなる不純物も検出されなかった。

以上の実験とは別にイオン交換分離操作によって他のフラクション、とくに0.2および0.3規定塩酸フラクションおよび0.75規定塩酸フラクションに含まれる Mo-99 の量と0.5規定塩酸フラクションに含まれる Te-132 の量をアルミナカラム法を用いて検討した。すなわち吸着された Mo-99 または Te-132 をそれぞれ1規定アンモニア水または3規定水酸化ナトリウム溶液によって分離し、 $\gamma$ 線スペクトルを測定して定量した。その結果 Mo-99 は0.75規定塩酸フラクションに0.3% 程度検出されたにすぎず、0.2および0.3規定塩酸フラクションには検出されなかった。また0.5規定塩酸フラクションに Te-132 は検出されなかった。

## 5.7 RI 検定技術の開発

### 5.7.1 放射能検定技術の開発<sup>1)</sup>

#### (a) $4\pi X$ 計数法の確立

軌道電子捕獲により崩壊する核種の絶対測定法として  $4\pi X$  計数法の検討を41年度より実施し、高い精度での測定法をほぼ確立したが、本法においては種々の補正項目があり、そのうちとくに試料自身による自己吸収がもっとも大きな因子となる。42年度はこの自己吸収の影響および補正などについて検討を加えた。

装置のなかで計数管本体は内径 150 mm $\phi$  × 225 mm の黄銅円筒よりなり、動作最高圧力 10 気圧、真空排気限度  $10^{-2}$  mmHg での内部におかれた試料からの X 線を全立体角方向で計数できる構造のものである。比例計数管として動作させるために PR ガスを用い、Fe-55 の特性 KX 線 (5.9 MeV) の場合、20% の分解能が得られた。また X 線が計数管にすべて計数される飽和計数値の得られる圧力は5気圧である。

Fe-55, Mn-54 など数 keV の特性 X 線では通常10% 以上の自己吸収があり、しかもその吸収率の推定も非常に困難である。まずこの影響をできるだけ少なくするため、測定試料の調製法について検討をおこない、とくに試料調製のさいの分散剤または湿潤剤の使用の有効性を写真用ドライウェル、洗剤ライポン水溶液、PVA 水溶液、テフロン微粉けんたく液などを用いて検討した。その結果テフロン微粉けんたく液が有効で、これを用いた場合自己吸収は4~5% まで減少することをたしかめた。

自己吸収の量の推定はつぎの方法によった。すなわち真空蒸着法、電着法などの方法により自己吸収の少ない試料を作り、これより次第に自己吸収を増加させた場合に認められるオーージェ電子と X 線の自己吸収の違いを利用することにより間接的に試料の自己吸収を求めた。

なおこの過程で用いた電着法の技術は自己吸収の少ない試料の調製に有効であるが、収率がかならずしも一定でないため直接の測定試料に応用することは困難であった。今後実験を重ねることにより良好な試料を得る手段が開発できるものと期待される。

本  $4\pi X$  計数法は、Fe-55, Mn-54 などのほか、他の同じような壊変形式の核種にたいしてただちに適用が可能である。

#### 文 献

- 1) 第14回応用物理学会(42年4月)、第8回日本アイソトープ会議(42年10月)。

#### (b) EC 核種 Cu-64 の絶対測定

Cu-64 は  $\beta^-$ ,  $\beta^+$  壊変のほか軌道電子捕獲 (EC) 壊変をし、さらにそれに伴う  $\gamma$  線の放出もある核種である。そのために絶対壊変数の測定は通常の方法、たとえば  $\beta$ - $\gamma$  同時計数法、X- $\gamma$  同時計数法などでは測定が困難である。従来は Cu-64 の絶対測定は金箔モニタにより求めた炉内中性子束の値から間接的に求める方法を行っているが、製造に使用する原子炉によっては必ずしも適当ではない。

すなわち本法では、 $^{197}\text{Au} (n, \gamma) ^{198}\text{Au}$  からの  $^{198}\text{Au}$  生成量より  $^{63}\text{Cu} (n, \gamma) ^{64}\text{Cu}$  の生成量を求めるため、各照

射孔内の中性子分布が一定であるかあるいは中性子放射化断面積のエネルギー依存性が Au と Cu について等しいという仮定を必要とする。これは必ずしも保証されないので精度の高い値を求めるには Cu-64 について絶対測定を確立する必要がある。

これに使用できる方法としては  $4\pi\beta$  計数法、 $\gamma$ -スペクトロメトリー、 $\gamma$ - $\gamma$ 同時計数法などが考えられ、41年度末よりその検討を開始した。42年度においては  $4\pi\beta$  計数法および  $\gamma$ -スペクトロメトリーについて実施した。

#### (1) 炉内中性子束の測定

予備的な実験として種々のモニタを用い炉内中性子束の測定について試みた。JRR-1 を使用し Na-24, K-42, Co-60, As-76 および Br-82 についておこなった結果、熱中性子束の領域において、サイクルごとにまた核種ごとに必ずしも一定の値が得られないことを確めた。本実験は参考となる基礎的なデータを得ることが目的であるのでこれ以上の追試はおこなわず、以後は絶対測定法の検討について実施した。

#### (2) $4\pi\beta$ 計数法による検討

本測定法では、 $\beta^-$ ,  $\beta^+$  のほか EC 崩壊に続いて放出される 7.4 keV の X 線が計数される。このうち  $\beta^-$  は問題なく、 $\beta^+$  および X 線の計数効率さらにオージェ電子の影響が問題となる。

X 線の計数効率については、Cu-64 以外の EC 崩壊する核種を用いてそれぞれの X 線の計数効率を求め、内挿により Cu-64 のそれを求める方法によった。今期は Mn-54 および Fe-55 の X 線に対する計数効率を求め、それぞれ 3% および 2.5% の値を得た。今後引き続き Ge-71, Cs-131 などについて実施し Cu-64 の X 線計数効率を求めるとともに、さらにオージェ電子の影響などについて検討を加え測定法の確立をはかる計画である。

#### (3) $\gamma$ 線スペクトロメトリー

本法は消滅過程による  $\gamma$  線 (0.51 MeV) の光電ピークの面積を測定し、全崩壊からの分岐比より崩壊数を求める方式である。一般に  $\beta^+$  核種の  $\gamma$  線スペクトロメトリーにおいては、 $\beta^+$  の飛程のため見掛上試料が大きな広がりをもった形になり、結果の解析をおこなう場合問題となる。

本実験では吸収体として種々の厚さの鉛およびアルミニウムを用いて試料を中にはさみ、実質的な試料の広がり検出器 ( $3\phi \times 3\text{NaI}$  クリスタル) との幾何学的関係について詳細な検討をおこない、この点にもとづく誤差を少なくした。吸収体として約  $200\text{mg/cm}^2$  (Cu-64  $\beta^+$  の最大飛程) の鉛板を用いたばあい試料はほぼ点状線源とみなすことができる。しかし逆にこの吸収体のため  $\gamma$  線の吸収、散乱が生じ、とくにアルミニウム板を用いた場合と鉛板の場合では約 2% の差が生じる。今後測定精度をあげるためにはこの点の解決をはかる必要がある。

以上のほか 0.51 MeV  $\gamma$  線の計数効率の決定、Cu-64 の  $\beta^+$  の分岐比についての正確な値を求めることなどを

必要としている。

#### (c) 制動放射線を利用する $\beta$ 核種の測定法

純  $\beta$  放射体あるいは  $\gamma$  崩壊率の低い  $\beta$  放射体の製品については従来  $2\pi\beta$  計数法による測定を採用しているが、近時非常に高濃度の製品が得られ、この測定のためには高度の希釈を必要とする。このため希釈にともなう測定精度、再現性の低減および高放射線下での長時間作業など種々の問題が生ずる。

制動放射線を利用する測定方式が可能であれば測定精度の再現性の向上および測定に要する時間の短縮など非常に有利な手段となるので、42年度半ばよりその検討を開始した。

測定試料としては P-32 製品を用い、測定器は井戸型電離函を用いた。42年度は  $\mu\text{Ci}$  の試料から 100 mCi 程度の P-32 について主として測定法の再現性についておこない、ほぼ測定に利用できる見通しを得た。今後種々の基礎的なデータをとる必要があり、43年度継続して実施する。

#### (d) 効率トレーサー法の検討

軟  $\beta$  放射体にたいする効率トレーサー法の応用は有用であり、当部においても S-35, Ca-45, W-185, Tl-204 などの核種に適用し良い結果を得ているが、なお基礎的に解明すべき要因も多い。その一つとして担体量または吸収体の種類により外挿曲線 ( $\epsilon_{\beta m}/\epsilon_{\beta t}$ ,  $\epsilon_{\beta m}$ ; 目的核種の計数効率,  $\epsilon_{\beta t}$ ; トレーサー核種の計数効率) の異なる傾向について解明する必要がある。

42年度は吸収体として金を用いて実施した。吸収体は真空蒸着により作成したが、蒸着を最大限におこなってもある程度以上の厚みは得られず (試料薄膜の破損などにより)、 $\beta$  線の吸収はわずかで期待されるほどの結果は得られなかった。今後金については薄箔の使用、さらに吸収体としてほかの金属元素 (アルミニウム、銀など) を用いることによりその確認をおこなう予定である。

#### (e) 線源測定技術

42年度は 2 次標準測定器にたいする仕様の決定・発注をおこなったほか、Cs-137 標準線源および保物部線量計測課の協力を得て一定条件下における機器の較正試験を実施したに止まった。Co-60 および Ir-192 線源について計数法による絶対測定を併用しての確認試験は、担当者の長期出張その他の事由により実施を延期した。

Co-60 については 41年度  $0.46\text{mm}\phi \times 100\text{mm}$  のものにたいし絶対測定法を用い測定値の確認をおこなったが、さらに多種の線源形状について実施する必要がある。また Ir-192 については絶対測定法の開発を含め検討をおこなう。

#### (f) ガスフロー計数管内におかれた試料表面に蓄積



される電荷の測定（名古屋大学，原子核工学教室，渡辺教授の指導協力による）

本題は42年7月～12月の期間において名古屋大学の渡辺教授の指導のもとにおこなった実験の成果である。<sup>2)</sup>

$2\pi\beta$ ,  $4\pi\beta$  計数などのように線源を計数管内部に入れて測定するにあい、電荷が試料保持膜面上に蓄積され、その結果試料近傍の電界が影響を受けて計数率が変化する現象がおこる。本実験はこの電荷蓄積の機構についての解明を試みることを目的とした。

(1) 装置

蓄積電荷量測定のための計数管としてガスフロー型  $4\pi\beta$  比例計数管を改造したものをを用いた。上側チェンバーを計数に使い、下側チェンバーは電極をとりはずして試料支持用棚板からのリード線を接続し、振動容量型電位計に導いた。測定の際のブロック図を Fig. 5.17 に示す。

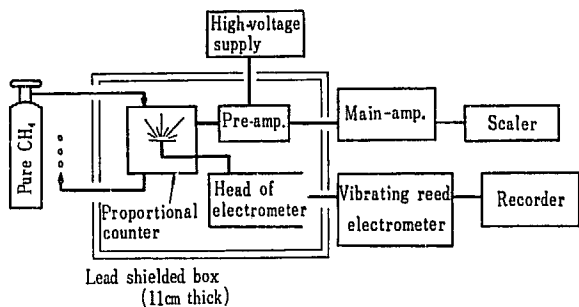


Fig. 5.17 Schematic diagram of charge measurement

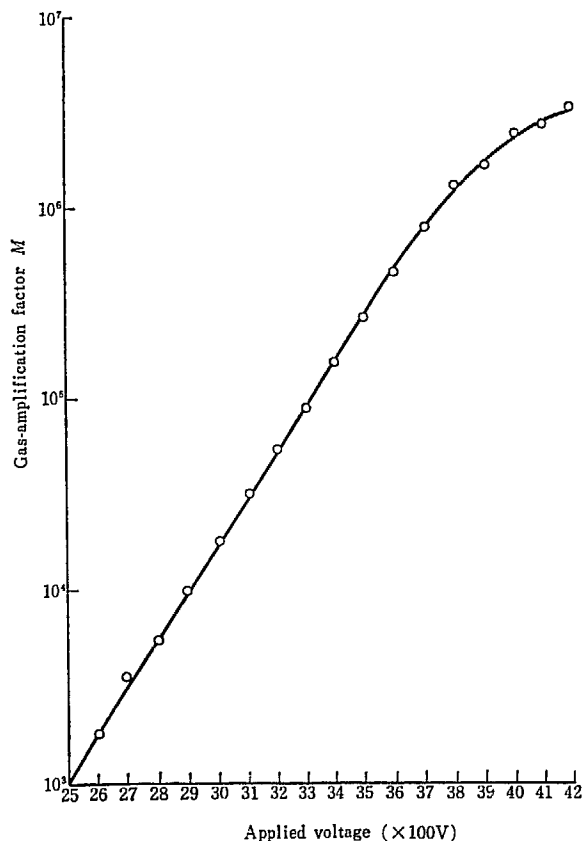


Fig. 5.18 Gas-amplification factor

(2) ガス増幅度

蓄積される電荷の量は計数ガスによるガス増幅の結果生じた全陽イオンに関係しているの、あらかじめガス増幅に関するデータを求めておく。ガス増幅度  $M$  は次式で求まる。

$$M = Q/e \div E/w,$$

ただし  $Q$  は1個の放射線によってでき、ガス増幅過程を経たイオンのもつ電荷の総量、 $e$  はイオン1個の電荷量、 $E$  は放射線のエネルギー (eV)、 $w$  は一對のイオンをつくるに要する平均エネルギー (eV) である。  $M$  の値を Fig. 5.18 に示す。

(3) 測定試料

X線源として Fe-55,  $\beta$  線源として Co-60 を用いた。

(4) 蓄積電荷にもとづく電流  $I$

Fig. 5.17 の構成で測定した結果を Fig. 5.19 に示す。

(5) 蓄積電荷量 ( $q$ )

毎秒あたりの放射線の数をも  $m$  とすると、Fig. 5.19 のデータから  $q = I/m$  として求めることができる。結果を Fig. 5.20 に示す。

(6) 結果

電荷の総量  $Q$  と測定にかかる電荷  $q$  との比を  $\epsilon$  とす

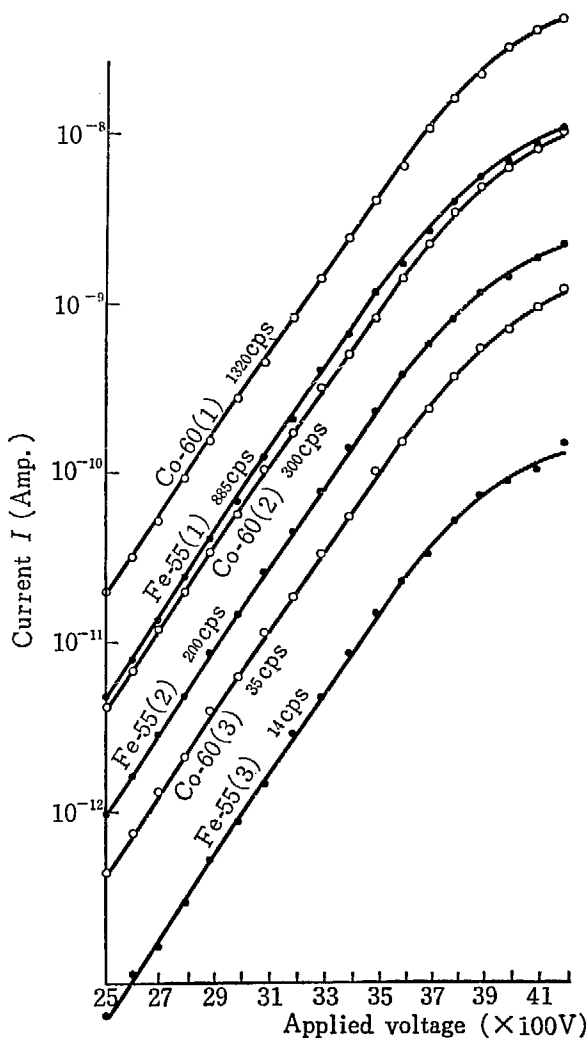


Fig. 5.19 Current due to accumulated charge

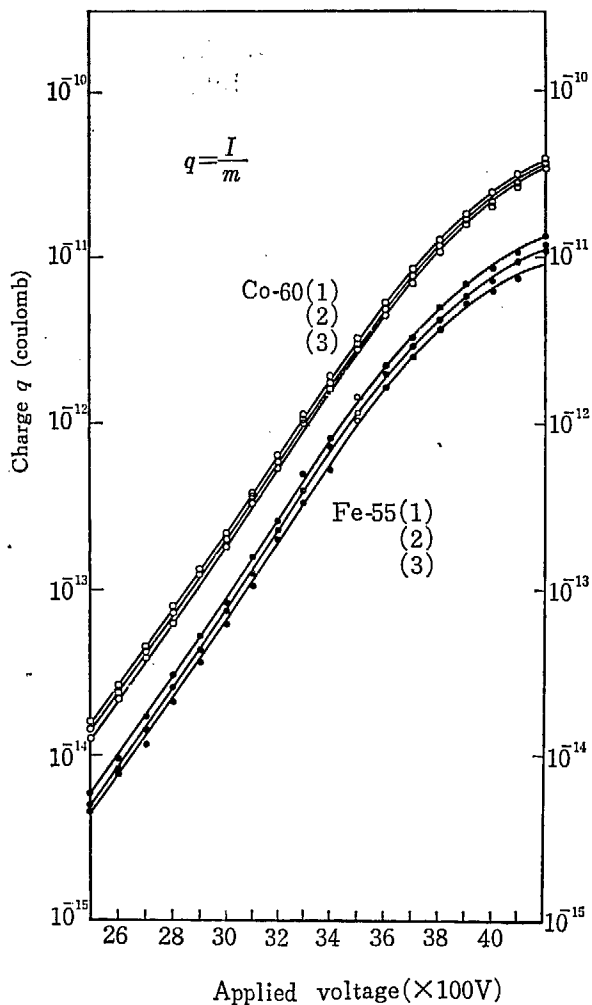


Fig. 5.20 Accumulated charge

ると、 $I = mME\epsilon\epsilon/w$  となる。

いま Fe-55 の場合の  $\epsilon$  を計算によって求めると 0.11 となり、一方計数管の全陰極面積を  $A$ 、Al 箔の表面積を  $a$  とし、イオンが電極に平行な方向には移動しない、つまり電極をはり渡してある両側の壁 (面積  $A'$ ) には到達しないものとして計算すると、 $a/(A-A') = 0.109$  となり  $\epsilon$  の値とよく一致する。

以上試料表面に蓄積される電荷は主としてガス増幅されながら試料表面を含む陰極に向かってほぼ均一に飛んでくる陽イオンにもとづくものであり、その量は陰極と試料表面の面積比でさまることが確かめられた。

#### 文 献

- 2) 第 15 回応用物理学会 (43 年 4 月)。

#### (g) Eu-152, -154 の絶対測定

近い将来カタログ化を目標としている Eu-152, -154 については、それぞれ半減期が 12 年、16 年と長いいうえ、壊変図式よりみてもその絶対量を求めることは容易ではない。絶対量を求めるには (i) 原子炉での照射条件にもとづく生成量の計算、(ii) 絶対測定法による定量、の二通りの方法が考えられる。(i) については、照射条件は炉の稼動ごとに異なり、中性子束密度を用いて

の生成量計算は困難であると思われるので、(ii) について基礎的検討をおこなうことにした。

測定法として  $3''\phi \times 3''$  の NaI クリスタルを用いた  $\gamma$  線スペクトロメトリーを採用したところ、ある程度の精度で測定できることを確かめた。したがって NaI クリスタルを Li ドリフト型 Ge 半導体検出器に変えて光電効果によるピークの分解能を高めれば、Eu-152 と Eu-154 の分離測定ができることが期待される。測定器の開発整備をおこなうとともに測定技術の開発を今後の目標とする。

#### 5.7.2 化学検定技術の開発

##### (a) 遠隔用発光分光分析装置による検定技術

発光分光分析法は製品の化学的品質管理の手段として従来の湿式法に比し、高感度の点で有効である。ことに製品が高放射性のものになるにしたがい試料量が限られてくるなどの原因から、微量の不純物元素の検出法として一段と有用性が増してくる。

本年度は、放射性溶液の試料を対象とした場合に測定に用いる放射能強度の限度、および放射性汚染の拡散・挙動などの確認を目的とし実験をおこなった。

また製品あるいはターゲット物質中の不純物元素についても、それぞれの定量法の確立および元素の確認をかけた。

##### (1) 基礎的検討

放射性試料を対象とした場合の基礎的検討としては、トレーサーとして Na-24 を用いたさいの種々の発光条件下における挙動を調べた<sup>9)</sup>。

装置は鉛セル内に設置した遠隔操作発光分光分析装置 (日本ジャーレルアッシュ社製、1.5m ワズワース型回析格子分光器) を用い、また試料には  $^{24}\text{NaCl}$  中性溶液を使用し、Cu-スパーク法を主とした。

