

JAERI-M
4785

製造資料
No. 1109

製造部技術年報 No. 4 (昭和45年度)

1972年3月

アイソトープ事業部製造部

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

製造部技術年報 No. 4 (昭和45年度)

日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部

(1972年2月14日受理)

この報告は昭和45年度における製造部の製造業務，技術開発，および製造研究の成果のうちの主なものを総括して記録したものである。昭和45年度におけるRIの製造出荷量は順調に延び，前年度比約23%の増加を示した。製造業務の上での特記事項としては，JMTRによりIr-192線源の製造をおこなったことがあげられる。技術開発の主な成果は，Au-198コロイド製造法の完成，ホットアトム効果による高比放射能⁶⁵Zn製造法の完成，連続式イオン交換法による短寿命FP製造法の完成などがある。製造研究の成果としては，γ線スペクトル解析コードBOB7シリーズを開発し，データ処理の自動化を緒につけたこと，中程度の励起状態での核分裂の現象論的研究を進め質量分布曲線と励起エネルギーの相関をあきらかにしたこと，などがある。

Progress Report in the production of radioisotopes
for fiscal 1970

Edited by the Division of Production,

Radioisotope Centre, JAERI.

(Received Feb. 14, 1972)

In this article, activities and distinctive achievements in the Division of Production, Radioisotope Centre, are described for the period of April 1970 to March 1971. The total amounts of radioisotopes shipped out during the period were 1.23 times as large as in fiscal 1969. In the production of radioisotopes, that of Ir-192 radiation-sources with JMTR was started. Then, the production method were developed for colloidal Au-198, high specific-activity Zn-65 by Szilard-Chalmar's effect, and short-lived fission products by means of successive cation-exchanges. In the research works, there were the development of a BOB 7 Code Series for computational analysis of γ -ray spectra, and also a phenomenal analysis of the nuclear fission of moderately-excited nuclei.

目 次

1. まえがき	1
2. 業務の成果	1
2.1 製 造	1
2.1.1 精製R I と基準照射物質の製造	3
2.1.2 特殊R I の製造	5
2.1.3 有機標識化合物の製造	7
2.1.4 線源R I の製造	7
2.2 検 査	8
2.2.1 放射能検査	9
2.2.2 化学検査	10
付表 1. 昭和45年度出荷計画表	13
付表 2. 昭和45年度出荷実行表	15
付表 3. ラジオアイソトープ出荷状況一覧表	17
付表 4. 製品仕様一覧表	18
3. 研究・開発の成果	27
3.1 R I 製造技術の開発	27
3.1.1 ^{198}Au コロイド製造法	27
3.1.2 ^{131}I 乾留法におけるターゲット物質の検討	28
3.1.3 ^{14}C 製造法	33
3.2 特殊R I 製造技術の開発	35
3.2.1 クロム酸カリウムのチラルドチャルマー効果における照射効果	35
3.2.2 フタロシアンニ亜鉛のチラルドチャルマー効果による高比放射能 ^{65}Zn の調製	37
3.3 有機標識化合物製造技術の開発	41
3.3.1 アクリロントリル-1- ^{14}C , アクリルアミド-1- ^{14}C の合成	41
3.3.2 特殊サービスに関する合成-ヘキサブROMベンゼン, 一酸化炭素, エチレンの合成	42
3.4 線源R I 製造技術の開発	46
3.4.1 JRR-3 V C 孔で照射した ^{60}Co 大線源用ターゲットの抜き取り試験	46
3.4.2 薄板型 I r ターゲットの照射試験	46
3.5 FPよりの有用R I 製造技術の開発	49
3.5.1 連続式イオン交換法による ^{140}Ba の調製試験	49
3.5.2 密閉型照射ウラン溶解処理装置からの ^{131}I の洩れの機構の解明	50
3.6 無機標識化合物製造技術の開発	53
3.6.1 ^{35}S 標識硫酸ナトリウムの製造法	53

3.7	照射技術の開発	54
3.7.1	JMTRによる照射試験	54
3.8	RI検定技術の開発	56
3.8.1	^{197}Hg の絶対測定	56
3.8.2	^{198}Au コロイドの検定	57
3.8.3	アノードイックストリッピングボルタンメトリによる放射性亜鉛製品中の微量亜鉛の定量	59
3.9	RI製造研究	63
3.9.1	銅フタロシアニンにおける反跳原子の挙動におよぼす結晶形転移の影響	63
3.9.2	Ge(Li)検出系の与える γ 線スペクトルの解析コードBOB7シリーズの開発	66
3.9.3	中程度の励起状態での核分裂の現象論的研究	67
3.10	RI製造施設および機器の開発	72
3.10.1	^{14}C 製造用セルの設計および製作	72
4.	あとがき	77
付録 1.	昭和45年度口頭発表一覧	78
付録 2.	昭和45年度所内刊行技術資料一覧	79
付録 3.	昭和45年度学術誌発表一覧	80

1. ま え が き

本報告は、“製造部技術年報 第3（昭和44年度）”のあとをうけて、製造部が昭和45年度においておこなった製造業務、製造技術開発および製造研究の成果をハイライト形式で報告したものである。

昭和45年度にあつては、原子炉の運転も順調であり、ラジオアイソトープ（以下RIと略記する）の定常生産に一応の目途を得たほか、特殊RI、有機および無機標識化合物などの製造技術の開発、製造研究も順調に推移した。

また、コバルト大線源製造技術開発、再処理廃液からの長寿命RI分離計画の立案などの製造部の新しい針路を拓く計画もスタートし多彩の年であつた。

特筆すべき事項としては、JMTRによる照射技術の開発がすすみ、その成果が、年度途中でJRR-3の運転休止があつた時にJMTR照射を以つて置き換える際に利用されたこと、初めてJMTR照射によるIr-192線源の製造をおこなつたことなどがあげられよう。

2. 業 務 の 成 果

2.1 製 造

45年度は、年間を通じての安定供給をおこなうため、年度はじめに定めた実行計画にしたがつて製造をおこなつた。この結果、途中JRR-3の燃料棒破損、重水ポンプの故障による運転休止、後半よりの7MW出力による運転にもかかわらず、研究炉管理部の好意によるJRR-4の長時間運転の実施、JMTR照射試料の製品化などにより、当初の目標をほぼ達成することができた。

精製RIでは、 ^{32}P 、 ^{35}S 、 ^{131}I 、 ^{198}Au の主要核種についてはJRR-2、JRR-3、JRR-4さらにはJMTRの水力ラビット照射を利用して製造をおこない、年間需要を計画通りみたすことができた。その他短寿命RI、中長寿命RI、特殊RI、基準照射物質などについてもほぼ計画通り製造をおこなつた。

有機標識化合物では、カタログ記載4製品の製造をおこなつた。また線源RIでは、JMTR照射による ^{192}Ir 線源の製造をはじめておこないその一部を製品とするとともに他のカタログ記載製品の製造をおこなつた。

45年度の製造量の一覧をTable 2.1 に示した。精製RI（特殊RIを含む）、有機標識化合物で730Ciと製造量は前年度に比べて若干の増加を示し、線源RIでは8300Ciと倍増し、基準照射物質で10単位の製造量となつた。出荷量に比べて製造量が増加していないのは効率の良い計画の実施によるものである。

