

アイソトープ事業部製造部年報

No. 2

(昭和 43 年度)

---

1969 年 10 月

---

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

## アイソトープ事業部製造部年報

(昭和 43 年 4 月 ~ 昭和 44 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 43 年度中にあげた成果を総合して述べたものである。昭和 43 年度は昭和 42 年度 10 月に終了した第 1 期 5 ヶ年計画の成果を受けて、さらに製品数を増加し内容を充実することに力が注がれた。

とくに力説すべきことは、ラジオアイソトープ製品の年間を通じての安定した供給を実現するために、運転計画と生産計画とを合理的に組合せ、さらに外国炉による照射をも加えた出荷計画を完成した点である。

43 年度には Cu-64-2R, Br-82-2, Sb-124-1, Cs-134-1 の 4 種の新製品がカタログに追加された。そのうちの Cu-64-2R は製造部において Szilard Chalmers 効果の基礎研究から開始して開発された、世界でもはじめての技術によるものであり、多年の核医学会の要望に応えるものである。

これらの新製品も含めて 43 年度の第 1・四半期における出荷量は前年度同期の 65% 増となった。

JRR-2 の焼損事故は、この増勢を妨げたが、JRR-3 への切換えに鋭意努力し、前年度出荷量の 74% を確保することができた。

研究開発の面においても多くの進展がもたらされたが第 1 期 5 ヶ年計画の仕上げと新たな展開への準備が主となっておこなわれ、懸案の FP よりの短寿命 R1 製造技術の開発を開始するにいたった。また、台湾清華大学との共同研究も引き続いておこなわれ、その成果は 44 年 3 月 マニラにおいて開催された IAEA Study Group Meeting で、米、濠その他の出席各国に高く評価された。

施設、安全管理の面では、従来の経過を整理し、安全管理体制や手引の整備が実施された。とくに時間外における安全管理体制の整備につとめ、完成した。

1969 年 7 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 1968~March 1969)

## Synopsis

This annual report describes the achievements of the Division of Radioisotope Production, Radioisotope Centre, during the fiscal year of 1968.

The main yearly aim was the addition in the number of items and the repletion in the First Five Year Project which terminated at the end of October, 1967.

Among the results established in the fiscal year of 1968, the most important achievement was the starting of the scheduled shipment of products based on the yearly programme in order to attain the steady supplies through the year. This programme had been framed up by properly combining the radioisotope production schedule with the reactor operation schedule, and the attempt of the irradiation with a foreign reactor had been introduced during the scheduled shut-down periods of JRR-2 and JRR-3.

Four new items had been added to the list of products. These were Cu-64-2R, Br-82-2, Sb-124-1 and Cs-124-1 and Cs-134-1. Among these, Cu-64-2R was the most unique item produced with originally developed method by applying Szilard-Chalmers effect. It was also guaranteed by the medical people that the quality of this product could completely meet to the specification demanded for the medical use.

The shipped amount of radioactivities in the first quarter was 1.65 times of that of the corresponding period of the preceding year. Although this tendency of increment had been cut by the unscheduled shut-down of JRR-2, the total shipped amount could maintain the three quarters of that of the preceding fiscal year by trying to change JRR-2 irradiation for JRR-3 irradiation.

Many progresses were brought about in research and technical development works, too. In general, the main efforts were focused on putting a finishing touch to the First Five Year Project and making a preparation for the next plan. For example, the technical development work for the production of short-lived radioisotopes from fission products had been started. A part of results obtained in the international joint project with Tsin Hua University was presented to the IAEA Study Group Meeting at Manila on March 1969, and won a praise of participants.

The structure for safety control in Radioisotope Production Laboratory was investigated in order to improve its effectiveness, and the safety guides for the works in the laboratory were established. Especially, it was tried to organize the system of the safety control for the out of working time, and was succeeded.

July 1969

Division of Radioisotope Production  
Radioisotope Centre  
Japan Atomic Energy Research Institute

## 目 次

1. 概 説 .....	1	3.3 有機標識化合物の製造技術の開発 .....	39
1.1 概 説 .....	1	3.3.1 接触反応による有機標識化合物の製造技術の開発 .....	40
1.2 製造部の運営 .....	1	3.3.2 有機標識化合物の分析および放射能測定技術の開発 .....	41
1.3 成果の概要 .....	3	3.4 線源 RI 製造技術の開発 .....	42
1.3.1 43年度実行計画の大綱 .....	3	3.4.1 大線源製造技術の開発 .....	42
1.3.2 業務成果の概要 .....	5	3.4.2 特殊線源製造技術の開発 .....	43
1.3.3 研究開発成果の概要 .....	7	3.5 FP からの短寿命 RI 製造技術の開発 .....	44
1.3.4 ラジオアイソトープ製造における主な成果 .....	8	3.5.1 $^{99m}\text{Tc}$ , $^{132}\text{I}$ ジェネレータの調製 .....	44
2. 業務の成果 .....	9	3.5.2 燃料再処理工程における $^{131}\text{I}$ の挙動 .....	44
2.1 製造および出荷 .....	9	3.6 無機標識化合物製造技術の開発 .....	45
2.1.1 カタログ .....	9	3.6.1 $^{35}\text{S}$ 標識元素状イオウ製造技術の開発 .....	45
2.1.2 製造出荷計画 .....	10	3.6.2 標識化合物化学形同定法の開発 .....	47
2.1.3 製造出荷実績 .....	11	3.7 RI 検定技術の開発 .....	47
2.1.4 次年度製造出荷計画の作成 .....	11	3.7.1 $^{99m}\text{Tc}$ の絶対測定 .....	48
2.2 照 射 .....	16	3.7.2 高比放射能 $^{64}\text{Cu}$ 製品の化学検定法 .....	48
2.2.1 原子炉運転計画と使用計画の調整 .....	16	3.7.3 $^{198}\text{Au}$ 製品中のアルミニウムの定量 .....	49
2.2.2 照射実績 .....	16	3.8 RI 照射技術の開発 .....	50
2.3 製 造 .....	19	3.8.1 JRR-2, -3, -4 による照射技術の開発 .....	50
2.3.1 精製 RI と基準照射物質の製造 .....	20	3.8.2 JMTR による照射技術の開発 .....	52
2.3.2 特殊 RI の製造 .....	23	3.9 RI 製造研究 .....	52
2.3.3 有機標識化合物の製造 .....	23	3.9.1 ホットアトム効果の研究 .....	52
2.3.4 線源 RI の製造 .....	24	3.9.2 核反応の研究 .....	53
2.4 検 査 .....	24	3.10 そ の 他 .....	55
2.4.1 製品の検査 .....	25	3.10.1 中華民国清華大学との共同研究 .....	56
2.4.2 測定器精度の確認 .....	26	3.10.2 IAEA スタディ・グループ・ミーティングへの貢献 .....	56
2.5 出 荷 状 況 .....	26	4. 施設の整備と安全管理 .....	57
2.5.1 精製 RI の出荷状況 .....	28	4.1 施設の整備 .....	57
2.5.2 有機標識化合物の出荷状況 .....	30	4.1.1 施設の補修改修計画とその実施状況 .....	57
2.5.3 線源 RI の出荷状況 .....	30	4.1.2 そ の 他 .....	57
2.5.4 基準照射物価の出荷状況 .....	31	4.2 安全・施設管理 .....	57
2.6 試験依頼 .....	31	4.2.1 安全・施設管理体制 .....	58
3. 研究開発の成果 .....	32	4.2.2 安全・施設管理の運営 .....	58
3.1 RI 製造技術の開発 .....	32	4.2.3 安全・施設管理の実施状況 .....	59
3.1.1 $^{131}\text{I}$ 製造技術の開発 .....	32	付録 1. 年 表 .....	63
3.1.2 $^{32}\text{P}$ 製造技術の開発 .....	33	2. 昭和 43 年度口頭発表一覧 .....	65
3.1.3 $^{99m}\text{Tc}$ 製造技術の開発 .....	34	3. 昭和 43 年度刊行技術資料一覧 .....	65
3.1.4 $^{14}\text{C}$ 製造技術の開発 .....	35	4. 昭和 43 年度製造部運営資料一覧 .....	66
3.1.5 (n, $\gamma$ ) 反応により製造する RI .....	36	付図 ラジオアイソトープ製造棟概念図 .....	67
3.2 特殊 RI 製造技術の開発 .....	37	付表 1. 第 4 版カタログ一覧表(43年 6 月改訂) .....	69
3.2.1 高比放射能 $^{51}\text{Cr}$ 製造技術の開発 .....	38	2. 製品仕様一覧表 .....	72
3.2.2 高比放射能 $^{64}\text{Cu}$ 製造技術の開発 .....	39		
3.2.3 その他の特殊 RI 製造技術の開発 .....	39		

## Contents

<p><b>1. Introduction</b> ..... 1</p> <p>1.1 Introduction..... 1</p> <p>1.2 Operation of Division of Radioisotope Production ..... 1</p> <p>1.3 Outline of programme and achievement..... 3</p> <p>1.3.1 Fundamentals of executive programme of Division of Radioisotope Production in the fiscal yeay of 1968 ..... 3</p> <p>1.3.2 Outline of achievements in production business..... 5</p> <p>1.3.3 Outline of achievements in research and development on radioisotope production techniques ..... 7</p> <p>1.3.4 Main accomplishment in radioisotope production ..... 8</p> <p><b>2. Achievement in radioisotope production</b>... 9</p> <p>2.1 Production and shipping of radioisotope ..... 9</p> <p>2.1.1 Catalogue of 1968 edition ..... 9</p> <p>2.1.2 Yearly programme for production and shipping ..... 10</p> <p>2.1.3 Yearly record of radioisotope production and shipping ..... 11</p> <p>2.1.4 Yearly programme preparation for radioisotope production and shipping in 1969..... 11</p> <p>2.2 Irradiation business ..... 16</p> <p>2.2.1 Adjustment of reactor operation programme and radioisotope produc- tion programme ..... 16</p> <p>2.2.2 Yearly record of irradiation business for radioisotope production ..... 16</p> <p>2.3 Radioisotope production business ..... 19</p> <p>2.3.1 Production of processed radioisotope and irradiated unit..... 20</p> <p>2.3.2 Production of special radioisotope ..... 23</p> <p>2.3.3 Production of organic labelled compound..... 23</p> <p>2.3.4 Production of radiation source ..... 24</p> <p>2.4 Quality control business ..... 24</p> <p>2.4.1 Routine examination for radioisotope products ..... 25</p> <p>2.4.2 Routine check of instrument for products examination ..... 26</p> <p>2.5 Shipping of radioisotope products ..... 26</p>	<p>2.5.1 Shipping of processed radioisotope..... 28</p> <p>2.5.2 Shipping of organic labelled compound...30</p> <p>2.5.3 Shipping of radiation source ..... 30</p> <p>2.5.4 Shipping of irradiated unit..... 31</p> <p>2.6 Utility test of products..... 31</p> <p><b>3. Achievements in research and development</b> ..... 32</p> <p>3.1 Development of radioisotope production techniques..... 32</p> <p>3.1.1 Progress in production techniques development for iodine-131..... 32</p> <p>3.1.2 Progress in production techniques development for phosphorus-32..... 33</p> <p>3.1.3 Development of technetium-99m production techniques ..... 34</p> <p>3.1.4 Progress in production techniques development for carbon-14 ..... 35</p> <p>3.1.5 Development of production techniques of some (n, <math>\gamma</math>) products ..... 36</p> <p>3.2 Development of production techniques for special radioisotope ..... 37</p> <p>3.2.1 Progress in production techniques development for chromium-51 of high specific activity ..... 38</p> <p>3.2.2 Progress in production techniques development for copper-64 of high specitic activity ..... 39</p> <p>3.2.3 Development of production techniques for some special radioisotopes..... 39</p> <p>3.3 Technical development for preparation of organic labelled compound..... 39</p> <p>3.3.1 Progress in development of prepara- tion techniques for labelled compound by catalytic reaction ..... 40</p> <p>3.3.2 Progress in development of radio- and chemical-assay techniques for organic labelled compounds..... 41</p> <p>3.4 Technical development for production of radiation source..... 42</p> <p>3.4.1 Progress in technical development for multicurie radiation source ..... 42</p> <p>3.4.2 Progress in technical development for special radiation source ..... 43</p> <p>3.5 Technical development on production</p>
--	--

techniques for short lived radioisotopes from fission products.....	44	3.10.1 International collaboration with National Tsin Hua University of Republic of China .....	56
3.5.1 Preparation techniques for technetium -99m and iodine-132 generator .....	44	3.10.2 Contributions to IAEA Study Group Meetings .....	56
3.5.2 Chemical forms of iodine-131 in various steps of fuel reprocessing procedure .....	44	4. Management of production facilities and safety control .....	57
3.6 Technical development for preparation of inorganic labelled compound .....	45	4.1 Adjustment of production facilities .....	57
3.6.1 Preparation technique of sulfur-35 labelled elementary sulfur .....	45	4.1.1 Programme and execution on repair and improving of production facilities in 1968 physcal year.....	57
3.6.2 Development of chemical form identification for inorganic labelled compounds .....	47	4.1.2 Others .....	57
3.7 Development on examination techniques for radioisotope products .....	47	4.2 Safety and facilities control .....	57
3.7.1 Absolute measurement of technetium-99m .....	48	4.2.1 Oragnization for safety and facilities control in 1968 physcal year .....	58
3.7.2 Chemical assay of copper-64 of high specific activity .....	48	4.2.2 Operation of safety and facilities control system in 1968 physcal year...	58
3.7.3 Determination of aluminium in gold-198 product .....	49	4.2.3 Execution of safety and facilities control in 1968 physcal year .....	59
3.8 Technical development on irradiation techniques in radioisotope production work .....	50	<b>Appendix 1.</b> A chronological table of the physcal year of 1968.....	63
3.8.1 Progress in irradiation techniques development with JRR-2, JRR-3 and JRR-4 .....	50	2. A list of oral presentations on scientific works during the physcal year of 1968 .....	65
3.8.2 Progress in irradiation techniques development with JMTR.....	52	3. A list of scientific and technolo- gical reports published in the physcal year of 1968.....	65
3.9 Research for radioisotope production.....	52	4. A list of executive materials in the physcal of 1968 .....	66
3.9.1 Studies on hot-atom effect usable for radioisotope production .....	52	<b>Supplement of figure</b> A floor plan of radioiso- tope production laboratory .....	67
3.9.2 Studies on nuclear reaction usable for radioisotope production .....	53	<b>Supplement of table</b>	
3.10 Miscellaneous.....	55	1. Catalogue of radioisotopes-Forth Edition- (June, 1968) .....	69
		2. A compilatory list of the speci- fications of the products .....	72

## ま え が き

本報は「アイソトープ事業部製造部年報 No. 1 (昭和 42 年度)」JAERI 5020 につづいて昭和 43 年度の製造部の活動を記録し、かつ公開することを目的として編集された。

昭和 43 年度は、昭和 42 年度に完了したラジオアイソトープ第 1 期 5 ヶ年計画の成果をさらに充実・拡大することを最大目標として出発した。

この目標は、JRR-2 の焼損事故により達成できなかったが、製造部と研究炉管理部の緊密な協力によって、JRR-3 による定常照射、JRR-4 による緊急支援照射を実現し、また外国炉による照射を実施するなどして、生産量の減損を最小限に止めることができた。

一方、ラジオアイソトープ製造棟の整備と、施設管理および安全管理の体制の整備についても格段の努力が払われ、事故のない職場という理想へ着実に前進することができた。

本報中では、これらの成果をできるだけ簡明にまとめるように心がけたが、意を尽さない点多々あることと思われる。大方の御意見によってより完全なものにしたいと考えている。

## 1. 概 説

### 1.1 概 説

昭和 37 年は研究炉, ラジオアイソトープ (以下 RI と略す) の製造にとって記念すべき年であった。その年の 4 月, JRR-2 の 90% 濃縮ウラン燃料による臨界実験に成功し, 続いて 9 月 JRR-3 の臨界に成功した。また 6 月 JRR-1 を使って初めて国産 RI を頒布した年であった。この年に JRR-3, JRR-2 を主生産炉として RI の国産化をおこなうため第 1 期 5 ヶ年計画を設定した。その後この計画を実現するため心をついにして営々と努力し第 1 期計画を昨年度終了した。この間に 2,925m<sup>2</sup> の RI 製造棟の建設, 生産施設の設置, さらに最終年度に 4,500 Ci の大量処理に成功し, 35 点に及ぶ製品数を準備することができた。(「生産第 1 期 5 ヶ年計画実行報告-43 RI 製資料 6 参照」)

昭和 43 年度はこの成果をもとにしてさらに製品数を増加して内容を充実するとともに生産の実をあげ第 1 期計画の成果を実現化する輝かしい第 1 年目であった。

このため年間生産計画を定め RI の供給の実をあげるため年 47 週の年間出荷計画表を定めた。研究炉管理部と接衝し JRR-2, JRR-3 の交互運転による年間安定生産を軸とし, 下期の JRR-2 の下段プラグ修理のさいは新たに JMTR によって Au-198 ならびに Ir-192 線源の生産をおこない, 運転計画と生産計画とを合理的に組み合わせよう配慮した。さらに国外炉による照射を加えて年間一定した出荷がおこなえるようにした。これによって新たに 7 月より P-32, I-131 の年間出荷契約, Ir-192 線源の倍増産など画期的な出荷計画をたてることができた。これを「昭和 43 年度におけるラジオアイソトープ供給に関する計画書」にまとめ 6 月 10 日第 11

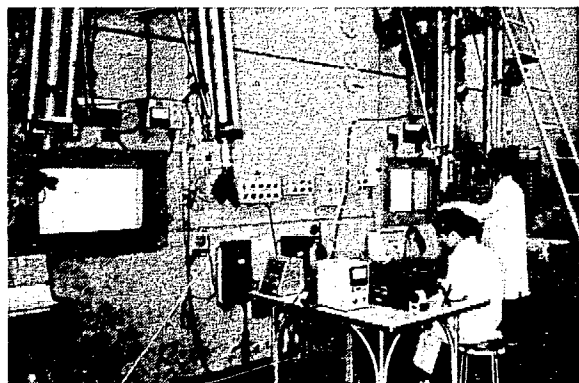


Photo 1.1 RI 製造棟のホットケープにおける Ir-192 線源の製作用業。昭和 43 年度においては同線源の生産量の倍増を計画実施した。

回理事会議の了承をうるにいたった。

6 月に Cu-64-2R, Br-82-2, Sb-124-1, Cs-134-1 の新製品を加えることができた。前 2 者は核医学において要望される高比放射能製品であり, とくに Cu-64-2R は Szilard-Chaimers 法を応用し量産化に成功した製品である。第 1 四半期はこの計画にそって順調に進展し RI 処理量および出荷量は前年同期に比してそれぞれ 35%, 65% の増加を示した。

しかし 7 月 12 日 JRR-2 の焼損事故が発生し, 下段プラグ修理を含めて 7 ヶ月間運転を停止した。その後 12 月より運転予定の JMTR はプールの水漏れのため年度内運転を停止し, さらに JRR-3 は 7 本の燃料破損のためついに 13 サイクルを停止するなど不慮の出来事が続出した。このため P-32, I-131 の契約出荷, Ir-192 線源の出荷など本年度の新規領布計画はことごとく放棄せざるをえない結果となった。これは RI の国産化の推進に大きな痛手であった。しかし, 出荷を維持するための多くの努力が払われた。JRR-3 は 8 月より翌年 1 月まで 1 サイクルあたりの運転時間を 240 時間より 288 時間に延長し, JRR-4 による短寿命 RI の生産がこの欠如を補うのに非常に役立った。この結果前年度の出荷量の 74% を確保することができた。

RI の製造にとって課せられた使命は生産・出荷によって国産化の実をあげるだけでなく, 大量の放射性物質を高度に精製加工する技術と検査技術の育成, RI 製造研究開発をおこなうことにもある。この点については本年度も地味であるが着実な進歩を築くことができた。Co-60 大線源の製造計画の討議, FP からの短寿命 RI の製造技術開発の新テーマの設置は RI の製造の将来への進展をうながすものである。また有機, 無機標識化合物合成のための新しい試みもその一つであろう。Szilard-Chalmers 効果による高比放射能 RI の量産化に成功したことは大きな喜びであった。これは絶えざる努力と基礎からの積み重ねの後に到達したものであって, 各国が疑問視していたものであるため意義深い。また放射化学第 2 研究室との共同研究の核分裂生成物の絶対収率に関する研究も実験を終了し, 多くの成果をえつつある。台湾清華大学との共同研究は第 2 年目を迎えすでに成果をえつつあるが, 来年度完了の予定である。

### 1.2 製造部の運営

製造部の組織は昭和 42 年度において新たに次長の席を設け, 製造技術課検査係を検査課に昇格させるなど一



TABLE 1.1 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 および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 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	① 精製 RI の製造技術の開発に関すること。 ② 無機標識化合物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。 ② RI 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志統一、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。必要により建物別に委員をおくことができる。	
	共通器材委員	製造部の器材室の運営に関すること。必要により建物別に委員をおくことができる。	
	教育委員	製造部の教育訓練に関すること。2名以上の委員をおく。	
	厚生行事委員	製造部の行事ならびに所の厚生行事に関すること。	
	レクリエーション委員	旅行、その他レクリエーションに関すること。	

連の組織の強化に努めてきた。本年度において、製造課ならびに検査課に専任課長を配置することによって各課の業務実施能力を高めるとともに、次長を生産施設担当のスタッフとしての業務に専念できるよう配慮した。さらにスタッフとして事務担当部付を配置することによって充実を図り、5ヶ年計画の成果の具現化という製造部の目的達成のための実行体制を着々と進めてきた。

43年度の組織および分掌は TABLE 1.1 に示すとおりである。この組織は運営会議、部内会議によって審議され運営された。運営会議は部長、次長、各課長および生産事務係長（年度後半は事務担当部付）によって構成される部の決定機関としての機能を持ち、製造部運営の重要事項の決定にその責務を果たしてきた。運営会議は毎週1回は必ず開催することを原則として、本年度は第250回より第298回にいたる48回の会議が開催された。部内会議は係長以上および各代表委員によって構成される会議で、毎月1回は開催され、運営会議の決定事項の伝達の場合とし、また各課に共通する議案討議の機関として製造部の運営に大きく貢献してきた。

製造部を運営するうえで施設全体を効率的かつ安全に運転することは不可欠の条件であり、また衛生面の配慮も大切な要件である。したがって施設管理と安全衛生管理は重要な事項として特記されなければならない。43年度においては前年度に引き続き安全担当者を任命するとともに、安全管理業務遂行にあたってはラインによる実施に重点をおく方針を打ち出し、実行は係単位として係長が掌握する旨を明らかにした。施設管理を含めた安全・衛生管理は本年度にはいって格段の進歩をとげた。

施設を本格的に運転して RI 生産に全力をあげるためには、原子炉の協力なくしては考えられない。このため原子炉との関係をより密にする必要があり、前年度に引き続き照射担当を任命し、研究炉管理部との連絡にあたらせるとともに毎月1回の定例会議を開催して画期的な前進を図ってきた。このため照射担当の任務は誠に重大な年であった。企画室主催による材料試験炉部との月1回の定例打合せも昨年度に引き続き順調に開催された。

その他の担当課長および委員制度は前年同様に運営され、それぞれの成果をあげつつある。担当者および委員

一覧は TABLE 1.2 に示すとおりである。丹羽前理事長は6月に任期満了となり宗像理事が新理事長に任命された。中井前担当理事は東海研究所長に専任するため、9月2日より新理事長が事業部を担当した。さらに翌年2月1日山崎理事が新任され同月5日より事業部を担当した。

10月1日現在における人員配置は TABLE 1.3 に、研究嘱託の一覧は TABLE 1.4 に示した。43年度中の人員の異

動は TABLE 1.5 に示したが年度末人員は53名であった。(1名欠員)

本年度も職員の技術養成、教育訓練には大きな努力をばらってきた。RI 研修所基礎課程4名、フォークリフト運転技能講習会2名、クレーン玉かけ技能講習会6名、英会話講習会3名、MTP 管理者訓練2名、中堅職員訓練1名とそれぞれ派遣した。このほか第1種放射線取扱主任者資格を得るための講習会を開き、5名の資格取得者を得た。また危険物取扱主任者(甲)1名、(乙)1名の資格を取得した。

TABLE 1.2 43年度担当課長ならびに委員一覧表 (担当課長)

区 分	部 担 当	課担当者または補助者		
		製 造 課	製 造 技 術 課	検 査 課
生産・施設	望 月	/	/	/
技 術	天 野	/	/	/
庶 務	斎 藤	/	/	/
安全・衛生	鈴 木	保 泉 (研究棟)		
		山 本	久 保 田	田 中
照 射	伊 藤	立川, 中村		
技 術 資 料	天 野	四 方		

(スタッフ) 委員

区 分	代 表 委 員	委 員
図 書	馬 場 (澄)	高 橋
共 通 器 材	井 口	佐 藤
教 育	小野寺 斎藤(見学担当)	石 川
厚 生 行 事	山 林	
レクリエーション	館 盛	工藤, 加藤 (峯), 本石, 武藤

1.3 成果の概要

1.3.1 43年度実行計画の大綱

昭和43年度は、前年度に終了したラジオアイソトープ製造第1期5ヶ年計画の開発成果を実現することにあ

TABLE 1.4 研究嘱託一覧

氏 名	所 属	委 嘱 テ ー マ
後藤秀烈	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 (722-1-2) 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 銀	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)
吉原賢二	東北大学 理学部助教	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)

(43. 10. 1 より)

TABLE 1.3 製造部人員表 (43年10月1日)

製 造 部	53 (常臨1)	部 長 柴 田 次 長 望 月 部 付 斎 藤 (課長代理待遇)
製 造 課	26 (常臨1)	課長 伊 藤 課長代理 保 泉
製 造 第 1 係	6	係長 (兼) 伊 藤 山木, 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	2	係長 (兼) 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	4 (常臨1)	沼田, 田沼, 高田, 島根, 鈴木 (常臨)
製 造 技 術 課	16	課長 天 野 (兼) 夏目 (放化第2研究室長)
研 究 係	3	馬場 (宏), 馬場 (登), 工藤, 楊 (協力研究員)
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, 加藤
検 査 課	8	課長 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	3	係長 (兼) 鈴 木 大久保, 照沼, 上沖

TABLE 1.5 人員異動表

項目	氏名	年月日	所属	備考
採用	鈴木辰雄	43. 4. 16 付	生産事務係	常用用員
	瀬谷恵子	43. 4. 1 付	"	臨時用員
配属	斎藤春美	43. 6. 11 付	部付(課長代理待遇)	高崎研庶務課より
異動	成井正夫	43. 7. 11 付	—	大洗研庶務課へ
任命	田中吉右	43. 7. 1 付	副主任研究員	製造技術課
	伊藤太郎	43. 11. 16 付	製造課長	
	保泉澄	43. 11. 16 付	製造課課長代理	
	鈴木恭平	43. 11. 16 付	検査課長	
退職	吉原賢二	43. 9. 30 付	—	東北大学理学部へ
	高田佳主子	44. 3. 31 付	—	
研修生	Dr. G. Tóth	43. 6. 20 ~	技術 1, 2 係	IAEA 研修生
実習生	美間坂立国	43. 8. 5~43. 8. 31	特殊アイソトープ係	都立大 水戸職業訓練所
	酒井正男	43. 10. 7~44. 2. 28	"	
共同研究	葉錫溶	44. 8. 16~44. 10. 8	製造技術課	台湾清華大学原子科学研究所(副所長)
	陳金燦	"	"	同上研究所
	陳在豊	"	"	"
協力研究員	楊末雄	~ 44. 3. 22	—	東北大学理学部へ
外国出張	天野 恕	43. 5. 29~43. 6. 15	—	IAEA 主催 Study Group Meeting (オーストラリア)
	天野 恕	44. 3. 15~44. 3. 24	—	IAEA 主催 Study Group Meeting (フィリッピン)

る。このためには原子炉の運転計画と生産計画とを合理的に組立てることが必要である。実行計画の策定に先立って RI 製造における原子炉運転に対する次のような考え方を研究炉管理部に示した。

#### 1. RI 生産と原子炉運転 (43 年 2 月)

日本原子力研究所におけるラジオアイソトープの生産は、製造施設の整備にしたがい、次の段階、「生産頒布の実」をあげる時期を迎えつつある。

頒布の実績をあげるため、これを担当している事業課は年間安定した供給を期待している。この内容は大略次のごときものである。

	主な生産核種	半減期	出荷頻度	貯蔵可否
精製 R I	短半減期 RI	8 日以下	毎週	不可
	Au-198	2.7 日	"	"
	I-131	8 日	"	2 週間内
	P-32	14 日	月 2 回	4 週間内
線源	中長寿命 RI	50 日以上	任意時	一般に 1 半減期内
	S-35	87 日	"	3 か月内
線源	Ir-192	74.5 日	年 3 回	不可
	Co-60	5.3 年		可

これらのラジオアイソトープを上記の表の頻度で生産することは、原料—原子炉で照射されたもの—の供給が円滑であれば製造設備の用意はすでに整っており、需要はかなり安定していると観察されるばかりでなく、Au-

198 にみられるごとく国産化により需要の増大が期待される傾向がある。したがって、「生産頒布の実」をあげるためには、原子炉よりの原料の供給と出荷頻度との調整が主要な問題であると思われる。これは、特に上表に示すごとく主生産品目の多くが半減期 14 日以内の比較的半減期の短く、貯蔵が不可能または暫時の間に限られていることがその主な理由である。また、これら製品の品質は原子炉に支配され、一般には運転時間の延長により、良い品質の製品をもたらすことになる。

以上の観点より、原子炉の運転について次のごとく考える。

#### (1) JRR-2, JRR-3 の交替運転制

すでに生産し、または開発しているラジオアイソトープの生産は、主生産炉である JRR-2, JRR-3 に適合した製造方法、施設機器の設置がなされているので、この両炉に期待せざるをえない。

したがって、将来本格運転のための第 1 次目標としてこの体制をすすめていただきたい。この実行に際しては、

a) 年間稼働率を上昇し、年 47 週のサービスをおこなえる交替運転体制の確立。(42 年度 39 週)

b) JRR-2 または JRR-3 のいずれかの停止時における代替運転体制の確立。

c) 照射中の取出設備の拡充。

を考慮することが必要である。またこのためには、

JRR-4 の支援が必要である。交替運転の実施については、週はじめの出荷（特に強く要望されている）に影響を与えないため、運転交替時における高出力の保持が必要である。

(2) JMTR によるアイソトープの生産

JMTR により Co-60 の高品質の大線源ならびに C-14 など JRR-2, JRR-3 では、生産が不可能または不利なアイソトープの生産を主体におこなう。このためには、年間稼働率の高いことが必要である。

一方、近年アメリカを中心として、ラジオアイソトープの需給状況は非常に変化してきており、この影響が近い将来、日本にもちきたされることと考える。そのために JMTR に、将来かなりのスペースを期待している。

2. 本年度 RI 生産指針

この考え方を基本として、43 年度原子炉運転計画について次のごとく RI を生産する方針を策定した。同運転計画では JRR-2 は 12 月以降下段プラグ修理のため停止し、JMTR は 12 月より試用期間に入る予定となっていた。

方針

- (1) 主要生産項目は、JRR-2, JRR-3 いずれによっても生産をすることができるようにする。  
特に I-131, P-32 について考慮する。
- (2) Au-198, 短寿命 RI の生産は、JRR-2, JRR-3 のほかに JRR-4 に期待する。
- (3) Ir-192 の生産は、JRR-2 のほかに JMTR に期待する。
- (4) 主要 RI 生産計画

核種	月	
	4 月 ~ 11 月	12 月 ~ 3 月
I-131	R-3 R-2 生産化	R-3
P-32	R-2 R-3 生産化	R-3 国外照射または輸入
S-35	R-3 R-2	R-3
Au-198 短寿命 RI	R-3 R-2	R-3 R-4 (武蔵工大炉)
Ir-192 線源	前 4 cycle 後 4 cycle 倍量	JMTR
Co-60 大線源	R-3 VC 孔改造	R-3 試作

短寿命 RI 生産のため、JRR-4 または武蔵工大炉を補充照射として使用しようとしたが、武蔵工大炉は照射

実験の結果、原研の製品仕様に達しなかったため、この計画を放棄した。

3. 昭和 43 年度実行計画大綱

以上述べたごとく、原子炉の運転計画と十分調整をおこなったのちに示すごとく実行計画を定めた。

前年度に終了した第 1 期計画における成果をもとにし、「生産頒布の実」をあげるよう努力する。このため、原子炉運転計画と出荷計画の調整につとめ、JRR-4, JMTR, 必要により国外照射などの助力を得て JRR-2 の年度後半の運転停止による安定供給の欠如の対策を講ずる。

第 2 期計画における大線源の製造開発については、研究炉管理部、高崎研究所と協力のもとに JRR-3 による試験製造に着手する。

検査ならびに大線源の製造開発の人員を充実し、以上の実行体制を確立する。

実行に際しては、次の諸点に留意する。

- (1) 主要生産品目は主に医療用に用いられるものであり、人体に使用するためさらに純度を高度化するための技術を確立する。また核医学会より多年の要望である Tc-99m, Hg-197 などの製品化をおこなう。
- (2) 本邦独自の技術による生産品目である特殊アイソトープ、とくに、核医学会の要望品目、高比放射能の Cr-51, Cu-64, Zn-65 などの生産ならびに開発をおこなう。
- (3) 前年度に引き続き、台湾との共同研究を夏季におこない、IAEA による国際協力の実をあげる。

1.3.2 業務成果の概要

年度はじめ年 47 週のサービスをおこなう出荷計画表を作成し、これに基づいて生産を実施した。新製品として Cu-64-2R, Br-82-2, Sb-124-1, Cs-134-1 を 6 月カタログに掲載した。Cu-64-2R は Szilard-Chalmers 効果による製品で、核医学の要望により Cu-64-1 の製品より比放射能を高くし化学形を酢酸銅としたものである。Br-82-2 は核医学の要望により比放射能を高くするため、Br-82-1 のターゲット臭化アンモニウムを臭化カリウムとし、化学形は臭化ナトリウム水溶液とした。Sb-124-1, Cs-134-1 はいずれも長寿命 RI である。

第 1 四半期は施設の運転、出荷は前年度を大幅に上まわり、RI の本格生産の初年度として順調な出発を開始した。7 月 12 日、JRR-2 の焼損事故がおこり、予定されていた修理を含め 44 年 1 月まで運転は不可能な結果となった。さらに JMTR はプールの水漏れのため年度内運転を中止することも判明した。このため期待されていた P-32 の量産は不可能となり、Ir-192 線源は、焼損当時照射中のもも品質仕様が規格に達せず、2 個をもって 1 個分とするなど頒布のため多くの努力がなされたにもかかわらず、多くは返品となり頓挫をきたした。こ

の損失を防止するため、JRR-3 の運転時間を第4サイクルより第9サイクルまで1サイクル240時間より288時間に延長し、短寿命RIの生産のため新たにJRR-4の照射を開始し、出荷計画表の再編成をおこなった。Au-198はJRR-3によって1サイクルに2回出荷し、その残余をフランスのサックレー研究所で照射し、供給を確保することができた。I-131はJRR-3による量産をおこなったが、原子炉による供給の不安、供給量の不足と需要者の国外提携接衝中のため長期契約をはたすことができなかった。その他のRIについて上記JRR-3、JRR-4の努力によって例年の量を確保することができた。しかし年度はじめに予定したその他の新製品(Hg-197, Hg-203, Eu-155, Se-75 および Tc-99m)の頒布を実現することはできなかった。このうちTc-99mは核医学に大量に使用されるRIである。これを生産するため、JRR-3で照射した低比放射能のMo-99よりTc-99mを分離生産する方式を確立することができたが、Tc-99mの供給量が少なく、また短寿命のため出荷輸送に問題があり、供給を実現することができなかった。その他の新製品はすべてJRR-2での照射のため延期せざるをえなかった。

その後、P-32についてはGETRの照射ターゲットより生産する試験に成功し、2月より量産にはいることができた。JRR-3は使用中の2次燃料より7本の破損燃料をだし、ついに13サイクルは運転を中止するにいたった。

#### (1) 精製ラジオアイソトープの製造

大需要RIのうちI-131は第1四半期にJRR-2による試験製造に成功し、JRR-2、JRR-3の併用による量産を開始しようとしたが、JRR-2の運転停止により実行できなかった。その後JRR-3で生産し、年間21バッチ83,000mCiの生産をおこない、還元剤を含まない新製品の開発に成功した。P-32は7月より翌年1月までJRR-2の停止により、GETRの照射ターゲットによる2回の試験製造に成功し、12バッチ48,000mCiの製造をおこない、予定より遅れたが2月より計画量産にはいった。S-35は10バッチ5,300mCiを生産し、全国需要にこたえた。Au-198はCEAによる8回の海外照射を含めて39バッチ560,000mCiの製造をおこない、安定した供給をおこなった。

短寿命RIは、Na-24-2 32バッチ、K-42-2N 4バッチ、K-42-2 28バッチ、Cu-64-1 11バッチの見込生産と、Mn-56-1、As-76-1 各1バッチ、Y-90-1、La-140-1、Sm-153-1 各2バッチ、Br-82-2 3バッチ、Lu-177-1 4バッチの注文生産をおこなった。製造量は、合計90バッチ15,000mCiであった。

中寿命においてはRb-86-1 1バッチ35mCiの注文生産をおこなった。

長寿命RIについては、Ca-45-1、Co-60-1、Zn-65-

1、Ag-110m-1、Cs-134-1、Tl-204-1 各1バッチ、Sb-124-1、Tm-170-1、W-185-1 各2バッチ、合計12バッチ930mCiの見込生産をおこなった。

以上合計183バッチ720,000mCiの製造をおこなった。42年度は198バッチ360,000mCiであった。バッチ数が前年度より下まわっているのは、原子炉の運転事故によるものである。製造量が約倍量になっているのは、大需要RIの量産化を試みたためである。

#### (2) 基準照射物質の製造

Ce-1 12単位、Ir-1 6単位、Tc-1 4単位、Mo-1、Pr-1 各2単位、Ge-1 1単位、計27単位の注文生産をおこなった。これは前年度の32単位よりやや低い生産であった。

#### (3) 特殊ラジオアイソトープの製造

特殊RIについて、Cu-64-2Rは8月より15mCi/バッチで見込生産を開始し、11月後半より25mCi/バッチに製造量を増加した。4バッチ330mCiの製造をおこなった。Cr-51-2Rは、注文生産より44年2月に30mCi/バッチの見込生産に切換え、8バッチ1,000mCiの製造をおこなった。P-32-2R、Cs-132-1Aの受注はなかった。

#### (4) 有機標識化合物の製造

メタノール-C-14 40mCiを製造し、入庫中の製品の再精製をおこない30mCiを再入庫した。

#### (5) 特殊線源の製造

Co-60針状線源については、JRR-3のVG、VR孔を用い、CNB-1 2件1,500mCi、CNB-2 2件2,700mCi、CNB-3 2件1,200mCi、CNB-4 1件11,000mCi、計7件16,000mCiの生産をおこなった。

Ir-192線源については、年度はじめ74箇出荷し、需要量に満たないため、炉管理部の協力により倍量の照射を試みたが、JRR-2の照射中の運転停止により仕様規格に達せず、一部の出荷をみたとどまった。製造量は4件1,800,000mCiであった。

#### (6) 製品の検査

精製RIについては、頒布製品25核種、試験製品7核種の計238製品について、総検定項目1,010件の検定をおこない、規格に合格していることを確認し仕様書を発行した。

有機標識化合物3製品7検定項目について検定をおこない、規格に合格していることを確認した。

特殊線源については、Co-60針状線源2,597件、Ir-192線源について766件の検定をおこなった。

以上の検定中には、海外照射による製品P-32-1、Au-198-1、JRR-4照射による製品Na-24-2、K-42-2、Cu-64-1があったが、いずれも良好な製品であることが確認された。

#### (7) 出荷

JRR-2の7箇月の運転停止、JMTRの運転の延期、

JRR-3 の 13 サイクルの停止など原子炉運転の大幅減少があったが、JRR-3 の運転時間の延長、JRR-4 の使用、海外照射など多くの努力によって、(2)に示すごとく 1,290,453 mCi、基準照射物質 27 単位を出荷することができた。前者は前年度の 74% に相当する量である。

#### (8) 試験依頼

本年度は試験依頼を行なわなかった。

#### 1.3.3 研究開発成果の概要

新たに FP からの短寿命 RI の製造技術の開発テーマをおこし、第 2 期計画として FP からの有用 RI の製造の開発研究を行なった。また、JRR-3 による低比放射能 Co-60 の製造開発は JMTR による Co-60 大線源の製造計画に発展し多くの討議が行なわれた。

長年開発を行ってきた Szilard-Chalmers 効果による高比放射能 RI を実用化し量産するため多くの努力を払い、Cu-64-2R、Cr-51-2R の見込生産に成功した。

#### (1) 精製ラジオアイソトープの製造技術の開発

JRR-2 の運転停止により、 $^{197}\text{Hg}$ 、 $^{203}\text{Hg}$ 、 $^{155}\text{Eu}$ 、 $^{75}\text{Se}$  の製品化を延期せざるをえなかったが、JRR-4 の照射開始を促進し、これによって同炉による短寿命 RI の生産の開始をみるにいたった。この際えたプール型原子炉の照射技術は JMTR の照射技術と関連し、多くの技術上の成果を与えた。

酸化モリブデンより  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を製造開発する研究は、予定通り短期間のうちに完成させることに成功したが、地理的条件のため非常に短寿命な RI の頒布に困難があり、実用化を延期せざるをえなかった。これは、JMTR によって実用化が期待される。

JMTR によって  $^{14}\text{C}$  を製造するための技術開発を行なった。このため、窒化アルミニウムの照射分解試験、照射用カプセルの開発、窒化アルミニウムからの炭素の回収、純度の検討などを行なった。また  $^{131}\text{I}$  の乾留法による製造開発については、新方法の開発に重点をおき興味ある知見を得つつある。

#### (2) 特殊 RI 製造技術の開発

Cu-64-2R、Cr-51-2R の量産化の確立に全力を集中し、ついに Cu-64-2R は 8 月より 15 mCi/バッチの見込生産を開始し、さらに 11 月より 30 mCi/バッチの増産に成功した。Cr-51-2R は 1 月より 30 mCi/バッチの見込生産にはいることに成功した。とくに前者は化学収率を 15% から 50% に、処理時間を 20 時間から 4.5 時間にするなど画期的な成功を収めた。Szilard-Chalmers 効果による高比放射能製品の量産化は各国で疑問視されていたが、ここに確立することに成功した。

#### (3) 有機標識化合物製造技術の開発

前年度より継続のアセチレンよりベンゼンを合成する高圧接触反応による方法の技術的検討を終了した。新たに同方法によるアセチレンよりエチレン、エチレンオキ

サイドの合成法の開発を開始した。

標識化合物の分析測定法であるラジオガスクロマトグラフ法の開発について、東京大学島村研究室と協力研究を開始し、次年度に継続の予定である。

#### (4) 線源ラジオアイソトープ製造技術の開発

$^{192}\text{Ir}$  密封線源を製造するための密封化装置などの開発を終了し、試験の結果実用化しうる見通しをえた。

JRR-3 による  $^{60}\text{Co}$  線源の製造開発のため、高崎研究所と打合せ、10 mmφ のアルミニウム被覆ターゲットの試作をおこなった。本年度改造を終了した JRR-3 の VC 孔で来年度照射を行なうため、被覆効果比較用のニッケルメッキ線源を作り、また中性子束分布の測定、線源の自己しゃへい効果、カプセル内のつめ合せ効果などの検討を行なった。