スパーク放電後、アークスパークチェンバー内およびセル内各部についてスミヤテストにより汚染の拡散状態を調べ、また放射性物質の空気中への拡散試験をフィルターを通過したあとのスタックモニターによりおこない、同時に電極上の試料の蒸発量の測定もあわせて実施した。

発光後の汚染状態はチェンバー内、とくに電極部分に多く、セル内にはほとんど拡散しないことが確認された。また、グラスウールフィルターおよびアブソリュートフィルターを通して排気される系において、スタックモニターで感知される程度の放射性物質の放出はなかった。

上述の実験において使用した Na-24 の放射能量は多いもので数 mCi であるため、通常の試料の分析には適用できるが、高濃度製品の製造直後のものを対象とする場合などにそなえ、さらに検討を加えておく必要があると思われる。また I-131 など揮発性が高くしかもフィル

ターに捕促され難い核種を対象にチャコールフィルターなどの併用について考慮する。

平行しておこなった Na-24 製品中の不純物確認については問題となる程度の不純物は検出されず良好なものであった。

#### (2) W-185 および P-32 製品中の不純物の検討

W-185 については製品保存中に生ずる白色沈殿物の分析、P-32 についても滅菌-中性溶液としたばあいに、ときとして生ずる白色沈殿物 (P-32 については、使用者の実験過程において生じたことがある) に対し分光分析法によりその成分を分析した。

W-185 については、長期保存後白沈を生じた製品を使用し、沈殿を濾過分離後低温で灼熱灰化したものを測定試料とした。まず発光条件を種々検討した後 DC-arc 法が適当であると認め、これによることにした。沈殿物中にアルミニウム、マグネシウム、ケイ素、カルシウムなどが検出されたがタングステンのスペクトル線は検出されなかった。

また保存のさい用いる容器の種類によりあきらかに沈殿量に差があり、ガラス容器のばあいには有機樹脂系容器に比しやや多量の不純物が検出された。ほか 2, 3 の実験により、製品中の白色沈殿物は主成分のタングステンの加水分解の結果生じたものではなく、主としてガラス容器中よりの溶出によるものと考えられるにいたった。したがって、容器を有機樹脂系にかえることにより防ぐことができると考えられる。

P-32 については、滅菌操作 (湯煎器中加熱)-中和操作の実験条件下では使用した製品に関するかぎり認められるほどの沈殿物は生ぜず、したがって、需要者から送付された試料について生成した沈殿物の成分分析を実施した。沈殿物からは、銀、アルミニウム、カルシウム、鉄、ケイ素、マンガンなどが検出され、これは通常の硝子成分とほぼ一致している。今後、多くの検定例をつみ重ねる必要があるが、現在までの結果からは上記の白色沈殿物は、製造工程で硝子容器から溶出した成分が再び析出してきたものと考えられる。

なお発光分光分析法により引き続き多くの試料に対する分析を実施し、高放射性試料に対する定常的な検定法の確立につとめる。

#### 文 献

3) 日本分析化学会第 16 年会 (42 年 10 月)。

#### (b) 中長寿命 RI の検定法

中長寿命 RI については、製品中の不純物の検定のほか主元素量の定量法を確立する必要がある。これはその製造法より見て、比放射能値の算出に理論値を用いることが困難で実際製品について実測する必要があり、さらにほとんどがセル内で遠隔操作によりおこなわれるために、種々の制約が加わるという問題点を含んでいるからである。

42 年度は  $\beta$  放射体製品について実施した。W-185 製品中のタングステンについては、種々の定量法を検討した結果、再現性の高いオキシ法を採用することとした。実際の製品 10 種程度にたいしておこない良い結果を得た。Ca-45 は、製品中のカルシウムの量より過マンガン酸カリウム滴定法が望ましく、 $\pm 5\%$  以上の精度で定量可能である。Y-90 については、アルセナゾ-III による吸光度法について検討した。セル内での pH の調整などにやや熟練を要することを除けば精度よく定量できる。イットリウム定量の最適範囲は 10~100 $\gamma$  である。

他の製品についても製品品質の向上に伴い、検定精度の向上のためには主元素量の定量を必要とする場合が多く、43 年度以降も引き続き各核種を対象として実施してゆく予定である。

#### (c) 特殊 RI 製品の検定

ホットアトム効果を応用した特殊 RI 製品にたいしては比放射能値を求めるための主元素量の確認が必要項目であり、(n,  $\gamma$ ) 反応による製品に比しその量は微量となるので高感度の定量法を必要とする。41 年度に Cr-51 について定量法を確立し、42 年度は Cu-64 にたいしておこなった。初期の段階で比色法による限度試験をおこなったが、その後遠隔分光光電光度計を用いた光度法を定めた。今後さらに微量となった場合にそなえてポーラログラフ法などによる検討をおこなっている。

また特殊 RI 製品はその使用目的 (医薬用原料) から等張溶液とする場合が多く、溶液中の全塩類の定量を必要とする (近似的には使用した試薬量、製造法などから計算により求めることも可能である)。測定法として氷点降下法を採用し、いくつかの実験をおこなって検討した。

本法の精度は割合に高いが、大量の試料を必要とすること、遠隔操作化し難いなどの欠点もあり、定常法として採用するまでにはなお検討を必要とする。

#### (d) 高純度金ターゲット中の不純物定量法

Au-198 製造に使用する高純度金線の純度については、ほとんどの不純物が放射化分析法を用いることにより確認できるが、金線の中に不純物として存在の可能性があるパラジウム、白金にたいしては同法による定量は困難で、他の分析法の併用を必要とする。

42 年度この 2 元素にたいする定量法を検討した。分離法としては、臭化水素酸およびイソプロピルエーテルによる有機溶媒抽出法で金を分離後、さらにジメチルグリオキシム-クロロホルム抽出法によりパラジウム、白金を分離する方法を用いた。分離後光度法による定量をおこなった。分離操作ではほぼ良好な結果が得られたが、定量法になお問題があり、今後発光分光分析法を併用し測定法の確立をはかる。

## 5.8 RI 照射技術の開発

昭和 42 年度はアイソトープ事業部 5 年計画の第 3 年目にあたり、かつ原子力委員会があらたに策定した長期計画前期 5 年の中期にあたる年であった。照射技術の開発にあたっては、とくに P-32, I-131, Au-198 など大需要核種の大量かつ定常的な生産を可能とする照射技術の開発に重点をおき、その他新製品の技術開発にも適した照射技術の開発をも実施した。

照射技術の開発にあたっては、製造部の各担当者と研究炉管理部および材料試験炉部の各担当者が直接接触することも含めて、連絡、打合せ、協力を密にしておこない、仕事の無駄な重複などを極力避けるようにした。

### 5.8.1 JRR-2 および JRR-3 における照射技術の開発

#### (a) JRR-3 によるテルル酸照射技術の開発

JRR-3 による I-131 の定常生産を軌道にのせるため 41 年度着手した二重封入方式によるテルル酸照射技術の開発を強力に推進し完成した。実施を担当したのは製造課製造 2 係と研究炉管理部利用課第 3 係であった。この技術の完成により I-131 の大量生産が可能となった。また年度終りごろから、I-131 の安定生産を実現するために JRR-2 によるテルル酸照射技術の開発を開始し、その完成をみた。結果については 5.1.1, (c) に述べられている。

#### (b) 水銀ターゲット照射技術の開発

水銀は、万一の照射中の事故で水銀と炉の構成材が接触したときに致命的な損傷を与えるという理由から、従来炉管理部は認めていなかった。42 年度は製造課製造 2 係が担当して炉管理部の担当係と協力して照射方式の検討および照射技術の開発を実施し、長期間照射に当っては最外側を冷間圧接型アルミニウムカプセル、内側にステンレス製溶接型カプセル、最内側は石英アンブル封入の方式が充分安全であることをたしかめた。詳細は 5.1.6, (b) に述べてある。43 年度には炉管理部の認証あり次第 JRR-2 による Hg-203 の生産にとりかかる予定であるが、将来は、JRR-3 も利用して照射を実施する必要があると考えている。しかしながら、この点で炉管理部側の考え方には JRR-2 で実証された事実を JRR-3 にそのまま適用すべきでないということがあり、事態の進展を甚しく阻んでいる。短寿命 Hg-197 の製造では、石英アンブル封入、アルミニウム二重カプセル方式の採用を製造部から提案し現在検討を実施中である。

#### (c) JRR-2, VT-1 実験孔における照射技術の開発

JRR-2 の VT-1 照射孔は炉心中央に位置し  $10^{14}$  単位の熱中性子束が得られること、P-32 の大量生産に必要な高い密度の速中性子束が得られることから、製造部としてはかねてからその定常使用を要望してきていた。しかしながら、VT-1 の位置からターゲット物質の量、中性子吸収断面積、物理的形状などが炉の余剰反応度に鋭敏に影響することが予想されたため、定常的な照射は 41 年度内には実現しなかった。

42 年度は VT-1 照射の定常照射実現を目標として計画を推進し、研究炉管理部 JRR-2 管理課第 3 係、同利用課第 1 係で担当実施していた照射方式決定のための実験に製造課製造 2 係、同製造 5 係、製造技術課技術 1 係が協力し、年度後半には Ir-192 特殊線源および元素状イオウの定常照射が可能となった。

#### (d) JRR-2 In-core 照射装置による照射技術の開発

In-core 照射装置とは中空円筒型の燃料体で JRR-2 の炉心内に設置されている。その最大の特徴は高い速中性子束での照射が可能となることであって、P-32 製造への応用を実現すれば VT-1 照射孔以外にも生産の手段を確保でき、生産の安定化に寄与する。この観点から、照射技術の開発ならびに確立を製造係担当で実施し、成果を得た。詳細は 5.1.2, (a) に述べた。

#### (e) 原子炉内温度測定技術

RI 製造技術の一環として炉内の温度、ターゲットの発熱の問題は重要な課題である。一般に温度測定のための手段として熱電対による方法がとられているが、任意の位置で手軽に測定するには非常に不便である。

この問題を解決する手段として、これまでサーモポイントなどについて二、三の試験をおこなってきたが、これは表示温度においてその変化が明らかなものでない。そこで、ここではテンピル社製テンピルペレットを用いることとした。これはその表示温度において熔融し最初の型がくずれることから変化の識別が容易である。しかしこのペレットについての化学的組成は明らかでなく、原子炉内使用にさいして生成する放射能、長時間照射による特性変化についての知識は全くない。

##### (1) テンピルペレットの放射化分析

ペレットの化学的組成と炉内照射中に生成する放射能を調べる目的で次の実験をおこなった。

ペレットの表示温度  $52^{\circ}\text{C}$  から  $253^{\circ}\text{C}$  まで約  $10^{\circ}\text{C}$  間隔の試料を約 8 mg ずつ石英アンブルに封入し、JRR-2 気送管で 5 分間照射した。約 1 時間 30 分を経過した時の試料の表面線量率は、Model DR-3 電離箱型サーベータを用いて測定した結果、ほとんどが 1 ないし 2 mR/hr 以下であった。しかし  $104^{\circ}\text{C}$  および  $156^{\circ}\text{C}$  の場合にはそれぞれ 190 mR/hr および 250 mR/hr 以上と異常に大きな値となった。

試料のγ線スペクトルを3"φ×3" NaI クリスタルを用いたTMC-256波高分析器で測定し解析した結果、Zn, Cu, Cr, Co, Mn, Sbなどが0.5%程度以下含まれているにすぎず、炉内照射において放射能上問題となることはない。しかし156°C, 212°Cおよび253°CのペレットについてはBrを含んでおり、炉内照射において分解のおそれがある。この実験のさい52°Cおよび62°Cのペレットは熔融しており、他のペレットについては何らの変化も認められなかった。

(2) テンピルペレットの照射試験

上記の実験と並行してJRR-2で180時間の中性子照射をおこなったペレットについては明らかに分解が生じ、照射後のペレット加熱熔融試験においては表示温度よりもはるかに低い温度を示した。そこで照射時間とペレット特性変化の関係を調べる目的で52°C, 62°C, 73

°C, 83°C, 93°Cおよび104°Cのペレットを石英管に入れ、JRR-3気送管で5分, 10分, 20分, 30分および60分の照射をおこなった。その結果、52°Cのペレットについては20分以上の照射で熔融し、62°C以上のペレットについては変化が認められなかった。照射後の試料を別のガラス管に入れ温度計とともに硫酸浴中で加熱熔融試験をおこなった結果、少なくとも照射時間60分までにペレットの特性変化は認められなかった。

ペレットの応用例として、円柱状のカドミウム1gの表面に83°Cのペレットを密着しておき、そのまわりをポリエチレンシートでつつみ、上記と全く同じ条件で1分, 2分, 5分および10分の照射をおこなった。照射直後ただちにサンプルの状態を調べた結果、2分照射までペレットは変化しなかったが、5分および10分照射では完全に熔融し、ポリエチレンシートもわずかに熔

TABLE 5.12 JMTR 試用期間照射計画表

サイクル No.	01	02	03	04	05	06	07
照射孔	01	02	03	04	05	06	07
D-9	67M45R ○—● Au, Zn, Ni, Co ○—● Ta, KCl, Co ○—● AlN	46R ○—● Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , Rb <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> ○—● Au, Cs <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> , Co ○—● Cr, K <sub>2</sub> CrO <sub>4</sub> ○—● CaCO <sub>3</sub>	47R ○—● Au, Zn, Ni, Co ○—● Ta, KCl, Co ○—● AlN	48R ○—● Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , Rb <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> ○—● Au, Cs <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> , Co ○—● Cr, K <sub>2</sub> CrO <sub>4</sub> ○—● CaCO <sub>3</sub>	50R ○—● Zn, Ni, Co ○—● Ta, Pt, Co ○—● AlN	51R ○—● Ag, Zn, Co ○—● AlN ○—● CaCO <sub>3</sub> , KCl	
F-4			○—● H <sub>6</sub> TeO <sub>6</sub> 照射テスト	67M49R ○—● Cr, K <sub>2</sub> CrO <sub>4</sub> ○—● AlN ○—● Au, Cd, Co ○—● CaCO <sub>3</sub> , Ag, MoO <sub>3</sub>	52R ○—● AlN ○—● Au, Cd, Co, Cs <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> ○—● Cr, KCl ○—● CaCO <sub>3</sub>		
H-7-1		○—● S <sub>x</sub> 照射テスト	○—● S <sub>x</sub> 照射テスト		53R ○—● Ni, Fe, Co ○—● Ni, Fe, Co ○—● BaCO <sub>3</sub> , Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		
G-12 or J-3 (1.5×10 <sup>14</sup> )	○—● Ir 本製造	○—● Ir 製造(予備)		未		定	
M-11 or K-12 (1.5×10 <sup>14</sup> )	○—● Ir 本製造	○—● Ir 製造(予備)		未		定	
Hydro-rabit	○—● Au 試験製造 (3回)	○—● Co ○—● Zn, MgO ○—● Au 本製造		○—● Co ○—● Zn, MgO ○—● Au 本製造		○—● Co ○—● Zn, MgO ○—● Au	
サイクル期間	44. 1. 14~2. 3	44. 2. 25~3. 17	44. 4. 8~4. 28	44. 5. 20~6. 9	44. 7. 1~7. 21	44. 9. 16~10. 6	44. 10. 21~ 11. 10

けた。

(f) Co-60 生産のための JRR-3 照射技術開発の予備試験

Co-60 線量線源の製造技術開発の第 1 着手として JRR-3 の VR-または VG-照射孔で照射した試料を用いて取扱い技術の開発を実施しているが、将来の JRR-3 の VC 孔での線源製造ならびに JMTR による照射のための前段階として、JRR-3 の VC を照射可能な状態に改造し、ターゲットの試験、照射方式の確立のためのデータを収集する計画が進行中である。改造のための計画は研究炉管理部利用課第 3 係により実施されたが、製造部からは製造 5 係が協力してプラグの設計などを完了し、42 年度内に試作品の発注がおこなわれた。43 年度内に残りの計画を消化し、試験照射を開始する予定である。

5.8.2 JMTR による照射試験

昭和 43 年秋に試験照射開始を予定されている JMTR による照射試験の計画を実施するとともに、必要な照射装置の設計、照射方法の決定を材料試験炉部実験計画課および同照射課と協力して実施した。

TABLE 5.12 に示したものは同炉による照射計画表である。照射方式に関しては年度内に結論を得るにはいたらなかったが、原則として精製 RI 製造のための照射には JRR-2 の in-core 照射装置と類似の方式を、Ir-192, Co-60 などの線源製造のためにはより簡便な照射方式を採用することに意見の一致を見た。

5.9 RI 製造研究

RI 製造研究は研究係がこれを担当し、1) RI 製造に有用なホットアトム効果の研究および 2) RI 製造に有用な核反応の研究を中心に研究開発を実施している。

RI 製造に有用なホットアトム効果の研究開発の成果は、42 年度において高比放射能 Cr-51 の製造あるいは高比放射能 Cu-64 の製造など特殊アイソトープ係に移管され、外部に対する生産サービスの開始されたものもある。

ホットアトム効果の研究において見出されたいくつかの知見は、42 年夏国際原子力機関提案による台湾清華大学葉錫溶教授と製造部（とくに製造技術課研究係ホットアトム・グループ）の共同研究「低温照射による反跳原子の化学的行動」（5.10 に述べる）の出発点をなし、研究遂行上の見通しを立てる上に大いに役立った。

また RI 製造に有用な核反応の研究においてフラックス・モニターの開発研究がおこなわれたが、これは RI 製造上重要な課題であり、製造部全体に有益な情報をも

たらすことができた。

5.9.1 RI 製造に有用なホットアトム効果の研究

RI 製造に有用なホットアトム効果の研究では、42 年度第 1 四半期末に高比放射能 Cr-51, Cu-64 の製造技術の開発の関係業務を新設の特殊アイソトープ係に移管したが、それ以外の研究は前年度よりの成果を受けついでひきつづき実施している。とくに重点的におこなっている研究はフタロシアニン系錯塩のホットアトム効果で、結晶形の差異がホットアトム効果にもたらす影響を検討し、いくつかの重要な点を明らかにすることができた。

(a) フタロシアニン亜鉛のホットアトム効果

$\alpha$  および  $\beta$  型フタロシアニン亜鉛を中性子照射すると  $^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$  反応および  $^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$  反応により、Zn-65, Zn-69m ができる。またこのほかに  $^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{g}}\text{Zn}$  反応で Zn-69g が生じ、 $^{69\text{m}}\text{Zn} \rightarrow ^{69\text{g}}\text{Zn}$  (核異性体転移) の過程により Zn-69g が生成する。このようないくつかの核変換の過程により生じる亜鉛のホットアトムがどのような化学的行動を示すかについて研究をおこなった。結果を TABLE 5.13 に示す。これによりわかるように、 $^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$  反応と  $^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$  あるいは  $^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{g}}\text{Zn}$  反応とは著しい相違を示すが、 $^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$  と  $^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{g}}\text{Zn}$  反応の間では、反応の傾向はほぼ一致する。また  $^{69\text{m}}\text{Zn} \rightarrow ^{69\text{g}}\text{Zn}$  の核異性体転移によってはリテンションがほとんど 100% になり、ホットアトム効果による分離がみられない。Zn-65 リテンションが低いことの説明として核反応後複合核から脱励起される過程での Auger 電子放出が重要であることが推定される。このことは中間レベルの寿命の計算および内部転換率の計算などからも裏付けられる。

またフタロシアニン亜鉛中に生じた反跳亜鉛原子の熱アニーリングの研究により、アニーリング過程には 2 つの段階があることが明らかにされた。アニーリング進行の早さは Stage I では  $\beta > \alpha$  であり、Stage II では  $\alpha > \beta$  となり、傾向が逆転する。初期リテンションについては  $\beta > \alpha$  であるから、Stage I のアニーリング反応が初期リテンションを作る反応と関係があり、Stage II は無関係なものと考えるのが自然である。初期リテンションは  $\alpha$  結晶では照射温度依存性がなく、 $\beta$  結晶では照射温度依

TABLE 5.13 フタロシアニン亜鉛中でいろいろの核変換の過程により生じる亜鉛原子のホットアトム効果

核変換の過程	照射温度	リテンション (%)	
		$\alpha$ 型	$\beta$ 型
$^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$	-78°C	9.8±0.9	14.9±0.6
$^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$	-78°C	17.7±0.6	26.0±1.2
$^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{g}}\text{Zn}$	-78°C	17.5±0.9	24.5±0.7
$^{69\text{m}}\text{Zn} \rightarrow ^{69\text{g}}\text{Zn(IT)}$	-78°C保存	<99.9	<99.9