製品の出荷状況としては、年度はじめに策定した45年度出荷計画表（付表1）にもとづいて出荷をおこなつたが、その実行結果を付表2の出荷実行表に示した。

45年度の総出荷量は、6,676,642,703mCi および基準照射物質11単位、出荷件数は512件で、総出荷量は前年度の約1.6倍と順調な伸びを示した。

1. ま え が き

本報告は、“製造部技術年報 第3（昭和44年度）”のあとをうけて、製造部が昭和45年度においておこなった製造業務、製造技術開発および製造研究の成果をハイライト形式で報告したものである。

昭和45年度にあつては、原子炉の運転も順調であり、ラジオアイソトープ（以下RIと略記する）の定常生産に一応の目途を得たほか、特殊RI、有機および無機標識化合物などの製造技術の開発、製造研究も順調に推移した。

また、コバルト大線源製造技術開発、再処理廃液からの長寿命RI分離計画の立案などの製造部の新しい針路を拓く計画もスタートし多彩の年であつた。

特筆すべき事項としては、JMTRによる照射技術の開発がすすみ、その成果が、年度途中でJRR-3の運転休止があつた時にJMTR照射を以つて置き換える際に利用されたこと、初めてJMTR照射によるIr-192線源の製造をおこなつたことなどがあげられよう。

2. 業 務 の 成 果

2.1 製 造

45年度は、年間を通じての安定供給をおこなうため、年度はじめに定めた実行計画にしたがつて製造をおこなつた。この結果、途中JRR-3の燃料棒破損、重水ポンプの故障による運転休止、後半よりの7MW出力による運転にもかかわらず、研究炉管理部の好意によるJRR-4の長時間運転の実施、JMTR照射試料の製品化などにより、当初の目標をほぼ達成することができた。

精製RIでは、 ^{32}P 、 ^{35}S 、 ^{131}I 、 ^{198}Au の主要核種についてはJRR-2、JRR-3、JRR-4さらにはJMTRの水力ラビット照射を利用して製造をおこない、年間需要を計画通りみたすことができた。その他短寿命RI、中長寿命RI、特殊RI、基準照射物質などについてもほぼ計画通り製造をおこなつた。

有機標識化合物では、カタログ記載4製品の製造をおこなつた。また線源RIでは、JMTR照射による ^{192}Ir 線源の製造をはじめておこないその一部を製品とするとともに他のカタログ記載製品の製造をおこなつた。

45年度の製造量の一覧をTable 2.1 に示した。精製RI（特殊RIを含む）、有機標識化合物で730Ciと製造量は前年度に比べて若干の増加を示し、線源RIでは8300Ciと倍増し、基準照射物質で10単位の製造量となつた。出荷量に比べて製造量が増加していないのは効率の良い計画の実施によるものである。

製品の出荷状況としては、年度はじめに策定した45年度出荷計画表（付表1）にもとづいて出荷をおこなつたが、その実行結果を付表2の出荷実行表に示した。

45年度の総出荷量は、6,676,642,703mCi および基準照射物質11単位、出荷件数は512件で、総出荷量は前年度の約1.6倍と順調な伸びを示した。

Table 2.1

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

単位 mCi

		製品記号	回数	製造量
精製	大需要	P-32-1	15	61,000
		P-32-1-b-t	1	1,900
		S-35-1	6	4,900
		I-131-1	6	22,000
		I-131-1-b-t	8	60,000
		I-131-1-c-t	4	18,000
		RI Au-198-1	49	540,000
	小計		89	710,000
	短寿命	Na-24-2	42	4,300
		K-42-2	31	3,500
		K-42-2N	10	1,100
		Cn-64-1	15	1,600
		Ga-72-1	5	140
		As-76-1	4	490
		Br-82-2	11	440
		Y-90-1	1	27
		Sm-153-1	1	10
		Lu-177-1	2	370
	RI	Hg-197-1-b-t	3	890
		Hg-197-d-t	1	340
		小計	126	13,000
	中長寿命	Ca-45-1	1	18
		Se-75-2	3	280
		Rb-86-1	1	16
		Sb-124-1	3	190
		Cs-134-1	1	400
		Ba-140-1-b-t	1	46
		Ba-140-1-c-t	1	0.3
		Tm-170-1	1	140
		W-185-1	2	24
		Hg-203-1	2	230
	小計		16	1,300
	特殊	Cr-51-2R	17	3,600
		Cr-51-2R-b-t	5	280
		Cr-51-2R-c-t	1	330
		Cr-51-2R-d-t	2	110
		Cu-64-2R	5	230
		小計	30	4,600
	RI	合計	266	730,000

(2) 有機標識化合物

単位 mCi

	製品記号	回数	製造量
有機化合物	CLC-1	3	220
	CLC-3	2	50
	ヘキサブロンベンゼン	1	1
	合計	6	271

(3) 線源ラジオアイソトープ

単位 mCi

	製品記号	回数	製造量
線源ラジオアイソトープ	CNB-1	1	550
	CNB-3	2	7,200
	CNB-4	2	13,000
	小計	5	21,000
	IPB-1	3	5,300,000
	IPB-1-M-t	1	2,000,000
	Ir-192	1	640,000
	IPC-1	4	380,000
	小計	9	8,300,000
	合計	14	8,300,000

(4) 基準照射物質

単位 unit

	製品記号	回数	製造量
基準照射物質	Na-1-d	1	1
	Sc-1-b	1	2
	Fe-1-b	1	1
	Fe-1-c	1	1
	Zn-1-b	1	1
	Mo-1-b	2	3
	Fu-1-b	1	1
	Ir-1-b	1	1
	合計	9	11

45年度出荷量の一覧を付表3に示す。

2.1.1 精製RIと基準照射物質の製造

45年度は前年度にひきつづき製品を年間安定供給するための製造体制の確立と、製造開発テーマの実施を目標とした。原子炉の稼動停止があつたにも拘らず製造頒布は計画どおりの成果を納めた。また、開発テーマとしてあげられる ^{131}I の製造法(TeO_2 蒸留法)、 ^{198}Au コロイド製造法、 ^{14}C 製造法とセルの設計製作、JMTR照射による製品化などの各製造開発も共に順調に進捗し、ひきつづきこれらの定常製造化に努めている。これらの進捗状況をTable 2.2に示してある。

(1) ^{32}P の製造

45年度は、JRR-2で照射した試料により11回、製品の再濃縮による再調整が4回と計15回の製造および試験製造を1回おこなつた。途中、放射線損傷により製造装置のパイプライン、イオン交換カラムなどが使用できなくなつたが新たに304室にイオン交換、濃縮装置を組み込み、製造をおこなうことにより年間の需要をみたすことができた。 β 線による組込部品(ビニール、テフロンパイプなど)の放射線損傷が著しく、凡そ2年に1回の頻度で今後も装置の交換、補修が必要と思われる。

最終製品に関して使用者からリン酸塩緩衝溶液で希釈した場合白沈を生じるという苦情があつたが、検査課と協力して検討の結果、製品が原因ではないことが判明した。

(2) ^{35}S の製造

JRR-2、JRR-3の両炉による照射を併用して製造をおこない出荷計画による全需要をみたした。機器、製品の品質共に安定しており問題はなかつた。年間製造回数を6回以下におさえて出荷量をみたすように製造をおこなつた。