#### (5) FP からの短寿命 RI 製造技術の開発

FP より短寿命 RI を分離する連続分離法を確立し、ケーブル内で操作する第 1 次装置を組立て、その試験を開始した。

#### (6) 無機標識化合物製造技術の開発

$^{35}\text{S}$  標識化合物として単体  $^{35}\text{S}$  の製造法の開発を行ない、これを確立した。とくに、還元法に木羽法を採用し還元過程における担体量の影響を検討の結果、高い収率をうることができた。

#### (7) RI 検定技術の開発

放射能の検定技術では、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の測定は  $4\pi\beta$  測定に効率トレーサ法を利用し  $\gamma$  線測定と併用して精度よく測定しうる方法を確立した。また  $^{197}\text{Hg}$ 、EC 核種  $^{64}\text{Cu}$  の測定法の確立につとめ、軟  $\beta$  測定の準備などをおこなった。

化学検定技術では、Co-60-1、Sb-124-1、Cs-134-1 製品の化学検定法を確立し、 $^{198}\text{Au}$  製品中のアルミニウム分析法を定めた。また発光分光分析法を用いて金ターゲット中のパラジウム、白金のマイクログラム量の定量、ポーラログラフ法による Cu-64-2R 製品中の銅、鉄の同時定量法などを確立した。これらはいずれもただちに製品検定法として実用化された。

#### (8) RI 製造研究

RI 製造に有用なホットアトムの研究では、フタロシアン銅、亜鉛、インジウムについて結晶粒度の影響、イオン結合性の高い場合のホットアトム効果、ホットアトム効果の開始エネルギーの検討など多くの知見をえた。このテーマに活躍した吉原賢二副主任研究員(理学博士)は 10 月東北大学理学部に転職した。

RI 製造に有用な核反応の研究では、放射化学第 2 研究室と長年にわたっておこなってきた核分裂生成物の絶対収率を求める研究は、測定精度の再検討を最終実験として全実験を終了した。この結果をまとめて絶対収率より質量分布曲線を求め、この説明および most probable charge の systematics に従来より高次の解析法をうるこ

とに成功した。

#### (9) 大線源製造計画と将来計画

JRR-3 による線源の製造計画は、さらに近く運転の予定される JMTR による  $^{60}\text{Co}$  大線源製造計画に発展した。この計画は「Co-60 大線源の製造開発」(43RI 製資料 4) に収録された。さらに理事会ならびに原子力局と接触がくりかえされ、この経過を「Co-60 大線源の製造開発説明資料」(43RI 製資料 5) に収録した。このほか部内で長期計画を検討(43RI 製資料 8 参照)し、所の長期計画立案のための作業をおこなった。

#### (10) 台湾清華大学との共同研究その他の国際交流

昨年度に引続き夏季清華大学との共同研究をおこなった。JRR-3 を使用してクロム酸塩の低温照射により結晶水、対イオンの影響を測定し、来年度完了の予定である。清華大学よりの協力研究員楊末雄は、2年9ヶ月の原研での研究成果をまとめ、学位論文を作成するため東北大学に3月出発した。G. Tóth (Hungary) は、IAEA 研修生として6月より「Separation of fission product I-129 from spent reactor fuel by adsorption method」の研究に従事し、44年2月研修期間を延期した。

### 1.3.4 ラジオアイソトープ製造におけるおもな成果

(1) 本年度は昨年度に終了した5ヶ年計画の成果にもとづき、生産に大きな発展が期待されたが、多くの努力にもかかわらず初期の目的を達することができなかった。

本年度は  $^{32}\text{P}$  の国産化、 $^{131}\text{I}$  の量産化、 $^{192}\text{Ir}$  の増産、中長寿命 RI の出荷量の増加などが所内外に期待されていたが、JRR-2 の停止、JMTR の運転開始の延期、さらに年度後半よりの JRR-3 の燃料破損によってこれらの目的は達せられなかった。しかし、このような条件にもかかわらず、JRR-4 の照射、アメリカ、フランスで

の海外照射など多くの努力をほらい、1,290,450 mCi、基準照射物質 27 単位を出荷することができた。これは昨年度の出荷量の 74% に相当した量であった。

(2) 施設の安全確保のため、さらに努力を続け、その体系化につとめた。本年度の照射量は 4,430 Ci、標準キャプセル数 1,442 本で、昨年 4,500 Ci、1,229 本にほぼ相当し、キャプセル数は 17% も増加している。これらを安全に化学的に処理するため安全性の確立にさらに努力を続けこれを確保することができた。本年度はとくに終夜通電機器の整備を重点的におこない、安全の体系化に地味な努力を精力的におこなった。

(3) ホットアトム効果の実用化にみるべき進歩があった。ホットアトム効果によって、 $10^{15}\text{n/cm}^2\cdot\text{sec}$  以上の高中性子束炉の照射製品に相当する高比放射能の製品を作ることに当部では早くより着目し、世界に卒先してその実用化に努力してきた。この方法は量産化をおこなうとき照射時間、照射の際の条件(中性子束、発熱、 $\gamma$ 線)に影響されやすいこと、化学的処理法が複雑で長時間を要し、収率の低い欠点があった。われわれはこの問題ととり組み努力した結果、Cr-51-2R は 30 mCi/バッチの見込生産、Cu-64-2R は 25 mCi/バッチの見込生産に成功した。とくに後者は、処理時間の 20 時間を 4.5 時間に、収率の 15% を 50% にまで高めることに成功した。これによって同方法の量産化は確立されたと信ずる。これらの成果は長時間にわたる基礎研究からの積み重ねと、長い間の努力の積み重ねの結果である。

(4) ラジオアイソトープ生産第 1 期 5 ヶ年計画をまとめて、「精製ラジオアイソトープ国産化報告」—生産第 1 期 5 ヶ年計画実行報告—(43RI 製資料 6) を編集した。またこれを研究所の 43 年成果講演会、44 年日本原子力学会特別講演(43RI 製資料 2) において報告をおこなった。

## 2. 業務の成果

### 2.1 製造出荷計画

前年度で完了した製造部生産第1期5ヶ年計画を定常的に実施するために、43年度は初めてあらかじめ年間の製造出荷計画を策定し、それにしたがって製造出荷を実施することとした。計画立案にあたっては JRR-2、-3 の運転計画と製造出荷計画の調整につとめ、また JRR-4、JMTR をはじめ必要によっては海外照射なども加えて JRR-2 の年度後半の運転休止（下段プラグ補修工事）による安定供給の欠如の対策を講じたものである。

この計画は、JRR-2 制御台焼損事故による JRR-2 運転計画の大幅の変更により8月に改訂をおこない、また10月に策定した下半期計画は12月に一部改訂した。

当初の計画では、年間52週のうち47週を出荷サービス週として確立すること、P-32-1の国産化、I-131-1およびIPB-1 ( $^{192}\text{Ir}$ 線源)の量産化を最大の目標としたが、JRR-2長期運転休止、JRR-3燃料破損などによる運転異常、JMTRの運転開始延期などによって、所期の目的を達成するにいたらなかった。

43年度は、Cu-64-2R、Br-82-2、Sb-124-1、Cs-134-1および $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 $^{197}\text{Hg}$ 、 $^{203}\text{Hg}$ 、 $^{155}\text{Eu}$ 、 $^{75}\text{Se}$ の製品をあらたにカタログに掲載する計画であったが、最初の4製品を6月にカタログ化したのみで $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は頒布上の理由で、他の製品はJRR-2長期間運転休止のため次年度にくりこしとなった。

#### 2.1.1 カタログ

42年10月より発行した第4版カタログについては前年度年報に詳述したとおりであるが、43年6月にその一部を改訂し「業務通信」によって外部に周知した。改正の内容はCu-64-2R、Br-82-2、Sb-124-1、Cs-134-1の追加と従来のBr-82-1の廃止である。これらはいずれも製造部生産第1期5ヶ年計画のまとめとして検討を進めていたが、42年10月の段階では新製品として掲載するには不十分だったものである。

Cu-64-2Rは、ホットアトム効果を利用する高比放射能 $^{64}\text{Cu}$ で、通常の $(n, \gamma)$ 反応で製造するCu-64-1の比放射能が240~500 mCi/g $\cdot$ Cuであるのに比べて>100,000 mCi/g $\cdot$ Cuと2~4 $\times$ 100倍以上も比放射能が高い製品である。従来の製品は、医学面の利用で銅の生体毒性が問題となる場合があり、高比放射能 $^{64}\text{Cu}$ の要請が強かった。特殊アイソトープ系では41年度よりその製造試験を開始し試験製品について東京大学医学部附

属病院に対して41、42年度にわたって試験依頼をおこない、きわめて良好な結果をえた。(アイソトープ事業部製造部年報 No. 1; 4-4-2, 4-6, 5-2-2 および製造部放射性同位体資料 1062 昭和39年度、40年度、41年度試験依頼・特殊依頼報告参照) 製品の化学形は酢酸銅の希酢酸溶液である。

ホットアトム効果は原子炉内での照射条件などに微妙に影響をうけるために、これを定常的な製造法として確立するためには多くの困難があったが、照射条件、製造方法の定形化、製造装置の改良などによってこれを克服し、世界に誇りうる製品を定常的に製造頒布できるようになったものである。JRR-3の運転サイクルにあわせて、1サイクル3週間に1回の見込生産をおこなうが、とくに医学面での活発な利用が期待される。

Br-82-2は、従来のBr-82-1が臭化アンモニウムをターゲットとしていたため、中性子照射時間に制限があり、比放射能が15 mCi/g $\cdot$ Brであったのに比べて、ターゲットとして臭化カリウムを使用し、照射時間を延長することにより比放射能を300 mCi/g $\cdot$ Brに高めたものである。これも医学利用面で比放射能の高い製品への強い要請に応えたものである。また新製品では、化学形を従来の臭化アンモニウム水溶液から臭化ナトリウム水溶液に改良した。なお、この新製品を新たにカタログに掲載したためいままでのBr-82-1はカタログから取消した。

Sb-124-1およびCs-134-1はいずれも $(n, \gamma)$ 反応によって製造する製品であるが、照射時間が十分にとれるようになりその比放射能がようやく海外製品に比肩しようようになったのでカタログに掲載、頒布を開始したものである。Sb-124-1の比放射能は200 mCi/g $\cdot$ Sb、化学形は塩化アンチモン、塩酸硝酸>5N混合溶液、Cs-134-1は比放射能3,000 mCi/g $\cdot$ Cs、化学形は塩化セシウム塩酸1N溶液である。

巻末附表に43年6月改正カタログ一覧表を添付したので参考とされたい。

なお、本年度は上記核種の他に $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 $^{197}\text{Hg}$ 、 $^{203}\text{Hg}$ 、 $^{155}\text{Eu}$ 、 $^{75}\text{Se}$ を製品化しカタログに掲載する予定であったが、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は輸送頒布の点で問題があり、またその他の核種はJRR-2の長期間運転休止のため本年度は製品化することができず、次年度にくりこすこととした。

また前年度から事業課を中心として準備してきた第5版カタログの作成は本年度完成せず、次年度にもちこされた。



### 2.1.2 製造出荷計画

前年度に完了した製造部生産第1期5ヶ年計画の成果を定常的に実施するために、43年度は初めてあらかじめ年間の製造出荷計画を策定し、それにそって製造出荷を実施することとした。

まず、43年度研究炉運転計画は年間運転サイクル、オーバーホール時期などの大枠は研究炉管理部の意見を前提として、具体的な日程などについては製造部の希望をいれた形で運転計画が策定された。この運転計画にもとづいて製造部で製造出荷計画案を作成し、事業課と打合せたのち事業部長に報告、承認をえた。年度当初に策定した出荷計画表を TABLE 2.1 に示す。

この計画表は43年5月24月に決定承認されたもので上半期分を主体とし、下半期分は10月に修正改訂することとした。

この計画表の要点はつぎの通りである。

- (1) 年間52週のうち製造施設、機器の保守点検などのため5週間のをぞき年間47週の出荷サービスをおこなう。
- (2) 年間5週間の出荷停止週は原子炉の運転休止期間にあわせて5月初めに2週間、年末年始の3週間とする。
- (3) 短寿命核種について下半期 JRR-2 下段プラグ補修期間中は JRR-4 をできるだけ活用してカバーする。
- (4) Au-198-1 については JRR-2, -3 で出荷できない週は外国炉で照射したターゲットを輸入して製造出荷する。また第4・四半期に JMTR の照射が可能となるので、この期間は JMTR を使用する。
- (5) I-131-1 は JRR-2, -3 で製造出荷するが、JRR-2 下段プラグ補修期間中は JRR-2 製品がないので、外国輸入製品を調整してこれに当てる。
- (6) P-32-1 は7月に年間供給契約が成立するので以降は月2回の出荷とする。また、JRR-2 下段プラグ補修期間は外国炉で照射したターゲットの輸入または外国輸入製品の調整によって出荷する。
- (7) S-35-1 および長寿命核種は毎週出荷する。
- (8) Cr-51-2R および Cu-64-2R は JRR-3 の運転サイクルにあわせて3週間に1回の製造出荷とし、それぞれ44年1月および43年8月から見込生産をおこなう。
- (9) IPB-1 ( $^{192}\text{Ir}$  線源) は JRR-2 製品3回、JMTR 製品1回の製造出荷をおこなう。
- (10) Br-82-2, Sb-124-1, Cs-134-1 は43年6月から製造出荷を開始、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  は43年6月に製造の可否を決定、 $^{197}\text{Hg}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{155}\text{Eu}$  は43年12月に製造出荷を開始、 $^{75}\text{Se}$  は44年3月に製造出荷を開始する。

上記の製造出荷計画は、43年7月 JRR-2 制御台焼損事故のためその運転が休止し修正のやむなきにいたった。ただちに研究炉管理部と JRR-2 の運転再開時期の

見通し、JRR-2 運転休止期間中の他の研究炉の運転計画などについて打合せをおこない

- (1) JRR-2 の運転再開は43年2月で年度内に3サイクル運転する。
  - (2) JRR-3 は43年8月から12月まで (R-3-43-4 サイクルから R3-43-9 サイクルまで) 運転時間を240時間/サイクルから288時間/サイクルに延長する。
  - (3) JMTR の運転開始が44年3月、試用期間の開始が44年4月に延期した。
- の条件にしたがって変更計画を策定した。(43年8月2日付)

この変更計画の要点はつぎの通りである。

- (4) 短寿命核種で JRR-2 照射予定分はできるだけすみやかに JRR-4 に切替える。
- (5) Au-198-1 で JRR-2 照射予定分の一部は JRR-3 の運転途中で照射試料のとりだしをおこなうことによって JRR-3 照射に切替えるが、それでもカバーできない分は外国炉で照射したターゲットを輸入することによって製造出荷する。JMTR による製造出荷は運転開始延期のため不可能となる。
- (6) P-32-1 は JRR-3 照射に切替えることができないので、手持ちの照射済み試料がなくなったあとは外国輸入製品を原研製品規格にあうよう調整して出荷する。また外国炉で照射したターゲットによる製造を強力に促進する。
- (7) IPB-1 ( $^{192}\text{Ir}$  線源) は JRR-2 照射途中の試料をとりだすが、比放射能が不足であるので製品化は未定。12月に出荷予定分は照射不可能となるので外国炉照射とする。
- (8)  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  は輸送、頒布上に問題があり本年度は製品化を中止する。また、 $^{197}\text{Hg}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{75}\text{Se}$  は JRR-2 運転休止のため本年度製品化は不可能となった。

下半期の出荷計画は10月に修正改訂した。(43年10月21日付)

この計画表の要点はつぎの通りである。

- (1) 短寿命核種では、JRR-4 の照射計画が確定し第4・四半期に3回 JRR-4 による製造出荷をおこなう。
- (2) P-32-1 は外国製品の輸入を中止し、第3・四半期に外国炉で照射したターゲットを輸入しそれによる試験製造をおこなう。
- (3) IPB-1 ( $^{192}\text{Ir}$  線源) の12月出荷予定分の外国炉照射は日本放射性同位元素協会が製品輸入手配をおこなったので中止する。

この計画は12月につぎのように一部改訂した。(43年12月21日付)

- (1) 需要者の強い要請により、年始の出荷サービス停止期間中に Au-198-1 (外国炉で照射したターゲットによるもの) の出荷を1回追加する。

(2) P-32-1 は、44年2月に外国炉で照射したターゲットによる製造出荷を1回おこない、以降 JRR-2 製品によって大量供給を再開する。

上記のごとく原子炉の運転計画の変更などにより出荷計画は大幅に変更したが、できうるかぎり製造出荷の実をあげるよう計画立案した。しかし、当初の計画で最大の目標とした年間47週のサービス週の確立、P-32-1の国産化、I-131-1 および IPB-1 ( $^{192}\text{Ir}$  線源)の量産化は JRR-2 長期間運転休止、JMTR 運転開始遅延によって大幅に後退せざるをえなかった。

### 2.1.3 製造出荷実績

43年度における製造量および出荷量については次節2.2および2.6に述べるが、前項2.1.2に記した出荷計画、すなわち

上半期計画(43年5月24日付および43年8月2日付改訂)

下半期計画(43年10月21日付および43年12月21日付改訂)

に対して、実行上計画と変更があった件数は26件、そのうち出荷サービスができなかった件数は16件であった。

TABLE 2.2 製造出荷異常件数一覧表

項目	原因 原子炉運転 異常または 照射異常	外国照射ターゲ ットまたは製品 の輸入不能	製造上の 理由	計
短寿命核種	2 (1)	0 (0)	0 (0)	2 (1)
P-32-1	0 (0)	3 (2)	0 (0)	3 (2)
I-131-1	2 (2)	6 (4)	0 (0)	8 (6)
Au-198-1	4 (3)	4 (4)	0 (0)	8 (7)
CNB- <sub>3</sub> - <sub>4</sub>	2 (0)	0 (0)	2 (0)	4 (0)
IPB-1	1 (0)	0 (0)	0 (0)	1 (0)
計	11 (6)	13(10)	2 (0)	26(16)

註：(内)の数字は出荷サービスが不能となった件数を示す。

Na-24-2, K-42-2 などの短寿命核種では、JRR-2, -3 それぞれ1回づつの運転異常のため、第10サービス週は製造出荷不能、第40サービス週は出荷日を1日おくらせて製造出荷サービスをおこなった。

P-32-1 は、外国製品を輸入し原研製品の規格に合せ調整検査したものを出荷する予定であった第22および第23サービス週の2回が、外国製品の輸入中止のため出荷不可能となった。また、第36サービス週に実施予定であった外国炉照射ターゲットによる試験製造は輸入遅延のため、第38サービス週に延期されたがこれは出荷サービスに影響はなかった。

I-131-1 は、第42および第43サービス週の2回、JRR-3 の運転異常のため製造出荷が不能となり、また、第21, 37, 38, 39, 40, 41 サービス週の6回が外国製

品輸入中止となり、そのうち2回は JRR-3 製品でおこなったが他の4回は出荷サービスができなかった。

Au-198-1 は第1, 11, 40, 41 サービス週の4回が原子炉運転異常で、そのうち1回は他の原子炉に切替えて製造出荷をおこなったが、3回は製造出荷ができなかった。また、第7, 8, 9, 39 サービス週の4回は外国炉照射ターゲットの輸入中止のため製造出荷ができなかった。

CNB-3, 4 ( $^{60}\text{Co}$  針状線源) は、測定器の故障のためそれぞれ2および5週おくらせて入庫したが、出荷には影響なかった。また両製品とも第46, 47 サービス週に入庫予定分が JRR-3 運転異常のため44年度に延期したが出荷には影響なかった。

IPB-1 ( $^{92}\text{Ir}$  線源) は、JRR-2 制御台焼損事故のため照射を途中で中止したものは比放射能が予定量の約1/2で規格外製品となったが、需要者と打合せの結果出荷予定週より4週おくらせて出荷をおこなった。

昭和43年度出荷実行表を TABLE 2.3 に示す。

短寿命核種は JRR-2 製品7週、JRR-3 製品22週、JRR-4 製品3週、サービス欠15週であった。

Au-198-1 は、JRR-2 製品9週、JRR-3 製品20週、外国炉照射ターゲットによる製品9回、サービス欠9週であった。

I-131-1 は大量需要者との長期契約が成立せず外国輸入製品による出荷をおこなわなかったため JRR-2 製品4週、JRR-3 製品28週、サービス欠15週であった。

P-32-1 は6月まで毎週出荷、7月大量需要者と長期契約成立以降は月2回の出荷を予定していたが、JRR-2 長期運転休止のため大量出荷は44年2月以降となり、JRR-2 製品19週、外国炉照射ターゲットによる製品1週の出荷にとどまった。

S-35-1, 長寿命核種の製品, Cu-64-2R, Cr-51-2R などの特殊 R1 などは計画通り実行された。

線源では、CNB ( $^{60}\text{Co}$  針状線源) が一部入庫遅延し一部は次年度にもちこした程度であったが、IPB-1 ( $^{192}\text{Ir}$  線源) は前年度未照射試料を5月に製造出荷したほかは9月に照射不十分の規格外製品を特殊サービスとして出荷したのみで、12月および44年2月出荷予定分は JRR-2 運転休止、JMTR 運転遅延のため不可能となった。

また、本年度新規にカタログに掲載し出荷を予定していたものは Br-82-2, Sb-124-1, Cs-134-1 を除いてすべて次年度にもちこされた。

### 2.1.4 次年度製造出荷計画の作成

次年度の研究炉運転計画にもとづいて44年2月に44年度出荷実行計画を作成し、事業課と調整をおこなった。この計画は、年間47週のサービスの確立、P-32-1の国産化、I-131, IPB-1の量産化など43年度に達成できなかった目標を再びかかげてその達成を期したもの



出荷計画表 (前期)

(後期計画 10月1日)

43. 5. 24

10月				11月				12月				44年1月				2月			3月				4月					
6	13	20	27	3	10	17	24	1	8	15	22	29	5	12	19	26	2	9	16	23	2	9	16	23	30	6	13	20
1	14(7)	22		4(8)	12																							
				定期検査				下段プラグ補修作業(12w)																	性能検査(6w)			
2(6)	13	23(7)	3	13(8)	23	2	11						27(9)	5	17(10)	26	10(11)	19	31(12)	11								
								定期検査(3w)					10MW 240時間		4サイクル(13w)													



出荷実行表

10月				11月				12月				44年1月				2月			3月				4月								
29	6	13	20	27	3	10	17	24	1	8	15	22	29	5	12	19	26	2	9	16	23	2	9	16	23	30	6	13	20		

である。44年度の研究炉運転計画は、JRR-2は10MW、200hr×9サイクル（ただし第9サイクルは新燃料を使用する試験運転）および288hr×4サイクル、JRR-3は240hr×13サイクルである。この運転計画により研究炉運転計画は平常状態に戻ったことになり、また、JMTRの運転および試用期間の開始も予定されているので、次年度の本格的な定常生産にける期待は大きいものがある。

## 2.2 照射

43年度は、前年度完了した製造部生産第1期5ヶ年計画を定常的に実施しその成果をあげる年であったが、年度当初からJRR-2下段プラグ補修工事のため下半期に長期間運転休止が予定されており、また、43年7月に事故があったため、けっきょくは43年7月から44年2月まで運転を休止した。この間は研究炉管理部と密接に連絡をとりJRR-3の運転時間の延長、JRR-4の活用などによってJRR-2の照射不能分をできるだけおぎなうよう努力した。また $^{198}\text{Au}$ 、 $^{32}\text{P}$ は一部のターゲットを外国炉で照射した。

43年度における照射の実績は照射済試料取出数（標準型カプセル換算）1,442本で前年度の117%、放射能取扱量は4,430Ciで前年度の96%であった。

JMTRは、年度当初の予定では44年1月から試用期間を開始する予定であったが、運転開始が44年度に延期されたので本年度は予備的な試験をおこなうにとどまった。

なお、照射技術の開発に関しては3章3.8節に述べた。

### 2.2.1 原子炉運転計画と使用計画の調整

昭和43年度の研究炉運転計画はRI製造におもに使用するJRR-2、-3については、JRR-2、10MW・200hr×8サイクル；JRR-3、10MW・240hr×13サイクルで前年度のJRR-2、10MW・180hr×13サイクル；JRR-3、10MW・240hr×13サイクルにくらべて、JRR-2では下半期下段プラグ補修工事のため5サイクル減、1サイクル当りの運転時間は180hrから240hrに延長しJRR-3は変更なかった。

JRR-2は、43年7月事故のため以後の運転計画を大幅に変更し、事故復旧工事と下段プラグ補修工事をつづけておこない、44年2月まで運転を休止し、そのうち3サイクル運転をおこなうことになった。

JRR-3は、製造部などからの要望によって運転休止期間中43年8月から12月まで6サイクルは1サイクル当りの運転時間を288hrに延長した。また、この期間中は短寿命RIの毎週製造を確保するためにJRR-4をできるだけ活用することとした。

上記の研究炉運転計画にもとづく運転実績をTABLE 2.4に示した。おもな運転異常としては、JRR-3で43年11月および44年1月に破損燃料棒交換のため運転停止があった。

製造部は、上記の研究炉運転計画およびその変更に対処して密接に研究炉管理部と打合せをおこない、照射計画および生産出荷計画の調整をおこなった。その経過については前節2.1に示した通りである。

JMTRは、当初の計画では43年12月から試験運転を開始し、44年1月より試用期間として試験的な利用をおこなう予定であり、 $^{198}\text{Au}$ および $^{192}\text{Ir}$ 線源の照射をおこなう計画であったが、運転開始が44年度に遅延したため、本年度はクリティカルアセンブリ装置による予備的な試験にとどまった。

### 2.2.2 照射実績

Fig. 2.1に43年度製造部照射済試料取出表（標準型カプセル換算）、Fig. 2.2に放射能取扱量、Fig. 2.3に放射能取扱量の推移を示した。

照射済試料取出数（標準型カプセル換算）はJRR-1照射試料21本、JRR-2照射試料356本、JRR-3照射試料1,065本、合計1,442本である。前年度はJRR-1照射試料41本、JRR-2照射試料461本、JRR-3照射試料727本、合計1,229本で、これと比較するとJRR-2照射試料が約75%に減少し、JRR-3照射試料が146%に増加、合計では117%と増加している。JRR-2照射試料が減少しJRR-3照射試料が増加したのは、JRR-2

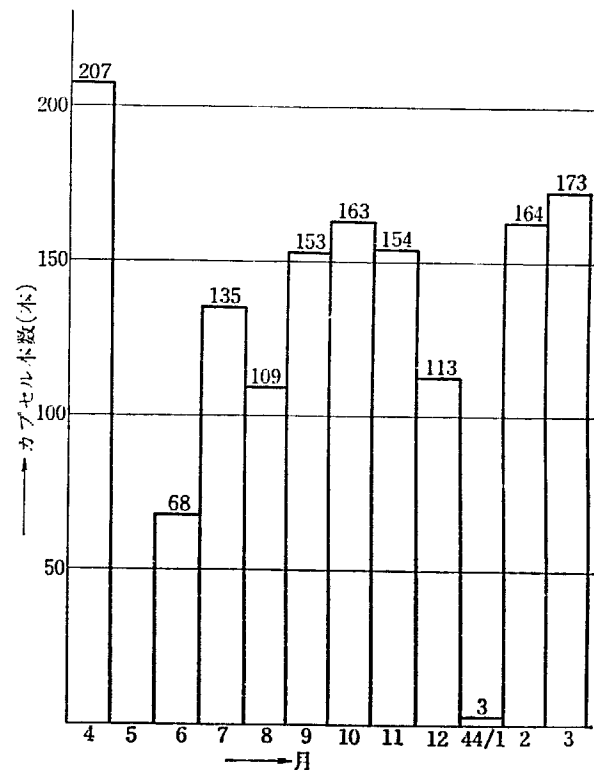
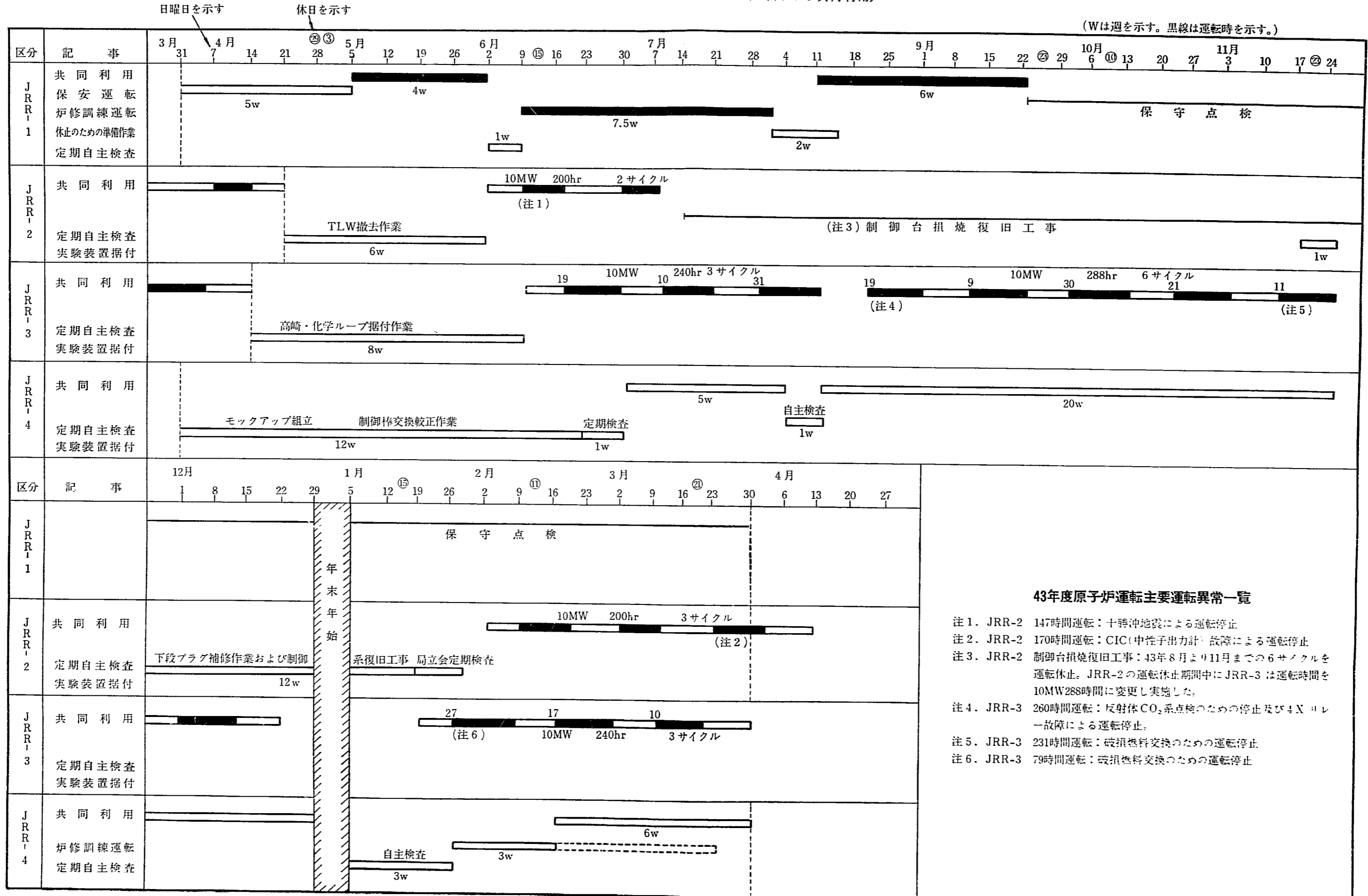


Fig. 2.1 43年度製造部照射済試料取出数（標準型カプセル換算）

TABLE 2.4 昭和43年度研究炉運転実績表（運転および共同利用）



43年度原子炉運転主要運転異常一覧

- 注1. JRR-2 147時間運転：十勝沖地震による運転停止
- 注2. JRR-2 170時間運転：CIC(中性子出力計)故障による運転停止
- 注3. JRR-2 制御台損焼復旧工事：43年8月より11月までの6サイクルを運転休止。JRR-2の運転休止期間中にJRR-3は運転時間を10MW288時間に変更し実施した。
- 注4. JRR-3 260時間運転：反射体CO<sub>2</sub>系点検のための停止及び4Xリレー故障による運転停止。
- 注5. JRR-3 231時間運転：破損燃料交換のための運転停止
- 注6. JRR-3 79時間運転：破損燃料交換のための運転停止



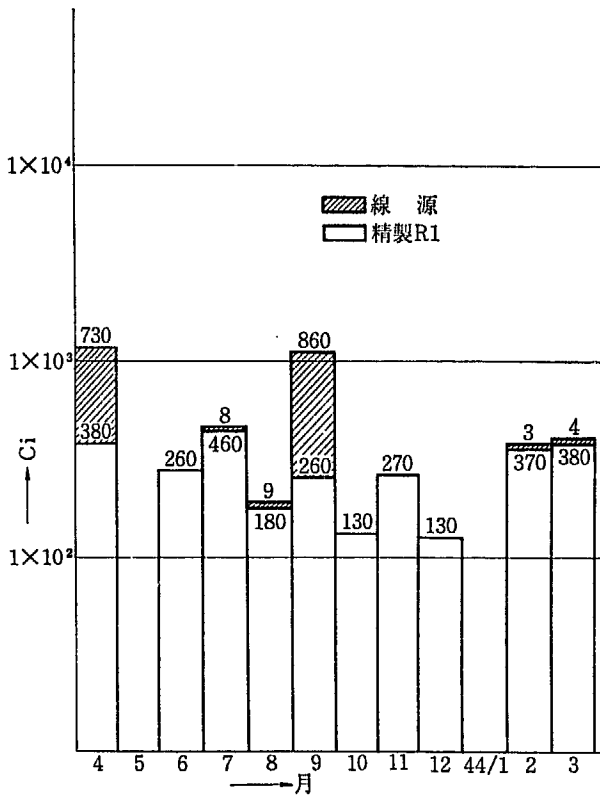


Fig. 2.2 43年度製造部放射能取扱量 (照射申込書の数値による)

しているのは、JRR-3 照射による <sup>131</sup>I の製造が定常化したことおよび全般的に製造部の活動が活発であったためである。

製造部における放射能取扱量は、JRR-2 照射試料が 2,770 Ci; JRR-3 照射試料が 1,660 Ci; 合計 4,430 Ci で前年度の JRR-2; 3,200 Ci; JRR-3; 1,300 Ci; 合計 4,500 Ci と比較して JRR-2 照射試料は 84% に減少、JRR-3 照射試料は 123% に増加し合計で 96% と減少している。前年度 JRR-2 照射試料の放射能の大きな部分をしめたのは <sup>192</sup>Ir 線源であったが、43年度はこれが大幅に減少しているの、これを考慮すると <sup>192</sup>Ir 線源をのぞく他の照射試料、すなわち精製 RI 関係では前年度にくらべて大きく増加している。これは JRR-2 の長期間運転休止にかかわらず <sup>131</sup>I, <sup>198</sup>Au, <sup>32</sup>P など大需要精製の製造が定常化に移行したことを示すものである。

外国炉による照射は <sup>198</sup>Au のターゲット金線を CEA (フランス) で 10 回 (10 カプセル, 計 220 Ci), <sup>32</sup>P のターゲットイオウを GETR (アメリカ) で 3 回 (3 カプセル, 計 35 Ci) おこない、それを用いて試験製造および製造をおこなった。

2.3 製造

43年度は RI 製造棟の製造施設の全稼働によって製造量の増大をはかり、年間を通して安定供給体制を整えようとしたが、年度途中 JRR-2 の制御台焼損事故、それにつづく下段プラグ修理による運転休止によって、また後半には JRR-3 の燃料棒破損による断続運転および運転休止によって精製 RI, 線源 RI の製造は当初の目標達成が困難となった。しかしながら、<sup>35</sup>S, <sup>198</sup>Au は何れも前年度にひきついで安定した供給をおこない、国産化の目標を果たした。<sup>32</sup>P は外国炉照射ターゲットの処理による製造法を確立して一部供給を継続し、<sup>131</sup>I は JRR-2, -3 照射を併用した定常製造体制を整備して来年度よりの安定供給への基礎固めをおこなった。また短寿命 RI の製造では JRR-2, -3 の運転休止時の支援炉としての JRR-4 による製造法を確立してこれによる製造をおこなった。

6 月には新製品として RI 精製では臭化カリウムをターゲットとした <sup>82</sup>Br および <sup>124</sup>Sb, <sup>134</sup>Cs を、特殊 RI では高比放射能 <sup>64</sup>Cu をカタログ化すると同時に定常製造を開始した。

有機標識化合物、線源 RI についてもそれぞれカタログ記載品種について製造をおこなった。

43年度の製造量の一覧を TABLE 2.5 に示した。本年度は上記の様な原子炉の運転状況にもかかわらず、製造量は精製 RI (特殊 RI を含む)、有機標識化合物で約 720 Ci で前年度にくらべて倍増し、線源 RI で 1,800 Ci、基準照射物質で 27 単位とほぼ前年度なみとなった。

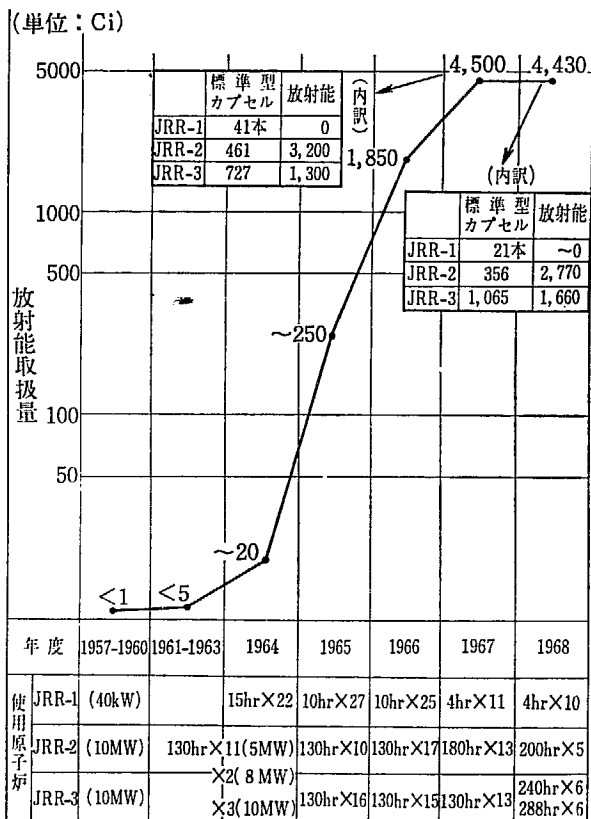


Fig. 2.3 製造部における放射能取扱量の推移

の運転休止期間中試料照射が JRR-3 に移行したためであるが、全体として研究炉の運転時間が前年度にくらべて少なかったのたいては照射カプセル数の合計が増加

TABLE 2.5 43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)

区分	製品記号	製造回数	製造量
大 需 要	P-32-1	7	18,000
	P-32-1-t	1	190
	P-32-1-F	3	30,000
	P-32-1-F-t	1	480
	S-35-1	10	5,300
	I-131-1	14	67,000
	I-131-1-b-t	3	4,000
	I-131-1-c-t	4	12,000
	Au-198-1	29	360,000
	Au-198-1-F	8	170,000
	Au-198-1-F-t	2	34,000
	小計	82	700,000
	短 寿 命	Na-24-2	31
K-42-2		27	5,800
K-42-2N		4	810
Mn-56-1		1	10
Cu-64-1		10	1,400
As-76-1		1	140
Br-82-2		3	110
Y-90-1		2	100
La-140-1		2	180
Sm-153-1		2	180
Lu-177-1		4	1,700
Na-24-2-d-t		1	110
K-42-2-d-t		1	270
Cu-64-1-d-t		1	260
小計		90	15,000
中 長 寿 命	Ca-45-1	1	11
	Co-60-1	1	29
	Zn-65-1	1	70
	Rb-86-1	1	35
	Ag-110m-1	1	40
	Sb-124-1	2	150
	Cs-134-1	1	240
	Tm-170-1	2	240
	W-185-1	2	28
	Tl-204-1	1	120
小計	13	960	
特 殊	Cr-51-2R	8	1,000
	Cu-64-2R	4	330
	小計	12	1,300
合計		197	720,000

## (2) 有機標識化合物

(数量 単位 mCi)

区分	製品記号	製造回数	製造量
	CLC-3	2	70
	合計	2	70

## (3) 線源ラジオアイソトープ

区分	製品記号	製造回数	製造量
	CNB-1	2	1,500
	CNB-2	2	2,700
	CNB-3	2	1,200
	CNB-4	1	11,000
	小計	7	16,000
	IPB-1	2	920,000
	Ir-192	2	840,000
	小計	4	1,800,000
	合計	11	1,800,000

## (4) 基準照射物質

製品記号	製造回数	単位数	製品記号	製造回数	単位数
Fe-1-b	2	2	Ce-1-c	1	10
Fe-1-c	1	2	Pr-1-b	1	1
Ge-1-c	1	1	Pr-1-c	1	1
Mo-1-b	1	1	Ir-1-b	2	3
Mo-1-c	1	1	Ir-1-c	1	3
Ce-1-b	2	2	合計	14	27

## 2.3.1 精製 RI と基準照射物質の製造

精製 RI の主要核種である大需要 RI の、年間安定体制の確立を目標とした製造を定常的におこなうとともに、これらに必要な製造施設および製造装置の保守と整備につとめた。その結果、 $^{35}\text{S}$ 、 $^{198}\text{Au}$  は前年度に引続いて安定した供給をおこなうことができた。

$^{32}\text{P}$  は JRR-2 の運転休止期間が長期にわたったために、この間製造を中止せざるをえなかったが、外国炉で照射したターゲットによる試験製造をおこない、その製造法を確立し、一部供給することができた。 $^{131}\text{I}$  は製造量を増加するために JRR-2、-3 で交互に照射をおこなう定常製造体制と安定供給のために必要な輸入製品の処理体制を確立し、次年度よりの製造にそなえるとともに一部製品の供給をおこなった。中長寿命 RI は  $^{124}\text{Sb}$ 、 $^{134}\text{Cs}$  を 6 月にカタログ化して 10 核種となった。なお本年度は需要が全核種にわたったことが注目される。短寿命 RI は JRR-2 の運転休止期間中の支援炉として、JRR-4 による製造を定常化して安定供給につとめた。

これらの主要業務はほぼ計画通りに遂行した。その進捗状況を TABLE 2.6 にまとめた。

(1)  $^{131}\text{I}$  の製造

$^{131}\text{I}$  の製造は、前年度に 10Ci/バッチの本格製造時における製造施設および装置の安定性を確かめ、また、製造時における放射線管理面からの各種測定値を集積して製造の定常化を確立した。本年度は製造量を増加し、また、需要者の要望の強い還元剤を含まない製品を開発段階から定常製造に移行させ、安定供給体制を確立することを目標とした。このために JRR-2 照射による製造、