存性を示す。

(b) フタロシアニン・カドミウムのホットアトム効果

カドミウムのホットアトム効果は従来まったく研究されていなかったもので、本研究によりはじめてCd-115の濃縮およびホットアトム効果の観察がおこなわれた。フタロシアニン・カドミウムは中心金属の脱金属の現象が起りやすく、ふつうの溶媒に溶かせば脱金属を起すので処理法には特別な注意を払った。フタロシアニン・カドミウムを合成し、精製したのち、これを中性子照射して、照射ターゲットをジメチルスルフォオキシドに溶かす。溶液を水にうすめるとターゲットのフタロシアニン・カドミウムが沈殿し、液相中にホットアトム効果により生じたカドミウムが残る。液相中のカドミウムの収率は約60%、濃縮係数~15であった。またCd-115は $\beta$ 壊変によりIn-115mを生じる。フタロシアニン・カドミウムをCd-115で標識し、これより生じるIn-115mの化学的行動を調べると、ほとんど100%のリテンションとなり、化学結合の解裂はみられない。このことを逆に用い、In-115mを壊変前の親であるCd-115のトレーサーとして使用し、Cd-115の化学的行動を検討しようとする“daughter tracing method”なる新方法を開発した。この方法によればデータの再現性がよく、また処理時間も短く、熱アニーリングの研究などのために非常に有効なものであった。この方法によって得られた熱アニーリング曲線をFig. 5.21に示す。

(c) 銅オキシ錯塩のホットアトム効果

銅オキシ錯塩にも $\alpha$ 型、 $\beta$ 型の結晶形があり、そのおのおのに含水塩、無水塩があることが知られている。フタロシアニン銅のホットアトム効果の研究との関連において、銅オキシ錯塩のホットアトム効果の研究は重要なことと考えられる。

銅オキシ錯塩の $\alpha$ 型および $\beta$ 型、それぞれの含水塩、無水塩を合成し、X線回折によって結晶形の確認をおこなったのち、中性子照射をおこなった。照射ターゲット

はクロロホルムに溶かしたのち、濃アンモニア水とふりまぜて溶媒抽出をおこなった。水相に来る放射能は銅オキシ錯塩からはずれた銅イオンと考えられる(海老原, 吉原; 分析化学 9, 815(1960)), 水相抽出分をaqueous yieldと名付ける。Aqueous yieldは(1)  $\alpha$ 型結晶の方が $\beta$ 型結晶よりも大きい。含水塩、無水塩を通じてこのことは成立する。(2) 含水塩と無水塩を比較すれば、aqueous yieldは含水塩の方が無水塩より小さい。しかしその差はわずかなものである。

つぎに銅オキシ錯塩の熱アニーリングについて述べる。 $\alpha$ 型、 $\beta$ 型ともaqueous yieldは一たん増加したのち減少するという傾向をあらわす。これは非常に不思議な現象であるが、アニーリング過程に少なくとも2つ以上の型の反応が関係していると解せられる。

(d) ( $\gamma, \gamma$ ) 反応の反跳化学

( $\gamma, \gamma$ ) 反応は他の反応にくらべ、反跳エネルギーを低くできる点で、非常に重要な核過程であるが、従来まったく見落されていた。たとえばふつうの( $n, \gamma$ )反応の場合、反跳エネルギーは100~1,000eVであり、( $\gamma, n$ )反応、( $n, 2n$ )反応などでは100keV程度に達する。このような高い反跳エネルギー範囲ではホットアトム効果の反跳エネルギー依存性が飽和に達するであろうことが考えられたにもかかわらず、低い反跳エネルギー領域の現象の検討はおろそかにされていた。本研究では、( $\gamma, \gamma$ ) 反応により0.6~200eV程度の反跳エネルギー範囲におけるホットアトム効果を研究しようとするもので、この領域における反跳原子の化学的行動の理解を通じ、固体ホットアトム化学の急所をつこうと試みた。

ターゲットとしてインジウムEDTA錯塩を用い、 $\gamma$ 線源はLINACあるいはCo-60を用いた。その結果、錯塩からはずれるインジウムの収率と反跳エネルギーとの間の関係があきらかにされた。反跳効果のあらわれは始めるエネルギーは~10eV/bond付近にあることがわかった。この値は質量分析計における出現電圧にも比すべき重要な定数であり、今後なお研究する。

### 5.9.2 RI 製造に有用な核反応の研究

(a) 核研サイクロトロンを用いた核分裂の研究

研究部の放射化学第二研究室と共同してU-238のプロトン誘起核分裂の放射化学的研究をおこなっているが、42年度はすでにまとめの段階に入った。42年度上半期は前年度にひきつづきガスフロー比例計数管による $\beta$ 線の測定をおこなったが、その後電子計算機を用いて $\beta$ 崩壊曲線の解析をおこない、ほぼ完了した。TABLE 5.14に解析を完了した各核種について得られた半減期の平均値を示す。

一方これと並行して放射能の絶対量を定量するために $4\pi\beta$ 計数管、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数管および $\beta\text{-}\gamma$ 同時計数管

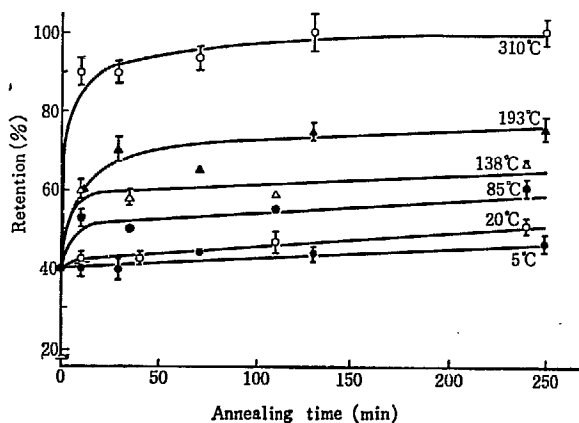


Fig. 5.21 Isothermal annealing of neutron irradiated cadmium phthalocyanine

TABLE 5.14 核分裂生成物の半減期

核種	半減期(日)
$^{72}\text{Zn}$ - $^{72}\text{Ga}$	1.947 $\pm$ 0.015
$^{86}\text{Rb}$	18.63 $\pm$ 0.12
$^{89}\text{Sr}$	50.6 $\pm$ 0.3
$^{90}\text{Y}$	2.694 $\pm$ 0.013
$^{91}\text{Y}$	58.8 $\pm$ 0.2
$^{99}\text{Mo}$ - $^{99\text{m}}\text{Tc}$	2.763 $\pm$ 0.011
$^{112}\text{Pd}$	0.838 $\pm$ 0.007
$^{115\text{m}}\text{Cd}$	45.0 $\pm$ 1.0
$^{115\text{g}}\text{Cd}$	2.224 $\pm$ 0.007
$^{140}\text{Ba}$ - $^{140}\text{La}$	12.777 $\pm$ 0.008
$^{141}\text{Ce}$	32.6 $\pm$ 0.6
$^{143}\text{Pr}$	13.58 $\pm$ 0.07
$^{144}\text{Ce}$	300 $\pm$ 11
$^{147}\text{Na}$ - $^{147}\text{Pm}$	10.96 $\pm$ 0.04
$^{148}\text{Pm}$	42.2 $\pm$ 1.9
$^{149}\text{Pm}$	2.21 $\pm$ 0.02
$^{153}\text{Sm}$	1.934 $\pm$ 0.005
$^{156}\text{Eu}$	15.14 $\pm$ 0.09

を併用して絶対測定をおこない、各核種について実際の測定条件と対応させて、使用した比例計数管の計数効率を決定した。そのさい多量の内部転換電子を出す核種の $\beta$ 線絶対測定の場合に必要なとされる補正式の一般形を導き出した。

また、この実験はスタックド・フォイル法を用いておこなっているため、核分裂にあずかる励起エネルギーを知るには入射粒子のエネルギーとターゲット・アセンブリ中での飛程との関係を求めねばならない。そのために TROWER によって開発されたプログラム<sup>4)</sup>を基にしたエネルギー損失と飛程計算のためのプログラムを開発した。

#### 文 献

- 4) W.P. TROWER; TID 4500 (1966)

#### (b) 炉内中性子スペクトルの測定

熱中性子領域での中性子反応断面積が $1/v$ 法則にしたがう理想的なモニターの場合には、原子炉内の熱中性子束およびエピソード中性子束は、全生成放射能とカドミウム比だけから求められることになっている。しかしイリジウムを除いては $1/v$ 法則が成り立たず、上述の方法で中性子束を求めることは厳密にはできない。またカドミウム比の持つ物理的意味も明確ではなくなる。一方、原子炉を使う放射化の実験では今後詳細な中性子エネルギースペクトルが知られていることが要求されるようになることは必然の推移である。このことはまた、熱中性子領域のみならず速中性子領域についても同様である。

以上述べた理由によりわれわれは中性子スペクトルを求めるのに適当なフラックス・モニターのセットを決める実験をはじめた。まず実験条件をできるだけ一定に保つために JRR-1 の気送管を選び、カプセルの照射位置のみならずカプセル内の試料の位置をも再現させるべく

TABLE 5.15 中性子モニタリングのために検討した核反応

ターゲット核	核反応	生成核	半減期
$^{23}\text{Na}$	n, $\gamma$	$^{24}\text{Na}$	15 hr
$^{41}\text{K}$	n, $\gamma$	$^{42}\text{K}$	12.5 hr
$^{55}\text{Mn}$	n, $\gamma$	$^{56}\text{Mn}$	2.58 hr
$^{59}\text{Co}$	n, $\gamma$	$^{60\text{m},\text{g}}\text{Co}$	5.2 y
$^{63}\text{Cu}$	n, $\gamma$	$^{64}\text{Cu}$	13 hr
$^{65}\text{Cu}$	n, $\gamma$	$^{66}\text{Cu}$	5.1 m
$^{64}\text{Zn}$	n, $\gamma$	$^{65}\text{Zn}$	245 d
$^{68}\text{Zn}$	n, $\gamma$	$^{69\text{m}}\text{Zn}$	14 hr
$^{68}\text{Zn}$	n, $\gamma$	$^{69\text{g}}\text{Zn}$	55m
$^{75}\text{As}$	n, $\gamma$	$^{76}\text{As}$	26.5 hr
$^{79}\text{Br}$	n, $\gamma$	$^{80\text{m}}\text{Br}$	4.4 hr
$^{79}\text{Br}$	n, $\gamma$	$^{80\text{g}}\text{Br}$	17.6m
$^{81}\text{Br}$	n, $\gamma$	$^{82\text{m},\text{g}}\text{Br}$	35.5 hr
$^{85}\text{Rb}$	n, $\gamma$	$^{86\text{m},\text{g}}\text{Rb}$	19 d
$^{87}\text{Rb}$	n, $\gamma$	$^{88}\text{Rb}$	18m
$^{121}\text{Sb}$	n, $\gamma$	$^{122\text{m},\text{g}}\text{Sb}$	2.8 d
$^{123}\text{Sb}$	n, $\gamma$	$^{124\text{g}}\text{Sb}$	60 d
$^{133}\text{Cs}$	n, $\gamma$	$^{134\text{m}}\text{Cs}$	2.9 hr
$^{133}\text{Cs}$	n, $\gamma$	$^{134\text{m},\text{g}}\text{Cs}$	2.2 y
$^{139}\text{La}$	n, $\gamma$	$^{140}\text{La}$	40 hr
$^{152}\text{Sm}$	n, $\gamma$	$^{153}\text{Sm}$	47 hr
$^{191}\text{Ir}$	n, $\gamma$	$^{192\text{m},\text{g}}\text{Ir}$	74 d
$^{193}\text{Ir}$	n, $\gamma$	$^{194}\text{Ir}$	19 hr
$^{197}\text{Au}$	n, $\gamma$	$^{198}\text{Au}$	2.70 d
$^{27}\text{Al}$	n, $\alpha$	$^{24}\text{Na}$	15 hr
$^{27}\text{Al}$	n, p	$^{27}\text{Mg}$	9.5m
$^{31}\text{P}$	n, p	$^{31}\text{Si}$	2.6 hr
$^{32}\text{S}$	n, p	$^{32}\text{P}$	14.5 d
$^{35}\text{Cl}$	n, $\alpha$	$^{32}\text{P}$	14.5 d
$^{56}\text{Fe}$	n, p	$^{56}\text{Mn}$	2.58 hr
$^{58}\text{Ni}$	n, p	$^{58\text{m},\text{g}}\text{Co}$	71 d
$^{64}\text{Zn}$	n, p	$^{64}\text{Cu}$	13 hr

コントロールした。異なるカプセル相互の間のモニターとして、Co-59 および Ni-58 を選んだ。TABLE 5.15 に検討した反応の種類を掲げる。

この実験をおこなった結果、比較的再現性のよい中性子源と思われている JRR-1 の気送管においても、時として中性子束が2分の1に落ちることがあることが見いだされた。この実験の進行中に JRR-1 の共同利用が停止されたので、各モニターについてかろうじて2回の繰返し実験ができただけに終わったのはまことに残念である。とくに1mm厚のカドミウム箔を被せての照射は繰返し実験ができず、そのため得られた値に対する信頼性は相当程度割引かれる結果となった。

つぎに、高い中性子束が得られる JRR-2 の VT-3 および VT-4 を用いて、主として(n, 2n)反応を対象として速中性子領域のフラックス・モニターの開発研究をおこなっている。ターゲットとしては、(n,  $\gamma$ )反応生成物による影響を受けない元素、すなわち Na, Mn, As, Y, I, Rh が対象として選ばれた。予備的な実験の結果ではこれらの(n, 2n)反応による生成放射能は、NaI クリスタルを用いる $\gamma$ 線測定により定量可能な程度であ



り、したがっていずれも速中性子束測定用モニターとして使用可能であることが判明した。

### (c) シェル構造を導入した核準位密度式の計算

核反応の統計論的取扱いは核準位密度が基本的な量として登場する。核の自由ガス模型によれば準位密度  $\rho(E)$  は

$$\rho(E) = C \exp 2\sqrt{aE} \quad (1)$$

で与えられることが導かれる。ここで  $E$  は核のもつ励起エネルギー、 $C$  は  $E$  と共にゆるやかに変化する係数である。 $a$  は準位密度定数と呼ばれる定数であり、通常実験値をもとにして定められる。しかしながら、同一の核に対しても、反応形式や励起エネルギーが異なると、一般に  $a$  の値は同じとはならず、それぞれ独立に定められた値の間の違いに対する考察はほとんどなされていない。

最近 Berkeley でおこなわれた  $\alpha$  粒子による種々の核分裂の実験によって、核分裂の励起関数<sup>5)</sup>と核分裂破片の角度分布<sup>6)</sup>の双方の結果を従来の理論的手法で説明することはできないことが見いだされた。この困難を克服する共通の答えとして、上述の  $a$  が励起エネルギーとともに増加する可能性に目が向けられた。

これらの問題を解決する方法として、準位密度計算の基礎をなす単一粒子に対する準位密度にシェル構造を導入して計算をおこなった。その結果、上述(1)式と同じ形の式を得た。ただしこの場合  $a$  は定数ではなく、励起エネルギーの関数になる。 $a$  の第1近似式はこのほかに2個の任意パラメーターを含むので、このパラメーターの値を決めるために110個の核種について中性子の共鳴吸収データから得られた  $a$  の実験値に最もよく一致するような条件を求めた。Fig. 5.22 にかくして得られた計算値を実測値と併せて示す。

つきにこうして定めたパラメーターの値を用いて実測の  $a$  の  $E$  依存性が説明できるかどうかを約30の元素について検討した結果、約半数は満足すべき結果を与えるが、残りは定性的にも一致しないという結果になった。これは  $a$  の計算にさいしておこなったモデルの簡略化が必ずしも合理的でなかったためと思われる。そのためにより合理化されたモデルに改造し、目下計算中であるが、なにぶん計算機の能率が悪く見るべき結果を得ていない。

### 文 献

- 5) A. KHODAI-JOOPARI; UCRL-16489 (1966)
- 6) S. S. KAPOOR, H. BABA, S. G. THOMPSON; *Phys. Rev.* 149, 965 (1966)

### (d) 核分裂の静的模型に基づく計算

核分裂過程の理論的取扱いは部分的な成功を収めたものはあっても、その大部分をカバーするようなものはまだない。ことに重元素の核分裂過程にみられる非対称性に対する説明は現在までのところ皆無である。非対称性がおそらく核のシェル効果に由来するものであろうと

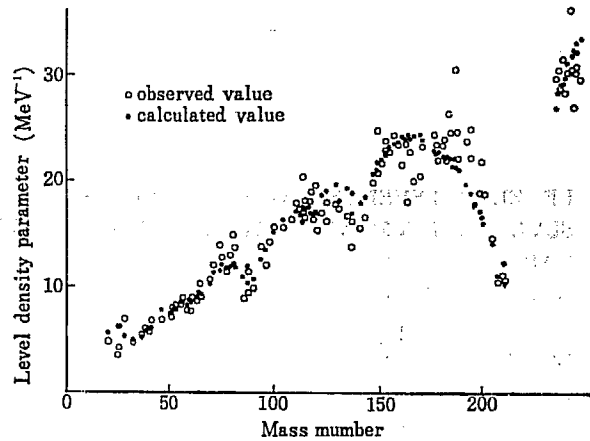


Fig. 5.22 Level density parameter, observed values and calculated values

いう議論は FONG にはじまって多くの研究者によってなされてきたが、満足のゆく形で説明できた例はない。

ここ数年来、静的乃至統計的手法に代ってハイドロダイナミックな方法にその解答を求めるべきであるという議論が盛んになったが、最近では非対称性は集合的な性格であるよりはむしろ最下層に存在する核分裂チャンネルの特性に結びついた核的な性質のものではないだろうかという考えを持つ研究者もかなりいるようである。しかしその反面、静的模型で説明しうる可能性が全く否定されたと言い切ることもできない。ことに MEYERS-SWIATECKI<sup>7)</sup>の液滴模型にもとづく質量公式が出た現在では、核分裂の計算の基本量である質量公式が今までは満足のいくものではなかったのではないかという疑問に答えておくことは、これから先、動的模型ないしチャンネル特性の問題へと理論を進めてゆく上にも望ましいことである。静的模型による核分裂過程の取扱いはすでに我々の内で試みられているが、改良された質量公式が現われたことを契機として改めてより包括的な形で取り上げることにした。すでに定式化の段階は終了し、目下プログラミング中である。

### 文 献

- 7) W. MEYERS, W. J. SWIATECKI; UCRL-17070 (1966)

### (e) プログラム・ライブラリーの整備

研究係核反応グループで開発したプログラムおよび現在開発中のプログラムがかなりの数に上っている。この時点で将来考えられる共同利用に備えて手持ちのプログラムを整備した。TABLE 5.16 の一覧表がそれである。表中分類欄に M, S または F と記載されているものはそれぞれメイン・プログラム、サブルーティン・サブプログラムまたはファンクション・サブプログラムを意味する。

### (f) 角度相関測定装置の設計

研究係ホットアトム・グループと共同で角度相関装置の設計をおこなった。

TABLE 5.16 手持ちプログラム一覧表

プログラム名	デッキ名	必要とするサブプログラム	分類	完成月日	備 考	
LEVEL	LEVEL-I	GAPF-I	M	12/20/67	単位密度定数の計算	
LEVEL	LEVEL-II	GAPF-II	M	1/9/68		
LEVEL	LEVEL-III	GAPF-II, ENGY	M	3/25/68		
LEVEL	LEVEL-IV	GAPF-III, ENGYDF	M	3/27/68		
SLVL	LEVEL-V	GAPF-IV, ENGYDF, DIFLVL	S	未 完		
GAP 1	GAPF-I	SERX-I	F	12/20/67	単位密度の計算	
GAP 2	GAPF-II	SERX-II	F	3/25/68		
GAP 3	GAPF-III	SERX-II	F	3/27/68		
GAP 4	GAPF-IV	SERX-II	F	4/25/68		
SER 1	SERX-I		F	12/20/67		
SER 2	SERX-II		F	3/25/68		
SLVL 01	ENGY		S	3/25/68		
SLVL 02	ENGYDF		S	3/27/68		
RANGJ	RANGJ	LEGEND, FINTGN	M	未 完		エネルギー損失, 飛程計算
S 010	LEGEND	OS 4	S	4/16/68		
RISTO	RISTO	DECAY, SYMM, IURU	M	未 完	ルジャンドル多項式展開と積分 残存又は初期放射エネルギーの計算	
F 002	SYMM		F	3/30/68		
F 003	IURU		F	3/30/68		
FINT1	FINTGN		F	3/29/68		
SC 001	COMPET	SHELOP, LEVEL-V, LEGEND	S	未 完	中性子放出と核分裂の競争過程の解析	
SS 001	SHECOR	FSHEL	S	未 完		
FF 001	FSHEL		F	未 完		
FD 001	DIFLVL		F	未 完		
EPITH	EPITH	LINEQ, DECAY, PROD	M	未 完	サーマル・エピサーマル中性子スペクトルの解析	
F 001	DECAY		F	10/30/67		
DIFR	PROD		F	3/29/68		
NONLIN	NLIFT	LINEQ, NLIEQ	S	未 完	非線型方程式のパラメータフィッティング	
S 005	NLIEQ		S	未 完		
SGAU 01	GAUSFT		F	4/13/68		
FANEUT	FANEUT		M	未 完	一次元ガウス曲線へのフィッティング	
DOUBLE	DOUBLE		M	未 完	速中性子スペクトル解析	
OS 4	LINEQ		S	未 完	二重中性子捕獲反応解析	
M 9 AIN	M 9 AIN		M	完	線型連立方程式の解	
					崩壊曲線の解析 } 計算センタで開発	