(3) ^{131}I の製造

定常製造は6回おこなつた。また捕集液変更にとまなり試験製造を12回おこなつた。このうち石英ヒーター断線が1件あつた以外は特に問題はなかつた。しかし製造時以外では汚染が2件発生したが支障なく製造出荷がおこなわれた。その他として製品が保管中に濃度変化により減少していることが判り、出荷配分についてはその都度再検定をおこなつて出荷したため問題はなかつた。この原因を実験によつて確認したところ、保管瓶への吸着が約80%、放出が20%の値がえられ、これが製品濃度の減少の原因であることがわかつた。この対策としてシリコンを配分瓶の内壁にコーティングした場合は吸着が20%程度に減ることが確かめられたが現在、実行するまでには至っていない。その他関連事項としては放同協との出荷契約が成立し、第4四半期より2週間に1回100mCiの出荷をおこなっている。またダイナボットRI研究所要望の製品仕様についても検討した結果、原研製品でも要望仕様を充分満足するとの回答をえている。また製造施設の稼動状態にも問題はなく、廃液一時貯蔵タンクでの中和処理作業を初めておこない、現在1ケ年間減衰保管のためタンク(I)に貯溜してある。その他、製造開発テーマの TeO_2 製造法は現在のチル・酸法の代替えとして開発に着手した。これに先だち、309室製造セルでの取扱量を 10^{Ci} から 20^{Ci} に増加させることと、製造方法の変更について使用施設運転委員会に諮問し、第44回委員会で答申(45使施委第29号)が出され承認された。開発製造については404室で製造方法のサーベイをおこない、309室で定常化のための試

Table 2.2 総括実施状況

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				
四半期 JRR-2 JRR-3																
大 需 要 R・I	濃縮工程に304室を使用 ダイナボット出荷 12セル補修															
	P - 3 2 放同協出荷															
	S - 3 5 定常製造 (5回)															
	I - 131 蒸留(A)セルTeO ₂ 装置組入のため cooling (4ヶ月間) フィルター交換 (A)フィルター 放同協出荷契約 成る 定常製造 (15回)															
中 長 R・I	Au-198 9/21 JMTR照射による製造 310室 貯配セル 補修 定常製造 (52回)															
	サービス製品10%→30%に変更															
製 造 開 発	C - 1 4 技術第2條にC-14製造技術修得に向 C-14製造施設の工事															
	I - 131 (TeO ₂ 製造法) 211室でcold run 404室組込cold run 404室 hot run 18回 309室Aセル角体 組込 cold run 212室で製造開発を 302室02セル内に組込 302室セルでcold製造															
	Auコロイド															
	J M T R 110mAg (M-101)															

験製造をおこない良好な結果をえている。

(4) ^{198}Au の製造

前年度にひきつゞき年間安定供給を目標に各原子炉による照射を組合せて年間49回の定常製造をおこなった。

この内訳を原子炉別に分類すると、JRR-2(28回)、JRR-3(13回)、JRR-4(8回)、JMTR(1回JRR-4製品と同時)計49回となる。特にJRR-3の運転停止期間が長期に亘つたため、JRR-4の長時間照射に切換えたため、JRR-4による製造回数が増えている。また、今年度は外国照射依頼による製造が1件もなかった。これは研究炉管理部の好意によるJRR-4の長時間運転の実施とともに各炉の照射を充分に利用することができたためといえる。特に、JMTR照射による製造を初めておこなったが照射上の問題点を除けば一応良好な成果を納めた。JMTRによる照射技術上の問題点となつたのは、インナーカプセル(通称:ネズミ式カプセル)を水力ラビット孔で66.5h照射した試料(3ヶ)が全部開封できなかつた。このため製造用カプセルは遠隔金鋸切断によつて開封をおこなつたが、この原因として考えられ因子としては、一次キャプセル溶接時の熱膨張によるものか、照射中の影響によるものかは確認していないが、インナーカプセルの形状を改良することによつて解決できると考えている。また、出荷製品の仕様はJRR-2照射によるものと同程度となり、予想通りの結果がえられた。

(5) 短・中長寿命RI基準照射物質の製造

前年度同様、JRR-2、JRR-3、JRR-4の各炉の照射を利用して、短寿命RI、中長寿命RI共に安定した製造及び出荷を行なつた。特にJRR-3は年度後半より7MW運転が介われたのでそれに伴う計画調整を介つた。

又引続いて照射・製造・在庫管理など生産体制を整備した。今年度は特に新規製造開発核種はないが、JMTRの照射による照射技術の検討、製造法の検討を行ない、現在JRR-2、-3を利用して製造しているカタログ製品について同様の製品化を進めている。

基準照射物質についてはカタログ製品32種の注文製造をおこなつた。

2.1.2 特殊RIの製造

高比放射能 ^{51}Cr は42年度に頒布を開始して以来、定期注文生産のかたわら量産製造技術の達成に努めた結果、本年度より年間契約にもとづく定常頒布の開始が行なわれ、実質的な定常製造へ一歩踏出した。高比放射能 ^{64}Cu に関しても頒布量は暫次伸長している。

(1) 高比放射能 ^{51}Cr の製造

$\text{Na}_2^{51}\text{CrO}_4$ 等張溶液は、近年脚光を浴びつつある医学利用、とくにそのなかでも日常性の高いシンチグラフィ用放射性医薬品原材料として需要の進展が期待されているが、本年度はRI協会にたいする15mCi/月の定常的頒布と、第一RI研究所より数回の引合いを受け年間出荷量は33件、計330.6mCiに達し前年度に比べて著るしく伸長した。また主として年度後半において8件、208mCiの試供品の出荷を実施して、次年度からの新規受注開始に備えた。

このような出荷状況を反映して、製造面においても出荷計画にもとづいて定常製造としてJRR-3による製造を10回、JRR-2による製造を2回その他調整のために5回、計17

回を実施し、これらの出荷を遅滞なく達成することができた。製造結果を Table 2.3 に示す。需要者の要望、国外情勢などにより品質面においてとくに比放射能になおいつそうの向上を必要とする状況にある。また安定した定常製造実施のために原子炉異常時の対策はとくに重要である。これらの目的で主として JRR-2 による試験製造 10 バッチの実施により製品品質改善の可能性につき検討を行なった。

(2) その他の特殊 RI の製造

高比放射能 ^{64}Cu については JRR-2 による製造 4 バッチ、JRR-4 による製造 1 バッチにより 5 件 17 mCi の受注に応じた。製造結果を Table 2.4 に示した。この結果からも明らかなようにフタロシアニン銅による高比放射能 ^{64}Cu 製造法は、照射条件の大巾な変動にもかかわらず一定しており、JRR-2、JRR-3、JRR-4 のいずれによつても同品質の製品を製造できるので、安定供給は容易である。 ^{65}Zn を主とする高比放射能 Zn 同位体に関し、フタロシアニン亜鉛による ^{65}Zn 製造マニュアルが完成し、試験依頼を実施した。

Table 2.3 ^{51}Cr 製造結果

製造番号	取扱量 Ci	製造量 mCi	製品比放射能 mCi/g.Cr*
b-001	1.9	55	2.5×10^4
b-002	1.2	26	1.9×10^5
c-001	3.7	157	7.1×10^4
c-002	9.1	560	8.4×10^4
c-003	8.3	671	1.2×10^5
c-004	1.8	115	7.7×10^4
c-005	4.0	291	1.2×10^5
c-006	2.3	282	1.1×10^5
c-007	3.9	239	8.0×10^4
c-008	3.0	192	1.4×10^5
c-009	2.5	156	1.5×10^5
c-010	5.1	481	1.9×10^5