項目	1/4			2/4			3/4			4/4		
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
灯	JRR-2											
	JRR-3											
大 需 要 RI	P-32	RCC製品の仕様調整			No. 11セル組込			GETR照射ターゲット処理			GETR照射ターゲット処理	
	S-35	製造装置補修										
	I-131	(404セル) (309セル) → 7/16定常化			(Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> +NaHCO <sub>3</sub> ) 新吸収液の試験製造			UCC製品調整技術の確立			フィルター交換 (活性炭A)	
	Au-198	JRR-2照射試料溶解テスト 蒸留量変更 No. 02セル組込 CEAターゲット (Pb5cm) ①処理			CEAターゲット処理 組込 ②③による本格製造			Ca, W, Tl 11/28製造開始			No. 15セル組込定常 (Pb: 10cm) 製造開始 3/10	
中 長 寿 命 RI	カタログ記載核種	→ <sup>114</sup> Sb, <sup>113</sup> Cs カタログ化成る。										
	Hg-203, -197	組込 → 1/28 310室時配セル 中長寿命RI使用開始										
	その他	照射-在庫総合管理確立			Ca, Ag etcターゲット不純物チェック			2/28 (Seその他) 技術課より引継ぎ成る				
短 寿 命 RI	JRR-2, -3 製造	7/3Br (KBrターゲット) 製造開始										
	JRR-4製造	7/17 中性子束測定			10/15 11/5 試験製造			定常製造開始				

TABLE 2.6 精製 RI 製造業務実行状況一覧表

変更された吸収液による製造および外国輸入製品の製品仕様の調整などをおこなった。

(a) JRR-2 照射による製造

<sup>131</sup>I の製造は JRR-3 のみに依存していたが、需要量の増加にともない、JRR-2 照射による製造を定常化し製造量の増大をはかった。前処理したテルル酸ターゲットの照射中の温度上昇をさけるためにカプセルを軽水に浸しながら、JRR-2, VR-2 実験孔で1サイクル180時間の照射をおこなった。このターゲットについて、404室の旧 <sup>131</sup>I 製造装置で4回、約 200 mCi/バッチで溶解試験をおこない、良好な結果をえた。次に、本格製造装置で1回、2.4 Ci/バッチで同じ試験をおこない、蒸留条件も従来通りで完全に溶解することを確認した。JRR-2 の第2サイクル照射から上記の照射方法による定常製造、(0.4 Ci/バッチの処理)をおこない、JRR-2, -3 の両炉を使用する製造により毎週 1.2 Ci の供給が可能となった。しかし、JRR-2 が第3サイクルより運転休止となったため、第4・四半期の運転再開までは JRR-3 のみによる製造となり、JRR-2 による製造は試験製造1回、定常製造3回にとどまった。

(b) 非還元性溶液製品の製造

医薬合成原料として <sup>131</sup>I の製品に還元剤を含まない製品を需要者から要望されたので、従来の還元性吸収液を非還元性のもにを変更することを検討した。このため、組成の判明している CEA (フランス) の製品と同じ炭酸ナトリウム (Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)、炭酸水素ナトリウム (NaHCO<sub>3</sub>) 混合溶液を吸収剤として試験をおこなった。最初、M/400 の炭酸ナトリウム溶液に <sup>131</sup>I を捕集し、M/5 の炭酸水素ナトリウム溶液を最終段階の pH 調整に加える製造方法で4回試験製造をおこなった。この吸収液の場合、<sup>131</sup>I の捕集効果が変り、排気中の <sup>131</sup>I 濃度が増加するおそれがあったので、取扱量を 0.5 Ci, 2 Ci, 4 Ci, 8 Ci と順次増加し、<sup>131</sup>I の分布、収率、スタックからの放出量などの測定値を集積しつつ大量製造に移行した。安全性の面でも問題はなく、非還元性の製品をえること

ができたが、現在の製造法では製品の放射能濃度を高めるために、最終段階で濃縮工程が不可避であるため、最終製品の全固形分がやや多く、さらに他の吸収液についての検討をつづけている。

(c) 輸入製品の製品仕様調整について

<sup>131</sup>I 製品の安定供給をおこなうためには、JRR-2, -3 両炉の停止時には外国炉で照射したターゲットの輸入または外国製品の輸入が必要であるが、本年度は外国輸入製品を原研製品規格に合致するように検討した。外国製品中、製品仕様の比較的類似した UCC (Union Carbide & Corporation, アメリカ) の製品について酸性度の調整、出荷時の濃度、取扱い方法などについて検討した結果、調整可能なことを確認したが、本年度は実際に輸入製品の調整出荷はおこなわなかった。

本年度の製造量は 14 バッチ、67 Ci であったが、この他に7バッチ、16 Ci の試験製造をおこなった。

(2) <sup>32</sup>P の製造

前年度にひきつづき43年度も RI 製造棟 310 室 <sup>32</sup>P 製造施設を使用して、<sup>32</sup>P の大量製造をおこなったが、JRR-2 が7月中旬より2月中旬まで半年以上にわたって運転を休止したため、JRR-2 のみに照射を依存する <sup>32</sup>P の製造は一時中断せざるをえなかった。しかし、その間に外国炉で照射したターゲットによる製造法を実験検討し、新しい付属装置を加えることで製造可能となったので、11月より GETR (General electric testing reactor: 50 MW, G. E. Company Vallecitos Nuclear Center) で照射したイオウターゲットを3回輸入して、試験製造および製造をおこない製品確保につとめた。

43年度の製造は、JRR-2 で照射した試料からの製造6回、RCC (イギリス) より輸入した製品を原研規格に合せる調整作業1回、古い製品を再濃縮再精製し製品とした製造1回、また、GETR で照射した試料からの製造4回の計12回の製造をおこなった。

43年度の年間製造量は 48 Ci に達し当初の目的を上廻ったが、JRR-2 運転停止のため安定した製造は44年

2月以降であったので、出荷量が目的に達しなかったのは誠に遺憾であった。

### (3) $^{35}\text{S}$ の製造

年度出荷計画にもとづき、JRR-2、-3の両炉による照射を併用して計画通りの製造を行ない全需要を満たした。製造回数10回、合計5,300 mCiであった。機器の操作、製品の品質ともに安定しており、今後もとくに問題はないが、さらに安全性向上の面から濃縮装置などの改良に努めるべく検討を行なっている。

### (4) $^{198}\text{Au}$ の製造

前年度にひきつづき年間安定供給を目標とした定常製造をおこなった。このため、JRR-2のVT-2またはVT-2照射孔で200時間照射、時間照射孔で17~20時間照射、およびJRR-3のVR-1-8またはVR-3-8照射孔で240時間照射を組合せて毎週製造ができるようにした。JRR-2、-3が停止期間中は、CEA(フランス)の原子炉で照射した金ターゲットを輸入して製造した。また、JRR-3のみ運転の場合は1サイクル288時間の運転期間中の前半163時間、後半124時間とする照射をすることで、3週間のうちに2回製造、出荷することができた。

製造装置は、従来は厚さ5 cmの鉛セル内に組込んでいたが、このセルで10 Ci以上の $^{198}\text{Au}$ を取扱う場合セル表面の空間線量がやや高いので、また将来の処理量の増加を考慮して前面を厚さ10 cmの鉛セルに移し替えた。

本年度新しく購入したターゲット(田中貴金属KK製1 mmφ金線)について不純物の検討をおこなったが、従来使用してきたターゲットとほぼ同様の純度であることがわかった。

また、金をコロイド化するのに影響をおよぼすと思われるアルミニウムイオンが製品中に混入する可能性があるので数種類の製品についてアルミニウムイオンの含有量を測定したが、問題となるほどの混入は認められなかった。

### (5) 短寿命 RI の製造

前年度にひきつづき、需要が定常化している $^{24}\text{Na}$ 、 $^{42}\text{K}$ および $^{64}\text{Cu}$ の3核種については、毎週JRR-2、-3による照射を併用して見込製造をおこない、その他8核種については注文製造を実施した。これらの照射としてはJRR-2の気送管による20分照射と、JRR-3のHR-2照射孔による17時間および41時間照射を利用した。

$^{82}\text{Br}$ については臭化カリウムをターゲット物質としてJRR-3のVR-2-10照射孔で1サイクル照射して従来よりも比放射能が10倍以上高く、また医薬用に使用が便利な臭化ナトリウム水溶液製品の製造法を確立して、6月カタログ化した。また、昨年10月カタログ化した高比放射能の $^{42}\text{K}$ 製品(K-42-2N)は需要に応じてJRR-2時間照射孔で17時間照射をおこない4回製造出荷した。

JRR-2、-3が休止期間中も製造を継続するために、支援炉としてJRR-4照射による製造を見込製造核種である $^{24}\text{Na}$ 、 $^{42}\text{K}$ および $^{64}\text{Cu}$ について検討した。その結果、Tパイプ照射孔において火曜日12時より1時間10分照射することにより、JRR-3のHR-2照射孔で17時間照射したものと同放射能がほぼ等しい製品がえられることを確認したので、JRR-4を利用して製造を実施し、JRR-3照射の場合と同等の品質の製品を出荷することができた。(Photo 2.1)



Photo 2.1 JRR-4による短寿命 RI の製造

JRR-2、-3の両炉が使用できないとき支援炉としてJRR-4による短寿命 RI ( $^{24}\text{Na}$ 、 $^{42}\text{K}$ 、 $^{64}\text{Cu}$ )の照射製造をおこなった。JRR-4照射によるこれらの製品の比放射能はJRR-3製品と同程度であった。

### (6) 中・長寿命 RI の製造

本年度は $^{124}\text{Sb}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ を6月カタログ化するとともに、すでにカタログ化した各製品の定常製造にともなう諸問題の解決につとめた。長寿命 RI は、照射期間が長期にわたるため在庫を短時間に補充することができないので、綿密な照射計画を必要とする。本年度から製品を年間通じて確保するために、製品の在庫量と長期照射を総合した計画をつくり、管理し易いようにした。また、カタログ化された製品についてはその品質をより優れたものにするため、JRR-2のVT-1実験孔を利用して比放射能の高い製品を製造することを検討し、 $^{45}\text{Ca}$ 、 $^{110m}\text{Ag}$

などについてその比放射能が従来より一桁高い製品をえることができた。また、今後の製品種類の増加にそなえて、多核種を一セル内で製造するように製造装置を一部改良した。

また、310 室の貯蔵配分セルの整備が完了したので、44 年 1 月をもって全製品を貯蔵部に移管した。

本年度新たにカタログ化を予定していた  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{197}\text{Hg}$ ,  $^{76}\text{Se}$  などは JRR-2 が長期間運転停止したため、予備的な実験にとどまり本年度にカタログ化することはできなかった。

#### (7) 基準照射物質の製造

本年度の定常製造についてとくに問題はなかった。年間総計 14 件、27 単位の出荷を行なった。カタログ記載全核種について、JRR-2, -3 の照射時間変更に伴う各核種についての線量測定、生成量の計算など、44 年度にも引続いて検討を行なう予定である。

### 2.3.2 特殊 RI の製造

ホットアトム効果を利用する高比放射能  $^{64}\text{Cu}$  製品の製造頒布を 43 年 8 月から開始し、年度計画に予定した 10 バッチの JRR-3 による定常見込生産は支障なく進化した。また、製造法の改良によってプロセス所要時間を短縮させると同時に、収率を著しく向上させることに成功し、1 バッチ製造量を、見込生産開始当初の 15 mCi から 25 mCi に上昇することができた。出荷時における放射能濃度は 10 mCi/ml をこえ、製品の比放射能も、医用レベルの製品として十分な余裕をもって使用できる 200 Ci/g·Cu を上回るものを確実に供給することができた。なお、製造法の改良に伴ない、製造装置についても大幅な改造を実施し、新規にフードに試料搬出入口を設置するとともに装置各部の改良を達成した。新規に組込

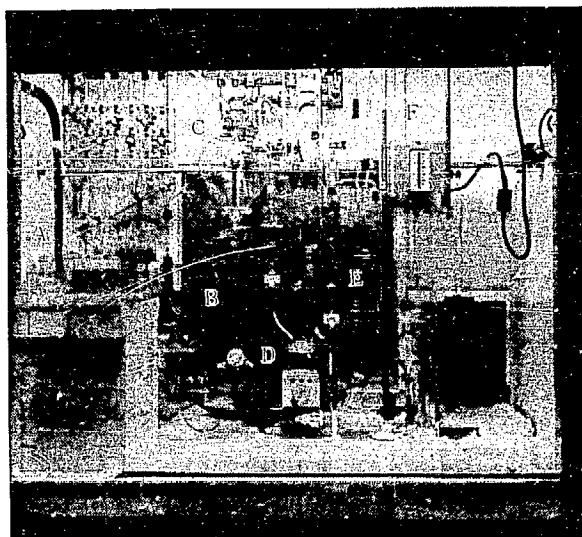


Photo 2.2 高比放射能  $^{64}\text{Cu}$  製造装置

A : 溶解槽	D : 製品精製部
B : 氷水沈殿槽	E : 酢酸銅調製部
C : 中和槽	F : 配分器

を行なった装置を Photo 2.2 に示した。本装置の前面遮蔽体としてアクリル板と 5 cm 厚みの鉛遮蔽体を使用し、トングスマニピュレーターによりプロセスを行なうものである。

ホットアトム効果を利用する高比放射能  $^{64}\text{Cr}$  についても、計画どおり前年度と同様に JRR-3 運転サイクル毎に 30 mCi/バッチの定期生産を実施した。これらの製造は、JRR-3 の VR 照射ばかりでなく、VG 照射によっても実施され、後者でも同じ品質の製品が供給できるようになった。また、JRR-3 の運転時間が 1 サイクル、288 時間に延長したことによって比放射能の低下する現象があったが、製造工程を改良することにより解決し、また、1 バッチ当りの製造量も増加することができた。

P-32-1R, Cs-132-1A については注文がなく、定期生産は実施しなかった。

### 2.3.3 有機標識化合物の製造

カタログ記載のシアン化カリウム- $^{14}\text{C}$ 、メタノール- $^{14}\text{C}$ 、酢酸ナトリウム- $^{14}\text{C}$  は、常に相当量の在庫の確保とこれら製品の品質管理が必要であるが、本年度はメタノール- $^{14}\text{C}$  の在庫補充のための製造と、酢酸ナトリウムの再精製をおこなった。また、昨年度検討を要する事項として残された項目のうち、メタノール- $^{14}\text{C}$  の放射化学的純度、酢酸ナトリウム- $^{14}\text{C}$  の放射能測定法の改良などの重要な事項について検討をおこない、解決をはかった。これらの結果、製造法は技術的にほぼ固まったので、製造から品質確認に至るまでの製造マニュアルを作製した。

#### (1) メタノール- $^{14}\text{C}$ の製造

本年度前半に 15 mCi の出荷をおこなった。在庫を補充するための製造をおこない、在庫製品と合せて精製し 70 mCi を倉入れした。

メタノール- $^{14}\text{C}$  の放射化学的純度の検定について、ラジオガスクロマトグラフ装置による測定の定量性の検討を、東京大学理学部島村研究室との協力研究の形で実施し、著しい改良をみた。次年度も続行の予定である。

#### (2) 酢酸ナトリウム- $^{14}\text{C}$ の製造

前年度製造し貯蔵中の製品にわずかな着色がみられたので再精製をおこなった。

酢酸ナトリウム- $^{14}\text{C}$  の放射能測定については酢酸ナトリウム- $^{14}\text{C}$  を水溶液にして p-ジオキサン系シンチレーター溶液に混合し、チャンネル比法によって簡単に測定できる方法を確立した。

上記の製造マニュアルを作製した。これは、製造から品質確認までの標準作業書となるもので、同時に個々の項目は今後他の製品の製造マニュアルの作製に際して基本型となるようにまとめた。

今後検討を必要とする事項は、いずれの製品についても共通する問題であるが、ドライアイス容器による保管からフリーザーによる切替え、1 mCi 以下の少量製品の配分法などがあり、次年度ひきつづき検討し解決をはかっていく計画である。

### 2.3.4 線源 RI の製造

本年度は定常製造に入る前に新型開封器、測定器、作業台などのケーブ内製造装置の配置替えをおこない、製造作業の能率の向上をはかった。 $^{60}\text{Co}$  針状線源は約 16 Ci,  $^{192}\text{Ir}$  線源は約 1,800 Ci を製造した。また、製造装置の配置替え、 $^{192}\text{Ir}$  の密封線源製造用機器配置のためにはじめてエアラインスーツを使用するケーブ内の除染をおこない良好な結果をえた。なお、 $^{192}\text{Ir}$  線源製造の年 4 回の当初計画は前年度末より照射をおこなっていた試料の製造のほかは、JRR-2 の運転中止のため照射中のもものは比放射能が予定量の半分程度となり、つづく照射分は JMTR の運転開始延期と相まって、すべて中止となったため、カタログ仕様の製品は 1 回分 73 箇にとどまった。

#### (1) $^{60}\text{Co}$ 針状線源の製造

前年度にひきつづき、JRR-3 の VR 照射孔によって、1, 5, 10, 20, mCi/本 の  $^{60}\text{Co}$  針状線源を製造した。

本年度は、照射の際のカプセル内ターゲット配置に大きな改良を加え、従来のアルミニウム箔包装による“タンザク”状の平面的な配置から、グラファイト円柱を使った立体的な配置とした。このグラファイト円柱は、Photo 2.3 に示す様に二つの同心円上に小さい穴が 40~60 箇開けてあり、この穴にターゲットを挿入し、この 6~9 箇をカプセルにつめて照射した。この結果、1 カプセル当りの照射量がタンザク状のもの 120~250 本に対して、240~540 本と大幅に増大させることができた。

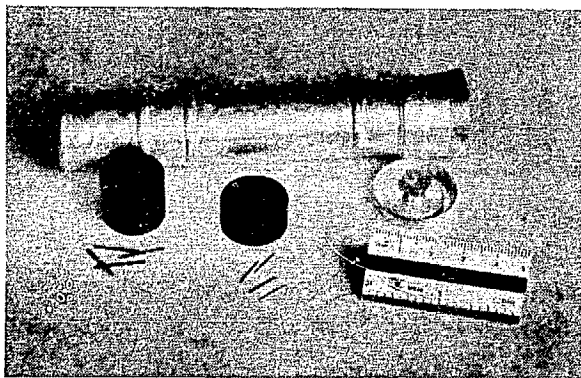


Photo 2.3  $^{60}\text{Co}$  針状線源の照射カプセル

$^{60}\text{Co}$  針状線源はいままで針状のターゲットをアルミニウム箔で平面上に配置していたが円柱状のグラファイトの中に立体的に配置することによって、1 カプセル当りの製造量も 2 倍となり、また比放射能の幅を小さくすることができた。

同時に生成量のばらつきも大幅に減少することができた。

CNB-1 (1 mCi/本) については、照射試料のほぼ全数を 1 mCi $\pm$ 10% の生成量の範囲におさめることができた。しかし、CNB-2, CNB-3, CNB-4 については、なおかなりの比放射能の幅があるので照射方法についてさらに検討をおこなっている。

43年度の製造実績は、TABLE 2.8 に示したとおり合計 16,000 mCi である。

#### (2) $^{192}\text{Ir}$ 線源の製造

42年度にひきつづき、JRR-2 の VT-1 実験孔の高熱中性子束 ( $10^{14}\text{n/cm}^2\cdot\text{sec}$ ) のもとで 1 ペレット ( $2\phi\times 2\text{mm}$ ) 当り約 10 Ci の線源を製造した。

前年度は照射試料を段階的に増してきたが、本年度は VT-1 実験孔内の照射スペースを 2 倍に確保できたので、照射容器を改造して高さを約 2 倍にした ( $94\phi\times 73\text{mm}$ )。また、照射カプセル内でターゲット間隔を 5 mm にすることによってターゲットの生成量を 10 Ci/ペレットに保ちながら、ペレット数を 74 個/カプセルから 161 箇/カプセルと大幅に増加することができた。また、本年度初めて  $1\phi\times 1\text{mm}$  の  $^{192}\text{Ir}$  線源の試験照射をおこない、この種の微小試料の取扱いについて知見を得ることができた。

JMTR による製造については、その照射方法が具体的に決り、43年度から製造を開始する予定であったが原子炉の運転開始遅延のため、次年度実施となった。

本年度の製造実績は合計 1,800 Ci であった。なおこのうち 840 Ci は 6 Ci/ペレットで JRR-2 の運転休止のため、生成量が 10 Ci/ペレットの規格に達しなかったものであり、特殊サービスとして出荷した。

## 2.4 検 査

定常検査業務においては、42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製品にたいし、放射能検査、化学検査の各項目について実施し、品質の確認、保証をおこなった。

検査の対象とした製品種類は、大需要 RI 4 製品を含む一般精製 RI, 特殊 RI, 有機標識化合物および線源 RI である。これらにたいする検査項目は前年度年報 (JAERI-5020) に記載した通りである。

本年度の製造部の大きな目標である  $^{32}\text{P}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{198}\text{Au}$  などの大需要 RI の安定供給化への対策として、外国製品および外国照射ターゲットによる製品について、品質の検査も重点的に実施しその確認をおこなった。

特殊 RI 製品では、 $^{51}\text{Cr}$  製品にひきつづき  $^{64}\text{Cu}$  製品の見込生産が実施され、また、 $^{131}\text{I}$  製品については従来の製品のほかに新たに還元剤を含まない組成のものが開

発され、これらについて試験検査を含め定期的に検査を実施した。

JRR-2 の代替としての JRR-4 による短寿命 RI の品質も試験製品において品質の確認をしたのち、製品として生産された。

定常業務としては、以上の製品検査のほか、品質保証のもととなる各種測定器類の精度確認のために、放射能絶対測定法などによる試験を年間を通じ実施した。

2.4.1 製品の検査

(1) 検査内容

43年度実施した頒布製品および試験製品にたいする核種の種類、件数などの検査内容は下記のごとくである。

(a) 特殊 RI 製品を含む精製 RI 製品関係では検査対象核種の種類は頒布製品 25 核種、試験製品 7 核種であった。

これら核種の検査製品数は合計 238 件であり、放射能検査、化学検査あわせた検査項目件数は 1,010 件である。42年度総計 864 件に比して約 20% 増になる。

(b) 有機標識化合物は年間で対象製品数 3 件、項目件数は 7 件であった。

(c) 線源 RI では、<sup>60</sup>Co 針状、<sup>192</sup>Ir 特殊両線源について総計 3,723 件の測定を行なった。

以上全核種をあわせた検定件数は総計 4,740 件であった。

製品の検査結果は附表 2 に示した。精製 RI、有機標識化合物および線源 RI の全製品のうち、<sup>82</sup>Br (c-901)、<sup>192</sup>Ir 線源 (8002) について原子炉の照射途中打切りにより比放射能値は規格に達しなかったが、需要者の希望により特殊サービスの形で出荷した。また、<sup>32</sup>P 製品および

<sup>131</sup>I 製品各 1 件について所内使用者より、とくに希薄な放射能濃度の希望があり、減衰後の製品より特殊サービスで出荷した。

以上の 4 件をのぞき、他の頒布を対象とした製品はいずれも規格内に入る良好なものであることを確認した。

また、このほかに外国輸入製品の品質検査も実施したがこれは次項製品別特記事項に記載した。

(2) 製品別特記事項

(a) 外国製品、外国照射ターゲットによる製品の検査

大需要 RI の安定供給のために本年度から外国製品の輸入および外国照射ターゲットによる製品の製造がとりあげられたので、これらの品質確認をおこなった。

CEA (フランス) で照射したターゲットより製造した <sup>199</sup>Au 試験製品を、2 回にわたり精密に検査した。化学一般項目のほか、とくに放射化学的純度の検定に重点をおき、γ 線スペクトロメトリー、半減期測定などを併用しておこなった。結果は、純度、放射能量とも問題はなかった。<sup>199</sup>Au/<sup>198</sup>Au の割合も各データからの計算結果、濃度検定時において 2 試料それぞれ 6.2% (F-t 801)、4.7% (F-t 802) で規格上とくに問題はない。

つぎに UCC (アメリカ) より入手した溶液形の <sup>32</sup>P、<sup>131</sup>I、<sup>198</sup>Au 各核種に対し、12~15 項目にわたる検査をおこなった。2~3 の問題点があったが、とくに液性について、<sup>32</sup>P、<sup>198</sup>Au の場合再調整しても原研製品規格に合致させることは困難であり、照射ターゲットの輸入による方が良いと判断した。<sup>131</sup>I もその化学形とともに、pH 値が規格外となるおそれがあるが、調整法について検討の結果、規格内に調整可能であることを確めた。

GETR (アメリカ) 照射イオウターゲットから製造した <sup>32</sup>P 製品にたいしては、12 検査項目について実施し、

TABLE 2.7 43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		計		所 外		所 内		計		所 外		所 内		計		
	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	
ア 精 製 ソ ラ イ ソ ト プ オ	大需要 RI	184	192,131	41	687.2	226	192,818.2		1	1	1	1	184	192,131	42	688.2	226	192,819.2	
	短寿命 RI	89	554	26	59.5	115	613.5	1	1	1	5	2	6	90	555	27	64.5	117	619.5
	中長寿命 RI	14	49	12	12	26	61						14	49	12	12	26	61	
	特殊 RI	6	53	6	48	12	101						6	53	6	48	12	101	
	小 計	293	192,787	85	806.7	378	193,593.7	1	1	2	6	3	7	294	192,788	87	812.7	381	193,600.7
有機標識化合物	3	20			3	20							3	20			3	20	
線源ラジオアイソトープ	4	896,530	1	2.7	5	896,532.7	2	127,200	3	73,100	5	200,300	6	1,023,730	4	73,102.7	10	1,096,832.7	
基準照射物質	7	20単位	7	7単位	14	27単位							7	20単位	7	7単位	14	27単位	
合 計	300	1,089,337	86	809.4	386	1,090,146.4	3	127,201	5	73,106	8	200,307	303	1,216,538	91	73,915.4	394	1,290,453.4	
	7	20単位	7	7単位	14	27単位							7	20単位	7	7単位	14	27単位	

各項目とも異常のないことを確認した。

(b) 特殊 RI 製品の品質

ホットアトム効果を利用する特殊 RI 製品のうち <sup>51</sup>Cr 製品にひきつづき <sup>64</sup>Cu 製品の見込生産が実施されたが、もっとも重要である比放射能値は、<sup>64</sup>Cu について  $7 \times 10^5$  mCi/g·Cu, <sup>51</sup>Cr は  $\sim 9 \times 10^4$  mCi/g·Cr 程度の高い値がえられている。これらの値は (n,  $\gamma$ ) 反応による製品と異なり、すべて製品ごとに主元素定量実測値からもとめた。

(c) 短寿命 RI 製品

<sup>24</sup>Na, <sup>42</sup>K, <sup>64</sup>Cu については JRR-4 による試験的な製造が行なわれ、まづ試験製品について品質確認をおこなったのち、定常生産に移行した。検査結果では、比放射能値などの主要項目を含め JRR-3 による品質と同程度の良好なものであることが確認された。

2.4.2 測定器精度の確認

定常検査に使用する放射能測定器、化学分析機器のすべてについて、測定精度維持のため確認試験を年間を通じ実施した。とくに、放射能濃度、比放射能値の測定には、もっとも高い精度を維持することが必要であり、このため絶対測定法を主とする各種測定によりその確認をおこなった。

純ベーター放射体測定用の  $2\pi$  ガスフロー比例計数装置は、<sup>32</sup>P について、 $4\pi\beta$  計数法により、また、 $\gamma$  線放射体用の井戸型電離函 (2組) については、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法を用いて、<sup>24</sup>Na, <sup>42</sup>K, <sup>198</sup>Au など測定頻度の高い核種の較正值を確認した。前回の値に比し、異常値は認められず、十分な精度の得られていることを確認した。線源測定用機器では、<sup>137</sup>Cs 標準線源による比較測定、減衰試料による較正済電離函との比較測定などとともに長時間にわたる安定度試験も併用して実施し、定常測定にそなえた。

2.5 出荷状況

43年度の総出荷量は 1,290,453.4 mCi および基準照射物質 27 単位、出荷件数 408 件である。

出荷状況の総括を TABLE 2.7 に、製品項目毎に所内外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 2.8 および TABLE 2.9 に示した。

精製 RI では、Au-198-1 がその 92% をしめて着実に増加しているが、本年度大幅な増加を期待した P-32-1, I-131-1 はその国産化、量産化ができなかったため僅かな増加にとどまった。

線源 RI のうち、<sup>192</sup>Ir 線源は前年度より照射を継続してきた製品を 5 月に出荷したほかは、JRR-2 事故のため 9 月出荷分は規格外製品を少量特殊サービスとして出荷したのみで以降製造出荷ができなかった。

TABLE 2.8 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	65	8,017	4	10.7	69	8,027.7		
	P-32			* 1	* 1	1	1		
	S-35-1	27	1,566	12	483	39	2,049		
	I-131-1	15	3,883	12	152	27	4,035		
	I-131	2	1,000	* 1	* 0.5	3	1,000.5		
	Au-198-1	75	177,665	13	41	88	177,706		
	小 計	184	192,131	43	688.2	227	192,819.2		
短 寿 命	Na-24-2	32	314	13	34.5	45	348.5		
	K-42-2	35	133			35	133		
	K-42-2N	4	16	2	2	6	18		
	Mn-56-1			1	1	1	1		
	Cu-64-1	8	60	2	3	10	63		
	As-76-1			1	1	1	1		
	Br-82-2	1	1	3	14	4	15		
	Br-82	* 1	* 1	* 1	* 5	2	6		
	Y-90-1	1	10	1	1	2	11		
	La-140-1	1	2	1	1	2	3		
	Sm-153-1	2	11	1	1	3	12		
Lu-177-1	5	7	1	1	6	8			
	小 計	90	555	27	64.5	117	619.5		
中 長 寿 命	Co-60-1	1	1	3	2.5	4	3.5		
	Zn-65-1	3	4	2	2	5	6		
	Rb-86-1			2	2	2	2		
	Ag-110m-1	1	1	3	3	4	4		
	Sb-124-1	3	14			3	14		
	Cs-134-1	1	1	1	0.5	2	1.5		
	Tm-170-1	3	25	1	2	4	27		
	W-185-1	1	1			1	1		
	Tl-204-1	1	2			1	2		
		小 計	14	49	12	12	26	61	
特 殊	Cr-51-2R	3	33	5	47	8	80		
	Cu-64-2R	3	20	1	1	4	21		
	小 計	6	53	6	48	12	101		
合 計	294	192,788	88	812.7	382	193,600.7			

\* 印はそれぞれ製品規格外のもので特殊サービスとして出荷

(2) 有機標識化合物

(数量 単位 mCi)

項 目	所内・所外 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
CLC-2	1	5			1	5		
CLC-3	2	15			2	15		
小 計	3	20			3	20		



(3) 線源ラジオアイソトープ

(数量 単位 mCi)

項目	所内・所外 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
CNB-1	1	530	1	2.7	2	532.7		
CNB-4	2	8,000			2	8,000		
IPB-1	1	888,000			1	888,000		
Ir-192	2	127,200	3	73,100	5	200,300		
小 計	6	1,023,730	4	73,102.7	10	1,096,832.7		

(註) Ir-192 は製品規格外のもので特殊サービスとして出荷

(4) 基準照射物質

(数量 単位 unit)

項目	所内・所外 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
Fe-1-b					2	2	2	2
Fe-1-c	1	2			1	1	2	2
Ge-1-c					1	1	1	1
Mo-1-b					1	1	1	1
Mo-1-c	1	1			1	1	2	2
Ce-1-b					2	2	2	2
Ce-1-c	1	10			1	1	2	10
Pr-1-b					1	1	1	1
Pr-1-c	1	1			1	1	2	2
Ir-1-b	2	3			2	2	4	3
Ir-1-c	1	3			1	1	2	3
合 計	7	20	7	7	14	27		

TABLE 2.9 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	44 年 1 月	2 月	3 月		
大 需 要	P-32-1	560	640	550	2,037	250	160			0.7	350	295	1,715	1,470	8,027.7
	P-32			1											1
	S-35-1	65	131	201	302	120	120	200	160	200	190	150	200	200	2,049
	I-131-1	5			2,020	70	145	86	30		20			1,659	4,035
	I-131								1,000.5						1,000.5
	Au-198-1	9,563		9,916	19,620	24,785	19,610	19,608	19,623	15,069	10,333	9,943	19,636	177,706	
	小 計	10,193	771	10,668	23,979	25,225	20,035	19,894	20,814.2	15,619	10,838	11,808	22,975	192,819.2	
短 寿 命	Na-24-2	5		19	20	67	49	40	40.5	14	29	26	39	348.5	
	K-42-2	12		2	4	14	9	29	17	15	6	21	4	133	
	K-42-2N			3	9								6	18	
	Mn-56-1												1	1	
	Cu-64-1	2		20	1			17	10			2	11	63	
	As-76-1												1	1	
	Br-82-2				15								1	15	
	Y-90-1					10							1	11	
	La-140-1								2				1	3	
	Sm-153-1					10							2	12	
	Lu-177-1			1				1	4				2	8	
	Br-82											6		6	
	小 計	19		45	49	101	58	87	73.5	29	35	55	68	619.5	
中 長 寿 命	Co-60-1			1					0.5			1	1	3.5	
	Zn-65-1		1	1			1	1	1			2		6	
	Rb-86-1				1		1							2	
	Ag-110m-1		1	1							1	1		4	
	Sb-124-1			11	1	2								14	
	Cs-134-1				1									1.5	
	Tm-170-1					2		10			5		10	27	
	W-185-1	1												1	
	Tl-204-1				2									2	
小 計	1	2	14	5	4	2	10	1		6	4	11	61		
特 殊	Cr-51-2R	5				21	1	30				23		80	
	Cu-64-2R					7			4	10				21	
	小 計	5				28	1	30	4	10		23		101	
合 計	10,218	773	10,727	24,033	25,358	20,096	20,021	20,893.7	15,658	10,870	11,890	23,054	193,600.7		

## (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	44年1月	2月	3月			
CLC-2		5													5
CLC-3				10			5								15
合計		5		10			5								20

## (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	44年1月	2月	3月		
CNB-1									530			2.7		532.7
CNB-4						1,900					6,100			8,000
IPB-1		888,000												888,000
Ir-192					17,100	183,200								200,300
合計		888,000			17,100	185,100			530		6,100	2.7		1,096,832.7

## (4) 基準照射物質

(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	44年1月	2月	3月		
Fe-1-b	1											1		2
Fe-1-c							2							2
Ge-1-c						1								1
Mo-1-b												1		1
Mo-1-c								1						1
Ce-1-b			1									1		2
Ce-1-c				10										10
Pr-1-b	1													1
Pr-1-c						1								1
Ir-1-b	1		2											3
Ir-1-c								3						3
合計	3		3	10		4		4				3		27

前年度実績 (1,735,465 mCi, 32 単位, 340 件) に比較して約 74% で, 約 445 Ci の減少である。これはおおむね精製 RI で約 33 Ci の増加にもかかわらず, 線源 RI で約 478 Ci の減少があったからである。

## 2.5.1 精製 RI の出荷状況

精製 RI の出荷量は 193,600.7 mCi で, 前年度実績 160,546 mCi に対して 120.6% と増加している。精製 RI の約 92% を占めているのは Au-198-1 (177,706 mCi) で, 前年度実績 (154,753 mCi) に比して約 115% で着実に増加している。S-35-1 は従来より国内全需要を満しているが, 本年度実績 (2,049 mCi) は前年度実績 (2,237 mCi) を下廻っており年々減少の傾向が見受けられる。

P-32-1 (8,027 mCi), および I-131-1 (4,035 mCi) は前年度実績 (2,140 mCi および 227 mCi) よりは著し

く増加しているが, まだ国内の需要に比べれば僅かなもので, 本年度の目標であった P-32-1 の国産化, I-131-1 の量産化が達成できなかったことを示している。

短寿命 RI (619.5 mCi) は前年度実績 (631 mCi) とほぼ同量で, 以前の 1 Ci 以上の出荷に対して約半量のままとっている。

中長寿命 RI (61 mCi) は前年度実績 (6 mCi) に比して約 10 倍であり項目も 9 種におよんでおりようやく利用者が原研の製品を使用しはじめたことが判る。

特殊 RI (101 mCi) は前年度実績 (特殊サービスとして 552 mCi) に比して約 20% と減少している。Cu-64-2R は前年度と同程度であるが, 特殊 RI の中で大量をしめる Cr-51-2R を輸入製品におきかえることができなかったので大幅の増加を果しえなかった。

これら精製 RI の利用機関別出荷表などを, TABLE 2.10 および Fig.2.4, Fig. 2.5 に示す。

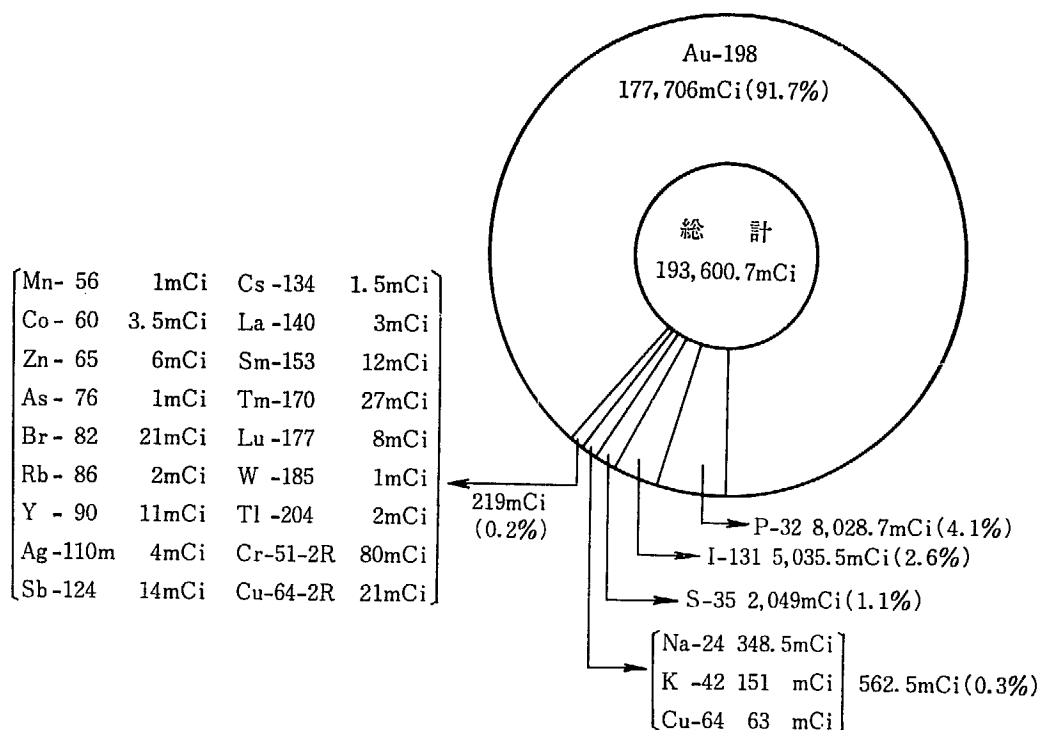


Fig. 2.4 精製ラジオアイソトープ頒布状況

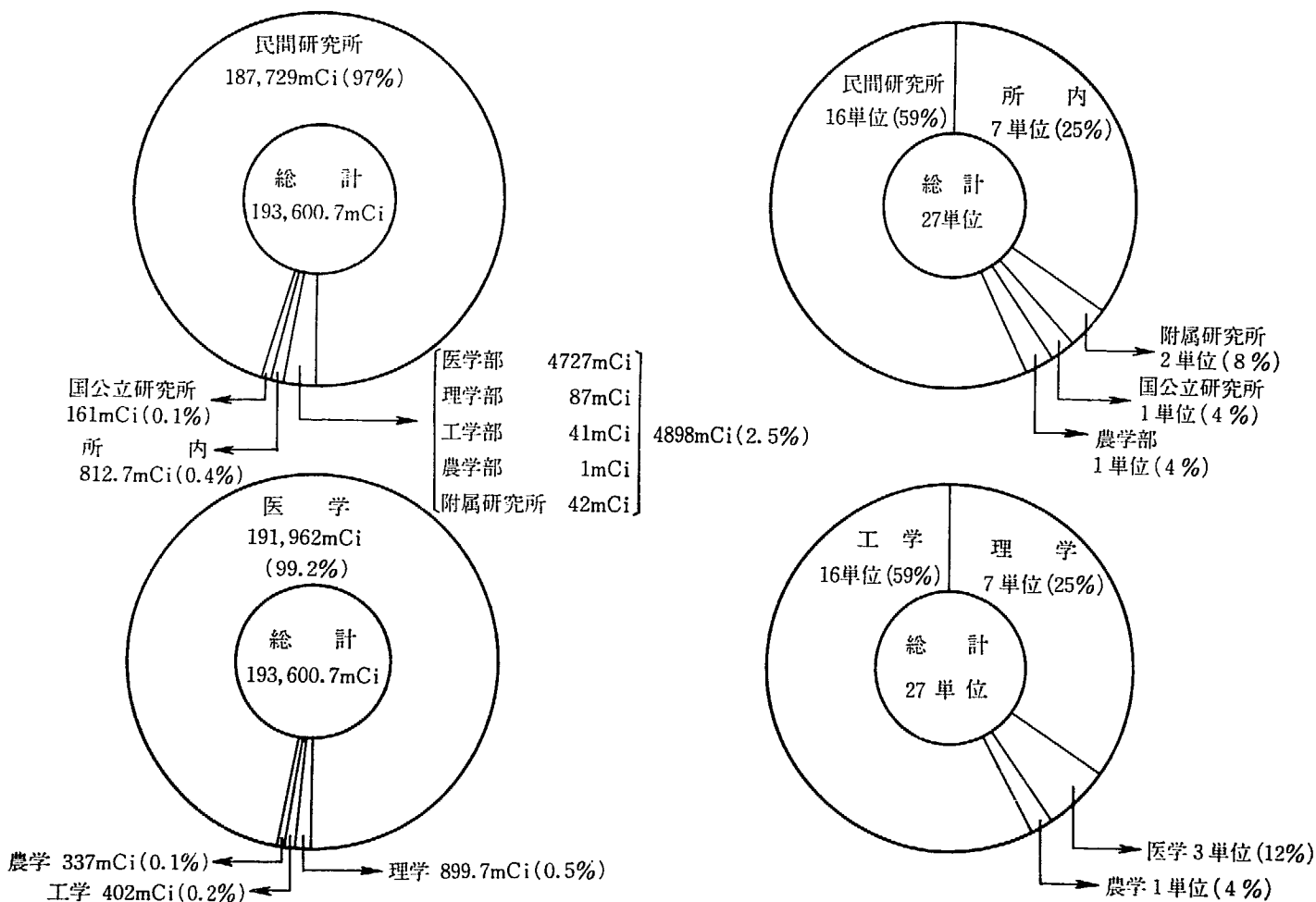


Fig. 2.5 精製ラジオアイソトープおよび標準照射物質の利用部門別利用状況

TABLE 2.10 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	利用機関 項目	大 学										民間研究所		国・公立 研 究 所		所 内		計		
		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			1	1			5	3,480			59	4,536			4	10.7	69	8,027.7	
	P-32														1	1	1	1		
	S-35-1			1	1			7	880			19	685			12	483	39	2,049	
	I-131-1											15	3,883			12	152	27	4,035	
	I-131											2	1,000			1	0.5	3	1,000.5	
	Au-198-1	9	57	7	31			2	7	1	10	53	177,470	3	90	13	41	88	177,706	
小 計	9	57	9	33			14	4,367	1	10	148	187,574	3	90	43	688.2	227	192,819.2		
短 寿 命	Na-24-2	3	15	4	4			66	190	2	30	7	40	7	35	13	34.5	102	348.5	
	K-42-2							38	85	2	2	11	40	2	6			53	133	
	K-42-2N							6	16							2	2	8	18	
	Mn-56-1															1	1	1	1	
	Cu-64-1			2	2	1	1	2	30			3	25	2	2	2	3	12	63	
	As-76-1															1	1	1	1	
	Br-82-2	1	1													3	14	4	15	
	Y-90-1													1	10	1	1	2	11	
	La-140-1							1	2							1	1	2	3	
	Sm-153-1	1	1												1	10	1	1	3	12
	Lu-177-1	2	2	1	1			1	2						1	2	1	1	6	8
	Br-82			1	1											1	5	2	6	
	小 計	7	19	8	8	1	1	114	325	4	32	21	105	14	65	27	64.5	196	619.5	
中 寿 命	Co-60-1	1	1													3	2.5	4	3.5	
	Zn-65-1	2	3									1	1			2	2	5	6	
	Rb-86-1															2	2	2	2	
	Ag-110m-1											1	1			3	3	4	4	
	Sb-124-1	1	1									2	13					3	14	
	Cs-134-1	1	1													1	0.5	2	1.5	
	Tm-170-1											2	20	1	5	1	2	4	27	
	W-185-1							1	1									1	1	
	Tl-204-1	1	2															1	2	
	小 計	6	8					1	1			6	35	1	5	12	12	26	61	
特 殊	Cr-51-2R	1	3					1	15			1	15			5	47	8	80	
	Cu-64-2R							3	19					1	1	1	1	5	21	
	小 計	1	3					4	34			1	15	1	1	6	48	13	101	
合 計	23	87	17	41	1	1	133	4,727	5	42	176	187,729	19	161	88	812.7	462	193,600.7		