## 5.10 その他

### 5.10.1 IAEA 提案による日中共同研究「低温照射による反跳原子の化学的行動」

ホットアトム効果によって比放射能の高い放射性同位体を製造する研究は研究係によって基礎の段階を検討され、特殊アイソトープ係によってそのうちの幾種類かの生産サービスが開始された。このような比放射能の高い RI の製造は低出力および中出力の研究用原子炉しか持たない東南アジア諸国においてとくに問題であり、比放射能を高めるためにはホットアトム効果を用いるほかにいことがしばしば論ぜられていた。台湾清華大学ではとくにこの問題に熱心であり、以前からさかんに研究をおこなっている。ホットアトム効果の研究において低温照

射が重要であることが近年認識されるにいたったが、液体窒素温度の照射施設は台湾になく、国際原子力機関を通じ JRR-2 の低温照射ループ (LNTL) を用い日中共同で「低温照射による反跳原子の化学的行動」の研究をおこなうこととなった。共同研究の対象は双方の関心の一致する各種のクロム酸塩をとりあげ、低温処理による初期リテンション、アニーリングのさいの反跳原子の化学的行動におよぼす結晶水の効果、nvt の効果、陽イオンの効果などを検討した。

これらの研究の結果はのちにも述べる第 4 回国際ホットアトム・シンポジウム (昭和 42 年 10 月、京都国際会議場) に発表されたが、たまたま結晶水の効果については同種の研究もいくつか提出され、論議の焦点の 1 つとなったものである。

クロム酸マグネシウムのターゲットとして無水塩および 1 水塩を用いた。クロム酸ナトリウムは 4 水塩をターゲットとした。照射ずみターゲットは低温の塩化リチウム・水の共融混合物に溶かしたのち、ランタン共沈法によって Cr (III) と Cr (VI) に分離した。

TABLE 5.17 各種クロム酸塩の初期リテンション

ターゲット	nvt (n/cm <sup>2</sup> )	初期リテンション (%)		
		-55°C	-40°C	-30°C
MgCrO <sub>4</sub>	1.5×10 <sup>17</sup>	25.1	29.3	—
"	1.0×10 <sup>18</sup>	31.5	30.0	27.4
MgCrO <sub>4</sub> ·H <sub>2</sub> O	1.1×10 <sup>17</sup>	23.3	23.5	24.2
"	1.0×10 <sup>18</sup>	24.0	23.0	24.7
Na <sub>2</sub> CrO <sub>4</sub> ·4H <sub>2</sub> O	1.1×10 <sup>17</sup>	55.6	53.9	54.7

TABLE 5.17 には液体窒素温度で照射されたクロム酸塩の低温処理による初期リテンション値を示す。-55°C, -40°C, -30°C で溶解しても得られた初期リテンションはほとんど同一である、無水クロム酸マグネシウム中の Cr-51 の初期リテンションは1水塩のそれよりも高い。またクロム酸マグネシウムの初期リテンションは無水塩、含水塩とも nvt の影響はあまり受けないように見える。

クロム酸塩の熱アニーリングの過程は Fig. 5.23~5.27 までに示す。つぎのような興味ある事実が見いだされた。低い nvt ではクロム酸マグネシウム無水塩における Cr-51 のアニーリング速度は1水塩のそれよりもずっと早い (Fig. 5.23 および Fig. 5.25)。しかしながら高い nvt では両化合物のアニーリング速度の差は少なくなる (Fig. 5.24 および Fig. 5.26)。クロム酸マグネシウム1水塩については nvt の影響はほとんどみられない。ところがクロム酸マグネシウム無水塩に関しては反跳クロム原

子の熱アニーリングに対する nvt の影響は非常にいちじるしい (Fig. 5.25 および Fig. 5.26)。この原因についてはなおいろいろの角度からの考察が必要である。クロム酸ナトリウム4水塩のアニーリング速度はマグネシウム化合物のそれよりも早く、-20°C においてさえ、かなりのアニーリングがみとめられる (Fig. 5.27)。-20°C と 60°C の間で2つのアニーリング・ステージが存在するように思われる。

以上の研究によって高比放射能 Cr-51 の製造に必要なホットアトム化学の基礎的知見が得られた。今後なお協同研究を実施することにより、より多くの成果があげられるものと期待される。

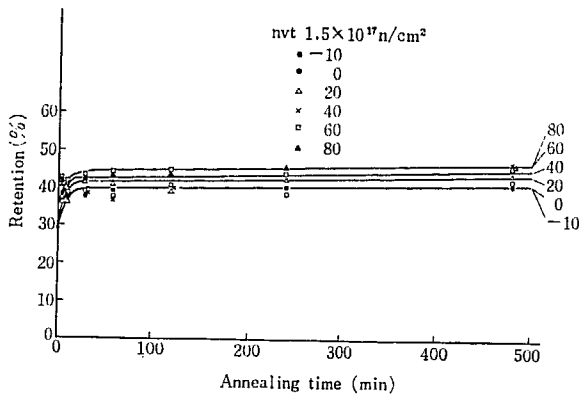


Fig. 5.23 Isothermal annealing of MgCrO<sub>4</sub>

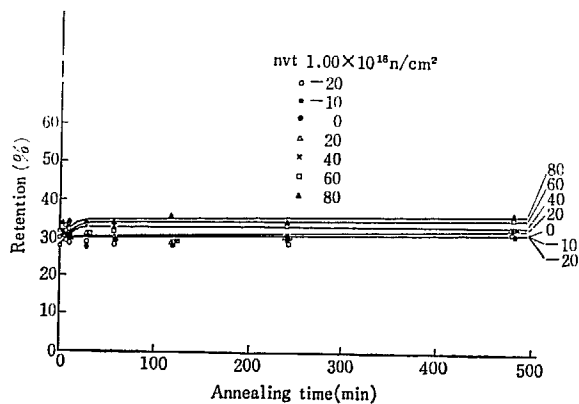


Fig. 5.24 Isothermal annealing of MgCrO<sub>4</sub>

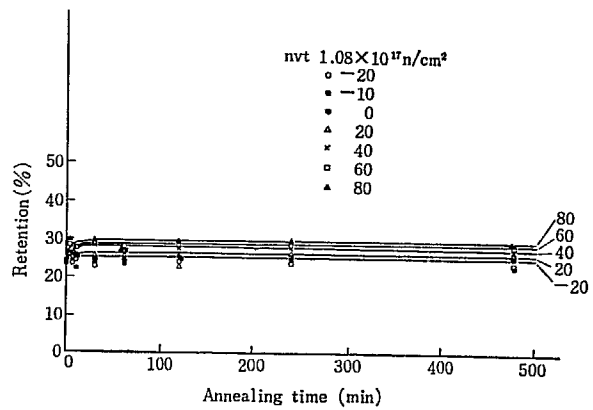


Fig. 5.25 Isothermal annealing of MgCrO<sub>4</sub>·H<sub>2</sub>O

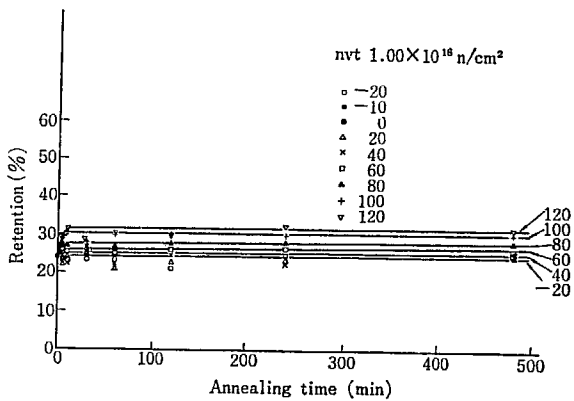


Fig. 5.26 Isothermal annealing of MgCrO<sub>4</sub>·H<sub>2</sub>O

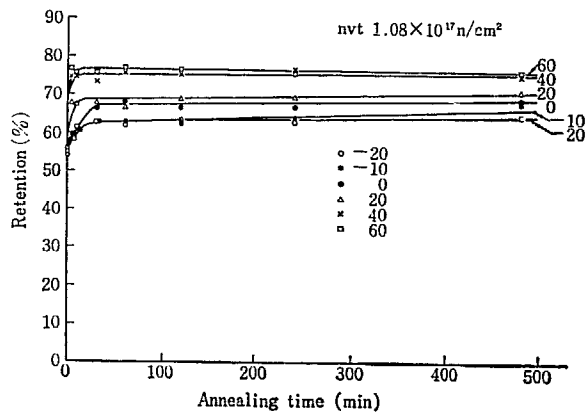


Fig. 5.27 Isothermal annealing of Na<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub>·4H<sub>2</sub>O

#### 5.10.2 第4回国際ホットアトム・シンポジウムへの貢献

昭和42年10月11~13日、京都国際会議場において、第4回国際ホットアトム・シンポジウムが開催され、内外より130名の出席者を迎えて活発な討論がおこなわれた。この会議には Scientific Secretary として製造部から柴田(会計担当)、吉原(出版担当)の2名が出た。この会議に発表された60の論文のうち、製造部関係は4件であった。

#### 5.10.3 核構造国際会議への参加

日本物理学会の主催により東京でおこなわれた核構造国際会議に研究係核化学グループから馬場が参加し、数多くの著名な物理学者に接しえたことは貴重な体験であった。とくに研究係の仕事に関係深い FLEROV, NIX 等を当研究所に招待し、あるいは CHASTEL 夫妻と一夕を過ぎえたことも大きな収穫であった。

#### 5.10.4 IAEA スタディグループ・ミーティング

IAEA の主催により東海研究所がホスト研究所として

開かれた原子炉利用に関するスタディグループ・ミーティングには、製造部からは柴田、天野が参加し、馬場(宏)が会場係として指名された。会議内容は物理、化学、RI製造、地域内国際協力問題などきわめて多岐にわたり、多くの有益な示唆にとんだ討論を経験できた。このミーティングにおいて、天野により製造部の活動の一端が Some Experiences for Special Radioisotope Production in Japan Atomic Energy Research Institute と題して紹介された。また、清華大学、葉錫溶教授からは原研との協同研究の成果が発表された。

#### 5.10.5 化学系若手研究員による原子炉利用に関する将来計画作成作業

JRR-1 の共同利用の停止や他の研究炉での照射に対する不満が表面化した機会をとらえて、実際に炉を利用している物理・化学部の化学系研究員の間で、今後炉を利用する側として炉管理部にどういふことを希望するかを検討し、その結果をまとめる作業をはじめた。研究係もこれに参画し現在および将来計画中の諸テーマからみて必要とする中性子束の質、照射頻度、使用を希望する附属装置の種類と使用頻度などをまとめ、今までの受身の立場から脱皮して、原子炉を文字通り研究炉として使う方向に持って行くための努力を重ね、一応の結論を得た。

## 6. 施設の整備と安全・施設管理

### 6.1 施設の整備

昭和39年RI製造棟建屋が完成してからひきつづいて製造施設の内装整備をおこなってきたが、42年度ではほぼ完了した。主な整備状況は次の通りである。

#### 6.1.1 I-131 製造施設の整備

I-131 製造施設は41年度末に工事を完了した。施設はI-131 10 Ci/バッチの製造取扱いを目的とするもので、主要な部分は製造用セル5個、排気系チャコールフィルタ設備、廃液一時保管設備および関連の換気設備、安全管理設備などである。試験施設において実施したI-131 試験製造の結果にもとづいて特に施設の気密性、排気系のI-131 捕集効果など放射線管理面の安全性に重点をおいて設計、施工した(309号室)。施設概念図をFig. 6.1

に示す。

42年度当初より製造用セル、セル内製造装置および関連する換気設備、廃液一時保管設備などについて製造第2係、第3係および工務第2課が協力して総合調整をおこない第2四半期初めに完了した。この施設の使用要領は使用施設等運転委員会(第15回)において安全確保上十分妥当であると判断された。(委員会答申、42 使施委第6号、42年9月12日)

この製造施設で I-131 取扱量 100 mCi 程度から約 8 Ci までの試験製造を計 14 回実施したが、製造データおよび放射線管理データはきわめて満足すべきものであった。これらの試験製造結果は使用施設等運転委員会(第20回)において検討され、10 Ci/バッチの取扱作業の場合でも十分安全が確保されることが確認された。(委員会答申、42 使施委第16号、42年12月11日)

この施設は第4四半期より定常的な製造に使用した。

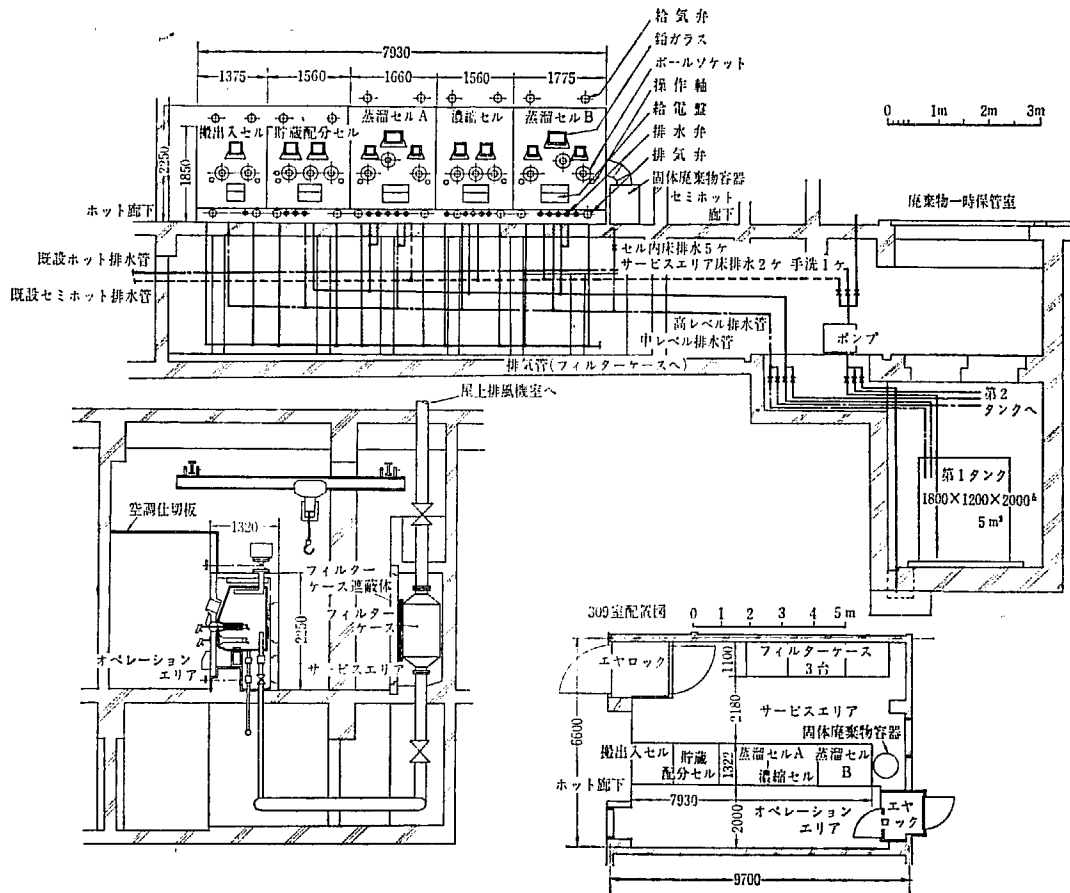


Fig. 6.1 <sup>131</sup>I 製造施設概念図

### 6.1.2 P-32 製造施設の整備

41年度末に完成予定であったP-32製造セル(2個)は年度後半に担当業者が変更となったため工事は42年度に持越されたが、第1四半期に工事を完了した。このセルは、P-32約10Ciの製造取扱いを目的とするもので、試験施設による長期間の製造結果にもとづいて特に安全性、作業性に重点をおいて設計、施工した。(310号室)

引続き製造用セル、セル内装置、換気設備などについて製造第1係、第3係および工務第2課が協力して総合調整をおこない第2四半期に完了した。

このセルは試験製造の結果、製造および放射線管理両面において満足すべき結果をえて第3四半期より定常製造に使用を開始した。

### 6.1.3 RI 製造棟放射線事故警報装置の整備

I-131製造をはじめとして放射性物質の取扱量が増加するにともない41年度に製造部、安全対策課、工務第2課の間で放射線事故警報装置の整備計画を進めた。

(東海研安全管理主任よりRI製造棟非常用警報設備の整備について所長宛意見具申、42原保安第19号、42年2月23日)

整備は一部41年度に実施したが、引続いて42年度整備をおこない第3四半期に完了した。

この装置はγエリアモニター、ダストモニター(200区域スタック、300区域スタック、400区域スタックおよび建屋内各室)、セル内差圧計(I-131製造用セル、P-32製造用セルおよび汎用ケーブ)、廃液タンク水位計(200、300区域タンク、400区域タンク、I-131廃液一時保管タンクおよび同上ピット)の異常および商用電源停電時の非常電源装置の異常などの際現場、放射線管理室、機械室、玄関副警報盤で警報を発信し同時に正門詰所正警報盤に連絡する機構である。

### 6.1.4 その他

#### (a) 照射用カプセル一時保管用セルの改造

照射カプセルの増加にともない照射済カプセルの一時保管数量が著しく増加したため、307号室に設置してある鉛セル(Na-24溶解用セル、鉛10cm厚)を一部改造して作業性、収容能力の増加をはかった。

#### (b) 汎用ケーブ側面扉部の改造

汎用ケーブ側面扉は試料搬出入のため開扉するさい換気の乱流によってケーブ内汚染がケーブ外に流出するおそれがあるので二重扉形式に改造した。

#### (c) 線源製造棟の設計準備

42年度第4四半期からCo-60大線源製造計画にもとづいてその施設などの調査、基礎的な設計条件の検討を開始した。

## 6.2 安全・施設管理

42年度内にRI製造棟の整備が一応の完了をみたので、付図に示すように配置された施設についての安全および施設の管理体制の整備ならびに実施につとめた。

### 6.2.1 安全・施設管理体制

製造部では安全および施設の管理にはライン組織とは別に担当課長制度を設けてきたが、42年度は安全・施設担当に製造課長を、安全・衛生担当に検査課長代理をあて、さらに各課より補助者(係長)を選出した。補助者はそれぞれ区分された区域を分担した。所の定める部安全管理担当者、課安全管理担当者には上記担当課長および補助者があつた。

ライン組織では前年度に引きつづき、室ごとに火元責任者、正副の部屋責任者をおき年度当初に改選した。なお新たに廊下など共通区域にも責任者を定めライン実施の強化をはかった。

またRI製造棟、研究1棟(一部)を数ブロックの区域に分け、それぞれの区域内の共通管理事項の措置の主管を係に割当てて区域分担係制度を新たに採用した。

### 6.2.2 安全・施設管理の運営

RI取扱量の急激な増加に対して、42年度の実行方針はRI使用時の安全管理、特にルール作りに重点をおいた安全管理面の検討には部安全会議を活用した。

部安全会議の構成員は前年度と同様に部、次、課長、課長代理、係長、係員、RI製造棟在住放射線管理課員などである。係員は各係よりの選出者計6名で新たに改選した。また年度途中からRI製造棟在住工務第2課員を追加した。

部安全会議は部長主宰のもとに日1回定例に開催した。その主な審議事項をTABLE 6.1に示す。

安全・施設管理の運営については昨年度安全・施設管理担当者に負担がかかりすぎたので本年度これをいかに是正するかが問題点であったが、本年度もやはりライン体制を十分に活用することができず、日常的な管理、調整が安全・施設管理担当者の主要業務となって、根本的な管理面の整備がおくれるうらみがあった。これらの点は年度末に検討され、次年度はライン体制による実施面の強化に重点をおくこととした。