* 照射直後換算値

Table 2.4 ^{64}Cu 製造結果

製造番号	照射条件	製造量 mCi	製品比放射能 mCi/g. Cu*	収率 %
b-002	JRR-2 Pn. 2 hr	45	1.8×10^6	48
d-001	JRR-4 T. 1 hr	25	5.7×10^5	59
b-101	JRR-2 Pn. 2 hr	28	1.6×10^6	60
b-102	JRR-2 Pn. 2 hr	69	1.7×10^6	61
—	JRR-3 HR 17 hr	150	1.2×10^6	52

* 照射直後換算値

2.1.3 有機標識化合物の製造

前年度のベンゼン(U)- ^{14}C のカatalog化により基幹化合物の製造法に関する第一目標は達成されたわけであるが、本年度は製造部としての方針により、これまでの成果を使用者の需要に応じること、すなわち供給体制を整え出荷実績をあげることに向けることになった。

本年度の製造量および出荷量は下表の内訳になるが総量でそれぞれ271ミリキューリー、282ミリキューリーで前年度までと比べて急増加した。

ベンゼン(U)- ^{14}C については出荷がなかつたが、誘導体の問合わせはかなりあり、そのうちヘキサブromベンゼンを出荷した。今後は誘導体の製造法を確立していくことが必要と思われる。その他技術開発中のアクリルアミドも強い要望があり試験的に製造し出荷した。

本年度はシアン化カリウム- ^{14}C とメタノール- ^{14}C が製造の中心となり、高比放射能で大量の製造およびその操作上の貴重なデータが得られた。

2.1.4 線源R Iの製造

^{60}Co 針状線源、 ^{192}Ir 線源の定常製造を実施するとともに新規にJMTRによる ^{192}Ir 線源の製造およびハイドロラビットによる ^{60}Co 針状線源の試験製造を開始した。そのほかケーブルの後面扉の自動化、 ^{192}Ir 密封用の改造形密封装置のケーブルへの組込みなど製造施設の整備をおこなった。

(1) ^{60}Co 針状線源の製造

^{60}Co 針状線源の製造はCNB-2を除き、計4件、13,000mCiを製造し、出荷は3件、計4,750mCiであつた。

(2) ^{192}Ir 線源の製造

^{192}Ir 線源については製造IPBについては3件、7,300Ci、IPC(密封 ^{192}Ir 線源)は4件、380Ciの製造をおこない、その中12月製造の一部にはJMTR照射分が含まれている。

(a) JMTRによる ^{192}Ir 線源の製造

前年度に実施したJMTR臨界実験装置によるモックアップテストの熱中性子束分布測定にもとづき、 ^{192}Ir 線源製造のための照射孔を決定した。 ^{192}Ir 線源(照射後1ヶ月-出荷時10Ci/ヶ)の製造に必要な熱中性子束は照射時間を21日間としたとき、およそ $2 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ である。上記の条件から照射孔はI-11の中段を使用することにした。同照射孔は燃料領域から第一層のベリリウム反射体であり、照射孔径は42mm ϕ である。

45年度04サイクルにおいて、ターゲットの配列法など実際の生産用に見合つた方法で照射を行なつた。このときのターゲット数は2mm ϕ ×2mm、190個であつた。照射後のカプセル開封の際、従来のJRR-2照射試料と同様の操作を行なつたため、イリジウム粉塵によるケーブル内汚染が著しく高くなつた。JRR-2照射試料に比較して約100倍の空間線量率であつた。また、照射用コアにグラフアイト材を使用したため、190個の試料のうち65個の試料の表面にグラフアイトが付着し、超音波洗滌でも剝離できなかつた。以上の原因としてイリジウムターゲット自身の γ heatingあるいは炉内温度の上昇などによるターゲット表面の破損などが考えられるので、46年度も引き続きその原因を検討する予定である。46年度の7サイクル、9サイクル照射用試料は45年度末に提出したので、とりあえずグ

ラフアイトコアをアルミニウムコアに変更し、さらにカプセル開封時および試料解体時における汚染防止のための処置をする予定である。

45年度におけるJMTR照射の ^{192}Ir 線源の製造・出荷実績は次のようである。

照射サイクルおよび照射時間

：第4サイクル，453時間（26.5MW）

ターゲットの形状と個数

：2 mm ϕ $\times$ 2 mm 190 個

試料1個当りの放射能測定値（平均値）

：11.2 Ci（照射24日経過後の測定）

出荷個数

：IPB-1 25 個， IPC-1 3 個

上記試料での熱中性子束密度の測定値は、カプセル内での平均値が $1.5 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ であり、自己吸収係数はJRR-2での照射試料とほとんど一致する0.18を得た。以上の試料から得られた経験とデータにもとづき46年度製造用ターゲットとして次のものを作成した。

7サイクル照射試料

2 mm ϕ $\times$ 2 mm 47 個

2 mm ϕ $\times$ 0.2 mm 30 個

9サイクル照射試料

2 mm ϕ $\times$ 2 mm 45 個

2 mm ϕ $\times$ 0.2 mm 50 個

2 mm ϕ $\times$ 0.2 mm のウェーハ状ターゲットは、従来用いていたベレット状ターゲットに比較して高い比放射能線源を得るために試験照射するものである。46年度にはこれらの放射能を比較検討し、高比放射能線源の開発をすすめる予定である。

2.2 検 査

製造部で生産された精製RI製品，特殊RI製品，有機標識化合物，線源RIなどの各製品および試験製品について定常的な検定を実施した。これらの製品検定の内訳はつぎのようである。

精製RI製品および特殊RI製品については核種の数に26種でありカタログ記載の製品のほぼ全部にわたり，製品数にして267件であつた。これらの製品のそれぞれについて放射能検定と平均3項目の化学検定をおこない，項目別検定数は合計1,120件であつた。なおこの総件数の中には全く同一製品であるが長期間貯蔵されていて出荷の際に再検定した場合は新しい検定作業として数えてある。

有機標識化合物は試験製品ヘキサブromベンゼン1件を含めてCLC-1，CLC-3等製品数1件，検定項目数は13件であつた。化学検定の項目は有機標識係に委託し，マニュアル管理により品質確認を行なつた。

線源RIは ^{192}Ir のJMTR照射による試験製品1件（187ケ）を含めて13件であり，製品の総個数2,170ケについて検定を行なつた。密封線源IPCの130ケに対する密封度試験を

加えて検定数は2,200件となつた。なお密封度試験に関しては線源係と協力の形で実施した。

製品の検定結果については大部分が一度で検査規格に合格したが、一部の製品に関しては再調整を命じ、第二回目の検定で全部が合格品となつた。従つて頒布製品についてはいずれも規格値を満足するものであることが確認された。

全製品にたいする検定結果を項目別に表わした製品仕様一覧を附表4に示した。

中長寿命の製品で長期間保管してあつたものについては品質の確認のために重点項目に關して再検定を実施し、そのうち前回の検定結果と異なる場合はその原因を検討し経時変化に対する基礎的データの蓄積をはかつた。とくに高い放射能濃度のI-131製品は製造後一半減期以上保管すると、濃度の低下が著しい場合が多く、定期的な品質管理を実施する必要がある。原因としては保存容器壁への吸着が大きな役割を果すものと思われるが、濃度低下の原因が他にもいくつか考えられるので、定量的結果を得るための試験法を検討する必要がある。