\* 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。

精製 RI の大部分を占める Au-198-1 を大量に出荷した医薬品会社（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、大学医学部関係が圧倒的で、これらをあわせた医学関係は全出荷量の 99.2% となっている。また、所内の利用は 812.7 mCi で全体の 0.4% である。

基準照射物質では工学・理学関係が主であり所内の利用は 7 単位で全体の 25% である。

## 2.5.2 有機標識化合物の出荷状況

有機標識化合物の出荷は 20 mCi で前年度実績 31 mCi と同程度であった。原研で製造している有機標識基幹体の大量需要者への供給計画の策定が必要であるが、価格その他の点でこの計画がまともならず前年度なみの出荷にとどまった。

## 2.5.3 線源 RI の出荷状況

<sup>60</sup>Co 針状線源は、1 mCi/本のもの 532.7 mCi, 20 mCi/

本のもの 8,000 mCi 出荷した。前年度実績 (1 mCi/本のもの 888 mCi) に比して約 10 倍である。

$^{192}\text{Ir}$  線源は、前年度より照射を継続していた製品を 5 月に 888,000 mCi 出荷した。5 月より照射を開始し 9 月に出荷予定分は、JRR-2 事故による運転休止のため照射を中断し、比放射能が予定量の約 1/2 のものを特殊サービスとして出荷した。このものは、1 箇のカプセルの中に 2 箇詰合せをして使用する計画がたてられたが、利用者側が急いで海外製品を輸入したことによって僅か 20 Ci 程度の出荷 (予定量約 1,500 Ci) にとどまった。また、12 月および 44 年 2 月に出荷予定分は JRR-2 の運転休止、JMTR の運転開始延期のため製造を中止したので、 $^{192}\text{Ir}$  線源の量産化および出荷量の増大の計画

は画餅に帰した。

#### 2.5.4 基準照射物質の出荷状況

基準照射物質 (27単位) は前年度実績 (32単位) と同程度である。内容は、Ce-1, 12 単位, Ir-1 6 単位などで毎年利用される項目に変化があることが特徴的である。

#### 2.6 試験依頼

43 年度は試験依頼はなかった。これは前年度で生産第 1 期 5 ヶ年計画が完了したため、製品開発化に一段落があったことを示している。

### 3. 研究開発の成果

#### 3.1 RI 製造技術の開発

RI 製造技術の開発においては、大需要精製 RI 製造技術の開発と一般無機精製 RI 製造技術の開発の二項目が平行して実施された。前者の実施は、製造技術課の技術 2 係、製造課の製造 1 係、製造 2 係が分担して実施した。後者は製造技術課技術 1 係が総括班的な役割をはたして、製造部の全体の係が分担して実施した。

本文中には、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{32}\text{P}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{203}\text{Hg}$  などについて述べたが、それ以外にも  $^{99}\text{Mo}$  をはじめとするいくつかの核種についての製造技術の開発が進行中である。

##### 3.1.1 $^{131}\text{I}$ 製造技術の開発

###### (1) 乾留法による $^{131}\text{I}$ 製造技術の開発

中性子照射した二酸化テルルからの乾留法による  $^{131}\text{I}$  の分離は、二酸化テルルの照射に対する安全性と分離の簡易さからしばしば  $^{131}\text{I}$  の製造に利用されている。しかし、この方法は、 $^{131}\text{I}$  の回収が高収率で行なわれる温度 ( $\sim 750^\circ\text{C}$ ) になると、揮発したテルルによる  $^{131}\text{I}$  製品の汚染が無視できなくなる。乾留法の簡易さを保ち、かつ、テルルの混入量を減らすために、より低い温度で  $^{131}\text{I}$  を放出するテルル化合物の利用を試みた。Fig. 3.1 にテルル酸、ポリメタテルル酸 (現在湿式法による  $^{131}\text{I}$

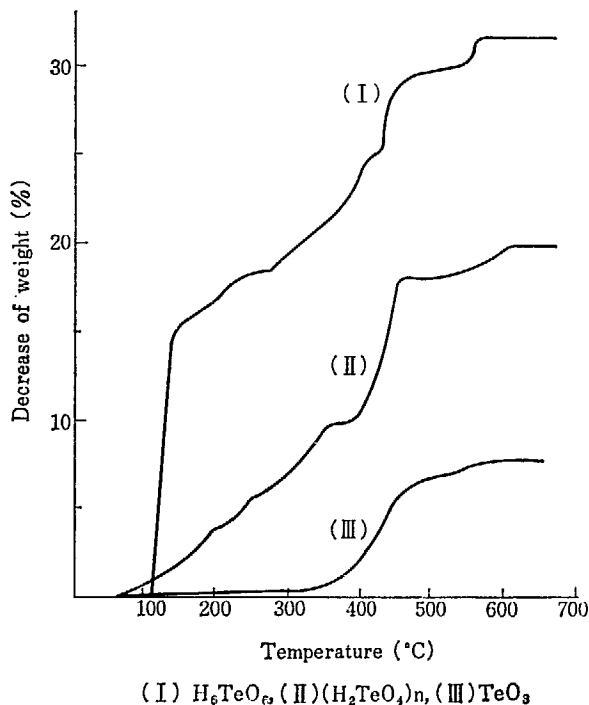


Fig. 3.1 Thermal decomposition of tellurium compounds

製造のターゲット物質として使用されているもの)、および三酸化テルルの熱天秤による分析結果を示す。これらの化合物を JRR-3, 4 で照射した後 Fig. 3.2 に示す装置により乾留法による  $^{131}\text{I}$  の分離の実験をおこなった。結果は Fig. 3.3 に示すように、どのテルル化合物の場合にも  $400^\circ\text{C}$  近くで急速な  $^{131}\text{I}$  の放出が見られた。この温度付近では、三酸化テルルから二酸化テルルへの分解が始まり (Fig. 3.1)、この際結晶形の転移 (おそらくは無定形から正八面体結晶へ) により  $^{131}\text{I}$  が放出されるものと考えられる。事実、 $450^\circ\text{C}$  以上に加熱したこれらのテルル化合物には明らかな膨張が見られる。照射したテルル化合物からは 90 % 以上の  $^{131}\text{I}$  を放出させることができたが、アルカリ捕集液 (Fig. 3.2 F) に捕集された  $^{131}\text{I}$  は 10~20 % に過ぎず、Fig. 3.2 の装置の連結管 (I) に強い  $^{131}\text{I}$  の吸着が認められた。この部分を点線 (J) のように電熱線で  $100^\circ\text{C} \sim 200^\circ\text{C}$  に加熱することにより収率は 50~60 % に増加したが、なお加熱部分の直後の部分に吸着が認められた。

ここで用いられた 3 種のテルル化合物からはどの場合も  $450^\circ\text{C} \sim 500^\circ\text{C}$  に加熱すれば、80~90 % の  $^{131}\text{I}$  が容易に分離でき、製品中にはテルルの混入は全く認められない。特に三酸化テルルは  $400^\circ\text{C}$  近くまで熱に安定で、現在  $^{131}\text{I}$  の製造に用いられているポリメタテルル酸よりさらに苛酷な照射に耐えるものと思われる。今後テル

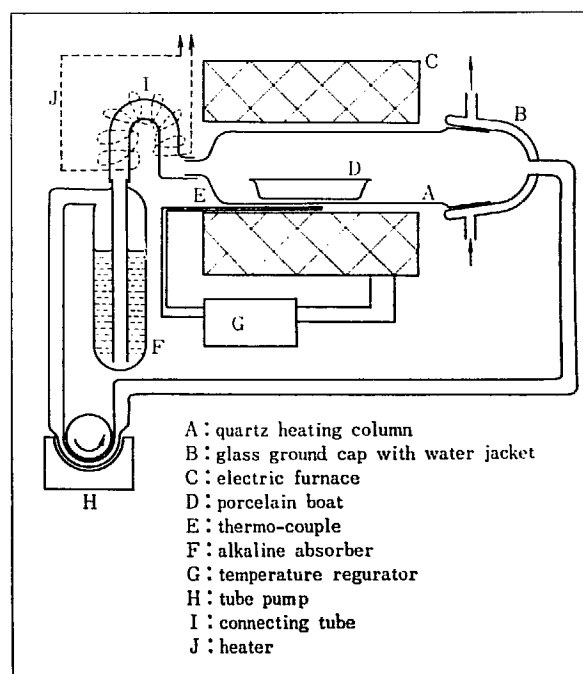


Fig. 3.2 Apparatus for distillation of  $^{131}\text{I}$

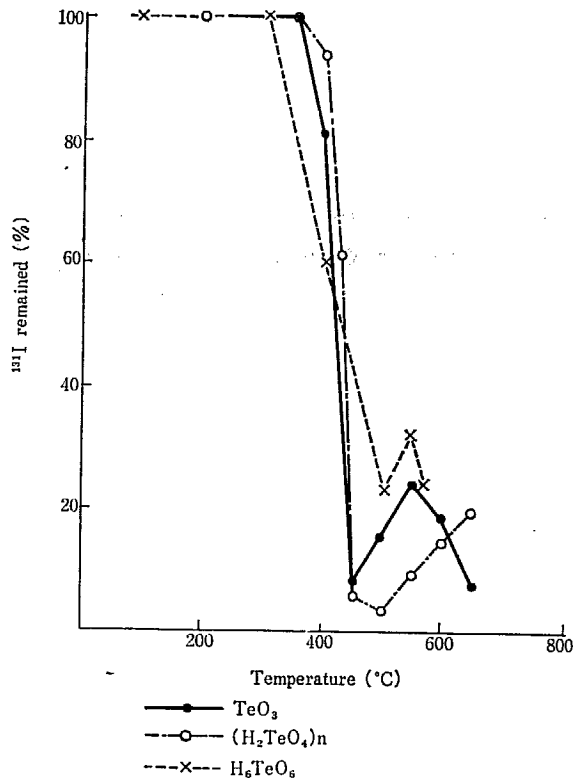


Fig. 3.3 Release of <sup>131</sup>I from neutron irradiated tellurium compounds

ルから遊離した <sup>131</sup>I の吸着を防ぐ装置の製作, 捕集した <sup>131</sup>I の化学形, 照射条件とターゲット物質の分解の度合などの問題点を解決すれば本法の利点を生かした大量 <sup>131</sup>I 製造技術が確立されよう。

(2) <sup>131</sup>I 製造施設用活性炭フィルターの効率測定

現在 RI 製造棟 309 室の製造施設の排気系には, <sup>131</sup>I 用活性炭フィルター (アメリカ, パーネビィチェニイ社 7FE 型) が 3 基設置され, その中 2 基を常時使用している。この施設は運転開始以来すでに 2 年を経過しており, 使用しているフィルターの効率の低下が予想されるが, 現在迄耐用年限についてなんら数値的にえられていない。フィルターの交換時期を定めるにはフィルターの耐用年限を把握することが必要である。このためには, フィルターの <sup>131</sup>I の捕集効率を連続的に測定し, フィル

ターの捕集効率低下を見極めなければならない。

従来フィルターの効率測定は <sup>131</sup>I 製造時にスタックからの <sup>131</sup>I の放出量の算出に必要なため, 放射性汚素の捕集方法, 捕集フィルター, 測定法などの開発が放射線管理課によりおこなわれてきた。現在これらを改良した方式が放射線管理課の定常測定管理法としてとり入れられている。

本年度にはこれらの捕集, 測定方式を用いて, <sup>131</sup>I 製造施設で大量製造をおこないながら同施設に設置されている A, B, C 3 基の活性炭フィルター中の A, B 2 基の <sup>131</sup>I 捕集効率を知るため, 各前後での <sup>131</sup>I の捕集, 測定を第 4 四半期に開始した。 <sup>131</sup>I 製造時を起点として 4 回連続測定した結果から求められた <sup>131</sup>I 捕集効率を TABLE 3.1 にまとめて示した。TABLE 3.1 中フィルター A+B の捕集効率は計算により算出した値である。この中で見られる通りフィルター A の <sup>131</sup>I 捕集効率は b-903-S の製造時の測定で, 当初の効率 90 % を急激に下回っていることがわかった。しかし, 活性炭フィルターの場合には, 捕集効率の低下が単に活性炭の老化によるものとは考えられず, またその耐用年数に関する情報は現在極めて少い。このためこの結果のみでフィルター性能の劣化と断定することは難かしいが, 使用期間を考慮してフィルターの交換をおこなった。なお, 耐用年数の決定に必要なデータの集積は今後とも継続しておこない, 最終的にはフィルターの捕集効率の劣化を製造作業をおこなう前に予測できるような各種基準値の決定と検出器の開発を検討中である。このほかに, 予算削減を目的とした国産の活性炭フィルターの開発もおこなっているが, 試作 (I) のフィルター捕集効率を測定した結果, 7EF 型と比較して 10~20 % の低捕集効率にとどまり, 試作 (II) のフィルターは活性炭の充填率をあげることと機構および材質についても改良を加えたものについて発注を行なった。

3.1.2 <sup>32</sup>P 製造技術の開発

(1) 外国照射を利用した製造技術の実用化

JRR-2 の運転停止にともなって, 外国炉で照射した

TABLE 3.1 Collection efficiency of charcoal filter (7FE type) for airborne iodine

Production No.	Date of Production	Period of experiment	Filter-A (%)			Filter-B (%)			Filter-A+B (%)			Relative-humidity (%)	Room-Temp (°C)	Concentration of iodine in air (μCi/cc)
			*Max	*Min	**Avg	Max	Min	Avg	Max	Min	Avg			
b-901	44 2/26~2/27	44 2/25~2/27	97	81	85	59	16	43	99	89	90	60~90	11~18	10 <sup>-5</sup> ~10 <sup>-9</sup>
b-902-S	3/19~3/20	3/18~3/26	76	66	70	59	37	45	90	82	84	50~95	15~20	10 <sup>-5</sup> ~10 <sup>-9</sup>
b-903-S	4/9~4/10	4/8~4/16	56	13	40	61	—	25	82	30	55	60~90	15~20	10 <sup>-6</sup> ~10 <sup>-9</sup>
*** b-904-S	6/4~6/12	6/3~6/12	97	94	95	—	—	—	95	92	93	—	18~23	10 <sup>-5</sup> ~10 <sup>-9</sup>

\* The maximum and minimum efficiencies of observations of definite time intervals

\*\* Average efficiency during the whole period of the experiment

\*\*\* The Filter-A was replaced with a new one before the experiment

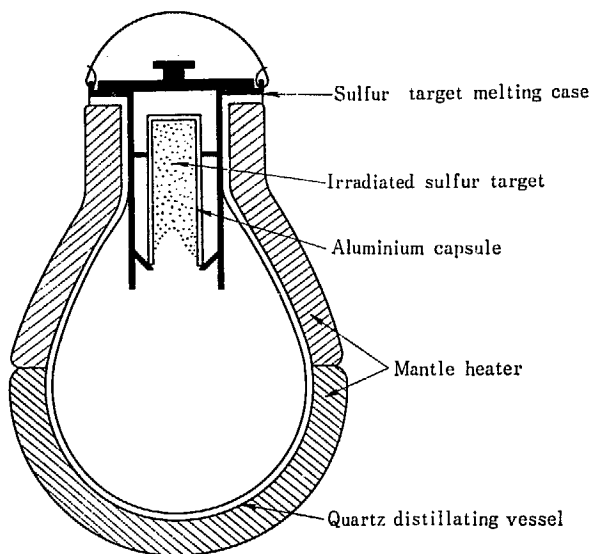


Fig. 3.4 Device for melting irradiated Sulfur target

イオウを輸入し、これから  $^{32}\text{P}$  を製造する方法を開発し、実用化した。まず輸入するイオウを入れた照射カプセルの寸法が不明のため、アルミニウム製カプセルの外径が 3 mm から 33 mm まで、また肉厚が 3 mm までどのように変化しても開封可能な万能カプセル開封器を製作し、 $^{32}\text{P}$  製造セル内に設置した。

次にカプセル開封後、カプセルに溶融付着しているイオウをルツボに溶かし出す方法を検討した。この方法としては Fig. 3.4 に示すように、石英製蒸留ルツボにアルミニウム製のターゲット溶出用つりかごをおき、開封後のカプセルを逆に入れ、ルツボの上半分だけを加熱してイオウターゲットをルツボ内に溶かし出すことにした。

この方法では (a) 溶出中のイオウの発火、燃焼の防止 (b) ルツボのすり合せ部分へ付着したイオウによる容器の気密性の低下 (c) カプセル寸法の異なるものをどう扱うのかなどが問題であった。(a), (b) についてはルツボの上半分だけを加熱し、この熱のかけ方をいろいろに変化させて実験して最適の条件を求めることができた。また、(c) については外径 30 mm  $\phi$  +90I を最大のカプセルとして、径の小さいカプセルについてはアルミニウム製のさやをつけることで解決できた。

実験にもちいたイオウは GETR (General Electric Testing Reactor) の速中性子束  $2.77 \times 10^{14} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  の位置で 34 日間照射したものでイオウ使用量は 41.6 g であった。その結果、速中性子束から計算した生成量の 22 % の  $^{32}\text{P}$  を回収することが出来た。GETR で照射に使用しているカプセルは外径 31.0 mm  $\phi$   $\times$  82.25 mm 肉厚 3.4 mm のアルミニウムカプセルであり、前に述べた方法で完全に処理出来た。続いて、先方表示量 5.6 Ci, を輸入し、3.9 Ci および 2.9 Ci を回収した。

#### (2) 製品収率向上のための実験

製品として回収できる  $^{32}\text{P}$  の量は 40 % 前後であり、

残りの  $^{32}\text{P}$  の大部分はカプセル内面に付着することがわかった。そこで、カプセル内面をバフ研磨、アルマイト処理その他で処理することによりカプセルに付着する  $^{32}\text{P}$  の量を少なくする実験をおこなうと同時に、付着した  $^{32}\text{P}$  を製品として回収する方法を検討した。

$^{32}\text{P}$  のカプセル内面への附着は内面を研磨したカプセルよりも内表面を酸化させたカプセルの方が小さいという傾向が観察されたが、くわしくは今後の実験にゆだねねばならない。内表面に付着した  $^{32}\text{P}$  はイオウ、アルミニウムの混合した状態でアルミニウムカプセルから付着量の 70~80 % を回収できるが、アルミニウムと分離する段階で  $^{32}\text{P}$  が失われるので、 $^{32}\text{P}$  をアルミニウムから収率よく分離する方法について今後ひきつづき検討を行なう。

#### 3.1.3 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 製造技術の開発

医薬用として需要の多い  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  は一般に  $^{99}\text{Mo}$  をアルミナカラムに吸着させ  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータとして市販されている。原研で  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を供給する場合、① F.P より  $^{99}\text{Mo}$  を無担体で分離し、ジェネレータとして供給する方法と ②  $^{99}\text{Mo}$  ( $n, \gamma$ )  $^{99}\text{Mo}$  反応により生成した  $^{99}\text{Mo}$  から  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を分離し  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液として供給する方法がある。①については 3.5.1 で述べられているが、不可避免的にほぼ同量の  $^{131}\text{I}$  を取扱わなければならない、製造施設の開発に問題がある。速やかに当面の要求に応ずるため、②の方法を採用することとし、42 年度に引きつづき抽出法による  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の分離法を検討した。

照射した酸化モリブデンを 5 N 苛性ソーダに溶解し、メチルエチルケトン (MEK) で  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を抽出し、有機溶媒を蒸発除去後、さらに  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を精製する方法がとられていたが、MEK を蒸発乾固して除く操作は、1) 蒸発乾固に時間がかかる。2) 溶媒中の有機性不純物が蒸発残渣に混入して以後の処理を妨害する。3) MEK の引火点が高い ( $-1^\circ\text{C}$ ) ため、蒸発中に火災の危険がある。などの欠点があった。

そこで、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の MEK 抽出液の蒸発乾固操作をはぶき、直接陽イオン交換樹脂とアルミナカラムに通して処理する方法を検討した。

$\text{Na}^+$  イオンを陽イオン交換樹脂で吸着除去後、アルミナカラムを通すと、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  は MEK 溶液から直接吸着されることが確かめられた。アルミナに吸着された  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  は、0.1 N 塩酸または生理食塩水 (0.9 %) で容易に溶離される。塩酸で溶離した場合には約 100  $\mu\text{g}$  の  $\text{Al}^+$  イオンが混入し、生理食塩水の場合には、その混入量は 4  $\mu\text{g}$  以下であり、生理食塩水は溶離剤としてすぐれていることがわかった。

以上の実験結果にもとづいて、Fig. 3.5 に示したような装置をケーブ内に組み立て、照射した酸化モリブデン (約 50 g) を次の操作により処理した。



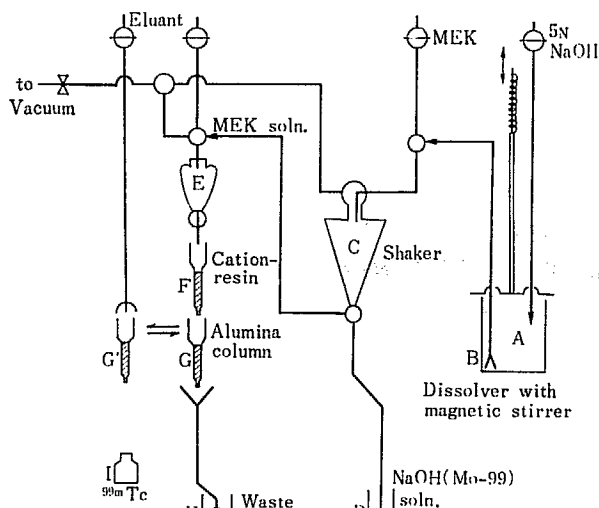


Fig. 3.5 Flowsheet of the <sup>99m</sup>Tc separation process

a) 酸化モリブデンを溶解槽 A に移し、5 N水酸化ナトリウム溶液 200 ml を加え、マグネチックスターラで撹拌して溶解する。

b) 溶液を 30~100 mesh のガラス粉末を充填したフィルター B を通して、第一分液ロート C に移す。

c) MEK 100 ml を C に加え、約 1 分間振とうして <sup>99m</sup>Tc を有機相に抽出する。振とう終了後、水相を第一廃液だめ D に棄て、有機相を吸引法によって第二分液ロート E に移す。

d) 有機相を陽イオン交換樹脂カラム F、つづいてアルミナカラム G に通し、通過液は第二廃液だめ H に棄てる。カラム F および G を水 20 ml で洗い、洗液も廃液だめ H に集める。

e) アルミナカラムを G' の位置に移し、生理食塩水溶液 20 ml を流して <sup>99m</sup>Tc を溶離し、試料保存瓶 I に集める。

以上の操作に要する時間は約 1 時間であった。またこの条件での <sup>99m</sup>Tc の生成量は約 500 mCi であり、そのうちの 95 % 以上が回収できた。

放射化学的純度は 99.99 % 以上であった。

3.1.4 <sup>14</sup>C 製造技術の開発

(a) 窒化アルミニウムの試験

近い将来 JMTR において照射する <sup>14</sup>C 製造用ターゲット窒化アルミニウムの種々の試験を行なった。TABLE 3.2 に現在所持する数種の窒化アルミニウムの品位、放射化分析により求めた金属元素不純物の量、燃焼法により求めた炭素の量を示す。

金属不純物は特に問題になるようなことは見られないが、炭素含量が <sup>14</sup>C 製造用ターゲット物質として十分小さいのはイギリス製のものだけである。現在仮定する照射条件で生成する <sup>14</sup>C は窒化アルミニウム 100 g につき 0.5 Ci (0.1 g <sup>14</sup>C) であることを考えると、これも許容できる限界であろう。

42 年に起きた窒化アルミニウムカプセルの照射直後の破損事故原因調査の一環として、照射後の窒化アルミニウム含量および分解気体発生量の測定を行なった。3×10<sup>19</sup> nvt で 5 サイクル連続照射すると窒化アルミニウム 1 g あたり約 0.5 cc の窒素の発生が認められた。窒化物含量には有意の減少は見られなかった。

照射した窒化アルミニウムから <sup>14</sup>C を分離する方法として、高比放射能で分離し易いという点で乾式法の開発を進めて来た。この際粉末窒化アルミニウムを酸素気流中で高温に熱すると爆発するというような情報があり、Fig. 3.6 に示す装置により粉体爆発の実験を行なった。約 1000 °C に熱した電熱線上に酸素気流により窒化アルミニウムを吹込んで爆発しなかった。

粉末状の窒化アルミニウムを高中性子束で照射すると塊状化するという情報もあり、照射の影響を見るために JRR-4 による照射中の温度測定、および加熱による外観の変化の観察を行なった。6 g の窒化アルミニウムを直径 15 mm 長さ 30 mm の円柱形に成型し JRR-4 で 3.5×10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>・sec の中性子束で照射したとろろ、中心部の温度は 160 °C になった。窒化アルミニウムをヘリウムとカプセルに封入する時は、若干の冷却効果が見られ、空気封入の場合よりも 16 °C 低かった。窒素気流中で窒化アルミニウム 1000 °C をに熱したが全く変化しなかった。

(b) 窒化アルミニウム照射技術開発

粉末の窒化アルミニウムは照射後の取扱いが煩雑であるばかりでなく、先に述べた粉体爆発あるいは照射中の塊状化の問題がある。これらの問題を解決する一つの方

TABLE 3.2 Qualities of several aluminum nitrides

AlN	AlN %	C %	Mn	Na	Cu	W	metallic impurities (ppm)							
							Ga	K	Cr	Hf	Ta	Co	Fe	Sc
German	83.1	0.47	180	26	180	42	<90	<30	3.9	0.7	0.8	3.3	< 0.9	<0.02
American	96.5	0.61	32	27	54	< 4	<50	<60	2.9	4.4	1.3	< 0.2	< 1.2	0.04
British	96.0	0.04	8.7	167	8.4	<10	19	163	0.2	0.2	< 0.1	< 0.1	8.3	0.14
Japanese	94.4	0.34	8.7	12	16	< 6	41	<90	0.5	0.1	< 0.2	< 0.1	1.2	0.17
Japanese	95.9	0.14	48	52	75	< 1	<20	<30	1.1	0.2	< 0.1	<0.05	5.3	0.1
Japanese	94.7	0.14	28	32	56	< 1	<10	<15	0.8	0.1	< 0.2	<0.05	4.8	0.08

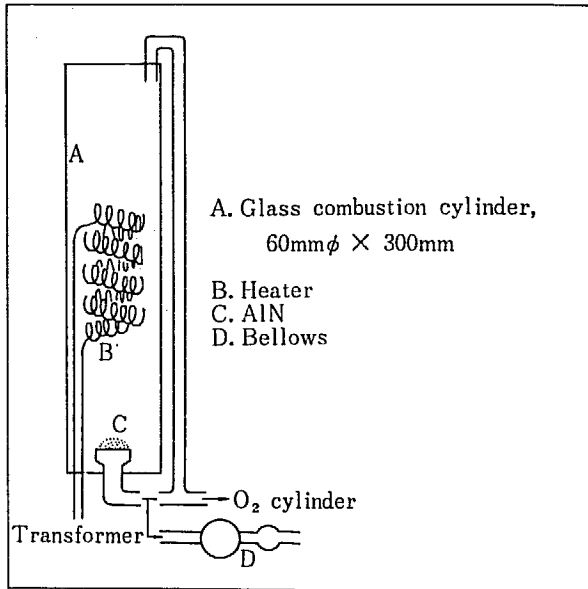
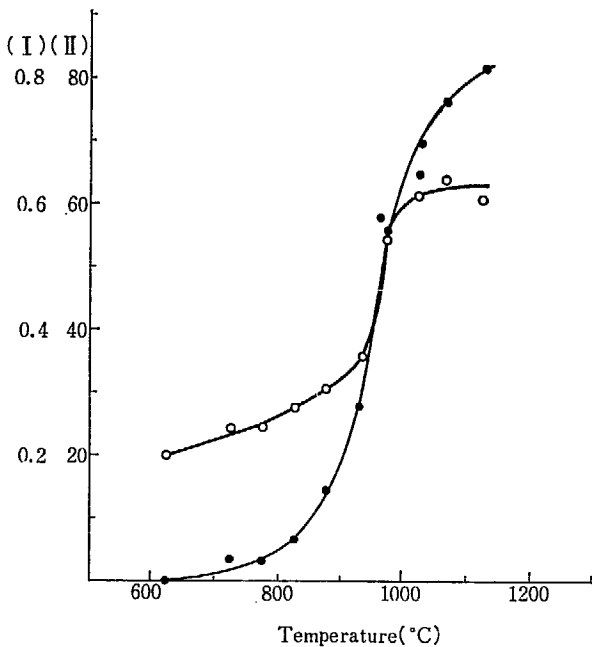


Fig. 3.6 Apparatus for explosion of AlN



(I) —○— Amount of carbon released, percentage in AlN  
 (II) —●— Proportion of AlN burnt, per cent.

Fig. 3.7 Temperature effects on burning of and release of carbon AlN

法として、錠剤に成型した窒化アルミニウムを照射することを試みた。1gの窒化アルミニウムに10%のアルミニウム粉末を加え1.4 t/cm<sup>2</sup>の圧力で直径15mmの錠剤を作った。錠剤の硬度を増すために窒素気流中で焼結することも試みた。これら錠剤は一部は来年度初頭の<sup>14</sup>C分離実験のためにJRR-2に照射を依頼し、他は炭素分離の実験に供した。

### (c) <sup>14</sup>C分離法の開発

前年度に引続き酸素気流中における窒化アルミニウムの燃焼実験を行なった。Fig. 3.7に燃焼温度と放出され

た炭素の量および窒化アルミニウムから酸化アルミニウムへの燃焼割合の関係を示した。1000°C~1200°Cの範囲で窒化物の燃焼は完全でないにもかかわらず、炭素の収量はほとんど定量的になる。この温度では錠剤は若干高い炭素収量を与え、焼結錠剤では逆に粉末の場合の約80%が回収された。ここで得られた知見をもとにして来年度より<sup>14</sup>Cの分離実験を行なう。

<sup>14</sup>Cの分離実験では常に<sup>14</sup>Cの収率の算定の問題がある。これを解決する一方法として、照射した窒化アルミニウムを硫酸で分解して<sup>14</sup>Cを分離することを計画した。予備実験として照射していない窒化アルミニウムを処理して炭素の収量を調べた。この実験では、炭素の約15%が回収されたに過ぎず、残りの75%は不溶性の残さを燃焼法で処理して回収することができた。また、空試験の結果から22N硫酸500ml中に1.0~1.4mgの炭素が見出された。この実験も来年度初頭に乾式法と併行して行なう予定である。

### 3.1.5 (n, γ)反応により製造するR1

#### (1) 新核種についての技術開発

##### (a) <sup>203</sup>Hgの製造技術の開発

Johnson Matthey社製酸化第二水銀をターゲットとして採用し、放射化分析法で純度を検討した。その結果Ru 65 ppm, Ag 0.20 ppm, Tl 2.5 ppmの不純物が確認された。

このターゲットは99%以上の放射化学的純度の<sup>203</sup>Hg製品をうるのに十分な純度であることがわかった。

酸化水銀を硝酸または塩酸と過酸化水素の混合溶液で溶解し、蒸発乾固したのち1N塩酸溶液とする方法について検討した。その結果100°Cで蒸発乾固したさいは水銀塩の飛散は1%以下であったが、160°Cで蒸発乾固したさいは塩酸と過酸化水素を使った場合20%以上が飛散した。

##### (b) <sup>75</sup>Seの製造技術の開発

三菱金属製99.999%の金属セレンをターゲットとして選び、放射化法で不純物の定量を行なった。その結果アンチモンが0.2 ppm検出されたほかには不純物はなく、放射化学的不純物の主なものは<sup>77</sup>Se(n, p)<sup>77</sup>As反応により生成した<sup>77</sup>Asであった。

硝酸に溶解し、蒸発乾固したのち1N塩酸溶液にする方法について検討した。蒸発乾固のさいやはりH<sub>2</sub>SeO<sub>3</sub>の化学形で飛散しやすく、十分注意して蒸発乾固しなければならないことがわかった。また硫酸バリウムによりセレン酸の生成量を定量したが検出されなかった。

##### (c) <sup>122,124</sup>Sbの製造技術の開発

三菱金属の99.99%金属アンチモンをターゲットとして選び放射化分析法により不純物の定量を行なった。

硫化物沈殿法、陰イオン交換法、二酸化マンガン共沈法などにより定量したが不純物は定量できなかった。製

品化するさいの照射条件に合せて放射化学的純度を計算したところ、99 %以上の純度は十分得られることがわかった。

### (2) 新しく購入したターゲットの検討

(n,  $\gamma$ ) 反応を利用して製造している精製 RI にもちいられるターゲットは、あらかじめ放射化分析その他の分析法によつてターゲット中に混入している不純物の量が同定されている。それによって製品の放射化学純度を保証している。42 年度中にこうしたターゲットのうち Ag, Au,  $K_2CO_3$ , Fe,  $Rb_2CO_3$ ,  $CaCO_3$  の在庫が切れたため、新しいターゲットを購入し放射化分析をおこない、純度検定をおこなった。その結果をまとめて TABLE 3.3 に示す。

Ag ターゲットは 1 mm  $\phi$  の銀線であり、新旧共に田中貴金属製の製品である。新しいターゲットを使用し、 $1 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·sec の中性子束で 240 時間 1 cycle とし 13 cycle 照射し 7 日後の Ag-110 m の放射化学的純度は 99.99 %以上となることわかる。

Au ターゲットは新旧共に田中貴金属製の 1 mm  $\phi$  の金線である。新しいターゲットには Ir の含量がいちじるしく少なくなっている。また Sb も検出されなかったが、Ir, Sb は全ターゲット中にかたよって分布していることがわかった。もちろん <sup>198</sup>Au 製造用のターゲットとして充分使用できる。

$K_2CO_3$  ターゲットは新旧共に関東化学製特級試薬である。このターゲットを  $1 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·sec の中性子束で 17 時間照射した場合 <sup>42</sup>K の放射化学的純度は 17 半減期にわたって 99 %以上の純度を保つ。

Fe ターゲットは横沢化学製の旧ターゲットに比し、Mituwa 化学製の新しいスポンジ鉄ターゲットは不純物の含量が一ケタ多いようである。しかし、熱中性子束  $1 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·sec 速中性子束  $3 \times 10^{11}$  n/cm<sup>2</sup>·sec で 280 時間照射した場合には <sup>54</sup>Fe(n,  $\alpha$ ) <sup>51</sup>Cr; <sup>54</sup>Fe(n, p) <sup>54</sup>Mn 反応によって生成される <sup>51</sup>Cr, <sup>54</sup>Mn 等を考慮に入れても <sup>59</sup>Fe の放射化学的純度を 99 %以上に保つことが可能である。

$Rb_2CO_3$  ターゲットは新旧共に Johnson Matthey 社製 RbCl を購入し、精製して  $Rb_2CO_3$  に化学形をかえた試薬であり、古いターゲットに Cl が多いのは完全に精製できなかったためと考えられる。新しいターゲットでは  $1 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·sec の中性子束で 240 時間照射した場合、<sup>86</sup>Rb は 5 半減期以上にわたって 99.9 %以上の放射化学的純度を保つことができる。

$CaCO_3$  ターゲットは新旧共に Johnson Matthey 社製試薬である。新ターゲットを  $1 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·sec の中性子束で 240 時間 1 cycle で 13 cycle 照射し、<sup>47</sup>Ca( $T_{1/2} = 4.7$  d) および <sup>47</sup>Ca  $\xrightarrow{\beta^-}$  <sup>47</sup>Sc( $T_{1/2} = 3.43$  d) を崩壊させるため、60 日放置すれば <sup>35</sup>Cl(n, p) <sup>35</sup>S 反応等による

TABLE 3.3 Contents of impurities in replenished target materials determined by activation analysis

Target material	Impurity checked	Content(ppm)	
		In existing target	In replenished target
Ag	Na	13.	0.45
	Mn	0.21	0.061
	Cu	9.2	4.3
	Au	1.8	6.2
	Sb	5.9	0.22
	Co	1.2	0.022
	Zn	—	0.0086
	In	—	0.0015
Au	Ag	54.	30.
	Ir	84.	0.017
	Sb	1.7	—
$K_2CO_3$	Na	425.	180.
	Mn	12.	0.0022
	Cu	3.5	5.5
	Rb	45.	21.
	Zn	—	0.031
	Co	—	0.0036
	Fe	—	0.82
Fe	Co	0.52	2.9
	Ag	—	1.2
	Au	—	1.6
	Sb	0.043	0.13
	Zn	—	<0.90
	Cr	0.046	0.76
	Mn	2.2	—
	Na	1.4	—
	Cu	0.81	—
$Rb_2CO_3$	Zn	0.58	<3.0
	Sb	0.67	0.22
	Cs	0.55	9.4
	Cl	135.	<0.0023
	Ir	1.1	—
$CaCO_3$	Sb	1.1	0.12
	Sc	0.077	34.
	Cr	2.3	<0.036
	Zn	17.	<0.38
	Sr	12.	3.3
	Cl	125.	150
	Ba	—	2.8
	Co	—	0.052
	Ir	—	$1.5 \times 10^{-5}$

<sup>35</sup>S を考慮に入れても 99% 以上の <sup>45</sup>Ca の放射化学的純度はたもてる。

### 3.2 特殊 RI 製造技術の開発

昭和 43 年度においては、ホットアトム効果を利用する高比放射能 <sup>64</sup>Cu の定常生産化を達成した。この方法

により得られた製品は、高中性子束炉の定常運転によっても容易に得がたいほど高い比放射能のものであり、少なくとも現状において諸外国でこのような高い比放射能の  $^{51}\text{Cr}$  を大量に、しかも低廉に供給できることはない。一方ホットアトム効果を利用する高比放射能  $^{51}\text{Cr}$  の製造技術に関しては、技術開発を続行しているが、本年度中に量産化について一層の拡充を行ない、製造量の面からは我国における年間全消費量を十分供給できる水準に達した。しかし製品の比放射能についてはなお問題点があり、原子炉の運転時間の延長に伴う比放射能の一時的低下は克服できたが、高濃縮度の安定濃縮同位体を高中性子束で照射してえられる製品を凌駕する  $^{51}\text{Cr}$  の製造技術を確立するために、さらに次年度にもひきつづいて検討を行う予定である。なお需要の多い医用に使用可能な高比放射能  $^{65}\text{Zn}$  について検討を開始した。

### 3.2.1 高比放射能 $^{51}\text{Cr}$ 製造技術の開発

高比放射能  $^{51}\text{Cr}$  は昭和 42 年度においてカタログ化を完了し、以来販布を行ってきたが、製造法の特殊性に基因するいくつかの問題点が未解決である。とくに製造法の基礎となるホットアトム効果自体にも不明な点が多く、安定した製品を定常的に供給するために解決されねばならない多くの技術的問題点がある。昭和 43 年度から原子炉の運転時間が従来の 130 時間から 288 時間に延長されたことにより大きな問題点があらたに表面化してきた。すなわちこの照射時間の延長により製品収量の増加が予測されたにもかかわらず、実際のプロセスの結果では予測値の半量にも達せず、さらに製品の比放射能が従来の 1/2 以下に低下した。これらの問題を早急に解決するために、プロセスの改良とこれを量産化にうつすための装置の改修を実施し、これを終了することによって従来の製品と同等の品質のものを出荷できるようになり、1 バッチ製品量の向上を可能とした。

#### (1) 基礎的検討

従来の 130 時間照射から 288 時間照射に切替えたとき

のクロム酸カリウムは黒色に着色し、この試料を溶解すると黒色の不溶性物質が残り、従来のプロセスで製造すると製品の比放射能が 30 Ci/g·Cr 以下となり、従来の製品の平均値 60 Ci/g·Cr の半分以下に低下した。また照射時間の延長によりターゲット中に生ずる  $^{51}\text{Cr}$  の化学形分布に変化がおり、還元形のクロムを捕集する操作において分離の収率が著しい低下がみられた。これらの問題を解明するためにプロセスと同様な沈殿法による分離のほかに濾紙電気泳動法を併用して基礎的実験を繰返した。その結果不溶性のフラクションの割合は溶解液の組成および分離条件によって異なり、濾紙電気泳動法で分離したばあい、全生成放射能の 40 % がこのフラクションに見出されるばあいがあり、またこのフラクションの比放射能は 0.8~10 Ci/g·Cr 程度であって、このフラクションが製品中に混入すると製品の比放射能の低下することが明らかとなった。したがってプロセスの工程とそれに適する製造装置の開発を行なった。

#### (2) 製造工程と装置の改良

基礎実験の結果から照射済みのターゲット中に生ずる不溶性物質を除去することができるような工程をとり入れ、装置を改良することが製品の品質の向上に重要な役割を果たすと思われるので、RI 製造棟 305 室のフードの試作装置を改良した。主要な改良点は (a) 溶解液の酸性度を 0.3 N 塩酸から pH 3 の水に変えること。

(b) 水酸化クロムと水酸化ランタンの沈殿を溶解するさいの試薬を 0.15 N 塩酸から 0.10 N 塩酸に変えること、(c) 溶解槽と反応槽を分離して途中に濾過器を設けることなどであった。

#### (3) プロセスの結果

上記のような改良された操作法と新しい装置でいくつかの試験製造を行ない、えられた結果を TABLE 3.4 に示す。また照射孔も従来用いていた JRR-3 の VR-2-11 および VR-3-11 のほかに中性子密度が 1 桁低い位置で照射し、比放射能の変動を検討した。