TABLE 6.1 部安全会議審議状況

回	月日	主な審議事項	要点
10	4.24	42年度安全管理業務および部安全会議の進め方	安全管理手引類の作成および保守一般
		RI 製造棟内の RI 使用状況の周知方法	管理区域入口に建家配置図をおき当日 RI 取扱予定(核種・量など)を標示する
11	5.29	I-131 製造使用要領骨子	
		RI 製造棟換気状況	風向, 風量の調整
		RI 製造棟防護器材常備量	
		RI 製造棟放射線事故警報装置計画	42 年度工事分
12	6.26	安全パトロール重点項目	標識およびフード内の整理状況
		RI 製造棟応急措置要領	
		RI 製造棟の中央廊下・サービスエリアの管理	313 号室の使用手引, 300 号各室のバリヤー
		強放射性廃棄物用鉛容器の管理方法	責任者, 使用方法など
13	8.7	安全パトロール指摘事項安全標識類の整備	特に研究棟
14	8.28	AIN 照射カプセルの破損	粉末試料の照射, カプセルの強度
15	9.25	上半期審議事項のまとめおよび下半期計画	実施面の強化
		フォークリフト点検要領	
16	11.6	貯蔵配分施設使用要領	
		各係の想定事故解析	
17	12.4	年末安全管理	安全パトロール, 大掃除その他
		RI 製造棟防護活動訓練計画	
		RI 製造棟放射線事故警報装置および事故時連絡方法	
18	12.25	安全パトロール指摘事項	措置方法および担当者の確認
		RI 製造棟地下室点検結果	配管・トラップ類の腐蝕
		EG 配線の負荷調査	
19	1.29	RI 製造棟防護活動訓練結果	問題点および今後の訓練計画
20	2.26	43年度の安全管理業務の進め方	ライン実施体制
		RI 標識(安対課計画)	
		RI 製造棟各室の鍵	常時開放の考え方
		RI 製造棟内酸水素バーナーの設置	
21	3.25	42年度安全管理業務のまとめ	
		安全防護訓練計画	救急措置などの基礎訓練
		$\beta$ -放射体大量取扱いの安全対策	P-32, S-35, C-51 など

註) 審議事項は2回以上にわたって継続的に審議したものが多く、この表には継続議題は省略した。

### 6.2.3 安全・施設管理の実施状況

#### (a) RI 取扱作業の管理

日常の RI 取扱作業の管理はライン組織で実施した。管理状況は全般的に良好である。他に安全・施設管理担当者および部安全会議を中心として管理体制の整備をお

こなった。その主な事項は次の通りである。

i) RI 取扱状況の周知: RI 製造棟各室でおこなわれる当日の RI 取扱作業を周知させるために管理区域入口に設置した配置図に取扱核種, 量などを記入する方式を実施した。

ii) 主要施設使用手引: I-131 製造施設使用要領, 貯蔵配分施設使用手引を検討決定した。他の施設の使用手引類は次年度に持越された。

iii) RI 製造棟ホット区域サービスエリアおよび中央廊下における放射性汚染の拡大防止: セル背面扉の開扉時の措置その他について検討をおこなった。

iv) 大量の  $\beta$  放射体取扱手引: P-32, S-35, Cr-51 などの  $\beta$  放射体および弱  $\gamma$  放射体を大量に取扱う際の手引を検討決定した。

v) 貯蔵・保管の管理: 貯蔵施設の使用手引, 記録方式を検討決定した。また RI の一時保管の現況について調査をおこない保管基準などについて検討した。

vi) 強放射性廃棄物の処理: 強放射性廃棄物の鉛容器を整備するとともにその使用方法などを検討決定した。

vii) 応急措置要領: 製造施設などの整備が完了したので応急措置要領を改訂した。

viii) 放射線事故警報体制: 42 年度整備分の計画立案をおこなった。また無人時警報発信した場合の緊急連絡体制を整備した。

ix) 防護器材の保有量の検討。

x) 標識類の整備。

#### (b) 施設管理

日常の施設管理はライン組織で実施した。日常点検, 月例係長点検, 部長査察などによって指摘された事項は直ちに措置した。全般的に RI 製造棟は良好であるが, 研究 1 棟(一部)には施設の老化がみられる。

施設管理面の主な事項は次の通りである。

i) 対外申請: RI 製造棟について短寿命 FP 製造開発業務の進捗にともなう取扱核種の追加, および特殊線源製造量の増加にともなう取扱量の訂正を科学技術庁に申請し許可をえた。(販売業にかかわる変更許可申請: 42 原研第 24 号, 42.10.16, 許可: 水販第 1 号, 43.2.12)

また, 短寿命 FP 製造開発に必要な核燃料物質使用許可申請について原案作成, 関係箇所との調整をおこなった。43 年 4 月に正式に申請手続がおこなわれる予定である。

ii) 放射線管理区域の変更: RI 製造棟の製造施設の整備にともない, 管理区域の変更のあったのは次の通りである。

42.6. RI 製造棟 309 号室, 第一種管理区域設定

42.11. 同上 310, 406, 407 号室 同上

これで RI 製造棟の管理区域設定は完了した。

iii) 鍵台帳の整備: 施設の整備にともない鍵保管者,

保管場所の調整確認をおこない台帳を整備した。

iv) RI 製造棟の換気調整: RI 製造棟の施設の整備とともに換気状況が変化し、また部分的に連続換気する施設がでたので、工務第3課と協力して数次にわたって総合的な換気状況の調査、調整をおこなった。また、セミホット区域のフード流量調査をおこなった。

v) RI 製造棟非常電源負荷調査: RI 製造棟機械室に41年度末に非常電源装置 (250kVA, JRR-2 と共用) を設置したが、ひきつづいて実験室実験盤までの配線状況の調査確認、末端負荷の調査をおこなった。

### (c) 放射線管理

RI 取扱量の増加は前述の通りであるが、これらの安全な取扱作業のために放射線管理面でも放射線管理課員の密接な協力を得て細心の注意をはらった。

#### (1) 施設管理

I-131 製造施設の整備が完了し試験製造から定常製造に移行したが、この施設の運転にあたっては使用要領などの整備のほかに試験製造の段階からスタックにおける空中放射能濃度、作業室内の空中放射能濃度、作業従事者の体内摂取量などについて綿密な検討をおこなった。結果はきわめて満足すべきもので、使用施設等運転委員会 (第20回) の審議において 10Ci/バッチの取扱作業の場合でも十分安全が確保されていることが確認された。

P-32, Cr-51, Ir-192 など新たに量産化に移行した作業も放射線管理課員の協力のもとに安全性を確めた。

これらの作業は定常作業に移行したのちもきわめて良好な状況で進められている。

管理区域全般についても軽微な放射線汚染が数回あった程度で特に問題とするものはなかった。

#### (2) 個人被曝管理

放射線作業従事者および準従事者延 61 名 (外国留学生, 常用臨時, 臨時を含む) について 3 ヶ月ごとの個人被曝線量が 100~300 mrem の者は第1, 2, 4 四半期にそれぞれ 1 名ずつで、他はすべて 100 mrem 未満または検出限界以下であった。フィルムリングによる局部被曝線量測定もよく活用されているが結果は問題とするものはなかった。

内部被曝については定期尿検査 (年 4 回) では登録者 20 名全員について全く異常が認められなかった。定期全身計測は I-131 製造作業従事者 5 名について作業終了時に計 48 回おこなわれたが、I-131 製造施設試運転当初に 1 回、3 名にきわめて軽微な体内摂取が認められただけで、その後はすべて検出限界以下できわめて満足すべき結果であった。他の臨時計測の結果も問題とするものはなかった。

保健物理安全管理部から要制限ないし警戒などの勧告をうけたことはなかった。

### (d) 安全査察

#### (1) 放射線検査官による RI 使用状況立入検査

「放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律」に基づく放射線検査官 (原子力局水戸原子力事務所) による RI 使用状況立入検査が 4 月におこなわれた。製造部関係の主な指摘事項は次の通りである。

研究用に使用する核種は使用許可をとること。

フード内の核種の取扱い、標示、保管状態に留意すること。

前者については主管課に検討を依頼した。後者については本年度の安全管理の重点項目として改善をおこなった。

#### (2) 部長安全査察

部長による安全査察 (所の安全査察関係者が同行) は 7 月および 12 月に実施した。査察にあたっては所の重点項目 (爆発および火災防止など) の他に、部として標識の徹底およびフード内の整理整頓の 2 点に重点をおいた。全般的にきわめて良好で特に前年度指摘事項の多かった研究 1 棟 (一部) は著しく改善されている。

#### (3) 部内安全点検

部内では係長による月例安全点検を中心に安全点検をおこなった。また RI 製造棟地下室排水設備の一斉点検などをおこなった。

以上の安全査察などの指摘事項は部安全会議などで措置方法、担当者を決定し直ちに措置した。

### (e) 安全訓練

#### (1) 防護活動訓練

RI 製造棟の防護活動訓練を実施した。事故想定現場として製造部の全職員および防護隊員を対象としたものである。製造部職員に対しては事故時応急措置訓練のうち、とくに通報連絡および防護隊との引継ぎ方法に重点をおいた。

事前訓練として建家内通報機器の点検、通報要領訓練および防護具着脱訓練を実施したのち、43 年 1 月 25 日無予告で実施した。想定事故内容は製造棟中央廊下で大量の I-131 製品を収めた鉛容器が転倒し、負傷者ができると同時に周囲に高度の放射性汚染が発生したものである。訓練はほぼ成功裡に終了し予期以上の成果をあげることができたが、ひきつづいて数回にわたって検討をおこない、とくに緊急措置訓練について計画中である。

#### (2) クレーン・玉掛け運転訓練

RI 製造業務には鉛容器など重量物のクレーン運転が不可欠であるため、所で実施したクレーン・玉掛け運転訓練に積極的に参加した。学科・実技訓練に 13 名 (内 7 名は 39 年度安全衛生課認定者の再訓練)、玉掛け実技訓練に 11 名 (前年度学課およびクレーン運転実技訓練受講者) が参加し全員運転資格を取得することができた。42 年度現在の運転資格取得者は計 26 名である。

#### (3) フォークリフト運転訓練

本年度は所の実施するフォークリフト運転訓練がなか



った。42年度現在の運転資格取得者は計16名である。

#### (4) 危険物取扱、高圧ガス取扱訓練

危険物取扱講習会に3名出席し、危険物取扱主任者試験(甲種1名、乙種第4類2名)に合格した。危険物取扱主任者資格取得者は計6名である。また高圧ガス取扱講習会に1名出席した。

#### (5) 酸水素バーナー取扱訓練

酸水素バーナーを取扱う機会がふえたのでその設備の整備、取扱いマニュアルの整備をおこなうとともに、分析センター・ガラスショップの指導のもとに2回にわたり約20名が酸水素バーナー取扱訓練を受けた。

### 6.3 ま と め

昭和39年RI製造棟建家が完成してからあしかけ4年でようやく製造施設の整備を終えることができた。こ

の整備完了とあいまってRIの取扱量も急激に増加した。これらの大量のRIを安全に取扱作業するために安全・施設管理を強力にまた細心に実施した。ルール作りの面でも実際管理の面でも大いに成果をあげることができ、事故のない1年を終ることのできたのは部職員全員にとって誠に喜ばしいことであった。

安全・施設管理の面では、安全・施設管理担当者が実際管理の調整・実施に力を裂かれることが多く、負担がかかりすぎたきらいがあった。来年度はライン実施体制を確立してますます安全・施設管理の実をあげることが必要である。

安全・施設管理補助者の照沼勝市氏が42年3月停年退職された。氏は昭和37年RI試験製造工場完成と期を同じく入所し、ほとんどの在職期間を製造部に所属し安全・施設管理業務にたずさわられた。本日の安全・施設管理体制の実をあげることのできたのも氏の功績によるところが大であった。ここに厚く謝意を表す。

## 付 録

## 1. 年 表

	4 月	5 月	6 月	7 月	8 月	9 月
運 営 ・ 人 事	◎ 検査課発足 特殊アイソトープ 係発足	◎ 島根恵美子生産 事務係へ配属 ◎ 椎名勝子動力炉 開発部へ移動		◎ 武藤利雄製造第 5 係へ配属 ◎ 工藤博司研究係 へ配属 棚瀬正和製造技 術第 2 係へ配属 ◎ 海老原寛, 加藤 岑生特殊アイソ トープ係へ移動		
生 産	◎ JRR-3 による Co- 60 大線源国产化計画 決定 (東海研炉管理 部, 高崎研製造部) ◎ ホットアトム効果 による 高比放射能 Cr-51 試験製造の開 始		◎ Ca-45, Zn-65, Ag-110m の生産供 給を開始 (業務通信 No. 25)	◎ I-131 製造施設 による試験製造を 開始		
研 究 ・ 開 発	◎ JRR-2, VT-1 の 照射技術開発実験を 一応完了し, 次期以 降は定常照射を開始 と決定		◎ 台湾清華大学との 共同研究開始		◎ 清華大学との共 同研究成果報告会 を開催	◎ Br-82 製品の化 学形の変換ならび に高比放射能のた めの技術開発を開 始
施 設 ・ 安 全 管 理	◎ 10~13日放射線管 理官 (水戸原子力事 務所) による RI 立 入検査 ◎ 廃棄物一時保管室 (501, 502 室) の換 気系工事完了		◎ RI 製造棟 309 室に 第 1 種管理区域を設 定 ◎ P-32 製造 施設の 工事完了 ◎ I-131 製造施設の 総合調整完了	◎ 3~5日部長安全 査察を実施 (全国 産業安全週間)		◎ 使用施設委員会 より I-131 製造施 設使用要領が安全 確保上十分である 旨の答申が所長に 提出された
そ の 他	◎ 日本化学会第20年 会において研究成果 発表 2 編 (東京) ◎ 第14回応用物理学 学会にて研究成果発表 1 編 (東京) ◎ 日本原子力学会昭 和42年会において研 究成果発表 1 編 (東 京)		◎ 木村健二郎原研前 理事 RI 棟を来訪 ◎ 清華大学より協力 研究員 3 名当着 (8 月末まで)	◎ 清華大学業教授 到着 (8月末まで)		

10 月	11 月	12 月	1 月	2 月	3 月
◎ 正木典夫燃料開発部へ移動					◎ 照沼勝市退職
◎ 第4版ラジオアイソトープカタログを発行(有機標識化合物, 線源 RI を新たに掲載, 精製 RI, 特殊 RI 追加)	◎ P-32 製造施設による試験製造を開始	◎ JMTR 管理部との定例打合せ会(月1回) 発足	◎ P-32 製造施設による量産定常製造を開始 ◎ 事業課との定例事務打合せ会発足	◎ I-131 製造施設による量産定常製造を開始	
				◎ 高比放射能 Cu-64 の製造中間試験を開始	◎ 低比放射能 MoO <sub>3</sub> より Tc-99m 製品の製造技術の開発を開始(43.6完了を目標) ◎ Br-82 新製品の技術開発を完了
◎ RI 製造棟の販売業にかわる変更(短寿命 RI核種の追加, 特殊線源取扱量の増加)についての許可を申請 ◎ 製造棟内 RI 取扱量標示盤を設置, 使用を開始	◎ RI 製造棟 310, 406, 407 室に第1種管理区域を設定(RI 製造棟の管理区域設定はこれを以て完了)	◎ I-131 製造施設による 10 Ci/バッチ取扱は十分安全である旨が使用施設委員会より答申された ◎ 部長安全査察 ◎ RI 製造棟放射線事故警報装置設置 ◎ 年末大掃除	◎ 無予告防護活動訓練(RI 製造棟)実施	◎ 放射性同位元素販売にかかわる変更申請が許可	
◎ 第4回国際ホットアトムシンポジウムにおいて研究成果発表4編(京都) ◎ IAEA 主催研究炉利用専門家会議において研究成果発表3編(東海) ◎ 分析化学会第16年会において研究成果発表1編(千葉) ◎ 第11回放射化学討論会において研究成果発表1編(東京)	◎ 第8回日本アイソトープ会議において研究成果発表6編(東京)				

## 2. 口 頭 発 表

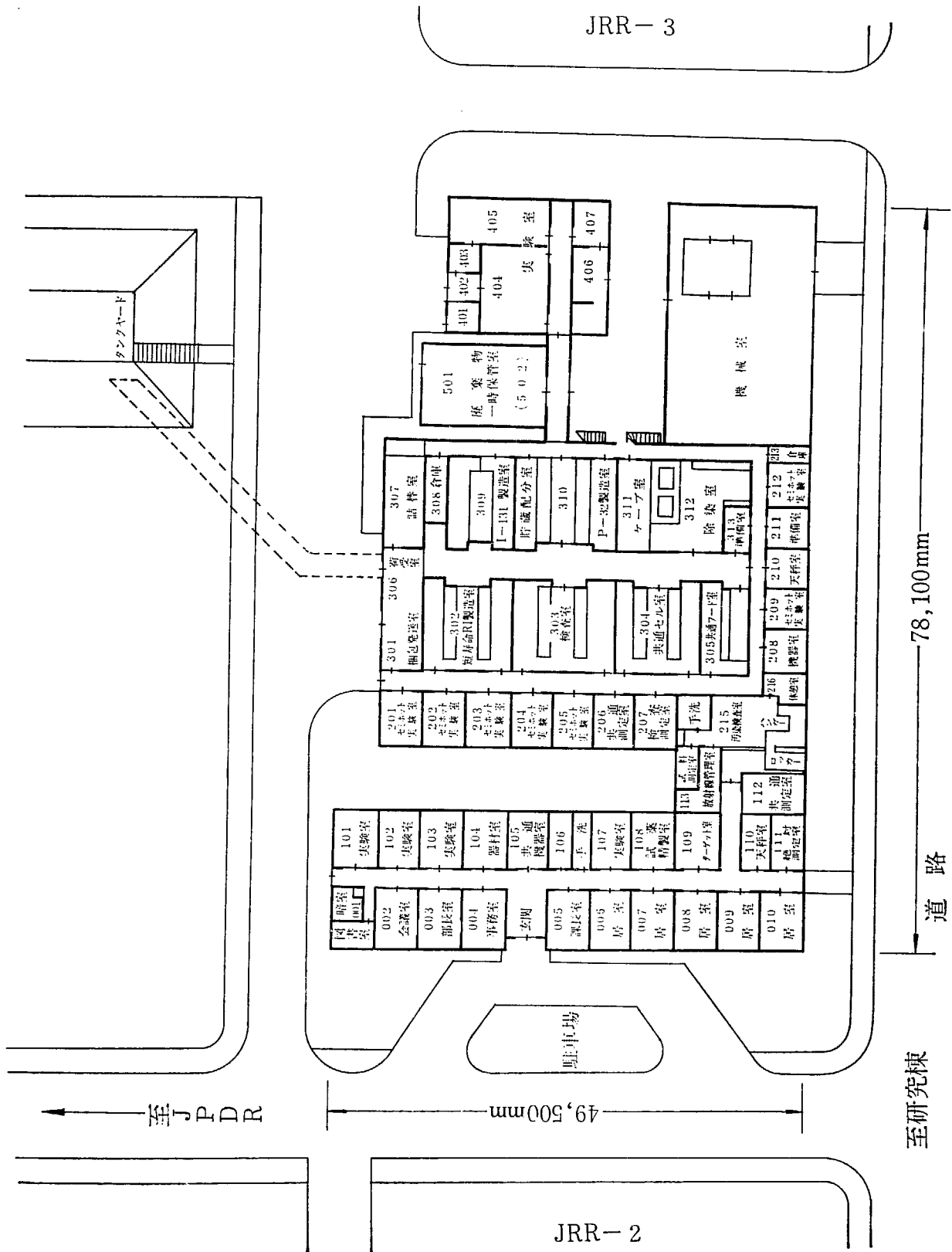
題 名	発 表 者	発 表 機 関
炉内中性子のエネルギー分布の測定 (第1報) サーマルおよびエピサーマル領域の中性子束の測定法について	馬場, 黒沢	日本化学会第20年会, 2A113, 1967. 4, 東京
炉内中性子のエネルギー分布の測定 (第2報) 速中性子束の測定法について	天野, 馬場, 黒沢	日本化学会第20年会, 2A114, 1967. 4, 東京
電子捕獲 RI の絶対測定 (1) — $4\pi X$ 計数法	竹内, 富永, 榎本	第14回応用物理学会, 2a E 9, 1967. 4, 東京
JRR-2円筒燃料照射装置によるラジオアイソトープ製造	中村, 馬場	日本原子力学会昭和42年会, F16, 1967. 4, 東京
ラジオアイソトープ製品検定のための発光分光分析装置について	天野, 鈴木, 大久保, 照沼	日本分析化学会第16年会, 1C 01, 1967. 10, 千葉
Ir-192 線源の放射化効率	榎本, 小野寺, 加藤	第28回応用物理学会学術講演会, 7pH 6, 1967. 10, 金沢
RI 製造に使用するアルミナカラムの基本的性質について	天野, 四方, 高橋, 加瀬	第11回放射化学討論会, 3B15, 1967. 10, 東京
Chemical Behaviour of $^{51}\text{Cr}$ Recoil Atoms Produced by Low Temperature Irradiation	S. J. YEH, N. SHIBATA, H. AMANO, K. YOSHIHARA, M. H. YANG, P. Y. CHEN, C. N. KE, H. KUDO	4th Informal International Hot Atom Chemistry Symposium, 1967. 10, Kyoto
Crystal Structure Effect on Annealing Behaviour of Recoil $^{69m}\text{Zn}$ Atoms in Neutron Irradiated $\alpha$ - and $\beta$ - Zinc Phthalocyanines	K. YOSHIHARA, M. H. YANG	4th Informal International Hot Atom Chemistry Symposium, 1967. 10, Kyoto
The Isotopic and Phase Effect in Neutron Irradiated Mono, Di and Tribromomethane	Z. ABEDINZADEH, R. RADICELLA, K. TANAKA, M. MILMAN	4th Informal International Hot Atom Chemistry Symposium, 1967. 10, Kyoto
Effects of Phase Homogeneity on the Chemical Consequences of Nuclear Reactions	S. GRILLET, J. STEVOVIC, K. TANAKA, M. MILMAN	4th Informal International Hot Atom Chemistry Symposium, 1967. 10, Kyoto