2.2.1 放射能検査

放射能検査係においては、測定精度の維持のため、放射能絶対測定法などによる試験を年間を通じて実施している。

精製RIのうち β 放射体測定用の2 π ガスフロー計数装置に関しては、専用のチェックソース(Ra D+E)を新設し、従来のプラトー曲線によるチェックと平行して計器異常の有無を容易に確認できるようにした。検定頻度の高い ^{32}P に關して4 $\pi\beta$ 計数法による較正を行ない較正定数に変化のないことを確認した。

γ 放射体用井戸型電離箱に關しては、 ^{42}K などの短寿命核種について4 $\pi\beta-\gamma$ 同時計数法による絶対測定を行ない、また比較的寿命の長い核種については、英国ラジオケミカルセンター(RCC)により数核種の標準試料を購入して較正を行なつた。結果として、いずれの場合も較正定数に変化のないことを確認した。さらに γ 線エネルギーに対する応答特性を検討することにより較正定数の妥当性を確認した。 γ 放射体のなかでも ^{131}I については、とくに安全上の観点から新たに専用井戸型電離箱をヨウ素セル内に設置し、前記 γ 放射体用電離箱を二次標準として較正を行なつた。

線源RIのうち、 ^{192}Ir などキュリーオーダーの線量を測定するためのレートメーターについては、年度初めに線量計測課との比較測定を行なつた。また測定のたびにRCCより購入した ^{137}Cs 標準線源により較正を実施した。年度半ばに大線源製造計画にもとづく ^{60}Co を測定する必要が生じたため、検出部を変更して ^{192}Ir 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co のエネルギー範囲をカバーできるようにした。 ^{60}Co 針状線源(ミリキュリーオーダー)測定用としては、前記 γ 放射体用電離箱を二次標準として較正された井戸型電離箱と振動容量型微小電流電位計とを組合せて使用している。 ^{60}Co 用測定器は、 ^{192}Ir 線源用測定器と同一ケーブ内におさめられているため ^{192}Ir からの高線量放射線のため、たびたび不調となり年度後半には遂に修復不能の状態となつたが、新たに測定系の設計をしておし、次年度早々には新設できる見通しを得た。

有機標識化合物の測定は、液体シンチレーションカウンターによつてゐる。計数効率標準試料により決定しているが、外部(東大及び相模中研)との比較でも2~3%以内で一致した。前年度から懸案となつてゐたスペクトル異常については、サミングアンプ部に大巾な改造を施して一応の解決をみた。

測定データ処理時の錯誤を防ぐため小型計算機を活用し、満足すべき成果をあげることができた。すなわち、核種毎の減衰表作製、出荷配分時の濃度計算、線源測定値の標準偏差算出およびパッチ毎の放射能分布図作製、 $2\pi\beta$ 計数結果の処理等に100~600ステップ程度のプログラムを用意して定常作業に使用している。計算センターの大型計算機の利用に関しては、 $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数のデータ処理プログラムをフォートランで作製し、 ^{42}K の測定に適用して好結果を得た程度にとどまつた。

小型計算機を定常業務に活用する問題は今年度当課で重点的に実施したテーマの一つであるので、それらの成果の概略をつぎに述べる。

2.2.2 小型計算機の定常業務への活用

出荷件数の増大、頒布核種の多様化に伴つて、検査課における計算業務の繁雑化は避けられない情勢にある。そこで計算作業の省力化の一環として検査業務に必要な十数篇のプログラムを作製した。この計算に使用する計算機は30桁レジスター10ケと1枚に160ステップまでのプログラムを記憶することのできる磁気カード方式外部メモリ機構をもち、プリント機構と作表用電動タイプライターを備えている。演算機能として加減乗除及び平方根をもち、プログラム機能としては条件付ジャンプ、無条件ジャンプ、自動繰返しその他の機能を有している。

以下に代表的なもので直接検定業務に定常的に採用されているプログラムの概要について記す。

(1) 検定結果の記憶

いわゆる中長寿命核種については、検定後出荷の都度出荷時点における検定値を算出する必要があるため放射能検査の内容を磁気カードに記憶させておく。記憶内容は製造番号、測定年月日及び時刻、比放射能値、放射能濃度および半減期である。

(2) 出荷時濃度計算

前期(1)のカードに記憶されている内容を引き出して計算し、濃度計算連絡表に印刷させる。入力としては出荷年月日、時刻を算入すればよい。

(3) 平均値、標準偏差、頻度分布

最大 99×15 ケまでのデータ(小数点以下4桁まで)を算入すれば、平均値及び標準偏差(σ)を算出し、8段階又は15段階に分類したヒストグラムをタイプライターにより印刷する。主に線源測定データの処理に使用している。

(4) $2\pi\beta$ 計数法データ処理

入力として計数率、バックグラウンド、試料重量、希釈率、校正定数、測定日時及び時刻を算入すれば放射能濃度が計算され、計算過程および結果はタイプライターにより印刷される。

(5) 減衰表

半減期と時間間隔(年、日、時、分)を核種に応じて自由に指定できる。何時間までの表とするかを指定しておけば自動的に作表する。10分間隔、30日までの表ならば約1時間半で出来上る。

(6) 日数計算

単に経過前後の日付を算入するだけで経過日数を算出する。必要に応じてつぎの形式を指定することができる。

イ. 年月日時分

ロ. 年月日

ハ. 月日時分

ニ. 月日

ただし年号は昭和を用い、うるう年を含んでも支障はない。

2.2.3 化学検査

化学検査係における検査実施項目は附表・製品仕様一覧表に示すように外観検査、全固形分、不揮発分、酸性度、重金属含有量、主元素含有量、不純物含有量などについて所定の方法により定常的に行なわれた。

酸性度測定、重金属元素定量など一般的な検査項目については、細部手順について改良を加え作業時間の短縮などはかつたほか基本的なものについて大巾に改訂したものはなく、ほぼ全面的に従来の方法を踏襲し実施した。

主元素の定量については本年度あらたにインバースポーラログラフ法による亜鉛の定量が完成し(3.8.3参照)高比放射能の亜鉛製品の検定に対処する準備を終っているが、製品のカタログ化が遅れているので定常的な製品の検定作業は開始していない。

上記のカタログ製品の定常検定の他に試験製品の検査を依頼分析の形で引き受けたものおよび部内他課からの依頼分析の試料を合計17件、約40試料について測定または分析を実施し依頼元へ報告した。

外部からのクレームとして以前から問題となっていた ^{32}P 製品中の白色沈澱について事業課、製造課、検査課から各1名ずつ第一RI社に出張し、打合せの結果、当係で作製したリン酸緩衝溶液と同社のものとを交換してそれぞれに実験を行なうことになった。その結果製品そのものよりは緩衝溶液の方に問題があることが証明されこの問題については一応解決したものと考えられる。

化学検査用Cセルに設置されていた検定用機器の老朽化が甚しく(電位着滴定装置とpHメーターは使用不能)、ブーツの破損、蛍光灯の断線等でCセルによる検定は遠からず不能となる恐れがあつたので、それまで ^{131}I 専用に用いていたDセルと13セルに暫定的な装置を組み込み、Cセルは約一年間の冷却をすることにした。来年度早々から汚染除去、蛍光灯交換、水道工事等のセル整備を行ない同時に新しい検定機器を発注し、年度中頃までにはCセルでの検定作業を再開する予定である。