製品の収量は原子炉の運転条件や分離のさいの収率の

TABLE 3.4 Production of  $^{51}\text{Cr}$  by the new apparatus

No.	Irrad. hole	Neutron flux (n/cm <sup>2</sup> ·sec)	Irrad. time (hr)	Target amount (g)	Yield of products (mCi)	Sp. Ac. of products (Ci/g)
801	VR- 2-11	$9.8 \times 10^{12}$	235	50.1	249	52
803	VR- 3-11	$1.1 \times 10^{13}$	288	52.9	314	87
804	VR- 3-11	$1.0 \times 10^{13}$	267	51.1	261	76
806	VR- 2-11	$8.9 \times 10^{12}$	278	52.8	345	75
807	VR- 3-11	$1.0 \times 10^{13}$	282	50.0	356	69
802	VR- 3-17	$1.2 \times 10^{12}$	276	100	219	68
822	VR- 7- 5	$1.3 \times 10^{12}$	244	102	207	80
805	VG- 3-17	$1.1 \times 10^{12}$	288	101	288	56
902	VG-14-11	$8.8 \times 10^{11}$	286	104	104	94
903	VG-14-11	$9.5 \times 10^{11}$	236	97.2	158	87

Radioactivity values at 7 days after irradiation

変動のために多少のふれはあるが、50 g のターゲットを高い中性子束 ( $\sim 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·sec) の照射孔で照射したばあい約 300 mCi の製品がえられ、100 g のターゲットを低い中性子束 ( $\sim 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>·sec) で照射したばあいは 100~200 mCi の製品が得られた。比放射能についてはいずれの照射条件でもほとんど変わらず 50~90 Ci/g·Cr の範囲内にあり、従来の製品 (60±9 Ci/g·Cr) に劣らないものが得られた。個々のバッチごとの品質の偏差は従来と同様で、相対標準偏差としては 20 %前後のふれがみられた。

#### (4) 結論

ランタン共沈酸化溶出法により  $^{51}\text{CrO}_4^{-2}$  形の高い比放射能の  $^{51}\text{Cr}$  を製造する方法を検討し、従来用いていた方法と装置を改良して試験生産を行ないよい結果をおさめた。製品の比放射能は 50 Ci/g·Cr 以上を保証し、1バッチあたり 100~300 mCi の製品を製造することができた。

この方法と装置により高い中性子束で照射した 100 g の試料を処理すれば 1バッチあたり最大 600 mCi の製品が得られることになり、年間 5 Ci 以上の高比放射能  $^{51}\text{Cr}$  を生産する見通しが得られた。

### 3.2.2 高比放射能 $^{64}\text{Cu}$ 製造技術の開発

昭和 42 年度までにホットアトム効果を利用して製造を行う RI の量産化技術の要点が固った高比放射能  $^{64}\text{Cu}$  製造技術につき、本年度はさらにこの拡充を図った。とくに本年度に得られた成果としては取扱設備の改善、製造プロセスの改良が遅滞なく進行し、製造工程の個々の問題点をそれぞれ検討する域に達した。この結果初期に予定した通り、本法の定常見込生産への移行を達成し、これをカタログ化して頒布を開始するに至った。

#### (a) 取扱設備の改善

高比放射能  $^{64}\text{Cu}$  はラジオアイソトープ製造棟 305 室の汎用フードを利用して製造を行なうが、照射試料のフード内への搬入、製品、放射性廃棄物等のフード外への搬出作業における汚染、被曝に関する安全性向上の見地から、高比放射能  $^{51}\text{Cr}$  の製造設備について前年度に設置したと同様に、サービスエリア側のアクセスドアに試料搬出入口を設置した。

#### (b) 製造プロセスの改良

フタロシアニン銅をターゲットとして使用し、照射したターゲットを濃硫酸に溶解してこれを水水中に滴下することにより  $^{64}\text{Cu}$  を回収する方式は確立されていたが、前年度に問題提起された  $^{64}\text{Cu}$  の化学収率の大幅なふれが定常生産にたいして障害となっていた。この問題は氷水滴下後のプロセスに基因することが判明したので、プロセスを次のように改めた。

#### 改良プロセス

濃硫酸溶解→氷水滴下→水酸化物沈殿→塩酸溶解→水

#### 酸化物再沈殿→酢酸処理→製品

上記水酸化物沈殿捕集のさいの濾過法を従来の吸引濾過法から濾紙を使用する流下法に切替えることによつて、化学収率を定常的に 50 %台に維持することが可能となった。この改良によつて製品量の上昇と製品比放射能の向上が同時に達成された。

#### (c) その他の改良

試料搬出入口の設置<sup>1)</sup>、プロセスの改良に伴って製造装置を従来の 05 フードより 03 フードに変更し、装置を更新した。真空ライン、廃液槽、溶解槽をそれぞれ改良し、プロセスのさいの安全性を向上し、操作を容易とした。製造中間体、製品の品質管理について若干の改良の余地があり、これを次年度に実施する。

### 3.2.3 その他の特殊 RI 製造技術の開発

ホットアトム効果の RI 製造への利用にあたってホットアトム効果を左右する諸因子の一つとして相効果と同位体効果につきメチルプロマイド系の臭素の同位体の熱中性子捕獲に伴って生ずる化学種の生成比について考察した。相効果はきわめて複雑な結果を与えるが、とくに固相において液相で効果的なスカベンジャーが均一分布をしないことが明らかであるので、これを相転移との関連で論じ<sup>2)3)</sup>、固相においては Eutectic Point が分散状態の変異点に対応し、その効果が全有機収率に明らかに現われてくることを示した。また同位体効果については  $^{79}\text{Br}(n, \gamma)$   $^{80}\text{Br}$ 、 $^{81}\text{Br}(n, \gamma)$   $^{82}\text{Br}$ 、 $^{81}\text{Br}$   $^{82}\text{Br}$  との両者についての比較から、オージェ効果にもとづく有機収率の変動は明らかに反跳にもとづくものと区別されることを示した<sup>4)</sup>。

#### 参考文献 (3.2 特殊 RI 製造技術の開発 関係)

- 1) アイソトープ事業部製造部年報, No. 1, JAERI 5020(1964)
- 2) STAVOVICH J., TANAKA K., and MILMAN M.: Inorg. Nucl. Chem., Letters 3 415~418 (1967).
- 3) ABEDINZADEH Z., GRILLET S., STEVOVIC J., TANAKA K., and MILMAN M.: Radiochimica Acta, 9, No. 4, 38 (1968).
- 4) ABEDINZADEH Z., RADICELLA R., TANAKA K. and MILMAN M.: Radiochimica Acta, (Submitted)

### 3.3 有機標識化合物の製造技術の開発

有機標識化合物の製造技術の開発は二つの題目があり、そのうちの一つは新製品の製造技術の開発であり、他は製品の分析、測定技術の開発である。

新製品開発の主題目としているのは「接触反応による有機標識化合物の製造技術の開発」であり、現在アセチレンと一酸化炭素の反応を中心にすすめている。これらの反応のうちアセチレンからベンゼンを合成する方法についての検討は 42 年度に開始し、43 年度はこれを継

続しベンゼン (U)- $^{14}\text{C}$  の製造技術を確立することができた。また同時にベンゼンの合成に続く次の品種の開発へと計画をすすめた。分析、測定技術の開発は現在のところでは、既知の技術の改良が主になっているため、その内容は多種多様にわたっていたが 42 年度以降は測定精度の向上に目標を絞り 43 年度もその方針を継続した。

しかも 43 年度は製品の分析、測定技術のマニュアル化を強く推進するため一層集中的となり、放射能測定は主として液体シンチレーション計数とガスサンプル計数方式について検討し、放射化学的純度の確認に関しては、ラジオガスクロマトグラフィと同位体希釈分析法を検討した。特にラジオガスクロマトグラフ装置による分離定量精度の検討については東京大学理学部・島村研究室との協力研究を開始した。

### 3.3.1 接触反応による有機標識化合物の製造技術の開発

接触反応による有機標識化合物の製造技術を高压接触反応によるアセチレンや一酸化炭素の反応とそれ以外の反応とに大別している。当面の技術開発の主体はアセチレンの高压接触反応例であり、レッペ法によるアセチレンからベンゼンの合成はその最初の例として 42 年度に着手し 43 年度に検討を完了した。これ以外のアセチレンの反応の代表例は (1) エチニル化反応、(2) ビニル化反応、(3) カルボニル化反応などがあげられるが、ベンゼンの次の開発の目標をエチニル化反応によるプロパギルアルコール、プチンジオールの製造技術の開発におき、43 年度はこれに必要な調査と準備をおこなった。一方高压接触反応以外の例としてはアセチレンの気相接触還元によるエチレン、さらにエチレンの接触酸化による酸化エチレンの合成があるが、43 年度はこれらの反応に関しては基礎的な検討にとどめた。

#### (1) ベンゼン (U)- $^{14}\text{C}$ の合成

##### (a) 反応容器

マイクロ規模における加圧反応の問題点は、加圧の方法と加圧反応容器にある。加圧条件のちがいを大別すると以下のごとくなる。

- i) 冷却凝結する気体を中程度に加圧する ( $50 \text{ kg/cm}^2$  以下)。
- ii) 冷却凝結する気体を  $50 \text{ kg/cm}^2$  以上に加圧する。
- iii) 冷却凝結しない気体を中程度以下で加圧する。
- iv) 冷却凝結しない気体を  $50 \text{ kg/cm}^2$  以上に加圧する。
- v) 室温から  $100^\circ\text{C}$  までで加圧反応させる。
- vi)  $100^\circ\text{C}$  以上の高温度で加圧反応させる。

反応容器としては高温度または  $50 \text{ kg/cm}^2$  以上の高压の場合は常にスチール製のマイクロ反応器を使用し、室温で  $50 \text{ kg/cm}^2$  以下の加圧状態ならばガラス製の耐圧反応容器が使用できる。また冷却凝結できる気体の場合はガラス封管が便利であるが、凝結しない気体物質の場合

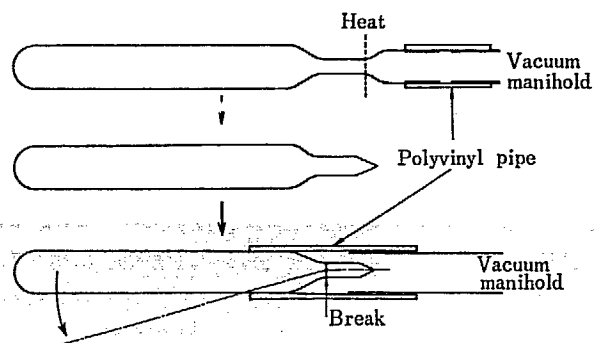


Fig. 3.8 Sealing and opening procedure of reaction tube

は特殊な方法が必要となる。アセチレンの場合はガラス封管が使用できるが、本実験では取扱い技術上の問題点を次のごとく解決した。

- i) 封管の形と封入・開封の手順を Fig.3.8 に示す。
- ii) 市販のパイレックスガラス管 (肉厚  $1\sim 1.5 \text{ mm}$ ) を用いて外径 6, 8, 10, 12, 15 mm, 容量 1, 2, 5, 10  $\text{ml}$  の封管をつくり、その一端を開いてステンレス導管を経て高压ガスボンベに接続しゲージ圧  $40 \text{ kg/cm}^2$  まで加圧した。くり返し耐圧試験をおこなった結果  $40 \text{ kg/cm}^2$  の内圧に耐えることがわかった。
- iii) 実際に封管内容積の倍量のアセチレンガスを封入して約  $25 \text{ kg/cm}^2$  のアセチレン圧に耐えることを確認した。
- iv) 封管をオートクレーブ内に納め高压ガスを導入して封管の外側から圧をかけて外圧に対する封管の強度を調べ、 $155 \text{ kg/cm}^2$  の圧にも耐えることを確認した。

以上の耐圧強度試験の結果、Fig. 3.8 に示す封管がベンゼンの合成に必要なあらゆる加圧条件を満足させ得る強度を示した。実際の反応は封管をオートクレーブ内に納め封管の外側の圧を内側の圧より高くなるような状態ですすめ、反応が完全に安全におこなえるようになった。この方法は冷却凝結する気体物質を中程度以下の加圧下で反応させる場合に共通して適用できる方法であり、同時に今後の高压接触反応技術の開発に役立つものである。

#### (b) アセチレン $1,2\text{-}^{14}\text{C}$ の合成

42 年度には金属バリウムと二酸化炭素の反応によって炭化バリウムを得る方法を検討したが、これは極小規模の合成には適するが  $1 \text{ m mol}$  以上の規模の合成には不適當であることがわかったので、炭酸バリウムと金属バリウムの反応を 43 年度に検討し期待した通りの好結果を得た。合成装置は 42 年度に使用したものを Fig. 3.9 に示すごとく改良した。改良の要点は炭化物を造る反応とそれを分解する反応とを連続して簡単な操作でおこなえるようにした点である。

#### (c) ベンゼン (U)- $^{14}\text{C}$ の合成

アセチレンからベンゼンを合成するレッペ反応におけ

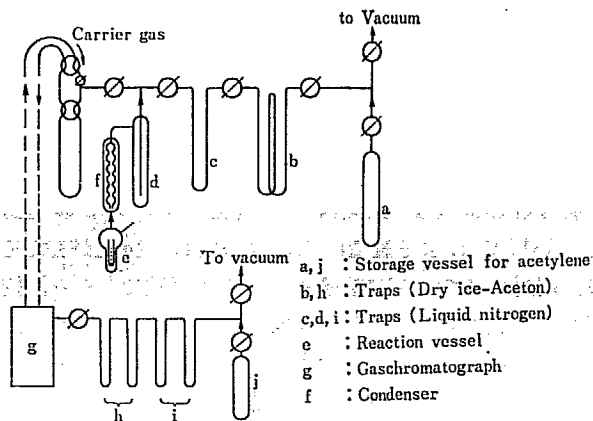


Fig. 3.9 Apparatus for the preparation of acetylene

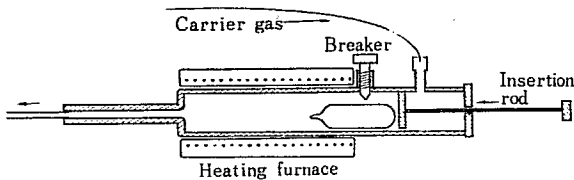


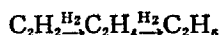
Fig. 3.10 Apparatus for introduction of liquid sample into gas chromatograph

る問題点の一つは触媒の性能である。42年度には触媒に関する基礎的な検討をおこない、ビス・トリフェニルホスフィンニッケル・ジカルボニル ( $(\text{ph}_3\text{P})_2 \cdot \text{N} : (\text{CO})_2$ ) を使用することに決め、この調製方法も検討した。43年度にはこの触媒の効果的な使用法を調べ同時に使用条件を確定した。触媒は反応初期の温度を  $100 \sim 120^\circ\text{C}$  にすることによって早く活性化されるので、反応時間が短縮でき同時に収率も安定させ得るという結果を得た。高純度のベンゼンを得るための精製方法として分取用のガスクロマトグラフ装置の効果的な利用を検討した。Fig. 3.10 に示す試料送込器は精製操作での製品損失を少なくし、操作を簡単にする点で役立った。

主要検討項目以外はほとんど文献の条件と同じ条件が使用された。これらの検討結果を総合し、炭酸バリウムからベンゼンに至るまでの放射化学的収率は  $65 \sim 75\%$  となり、得られたベンゼンの放射化学的純度は  $99\%$  以上であった。このベンゼンの製造技術によれば、1バッチ当りの製造量は  $1\text{ ml}$  容量の反応管を使用すれば、 $1.5\text{ mmol}$  まで可能である。これを放射能量で見れば  $100\text{ mCi}$  までの製造が可能である。また  $10\text{ ml}$  容量の反応管を使用すればその倍量の  $10$  製造が可能であり製造の規模として十分なものである。

### (2) エチレンおよび酸化エチレンの合成

アセチレンを接触還元するとエチレンとなり、さらにエタンに至る。



この還元過程で、エチレンのみを選択的に得るための条件はすでに確立されているので、これをマイクロ規模で実施する場合の装置上の工夫を43年度の検討目標とし

た。簡易型または手製のガスクロマトグラフ装置と気相接触反応装置とを組み合わせる方法が適用可能であることが確認された。これと同じ方式をエチレンの接触酸化反応に対しても試みたが、酸化エチレンの収率が低く新触媒または適当な酸化剤が開発されない限り実用的でないことがわかった。したがって、酸化エチレンの合成はエチレンクロルヒドリンを経由する方法に改めて検討したい。

### 3.3.2 有機標識化合物の分析および放射能測定技術の開発

有機標識化合物の製品の品質を確保するためには製造技術と品質試験が密接に関連しているので、種々の分析測定技術の開発が必要である。43年度は生産マニュアルの原案を整理するため、製品の分析・測定の項目についての技術的な面、特に定量精度を向上させることに力をそそいだ。42年度に検討をすすめていた内容をさらに絞り、液体シンチレーション計数、ガスサンプル計数、ラジオガスクロマトグラフによる放射化学的純度の三つに集中して技術的検討をおこなった。近年急速に発展しつつあるラジオガスクロマトグラフ装置は有機標識化合物を取扱う仕事にとって非常に便利な機器であるが、その利用技術はまだ完成されていない。特に定量的な取扱いには困難な問題が多い。この点を解決し有機標識化合物の放射化学的純度の検定を能率的にするために、個々の問題点の検討を協力研究によってすすめることになった。

#### (1) 水溶性有機標識化合物の放射能測定

前年度に引続いて、43年度は水溶性試料を p-ジオキサン系シンチレーター溶液に溶かしチャンネル比法によって測定する方法を検討した。これはトルエンに不溶で水に可溶性な化合物のうち、カラークエンチングその他特に強いクエンチングを示す化合物以外のものの測定には共通して応用できる方法である。実際に測定の対象にしたのは酢酸ナトリウム  $1\text{-}^{14}\text{C}$  で、測定器は神戸工業・GSL 152 (体内放射能課所有) を用いた。(a) 酢酸ナトリウム水溶液の濃度・添加量によるクエンチング、(b) チャンネル比と計数効率の関係、(c) 統計誤差について検討した。酢酸ナトリウム水溶液の濃度は  $2\text{ g/l}$  以下、添加量は測定温度  $15^\circ\text{C}$  で  $5.0\text{ ml}$  以下で実用上十分な測定値が得られることがわかった。すなわちクエンチングの程度に対応するチャンネル比と計数効率との関係は直線性があり再現性も十分である。誤差については計数誤差、サンプリング誤差がそれぞれ  $2.0\%$  以内  $\pm 1\%$  以内であり、用いた標準試料が  $\pm 3.0\%$  の誤差をもつので実験の最大誤差は  $\pm 6.0\%$  になるが、通常大部分のものは  $\pm 5.0\%$  以内で測定できることが確かめられた。

#### (2) ガスサンプル計数管による放射能測定

42年度につづき装置の改良と精度の向上を目的とし、

マンメーター読取り誤差、気体容器の正確な容積測定など個々の問題点を再検討した。これらの資料をもとに新たな装置の設計をおこない発注した。装置の主な改良点は (a) グリスレスコックを使用し  $^{14}\text{C}$  試料の装置内吸着を少なくし、(b) 装置の容積を正確に調節できるようにして測定後の誤差を少なくし、(c) 酸化装置は固体・液体・気体のいずれの試料にも適応できる形にした。

放射能測定についてはあらかじめ液体シンチレーション計数機で測定した既知の炭酸バリウム- $^{14}\text{C}$ 、メタノール  $^{14}\text{C}$  を試料として測定した結果安定した計数値を示した。GM 管の測定効率は 73~76 % であるが、各種の標準試料について測定をおこない測定精度を定めるための検討を重ねた。最近ガスサンプル計数管の入手が困難になったので検出管そのものの再検討も計画している。

試料の酸化部には酸化銅のみを使用しヘリウムをキャリアガスとしてメタノール、安息香酸、トルエン、ベンゼン、蔞酸を酸化して定量的酸化が可能であることを確認した。

### (3) ラジオガスマロマトグラフによる純度測定

42 年度につづきメタノール  $^{14}\text{C}$  の純度検定技術を確認するため、分離・定量の精度を確認する検討をおこなった。協力研究のテーマは「ラジオガスクロマトグラフ装置による有機標識化合物の分離定量法の研究」であり、申し合せ事項のおもなものは次の二点である。

(a) ガスクロマトグラフ装置の特性を充分知るために基礎資料をできるだけ多くとる。

(b) メタノールの純度検定の最適条件を検討する  
柳本製作所製の 5 DH 型装置を使用し、放射能強度既知のメタノール  $^{14}\text{C}$  を試料としてカラム充填剤、温度、流速、試料量などを変化させて測定した。カラム充填剤は三種類について調べた結果 Carbo wax 系のものが最もよい結果を示した。また温度、流速などのある限られた条件下ではよい定量性、再現性のあることが確かめられた。しかし全体的な傾向を完全に理解するにはさらに綿密な検討を続ける必要がある。特に流通式の検出部には問題が多く、基礎条件の検討を含めてこの関係の検討を継続してすすめる計画である。

## 3.4 線源 RI 製造技術の開発

前年度にひきつづいて大線源製造技術の開発と特殊線源の製造技術の開発をおこなった。

大線源製造技術開発として JRR-3 による低比放射能  $^{60}\text{Co}$  大線源製造と JMTR による  $^{60}\text{Co}$  大線源の本格製造にそなえるための技術の開発につとめた。すなわち大線源製造をおこなうために必要な製造施設、機器類の調査、予備設計をおこなった。また  $^{60}\text{Co}$  大線源製造のためには使用するターゲットの仕様を確定するとともに、これらのターゲットを使用して JRR-3 の VC 孔を

改造した照射孔による照射に必要な熱中性子束の測定、ターゲットのカプセル内つめ合わせによる生成量の変動などを知るための各種の実験をおこなった。これらの知見に基づいて 44 年度よりの照射、製造計画を立案し今後の実験を準備中である。

特殊線源製造技術開発は  $^{192}\text{Ir}$  線源についてその密封化、JMTR による製造についての検討、実験が主であり、密封化については溶接について未経験でもあり、技術的問題点も数多く生じ今後改良を要するが、当初の目的は一応達成することができた。また JMTR による製造については臨界実験装置によるモックアップテストをおこない実際製造のために必要な知見を得た。

### 3.4.1 大線源製造技術の開発

#### (1) $^{60}\text{Co}$ 大線源製造技術の開発

$^{60}\text{Co}$  大線源製造技術の開発の 43 年度の主要題目は使用するターゲットの仕様確定と使用照射孔である JRR-3VC 孔改造照射孔による照射技術の開発であった。

#### (2) ターゲット

42 年度決定した仕様に基きアルミニウム被覆とニッケルメッキのウエファー型ターゲットを発注、2000 個のターゲットを購入した。なお同時に検査仕様書も作成した。検査は、重量全数検査（被覆前）、寸法全数検査（被覆後）使用アルミニウムの化学分析、断面写真、ピンホール試験、熱サイクル試験、比重測定、組成検査の項目についておこなった。

上記のアルミニウム被覆は溶接でおこなったがこの他に冷間圧接による方法の検討もおこなった。この方法は、現時点では若干の技術的な問題点とコスト高の難点があった。

#### (3) JRR-3VC 孔の熱中性子束測定

コバルト箔、金箔を用いて 0.1 MW 運転で VC-2 孔の熱中性子束を測定した。ホルダ No. 1~6（最下段を No. 1 とする）間の平均値  $2.6 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、最大値  $3.4 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  の結果を得た。この結果とつめ合わせ効果の実験結果から、ターゲットの照射数量、照射時間等を決め、照射前の最終的な照射計画案を立案した。照射は 44 年度第 1 サイクルからおこなう予定である。

#### (4) つめ合わせ効果

ターゲットを大量に照射する場合、ターゲットの大きさ、照射量、その配置などによって放射化される効率が異なる、いわゆるつめ合わせ効果について検討した。8.3  $\phi \times 2.3 \text{ t (mm)}$  の金属コバルトを用いて実験した結果を Fig. 3.11 に示す。ターゲット 1 個の中中性子の自己吸収係数は 0.47 であった。ウエファー型ターゲットを用いて円板の面に垂直な軸方向における熱中性子束の分布を JRR-4 を用いて調べた。ウエファー型ターゲットの直径だけ軸方向に離れた点で低下した熱中性子束は回



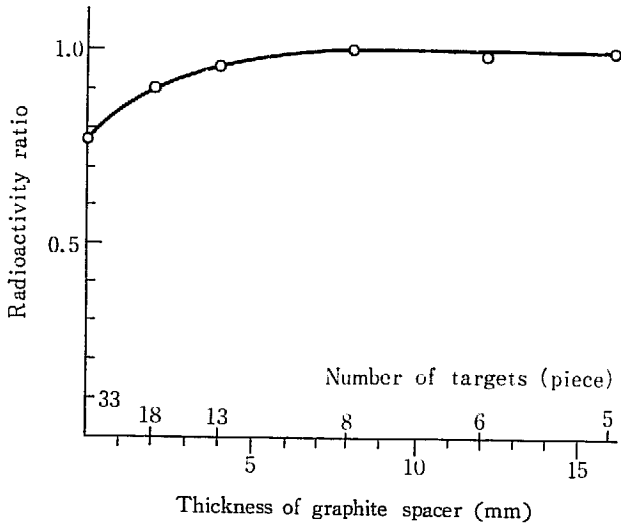


Fig. 3.11 Charging effect affected by configuration of cobalt wafer targets.

復することが認められた。

### 3.4.2 特殊線源製造技術の開発

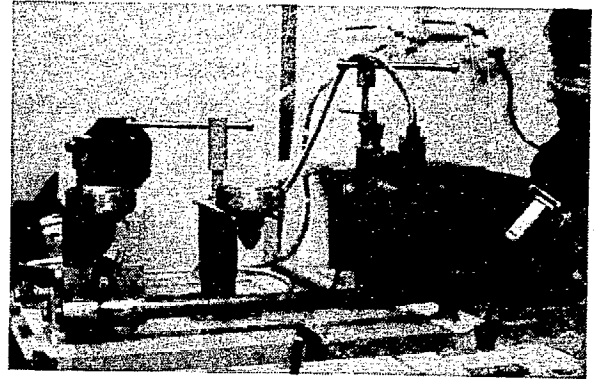
#### (1) <sup>192</sup>Ir 二次カプセル密封装置

従来の非密封線源に加え密封線源としての要望が増えそれに伴い密封化技術の開発を進めた。溶接法は直流アルゴンアーク法を採用し、最大電流 100 A の溶接機を市販品から選んだ。被溶接物の材質により溶接条件の違いがあるため、材質がステンレスの場合のみを考慮した。

その特徴は 10~30 A の小電流領域で電流特性が良く、アークが安定し溶接が均一で容易であり、リモートコントロールが可能な点である。溶接治具はカプセルを縦に支持しトーチによりカプセル上部を溶接するように設計した。溶接時のカプセルは回転させず芯出しが容易になるように配慮した。また、カプセルへの線源およびカプセルプラグの投入にはロート法を採用し溶接までの工程中カプセルは直線上を移動するように設計した。

(Photo. 3.1 参照) カプセルは線源需要者の要望を加味して設計し材質は SUS-27 を用いた。(Photo. 3.2 参照) 更に溶接済みのカプセルを線源ホルダ (Photo. 3.3 参照) につめるため貯配セルにかしめ機を設置した。かしめ機は電磁石を利用した打点法を採用した。

溶接試験はコールドおよびホットランを繰り返しさらに溶接済みの試料について放射能漏洩試験を行なった。その結果、今後定常生産に移った場合の問題点として、次のようなことが提起された。先ず溶接時間の短縮化をはかること、次に現在行っている放射能漏洩試験法の効率化および密封線源の表面汚染に対する除染法の改善等である。これ等の問題点については 44 年度の製造に間に合わすべく検討し解決していく予定である。なお、溶接技術の開発は製造系の援助と協力を得てすすめられた。



Phot. 3.1 The welding device for sealing <sup>192</sup>Ir radiation source

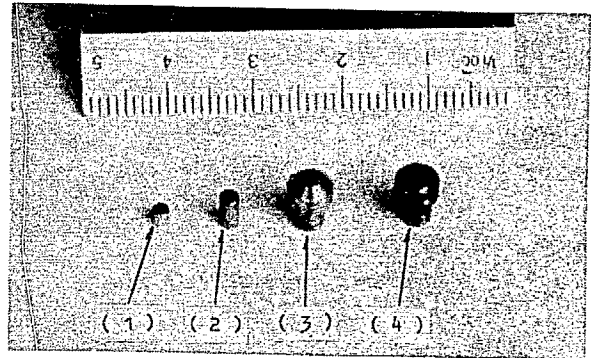


Photo. 3.2 <sup>192</sup>Ir sealed radiation source capsule (1: Ir target 2: Sealing plug 3: Sealing capsule 4: Sealed capsule)

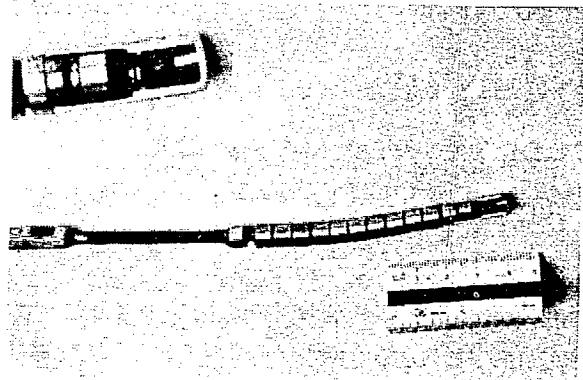


Photo. 3.3 <sup>192</sup>Ir Sealed radiation source holder

#### (2) JMTR 臨界実験装置による <sup>192</sup>Ir の照射技術の開発

44 年度からの JMTR による <sup>192</sup>Ir 製造に備え JMTR 臨界実験装置を使いその照射技術の開発を行なった。従来利用してきた JRR-2 に比べ高い熱中性子束密度をもつ JMTR での <sup>192</sup>Ir の生成量 (つめ合せ効果, ターゲットの配列による生成量のばらつき), 更に各照射孔における熱中性子束密度の分布測定を行った。イリジウムターゲット 190 個を熱中性子束密度  $2.0 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  504 時間 (1 サイクル) 照射した場合 13~20 Ci/ペレットの生成量 (換算値) が得られた。この結果、1 カプセル当りでの生成量のばらつきは JRR-2 照射の場合と比べて大きいが比放射能は大幅に増加している。

#### (3) JRR-3 VR 照射孔の熱中性子束密度の測定

従来、 $^{60}\text{Co}$ 針状線源は JRR-3 の VR 照射孔で照射しているが、所定の放射能を更に正確に得るため、また、現在より高い熱中性子束密度をもつ照射孔を選び照射時間を短縮するため VR 照射孔での照射実験を行なった。データは目下検討中であるが 45 年度からの照射に使用する予定である。

### 3.5 F.P. からの短寿命 RI 製造技術の開発

短寿命 FP から製造される RI のうち、需要が多く、比較的小規模な設備で製造できる  $^{99}\text{Mo}$  を親核種とする  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータの製造を第 1 目的として前年度に引き続き製造技術の開発を行なった。

前年度の検討結果より、イオン交換樹脂法による系統的分離法がよりすぐれているとの判断に立ち、この方法について化学分離条件の検討を追加した。またこの方法に沿って、RI 製造棟 02 ケーブ内にモックアップ装置を設置し、各部品の機能試験を行なった。この結果装置化に当って最も問題となるのは短寿命 FP 取扱い上不可避免的に伴う  $^{131}\text{I}$  の漏洩であったが、この点については十分な検討ができず次年度に持ち越すこととなった。

なお再処理試験室の運転に伴ない、再処理工程における  $^{131}\text{I}$  の挙動について、再処理開発試験室、FP 研究室、放射線管理室と協力し検討を加えた。またこの作業と併行して  $^{130}\text{I}$  のターゲットとして使用する  $^{129}\text{I}$  の製造法についても検討した。

#### 3.5.1 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , $^{132}\text{I}$ ジェネレータの調製

核分裂生成物より  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{99}\text{Mo}$  を陽イオン交換法によって分離し、 $^{132}\text{I}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  のジェネレータを調製する方法については前年度にその概要を述べた。今年度は  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{99}\text{Mo}$  の溶液中における変化、アルミナカラム上での変化、およびこれらの溶液中に含まれるおもな不純物  $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  のアルミナにおける挙動などをくわしく検討し実用化に必要な基礎的知見を得た。

八酸化ウランを硝酸に溶解しさらに塩酸処理をすることによって  $^{131}\text{I}$  はほぼ完全に溶液から除かれると同時に硝酸溶液中で存在した  $^{132}\text{Te}(\text{IV})(\text{VI})$  は 99 % が  $^{132}\text{Te}(\text{IV})$  に変化することが認められ、陽イオン交換分離時における  $^{132}\text{Te}$  の収率を増加させることができた。しかしながら FP 溶液を 0.2 規定塩酸溶液として長時間放置する場合には  $^{132}\text{Te}(\text{IV})$  の化学種における変化が認められ、24 時間放置した場合、 $^{132}\text{Te}(\text{IV})$  の収率は 86 % ある場合には 65 % も減少した。一方  $^{99}\text{Mo}$  については 10 日間放置した場合においてもイオン交換分離時における収率は変化しなかった。この時不純物として混入してくる  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  については 24 時間放置した場合、溶液調製直後にくらべて  $^{103}\text{Ru}$  についてはほとんど変化しないが  $^{95}\text{Nb}$  についてはほぼ 10 倍にも増加す

ることが認められた。これらのことから化学分離操作にあたっては酸化ウランを溶解した後できるだけ速やかにイオン交換分離をおこなうことが必要である。

イオン交換分離にあたっては酸化ウランの量が  $^{99}\text{Mo}$  や  $^{132}\text{Te}$  の収率に大きく影響する。25 ml のカラムを使用した実験ではほぼ 500 ml 以上の場合にこの現象がみられた。熱中性子束  $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  で 288 時間照射後、一週間放置処理した場合に約 200 mCi の  $^{99}\text{Mo}$  を製造しようとする約 3 g の天然ウランを必要とする。現在 60 ml のカラムを用いて 3 g のウランを処理する方法を検討中であるがより小さなカラムでの分離が望まれる。25 ml のカラムを使用する場合には濃縮ウランの使用が必要である。現在はこれらウランの照射技術についても検討中である。

#### (a) $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ジェネレータの調製

イオン交換分離された 0.5 規定塩酸フラクションをアルミナカラム (10 mm  $\phi$   $\times$  38 mm) に通過させた後、0.5 規定塩酸で洗滌する場合、および  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  をミルクングする場合に使用する 0.1 規定塩酸で洗滌する場合とではアルミナに吸着する  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  の量に差があり 0.1 規定塩酸溶液で洗滌する場合がより少量となる。0.1 規定塩酸約 200 ml を用いて洗滌した後に 30 ml の溶液に含まれる  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  の量は、0.5 規定塩酸フラクションに含まれた量の  $2 \times 10^{-3} \%$  および 0.3 % にすぎない。このようにして得られた  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータについて  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の milking yield を約 2 週間にわたって調べた結果では溶離剤として 0.1 規定塩酸、0.7 % 食塩水を使用したし時ほとんど変化はなく約 77 % であった。より高純度の  $^{99}\text{Mo}$  を得る方法として上記のアルミナより  $^{99}\text{Mo}$  を 1 規定アンモニアで溶離する方法、および規定塩酸フラクションを 0.1 規定塩酸溶液として陰イオン交換樹脂に吸着させ精製する方法についても検討した。

#### (b) $^{132}\text{I}$ ジェネレータの調製

$^{132}\text{Te}(\text{IV})$  を含む 0.75 規定塩酸フラクションを長時間放置した場合、FP 溶液の場合とは違ってその化学種はほとんど変化しない。 $^{132}\text{Te}$  のアルミナカラムより  $^{132}\text{I}$  をミルクングする際の yield の変化については 1 規定アンモニアでカラムで放置した場合、酸性度の違う溶液から  $\text{Te}$  をアルミナに吸着した場合について検討した結果とくに変化は認められなかった。一方ことなる会社のアルミナを使用したさいには大きな差が認められ  $^{132}\text{I}$  の milking yield が 87 % から 59 % にも低下する例があった。

### 3.5.2 燃料再処理工程における $^{131}\text{I}$ の挙動

再処理工程における  $^{131}\text{I}$  の行動は、放射線管理上重要な問題であるばかりでなく、有機溶媒に対する毒性などに関連し重要な問題である。そこで再処理開発試験室

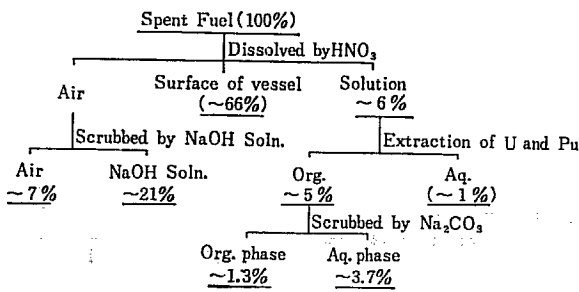


Fig. 3.12 Distribution of <sup>131</sup>I in each fractions of the fuel reprocessing test facility

が中心になり 放置時間の 比較的短い燃料 (80 時間放置した燃料) を使用して再処理操作を行ない <sup>131</sup>I の挙動を調査した。

その結果 <sup>131</sup>I は Fig. 3.12 に示す分布をすることがわかった。( ) 内の値はそのほかのフラクションから推定した値であり実測値ではない。またそのほかの数値も再処理工程が複雑であるため解析が困難であり、精度の低いものである。しかし大部分は装置に附着または空气中に揮散し水層にはわずか 6 % しか含まれないことがわかった。

水酸化ナトリウム 排気洗浄溶液中の <sup>131</sup>I の化学形を 75 % メタノールを展開剤としてペーパークロマトグラフ法で調べた結果、大部分が IO<sup>-3</sup> または IO<sup>-4</sup> の化学形であることがわかった。また、有機層中の <sup>131</sup>I を各種の水溶液で抽出した様子を TABLE 3.5 に示す。アルカリ溶液では抽出できず酸化剤を用い高い酸化状態とすることにより水層に移すことができることがわかった。

TABLE 3.5 The recovery of <sup>131</sup>I from the organic solvent

Aqueous solution	Extraction yield
0.4 N Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	30~40 %
0.05 N HNO <sub>3</sub>	5~10 %
0.4 N Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 0.1 KI	30~40 %
0.4 N Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 2 % NaOCl	0 %
1 N NHO <sub>3</sub> + 2 % NaOCl	100 %

長寿命 FP 中に存在する <sup>129</sup>I (半減期 1.72 × 10<sup>7</sup> 年) は短寿命の <sup>130</sup>I (12.6 時間) の製造原料として有用な RI である。そこで上記実験と併行して <sup>129</sup>I の回収法について検討した。

白金黒吸着法を用い、JRR-2 使用済燃料から直接分離する方法と、再処理廃液から回収する方法について検討し、それぞれ次の方法により <sup>129</sup>I の回収を行なった。

燃焼度 18 % の JRR-2 使用済燃料 (濃縮度 90 %, U 含有量 20 %, Al-U 合金) を NaOH に溶解して、大部分の FP を沈でんとして除去した。<sup>129</sup>I を含む母液を 4N 硝酸酸性とし、水素で還元した白金黒に <sup>129</sup>I を吸着させ <sup>137</sup>Cs から分離した。白金黒を十分洗浄後、

0.1 N 苛性カリで <sup>129</sup>I を溶離した。この方法による <sup>129</sup>I の回収率は 90 % 以上であり、そのほかの FP に対する除染率は約 10<sup>4</sup> であった。

再処理工程中排気される空気の水酸化ナトリウム洗浄溶液を使用し、4N 硝酸酸性溶液としたのち白金黒吸着法を適用した。その結果 <sup>129</sup>I の収率は 30~40 % であり十分な結果は得られなかった。それはヨードの化学形がと I<sup>-</sup> になっていないためであった。

### 3.6 無機標識化合物製造技術の開発

前年度迄に行なってきた、硫酸-<sup>35</sup>S を硫化水素に還元し、これを酸化して元素状の <sup>35</sup>S 標識イオンを調製する方法の開発を続け、目標とした 100 mCi の <sup>35</sup>S と 1~50 mg の硫酸塩担体から出発し 3500~70 mCi/mA の標識イオンを製造する方法を確立した。前年度年報 (JAERI 5020) で担体量が少い場合に収率が低いことが問題であった。これは硫化水素を酸化する際に液の pH を調節して高次の酸素酸塩に酸化することを防ぐことによって解決した。

無機標識化合物製造およびその技術開発に際しては、合成途上の化学形の変化の過程の追跡や、製品の化学形と純度の検定法を確立しなければならない。このために最近無機イオンの同定に広い用途を見出している薄層クロマトグラフィーの技術を導入した。簡単な操作で短時間に高い分離能で物質を同定できるこの方法は、標識イオウの製造開発に役立った。今後さらにこの方面での応用を開発するとともに、無機物質の展開について本質的な研究も必要であろう。

#### 3.6.1 <sup>35</sup>S 標識元素状イオン製造技術の開発

42 年度に続いて H<sub>2</sub><sup>35</sup>SO<sub>4</sub> の還元による <sup>35</sup>S で標識した元素状イオン製造技術開発の研究を行なった。前年度の実験では H<sub>2</sub><sup>35</sup>SO<sub>4</sub> を硫化水素に還元して水酸化ナトリウム水溶液に吸収し、フェリシアン化カリウムで元素状イオンに酸化してベンゼンに抽出したが、この際加えるイオン担体 (硫酸塩) の量が少なくなると、イオウの収率が著しく低下することが認められた。43 年度にはイオウの担体量 1~50 mg の範囲で妥当な収率を上げるよう製造法の改良を計った。種々の予備実験の結果 H<sub>2</sub>S\*O<sub>4</sub> から H<sub>2</sub>S\* への還元はほとんど定量的であるが、これを水酸化ナトリウム水溶液に吸収してから S\* に酸化する段階 (間接酸化法) あるいはフェリシアン化カリウム水溶液に吸収して直接 S\* に酸化する場合 (直接酸化法) 系の pH が収率におよぼす影響が大きく、pH が高いと S\* は硫酸など、より高次の原子価状態に酸化されることがわかった。この影響は特に担体が少い時に大きかった。Fig. 3.13, 3.14 に直接および間接法の系の pH とベンゼンに抽出される S\* と水層に残る

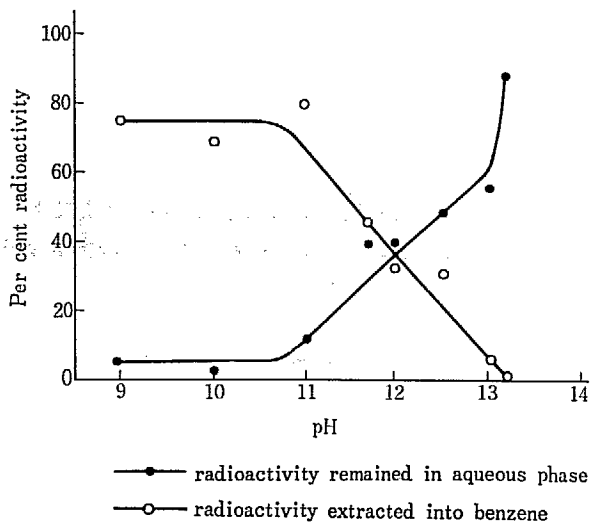


Fig. 3.13 The pH dependence of the distribution of <sup>35</sup>S between aqueous and organic layers in the direct oxidation process

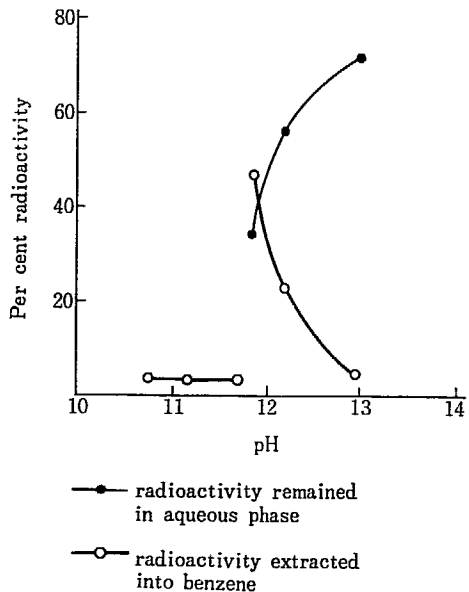


Fig. 3.14 The pH dependence of the distribution of <sup>35</sup>S between aqueous and organic layers in the indirect oxidation process.