## 3. 発 表 資 料

題 名	発 表 者	発 表 誌 名
ホットアトム化学における計測	吉原	応用物理, 36, 334 (1967)
放射性壊変の化学的效果におけるオージェ過程と電子ゆり落しの役割	吉原, 海老原, 天野	日本原子力学会誌, 9, 259 (1967)
$^{35}\text{S}$ およびその無機標識化合物の製造——調査報告	四方	JAERI 4041 (1967)
C-14 製造文献調査報告	畑	製造資料-1053, JAERI Memo-2586, <i>Radioisotopes</i> , 16, 457 (1967)
$\gamma$ 線検出器遮へい箱について	渡辺, 宮原, 鈴木, 竹内	<i>Bull. Chem. Soc. Japan</i> 40, 1799 (1967)
Radiation Chemistry of Dicarboxylic Acids in the Solid State	A. HOSAKA A. SUGIMORI T. GENKA G. TSUCHIHASHI	
高比放射能 Cr-51 の量産化試験	柴田, 天野, 吉原, 海老原, 新井, 加藤	第8回日本アイソトープ会議報文集, A/C-7 (1967)
Ca-45, Zn-65, Rb-86, Ag-110 m, Tm-170 および W-185 の製造	柴田, 望月, 伊藤, 井口, 新井, 本木	第8回日本アイソトープ会議報文集, A/C-8 (1967)
Ir-192 線源および Co-60 針状線源の試験製造	柴田, 望月, 天野, 榎本, 立川, 中村, 小野寺, 山林, 川上, 青山, 加藤	第8回日本アイソトープ会議報文集, A/C-10 (1967)
ラジオアイソトープ製造棟における製造施設の設計 (VII) 汎用ケーブルの設計	柴田, 望月, 渡辺, 天野, 伊藤, 立川, 小野寺, 茂木	第8回日本アイソトープ会議報文集, A/F-4 (1967)

題 名	発 表 者	発 表 機 関
電子捕獲核種の絶対測定	柴田, 榎本, 富永, 竹内	第8回日本アイソトープ会議報文集, A/M-4 (1967)
Recent Development of Recoil Chemistry in Japan	K. YOSHIHARA	第8回日本アイソトープ会議報文集, C/P-4 (1967)
JRR-3 内の RI の製造条件の検討 有機溶媒抽出法による P-32 の調製 昇華法による P-32 の調製	中村 中村 中村	日本原子力学会誌, 9, 524 (1967) 日本原子力学会誌, 10, 2 (1968) 日本原子力学会誌, 10, 54 (1968)

付図 ラジオアイソトープ製造棟平面図



第4版 カタログ 一覧表 (42年10月発行)

附表 1

1.1 精製ラジオアイソトープ

仕 様 核 種	半 減 期	放射能の種類とエネルギー	項 目	製 造 方 法	タ ー ゲ ッ ト	化 学 形	酸 度	放射能濃度 (mCi/ml)	比放射能 (mCi/gNa)	放射化学的純度
ナトリウム-24	14.97hr	$\beta$ -1.394, 4.17 $\gamma$ 1.368, 2.754	Na-24-2	$^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$	$\text{Na}_2\text{CO}_3$	NaCl 中性溶液	pH 7.0~8.5	~2	b~120 c~250 (mCi/gNa)	>99%
リン-32	14.22 d	$\beta$ -1.707 $\gamma$ ナシ	P-32-1 P-32-1R	$^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ $^{31}\text{P}(n, \gamma)^{32}\text{P}$ Szilard-Chalmers 法	S $\text{KH}_2\text{PO}_4$	$\text{H}_2\text{SO}_4$ 塩酸溶液	~0.1N	>5 >1	CF ~5,000	>99% ( $^{32}\text{P}$ を含む) >99% (本品は $^{33}\text{P}$ を含まず)
イオウ-35	87 d	$\beta$ -0.1674 $\gamma$ ナシ	S-35-1	$^{35}\text{Cl}(n, p)^{35}\text{S}$	KCl	$\text{H}_2\text{SO}_4$ 塩酸溶液	~0.1N	>5	CF	>99%
カリウム-42	12.52hr	$\beta$ -1.99, 3.55 $\gamma$ 1.53, 0.330 $\beta$ -1.99, 3.55 $\gamma$ 1.53, 0.326 (弱)	K-42-2 K-42-2N	$^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$	$\text{K}_2\text{CO}_3$	KCl 中性溶液	pH 7.0~8.5	b~1 c~2 ~2	b~12 c~25 ~300	>98%
カルシウム-45	164 d	$\beta$ -0.254 $\gamma$ ナシ	Ca-45-1	$^{44}\text{Ca}(n, \gamma)^{45}\text{Ca}$	$\text{CaCO}_3$	$\text{CaCl}_2$ 塩酸溶液	~1N	>0.1	~6	>99%
クロム-51	27.8 d	$\gamma$ 0.325 EC	Cr-51-2R	$^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$ Szilard-Chalmers 法	$\text{K}_2\text{CrO}_4$	$\text{Na}_2\text{Cr}_2\text{O}_4$ 0.9%NaCl 溶液 (等張溶液相当)	pH 6~8	~15	>15,000	>99%
マンガン-56	2.576hr	$\beta$ -0.65, 1.04, 2.81 $\gamma$ 0.845, 1.81, 2.13	Mn-56-1	$^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$	Mn	$\text{MnCl}_2$ 塩酸溶液	~1N	~10	~2,000	>99%
コバルト-60	5.24 y	$\beta$ -0.312 $\gamma$ 1.1728, 1.3325	Co-60-1	$^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$	Co	$\text{CoCl}_2$ 塩酸溶液	~1N	>1	~2,000	>99%
銅-64	12.80hr	$\beta$ -0.571, $\beta$ -0.657 $\gamma$ 1.34 (弱) EC	Cu-64-1	$^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$	Cu	$\text{CuCl}_2$ 塩酸溶液	~1N	~2	b~240 c~500	>99%
亜鉛-65	245 d	$\beta$ -0.324 $\gamma$ 1.119 EC	Zn-65-1	$^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$	Zn	$\text{ZnCl}_2$ 塩酸溶液	~1N	>1	~60	>99%
ガリウム-72	14.9hr	$\beta$ -0.64, 0.96, 1.51, 2.53, 3.17 $\gamma$ 0.630, 0.834, 0.894 2.203, 2.491, 2.508 (その他)	Ga-72-1	$^{71}\text{Ga}(n, \gamma)^{72}\text{Ga}$	$\text{Ga}_2\text{O}_3$	$\text{GaCl}_3$ 塩酸溶液	~1N	~2	~250	>99%
ヒ素-76	26.4hr	$\beta$ -0.36, 1.76, 2.41, 2.97 $\gamma$ 0.555, 0.648, 1.210, 1.410, 2.06	As-76-1	$^{75}\text{As}(n, \gamma)^{76}\text{As}$	$\text{As}_2\text{O}_3$	$\text{HAsO}_2$ 塩酸溶液 ( $\text{As(V)}$ を含む)	~1N	~2	~10,000	>99%
臭素-82	35.87hr	$\beta$ -0.444 $\gamma$ 0.5541, 0.6187, 0.6984 0.7769, 0.8276, 1.044, 1.317, 1.475	Br-82-1	$^{81}\text{Br}(n, \gamma)^{82}\text{Br}$	$\text{NH}_4\text{Br}$	$\text{NH}_4\text{Br}$ 水溶液		~2	~15	>99%

仕 様	核 種	半 減 期	放射能の種類とエネルギー	項 目	製 造 方 法	タ ー ゲ ッ ト	化 学 形	酸 度	放射能濃度 (mCi/ml)	比放射能	放射化学的純度
	ルビジウム-86	18.66 d	$\beta$ -0.71, 1.78 $\gamma$ 1.079	Rb-86-1	$^{85}\text{Rb}(n, \gamma)^{86}\text{Rb}$	$\text{Rb}_2\text{CO}_3$	RbCl 塩酸溶液	~0.1N	>1	~100	>99%
	イットリウム-90	64.2hr	$\beta$ -226 $\gamma$ 1.734 (弱)	Y-90-1	$^{89}\text{Y}(n, \gamma)^{90}\text{Y}$	$\text{Y}_2\text{O}_3$	$\text{YCl}_3$ 塩酸溶液	~1N	~2	~800	>99%
	銀	253 d	$\beta$ -0.087, 0.530 その他 $\gamma$ 0.116, 0.656, 0.676 0.706, 0.759, 0.885 0.935, 1.389, 1.516 (その他)	Ag-110m-1	$^{102}\text{Ag}(n, \gamma)^{110m}\text{Ag}$	Ag	$\text{AgNO}_3$ 硝酸溶液	~1N	>1	~200	>99%
	ヨウ素-131	8.08 d	$\beta$ -0.815, 0.608, 0.335, 0.250 $\gamma$ 0.722, 0.637, 0.364 0.284, 0.163, 0.080	I-131-1	$^{130}\text{Te}(n, \gamma)^{131}\text{I}$ $\beta$ - $^{131}\text{I}$	テルル酸	NaI 水酸化ナトリウム 亜硫酸水素ナトリウム 混合溶液	pH 8~11	>1	CF	>99%
	セシウム-132	6.56 d	$\gamma$ 0.669, 1.03 (弱) 1.31 (弱) その他	Cs-132-1A	$^{132}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$	CsCl	CsCl 水溶液		>1	>5	>99%
	ランタン-140	40.22hr	$\beta$ -0.83, 1.10, 1.34, 1.67, 2.15 $\gamma$ 0.3286, 0.4867, 0.8151 1.596 その他	La-140-1	$^{139}\text{La}(n, \gamma)^{140}\text{La}$	$\text{La}_2\text{O}_3$	$\text{LaCl}_3$ 塩酸溶液	~1N	~2	~700	>99%
	サマリウム-153	47.1hr	$\beta$ -0.26, 0.69, 0.80 $\gamma$ 0.10318, 0.06966 (弱)	Sm-153-1	$^{152}\text{Sm}(n, \gamma)^{153}\text{Sm}$	$\text{Sm}_2\text{O}_3$	$\text{SmCl}_3$ 塩酸溶液	~1N	~2	~1,500	>99%
	ツリウム-170	129 d	$\beta$ -0.884, 0.968 $\gamma$ 0.08426 EC	Tm-170-1	$^{169}\text{Tm}(n, \gamma)^{170}\text{Tm}$	$\text{Tm}_2\text{O}_3$	$\text{TmCl}_3$ 塩酸溶液	~1N	>2	~15,000	>99%
	ルテチウム-177	6.75 d	$\beta$ -0.497, 0.18 (弱) 0.38 (弱) $\gamma$ 0.11297, 0.20836, その他	Lu-177-1	$^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$	$\text{Lu}_2\text{O}_3$	$\text{LuCl}_3$ 塩酸溶液	~1N	>20	~45,000	>99%
	タングステン-185	758 d	$\beta$ -0.430	W-185-1	$^{184}\text{W}(n, \gamma)^{185}\text{W}$	$\text{WO}_3$	$\text{Na}_2\text{WO}_4$ 水酸化ナトリウム 溶液	~1N	>0.5	~30	>99% ( $^{181}\text{W}$ , $^{187}\text{W}$ $\beta$ - $^{185}\text{Re}$ を合 む)
	金	2.697 d	$\beta$ -0.960, 0.290 (弱), 1.37 (弱) $\gamma$ 0.41177, 0.675 (弱) 1.087 (弱)	Au-198-1	$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	Au	$\text{AuCl}_3$ 塩酸硝酸混合溶液	~1N	>10	~20,000	>99% ( $^{199}\text{Au}$ を合 む)
	タリウム-204	3.76 y	$\beta$ -0.765	Tl-204-1	$^{203}\text{Tl}(n, \gamma)^{204}\text{Tl}$	$\text{Tl}_2\text{O}_3$	$\text{TlNO}_3$ 硝酸溶液	~3N	>1	~80	>99%



## 1.2 有機標識化合物

製品記号	化学式	製造方法	比放射能 (mCi/mM)	配分単 位置 (mCi)	容器
CLC-1	$K^{14}CN$	$Ba^{14}CO_3, NH_4Cl, K,$ を封管内で加熱結晶化して精製 (>95%)	5~20	0.1, 0.5, 1	アンブルB
CLC-2	$CH_3^{14}COONa$	$^{14}CO_2$ のグリニヤール反応メタノールより再結晶	5~20	0.1, 0.5, 1	アンブルB
CLC-3	$^{14}CH_3OH$	$LiAlH_4$ による $^{14}CO_2$ の還元ガス chromatography 法による精製	5~15	0.1, 0.5, 1	アンブルA

## 1.3 線源ラジオアイソトープ

製品番号	摘要		
	寸法 (mm)	重量 (mg)	放射能 (mCi)
CNB-1	0.46 $\phi$ × 10	15	~ 1
CNB-2	0.91 $\phi$ × 15	85	~ 5
CNB-3	0.91 $\phi$ × 15	85	~10
CNB-4	0.91 $\phi$ × 15	85	~20
IPB-1	2 $\phi$ × 2	140	~10

## 1.4 基準照射物質

製品記号	ターゲット	基準照射量 (g)	生成するおもなラジオアイソトープ	出荷時におけるおもなラジオアイソトープ (mCi)	副成するおもなラジオアイソトープ
Na-1	$Na_2CO_3$	0.1	$^{24}Na$	5	
K-1	$K_2CO_3$	1.5	$^{42}K$	11	$^{24}Na$
Cd-1	$CaCO_3$	1.8	$^{46}Ca$	1	
Sc-1	$Sc_2O_3$	0.005	$^{46}Sc$	9	$^{46}Ca$
Cr-1	Cr	0.04	$^{51}Cr$	8	
Mn-1	Mn	0.0025	$^{56}Mn$	20	
Fe-1	Fe	1.8	$^{56}Fe, ^{59}Fe$	4, 2	
Co-1	Co	0.04	$^{60}Co$	8	
Cu-1	Cu	0.05	$^{64}Cu$	13	
Zn-1	Zn	1.1	$^{65}Zn$	10	$^{69m}Zn, ^{69}Zn$
Ga-1	$Ga_2O_3$	0.1	$^{72}Ga$	7	
Ge-1	$GeO_2$	0.04	$^{71}Ge$	10	$^{77}As$
Ar-1	$As_2O_3$	0.05	$^{76}As$	9	
Rb-1	RbCl	0.04	$^{86}Rb$	5	$^{35}S$
Y-1	$Y_2O_3$	0.05	$^{90}Y$	13	
Mo-1	$MoO_3$	0.4	$^{99}Mo, ^{99m}Tc$	9, 9	
Pd-1	Pd	0.1	$^{109}Pd$	11	$^{103}Pd, ^{109m}Ag, ^{111}Ag$
Ag-1	Ag	0.18	$^{110m}Ag$	7	$^{110}Ag$
Sb-1	Sb	0.005	$^{122}Sb, ^{124}Sb$	5, 0.4	
Cs-1	CsCl	0.04	$^{134}Cs$	6	$^{35}S, ^{32}P$
La-1	$La_2O_3$	0.05	$^{140}La$	7	
Ce-1	$CeO_2$	0.4	$^{141}Ce, ^{143}Ce, ^{143}Pr$	11, 2, 8	$^{139}Ce$
Pr-1	$Pr_2O_3$	0.05	$^{142}Pr$	12	
Sm-1	$Sm_2O_3$	0.025	$^{153}Sm$	11	$^{155}Eu$
Eu-1	$Eu_2O_3$	0.005	$^{152}Eu$ (9.2 時間)	8	$^{152}Eu$ (12.7 年), $^{154}Eu$
Tm-1	$Tm_2O_3$	0.005	$^{170}Tm$	18	
Lu-1	$Lu_2O_3$	0.005	$^{177}Lu$	100	
Hf-1	$HfO_2$	0.04	$^{181}Hf, ^{176}Hf$	8, 4	
W-1	W	0.05	$^{187}W$	9	$^{181}W, ^{185}W$
Re-1	Re	0.005	$^{186}Re$	35	$^{188}Re$
Ir-1	Ir	0.004	$^{192}Ir$	60	$^{194}Ir$
Au-1	Au	0.005	$^{198}Au$	70	$^{199}Au$

附表 2 製品仕様一覽表

項目	製造番号	濃度 (mCi/ml)	主元素量	比放射能	酸性度 (N)	全固 形分 (mg/ml)	不揮発 性成分 (mg/ml)	重金属 (ppm)	不純物 (ppm)
Na-24-2-b	705	4.3	—	$2.2 \times 10^2$ (mCi/gNa)	pH 8.0	—	—	<10	
	706	4.0	—	$2.1 \times 10^2$ "	" 7.9	—	—	"	
	707	5.2	—	$2.2 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	"	
	708	4.5	—	$2.1 \times 10^2$ "	" 7.5	—	—	"	
	709	5.4	—	$2.5 \times 10^2$ "	" 7.6	—	—	"	
	710	5.9	—	$2.5 \times 10^2$ "	" 7.7	—	—	"	
	711	5.6	—	$2.6 \times 10^2$ "	" 7.9	—	—	"	
	712	5.6	—	$1.8 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	"	
	801	5.7	—	$2.7 \times 10^2$ "	" 7.7	—	—	"	
	802	5.4	—	$2.3 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	"	
	803	5.1	—	$2.4 \times 10^2$ "	" 7.8	—	—	"	
	804	5.5	—	$2.3 \times 10^2$ "	" 7.9	—	—	"	
	Na-24-2-c	706	6.2	—	$6.6 \times 10^2$ "	pH 7.9	—	—	"
707		5.3	—	$6.0 \times 10^2$ "	" 7.9	—	—	"	
708		5.6	—	$5.7 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	"	
709		5.7	—	$5.7 \times 10^2$ "	" 7.7	—	—	"	
710		4.5	—	$7.0 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	"	
711		5.0	—	$5.2 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	"	
712		7.2	—	$7.3 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	"	
713		5.4	—	$5.6 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	"	
714		6.1	—	$5.8 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	"	
715		5.8	—	$6.0 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	"	
716		6.2	—	$6.4 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	"	
717		5.8	—	$5.8 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	"	
718		4.0	—	$6.5 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	"	
719		5.3	—	$5.8 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	"	
720		6.4	—	$6.8 \times 10^2$ "	" 7.8	—	—	"	
721		5.2	—	$5.9 \times 10^2$ "	" 7.9	—	—	"	
722		6.4	—	$6.2 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	"	
801		2.5	—	$1.3 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	"	
802		7.0	—	$6.5 \times 10^2$ "	" 8.3	—	—	"	
803		6.3	—	$6.1 \times 10^2$ "	" 7.9	—	—	"	
804	6.4	—	$6.4 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	"		
805	6.1	—	$6.0 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	"		
806	6.3	—	$6.5 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	"		
807	6.0	—	$6.2 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	"		
P-32-1-b	703	60.0	—	CF	0.07	<0.5	<0.5	<10	
	704	28.0	—	"	0.14	"	"	"	
	705	29.0	—	"	0.11	"	"	"	
	706	41.0	—	"	0.11	0.8	"	"	
	707	80.0	—	"	0.12	1.6	"	"	
	708	34.0	—	"	0.10	1.0	0.6	"	
	709	120.0	—	"	0.11	0.8	<0.5	"	
	710	62.0	—	"	0.11	0.5	"	"	
	711	41.0	—	"	0.14	<0.5	"	"	
	712	59.0	—	"	0.11	"	"	"	
	801	82.0	—	"	0.14	"	"	"	
	802	176.0	—	"	0.10	"	"	"	
	803	314.0	—	"	0.07	0.8	"	"	
P-32-1-c	701	7.6	—	"	0.11	<0.5	<0.5	"	
	702	3.9	—	"	0.08	"	"	"	