昭和45年度出荷計画表

1
付表

[illegible]

付表 2
昭和 45 年度 出荷計画表

[illegible]

付表3 ラジオアイソトープ出荷状況一覧表

(1) 精製ラジオアイソトープ

単位 mCi

		製 品 記 号	件数	出 荷 量
精製ラジオアイソトープ	大需要RI	P-32-1	51	14,234
		S-35-1	42	2,420
		I-131-1	19	619
		I-131-1-b-t	57	1,176
		I-131-1-c-t	23	742
		Au-198-1	59	276,637
		小 計	251	295,828
	短寿命RI	Na-24-2	52	584
		K-42-2	38	125
		K-42-2 N	10	28
		Cu-64-1	15	42
		Ga-72-1	7	9
		As-76-1	5	12
		Br-82-1	11	68
		Y-90-1	1	1
		Sm-153-1	1	1
		Lu-177-1	2	5
		Hg-197-d-t	1	277
		小 計	143	1,152
	中長寿命RI	Ca-45-1	7	83
		Co-60-1	4	6
		Zn-65-1	5	11
		Se-75-2	3	3
		Rb-86-1	1	1
		Ag-110m-1	3	3
		Sb-124-1	7	13
		Cs-134-1	1	1
		Ba-140-1-b-t	3	1,503
		Tm-170-1	2	2
		W-185-1	1	1
		Hg-203-1	3	21.3
		Tl-204-1	3	3
		小 計	43	75.103
		特殊RI	Cr-51-2R	34
	Cr-51-2R-b-t		5	51
	Cr-51-2R-c-t		2	16
	Cn-64-2R		5	17
	小 計		46	555.6
計			483	297,610.703

(2) 有機標識化合物

単位 mCi

	製品記号	件数	出荷量
有機標識物	CLC-1	4	205
	CLC-3	4	776
	ヘキサブロムベンゼン	1	1
	合計	8	282

(3) 線源ラジオアイソトープ

単位 mCi

	製品記号	件数	出荷量
線源ラジオアイソトープ	CNB-1	1	550
	CNB-2		
	CNB-3		
	CNB-4	2	4,200
		3	7,750
	IPB-1	3	5,120,000
	IPB-1-M-t	1	250,000
	Ir-192	1	640,000
	IPC-1	4	364,000
	小計	9	6,374,700
	合計	12	6,378,750

(4) 基準照射物質

単位 unit

	製品記号	件数	出荷量
基準照射物質	Fe-1-c	1	1
	Sc-1-b	1	2
	Zn-1-b	1	1
	Mo-1-b	2	3
	Ir-1-b	1	1
	Eu-1-b	1	1
	Na-1-d	1	1
	Fe-1-b	1	1
合計		9	11

付表4 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
Na-24-2-b	005	5.9	—	2.7×10^2 mCi/g Na	pH 8.0	—	—	<10	
	006	5.7	—	2.2×10^2 "	pH 8.0	—	—	<10	
	007	5.1	—	2.8×10^2 "	pH 8.5	—	—	<10	
	008	5.5	—	2.6×10^2 "	pH 8.0	—	—	<10	
	009	5.3	—	3.3×10^2 "	pH 8.0	—	—	<10	
	010	4.2	—	2.6×10^2 "	pH 7.6	—	—	<10	
	011	5.2	—	2.8×10^2 "	pH 8.3	—	—	<10	
	012	5.4	—	2.9×10^2 "	pH 8.1	—	—	<10	
	013	5.0	—	2.7×10^2 "	pH 8.1	—	—	<10	
	014	3.5	—	2.4×10^2 "	pH 8.0	—	—	<10	
	015	5.6	—	3.0×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
	016	5.7	—	3.4×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
	101	5.7	—	2.1×10^2 "	pH 8.1	—	—	<10	
	102	5.0	—	2.4×10^2 "	pH 8.0	—	—	<10	
	103	5.0	—	2.7×10^2 "	pH 8.0	—	—	<10	
	104	6.0	—	3.0×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
	105	4.6	—	2.7×10^2 "	pH 7.9	—	—	<10	
Na-24-2-c	002	5.4	—	5.8×10^2 "	pH 8.0	—	—	<10	
	003	6.0	—	5.8×10^2 "	pH 8.3	—	—	<10	
	004	5.9	—	6.1×10^2 "	pH 8.3	—	—	<10	
	005	5.0	—	4.6×10^2 "	pH 7.9	—	—	<10	
	006	7.4	—	6.6×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
	007	4.4	—	5.6×10^2 "	pH 8.9	—	—	<10	
	008	4.0	—	5.7×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
	009	4.6	—	3.7×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
	010	5.7	—	4.2×10^2 "	pH 8.1	—	—	<10	
	011	4.7	—	6.8×10^2 "	pH 8.1	—	—	<10	
	012	3.9	—	4.1×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
	013	3.5	—	3.3×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
	014	4.3	—	4.0×10^2 "	pH 8.1	—	—	<10	
	101	4.4	—	4.4×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
Na-24-2-d	003	5.9	—	6.3×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
	004	4.9	—	5.2×10^2 "	pH 8.3	—	—	<10	
	005	5.0	—	5.3×10^2 "	pH 8.3	—	—	<10	
	006	4.8	—	2.6×10^3 "	pH 8.4	—	—	<10	
	007	5.7	—	3.2×10^3 "	pH 8.3	—	—	<10	
	008	4.5	—	2.0×10^3 "	pH 8.4	—	—	<10	
	009	6.0	—	6.7×10^2 "	pH 8.4	—	—	<10	
	010	15	—	1.7×10^3 "	pH 8.4	—	—	<10	
	011	5.0	—	2.0×10^3 "	pH 8.4	—	—	<10	
	012	4.9	—	5.4×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
	101	4.7	—	5.0×10^2 "	pH 8.2	—	—	<10	
P-32-1	b-003	79	—	C. F	0.06N	<1.0	<1.0	<10	Al <10ppm
	b-004	(A) 7.6×10^2 (B) 1.0×10^2	—	C. F	(A) 0.14N (B) 0.09N	(A) <1.0 (B) <1.0	(A) <1.0 (B) <1.0	(A) <10 (B) <10	Al (A) <10ppm (B) <10ppm
	b-005	(A) 3.5×10^2 (B) 2.1×10^2	—	C. F	(A) 0.12N (B) 0.12N	(A) <1 (B) <1	(A) <1 (B) <1	(A) <10 (B) <10	Al (A) <10ppm (B) <10ppm