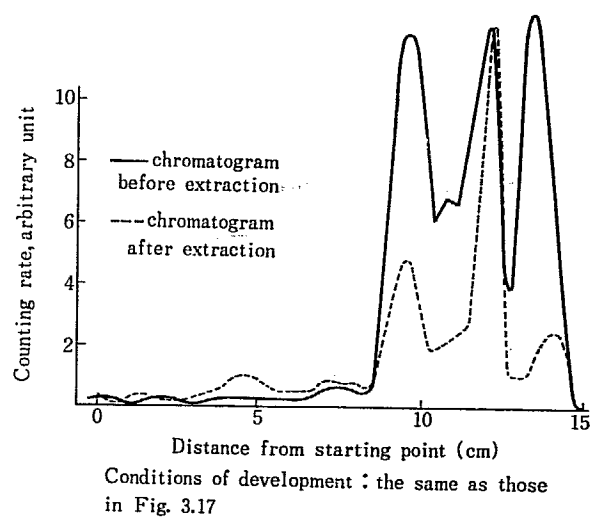


Fig. 3.15 Thin layer chromatograms of <sup>35</sup>S absorbed in oxidizing solution as hydrogen disulfide.

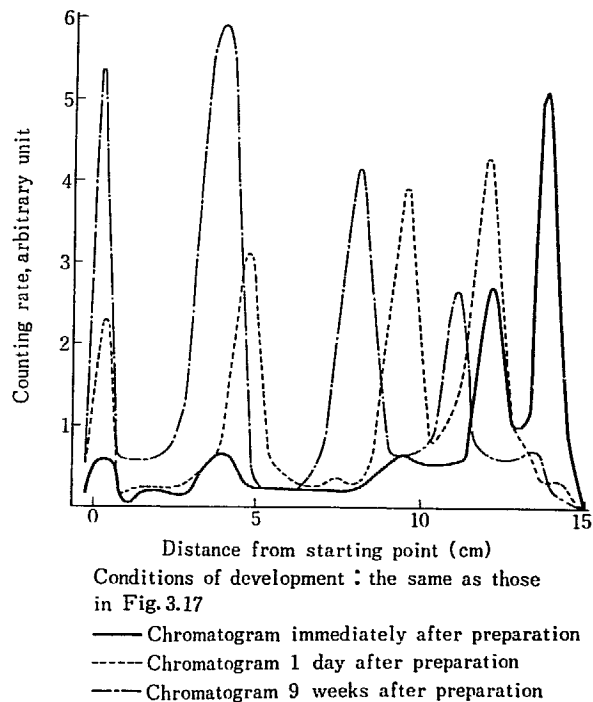


Fig. 3.16 Thin layer chromatograms of H<sub>2</sub>S\* absorbed in 0.5 N NaOH

S\* の割合の関係を示す。Fig. 3.15 は直接酸化法におけるベンゼン抽出前後の <sup>35</sup>S の化学形を示す薄層クロマトグラムを、Fig. 3.16 には間接酸化法において水酸化ナトリウム水溶液に吸収された <sup>35</sup>S の化学形の経時変化を示す薄層クロマトグラムを示す。S<sup>0</sup> 以外の化学形の存在が明らかである。硫化水素の吸収剤の pH が低い場合にはその吸収が不完全であり、pH が高過ぎると高次酸化物への酸化が進み抽出され難くなる。このことは間接酸化法に特に極端に現われている (Fig. 3.14) 直接酸化法では pH 10.9~11.3 の範囲で硫化水素の捕集・酸化が効果的に行なわれ、担体量が 0.5 mg まで減っても元素状イオウは約 70 % の収率で回収できた。

42 年度および 43 年度の開発研究で、当初予定した 100 mCi の <sup>35</sup>S と 1~50 mg の硫酸塩担体から出発し、

70~80 % の収率で目標とする比放射能 3500~70 mCi/mA の標識イオウの製造法を確立した。この方法で製造した標識イオウが化学的放射化学的に十分純粋であることは分光分析および薄層クロマトグラフィーで確認した。

製品としての最終的形態を整えるために、今後比放射能の低い標識イオウのベンゼン溶液から結晶イオウを調製する方法を確立しなければならない。標識イオウベンゼン溶液からベンゼンを蒸発しイオウを結晶させるには、標識化合物の乾燥に共通性もあり、凍結乾燥法を試験してきた。装置に一部不備な点があり、現在迄には 5 cc の溶液の乾燥に 4 時間要し、少量のイオウが乾燥中

に飛散するという結果しか得ていない。将来装置の改良と適当な条件の選定により期待していた短時間内の安全な乾燥が達成できると思われる。

$H_2^{35}SO_4$  を硫化水素に還元して元素状イオウを製造する方法は、硫化水素の吸収剤を変えることにより種々の金属の硫化物の製造にそのまま応用できる。硫化物は特に水溶液で酸素酸塩への酸化が速く (Fig. 3. 15, 16), この製造には吸収液の組成、濃度、乾燥法、貯蔵法など製品の収率、純度に影響するいろいろの未知の要素が多く、今後の研究が必要である。

### 3. 6. 2 標識化合物化学形同定法の開発

標識化合物化学形の同定法として、比較的短時間に高分離能で分離できる性能に着目し、薄層クロマトグラフィーを採用した。前項に示した  $^{35}S$  の薄層クロマトグラムはここで開発されたものである。低濃度のイオウ化合物では種々の化学形が有り、あるものはクロマトグラフの展開中にも化学形の変化を起す。Fig. 3. 17 に見られる出発物質の  $H_2^{35}SO_4$  および製品の標識イオウのクロマトグラムはそれぞれ明瞭なピークに現われるが、Fig. 3. 15, 3. 16 の硫化物水溶液のような場合はイオウの還元形から酸化形迄種々の過渡的な化学形を生ずるので、その一つ一つの同定は容易でない。製品検定の点からは、主成分化合物の化学形だけを他の化学形から明瞭に分離できる展開法の開発が必要であろう。

薄層クロマトグラフィーの技術を  $^{131}I$  の化学形の同定に利用することを試みた。非放射性ヨウ素化合物を用いた実験では次のような結果が得られた。

シート：イーストマンクロマトグラム 6061 ( $SiO_2$ )

展開剤：アセトン

展開時間：10 分

展開距離：7 cm

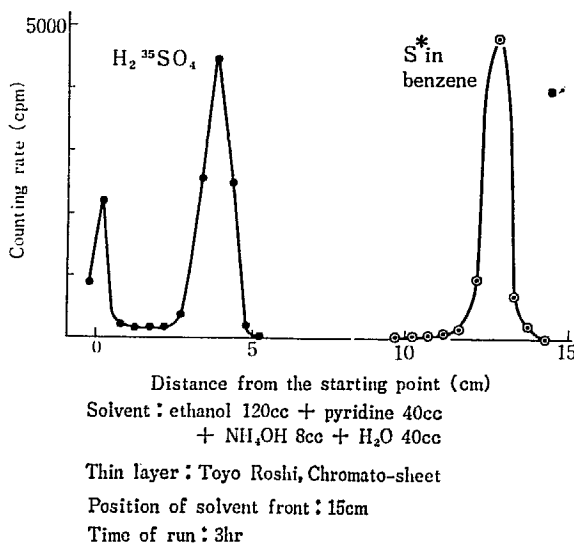


Fig. 3. 17 Thin layer chromatogram of  $H_2^{35}SO_4$  and elementary sulfur ( $^{35}S$ )

Rf 値:  $I_2$  0.82,  $I^-$  0.45,  $IO_3^-$  ( $IO_4^-$ ) 0.02

薄層クロマトグラフィーはこのように短時間の短距離の展開で高い分離能を期待でき、小さな装置をグローブボックス内で取扱えばよいので、 $^{131}I$  のように揮発のおそれのある RI の同定にきわめて好都合である。無機化合物の展開の資料は十分に無いので、今後溶媒、薄層の種類と分離能の関係と  $^{131}I$ ,  $^{35}S$  標識化合物化学形同定の実際的应用法の研究を行なう。

### 3. 7 RI 検定技術の開発

個々の RI 製品ごとに、品質確認上多くの検定法が要求されるほか、新規核種としては益々複雑な崩壊形、化学形のものが増加しており、これらにたいする高精度の測定法が必要となっている。

43 年度、放射能検定においては、 $^{99m}Tc$ ,  $^{197}Hg$  の絶対測定法の検討を行ない、 $^{99m}Tc$  について放射平衡にある Mo-Tc 系による測定法を確立し、また  $^{197}Hg$  にたいしては原子炉照射による試料が得られなかったため、 $^{197g}Hg$  単独核種の輸入をはかりこれについて実施した。X- $\gamma$  測定法、定立体角ガンマー線スペクトロメトリーについて基礎的な解明は得られたが、最終的なつめは原子炉による照射試料が得られる段階で行なう必要がある。

軌道電子捕獲壊変核種  $^{64}Cu$  の絶対測定では、X 線吸収効率について 42 年度の  $^{54}Mn$ ,  $^{55}Fe$  の測定につづき  $^{71}Ge$  を用いて行なった。測定試料調製に問題を残し完結するには至らなかった。また制動放射線を利用する測定法では、 $^{32}P$  の測定を目的とし、再現性についてある程度確保され、他測定法による測定値の確認手段として用いる程度には適用可能となった。高精度での絶対値を得るにはさらに基本的な種々の要因を解明する必要がある。

そのほか、複雑な崩壊形を有する核種および有機標識化合物等軟ベーター核種の測定に必要な技術の確立を目的とし、各々の必要機器について仕様を検討後入手をはかり、年度後半より整備を開始した。

化学検定においては、機器分析法を主体としまつ高純度金ターゲット中の白金、パラジウムを目標とし前年度の光度定量法につづき、発光分光分析法により行なった。各々の元素につき定量下限を  $\mu g$  オーダーまで高めることができた。今後実際試料について再現性の確認とともに定常化移行を目標とする。

$Na_2^{185}WO_3$  製品の長期保存中析出する不純物については、前年度主成分のタングステンによるものでないことが確認されているが、これにも発光分光分析法の適用をはかり、不純物元素の同定、半定量を実施し成分の組成を明らかにした。

新規核種としては  $^{60}Co$ ,  $^{124}Sb$ ,  $^{134}Cs$  などにたいして実施し定常化移行を完了した。次期開発予定核種の  $^{197}Hg$

については、とくに製品中の化学形の確認に問題があり、年度後半より検討を開始した。

以上のほか各製品とも医薬用原料として用いられることが多く、製品純度は益々厳密さが要求される。 $^{198}\text{Au}$  製品中のアルミニウムの定量については、高放射能濃度試料にたいする遠隔操作定量法を検討し、実際製品への適用をはかり良結果を得た。

### 3.7.1 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の絶対測定

$\gamma$  線のみを放出する  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  は、 $^{99}\text{Tc}$  の核異性体であってその崩壊の性質から、従来開発し確立してきた  $4\pi\beta$  計数法、 $4\pi\beta-\gamma$  同時計数法などの測定法によってその絶対値を求めることはできなかった。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  は普通親核種  $^{99}\text{Mo}$  の娘核種として存在するが、本法では放射平衡にある Mo—Tc 系について、その崩壊形の詳細な検討を行ない独自の測定法を採用することによって、 $^{99}\text{Mo}$  および  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の放射能絶対値を求めることができた。

#### (1) Mo—Tc 放射平衡体の測定

Fig. 3. 18 に崩壊図を示す。自己効率トレーサー法により Mo—Tc 放射平衡体の  $^{99}\text{Mo}$  の放射能を求めたが、つぎのようなこの核種特有の問題点があった。その1つは  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の  $\gamma$  線 (2 keV, 140 keV) が内部転換電子に変換されるので  $\beta$  線と同じように取扱わねばならないということである。このうち 2 keV の内部転換電子は、他の内部転換電子および  $\beta$  線に影響を与えずに、カネビニール膜で吸収して計数しないようにした。つぎに  $^{99}\text{Mo}$  のみの  $\gamma$  線を計数するために、 $\gamma$  計数管の波高弁別レベルを 250 keV に設定し、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の寄与を無視した。

アルミニウム吸収板により  $\beta$  線の計数効率をかえ、自己効率トレーサー曲線を求め、計数効率 100% における  $\beta$  計数の外挿値  $N_\beta$  から崩壊率  $n_0$  をつぎの関係式より求めた。

$$N_\beta = 1.084 n_0$$

測定した Mo—Tc 放射平衡体溶液について、 $n_0 = 3.36 \times 10^5$  dpm/mg  $\pm 0.9\%$  であった。

#### (2) $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の測定

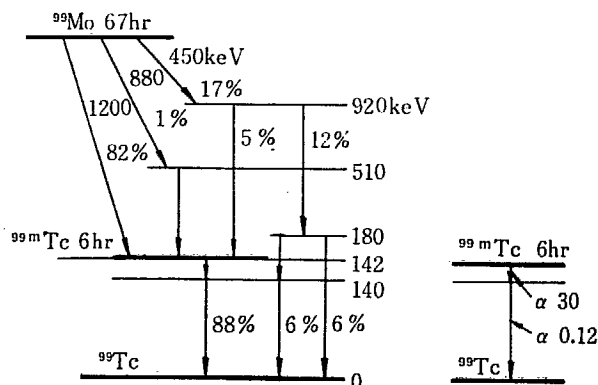


Fig. 3. 18 Decay Schemes of  $^{99}\text{Mo}$  and  $^{99\text{m}}\text{Tc}$

$^{99\text{m}}\text{Tc}$  の放射能の測定は、上述の方法で求めた Mo—Tc 放射平衡体の 140 keV の  $\gamma$  線の放出率を用いて、7.4 cm  $\phi \times 7.4$  cm NaI (TI) クリスタルの軸上 6 cm の位置における 140 keV  $\gamma$  線の光電ピークの計数効率を求めることにより行なった。 $^{99}\text{Mo}$  の 140 keV 以上の  $\gamma$  線のコンプトン散乱線が、140 keV 部分におよぼす影響はそれぞれエネルギーの近い単独の  $\gamma$  線を出す核種より求め補正した。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の 140 keV  $\gamma$  線の光電ピークの計数効率は  $0.0532 \pm 3\%$  であった。

なお、 $^{99}\text{Mo}$  の崩壊において 140 keV の  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の第 1 励起準位を通過して直接  $^{99}\text{Tc}$  の基底準位へおちる割合は、純粋な  $^{99}\text{Mo}$  より生じる  $^{99}\text{Tc}$  の生成曲線を解析することにより求めたが、有意の値は得られなかった。計算には文献値<sup>1)</sup>を用いた。

#### (3) 内部転換係数の測定

分離された  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  試料について、 $^{60}\text{Co}$  をトレーサーとする効率トレーサー法により 140 keV  $\gamma$  線の内部転換電子の放出率を求め、内部転換係数として 0.12 を得た。文献値の 0.095~0.11 と比較して  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の放射能の値は正しく求められたものと思われる。

本法により  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の放射能の値は、精度  $\pm 3\%$  以内で測定が可能となった。

### 3.7.2 高比放射能 $^{64}\text{Cu}$ 製品の化学検定法

フタロシアニン銅のホットアトム効果に関する基礎的研究が 10 年来なされ、それらの成果に基づいて昭和 41 年度から高比放射能  $^{64}\text{Cu}$  の量産化を目標とした実用化研究に着手し、昭和 42 年度中には製造プロセスの確立と製造装置の設計試作を完了した。数回の試験製造に成功し、試験依頼および特殊サービスとして出荷した。昭和 43 年 6 月にはカタログ化を完了し、それ以後は見込生産品目として定期的に出荷されている。

本製品は、従来から出荷されていた ( $n, \gamma$ ) 反応による製品とはその仕様が著しく異なり、化学形は酢酸銅形 (後者は塩化銅形) であり、とくに比放射能が後者の 200~400 倍となっていることに特徴がある。したがって製品の化学検定法についても後者とは異なった項目を検討する必要があった。すなわち基礎研究の段階で検討された項目の中から定常検定として採用すべきものを決定する必要がある。

#### (1) 比放射能の測定

本製品は ( $n, \gamma$ ) 反応による製品と異なり、製品中の  $^{64}\text{Cu}$  は無担体に近い状態で得られるはずであるが、実際にはターゲット物質の放射線分解などのために非放射性の銅が混入する。したがって比放射能の記載にさいし、( $n, \gamma$ ) 反応製品の場合のように使用したターゲットの重量から算出することは本質的に不可能であって、製品中の銅イオン (主元素) の定量をする必要がある。

定量法としては、基礎研究および試験製造の段階にお

いてジエチルジチオカルバミン酸ナトリウムによる光度法で行なっていたが、試供品の出荷をする時点ではポラログラフィーによって行なった。これは製造装置未完成のため製造量が不足で検査用試料として 0.05~0.1 ml しか使えなかったためである。装置完成以来、放射能濃度が高くなりバッチの製造量も増加したため、再び光度法で定量することが可能となった。

カタログ化にさいして主元素の定量は光度法によることにした。なおポラログラフ法も遠隔操作の容易さと不純物の同時定量の可能性などの利点から、将来は定常検定に採用することを目標として開発研究を継続している。

### (2) 不純物元素の定量

製品中の放射化学的不純物については基礎研究の段階で検討の結果 99.9 % 以上は保証されている。したがって同一バッチのターゲットを用いる限り毎回の検定は不必要と思われる。化学的不純物については製造のプロセスで鉄共沈による分離を用いているため、鉄イオンの混入の可能性がある。鉄については毎回検定の必要がある。銅と同時定量可能なポラログラフィーでは未だ感度の点で充分ではなく、チオシアン酸塩を用いる光度法で行なうこととした。

製造の化学形については、ペーパークロマトグラフ法によって確認することは可能であるが、定常検定の項目とする必要はない。

### (3) その他の検定項目

主元素量、放射能濃度、比放射能、不純物元素量のほかに、酸性度、全固形分、不揮発性成分、重金属元素量などが検定項目として考えられるが、酸性度については微小電極による遠隔操作測定によって行なっている。全固形分、不揮発性成分測定による不純物確認は、製造法よりみてとくに必要とする場合を除き定常的に実施する必要はない。

銅以外の重金属元素量も開発段階において、銅分離後ニッケル相当量として求め、十分な純度を得られていることを確認し、また製造時混入の恐れがないため必要時のみ実施することとした。

### 3.7.3 $^{198}\text{Au}$ 製品中のアルミニウムの定量

43 年 11 月以後に出荷した  $^{198}\text{Au}$  製品のうち、F-805 および F-901 (F: 国外照射ターゲットよりの製品) についてコロイド化が不可能であり、これはおそらく不純物による可能性があるので検討して欲しい旨ユーザーからの依頼があった。ユーザーのコメントとして、アルミニウムによる呈色反応から多量のアルミニウムが存在している恐れがあると連絡があった。化学検定係として早速この問題の解決にあたるため、精度の高い定量法について検討を加え、当該製品へ適用した。

定量法は高い放射能を有する試料が対象となるため、

遠隔操作法として適用でき、再現性の高い方法の確立に主眼をおいて実施した。オキシベンゼン抽出法とアルミニウムによる斑点分析法について定め、両者の比較を行なうことにより定量結果の確認もあわせて実施した。

### (1) 8-キノリノールによる定量 (オキシ法)

いずれの方法もアルミニウムの定量にさいして金は妨害となるのであらかじめ分離をしてから行なう必要がある。前処理としてのアルミニウムと金の分離は、オキシ法の場合、有機溶媒抽出法によった。イソプロピルエーテル、醋酸エチルほか数種の有機溶媒で検討の結果、塩酸溶液中で酢酸エチルによることが有効であることを確めた。すなわち製品 1.0 ml を採取し、液性を塩酸で 4 N に調整、分液ロート中で酢酸エチルとともに振とうする。有機層に移る金の量は 1 回の分離操作で 99 % 以上 (金の放射能でチェック) であり、抽出を 2 回行なえば、水層中の金はほぼ完全に除去される。分離後、水層に硝酸アンモニウムと水酸化アンモニウムを加え pH 値を 8.2~9.2 に調節し、オキシ溶液添加後ベンゼンで抽出する。アルミニウム量は 1  $\mu\text{g}$  から 20  $\mu\text{g}$  の範囲で精度よく定量できた。本操作は最後の光度定量も遠隔用分光光度計を使用することにより、前処理の段階からすべて鉛セル内の遠隔操作法で再現性よく定量可能であった。

### (2) アルミニウム法

アルミニウムはアルミニウムにたいし鋭敏に反応し、赤紅色のレーキ化合物を生ずるが、多量の金の共存下では色調が判別できず定量不能となる。したがってこの場合も前処理として金の分離を行わなければならない。分離法としては金の還元電位がアルミニウムより低いことから、還元剤で容易に金のみを還元できることを利用して行なった。

すなわち試料 1.0 ml を試験管にとり 10 % ヒドラジン溶液 5~6 滴を加え、攪拌したのち約 30 分放置し析出した金属状金を濾紙で濾別し、濾液の一部をアルミニウムの濃度に応じて点滴板上に分取する。醋酸アンモニウム溶液で pH 値を 4.6~5.0 に調節し、最後に 0.1 % アルミニウム溶液を 2~3 滴加え、生ずる赤紅色のレーキ化合物の色調を標準溶液の呈色と比較する。この方法によって 0.1 ppm 程度のアルミニウムの存在は確認することが可能であった。

pH 調節を厳密に規制する定量法であることから、鉛セル内の遠隔操作法による場合、技術的にやや困難さが認められるが、注意して行なえば充分適用できることを確めた。

### (3) 製品の分析

製品の分析は、ユーザーより問合せのあった F-805、F-901 とともに、比較検討のためコロイド化に問題のなかった製品のうちから C-819、C-820、C-822、F-804 および F-902 を任意に抽出し、上記二法によって同時

に定量を行なった。

その結果いずれの製品についてもアルミニウムの量は 5 ppm 以下～8 ppm の範囲内にあり、オキシ法、アルミノ法の二法ともほぼ同一の定量値が得られた。また問題となった F-805, 901 についてはいずれも 5 ppm 以下で他の製品よりむしろ少ない。ユーザー側でおこったアルミノによる呈色または沈殿生成の結果は、あるいは金または試薬中の不純物によるものとも思われ、コロイダル化の不能であった原因は、アルミニウムの影響よりも他の要因に基づくものと判断される。

なお $\gamma$ 線スペクトロメトリーによる放射化学的純度の確認など他の 2～3 の分析法も平行して実施した結果、問題となるような不純物は認められなかった。

#### (4) 結論

オキシ法もアルミノ法も文献に記載はないが、アルミニウムの定量のさいは金の妨害が大きく、微量の金も定量値にあたる影響が大きい。

定量的な分離法を検討するとともに、定量法自体、高精度かつ遠隔操作法として再現性のよい方法を検討し、製品に適用し、良結果を得た。

#### 参考文献 (RI 検定技術の開発 関係)

- 1) Nuclear Data Sheets; National Research Council (1961).

### 3.8 RI 照射技術の開発

43 年度は 12 月より予定されていた JMTR の運転開始を控え、高中性子束下での照射に対する技術開発に重点をおくとともに、水銀ターゲットの照射技術の様に新製品を製造するための照射技術の開発にもつとめた。

JMTR と炉型の類似した JRR-4 の T パイプ照射孔を利用して、照射温度の測定、線源製造用ターゲットの自己遮蔽効果の測定などをおこなったほか、JRR-2, JRR-3 停止時の短寿命 RI 製造のための代替炉としての利用方式を確立し、これによる製造を可能とした。また製品の品質の向上のためには JRR-2 VT-1 実験孔による中長寿命 RI 用ターゲットの照射を可能にし、水銀ターゲットの照射についてもほぼ条件の見通しを得ることができた。このほか  $^{60}\text{Co}$  線源の製造にそなえ、その第 1 段として、JRR-3 VC 孔改造照射孔による照射方式の確立に重点をおいて照射技術の開発を開始したが、これについては 3.4.1 (2) に述べられている。

JMTR による照射技術は運転開始が年度後半に至り当初の予定より延期されたため本体による開発はおこなえず臨界実験装置による実験にとどまった。

照射技術の開発にあたっては前年度にひきつづいて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の連絡、打合せ、協力を密にしておこない所期の成果をあげることができた。

#### 3.8.1 JRR-2, -3, -4 による照射技術の開発

##### (1) JRR-4 における短寿命 RI 製造のための照射技術の開発

JRR-2 の運転休止に伴い、短寿命 RI の製造の一部を JRR-4 照射によらなければならなかった。

JRR-4 には T パイプ、S パイプの 2 本の照射孔が設置されているが、プール内に試料を直接取り出すことのできる T パイプを利用することとし、照射カプセルの作成を行った。水中で照射試料を鉛容器に詰め替える作業は初めての経験であったため、鉛容器、トンクスなどの作業器具の機能を十分テストした末、水中での照射試料の取出し技術を確立した。

一方パイプ内の中性子束分布を放射化法により定量し、JRR-2, -3 で製造する RI と同じ比放射能の製品をえるための照射方式を決定した。

JRR-4 の最高熱出力 2.5 MW で運転したさい、T パイプ内の最高熱中性子束は  $3.8 \times 10^{13} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  速中性子束は  $5.5 \times 10^{12} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  熱外係数は 0.025 であった。

これらの特性試験および利用技術の開発を行った結果照射容量が非常に少ないことを除いては、JRR-2, -3 の一般照射孔より、取り出し時間が短いこと、速中性子束が高いことなど多くの点ですぐれていることがわかった。

##### (2) 原子炉内温度測定技術

T パイプ照射設備は計装照射が容易であることから、JMTR での高中性子束照射に備えて照射温度の測定を行った。まず照射時の試料内の温度勾配より発熱量を測定できる簡単な熱量計を作成し、T パイプ内の $\gamma$ 線量を測定した、その結果 $\gamma$ 線束の分布はほぼ中性子束の分布と一致した。熱出力 2.5 MW で運転したさい、最も $\gamma$ 線束の高い位置で 0.5 Watt/g であることがわかった。

この位置でイオウ、窒化アルミニウムなどを JMTR 内で照射するさいと同じ形状のカプセルに入れ照射温度の測定を行った。より熱伝導のよい照射方式を考案しつつ実験を続行中であり、次年度も引き続きこれらの実験を実施する予定である。

##### (3) JRR-2 VT-1 実験孔における照射技術の開発

現在運転中の原子炉で最も高い中性子束で照射ができる JRR-2 の VT-1 実験孔は  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{32}\text{P}$  の製造に利用されてきたが、さらに効率よく利用するために、 $^{192}\text{Ir}$  製造用カプセルの改良を行い、 $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  などのターゲットも同時に照射可能とした。現在照射中であり 44 年度よりこれら RI のより高比放射能の製品が期待される。

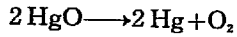
##### (4) JRR-3 による水銀ターゲット照射技術の開発

長年懸案となっていた酸化水銀の照射方式について、多くの照射試験の結果、結論を得て 44 年度より照射が



開始される予定である。これら照射試験について次の  
 べる。

酸化水銀は原子炉内で照射すると、熱分解あるいは放射線分解により次の反応が起ると考えられる。



まず発生した酸素ガスを定量する方式により、分解量を定量することとした。

酸化水銀 10 mg, 50 mg, 100 mg, 300 mg, 600 mg の試料それぞれ数箇所を石英アンプル内に減圧封入し、

熱中性子束  $1 \sim 3 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·sec で 166~320 時間照射した。しかし分解ガスの存在は確認できなかった。

原子炉材料とアマルガムを作るのは金属状の水銀であるので、酸化水銀中に分解した水銀自身を蒸留法で分離し定量することを試みた。

酸化水銀の分解をさげ水銀を蒸留する最適の温度条件をえるため、数回のコールド実験を行なった結果 210 ± 10°C で 2 時間加熱し、その減量を測定することにより酸化水銀中の金属水銀が定量できることがわかった。こ

TABLE 3.6 Table of irradiation capsules classified with target materials for RI production by JMTR.

Classification Item	1st class	2nd class	3rd class	4th class	5th class
Species of target material	Metal Ex. Au, Zn, Ni Co, Cd, Cr, Ag Pt, Fe, In, etc.	Powder Ex. KCl, BaCO <sub>3</sub> , PbCO <sub>3</sub> , K <sub>2</sub> CrO <sub>4</sub> , CaCO <sub>3</sub> , Cs <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> , Te <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , MoO <sub>3</sub> , etc.	Special  S	Special  Telluric acid	Special  AlN
Rabbit type capsule					
Basket type capsule					
Outer capsule			 or		 future?
N.B.	Sample Quartz ampoule wrapped with aluminium foil. Cold-welded capsule called inner capsule for <sup>131</sup> I in RI, capsule in JMTR. Cold-welded capsule called DL-type capsule in RI, innercapsule in JMTR. Welding part. * : Future plan				

TABLE 3.7 Table of inspection standard of irradiation capsules for RI production by JMTR.

Classification Item	1st class		2nd class		3rd class		4th class			4th class			
	Single	Double	Double	Double	Double	Double	Triple			Triple			
Species	Outer	Capsule	Outer	Capsule	Outer	Capsule	Outer	Capsule	Inner	Outer	Quartz ampoule (Capsule)	Inner	Outer
Inspection of exterior	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Inspection of dimensions	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
Measurement of weight	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
X ray photograph of welded part	○	—	○	—	○	(○)	○	(○)	—	○	(○)	○	○
Leak test with ethylene glycohol		○	—	○	—	○	—	○	—		—	—	
Leak test with He detector		—	○	—	○	—	○	—	○		—	○	
Inspection of raw material (mil sheet)	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	(○)	○	○
Photograph of whole view	○	—	○	—	○	—	○	—	○	—	—	○	—

N. B. Dimensions are measured with the accuracy of 1/20 mm for I. D., O. D., and thickness, and 1/10 mm for length. Weight is measured with a spring balance.

X ray photograph is taken in the direction of horizontal and vertical.

Inspection of raw material is substituted for the milsheet.

Content of milsheet ① Chemical composition.

② Mechanical properties a. Tensile strength b. Elongation percentage.  
 (JIS Standard) c. Hardness (Vickers) d. Yield strength

\*: Inspection of width and height of bead of welded part is pending.

の方法により  $1 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·sec で約 320 時間照射した 0.3~0.6 g の試料数個について、分解量を測定した結果 0.28% 以下の値をえた。これは 0.6 g の酸化水銀を照射したさい約 0.23 ml の酸素ガスが発生することに相当する量であり、照射を実施するうえに全く支障のない量である。したがって 43 年度試作したステンレスカプセル内に石英アンブルにつめた試料を入れ照射すれば十分安全に照射できることがわかった。

### 3.8.2 JMTR による照射技術の開発

運転開始が予定より約一年間延期されたため、JMTR 本体による照射技術の開発は行なわれなかった。したがって JMTR 臨界実験装置を利用して、モックアップ照射試料内の中性子束分布を測定し、ターゲット作成のさいの参考資料を得たにすぎなかった。

しかし照射カプセルの形状、検査方式などについては調査資料にもとづいて、材料試験炉部と活発な討論が行なわれ、多くの結論を得た。これらのうち JMTR で照射するさいに用いられるカプセルの形状の区分とそれぞれのカプセルについての検査方式を定めたものを TABLE 3.6 と TABLE 3.7 に示した。

なお JMTR による特殊線源の照射技術の開発も臨界実験装置によっておこなったがそれについては 3.4.2 に述べられている。

## 3.9 RI 製造研究

昭和 43 年度においては、RI 製造研究は、ホットアトム効果の研究と核反応の研究を主体として実施した。その他には、製造部内の他係と協力して、JMTR-CF における中性子束分布測定実験を実施した。

ホットアトムの研究においては、主としてフタロシアニンの金属錯塩を対象とし、ホットアトム現象に及ぼす種々の要因の因果関係に着目した研究を行なった。まずフタロシアニン亜鉛については、反跳現象を誘起するための核反応の違いによるホットアトム効果の違いに着目した研究を行った。ついで結晶サイズの違いによる熱アニーリング効果のあらわれ方の違いについての研究を行なったが、その結果は、結晶サイズの違いよりはむしろ結晶生成過程の違いによる格子欠陥の数の違いが支配的な因子であることを示唆した。この結論はその後、照射前に試料の熱処理を行なうことにより、格子欠陥の密度を変化させた上で反跳原子の熱アニーリング効果を調べるといふ研究に発展した。

他方フタロシアニンカドミウムに対して開発された“daughter tracing technique”を適用して熱アニーリング効果の本格的な研究を行ない、結果の反応論的解析を行なったところ、1) 他のフタロシアニン錯塩の場合と同じように 2 つの段階が存在すること、2) 反応次数はフタ

ロシアニン亜鉛などの場合と異なり一次であることが見出された。また 42 年度に着手されたホットアトム効果と反跳エネルギーとの関連についての研究は、43 年度にも継続され“appearance energy”という概念を導き出すに至った。

核反応の研究においては、42 年度に開発された多量の内部転換電子を放出する核種の絶対側定法は、その後さらに発展させられて、より一般的な形に拡張されると共に、その精度を著しく高めることに成功した。また <sup>238</sup>U の陽子誘起核分裂の研究においては、測定したすべての核種についての生成量を求め終った。それらのうち、遮蔽核種についての生成量と、一部の累積収率とを用いて核電荷分布についての考察を試みた。さらに他の研究者達によって報告された種々の核分裂系についての種々の励起状態での核電荷分布に関する結果をまとめて、核電荷分布において分裂核の違い、励起エネルギーの違いを超越した系統性を見出さんと試みた。その結果部分的に成立する系統性を見出すことには成功したが、そのより満足しうる成果を求める仕事は次年度に持越されることになった。しかし部分的なものとはいえ、その成果は示唆に富んだものであり、なかでも、核分裂の前後に放出される中性子数に関する結論はきわめて興味深いといえる。

その他、シエル構造を導入した核準位密度式は 42 年度に引続き理論値と種々の実験値との比較を行ないほぼ満足すべき結果を得た。ことに核分裂と粒子放出過程の競争過程の解析に応用した結果は、高いエネルギー領域で存在した異常性を見事に除去することに成功した。また核分裂の静的模型に基づいた計算は、ようやくプログラミングが完成し、次年度に数値計算を行なうこととなった。

### 3.9.1 ホットアトム効果の研究

前年度にひきつづき、フタロシアニン系錯塩を中心に固相におけるホットアトム効果の研究を実施し、反跳原子の挙動におよぼす種々の効果を検討した。その中で、特に興味深い二三の研究について触れてみたい。

(a) 反跳原子の挙動におよぼす中心金属と配位子との化学結合性の効果

従来、フタロシアニン銅およびフタロシアニン亜鉛など、中心金属と配位子の結合が共有結合性であるものについての反跳化学的研究は、数多く行なわれてきたが、イオン結合型フタロシアニンについては全く知見が得られていなかった。しかし、前年度に我々が開発した daughter tracing technique を用いることにより、イオン結合型のものの一つであるフタロシアニンカドミウムについても新たな知見を得ることができた。その結果を TABLE 3.8 に示す。

フタロシアニンは分子結晶であるが、中心金属の化学

TABLE 3.8 Comparison of heat annealing processes for recoiled atom in three different metal phthalocyanines

Compound	Crystal form	Activation energy in annealing reaction (eV)	
		Stage I	Stage II
Cadmium-Phthalocyanine (Ionic bond)	—	0.1 (<100°C)	0.4 (≥140°C)
Copper-Phthalocyanine (Co-valent bond)	α β	~0.7 (<200°C) ~0.6 ( " )	~1.75 (>250°C) ~1.9 ( " )
Zinc-Phthalocyanine (Co-valent bond)	α β	~0.7 (<200°C) ~0.7 ( " )	~1.9 (>200°C) ~1.8 ( " )

結合性によって、反跳原子の挙動に大きな相違が見られるということは、興味ある問題を提起している。すなわち、カドミウム・フタロシアニンのようなイオン結合型フタロシアニンの場合には、イオン結晶に類似した取扱が可能になる。Stage I の反応は、反跳現象によって分子間に存在せしめられた反跳原子が再結合する過程であり、Stage II は、格子欠陥の位置にトラップされた反跳原子が再結合する反応と考えられる。共有結合型の場合には、Stage I は交換反応、Stage II は拡散律速の再結合反応と考えられている。

(b) 反跳原子の挙動におよぼす結晶粒子の大きさの効果

α型フタロシアニン銅の熱アニーリングについて、結晶粒子の大きさの効果を検討したところ、Fig. 3.19 のような結果が得られた。Stage I では結晶粒子の効果は殆んど見られないが、stage II における熱アニーリングでは、結晶粒子の小さい方が annealable portion (初期リテンションと熱アニーリング後の飽和リテンション値の差) が大きくなっている。このことは、粒子の大きな結晶ほど結晶成長が進み、結晶中の欠陥などが減少すると考えれば、熱アニーリング過程が結晶中の欠陥、あるいは空孔の濃度と密接な関係を有していることを示唆するものと思われる。

(c) 固相における反跳効果のエネルギー依存性

インジウム・エチレンジアミン四酢酸をターゲットとして、 $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma')^{115\text{m}}\text{In}$  反応による反跳効果を、反跳

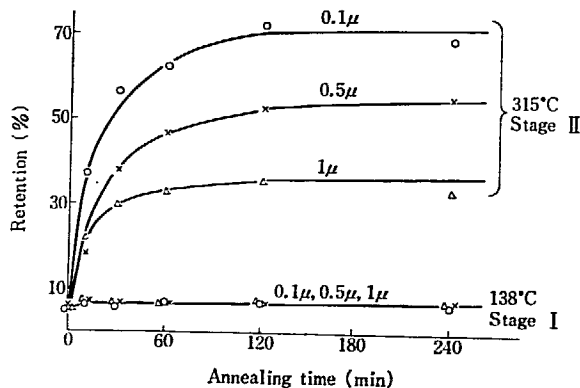


Fig. 3.19 Effect of crystal size on annealing process following the  $^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$  reaction in α-copper phthalocyanine.

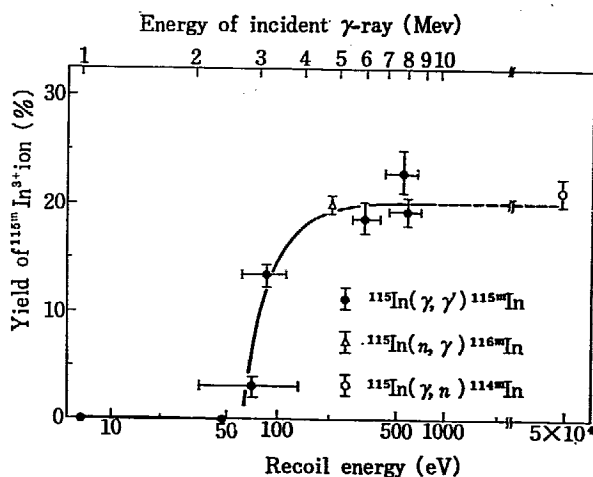


Fig. 3.20 Yields of  $^{115\text{m}}\text{In}^{3+}$  ion following the  $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma')^{115\text{m}}\text{In}$  reaction in In-EDTA complex as a function of recoil energy

エネルギーと反跳原子の収率に着目して研究した。一般に (n, γ), (γ, n), (n, 2n) 反応などで反跳原子に与えられるエネルギーは、 $10^2 \sim 10^5$  eV の範囲にあり、これまでのところ低エネルギー領域での反跳効果について検討された例はない。(γ, γ') 反応を利用することによって 0.6~数 100 eV のエネルギー領域についての反跳効果の検討が可能となり、Fig. 3.20 のような結果が得られた。

この結果は、1) 反跳効果の出現は約 60 eV のところにあること (この値を Appearance energy と名付けた)、2) 反跳エネルギーが約 200 eV を越えると収率が一定の値になることなどを示しており、これらの事実は、固相におけるホットアトム化学と固体物理学を結びつける有力な手掛を与えるものである。

3.9.2 核反応の研究

核反応の研究の全般的な経過ならびに成果については節のはじめに触れているのでここでは、トピックスとして核電荷分布の系統性についての仕事をやや詳しく紹介することにする。

自発核分裂ならびに熱中性子誘起核分裂については、核電荷分布が比較的良好に研究され、或る程度の系統性も見出されている。しかるに、かなりのエネルギーをもつ荷電粒子によって引き起された核分裂については、現在まで何ら満足のいく系統性が見出されなかった。このこ

とは、比較的高いエネルギー状態での核分裂機構を解明せんとする試に対する障害となっているばかりでなく、核分裂の放射化学的研究を志す時に最初に遭遇する困難となっていた。我々もまた、 $^{235}\text{U}$ の陽子誘起核分裂の研究を進めるに当たってこの問題に直面し、必要にせまられてなんらかの系統性を見出そうとした。

### (1) 全鎖列収率と部分鎖列収率 (total and fractional chain yield)

ある核種について実験的に求められた生成量は、まずその質量数に対応する全鎖列収率で割って、部分鎖列収率に換算されねばならない。そのためには、その累積収率が全鎖列収率に近いことが明らかなデータを選び出して、大ざっぱな質量分布曲線を構成し、その曲線から必要とする質量数の位置の全鎖列収率を読み取るのである。こうして求めた部分鎖列収率の値を使って、その質量数に対する最確電荷 (the most probable charge,  $Z_p$ ) を下に述べるような適当な電荷分散式を用いて計算する。こうして求めた  $Z_p$  と電荷分散式は、逆に先に大ざっぱに求めた全鎖列収率を改めて与えることになる。この操作を自己無撞着に到達するまでくり返すのであるが、実際には一回の繰返しで充分であることが見出された。

### (2) 電荷分散曲線 (Charge dispersion curve)

(1)において求めた部分鎖列収率を  $Z_p$  と結びつけるのは電荷分散曲線と呼ばれるものである。これは質量数一定の時、与えられた核電荷  $Z$  をもつ核種の相対確率を与える式である。先に触れた低エネルギー核分裂のばあいには、分散曲線は  $A$  を質量数とするとき次のようなガウス曲線

$$p(A, Z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left[-\frac{(Z - Z_p(A))^2}{2\sigma^2}\right]$$

で充分よく表わされることが確かめられている。そのばあい、曲線の幅を決定する因子、 $2\sigma^2$ 、は 0.94 であると結論された。最近になって McHUGH と MICHEL は質量分析器を用いた核分裂の研究から、高いエネルギーの核分裂のばあいにも、電荷分散曲線は  $2\sigma^2 = 0.95$  のガウス曲線と考えてよいことを確かめた。したがって我々もまた、彼らの得た分散曲線をそのまますべての核種に対して適用することにした。なぜエネルギーが高いばあいにも分散曲線が低エネルギーの核分裂のばあいと同じになるのか、またなぜすべての核種に対して共通になると考えてよいのかという二つの問題についての考察はここでは省略する。

### (3) 低エネルギー核分裂と高エネルギー核分裂の間で最確電荷 $Z_p$ に見られる違い

前項までに求めた最確電荷  $Z_p$  を質量数  $A$  に対してプロットしたものを Fig. 3.21 に示す。図から明らかなように低エネルギー核分裂のばあいには  $Z_p$  はかなり複雑な曲線となるのに反して、高エネルギーのばあいはき

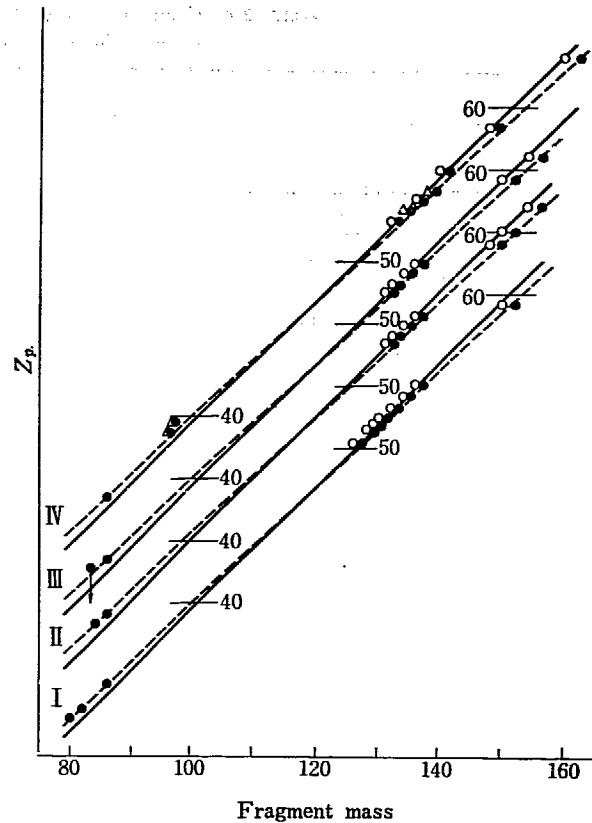


Fig. 3.21 The most probable charges  $Z_p$  versus fragment masses. Open circles and triangles are for the observed  $Z_p$ 's. Closed circles and broken lines give those corrected for the prompt neutron emission. Full lines represent  $Z_{ucd}$ , the unchanged distribution. I;  $^{232}\text{Th} + \alpha$  with 39.3-MeV excitation, II;  $^{235}\text{U} + \alpha$  with 39.7 MeV, III;  $^{238}\text{U} + \alpha$  with 39.9 MeV, IV;  $^{238}\text{U} + p$  with 40.1 (○) and 41.1 MeV (△).