項目	製造番号	濃度 (mCi/ml)	主元素量	比放射能	酸性度 (N)	全固形分 (mg/ml)	不揮発性成分 (mg/ml)	重金属 (ppm)	不純物 (ppm)
P-32-1-b-t	T-703	$6.9 \times 10^{-2}$	—	CF	0.20	<0.5	<0.5	<10	
	T-704	$20 \times 10^{-2}$	—	"	0.08	"	"	"	
	T-705	11	—	"	0.09	"	"	"	
S-35-1-b	703	63	—	"	0.06	"	"	"	
	704	44	—	"	0.09	"	"	"	
	705	39	—	"	0.07	"	"	"	
	706	62	—	"	0.06	"	"	"	
	707	38	—	"	0.06	"	—	"	
	708	52	—	"	0.06	"	"	"	
	709	75	—	"	0.06	"	"	"	
	801	81	—	"	0.05	"	"	"	
	802	56	—	"	0.06	"	"	"	
S-35-1-c	801	84	—	"	0.05	0.5	0.5	10	
K-42-2-b	705	2.3	—	26 (mCi/gK)	pH 7.6	—	—	<10	
	706	2.2	—	26 "	" 7.8	—	—	"	
	707	3.1	—	31 "	" 7.6	—	—	"	
	708	2.7	—	26 "	" 7.6	—	—	"	
	709	3.1	—	30 "	" 7.4	—	—	"	
	710	3.2	—	27 "	" 7.1	—	—	"	
	801	2.9	—	27 "	" 7.8	—	—	"	
	802	3.1	—	31 "	" 7.4	—	—	"	
803	3.1	—	30 "	" 7.6	—	—	"		
K-42-2-c	706	7.2	—	72 "	" 7.5	—	—	"	
	707	6.5	—	70 "	" 7.1	—	—	"	
	708	6.4	—	70 "	" 7.1	—	—	"	
	709	6.8	—	63 "	" 7.8	—	—	"	
	710	6.3	—	81 "	" 7.6	—	—	"	
	711	7.2	—	63 "	" 7.7	—	—	"	
	712	7.9	—	81 "	" 7.5	—	—	"	
	713	7.3	—	66 "	" 7.4	—	—	"	
	714	6.8	—	66 "	" 7.6	—	—	"	
	715	7.4	—	71 "	" 7.3	—	—	"	
	716	8.2	—	75 "	" 7.3	—	—	"	
	717	6.1	—	59 "	" 7.7	—	—	"	
	718	7.7	—	72 "	" 7.3	—	—	"	
	801	8.3	—	78 "	" 7.1	—	—	"	
	802	7.7	—	68 "	" 7.6	—	—	"	
	803	7.5	—	73 "	" 7.3	—	—	"	
804	7.6	—	65 "	" 7.2	—	—	"		
805	7.9	—	77 "	" 7.2	—	—	"		
806	6.0	—	68 "	" 7.1	—	—	"		
Ca-45-1-c	801	1.1	103 (mg/ml)	10 (mCi/gCa)	0.57	—	—	"	
Ca-45-1-b-t	T-703	0.16	39 "	6.1 "	1.3	—	—	"	
Ca-45-1-c-t	T-702	0.34	53 "	6.5 "	1.4	—	—	"	
Cr-51-c-t	T-701	15.7	0.22 (mg/ml)	72 (Ci/gCr)	pH 6.9	—	—	"	
	T-702	21	0.90 "	23 "	" 6.3	—	—	"	
	T-703	21.2	0.99 "	22 "	" 6.6	—	—	"	
Cr-51-2R	701	32	1.1 (mg/ml)	30 "	" 8.2	—	—	"	
Co-60-t	T-701	3.5	17 $\mu$ g	$2.0 \times 10^2$ (mCi/gCo)	—	—	—	"	
Cu-64-1-b	702	4.4	—	$5.8 \times 10^2$ (mCi/gCu)	0.77	—	—	"	
	703	4.8	—	$6.2 \times 10^2$ "	0.84	—	—	"	

項目	製造番号	濃度 (mCi/ml)	主元素量	比放射能	酸性度 (N)	全固 形分 (mg/ ml)	不揮発 性成分 (mg/ ml)	重金属 (ppm)	不純物 (ppm)
Cu-64-1-b	704	5.5	—	$6.7 \times 10^2$ (mCi/gCu)	0.82	—	—	—	
	705	5.3	—	$6.8 \times 10^2$ "	0.85	—	—	—	
	706	4.9	—	$6.4 \times 10^2$ "	0.83	—	—	—	
	801	4.5	—	$6.2 \times 10^2$ "	0.88	—	—	—	
	802	4.8	—	$6.2 \times 10^2$ "	0.85	—	—	—	
	803	4.8	—	$6.3 \times 10^2$ "	1.1	—	—	—	
	804	4.7	—	$6.2 \times 10^2$ "	0.85	—	—	—	
Cu-64-1-c	701	6.2	—	$1.4 \times 10^3$ "	0.81	—	—	—	
	702	6.8	—	$1.6 \times 10^3$ "	0.76	—	—	—	
	703	5.9	—	$1.4 \times 10^3$ "	0.81	—	—	—	
	704	6.3	—	$1.5 \times 10^3$ "	0.81	—	—	—	
	705	5.7	—	$1.4 \times 10^3$ "	0.72	—	—	—	
	706	7.7	—	$1.9 \times 10^3$ "	0.82	—	—	—	
	707	6.1	—	$1.5 \times 10^3$ "	0.77	—	—	—	
	708	6.8	—	$1.5 \times 10^3$ "	0.91	—	—	—	
	709	6.5	—	$1.6 \times 10^3$ "	0.84	—	—	—	
	710	7.1	—	$1.6 \times 10^3$ "	0.81	—	—	—	
	711	7.3	—	$1.7 \times 10^3$ "	0.87	—	—	—	
	801	4.4	—	$3.0 \times 10^2$ "	0.96	—	—	—	
	802	7.0	—	$1.6 \times 10^3$ "	0.87	—	—	—	
	803	6.5	—	$1.5 \times 10^3$ "	0.87	—	—	—	
	804	6.8	—	$1.6 \times 10^3$ "	0.91	—	—	—	
	805	6.3	—	$1.5 \times 10^3$ "	0.85	—	—	—	
	806	7.0	—	$1.7 \times 10^3$ "	0.89	—	—	—	
	807	6.5	—	$1.5 \times 10^3$ "	0.74	—	—	—	
	Cu-64-2-b-t (H. S. A)	T-702	16.0	—	300 (mCi/mgCu)	pH 2	—	<1	—
T-703		(A) 1.2	—	100 "	" 2.8	<1	—	—	Fe 40 ppm Fe 7ppm  Fe 20 ppm
		(B) 1.02	—	100 "	" 3.6				
T-704		2.6	$2.7 \times 10^{-2}$ (mg/mlCu)	$9.5 \times 10^4$ (mCi/gCu)	" 1.8	—	—	—	
T-705		2.5	—	—	—	" 1.8-	—	—	
						" 2.0			
T-706		1.9	$2.0 \times 10^{-2}$ (mg/mlCu)	$1.0 \times 10^5$ (mCi/gCu)	" 3.1	—	—	—	
T-707		12.0	$6.0 \times 10^{-2}$ "	$2.0 \times 10^5$ "	" 3.1	—	—	—	
T-708	20.0	$2.5 \times 10^{-2}$ "	$8.0 \times 10^5$ "	" 2.6	—	—	—		
T-709	7.5	$1.9 \times 10^{-2}$ "	$3.9 \times 10^5$ "	" 3.0	—	—	—		
Cu-64 (H. S. A)	T-801	8.3	$2.0 \times 10^{-2}$ "	$4.1 \times 10^5$ "	" 3.1	—	—	—	
	T-802	4.4	$2.5 \times 10^{-5}$ "	$1.8 \times 10^5$ "	" 2.9	—	—	—	
As-76-1-b	701	3.0	—	$1.7 \times 10^4$ (mCi/gAs)	0.82	—	—	<10	
	801	3.5	—	$1.6 \times 10^4$	0.59	—	—	"	
	802	3.6	—	$1.7 \times 10^4$ "	0.85	—	—	"	
	803	3.4	—	$1.6 \times 10^4$ "	0.78	—	—	"	
	804	2.3	—	$1.8 \times 10^4$ "	0.83	—	—	"	
As-76-1-c	801	0.81	—	$1.8 \times 10^2$ "	0.94	—	—	"	
Ga-72-1-b	801	3.8	—	$2.8 \times 10^2$ (mCi/gGa)	0.72	—	—	"	
	802	5.5	—	$3.1 \times 10^2$ "	0.67	—	—	"	
	803	6.1	—	$3.1 \times 10^2$ "	0.80	—	—	"	
Ga-72-1-c	801	2.4	—	$1.6 \times 10^2$ "	1.1	—	—	"	
	802	4.0	—	$7.7 \times 10^2$ "	0.85	—	—	"	
	803	6.4	—	$7.4 \times 10^2$ "	0.78	—	—	"	
	804	5.2	—	$8.0 \times 10^2$ "	0.54	—	—	"	
Br-82-1-b	701	2.7	—	24 (mCi/gBr)	—	—	—	"	
	801	2.2	—	25 "	—	—	—	"	

項目	製造号	濃度 (mCi/ml)	主元素量	比放射能	酸性度 (N)	全固 形分 (mg/ ml)	不揮発 性成分 (mg/ ml)	重金属 (ppm)	不純物 (ppm)
Br-82-1-c	702	2.1	—	12 (mCi/gBr)	—	—	—	<10	
	703	2.1	—	18 "	—	—	—	"	
	704	2.2	—	17 "	—	—	—	"	
	801	2.1	—	17 "	—	—	—	"	
Rb-86-1-b	701	6.7	—	$3.0 \times 10^2$ (mCi/gRb)	0.08	—	—	"	
Ag-110m-1	b-701	3.4	—	$3.5 \times 10^2$ (mCi/gAg)	0.96	—	—	—	
I-131-1-c	705	7.6	—	CF	pH9.5	0.2	—	<10	
	706	13	—	"	" 9.3	2.6	—	"	
	707	21	—	"	" 9.8	3.3	—	"	
	708	16	—	"	" 10	6.2	—		
	709	40	—	"	" 10	3.1	—		
	710	44	—	"	" 10	2.7	—		
	711	45	—	"	" 10	2.7	—		
	712	76	—	"	" 11	2.6	—	"	
	713	42	—	"	" 10	2.4	—	"	
	714	85	—	"	" 11	2.3	—	"	
	801	93	—	"	" 11	2.6	—	—	
	802	46	—	"	" 11	2.6	—	—	
	803	$4.3 \times 10^2$	—	"	" 11	—	—	—	
	804	$2.7 \times 10^2$	—	"	"	—	—	—	
Zn-65-1-b	801	2.2	—	98 mCi/gZn	0.85N	—	—	—	
I-131-1-c-t	T-701	2.0	—	CF	pH11	2.3	—	<10	
	T-702	2.9	—	"	" 12	2.8	—	"	
	T-703	6.9	—	"	" 12	2.5	—	"	
	T-704	11	—	"	" 12	2.8	—	"	
	T-705	14	—	"	" 11	3.2	—	"	
La-140-1-b	701	2.4	—	$1.6 \times 10^2$ (mCi/gLa)	0.61	—	—	"	
La-140-1-c	701	3.8	—	$1.5 \times 10^3$ "	0.79	—	—	"	
	801	4.0	—	$1.6 \times 10^3$ "	0.91	—	—	"	
Sm-153-1-c	701	2.8	—	$2.2 \times 10^3$ (mCi/gSm)	0.92	—	—	"	
Lu-177-1-b	702	28	—	$4.3 \times 10^4$ (mCi/gLu)	0.87	—	—	"	
	703	18	—	47 (Ci/gLu)	0.91	—	—	"	
	801	22	—	$5.2 \times 10^4$ (mCi/gLu)	0.67	—	—	"	
W-185-1	c-705	4.8	—	$1.2 \times 10^2$ (mCi/gW)	1.5	—	—	"	
Au-198-1-b	704	A $9.0 \times 10^2$ B 20	—	27 (Ci/gAu)	A 0.89 B 0.69	—	—	—	
	705	1.2 Ci/ml	—	18 "	1.2	—	—	—	
	706	1.3 Ci/ml	—	25 "	1.3	—	—	—	
	707	$7.2 \times 10^2$	—	17 "	1.0	—	—	—	
	708	A 1.2 Ci/ml B 24	—	30 "	A 1.0 B 0.70	—	—	—	
	709	1.5 Ci/ml	—	49 "	0.91	—	—	—	
	710	A 1.1 Ci/ml B 37	—	26 "	A 1.1 B 0.74	—	—	—	
	711	1.5 Ci/ml	—	51 "	0.83	—	—	—	
	712	A 1.1 Ci/ml B 16	—	26 "	A 1.0 B 0.65	—	—	—	
	713	A 1.2 Ci/ml B 57	—	55 "	A 0.80 B 0.63	—	—	—	
	714	$7.7 \times 10^2$	—	26 "	0.93	—	—	—	
	715	1.1 Ci/ml	—	52 "	0.76	—	—	—	
	716	A 1.0 Ci/ml B 15	—	25 "	A 0.98 B 0.70	—	—	—	

項 目	製 造 号	濃 度 (mCi/ml)	主 元 素 量	比 放 射 能	酸 性 度 (N)	全 固 形 分 (mg/ml)	不 揮 発 性 成 分 (mg/ml)	重 金 属 (ppm)	不 純 物 (ppm)	
Au-198-1-b	801	A $9.2 \times 10^2$ B 13	—	23 (Ci/gAu)	A 0.90 B 0.65	—	—	—		
	802	A $9.4 \times 10^2$ B 16	—	23 "	A 1.0 B 0.72	—	—	—		
	803	$9.5 \times 10^2$	—	23 "	0.91	—	—	—		
	804	A 1.1 Ci/ml B 21	—	27 "	A 0.93 B 0.65	—	—	—		
	805	$9.5 \times 10^2$	—	23 "	0.91	—	—	—		
	806	$9.6 \times 10^2$	—	24 "	1.0	—	—	—		
Au-198-1-c	705	1.3 Ci/ml	—	32 "	0.77	—	—	—		
	706	A 1.0 Ci/ml B $2.0 \times 10$	—	34 "	A 0.89 B 0.71	—	—	—		
	707	A 1.0 Ci/ml B 52	—	31 "	A 0.84 B 0.81	—	—	—		
	708	A 1.4 Ci/ml B 18	—	34 "	A 1.1 B 0.67	—	—	—		
	709	A 1.8 Ci/ml B 88	—	34 "	A 1.1 B 0.74	—	—	—		
	710	A 1.2 Ci/ml B 24	—	31 "	A 0.98 B 0.63	—	—	—		
	711	A 1.2 Ci/ml B 25	—	31 "	A 0.89 B 0.62	—	—	—		
	712	1.4 Ci/ml	—	31 "	0.96	—	—	—		
	713	1.2 "	—	31 "	1.1	—	—	—		
	714	1.2 "	—	30 "	0.93	—	—	—		
	801	A 1.1 " B 16	—	26 "	A 0.98 B 0.71	—	—	—		
	802	1.3 Ci/ml	—	30 "	1.0	—	—	—		
	803	A 1.5 " B 75	—	75 "	A 0.85 B 0.74	—	—	—		
	804	1.3 Ci/ml	—	31 "	0.95	—	—	—		
	Au-198-t	T-801	—	—	$8.4 \times 10^2$ (mCi/gAu)	—	—	—	—	
		T-802	—	—	$4.6 \times 10^2$ "	—	—	—	—	
Tl-204-1	b-701	—	—	78 (mCi/gTl)	3.7	—	—	—		

項 目	製 造 番 号	濃 度	比 放 射 能	放 射 化 学 的 純 度
酢酸ナトリウム- $^{14}\text{C}$	701	—	18 mCi/mM	ペーパークロマトグラフ法により不純物を認めず
メタノール- $^{14}\text{C}$	701	200	8 mCi/mM	>99% ガスクロマトグラフ法による

項 目	製 造 番 号	個 数	1 個 当 り の 平 均 放 射 能	標 準 偏 差 ( $\sigma$ )	全 量
Ir-b-t	T-7002	25	11 Ci	$\pm 0.9$ Ci	$2.8 \times 10^2$ Ci
		23	11 "	$\pm 0.6$ "	$2.5 \times 10^2$ "
"	T-7003	20	8 "	$\pm 0.6$ "	$1.6 \times 10^2$ "
		32	8 "	$\pm 0.6$ "	$2.6 \times 10^2$ "
IPB-1	7001	33	13 "	$\pm 0.1$ "	$8.5 \times 10^2$ "
		32	13 "	$\pm 0.1$ "	
Co-c-t	T-7002	180	1.0 mCi	$\pm 10\%$	$1.8 \times 10^2$ mCi
		20	1.2 "	$\pm 10$ "	$2.4 \times 10$ "
"	T-7003	230	1.2 "	$\pm 0.1$ mCi	$2.8 \times 10^2$ "
		100	1.4 "	$\pm 0.1$ "	$1.4 \times 10^2$ "
		150	1.7 "	$\pm 0.1$ "	$2.5 \times 10^2$ "
		10	2.0 "	$\pm 0.04$ "	$2.0 \times 10$ "

附表 3

## 項目別出荷表

項 目	受注番号	発送年月日	利 用 機 関 名	送 付 量 (mCi)	
Na-24-2-b	7091	42. 6. 7	原研 RI 研修所	藤原竜郎	5
	7093	6. 7	東北大学医学部附属病院	高和	2
			東京大学医学部附属病院	内海	1
			"	上野	1
			東京医科歯科大学附属病院	平岡	1
	7116	6. 28	原研 研究部核物理第一研究室	浅見哲夫	1
	7117	6. 28	東北大学医学部附属病院	高和	2
			東京医科歯科大学附属病院	平岡	1
	7120	6. 28	原研 放射線管理課	井沢庄司	1
	7141	7. 19	東北大学医学部附属病院	小林	2
	7168	8. 9	原研 研究部核物理第一研究室	浅見哲夫	1
	7170	8. 9	東北大学医学部附属病院	小林	2
			日本大学医学部附属病院	鈴木	1
	7219	10. 9	東京大学医学部附属病院	長坂, 木の内	1
			日本歯科大学附属病院	古本	1
			第一化学薬品 (株)		1
	7239	10. 31	RI 協会		4
	7268	11. 21	東北大学医学部附属病院		2
			東京大学医学部附属病院		1
			日本歯科大学附属病院		1
			第一化学薬品 (株)		1
	7284	12. 12	東北大学医学部附属病院	小林	2
			東京大学医学部附属病院	上野	1
			"	長坂	1
			日本歯科大学附属病院	古本	1
			第一化学薬品 (株)		3
			RI 協会	岡林	3
	8002	43. 1. 17	群馬大学医学部附属病院		5
			東北大学医学部附属病院		2
			東京医科歯科大学附属病院		1
8002	1. 17	日本歯科大学附属病院		1	
		第一化学薬品 (株)		3	
8035	2. 7	東北大学医学部附属病院		3	
		日本歯科大学附属病院		1	
		第一化学薬品 (株)		1	
8059	2. 28	東京大学医学部附属病院		1	
		東北大学医学部附属病院		3	
		日本歯科大学附属病院		1	
8089	3. 21	放射線医学研究所		5	
		日本歯科大学附属病院		1	
Na-24-2-c	7083	42. 5. 31	東京大学医学部附属病院	上野	3
			"	内海	1
			東北大学医学部附属病院	高和	2
			東京医科歯科大学附属病院	平岡	1
			放射線医学研究所	藪本	1
	7102	6. 14	東北大学医学部附属病院	高和	2
			東京医科歯科大学附属病院	丸茂	1
			"	平岡	1
	7108	6. 21	東京大学医学部附属病院	上野	1
			東北大学医学部附属病院	高和	2
			東京医科歯科大学附属病院	平岡	2
			放射線医学研究所	河村	1
			東京大学医学部附属病院	内海	1