項 目	製造番号	濃 度 (mCi/ml)	全 元 素 量	比 放 射 線	酸 性 度 (N)	全 固 形 分 (mg/ml)	不 溶 性 成 分 (mg/ml)	重 金 属 (ppm)	不 純 物
	b-006	(A) 1.1×10^3 (B) 2.0×10^2	—	C.F	(A) 0.13N (B) 0.13N	(A) < 1.0 (B) < 1.0	(A) < 1.0 (B) < 1.0	(A) < 10 (B) < 10	
	b-007	(A) 4.9×10^2 (B) 1.4×10^2	—	C.F	(A) 0.12N (B) 0.12N	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 10 (B) < 10	
	b-008	(A) 2.0×10^2 (B) 48 (C) 95	—	C.F	(A) 0.10N (B) 0.12N (C) 0.13N	(A) < 2 (B) < 1 (C) < 1	—	(A) < 10 (B) < 10 (C) < 10	(A) ≈ 5 ppm Al (B) — (C) —
	b-009	(A) 5.4×10^2 (B) 80	—	C.F	(A) 0.14N (B) 0.13N	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 1 (B) < 1	< 10	
	b-010	(A) 4.8×10^2 (12/14 17:30) (B) 88	—	C.F	(A) 0.10N (B) 0.09N	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 10 (B) < 10	Al (A) < 10 ppm (B) < 10 ppm
	b-101	(A) 3.1×10^2 (B) 99	—	C.F	(A) *0.09N (B) 0.14N	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 10 (B) < 10	*再調整後の 測定値
	b-102	(A) 2.9×10^2 (B) 2.0×10^2	—	C.F	(A) 0.11N (B) 0.10N	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 10 (B) < 10	
	b-103	(A) 3.8×10^2 (B) 2.0×10^2	—	C.F	(A) 0.11N (B) 0.13N	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 1 (B) < 1	(A) < 10 (B) < 10	Al < 10 ppm < 10 ppm
	R-001	(A) 1.0×10^2 (B) 3.0	—	C.F	(A) 0.08N (B) 0.04N	(A) < 0.5 (B) < 0.5	(A) < 0.5 (B) < 0.5	(A) < 10 (B) < 10	Al (A) < 10 ppm (B) < 10 ppm
	R-002	(A) 78 (B) 23	—	C.F	(A) 0.14N (B) 0.09N	(A) < 2 (B) < 0.5	(A) < 2 (B) < 0.5	(A) < 10 (B) < 10	Al (A) < 10 ppm (B) < 10 ppm
	R-003	31	—	C.F	0.15N	< 1.0	< 1.0	—	
	R-004	1.7×10^2	—	C.F	0.06N	< 1	< 1	< 10	
P-32-1- b-t	T-001	2.5	—	C.F	0.08N	< 0.5	< 0.5	< 10	Al < 10 ppm
	T-101	20	—	C.F					
S-35-1	b-002	91	—	C.F	0.06N	< 0.5	< 0.5	< 10	
	b-003	1.0×10^2	—	C.F	0.06N	< 1.0	< 1.0	< 10	
	b-004	1.5×10^2	—	C.F	0.06N	< 1	< 1	< 10	
	b-005	50	—	C.F	0.07N	< 1	< 1	< 10	
	b-101	1.2×10^2	—	C.F	0.07N	< 1	< 1	< 10	
	C-001	85	—	C.F	0.07N	< 1.0	< 1.0	< 10	
K-42-2-b	003	2.7	—	34 mCi/g·K	pH 7.7	—	—	< 10	
	004	2.5	—	30 "	pH 7.7	—	—	< 10	
	005	2.8	—	37 "	pH 7.7	—	—	< 10	
	006	3.0	—	38 "	pH 8.1	—	—	< 10	
	101	3.2	—	38 "	pH 7.7	—	—	< 10	
	202	3.3	—	39 "	pH 7.7	—	—	< 10	
K-42-2-c	002	5.3	—	63 "	pH 7.1	—	—	< 10	
	003	5.5	—	65 "	pH 7.7	—	—	< 10	
	004	6.0	—	69 "	pH 7.4	—	—	< 10	
	005	4.7	—	56 "	pH 7.6	—	—	< 10	
	006	6.1	—	74 "	pH 7.5	—	—	< 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 發 性 成 分 (mg/ml)	重 金 属 (ppm)	不 純 物
	007	2.9	—	75 mCi/g·K	pH7.7	—	—	<10	
	008	5.3	—	68 "	pH7.5	—	—	<10	
	009	4.0	—	49 "	pH7.7	—	—	<10	
	010	4.7	—	51 "	pH8.0	—	—	<10	
	011	6.1	—	75 "	pH7.4	—	—	<10	
	012	3.7	—	41 "	pH7.7	—	—	<10	
	013	3.8	—	43 "	pH7.8	—	—	<10	
	014	4.3	—	49 "	pH7.7	—	—	<10	
	101	3.5	—	42 "	pH7.9	—	—	<10	
	102	4.4	—	52 "	pH7.2	—	—	<10	
	103	3.7	—	47 "	pH7.7	—	—	<10	
K-42-2-d	003	5.6	—	87 "	pH7.9	—	—	<10	
	004	5.0	—	4.8×10^2 "	pH8.1	—	—	<10	
	005	5.5	—	3.9×10^2 "	pH8.3	—	—	<10	
	006	3.1	—	2.1×10^2 "	pH8.0	—	—	<10	
	007	3.4	—	79 "	pH7.3	—	—	<10	
	008	13	—	2.1×10^2 "	pH8.0	—	—	<10	
	009	3.5	—	2.3×10^2 "	pH8.0	—	—	<10	
	010	5.7	—	77 "	pH7.8	—	—	<10	
	101	5.0	—	73 "	pH7.8	—	—	<10	
K-42-2N	003	4.6	—	9.0×10^2 "	pH8.1	—	—	<10	
	004	6.1	—	8.6×10^2 "	pH7.9	—	—	<10	
	005	6.3	—	1.0×10^2 "	pH8.0	—	—	<10	
	006	5.9	—	8.0×10^2 "	pH8.2	—	—	<10	
	007	5.6	—	8.3×10^2 "	pH8.0	—	—	<10	
	008	6.3	—	8.7×10^2 "	pH8.1	—	—	<10	
	101	5.3	—	7.7×10^2 "	pH7.5	—	—	<10	
	102	5.5	—	7.9×10^2 "	pH8.0	—	—	<10	
	103	6.3	—	8.0×10^2 "	pH7.9	—	—	<10	
	104	5.9	—	1.0×10^2 "	pH7.0	—	—	<10	
Ca-45-1	b-101	0.41	86 mg/ml	4.8 mCi/g·Ca	10N	—	—	<10	
Cr-51-2R	b-001	11 mCi/ml	5.8×10^{-1}	1.9×10^4 mCi/g·Cr	pH6.8	—	—	—	
	b-002	11 "	9.0×10^{-2}	1.2×10^5 "	pH7.0	—	—	—	
	b-101	6.8 "	7.0×10^{-2}	9.7×10^4 "	—	—	—	—	
	c-001	(A) 47 (B) 20	(A) 7.1×10^{-1} (B) 3.8×10^{-1}	5.3×10^4 "	(A) — (B) pH7.3	—	—	—	
	c-002	(A) 38 (B) 18	(A) — (B) 2.8×10^{-1}	(A) 6.4×10^4 (B) 6.4×10^4 "	(A) pH7.2 (B) pH7.3	—	—	—	
	c-003	(A) 56 (B) 29	6.0×10^{-1}	(A) 9.4×10^4 (B) 9.4×10^4 "	(A) pH7.5 (B) pH8.0	—	—	—	
	c-004	"	4.7×10^{-1}	4.9×10^4 "	pH7.4	—	—	—	