れいな直線となる。詳しい議論は省くとして、このことは後者においては、分裂後の破片からの中性子放出は前者のばあいと異なり、破片の質量数に無関係ないしは直線的な関係にあると考えなければならないことを示している。

### (4) 放出中性子数の励起エネルギー依存性

エネルギー保存則に基づいた考え方によって、核分裂系に与えられた励起エネルギーの増加分は、中性子放出の形で消費されねばならないことが導かれ、実際に放出される全中性子数は励起エネルギーに比例して増加することが、比較的低いエネルギー範囲でたしかめられている。しかしこのように励起エネルギー変化がもたらす効果をすべて中性子放出に押しつけて、エネルギーに依存しない系統性を最確電荷  $Z_p$  に求めようとする試みは今までなされなかった。見方を変えれば、この問題はそれほど複雑な因子を含んでいるのである。その困難の最たるものは、中性子放出に核分裂前放出と核分裂後放出の二つの過程が含まれていて、その各々を実験的に区別して測定した例はほとんどないといえるという事実に存する。したがって、全体として見た時の中性子放出数のエ

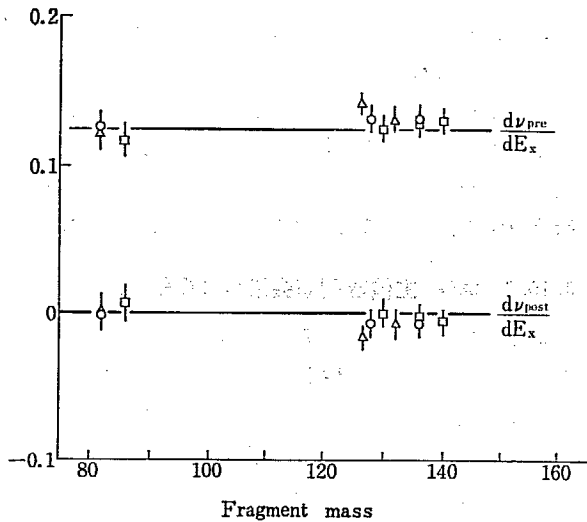


Fig. 3.22 Energy dependence of pre-fission and post-fission neutrons.

エネルギー依存性を、これら二つの過程にどう振分けられるかに関して何らの制限がない訳で、これに常数項の選択の仕方が加われば、あとは僥倖を期待するほかはなくなるのである。

しかし幸いなことに我々は、与えられた  $Z_p$  の値からこれら二つの過程のそれぞれに対するエネルギー依存性を導き出す方法を見出した。結果だけを Fig. 3.22 に示すと、核分裂後の放出過程は事実上エネルギーに無関係であり、したがって励起エネルギーの増加分はほとんどすべて核分裂前の過程で費やされるという重要な結論を得た。

#### (5) 核電荷分布の系統性と核分裂前放出中性子数の計算

前二項において放出中性子数に関する系統性の大部分が明らかにされたので、残された自由度はかなり少なくなり、比較的簡単に最もよい  $Z_p$  の系統性とそれを与える中性子数に関する条件が定められた。その条件は分裂前放出中性子数  $\nu_{pre}$  と分裂後放出中性子数  $\nu_{post}$  のそれぞれに対して

$$\nu_{pre} = \frac{E_x}{7.5} + \frac{Z_c^2}{2A_c} - 20$$

$$\nu_{post} = 0.03(A - 80)$$

となる。ただし  $E_x$  は励起エネルギー、 $A_c$  および  $Z_c$  はそれぞれ複合核の質量数と電荷を表わすものとする。この条件に対して得られた結果が Fig. 3.23 に示してある。図の縦軸の量は、核電荷を機械的に二つの分裂片に分配した時に得られる値  $Z_{ucd}$  と  $Z_p$  の差を表わし、横軸は、分裂片質量の分裂質量に対する比 (mass fraction) を与える。図から明らかなように、こまかい点で問題があるにしても、今や我々は約 50 MeV までのエネルギー範囲で任意の核分裂系に対して  $\pm 0.1$  電荷単位の誤差範囲で  $Z_p$  を予言することができると考えてよいであろう。

しかしその反面  $\nu_{pre}$  に対して定められた関係式は新たな問題を投げかけることになった。すなわち上の関係式

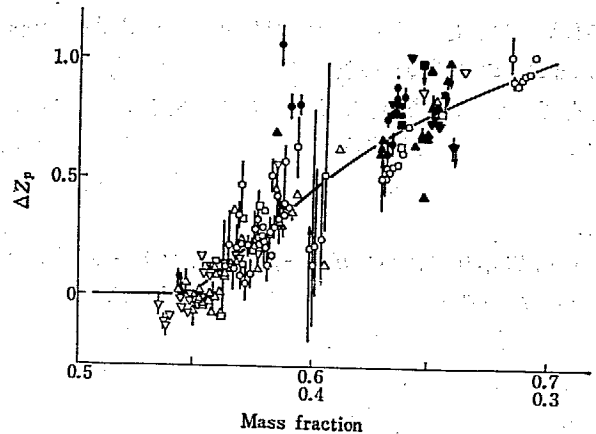


Fig. 3.23 The most probable charge  $Z_p$  as a function of the mass fraction. Circles are for  $^{238}\text{U}+p$ , triangles for  $^{232}\text{Th}+\alpha$ , inverted triangles for  $^{235}\text{U}+\alpha$ , and squares for  $^{238}\text{U}+\alpha$ . Open marks give the  $Z_p$  of the heavy fragments and closed ones give those of the light fragments.

は  $\nu_{pre}$  が励起エネルギーに比例して増加し、50 MeV 付近では約 7 程度にまで達することを示している。ところが Jackson-Vandenbosch のモデルに基づいて  $\nu_{pre}$  の計算を行なったところ、エネルギーが 50 MeV に達しても  $\nu_{pre}$  は高々 1 を越えることはないという結果を得た。この矛盾を解決する可能性として一つ考えられることは、 $Z_p$  の系統性から導き出された  $\nu_{pre}$  は核分裂前に蒸発する中性子だけでなく核分裂の瞬間に放出される中性子を含んでいる、ということである。

#### (6) むすび

かくして一応満足のいく系統性が求められた訳であるが、詳細にみるならば個々の核種についてあるものは系統的に高すぎる値を、またあるものは低すぎる値を与えるなど今後の検討にまつ点がいくらか残されている。さらに、核分裂機構の解明という観点から見たとき、最終的な形で現われてきた低エネルギー核分裂と高エネルギー核分裂の間の差異、この系統性が対称核分裂の領域までカバーするか否か、副次的に得られた中性子の系統性についての解明等々、今後の研究にゆだねられる問題が数多く含まれている。

### 3.10 その他

昭和 43 年度中に製造部は所外の機関と協力していくつかの研究・開発活動を実施した。“3.3 有機標識化合物の製造技術の開発”の項にも述べたように、東京大学島村研究室との協力研究が開始され、同テーマの進歩に大きく貢献している。中華民国国立清華大学との共同研究も二年目を終え、両者共通の基礎的課題について多くの貴重な知見を得た。

また年度内に国際原子力機関 (IAEA) 主催の専門家会議 (Study Group Meeting) が二回開かれ、製造部からも代表を派遣して成果の発表をおこなった。さらに

IAEA が編集し発行した“Manual of Radioisotope Production” (1966) の改版に際して、原稿作製への協力を要請され、製造部で実施している製造作業のマニュアルを集約して提供するとともに、原子炉による照射技術に関する部分の原稿執筆を天野製造技術課長が受持った。

昭和43年6月にハンガリー国立アイソトープ研究所の GEZA TOTH (ゲザ・トート) 博士が IAEA 研修生として製造部に配属され、製造技術課において研究を実施することとなった。当初の研修期間は昭和44年2月までであったが、研修期間の延長が認められ、昭和44年8月まで滞在を予定している。

また、昭和44年3月末に、米国ロチェスター大学教授 HUIZENGA 博士が学会会議の招へいで来日されたのを期に東海村に招へいし、Fission 化学を中心とした講義をうけるとともに、製造部で実施している研究についての討論をおこない、有益な示唆をうけた。

### 3. 10. 1 清華大学との共同研究

清華大学との共同研究は、IAEA の提案にもとづいて昭和42年度に、製造部と清華大学原子力研究所とが共同研究契約をむすび“低温照射による反跳原子の化学的挙動”を研究することを目的として開始された。昭和43年度には、あらためて2年間の研究契約をむすび、その第1年度分の研究を昭和43年8月、9月および10月の3ヶ月間に実施した。

この期間に実験の対象としたターゲット物質は、クロム酸ナトリウム無水塩 ( $\text{Na}_2\text{CrO}_4$ )、クロム酸ナトリウム4水塩 ( $\text{Na}_2\text{CrO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ )、クロム酸カリウム ( $\text{K}_2\text{CrO}_4$ )、クロム酸マンガン無水塩 ( $\text{MnCrO}_4$ )、クロム酸マンガン含水塩 ( $\text{MnCrO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ )、クロム酸タリウム ( $\text{Tl}_2\text{CrO}_4$ ) および重クロム酸タリウム ( $\text{Tl}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ ) の7種であった。これらのターゲット物質を JRR-3 の気送管でドライアイス温度を保ったまま照射し、照射後も低温に保ったまま保存したのち、熱焼鈍 (Thermal annealing) を実施して、結晶水あるいは対イオンが初期リテンションにおよぼす影響を検討した。

また初期リテンションの測定に際しては、塩化リチウム ( $\text{LiCl}$ ) 溶液をもちいる低温化学処理を実施し、化学処理時の温度上昇をさけるようにした。

実験結果の示すところによれば、クロム酸ナトリウムにおいては、無水塩におけるリテンション値は、水和物のリテンション値より高くなる。この傾向は、昭和42年度に実施したクロム酸マグネシウムについて見出された傾向と相似してをり、ホットアトム効果におよぼす結晶水の影響をあきらかに示している。

クロム酸タリウムについては他のナトリウム、カリウム、マンガンなどの塩類とややことなつた傾向が見出されたが、これは従来あまりとり上げられていなかった対

イオンの影響をときあかす上での重要な手掛りを与えるものと考えられる。

本研究は昭和44年6月から再開され、一応完結する予定である。なお、製造技術課吉原賢二副主任研究員が東北大学に転出したあとをうけて、同課田中吉左右副主任研究員が直接担当者として加わることとなった。

### 3. 10. 2 IAEA 主催専門家会議への貢献

昭和43年6月3日から7日までの期間、オーストラリア国ルカスハイトで IAEA 主催のラジオアイソトープ製造専門家会議が開かれた。製造部では当初柴田製造部長と天野製造技術課長二名の派遣を予定していたが、業務上の都合で柴田部長の出席を断念し、天野製造技術課長が、柴田部長にかわって“Progress report on radioisotope production in JAPAN from October 1962 to September 1967” を発表し、さらに“Irradiation techniques for aluminium nitride” と“Outline of production facilities in JAERI” の二編を発表し、製造部の第一期5ヶ年計画の成果を報告した。この成果は各国代表の興味と関心を強く惹き、なかんづくオーストラリア国代表、カナダ国代表からは大きな賞賛を得た。

昭和44年3月17日から20日までの間、フィリピン国のマニラで開かれた研究炉利用専門家会議には天野製造技術課長が Technical Consultant として出席することとなり、“Present status of the hot atom chemistry research and its application in Radioisotope Centre JAERI” と題して、製造部での経験にもとづくホットアトム効果の RI 製造への応用の有利性を報告した。製造部のあげた特殊 RI 製造法開発の成果と、中華民国清華大学との共同研究の成果とは、出席各国代表の関心の的となり、米国ブルックヘブン国立研究所の Harbottle 博士からは、“この二つの成果は、この地域内に所在する原子力センターの研究方向設定の一つの指標ともなるものである。このような形での地域内協力の実現と、小型炉または中型炉による高比放射能 RI 製造技術の発展とを切望する”との絶讃を得た。

以上二つの地域内専門家会議を通じて感じられたことは、RI 製造の分野においても日本はもはや後進国とは見做されておらず、地域内で指導的立場をとることを強く要望されているということである。またカナダ、オーストラリア両国は日本との具体的な協力実現を希望しており、今後の製造部の国際協力の計画立案にあたっては充分にこれらのことを考慮する必要がある。

## 4. 施設の整備と安全管理

### 4.1 施設の整備

昭和39年 RI 製造棟建家が完成してからひきつづいて行ってきた製造施設の内装整備は、前年度ではほぼ完了し本年度は大きな施設整備はなかった。

年度当初に施設の補修改修計画をさだめ、それにもとづいて施設の補修改修を行なった。

RI 製造棟の平面図を巻末に示した。

#### 4.1.1 施設の補修改修計画とその実施状況

年度当初に施設の補修改修について調査をおこない、それにもとづいて年度計画をさだめた。その大部分は技術部に依頼する事項であるが部の予算を必要とする事項についてはあらかじめ予算をわりあててその実現をはかった。

計画の主な事項およびその実施状況は TABLE 4.1 に示した。

TABLE 4.1 施設補修改修計画およびその実施状況

建家名	施設補修計画事項	実施状況
RI 製造棟	仮パーキングエリアの設置	43年8月完了
	建家周辺芝はり	次年度
	113 室安定電源装置移設	次年度
	113 室グラフィック盤整備	一部次年度に継続
	305 室 I ビーム設置	43年8月完了
	306 室酸水素バーナ設置	44年3月完了
	311 室実験盤増設	44年1月完了
	311 室コンプレッサ移設	44年1月完了
	502 室ピット漏水補修	調査、次年度
各室実験盤一機器間固定配線	完了	
第1研 究棟	145-147 室改装	43年7月完了
	245-247 室改装	43年7月完了

RI 製造棟 113 室のグラフィック盤は各実験室実験盤の通電、各換気系統の運転状況などを標示するもので安全管理や終業点検に必要な設備であるので常時完全な状態で作働させるため月例の点検をおこなうほか不良箇所について整備を行なった。

305 室サービスエリア天井に設置した I ビームは同室特殊フードの RI 取扱量が予想値よりはるかに増加し放射性試料搬出入のため鉛容器の移送、吊上げの頻度が多

くなったので作業の安全、能率化をはかったものである。306 室の酸水素バーナーは RI 製造棟でおこなう石英ガラス細工のために共通に使用するものとして設置したもので、その設置にあたっては担当者をおきその安全性を十分に検討して行なった。

502 室  $^{131}\text{I}$  廃液一時保管タンク用ピットは留水が認められたので建設部および施工業者と協同で原因調査をおこない地下水の浸出が原因であることが明らかになった。対策について建設部に依頼して検討をおこなったが実施は次年度となった。

第1研究棟では147 室を居室から実験室に改装し、また245-247 室は研究の便をはかって中間間仕切りの撤去などの改装を行なった。

#### 4.1.2 その他

前年度末から実施していた RI 製造棟 400 台建家の火災報知設備の改装整備が本年度に完了した。

43年7月、JRR-2 事故にともない全所的に無人時の安全対策について検討が行なわれたが、その一環として RI 製造棟マスター鍵の整備が完了した。また落雷時の電圧降下による換気異常に対処するため、 $^{131}\text{I}$  製造施設換気系の改装、および放射線事故警報装置の無停電化などについて、技術部が中心となって計画を作成したが、実施はいずれも次年度となった。

また  $^{60}\text{Co}$  大線源製造計画にもとづく施設、機器の調査および基礎的な設計条件の検討を行なった。

また JRR-2 運転休止にともない研究炉管理部では JRR-3 の共同利用を拡張したが、それにもなつて 307 室替替セルの借用の依頼があったので、当部の使用時間と調整して便宜をはかった。

### 4.2 安全・施設管理

安全および施設の管理は前年度と同様の体制でおこなったが、部安全会議は構成を変更してその活発な活動をはかり、また前年度問題となった安全管理担当者への荷重軽減のためライン組織の活用および実施面の強化につとめた。

実行面では年度当初に方針ならびに重点項目をさだめ、それにもとづいて実施したが、43年7月 JRR-2 事故にともない、とくに「無人時の安全措置」を最重点項目として追加してその整備につとめた。

これらの安全および施設の管理は、放射線管理課および工務第二課などの協力によって行なわれ、大量の RI 取扱作業にかかわらず安全上問題となるような大きな支

障もなく、ほぼ満足すべき状態であった。

#### 4.2.1 安全・施設管理体制

安全および施設の管理はライン組織とは別に、42年度にひきつづき担当課長制度を設け、施設管理には次長を、安全・衛生管理には検査課長をあて、さらに各課より1名づつ補助者（係長）を選出した。また第1研究棟の管理には研究棟担当の補助者（係長）を設けた。所定める部安全管理担当者および課安全担当者には上記担当課長および補助者があつた。

また作業安全上とくに重要であるクレーン、フォークリフトおよび酸水素バーナーには管理責任者を指名した。

管理業務の実施はラインの活用に重点をおき、実行単位は係毎とし係長の掌握のもとに実施したが、区域に共通な問題の解決に当るために、RI製造棟を3ブロックに分け地域安全管理担当者を設け、課選出の安全管理補助者をこれに当てた。

室ごとの火元責任者、部屋責任者は一部責任者の変更をおこなったほかは前年度のとおり実施した。

事故時の防護体制としては事故現場責任者の代理を新たに2名追加（正1名、代理5名）したほか、事故現場責任者、安全管理担当者、出先工務二課員および放射線管理課員を主とした警報発信時の連絡体制を整備し、警報の種類、内容に応じた第一次呼集、第二次呼集方式を確立した。

#### 4.2.2 安全・施設管理の運営

43年度の運営方針について年度当初に安全管理担当者の任務、部安全会議の進め方などについて明らかにするとともに実施重点項目を定めた。すなわち、(1)主要施設の安全運転手引の作成、(2)RIの搬入より出荷、廃棄までのRI管理方式の整備、(3)防護訓練、の三点を重点項目とし細部についても検討審議し具体的な目標を定めた。しかし、43年7月に所内に無人時の事故が発生し、全所的に無人時の安全措置の強化が要請されたためこれを緊急に重点項目に追加した。

部安全会議の構成について検討を行ない、現場で直接仕事をしている人達の比率を高め、できるだけその意見を発言しやすいようにした。そのため、本年度から構成員から係長をのぞいたが、一方ラインによる実施のかなめとなる係長への周知は、課内の会議および部内会議で徹底をはかるよう努めた。部安全会議の構成は部、次、課長（5名）、安全担当者（5名）、係代表者（6名）および放射線管理課、工務第二課のRI製造棟駐在代表者（2名）および事務局の19名である。次長が主宰し月1回定例に開催した。その主な審議事項をTABLE 4.2に示す。

また本年度から施設および安全管理について月毎の報

TABLE 4.2 部安全会議審議状況

回	月日	主な審議事項	要 点
22	4. 22	43年度安全管理の運営	ライン実施面の強化
		安全会議の進め方	構成比率の変更
		安全管理重点項目	施設使用手引作成など
23	5. 27	フォークリフト、クレーン管理、使用基準	
		RIの一時保管状況調査結果 実験室等鍵の管理方式	保管量、期間、場所、安全性 終業時の安全確認手段
24	7. 1	安全週間行事	
		RI等緊急標識	室別標識、総合標識
25	7. 29	JRR-2事故に伴う終業点検強化、機器の安全措置	係長以上による総合点検の実施、終夜通電機器の再検討
26	8. 26	RI等緊急標識	RI製造標は総合標識
		終夜通電機器の点検結果および今後の措置	設置、使用基準作成の小委員会設置
27	9. 24	終業総合点検結果	共通的箇所への分担など
28	9. 30	終夜通電機器管理方式	骨子検討
		終業総合点検所見	部長に答申（10.1部長より全員に訓示）
29	10. 28	RI製造棟始終業措置要領	各係の専用箇所および共通箇所の実施法
30	11. 29	終夜通電機器管理使用基準	
		放射性汚染などの防止	汚染例の解析方法
31	12. 23	カプセル保管セル使用手引	承認
		開発関係RI保管廃棄方式（骨子）	
32	1. 27	製造部安全管理関係資料	
		警報設備の再確認	副警報盤発信時の措置
33	2. 24	44年度安全管理方針	
		防護訓練実施	緊急救急訓練
34	3. 24	放射性汚染例の解析	
		43年度安全管理まとめ	

註）主な審議事項についてのみ記載した。また継続審議したものうち記載省略したものもある。

告書を作成し部内に配布し周知の徹底をはかった。

実際の運営にあたっては、とくにライン体制による実施面の強化に重点をおき、多くの成果をあげることができたが、内容が多種広範囲でありまた係間にわたるもの



が多いのでまだ十分とはいいがたく、今後もお検討を必要としよう。

#### 4.2.3 安全・施設管理の実施状況

##### (1) 安全管理体制の整備

##### (a) 無人時の安全措置の強化

年度当初に事故現場責任者、安全管理担当者、放射線管理課、工務第二課の RI 製造棟駐在者を主体として放射線事故警報発信時における連絡、呼集方式について再検討をおこない、警報内容に応じた効率的な第一次、第二次呼集方式を定めた。

43年7月所内に発生した無人時の事故にかんがみ、無人時の安全措置の再検討を行ない、RI 製造棟終業総合点検の実施、始終業措置要領の再検討、終夜通電機器の設置ならびに点検基準の作成、およびそれにもとづく管理を行なった。

##### (i) RI 製造棟終業総合点検の実施

RI 製造棟の終業点検は毎日終業時に各係毎に行なわれているが、43年7月所内に事故が発生したのち、ただちに夜間など無人時の安全確保の強化および終業点検方式の確立をはかるために、係長以上による RI 製造棟全域の終業総合点検を毎日2ヶ月間実施した。この点検結果の解析によって、いままでの終業点検の盲点および弱点を指摘し部内全員に周知した。

##### (ii) RI 製造棟始終業措置要領の作成

いままで各係で行なわれていた始業終業措置について、前述の終業総合点検結果を参考にして検討を行ない、建家全域の分担区分、共用箇所の手配、始終業措置実施基準など係間にわたる点を調整するとともに、各係の実施要領を明文化した。43年11月に完了したのちそれにもとづいて実施した。

##### (iii) 終夜通電機器設置ならびに点検基準の作成

無人時の安全措置としてとくに終夜通電機器に重点をおき、現状の機器について調査、点検をおこなうとともにその設置ならびに点検基準について検討を行なった。11月に基準を定めたのちはそれにもとづいて実施した。終夜通電機器について設置時の点検者、点検内容、定期検査などの詳細について定めたものである。

##### (iv) RI 等緊急標識の設置

RI 等緊急標識は実験室における RI の使用状況を核種、量に応じて3段階に分類しあわせてボンベなどの所在を表示して、事故時防護活動をおこなう第三者に緊急の情報をあたへる目的で、前年度より安全対策課が中心となって検討を進めていたものであるが、43年5月より一年間の試験期間として全所的に実施された。第1研究棟は室別に掲示したが RI 製造棟は総合標示方式とし9月より実施した。すなわち、前年度作成した RI 製造棟各室の RI 取扱状況表示盤（管理区域入口に設置）に RI 緊急標識の必要事項をあわせて記入することによって、

一見して全区域の状況が把握できるようにした。またこれにともない RI 使用予定量の変更、ボンベ類の設置などについて届出許可などの部内措置を定めた。

##### (b) 主要施設の安全運転手引の作成

本年度はクレーン、フォークリフトの管理方式をさだめフォークリフトの使用保守点検手引を作成するとともに、RI 製造棟 307 室カプセル一時保管用セルの使用手引を作成したが、他の主要施設の運転手引類の作成は次年度となった。

##### (c) RI の管理方式の整備

生産に関係する RI の管理方式は一部をのぞいてほぼ確定しているが、研究開発に関係する RI の管理方式にはまだ不備の点があるのでこれに重点をおいて検討をおこなった。まず研究開発関係の RI について使用保管の状況を調査し、これにもとづいて管理方式の基本になる事項について検討し案をえたが、具体的な方式については次年度にもちこされた。

また、RI の取扱作業についてより高い安全性を確保するために、製造部でおきた汚染などの例について内容を解析し原因対策などの検討を行なった。次年度に継続して実施する予定である。

39年4月第1回部安全会議を開催して以来、安全管理関係で多くの事項を審議した決定したが、その内容がきわめて多岐にわたっているので、43年11月第30回部安全会議までの資料を整理し、決定事項および重要な検討事項を中心に項目別に分類整理し資料としてまとめた。決定事項について部職員全員に周知徹底をはかるとともに不備な事項については今後の検討資料として活用することを期したものである。

#### (2) 施設管理

##### (a) 施設の管理

施設の日常管理はライン組織で実施し、日常点検、月例係長点検、安全担当者点検および部長査察などの指摘事項はただちに措置した。全般的に RI 製造棟は前年度にひきつづき良好であり、また第1研究棟（製造部関係）も前年度にくらべていちじるしく改善されている。

RI 製造棟のグラフィック盤（113室）は終業点検など安全管理に必要な設備であるので、重点的に点検管理をおこない不良箇所の整備につとめた。

また終夜通電機器の管理も重点的に実施し、工務第二課員の協力によって機器の点検および絶縁抵抗試験などをおこない異常のないことを確めた。

##### (b) 施設の対外申請

短寿命核分裂生成物の製造開発に必要な RI 製造棟の核燃料物質使用許可申請の準備は前年度から進めてきたが、43年4月8日付（43原研11第157号）で原子力局に申請をおこない、43年7月1日付（43原第2013号）で許可をえた。これによって RI 製造棟の施設で  $^{235}\text{U}$  換

算最大照射量 70 mg および短寿命核種を主とする核分裂生成物 80 Ci の取扱いが可能となった。

また、RI 製造棟はいままで原子力局の指導によって、放射性同位元素の販売業に係る許可に統一するよう進めてきたが、43 年月原子力局水戸原子力事務所による立入検査のさいに使用許可もあわせて整備するよう指示があった。これらの許可内容は RI 製造棟の内装整備の進展とともに変更をかさね、複雑になっているので、これらを整理統一してまとめなおし、許可申請をおこない許可をえた。

#### 放射性同位元素の販売業に係る変更許可申請

(43 原研 13 第 63 号 昭和 43 年 12 月 14 日付)

同上許可 (43 水原第 228 号 昭和 44 年 1 月 14 日付)

#### 放射性同位元素の許可使用に係る変更許可申請

(43 原研 13 第 62 号 昭和 43 年 12 月 14 日付)

同上許可 (43 水原第 226 号 昭和 44 年 2 月 22 日付)

また水戸原子力事務所より東海研究所に対して放射性同位元素等の販売、使用にともなう大量の RI 取扱施設について「自動的に表示する装置」および「インターロック」の設置状況について報告を求めたので、RI 製造棟は 312 室汎用ケープについて報告した。

### (3) 放射線管理

43 年度における製造部の放射能取扱量は前年度と同様に約 4,500 Ci で、その大部分は RI 製造棟で取扱った。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えて細心の注意のもとにおこない、全般的にきわめて良好であった。

#### (a) 施設管理

$^{32}\text{P}$ ,  $^{35}\text{S}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{198}\text{Au}$  など大量の RI の取扱をはじめ定常的に実施した作業は施設面、作業面ともに良好な状況で進められた。

RI の取扱量の増加とともに、ホット中央廊下にある強放射性廃棄物用鉛容器の周辺や鉛セル背面サービスエリアに 10 mR/hr をこえる空間線量がみられる例があったので、不必要な線源をすみやかに処理すること、補助しゃへいを設けることなどによってこれら空間線量の高い区域を減少するようつとめた。

放射性汚染は、RI 製造棟において  $^{64}\text{Cu}$  取扱中に誤操作による汚染、第 1 研究棟において照射カプセルの誤操作による汚染など軽微な放射線汚染が数回あった程度でとくに問題となるものはなかった。

また RI 製造棟 311 室 01 ケープ ( $^{192}\text{Ir}$  線源などの製造に使用) の内部除染のさい製造部としてははじめてエアラインスーツによる除染作業を行なったが、作業は順調にかつ安全におこなわれ問題はなかった。

また本年度から RI 製造棟 311 室 02 ケープ、405 室フードにおいて照射ウランおよびその核分裂生成物の取扱いを開始した。

#### (b) 個人被曝管理

放射線作業従事者および準従事者 60 名 (外国人留学生、常用臨時、臨時を含む) の 3 ヶ月毎の個人被曝線量は、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問題とするものはなかった。

内部被曝については定期および臨時の全身計測、尿検査の結果はきわめて軽微な体内摂取が検出された例が二三あったほかはすべて検出限界以下であった。 $^{131}\text{I}$  製造に従事する者も定期的に全身計測をうけたがすべて検出限界以下であった。

保健物理安全管理部から要制限ないし要警戒などの勧告をうけたことはなかった。

### (4) 安全査察

#### (a) 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」にもとづく放射線管理官 (原子力局水戸原子力事務所) による RI 使用状況立入検査は 4 月にこなわれた。製造部関係では RI 製造棟について販売業に係る許可のほかに、使用に係る許可を整備するよう指示があった (前述施設管理の項参照) ほか現場の状況は良好との講評があった。

#### (b) 水戸労働基準局によるクレーン定期検査

43 年度の検査対象のクレーン 7 基について、10 月に検査があり合格した。なお既設の保守用架台のほかに点検用梯子を設置するよう要望されたのでただちに設置した。

#### (c) 監事室による安全監査

44 年 3 月監事室により電気および防火に関する安全管理体制について監査があり良好との評をえた。

#### (d) 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。重点項目は 7 月期は「爆発・火災の未然防止」、12 月期は「防火および点検整理」であった。全般的にきわめて良好で第 1 研究棟 (製造部関係) も著しく改善されている。

#### (e) 部内安全点検

部内の安全点検のうち安全担当者による点検は 3 ヶ月に 1 回実施し、とくに下半期は終夜通電機器の設置、使用状況に重点をおいた。係長による点検は毎月 1 回実施したが、月によっては地下室排水設備、実験室洗眼装置の点検など重点的に実施した。

日常の終業点検は、とくに終業総合点検の実施および始終業措置要領の作成以降きわめて良好に実施され、就業時間外の構内課警備員による施錠などの点検結果も 8 月以降指摘事項 1 件の好成績であった。

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、担当者を決定しただちに措置をおこなった。

## (5) 安全訓練

## (a) 防護活動訓練

防護活動訓練は年度当初の実施重点項目であったので本年度は緊急措置訓練を計画したが、職員診療所長による緊急救急措置についての講演および実技指導をおこなうにとどまり計画の一部は次年度にもちこされた。

## (b) クレーン・玉掛け運転訓練

クレーン・玉掛け運転訓練については前年度までに未了であった6名が所実施の訓練に参加し全員合格し運転資格を取得することができた。43年度現在の運転資格取得者は計32名である。

## (c) フォークリフト運転訓練

フォークリフト運転は業務上必要な人員が多いのにかかわらず前年度にひきつづき本年度も所の実施する訓練はおこなわれなかった。43年度現在の運転資格取得者は計16名である。なお法律の一部改正によっていままでの運転資格取得者では3t以上のフォークリフトについて作業をおこなうことができなくなったので3t以上のフォークリフト運転資格取得に本年度2名受験し合格した。

## (d) 危険物取扱訓練

42年度末で危険物取扱主任者資格取得者は6名であったが本年度も2名講習会に出席し試験に合格した。甲種1名、乙種1名である。

付 録 1

年 表

	4 月	5 月	6 月	7 月	8 月	9 月	10 月	11 月	12 月	1 月	2 月	3 月
運 営 ・ 人 事	瀬谷恵子雇用 鈴木辰雄雇用		斎藤春美高崎研 より部付として配 属 伊藤太郎製造課 長任命 保泉澄製造課課 長代理任命 鈴木恭平検査課 長任命 理事長交替・事 業部を理事長担当	成井正夫大洗研 庶務係長に転出 村田副理事長, 山本, 鳥井, 江口 理事新任 係月例報告制度 化	阿部理事新任	吉原賢二退職	吉原賢二研究嘱 託 RI センター委 員会開催		将来計画検討会 開催 田中吉左右副主 任研究員任命 (7 月にさかのぼる)		山崎理事新任, 事業部担当	高田佳主子退職 第1回製造部年 報納入
生 産		前半期製造出荷 計画策定 (年間47 週のサービスおよ びP-32, I-131, Ir- 192 の量産化) 外国炉 (CEA) で照射した Au- 198 用ターゲット 始めて輸入・試験	第4版ラジオア イソトープカタログ 改訂 (Cu-64- 2R, Br-82-2, Sb- 124-1, Cs-134-1 追加)	JRR-2によるI- 131-1 の定常生産 開始 JRR-2 事故に よる運転休止 RCC製品 (P-32) 輸入・試験	JRR-2 運 転 休 止に伴う前半期製 造出荷計画の改訂 Cu-64-2R 見込 生産開始 UCC製品 (P-32, I-131, Au-198) 輸 入・試験		後半期製造出荷 計画策定 I-131 非還元性 溶液製品試験製造 開始	JRR-4 による 短寿命 RI 始めて 製造・頒布 GETR で照射 した P-32 用ター ゲット始めて輸 入・試験	後半期製造出荷 計画改訂 (Au-198 -1 サービス週の 追加および P-32- 1 の定常出荷)	Cr-51-2R 見込 生産開始	JRR-2 運 転 再 開 P-32-1 大量定 常出荷開始	
研 究 ・ 開 発			有機溶媒抽出ー アルミナカラム法 による低比放射能 Mo-99 よりの Tc- 99m製造技術の開 発を完了 JMTR-CFによ る中性子束分布測 定実験を開始 東大・島村研究 室との協力研究開 始	RI 製造棟 404室 および 309 室にお いてウラン使用実 験を開始	JRR-4 による 短寿命 RI 生産に そなえ, 必要なデ ータ集積と照射技 術確立のため, JRR-4 による照 射技術の開発に着 手 Cu-64-2R の量 産化技術の開発を 完了	β崩壊核種に対 する絶対測定法に おいて内部転換電 子の寄与を Self consistent に補正 できる方法を完成 し FP 中の18核種 の絶対測定に適用	JRR-4 による 照射技術開発実験 を完了し, 製造課 による定常生産に 移行	再処理試験室が 全所的に協力の下 に実施した, 再処 理廃液中の FP 分 布測定実験に参加 し, ヨー素の分布 の測定を分担	JMTR による イオウテルル酸な どの照射の開始に そなえ, 照射実験 を実施することが 決定し, JMTR 部 と共同で計装照射 計画の立案を開始 <sup>197</sup> Hg の絶対測 定法の開発を開始	C-14 無機標識 化合物製造技術お よび FP よりの短 寿命製造技術の3 テーマについての 開発経過報告なら びに討論を実施 し, 研究開発計画 の修正を実施		窒化アルミニウ ムの粉体爆発の危 険性の検討をおこ ない1,000°C以上 でも爆発しないこ とを確認 <sup>99</sup> Mo- <sup>99m</sup> Tc の 絶対測定法の開発 を完了
施 設 ・ 安 全 管 理	放射線管理官 (水戸原子力事務 所)による RI 立 入検査 RI製造棟400台 建家的火災報告設 備完了	RI 等緊急標識 全所的に実施 (第 1 研究棟 差別掲 示)	フォークリフト 使用点検要領決定	部長安全査察 (全国産業安全週 間) RI 製造棟核燃 料物質使用許可	係長以上による RI 製造棟 総合終 業点検実施 (2ヶ 月間)	RI 製造棟 RI 等 緊急標識実施 (綜 合標識方式)	安全担当者定期 点検 水戸労基局によ るクレーン立入検 査	RI 製造棟 始 終 業措置要領決定 終夜通電機器設 置, 使用基準決定	部長安全査察 開発関係 RI 管 理方式骨子決定 製造部安全管理 関係資料作成 カプセル貯蔵セ ル使用要領決定	RI 製造棟放射 性同位元素の販売 業に係る変更許可 (今までの変更内 容を整理統合)	RI 製造棟放射 性同位元素の使用 許可に係る変更許 可 (現状にあわせ て整備)	監事室による安 全管理監査 安全担当者定期 点検 緊急救急措置訓 練実施
そ の 他	第15回応用物理 学関係連合講演会 合同講演会にお いて研究成果発表1 編 (東京) 日本化学会第21 年会において研究 成果発表2編 (吹 田)	IAEA 主催によ る RI 製造専門家 会議 (シドニー) に天野出席 (報告 3編を提出)	IAEA 研修生 Dr. G. Tóth の受 入れ 部内物品検査は じまる		清華大学葉教授 ほか2名共同研究 のため来部 (10月 まで) IAEA へ提出の RI 製造マニュアル を作成		清華大学との共 同研究報告会開催 第12回放射化学 討論会において研 究成果発表7編 (熊本) 応用物理学会に おいて研究成果発 表1編 (博多) 部内物品検査終 了	木村前理事来所	第10回研究成果 講演会に生産第1 期5カ年計画の成 果を発表		第7回原子力総 合シンポジウムに おいて研究成果発 表1編 (東京) IAEA 研修生 の Dr. G. Tóth 研 修期間6カ月延長	原子力学会年会 において研究成果 発表1編 (東京) IAEA Study Group Meeting (マニラ)に天野出 席 (報告1編提出) 米田ロチェス ター大学教授 Hui- zenga 博士を招へ い

付 録 2

昭和43年度口頭発表一覧

題 名	発 表 者	発 表 機 関
原子核における殻効果の研究(第1報)核単位密度に対する殻効果について	馬場(宏)	日本化学会第21年会, 1968.4, 吹田
短寿命 FP からの $^{99m}\text{Tc}$ generator の調製	中村, 高橋, 天野	日本化学会第21年会, 1968.4, 吹田
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	源河, 渡辺(鑑)	第15回応用物理学関係連合講演会, 1968.4, 東京
多量の内部転換電子を出す核種の絶対測定	石川, 馬場, 馬場, 梅沢, 鈴木, 夏目	応用物理学会, 1968.10, 博多
溶媒抽出アルミナ法による照射酸化モリブデンからの $^{99m}\text{Tc}$ の製造	館盛, 中村, 天野, 柴田	第12回放射化学討論会, 1968.10, 熊本
核分裂生成物からの $^{99}\text{Mo}$ および $^{132}\text{Te}$ の製造(系統的分離法による核分裂生成物よりの有用 RI 製造法の研究—その1—)	久保田, 中村, 天野	第12回放射化学討論会, 1968.10, 熊本
$^{115}\text{In}(\gamma, \gamma')^{115m}\text{In}$ 反応による反跳化学的“appearance energy”の考察	吉原, 工藤	第12回放射化学討論会, 1968.10, 熊本
フタロシアニンの錯塩の反跳化学—いろいろの原子核過程により生じる反跳化学の化学的行動	楊, 吉原	第12回放射化学討論会, 1968.10, 熊本
カドミウムおよびインジウム・フタロシアニン錯塩の反跳化学“daughter-tracing technique”の適用について	工藤, 吉原	第12回放射化学討論会, 1968.10, 熊本
核分裂生成物の絶対測定法	天野, 夏目, 梅沢, 馬場鈴木, 馬場, 石川	第12回放射化学討論会, 1968.10, 熊本
原子核における殻効果の研究II 核単位密度定数の励起エネルギー依存性	馬場(宏)	第12回放射化学討論会, 1968.10, 熊本
$^{238}\text{U}$ の陽子核分裂における the Most Probable Charge とその励起エネルギー依存性	梅沢, 馬場, 馬場	第12回放射化学討論会, 1968.10, 熊本
高熱中性子束炉その必要性と計画概要—(コメント) 新 RI 生産の可能性	鈴木, 佐藤, 夏目	第7回原子力総合シンポジウム, 1969.2, 東京
ラジオアイソトープ製造と今後の問題点	天野	日本原子力学会年会, 1969.3, 東京
	柴田	

付 録 3

昭和43年度刊行技術資料一覧

題 目	発 表 者	発 表 誌 名
Effects of Phase Homogeneity on the Chemical Consequences of Nuclear Reaction	STEVOVIC, 田中, MILMAN	<i>Inorg. Nucl. Chem. Letters</i> , 3, 415 (1967)
A study of the Relationship between the Initial Recoil Reactions and Their Memory Effects on the Post-Annealing Reactions Using $\alpha$ - and $\beta$ -Zinc Phthalocyanines	吉原, 楊	<i>Radiochimica Acta</i> 9, 168 (1968)
Isotope Effects in the Szilard Chalmers Reactions of Hafnium and Zirconium Phthalocyanine	四方, HILLMAN, WEISS, KIM.	<i>Radiochimica Acta</i> 9, 212 (1968)
Effects of phase homogeneity on the chemical consequences of $(n, \gamma)$ reactions in binary organic system containing bromine	ABEDINRADEH, GRILLET, STEVOVIC, 田中, MILMAN	<i>Radiochimica Acta</i> 10, 38 (1968)
Production of Cr-51 by the Szilard-Chalmers Process	柴田, 天野, 吉原, 海老原	<i>Atompraxis</i> , 15, Heft1, 43 (1969)
照射イオウから分離した $^{32}\text{P}$ 中の $^{32}\text{P}$ の含有量	中村	日本原子力学会誌 10, 178 (1968)
$(n, \gamma)$ 反応により製造する精製 RI Cu-64 中の不純物	中村, 山林	日本原子力学会誌, 10, 550 (1968)
$(n, \gamma)$ 反応により製造する精製 RI Mn-56 の放射化学的不純物	中村, 山林	日本原子力学会誌, 11, 134 (1969)
ラジオアイソトープの製造(講座)	柴田, 他7名	日本原子力学会誌, 583(1968)
核化学と核単位密度(総説)	馬場(宏)	化学の領域, 23, No. 3, 18 (1969)