項 目	受注番号	発送年月日	利 用 機 関 名	送 付 量 (mCi)	
Na-24-2-c	7112	42. 6. 21	原研 RI 研修所	石河	1
	7121	7. 5	東京大学医学部附属病院	霞	1
			東北大学医学部附属病院	高和	2
			東京医科歯科大学附属病院	平岡	1
			放射線医学研究所	河村	1
	7125	7. 5	原研 RI 研修所	石河	5
	7128	7. 12	東北大学医学部附属病院	小林	2
			東京大学医学部附属病院	霞	1
			放射線医学研究所	藪本	5
	7135	7. 12	原研 研究炉技術課	根本剛	2
	7149	7. 26	東北大学医学部附属病院	小林	2
			日本大学医学部附属病院	熊谷	1
	7150	7. 26	茨城総合職業訓練所	川野水広	1
	7162	8. 2	東北大学医学部附属病院	小林	2
	7164	"	原研 研究炉技術課	根本剛	2
	7174	8. 16	東北大学医学部附属病院	小林	2
			放射線医学研究所	藪本	5
	7187	8. 23	原研 RI 研修所	葉可霖	5
	7188	"	原研 研究炉技術課	根本剛	2
	7194	9. 6	東北大学医学部附属病院		2
			日本歯科大学附属病院		2
	7200	9. 13	東京大学農学部		1
			日本歯科大学附属病院		1
	7207	9. 27	東京大学医学部附属病院	長坂, 木野	1
			日本歯科大学附属病院	古本	1
			放射線医学研究所	鈴木	3
			第一化学薬品 (株)		1
	7211	10. 4	東北大学医学部附属病院		1
			東京大学医学部附属病院	長坂	1
			"	上野	1
			放射線医学部附属病院	岡林	3
	7224	10. 18	東北大学理学部		5
			東北大学医学部附属病院		2
			東京大学医学部附属病院		1
			"		1
	7230	10. 25	東北大学理学部		1
			東北大学医学部附属病院		2
			東京大学医学部附属病院		1
			京都府立医大		1
			第一化学薬品 (株)		1
			RI 協会		3
	7243	11. 8	東北大学医学部附属病院	星野	1
		"	小林	2	
		東京大学医学部附属病院	木ノ内	1	
		日本歯科大学附属病院	古本	1	
		東京医科歯科大学附属病院		1	
		第一化学薬品 (株)		1	
7249	11. 15	原研 環境放射能課	森内茂	1	
7252	"	東北大学医学部附属病院		3	
		東京大学医学部附属病院	上野	1	
		"	長坂	1	
		京都府立医大		1	
		日本歯科大学		1	
8014	43. 1. 24	RI 協会		5	
8019	1. 31	東北大学医学部附属病院		4	
		東京大学医学部附属病院		1	
		日本歯科大学附属病院		1	



項 目	受注番号	発送年月日	利 用 機 関 名	送 付 量 (mCi)
Na-24-2-c	8019	43. 1. 31	第一化学薬品 (株)	1
	8042	2. 14	原研 RI 研修所	5
	8044	2. 14	東北大学医学部附属病院	2
			東京大学医学部附属病院	2
			東京医科歯科大学附属病院	1
	8050	2. 21	日本歯科大学	1
			東北大学医学部附属病院	2
			東京大学医学部附属病院	1
	8051	"	原研 RI 研修所	5
	8066	3. 6	日本大学医学部附属病院	3
			東北大学医学部附属病院	3
			日本歯科大学	1
	8082	3. 13	東北大学医学部附属病院	2
			東京大学医学部附属病院	1
			日本大学医学部附属病院	3
			日本歯科大学	1
8100	3. 27	第一化学薬品 (株)	1	
		東北大学医学部附属病院	3	
8102	"	原研 R I 研修所	20	
P-32-1-b	7137	42. 7. 17	原研 原子核物理第一研究室 浅見哲夫	1
	7140	"	住友原子力工業(株) 宝塚放射線研究所 遠藤道雄	50
	7148	7. 24	RI 協会	150
	7161	7. 31	"	30
	7151	8. 28	茨城総合職業訓練所 川野水広	2
	7206	9. 19	RI 協会	50
	7212	10. 2	"	30
	7220	10. 13	"	250
	7227	10. 23	"	50
	7240	10. 30	"	100
	7241	10. 31	"	250
	7256	11. 13	第一化学薬品 (株)	100
	7270	11. 20	原研 線量計測課	5
	7271	"	原研 原子炉研修所	5
	7283	12. 11	RI 協会	250
	8007	43. 1. 16	第一化学薬品 (株)	200
	8056	2. 19	"	50
	8062	2. 26	"	50
	8063	"	RI 協会	30
	8072	3. 4	第一化学薬品 (株)	50
8080	3. 11	"	50	
8088	3. 12	"	100	
8092	3. 18	RI 協会	50	
8093	"	第一化学薬品 (株)	50	
8099	3. 25	"	80	
P-32-1-c	7066	42. 4. 3	第一化学薬品 (株)	50
	7067	"	東北大学農学部 志村憲助	10
	7068	"	名古屋大学放射性同位元素総合研究室 中埜栄三	20
	7069	"	電気通信研究所茨城支所 工藤 洵	1
	7073	4. 18	原研 製造技術課 四方英治	10
	7076	4. 28	東北大学農学部	15
	7081	5. 29	原研 燃料化学研究室 市川富士夫	1
S-35-1-b	7071	4. 10	RI 協会	70
	7072	4. 17	山之内製薬中央研究所 佐渡	40
	7075	5. 2	RI 協会	11

項 目	受注番号	発送年月日	利 用 機 関 名	送 付 量 (mCi)
S-35-1-b	7077	42. 5. 8	RI 協会	10
	7078	5. 20	"	190
	7079	5. 22	"	20
	7082	5. 29	第一化学薬品 (株)	5
	7086	6. 5	大阪 住友原子力工業 (株)	60
	7087	"	東京大学医学部附属病院	5
	7088	"	第一化学薬品 (株)	30
	7097	6. 12	RI 協会	90
	7098	"	ライオン油脂 (株) 研究所	10
	7099	"	RI 協会	20
	7126	7. 10	"	10
	7127	"	"	85
	7136	7. 17	原研 原子核物理第一研究室 浅見哲夫	1
	7155	7. 24	RI 協会	30
	7178	8. 14	"	50
	7182	8. 21	"	20
	7199	9. 11	"	180
	7210	10. 2	第一化学薬品 (株)	50
	7226	10. 16	RI 協会	180
	7238	10. 30	"	10
	7251	11. 13	"	140
	7257	11. 13	RI 研修所	5
	7277	12. 4	原研 汚染処理課	5
	7280	12. 4	第一化学薬品 (株)	30
	7282	12. 11	RI 協会	140
	7295	43. 1. 5	第一化学薬品 (株)	200
	8009	1. 17	RI 協会	270
	8013	1. 19	原研 製造技術課 四方英治	50
	8065	2. 26	" "	100
	8086	3. 13	RI 協会	100
8087	"	"	20	
K-42-2-b	7094	6. 7	東北大学医学部附属病院 高和	2
			京都大学医学部附属病院 品川	2
			東京大学農学部 土器屋	1
			東京医科歯科大学 平岡	1
	7118	6. 28	東北大学医学部附属病院 高和	2
			京都大学ウイルス研	1
	7142	7. 19	東北大学医学部附属病院 小林	2
			日本大学医学部附属病院 熊谷	1
	7171	8. 9	RI 協会	2
	7269	11. 21	東北大学医学部附属病院	2
	7285	12. 12	東北大学医学部附属病院 小林	2
	8003	43. 1. 17	"	1
	8036	2. 7	"	2
8060	2. 28	日本大学医学部附属病院	1	
		東北大学医学部附属病院	2	
		日本大学医学部附属病院	4	
K-42-2-c	7084	42. 5. 31	東北大学医学部附属病院 高和	2
			東京大学伝染病研究所 上代	2
			東京医科歯科大学附属病院 平岡	1
	7103	6. 14	東北大学医学部附属病院 高和	2
			日本大学医学部附属病院 熊谷	1
			東京医科歯科大学附属病院 平岡	1
7109	6. 21	東北大学医学部附属病院 高和	2	
		京都府立大学ウイルス研究所	1	
		放射線医学研究所 河村	1	

項 目	受注番号	発送年月日	利 用 機 関 名	送 付 量 (mCi)	
K-42-c-2	7122	42. 7. 5	京都大学医学部附属病院	品川	2
			京都大学ウイルス研究所		1
			東北大学医学部附属病院	高和	2
			学習院大学理学部		1
			放射線医学研究所		1
	7129	7. 12	東北大学医学部附属病院	小林	2
	7152	7. 26	"		2
	7163	8. 2	"		2
	7175	8. 16	九州大学農学部	山田	1
	7195	9. 6	東北大学医学部附属病院	小林	2
	7225	10. 18	"		2
	7231	10. 25	"		2
	7244	11. 8	"		2
	7253	11. 15	"		2
	8020	43. 1. 31	"		4
	8045	2. 14	日本大学医学部附属病院		1
			東北大学医学部附属病院		2
	8052	2. 21	日本大学医学部附属病院		3
			東北大学医学部附属病院		2
	8068	3. 6	日本大学医学部附属病院		4
			東北大学医学部附属病院		2
	8083	3. 13	日本大学医学部附属病院		5
			大阪府立衛生研究所		5
8101	3. 27	東北大学医学部附属病院		2	
		日本大学医学部附属病院		1	
		東北大学医学部附属病院		2	
		日本大学医学部附属病院		2	
		東邦大学薬学部		5	
Ca-45-1	8047	2. 19	原研 分析センター	1	
Cr-51 (H. S. A) (特殊サービス)	7070	42. 4. 13	RI 協会	22	
	7159	7. 31	第一化学薬品 (株)	150	
	7160	"	RI 協会	50	
	7209	9. 26	第一化学薬品 (株)	290	
	8075	43. 3. 11	原研 利用開発準備室	10	
Co-60 溶液 (特殊サービス)	7265	42. 12. 15	炉化学研究室	長山 尚	No. 1 0. 2 μCi/59 cc No. 2 2. 0 μCi/59 cc
Cu-64-1-b	7095	6. 7	放射線医学研究所	寺尾	9
	7119	6. 28	"		5
	7143	7. 19	"		5
	7267	11. 21	東北大学医学部 金属材料研究所		3
			東京大学理学部		10
	7286	12. 12	昭和大学医学部附属病院		4
			"	藤井	4
	8004	43. 1. 17	東京大学理学部		36
	8005	1. 17	昭和大学		4
			原研 RI 研修所		2
	8038	2. 7	"		2
	8039	2. 7	通研茨城支所		1
	8064	2. 28	原研 RI 研修所		2
8091	3. 21	昭和大学医学部附属病院		2	
Cu-64-1-c	7080	42. 5. 24	放射線医学研究所		5
	7085	5. 31	"	寺尾	5
	7104	6. 14	松下電器	岡田	10
			放射線医学研究所	寺尾	10

項 目	受注番号	発送年月日	利 用 機 関 名	送 付 量 (mCi)
Cu-64-1-c	7110	42. 6. 21	放射性医学研究所	8
	7123	7. 5	"	8
	7130	7. 12	"	8
	7153	7. 26	東北大学医学部 金属材料研究所	3
	7176	8. 16	東北大学医学部附属病院 金研 平林	3
	7184	8. 23	"	3
	7201	9. 13	東京大学農学部	1
	7215	10. 25	名古屋大学工学部 水池敦	1
	7232	"	昭和大学医学部附属病院	3
	8016	43. 1. 24	RI 協会	4
	8021	1. 31	昭和大学医学部附属病院	4
	8027	"	原研 RI 研修所 久保興子	2
	8041	2. 14	名古屋大学工学部	1
	8043	"	原研 RI 研修所 久保興子	2
	8046	"	昭和大学医学部附属病院	1
	8053	2. 21	原研 RI 研修所 久保興子	2
	8069	3. 6	"	2
	8084	3. 13	昭和大学 二内	2
	8085	"	原研 RI 研修所 久保興子	2
	8104	3. 27	"	2
Cu-64 (H. S. A) (特殊サービス)	8028	1. 31	RI 協会	5
	8029	"	第一化学薬品 (株)	5
	8030	"	ダイナボット RI 研究所	5
	8057	2. 21	第一化学薬品 (株)	5
	8058	"	RI 協会	10
Zn-65-1	8076	3. 11	原研 利用開発室 川上泰	1
Ga-72-1-c	7298	1. 24	通研茨城支所 工藤 冽	1
	7306	2. 14	"	1
	7309	3. 6	"	1
	7311	3. 27	"	1
Ga-72-1-b	7297	1. 17	通研茨城支所 工藤 冽	1
	7304	2. 7	"	1
	7307	2. 28	"	1
As-76-1-b	7216	42. 10. 27	名古屋大学工学部 水池 敦	1
	7296	43. 1. 19	通研茨城支所 工藤 冽	1
	7305	2. 9	"	1
	7308	3. 1	"	1
	7310	3. 22	"	1
As-76-1-c	7303	1. 25	"	1
Br-82-1-c	7133	42. 7. 10	日本大学医学部附属病院 熊谷	2
	7154	8. 21	東邦大学医学部附属病院 浅田	3
	7156	7. 31	"	3
	7158	8. 21	熊本大学医学部 岸川俊明	10
	7165	7. 31	原研 体内放射能課 矢部 明	1
	7202	10. 9	東邦大学医学部附属病院 浅田	3
	8032	43. 3. 11	放射線医学研究所	1
	Br-82-1-b	8031	2. 12	金沢大学理学部 寺田
Rb-86-1	7261	42. 12. 20	原研 放射化学 吾勝永子	1
Ag-110 <sub>m</sub> -1	7272	11. 20	公衆衛生院	2
I-131-1-c-t	7198	9. 4	原研 再処理開発試験室 木谷 進	3
I-131-1	7208	9. 25	原研 再処理開発試験室 木谷 進	3
	7213	10. 2	"	3

項目	受注番号	発送年月日	利用機関名	送付量 (mCi)
I-131-1	7235	42. 10. 23	原研 再処理開発試験室 宇野清一郎	3
	7262	11. 20	原研 F.P 研究室 木谷 進	3
	7263	12. 11	" " "	3
	7264	12. 25	" " "	3
	7288	12. 11	原研 利用開発準備室 川上 泰	5
	7289	" "	原研 F.P 研究室 木谷 進	20
	7314	2. 19	" " "	3
	7313	2. 15	" " "	3
	7312	1. 16	" " "	10
	8025	43. 2. 5	原研 利用開発準備室 川上 泰	5
	8048	3. 4	原研 F.P 研究室 木谷 進	20
	8074	"	原研 利用開発室 川上 泰	10
	8078	"	第一化学薬品 (株)	100
	8096	3. 18	原研 F.P 研究室 木谷 進	10
8097	"	原研 利用開発室 川上 泰	20	
La-140-1-c	7106	42. 6. 16	大阪工業技術試験所 石井	10
	7233	12. 8	近畿大学 合田	2
	7292	43. 1. 26	RI 協会	1
Sm-153-1-c	7107	42. 6. 16	大阪工業技術試験所 石井	20
Lu-177-1-b	7134	7. 11	京都府立大学医学部附属病院 黒松	3
			近畿大学 合田	1
	7234	12. 19	" "	3
	8006	2. 20	東北大学理学部	10
W-185-1-c	7260	12. 20	原研 放射化学 吾勝永子	1
Au-198-1-b	7100	6. 13	ダイナボット RI 研究所	3,920
	7101	"	名古屋大学工学部 水池 敦	3
	7105	"	第一化学薬品 (株)	600
	7111	6. 20	ダイナボット RI 研究所	3,500
	7124	7. 4	"	3,780
	7131	7. 11	"	4,480
	7132	"	第一化学薬品 (株)	600
	7172	8. 15	ダイナボット RI 研究所	3,920
	7173	"	東北大学医学部附属病院 金属材料研究所	2
	7214	10. 4	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7221	10. 17	第一化学薬品 (株)	600
	7222	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7223	"	港湾技研 入江 功	33
	7229	10. 25	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7242	11. 7	"	4,480
	7245	"	原研 核物理研究室	1
	7250	11. 15	港湾技研 入江 功	30
	7254	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7255	"	第一化学薬品 (株)	600
	7266	11. 21	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7273	11. 28	第一化学薬品 (株)	800
	7274	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7278	12. 6	第一化学薬品 (株)	600
	7279	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7259	12. 19	原研 放射化学 吾勝永子	1
	7290	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7291	"	港湾技研 入江 功	30
			名古屋大学工学部 水池 敦	3
	8017	43. 1. 23	" "	3
	8022	1. 30	港湾技研 入江 功	30
	8023	"	ダイナボット RI 研究所	4,480

項 目	受注番号	発送年月日	利 用 機 関 名	送 付 量 (mCi)
Au-198-1-b	8024	43. 1. 30	第一化学薬品 (株)	600
	8040	2. 13	ダイナボット RI 研究所	4,480
	8049	2. 20	港湾技研	30
	8054	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
	8055	"	第一化学薬品 (株)	600
	8070	3. 5	ダイナボット RI 研究所	4,480
	8071	"	第一化学薬品 (株)	800
	8079	3. 12	ダイナボット RI 研究所	4,480
	8103	3. 26	"	5,040
Au-198-1-c	7064	42. 4. 5	ダイナボット RI 研究所	3,000
	7065	"	第一化学薬品 (株)	600
	7089	6. 6	港湾技研	30
			日本電気 (株)	3
			金沢大学理学部	5
	7090	"	第一化学薬品 (株)	200
	7092	"	ダイナボット RI 研究所	550
	7096	"	"	1,800
	7113	6. 27	第一化学薬品 (株)	800
	7114	"	ダイナボット RI 研究所	3,920
	7115	"	港湾技研	30
	7139	7. 18	"	30
			東北大学医学部附属病院	1
	7144	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7145	"	原研 核物理第一研究室	1
	7166	8. 8	第一化学薬品 (株)	600
	7167	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7169	"	東北大学医学部附属病院	2
			港湾技研	30
	7189	8. 29	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7190	"	東北大学医学部附属病院	2
	7203	9. 19	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7204	"	第一化学薬品 (株)	600
	7205	"	港湾技研	30
	7217	10. 9	第一化学薬品 (株)	800
	7218	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
	7236	10. 31	第一化学薬品 (株)	800
	7237	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
	8010	43. 1. 23	第一化学薬品 (株)	800
	8011	"	ダイナボット RI 研究所	4,480
8033	2. 6	第一化学薬品 (株)	800	
8034	"	ダイナボット RI 研究所	4,480	
8037	"	名古屋大学工学部	3	
8061	2. 27	ダイナボット RI 研究所	4,480	
8081	3. 12	港湾技研	30	
8094	3. 19	第一化学薬品 (株)	600	
8095	"	ダイナボット RI 研究所	5,040	
酢酸ナトリウム-14C	8012	1. 23	東京大学工学部原子力工学科山本研 山本 寛	1
メタノール-14C	7157	42. 7. 26	住友原子力工業 (株) 宝塚研究所 速藤道雄	5
	7275	12. 1	" "	20
	8001	1. 16	名古屋大学農学部 斎藤哲夫	5
Co-60 針状線源	7147	8. 14	RI 協会	200
	7197	9. 11	"	688
Ir-192 線源	7074	4. 20	RI 協会	530,000
	7196	9. 7	"	364,000
	7293	43. 1. 5	"	670,000
	7294	"	原研 利用開発室 前山 頌	10,000

項 目	受注番号	発送年月日	利 用 機 関 名	送 付 量 (unit)
Ge-1-b	7138	42. 8. 29	原研 RI 研修所	1
Ag-1-c	7191	10. 11	熊本大学医学部	1
Mo-1-c	7192	"	"	1
Cu-1-c	7193	10. 4	"	1
Ge-1-c	7181	9. 19	RI 研修所	1
Sb-1-c	7179	"	名古屋大学医学部附属病院 水池 敦	1
Fe-1-c	8180	"	" "	1
Cr-1-b	7228	11. 27	北海道大学	1
Eu-1-b	7276	43. 1. 23	原研 放射化学 吾勝常勲	1
Hf-1-b	7248	43. 12. 19	" 吾勝永子	1
Cr-1-b	7247	"	" "	1
Fe-1-b	7246	"	" "	1
Eu-1-b	7258	"	RI 研修所	1
Pr-1-b	7287	1. 20	原研 体内放射能課 藤田 稔	1
Zn-1-b	7299	2. 20	八幡製鉄(株) 森 久	1
Ir-1-b	7300	"	" "	1
Fe-1-b	7301	"	" "	15
Pr-1-b	8026	2. 28	原研 体内放射能課 藤田 稔	1