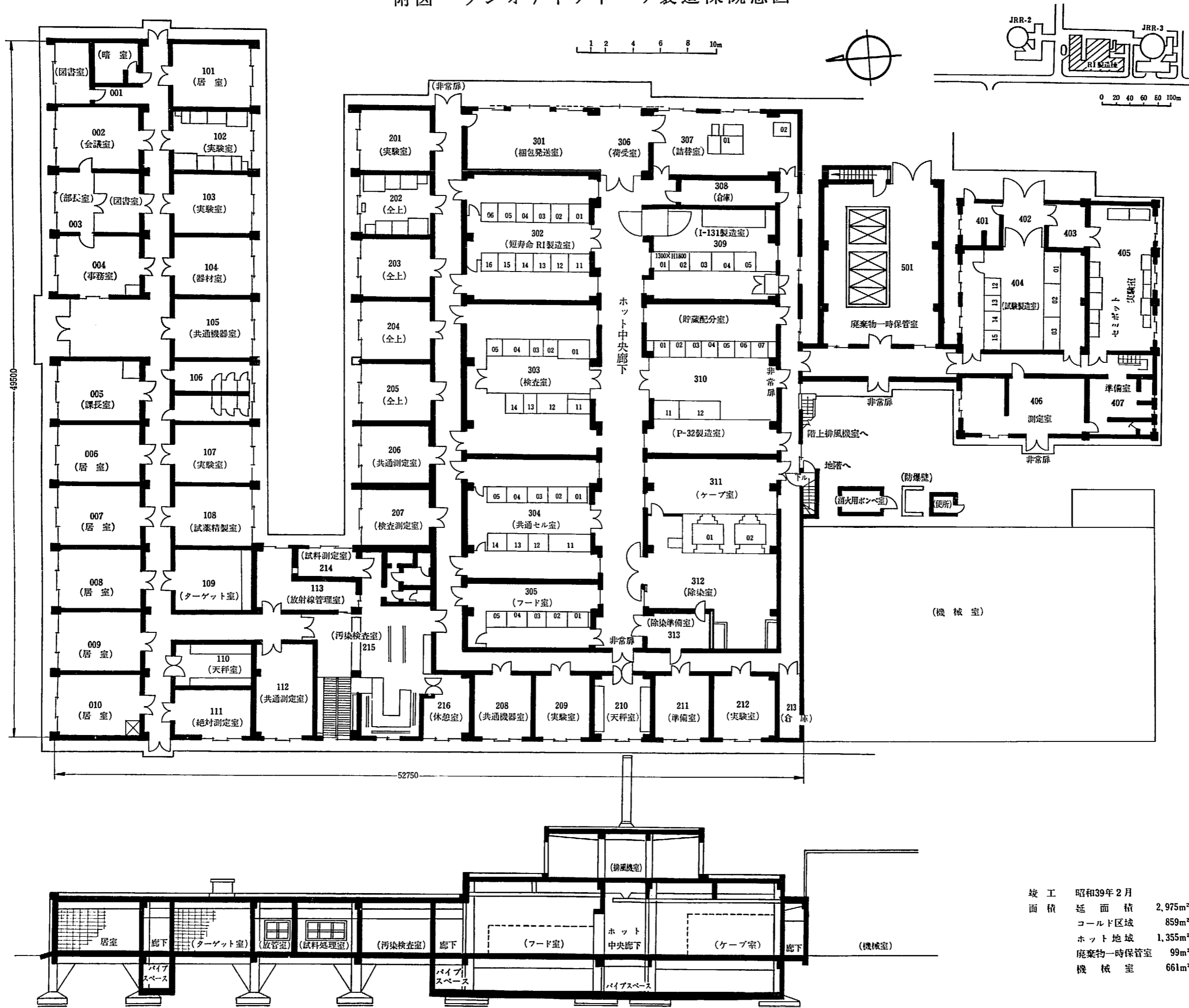
題 目	発 表 者	発 表 誌 名
I-131 の中性子照射した二酸化テルル中の拡散について	正木, 天野	JAERI-memo 3444 (放射性同位体製造資料-1054) (未公開)
(n, $\gamma$ ) 反応により製造する精製 RI 中の不純物 Co ターゲットの検討	山林, 中村, 天野	JAERI-memo 3445 (放射性同位体製造資料-1506) (未公開)
(n, $\gamma$ ) 反応により製造する精製 RI 中の不純物 Au ターゲットの検討	山林, 中村, 天野	JAERI-memo 3446 (放射性同位体製造資料-1507) (未公開)

## 付 録 4

## 昭和43年度製造部運営資料一覧

- 43 RI 製資料
1. 昭和43年度製造部の運営について
  - " 2. 第8回日本アイソトープ会議発表論文集
  - " 3. 昭和42年度製造部活動記録
  - " 4. Co-60 大線源の製造開発 (500 KCi 生産計画特殊線源を含む)
  - " 5. Co-60 大線源の製造開発説明資料
  - " 6. 精製ラジオアイソトープ国産化報告 (生産第一期5カ月計画実行報告)
  - " 7. 頒布ラジオアイソトープ製品<sup>1)</sup> について
  - " 8. ラジオアイソトープ製造長期計画 (43. 10 企画室提出資料)
  - " 9. I-131 製造施設使用要領
  - " 10. 製造部安全管理関係資料 (I)
  - " 11. " (II)
  - " 12. ラジオアイソトープ製造と今後の問題点 (44年日本原子力学会年会講演予稿集原稿)

附図 ラジオアイソトープ製造棟概念図



竣工	昭和39年2月
面積	延面積 2,975m <sup>2</sup>
	コールド区域 859m <sup>2</sup>
	ホット地域 1,355m <sup>2</sup>
	廃棄物一時保管室 99m <sup>2</sup>
	機械室 661m <sup>2</sup>

第4版 カタログ一覧表 (43年6月改訂)

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 ャ ッ ト	化 学 形	酸 性 度	放 射 能 濃 度 (mCi/ml)	比 射 能	放 射 化 学 的 純 度
ナトリウム-24	Na-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/g Na)	>99%
リン-32	P-32	14.22 d	$\beta^-$ 1.707 $\gamma$ ナシ	P-32-1 P-32-1R	$^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ $^{31}\text{P}(n, \gamma)^{32}\text{P}$ Sziard-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 $^{31}\text{P}$ を含む)
イオウ-35	S-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	K-42	12.52hr	$\beta^-$ 1.99, 3.55 $\gamma$ 1.53, 0.320 $\beta^-$ 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	Ca-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	Cr-51	27.8 d	$\gamma$ 0.325 EC	Cr-51-2R	$^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$ Sziard-Chalmers 法	$\text{K}_2\text{CrO}_4$	$\text{Na}_2\text{CrO}_4$ 0.9%NaCl 溶液 (等張溶液相当)	pH 6~8	~15	>15,000	>99%
マンガン-56	Mn-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	Co-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	Cu-64	12.80hr	$\beta^-$ 0.571, $\beta^+$ 0.657 $\gamma$ 1.34 (弱) EC	Cu-64-1 Cu-64-2R	$^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$ $^{65}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$ Sziard-Chalmers法	Cu フタロシアニン銅	$\text{CuCl}_2$ 塩酸溶液 酢酸銅 希酢酸溶液	~1N	~2	b~240 c~500	>99%
亜鉛-65	Zn-65	245 d	$\beta^+$ 0.324 $\gamma$ 1.119 EC	Zn-65-1	$^{66}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$	Zn	$\text{ZnCl}_2$ 塩酸溶液	~1N	>1	~60	>99%
ガリウム-72	Ga-72	14.3hr	$\beta^-$ 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	As-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	$^{75}\text{As}(n, \gamma)^{76}\text{As}$	$\text{As}_2\text{O}_3$	$\text{HAsO}_4$ 塩酸溶液 (As(V)を含む)	~1N	~2	~10,000	>99%



核種	仕 線	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	酸性度	放射能濃度 (mCi/ml)	比放射能	放射化学的純度
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-82-2	$^{81}\text{Br}(n, \gamma)^{82}\text{Br}$	KBr	NaBr 水溶液		~2	~300	>99%
ルビジウム-86		18.66 d	$\beta^-$ 0.71, 1.78 $\gamma$ 1.079	Rb-86-1	$^{85}\text{Rb}(n, \gamma)^{86}\text{Rb}$	Rb <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	RbCl 塩酸溶液	~0.1N	>1	~100	>99%
イットルウム-90		64.2hr	$\beta^-$ 2.26 $\gamma$ 1.734 (弱)	Y-90-1	$^{89}\text{Y}(n, \gamma)^{90}\text{Y}$	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	YCl <sub>3</sub> 塩酸溶液	~1N	~2	~800	>99%
銀 -110m		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	$^{108}\text{Ag}(n, \gamma)^{110m}\text{Ag}$	Ag	AgNO <sub>3</sub> 硝酸溶液	~1N	>1	~200	>99%
アンチモン-124		60.9 d	$\beta^-$ 2.32, 0.61, 0.24 (その他) $\gamma$ 1.692, 0.723, 0.603 (その他)	Sb-124-1	$^{123}\text{Sb}(n, \gamma)^{124}\text{Sb}$	Sb	SbCl <sub>3</sub> 塩酸 硝酸混合溶液	>5N	>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	$^{130}\text{Te}(n, \gamma)^{131}\text{Te}$ $\beta^-$ $^{131}\text{I}$	テルル酸	NaI 水酸化ナトリウム 亜硝酸水素ナトリウム 混合溶液	pH 8~11	>1	CF	>99%
セシウム-132		6.56 d	$\gamma$ 0.669, 1.08 (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%
セシウム-134		2.07 y	$\beta^-$ 0.683, 0.655, 0.083 $\gamma$ 0.801, 0.796, 0.605, 0.569 (その他)	Cs-134-1	$^{133}\text{Cs}(n, \gamma)^{134}\text{Cs}$	Cs <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	CsCl 塩酸溶液	~1N	>1	~3,000	>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	$^{139}\text{La}(n, \gamma)^{140}\text{La}$	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	LaCl <sub>3</sub> 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	$^{152}\text{Sm}(n, \gamma)^{153}\text{Sm}$	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SmCl <sub>3</sub> 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	$^{169}\text{Tm}(n, \gamma)^{170}\text{Tm}$	Tm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TmCl <sub>3</sub> 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, 0.20866, その他	Lu-177-1	$^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	LuCl <sub>3</sub> 塩酸溶液	~1N	>20	~45,000	>99%
タングステン-185		758 d	$\beta^-$ 0.430	W-185-1	$^{184}\text{W}(n, \gamma)^{185}\text{W}$	WO <sub>3</sub>	Na <sub>2</sub> WO <sub>4</sub> 水酸化ナトリウム 溶液	~1N	>0.5	~30	>99% $^{181}\text{W}$ , $^{185}\text{W}$ ( $\beta^-$ , $^{185}\text{Re}$ を含む)
金 -198		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	AuCl <sub>3</sub> 塩酸硝酸混合溶 液	~1N	>10	~20,000	>99% ( $^{199}\text{Au}$ を含 む)
タリウム-204		3.76 y	$\beta^-$ 0.765	Tl-204-1	$^{203}\text{Tl}(n, \gamma)^{204}\text{Tl}$	Tl <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TlNO <sub>3</sub> 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)	配分量 (mCi)	容器
CLC-1	K <sup>14</sup> CN	Ba <sup>14</sup> CO <sub>3</sub> , NH <sub>4</sub> Cl, 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 <sub>3</sub> <sup>14</sup> COONa	<sup>14</sup> CO <sub>2</sub> 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	<sup>14</sup> CH <sub>3</sub> OH	LiAlH <sub>4</sub> による <sup>14</sup> CO <sub>2</sub> の還元ガスクロマトグラフ法による精製	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	寸法 (mm)	重量 (mg)	放射能 (mCi)
CNB-1	0.46 φ × 10	15	~ 1
CNB-2	0.91 φ × 15	85	~ 5
CNB-3	0.91 φ × 15	85	~10
CNB-4	0.91 φ × 15	85	~20
IPB-1	2 φ × 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 <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	0.1	<sup>24</sup> Na	5	
K-1	K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	1.5	<sup>42</sup> K	11	<sup>24</sup> Na
Ca-1	CaCO <sub>3</sub>	1.8	<sup>46</sup> Ca	1	
Sc-1	Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.005	<sup>48</sup> Sc	9	<sup>46</sup> Ca
Cr-1	Cr	0.04	<sup>61</sup> Cr	8	
Mn-1	Mn	0.0025	<sup>68</sup> Mn	20	
Fe-1	Fe	1.8	<sup>65</sup> Fe, <sup>69</sup> Fe	4, 2	
Co-1	Co	0.04	<sup>60</sup> Co	8	
Cu-1	Cu	0.05	<sup>64</sup> Cu	13	
Zn-1	Zn	1.1	<sup>68</sup> Zn	10	<sup>69m</sup> Zn, <sup>69</sup> Zn
Ga-1	Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.1	<sup>72</sup> Ga	7	
Ge-1	GeO <sub>2</sub>	0.04	<sup>71</sup> Ge	10	<sup>77</sup> As
As-1	As <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.05	<sup>76</sup> As	9	
Rb-1	RbCl	0.04	<sup>86</sup> Rb	5	<sup>35</sup> S
Y-1	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.05	<sup>90</sup> Y	13	
Mo-1	MoO <sub>3</sub>	0.4	<sup>99</sup> Mo, <sup>99m</sup> Tc	9, 9	
Pd-1	Pd	0.1	<sup>109</sup> Pd	11	<sup>103</sup> Pd, <sup>109m</sup> Ag, <sup>111</sup> Ag
Ag-1	Ag	0.18	<sup>110m</sup> Ag	7	<sup>110</sup> Ag
Sb-1	Sb	0.005	<sup>122</sup> Sb, <sup>124</sup> Sb	5, 0.4	
Cs-1	CsCl	0.04	<sup>134</sup> Cs	6	<sup>35</sup> S, <sup>32</sup> P
La-1	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.05	<sup>140</sup> La	7	
Ce-1	CeO <sub>2</sub>	0.4	<sup>141</sup> Ce, <sup>143</sup> Ce, <sup>143</sup> Pr	11, 2, 8	<sup>139</sup> Ce
Pr-1	Pr <sub>2</sub> O <sub>11</sub>	0.05	<sup>142</sup> Pr	12	
Sm-1	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.025	<sup>152</sup> Sm	11	<sup>155</sup> Eu
Eu-1	Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.005	<sup>152</sup> Eu (9.2 時間)	8	<sup>152</sup> Eu (12.7年), <sup>154</sup> Eu
Tm-1	Tm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.005	<sup>170</sup> Tm	18	
Lu-1	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.005	<sup>177</sup> Lu	100	
Hf-1	HfO <sub>2</sub>	0.04	<sup>181</sup> Hf, <sup>175</sup> Hf	8, 4	
W-1	W	0.05	<sup>187</sup> W	9	<sup>181</sup> W, <sup>185</sup> W
Re-1	Re	0.005	<sup>188</sup> Re	35	<sup>188</sup> Re
Ir-1	Ir	0.004	<sup>192</sup> Ir	60	<sup>194</sup> Ir
Au-1	Au	0.005	<sup>198</sup> Au	70	<sup>199</sup> Au

付表 2

## 製品仕様一覧表

項目	製造番号	濃度 (mCi/ml)	全元素量	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	805	5.5	—	$2.4 \times 10^2$ mCi/g·Na	pH 8.3	—	—	—	
	806	5.6	—	$2.4 \times 10^2$ "	" 8.3	—	—	<10	
	807	5.4	—	$2.2 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	<10	
	808	5.5	—	$2.4 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	<10	
	901	5.4	—	$2.4 \times 10^2$ "	" 7.9	—	—	<10	
	902	4.9	—	$2.1 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	<10	
	903	4.6	—	$2.0 \times 10^2$ "	" 7.8	—	—	<10	
Na-24-2-c	808	7.0	—	$6.9 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	<10	
	809	5.8	—	$5.7 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	<10	
	810	5.2	—	$5.8 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	<10	
	811	5.7	—	$5.9 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	<10	
	812	5.3	—	$5.6 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	<10	
	813	6.3	—	$5.8 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	<10	
	814	5.6	—	$5.5 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	<10	
	815	5.7	—	$5.5 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	<10	
	816	5.4	—	$5.4 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	<10	
	817	6.0	—	$7.0 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	<10	
	818	5.3	—	$4.9 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	<10	
	819	5.2	—	$4.9 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	<10	
	820	5.9	—	$5.4 \times 10^2$ "	" 8.4	—	—	<10	
	821	5.5	—	$5.5 \times 10^2$ "	" 8.3	—	—	<10	
	822	6.1	—	$5.2 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	<10	
	823	6.1	—	$5.6 \times 10^2$ "	" 8.2	—	—	<10	
	901	5.5	—	$4.9 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	<10	
	902	6.1	—	$5.3 \times 10^2$ "	" 7.8	—	—	<10	
903	5.5	—	$5.3 \times 10^2$ "	" 8.0	—	—	<10		
904	5.2	—	$5.3 \times 10^2$ "	" 7.9	—	—	<10		
905	5.6	—	$5.4 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	<10		
Na-24-2-d	801	5.3	—	$5.9 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	<10	
	802	6.5	—	$5.7 \times 10^2$ "	" 8.3	—	—	<10	
	803	6.5	—	$5.6 \times 10^2$ "	" 8.1	—	—	<10	
Na-24-2-d-t	T-801	5.5	—	$5.3 \times 10^2$ "	" 7.8	—	—	<10	
P-22-1	b-804	$1.2 \times 10^2$	—	CF	0.06	—	<0.5	<10	
	b-805	$1.7 \times 10^2$	—	"	0.06	<0.5	<0.5	<10	
	b-806	$1.6 \times 10^2$	—	"	0.12	<0.5	<0.5	<10	
	b-807	$2.2 \times 10^2$ ② 20	—	"	① 0.12 ② 0.08	① <1.0 ② <1.0	① <1.0 ② <1.0	① <10 ② <10	
	b-808	$2.1 \times 10^2$ ② 27	—	"	① 0.06 ② 0.06	① <1 ② <1	① <1 ② <1	① <10 ② <10	
	b-901	$2.6 \times 10^2$ ② $1.4 \times 10^2$	—	"	① 0.06 ② 0.12	① <1 ② <1	① <1 ② <1	① <10 ② <10	
	b-902	$5.1 \times 10^2$ ② $1.0 \times 10^2$	—	"	① 0.08 ② 0.10	① <1 ② <1	① <1 ② <1	① <10 ② <10	
	P-32-1	R-801	84	—	"	0.07	<1	<1	<10
P-32-1	b-901-t	① 2.2 ② 2.0	—	—	① 0.08 ② 0.07	① 0.8 ② 0.5	① <0.5 ② <0.5	① <10 ② <10	Al 113 " 0.8
P-32-1	F-801	$6.0 \times 10^2$ ② 46	—	CF	① 0.12 ② 0.06	<0.5	<0.5	<10	

項目	製造番号	濃度 (mCi/ml)	全元素量	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	F-901	Ⓐ 2.2×10 <sup>2</sup> Ⓑ 50	—	"	Ⓐ 0.05 Ⓑ 0.07	Ⓐ <0.5 Ⓑ <0.5	Ⓐ <0.5 Ⓑ <0.5	Ⓐ <10 Ⓑ <10	
	F-902	Ⓐ 1.3Ci/ml Ⓑ 5.3×10 <sup>2</sup>	—	"	Ⓐ 0.08 Ⓑ 0.11	Ⓐ <1 Ⓑ <1	Ⓐ <1 Ⓑ <1	Ⓐ <10 Ⓑ <10	
P-32-1	F-902-t	5.3	—		0.07	0.2	<0.2	<10	
S-35-1	b-803	68	—	CF	0.06	<0.5	<0.5	<10	
	b-804	75	—	"	0.07	<0.5	<0.5	<10	
	b-805	65	—	"	0.06	<0.5	<0.5	<10	
S-35-1	c-801	84	—	"	0.05	<0.5	<0.5	<10	
	c-802	35	—	"	0.06	<0.5	<0.5	<10	
	c-803	29	—	"	0.05	<0.5	<0.5	<10	
	c-804	90	—	"	0.05	<0.5	<0.5	<10	
	c-901	20	—	"	0.07	<1.0	—	<10	
	c-902	74	—	"	0.06	<0.5	<0.5	<10	
	c-903	55	—	"	0.05	<0.5	<0.5	<10	
S-35-1	T-901	6.1	—	"	0.09	<0.5	<0.5	<10	Fe 10
K-42-2-b	804	2.9	—	28mCi/g. K	pH 7.2	—	—	<10	
	805	2.6	—	30 "	7.1	—	—	<10	
	901	3.0	—	30 "	7.7	—	—	<10	
K-42-2-c	807	8.5	—	81 "	" 7.5	—	—	<10	
	808	6.1	—	68 "	" 7.6	—	—	<10	
	809	5.7	—	64 "	" 7.5	—	—	<10	
	810	6.5	—	90 "	" 7.5	—	—	<10	
	811	6.1	—	67 "	" 7.6	—	—	<10	
	812	5.7	—	66 "	" 7.5	—	—	<10	
	813	5.9	—	66 "	" 7.4	—	—	<10	
	814	5.8	—	65 "	" 7.9	—	—	<10	
	815	5.8	—	63 "	" 7.4	—	—	<10	
	816	5.1	—	62 "	" 7.4	—	—	<10	
	817	5.7	—	62 "	" 7.9	—	—	<10	
	818	6.4	—	66 "	" 8.2	—	—	<10	
	819	5.8	—	66 "	" 7.0	—	—	<10	
	820	5.8	—	63 "	" 7.5	—	—	<10	
	821	6.4	—	71 "	" 8.0	—	—	<10	
	901	5.6	—	63 "	" 7.5	—	—	<10	
	902	6.2	—	68 "	" 7.6	—	—	<10	
903	5.8	—	63 "	" 7.1	—	—	<10		
904	6.1	—	69 "	" 7.4	—	—	<10		
906	6.0	—	65 "	" 7.3	—	—	<10		
K-42-2-d	801	6.9	—	72 "	" 7.0	—	—	<10	
	802	6.9	—	62 "	" 7.1	—	—	<10	
	803	6.8	—	81 "	" 7.7	—	—	<10	
K-42-2-d-t	T-801	6.4	—	82 "	" 0.3	—	—	<10	
K-42-2N	b-801	4.6	—	7.1×10 <sup>2</sup> "	" 8.0	—	—	<10	
	b-802	4.8	—	8.1×10 <sup>2</sup> "	" 7.9	—	—	<10	
	901	4.9	—	7.2×10 <sup>2</sup> "	" 7.5	—	—	<10	
	902	2.8	—	5.5×10 <sup>2</sup> "	" 7.5	—	—	<10	
Ca-45-1	c-801	1.1	103mg/ml	10mCi/g. Ca	0.57	—	—	<10	
	c-802	0.54	85 "	6.4 "	1.4	—	—	<10	
Cr-51-2R	701	32	1.1 "	3.0×10 <sup>4</sup> mCi/g. Cr	pH 8.2	—	—	—	

項目	製造番号	濃度 (mCi/ml)	全元素量	比放射能	酸性度 (N)	全固形分 (mg/ml)	揮発性成分 (mg/ml)	重金属 (ppm)	不純物 (ppm)
Cr-51-2R	801	13	$2.5 \times 10^{-1}$ mg/ml	52Ci/g. Cr	pH 8	—	—	—	—
	802	3.4	$4.0 \times 10^{-2}$ "	86 "	" 6.2	—	—	—	—
	803	13	$1.5 \times 10^{-1}$ "	87 "	" 6.5	—	—	—	—
	804	20	$2.6 \times 10^{-1}$ "	76 "	" 8.0	—	—	—	—
	805	8.8	$1.6 \times 10^{-1}$ "	$5.5 \times 10^4$ mCi/g. Ca	" 7.6	—	—	—	—
	c-901	2.3	$9.7 \times 10^{-2}$ "	$2.4 \times 10^4$ "	" 7.7	—	—	—	—
	c-902	9.8	$8.8 \times 10^{-2}$ "	$1.1 \times 10^5$ "	" 7.3	—	—	—	—
	c-903	1.6	$3.5 \times 10^{-2}$ "	$4.7 \times 10^4$ "	" 8.4	—	—	—	—
Mn-56-1	b-901	11	—	$2.9 \times 10^3$ mCi/g. Mn	0.89	—	—	—	—
Co-60-1	b-801	2.2	—	$2.8 \times 10^3$ mCi/g. Co	1.0	—	—	—	—
Cu-64-1-b	901	4.6	—	$6.4 \times 10^2$ mCi/g. Cu	0.92	—	—	—	—
	902	4.1	—	$5.4 \times 10^2$ "	0.93	—	—	—	—
	903	4.0	—	$5.2 \times 10^2$ "	0.90	—	—	—	—
Cu-64-1-c	808	7.6	—	$1.7 \times 10^3$ mCi/g. Cu	pH 0.74	—	—	—	—
	809	6.0	—	$1.4 \times 10^3$ "	0.96	—	—	—	—
	810	6.3	—	$1.5 \times 10^3$ "	0.96	—	—	—	—
	811	5.1	—	$1.3 \times 10^3$ "	0.87	—	—	—	—
	812	5.4	—	$1.3 \times 10^3$ "	0.96	—	—	—	—
	813	5.6	—	$1.3 \times 10^3$ "	0.98	—	—	—	—
Cu-64-1-d-t	T-801	11	—	$2.5 \times 10^3$ "	0.92	—	—	—	—
Cu-64-2R	801	31	$6.8 \times 10^{-2}$	$4.6 \times 10^5$ "	pH 3.7	—	—	—	—
	802	15	$7.2 \times 10^{-2}$	$2.1 \times 10^5$ "	" 3.4	—	—	—	—
	803	37	$5.1 \times 10^{-2}$	$7.2 \times 10^5$ "	" 3.4	—	—	—	—
	804	32	$4.2 \times 10^{-2}$	$7.5 \times 10^5$ "	" 3.6	—	—	—	—
Zn-65-1	b-801	2.2	—	98mCi/g. Zn	0.85	—	—	—	—
Zn-65-1	c-801	3.9	—	93mCi/g. Zn	0.86	—	—	—	—
Ga-72-1	b-801	3.8	—	$2.8 \times 10^2$ mCi/g. Ga	0.72	—	—	<10	—
	b-802	5.5	—	$3.1 \times 10^2$ "	0.67	—	—	<10	—
	b-803	6.1	—	$3.1 \times 10^2$ "	0.80	—	—	<10	—
Ga-72-1	c-801	2.4	—	$1.6 \times 10^2$ mCi/g. Ga	1.1	—	—	<10	—
	c-802	4.0	—	$7.7 \times 10^2$ "	0.85	—	—	<10	—
	c-803	6.4	—	$7.4 \times 10^2$ "	0.78	—	—	<10	—
	c-804	5.2	—	$8.0 \times 10^2$ "	0.54	—	—	<10	—
As-76-1	b-901	3.0	—	$1.5 \times 10^4$ mCi/g. As	1.0	—	—	<10	—
Br-82-2	c-801	3.9	—	$5.6 \times 10^2$ mCi/g. Br	—	—	—	<10	—
	c-802	2.9	—	$5.6 \times 10^2$ "	—	—	—	<10	—
	c-901	1.8	—	$1.6 \times 10^2$ "	—	—	—	<10	—
Rb-86-1	b-801	3.7	—	$2.9 \times 10^2$ mCi/g. Rb	0.13	—	—	<10	—
Y-90-1	c-801	2.9	—	$1.3 \times 10^3$ mCi/g. Y	0.85	—	—	<10	—
	c-901	3.4	—	$1.0 \times 10^3$ "	0.91	—	—	<10	—
Ag-110m-1	c-901	4.2	—	$4.1 \times 10^2$ mCi/g. Ag	1.1	—	—	—	—
Sb-124-1	b-801	8.9	—	$9.8 \times 10^2$ mCi/g. Sb	5.1	—	—	<10	—
Sb-124-1	c-901	4.8	—	$4.9 \times 10^2$ "	5.1	—	—	<10	—
I-131-1	b-801	④ $5.4 \times 10^2$ ⑤ 25	—	CF	④ pH 12 ⑤ pH 10	④ 16	—	—	—
	b-901	$2.2 \times 10^2$	—	"	pH 10	11	—	—	—
	b-902-S	$2.2 \times 10^2$	—	"	④ 8.3 ⑤ 8.9	④ 11 ⑤ 13	—	—	—

項目	製造番号	濃度 (mCi/ml)	全元素量	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)	
I-131-1-b-t	T-805	42	—	CF	pH11	10.9	—	<10		
	T-806	5.4	—	"	" 11	53.6	—	<10		
	T-807	Ⓐ 3.2×10 <sup>2</sup> Ⓑ 33	—	"	" 11	11	—	—	Te 4.9	
I-131-1	c-805	3.5×10 <sup>2</sup>	—	"	" 11.1	—	—	—	Te —	
	c-806	2.5×10 <sup>2</sup>	—	"	" 12	17.4	—	<10	Te —	
	c-807	Ⓐ 3.3×10 <sup>2</sup> Ⓑ 12	—	"	Ⓐ 11 Ⓑ 11	Ⓐ 5	—	Ⓐ 11.0 mg/ml	Ⓐ Te 7.1	
	c-808	Ⓐ 4.7×10 <sup>2</sup> Ⓑ 26	—	"	Ⓐ 12 Ⓑ 10	Ⓐ 18 Ⓑ *	—	Ⓐ <10 Ⓑ <10	<0.5	
	c-809	Ⓐ 6.6×10 <sup>2</sup> Ⓑ 36	—	"	Ⓐ 11 Ⓑ 10	Ⓐ 12 Ⓑ —	—	Ⓐ <10 Ⓑ <10	Ⓐ Te 9.4 Ⓑ Te 0.6	
	c-810	Ⓐ 6.5×10 <sup>2</sup> Ⓑ 54	—	"	Ⓐ 11.0 Ⓑ 11.0	18	—	Ⓐ <10 Ⓑ <10	Ⓐ Te 10.0 Ⓑ Te 0.9	
	c-811	Ⓐ 6.0×10 <sup>2</sup> Ⓑ 34	—	"	Ⓐ " 11 Ⓑ " 10	15	—	—	Ⓐ — Ⓑ —	
	c-812	Ⓐ 2.4×10 <sup>2</sup> Ⓑ 13	—	"	—	Ⓐ 13	—	Ⓐ — Ⓑ —	Ⓐ — Ⓑ —	
	c-813	Ⓐ 3.3×10 <sup>2</sup> Ⓑ 25	—	"	Ⓐ pH 11 Ⓑ " 8	Ⓐ 13 Ⓑ —	—	Ⓐ — Ⓑ —	Te —	
	c-901-S	Ⓐ 2.6×10 <sup>2</sup> Ⓑ 20	—	"	Ⓐ " 10.2 Ⓑ " 9.1	Ⓐ 20 Ⓑ 13	—	Ⓐ — Ⓑ —	Te —	
	c-902-S	Ⓐ 3.6×10 <sup>2</sup> Ⓑ 16	—	"	Ⓐ " 9.5 Ⓑ " 9.0	Ⓐ 12 Ⓑ 13	—	—	—	
	I-131-1-c-t	T-808	Ⓐ 22 Ⓑ 1.3	—	"	Ⓐ " 9.0 Ⓑ " 9.0	Ⓐ 5.7 Ⓑ 7.2	—	Ⓐ <10 Ⓑ <10	Ⓐ Te 8.4 Ⓑ Te
		T-809	Ⓐ 98 Ⓑ 7.6	—	"	Ⓐ " 9.2 Ⓑ " 9.2	Ⓐ 5.0 Ⓑ —	—	Ⓐ <10 Ⓑ <10	Ⓐ Te 7.9 Ⓑ Te <0.6
T-810		Ⓐ 2.7×10 <sup>2</sup> Ⓑ 16	—	"	Ⓐ " 9.0 Ⓑ " 9.6	Ⓐ 4.6 Ⓑ —	—	Ⓐ <10 Ⓑ <10	Ⓐ Te 10 Ⓑ Te 0.8	
T-811		Ⓐ 4.0×10 <sup>2</sup> Ⓑ 24	—	"	Ⓐ " 9.4 Ⓑ " 9.0	Ⓐ — Ⓑ —	—	Ⓐ — Ⓑ —	—	
Cs-134-1	c-801	Ⓐ 22 Ⓑ 1.6	—	3.1×10 <sup>3</sup> mCi/g. Cs	Ⓐ 1.1 Ⓑ 1.1	—	—	Ⓐ <10 Ⓑ <10		
La-140-1	c-802	4.3	—	1.5×10 <sup>3</sup> mCi/g. La	1.0	—	—	<10		
	c-901	2.7	—	1.4×10 <sup>3</sup> "	0.96	—	—	<10		
Sm-153-1-c	801	3.6	—	3.3×10 <sup>3</sup> mCi/g. Sm	0.89	—	—	<10		
	901	2.9	—	1.5×10 <sup>3</sup>	1.0	—	—	<10		
Tm-170-1	b-801	6.1	—	1.0×10 <sup>4</sup> mCi/g. Tm	0.92	—	—	<10		
	c-801	9.7	—	1.9×10 <sup>4</sup> "	1.1	—	—	<10		
Lu-177-1	b-802	27	—	44Ci/g. Lu	0.81	—	—	<10		
	b-901	15	—	5.3×10 <sup>4</sup> mCi/g. Lu	0.73	—	—	<10		
Lu-177-1	c-801	17	—	92Ci/g. Lu	1.4	—	—	<10		
	c-802	18	—	6.4×10 <sup>4</sup> mCi/g. Lu	0.84	—	—	<10		
W-185-1	b-801	—	—	23mCi/g. W	1.2	—	—	—		
	c-801	4.5	61mCi/ml	72 "	1.4	—	—	<10		
Au-198-1	c-805	Ⓐ 1.3Ci/ml Ⓑ 18	—	33Ci/g. Au	Ⓐ 0.91 Ⓑ 0.70	—	—	—		
	c-806	Ⓐ 2.2Ci/ml Ⓑ 29mCi/ml	—	63 "	Ⓐ 1.2 Ⓑ 0.83	—	—	—		
	c-807	1.8Ci/ml	—	44 "	0.99	—	—	—		
	c-808	Ⓐ 2.1Ci/ml Ⓑ 30mCi/ml	—	58 "	Ⓐ 1.1 Ⓑ 0.79	—	—	—		
	c-809	Ⓐ 1.7Ci/ml Ⓑ 25mCi/ml	—	70 "	Ⓐ 0.92 Ⓑ 0.68	—	—	—		

項目	製造番号	濃度 (mCi/ml)	全元素量	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	c-810	Ⓐ 1.6Ci/ml	—	47Ci/g. Au	Ⓐ 1.11	—	—	—	—
		Ⓑ 23mCi/ml			Ⓑ 0.85				
	c-811	Ⓐ 1.8Ci/ml	—	81 "	Ⓐ 0.87	—	—	—	—
		Ⓑ 26mCi/ml			Ⓑ 0.67				
	c-812	1.7Ci/ml	—	48 "	0.96	—	—	—	—
	c-813	Ⓐ 1.8Ci/ml	—	75 "	Ⓐ 1.2	—	—	—	—
		Ⓑ 25mCi/ml			Ⓑ 0.83				
	c-814	1.6Ci/ml	—	36 "	1.4	—	—	—	—
	c-815	Ⓐ 1.3Ci/ml	—	75 "	Ⓐ 0.96	—	—	—	—
		Ⓑ 17mCi/ml			Ⓑ 0.83				
	c-816	1.5Ci/ml	—	49 "	1.0	—	—	—	—
	c-817	2.2Ci/ml	—	73 "	1.0	—	—	—	—
	c-818	1.1Ci/ml	—	50 "	1.1	—	—	—	—
	c-819	1.1Ci/ml	—	46 "	0.89	—	—	—	—
	c-820	Ⓐ $1.4 \times 10^3$	—	38 "	Ⓐ 1.1	—	—	—	—
Ⓑ 21		Ⓑ 0.87							
c-821	Ⓐ 1.6Ci/ml	—	52 "	Ⓐ 0.96	—	—	—	—	
	Ⓑ 21mCi/ml			Ⓑ 0.79					
c-822	Ⓐ 1.4Ci/ml	—	47 "	Ⓐ 0.91	—	—	—	—	
	Ⓑ 20mCi/ml			Ⓑ 0.83					
c-901	Ⓐ 1.7Ci/ml	—	33 "	Ⓐ 0.98	—	—	—	—	
	Ⓑ 24mCi/ml			Ⓑ 0.69					
c-902	1.3Ci/ml	—	33 "	1.1	—	—	—	—	
Au-198-1	b-807	$6.1 \times 10^2$	—	14 "	0.80	—	—	—	—
	b-808	1.2Ci/ml	—	27 "	1.1	—	—	—	—
	b-809	$1.5 \times 10^2$	—	38 "	—	—	—	—	—
	b-810	Ⓐ 1.6Ci/ml	—	32 "	Ⓐ 1.20	—	—	—	—
		Ⓑ 20mCi/ml			Ⓑ 0.80				
	b-811	Ⓐ 1.3Ci/ml	—	25 "	Ⓐ 1.31	—	—	—	—
		Ⓑ 19mCi/ml			Ⓑ 0.79				
	b-812	Ⓐ 1.2Ci/ml	—	23 "	Ⓐ 1.3	—	—	—	—
		Ⓑ 17mCi/ml			Ⓑ 0.85				
	b-901	Ⓐ 1.5Ci/ml	—	30 "	Ⓐ 1.1	—	—	—	—
		Ⓑ 22mCi/ml			Ⓑ 0.76				
	b-902	Ⓐ 1.6Ci/ml	—	32 "	Ⓐ 1.1	—	—	—	—
		Ⓑ 23mCi/ml			Ⓑ 0.8				
b-903	1.5Ci/ml	—	28 "	1.2	—	—	—	—	
b-904	Ⓐ 1.4Ci/ml	—	26 "	Ⓐ 1.1	—	—	—	—	
	Ⓑ 20mCi/ml			Ⓑ 0.75					
b-905	Ⓐ 1.5Ci/ml	—	28 "	Ⓐ 1.2	—	—	—	—	
	Ⓑ 21mCi/ml			Ⓑ 0.87					
Au-198-1-F-t	T-801	$9.1 \times 10^2$	—	27 "	1.0	—	—	—	—
	T-802	Ⓐ 2.7Ci/ml Ⓑ 40mCi/ml	—	53 "	Ⓐ 0.83 Ⓑ 1.3	—	—	—	—
Au-198-1	F-801	Ⓐ 1.9Ci/ml	—	38Ci/g. Au	Ⓐ 1.2	—	—	—	—
		Ⓑ 26mCi/ml			Ⓑ 0.68				
	F-802	Ⓐ 3.4Ci/ml	—	62 "	Ⓐ 1.1	—	—	—	—
		Ⓑ 50mCi/ml			Ⓑ 0.61				
	F-803	1.6Ci/ml	—	55 "	1.0	—	—	—	—
	F-804	Ⓐ 1.3Ci/ml	—	45 "	Ⓐ 1.1	—	—	—	—
		Ⓑ 18mCi/ml			Ⓑ 0.83				
	F-805	Ⓐ 1.6Ci/ml	—	55 "	Ⓐ 1.1	—	—	—	—
Ⓑ 23mCi/ml		Ⓑ 0.57							
F-901	1.2Ci/ml	—	41 "	0.83	—	—	—	—	
F-902	2.1Ci/ml	—	71 "	1.1	—	—	—	—	
F-903	Ⓐ 1.3Ci/ml	—	48 "	Ⓐ 0.83	—	—	—	Al <5	
	Ⓑ 19mCi/ml			Ⓑ 0.79					
Tl-204-1	c-801	8.3mCi/ml	—	97mCi/g. Tl	3.1	—	—	—	—

項 目	製 造 番 号	化 学 形	比 放 射 能	放射化学的純度
CLC-2	* 701	$\text{OH}_3^{14}\text{COONa}$	18mCi/mM	不純物検出限界以下 >99% >99%
CLC-3	* 701	$^{14}\text{CH}_3\text{OH}$	8mCi/mM	
CLC-3	801	$^{14}\text{CH}_3\text{OH}$	7.5mCi/mM	

\* 印は42年度製造のものとの再検定結果

項 目	製 造 番 号	個 数	1 個当りの平均放射能 (mCi)	標 準 偏 差 ( $\sigma$ ) (mCi)	全 量 (mCi)
CNB-4	8001	41	16	0.3	$6.6 \times 10^2$
"	"	51	18	0.4	$9.2 \times 10^2$
"	"	25	19	0.5	$4.7 \times 10^2$
"	"	27	21	0.3	$5.7 \times 10^2$
"	"	36	23	0.4	$8.3 \times 10^2$
"	"	31	24	0.3	$7.4 \times 10^2$
"	"	20	26	0.4	$5.2 \times 10^2$
"	"	8	27	0.4	$2.2 \times 10^2$
"	"	1	29	—	29
CNB-1	8001	174	0.95	$\pm 0.05$	$1.6 \times 10^2$
"	"	256	1.0	$\pm 0.05$	$2.6 \times 10^2$
"	"	109	1.2	$\pm 0.05$	$1.3 \times 10^2$
"	"	1	1.1	—	1.1
CNB-4	8002	261	22 ~ 28		$6.1 \times 10^3$
"	"	71	$20 \pm 10\%$		
"	"	148	15 ~ 18		
CNB-2	8001	213	1.4 ~ 1.8		
"	"	200	2.8 ~ 3.6		
CNB-1	8002	199	1.1 ~ 1.4		
"	"	340	$1.0 \pm 10\%$		
"	"	1	1.2		
CNB-3	8001	141	6.4 ~ 7.0		
"	"	98	7.1 ~ 8.9		
CNB-2	8002	9	$5.0 \pm 10\%$		
"	"	231	5.6 ~ 7.6		

項 目	製 造 番 号	個 数	1 個当りの平 均放射能(Ci)	標 準 偏 差 ( $\sigma$ )	全 量 (Ci)
IPB-1	8001	36	12	$\pm 0.2\text{Ci}$	$4.3 \times 10^2$
"	"	37	12	$\pm 0.3\text{Ci}$	$4.4 \times 10^2$
Ir-192	T-8001	50	5.8	$\pm 0.2\text{Ci}$	$2.9 \times 10^2$
"	"	50	5.7	$\pm 0.2\text{Ci}$	$2.8 \times 10^2$
"	"	50	5.5	$\pm 0.3\text{Ci}$	$2.7 \times 10^2$
Ir-192(1mm $\phi$ × 1mm)	T-8001	1	1.4		1.4
"	"	1	1.3		1.3
"	"	1	1.3		1.3