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 發 性 成 分 (mg/ml)	重 金 属 (ppm)	不 純 物
	c-005	(A)52 mCi/ml (B)19 "	(A) 8.0×10^{-1}	(A) 6.5×10^4 mCi/g (B) 4.2×10^4 "	(A)pH7.4 (B)pH7.2	—	—	—	
	c-006	(A)66 " (B)22 "	1.3	(A) 5.1×10^4 " (B) 4.7×10^4 "	(A)pH7.0 (B)pH7.0	—	—	—	
	c-007	(A)46 " (B)22 "	8.8×10^{-1}	(A) 5.2×10^4 " (B) 5.0×10^4 "	(A)pH6.6 (B)pH7.6	—	—	—	
	c-008	(A)30 " (B)24 "	2.9×10^{-1}	(A) 1.0×10^5 " (B) 1.0×10^5 "	(A)pH7.9 (B)pH7.5	—	—	—	
	c-009	(A)24 " (B)8.1 "	2.5×10^{-1}	(A) 9.8×10^4 " (B)	(A)pH7.9 (B)pH8.0	—	—	—	
	c-010	(A)43 " (B)	3.6×10^{-1}	(A) 1.2×10^5 " (B) 1.2×10^5 "	(A)pH6.8 (B)pH6.8	—	—	—	
	c-101	21	2.2×10^{-1}	9.5×10^4	pH7.2	—	—	—	Cr ³⁺ < 5 %
	c-102	(A) 31 (B) 19	(A) 3.2×10^{-1}	(A) 9.7×10^4 " (B) 9.2×10^4 " (C) 9.1×10^4 " (D) 8.1×10^4 "	(A)pH7.9 (B)pH7.8 (C)pH7.8 (D)pH7.8	—	—	—	
	T-005	19	5.3×10^{-1}	3.6×10^4 "	pH7.7	—	—	—	
	T-006	7.4	1.9×10^{-1}	3.9×10^4 "	pH6.4	—	—	—	
	T-007	(A) 53 (B)	8.1×10^{-1}	(A) 6.5×10^4 (B) 5.2×10^4	(A)pH7.5 (B)pH7.8	—	—	—	
	T-008	16	1.0	1.6×10^4 "	pH6.7	—	—	—	
	T-009	0.37	1.2×10^{-1}	3.0×10^4 "	pH7.2	—	—	—	
	T-010	(A) 17 (B) 3.9	1.0×10^{-1}	(A) 1.6×10^4 (B) 1.3×10^5	pH6.9	—	—	—	
	T-101	23	2.1×10^{-1}	1.1×10^5 "	pH7.4	—	—	—	Cr ³⁺ < 5 %
	T-102	6.4	2.6×10^{-1}	2.5×10^4 "	—	—	—	—	
	T-010(R)	5.1	44 $\mu\text{g/ml}$	1.2×10^5 "	pH6.1	—	—	—	
	R-101	8.9	1.3×10^{-1}	7.1×10^5 "	pH7.7	—	—	—	Cr ³⁺ < 5 %
Cu-64-1-b	003	5.6	—	6.9×10^2 mCi/g·Cu	1.3 N	—	—	—	
	004	3.7	—	4.7×10^2 "	1.2 N	—	—	—	
	005	5.7	—	6.6×10^2 "	1.1 N	—	—	—	
	006	4.8	—	6.4×10^2 "	1.1 N	—	—	—	
	007	5.7	—	8.5×10^2 "	0.76 N	—	—	—	
	008	5.0	—	7.4×10^2 "	0.72 N	—	—	—	
Cu-64-1-c	001	5.2	—	1.3×10^3 "	1.1 N	—	—	—	
	002	5.1	—	1.3×10^3 "	1.2 N	—	—	—	
	003	6.3	—	1.6×10^3 "	1.2 N	—	—	—	
	004	6.4	—	9.2×10^2 "	0.72 N	—	—	—	
	005	5.8	—	8.7×10^2 "	0.72 N	—	—	—	
	006	5.4	—	9.8×10^2 "	1.0 N	—	—	—	
Cu-64-1-d	001	7.0	—	1.7×10^3 "	1.2 N	—	—	—	出荷時仕様 濃度 7.0 mCi/ml 比放射能 1.7×10^3 mCi/g· Cu

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
	002	3.9	—	6.4×10^3 mCi/g·Cu	*1.1N	—	—	—	*再調整後の 測定値
	003	14	—	9.7×10^3 "	1.3N	—	—	—	
Ga-72-1	b-001	3.3	—	3.6×10^2 mCi/g·Ga	1.0 N	—	—	< 10	
	b-101	4.1	—	3.6×10^2 "	0.95N	—	—	< 10	
	c-001	4.6	—	6.3×10^2 "	0.75N	—	—	< 10	
	c-002	5.1	—	4.7×10^2 "	0.60N	—	—	< 10	
	d-001	5.3	—	6.0×10^2 "	0.92N	—	—	< 10	
Se-75-2	b-001	2.6	—	1.4×10^2 mCi/g·Se	pH 9.0	—	—	—	
	b-002	4.8	—	1.8×10^2 "	pH 8.1	—	—	—	
	b-001	7.6	—	3.4×10^2 "	pH 8.8	—	—	—	
As-76-1	b-001	4.9	—	1.7×10^4 mCi/g·As	1.3 N	—	—	< 10	
	b-002	2.1	—	1.6×10^4 "	1.3 N	—	—	< 10	
	b-003	3.9	—	1.8×10^4 "	0.76N	—	—	< 10	
	b-101	2.1	—	1.8×10^4 "	1.0 N	—	—	< 10	
Br-82-2	b-002	3.1	—	2.8×10^2 mCi/g·Br	—	—	—	< 10	
	b-003	3.6	—	1.0×10^3 "	—	—	—	< 10	
	b-004	2.9	—	1.0×10^3 "	—	—	—	< 10	
	b-005	3.1	—	9.2×10^2 "	—	—	—	< 10	
	c-001	3.0	—	6.5×10^2 "	—	—	—	< 10	
	c-002	2.9	—	4.1×10^2 "	—	—	—	< 10	
	c-003	2.8	—	8.7×10^2 "	—	—	—	< 10	
	c-004	2.5	—	4.4×10^2 "	—	—	—	< 10	
	c-005	2.6	—	9.2×10^2 "	—	—	—	< 10	
	c-006	2.6	—	4.8×10^2 "	—	—	—	< 10	
	c-101	2.9	—	6.0×10^2 "	—	—	—	< 10	
Rb-86-1	c-101	3.1	—	1.8×10^2 mCi/g·Rb	0.08 N	—	—	< 10	
Sb-124-1	b-102	2.7	—	2.7×10^2 mCi/g·Sb	6.1 N	—	—	< 10	
	b-003	3.3	—	3.3×10^2 "	5.7 N	—	—	< 10	
	b-101	7.9	—	1.2×10^3 "	5.5 N	—	—	< 10	
I-131-1	b-101	(A) 4.0×10^2 (B) 25	—	C. F	(A) pH9.2 (B) pH8.5	(A) 2.2 (B)	—	—	
	b-102	(A) 8.5×10^2 (B) 1.7×10^2	—	C. F	(A) pH8.4 (B) pH8.2	(A) 11.7 (B) 0.87	—	—	
	c-101	(A) 2.7×10^2 (B) 21	—	C. F	(A) pH8.9 (B) pH8.2	(A) 8.2 (B) 0.18	—	—	
	c-102	(A) 2.7×10^2 (B) 15	—	C. F	(A) pH9.3 (B) pH8.4	(A) 2.8 (B) 0.19	—	—	

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 溶 性 成 分 (mg/ml)	重 金 属 (ppm)	不 純 物
	R-101	1.6×10^2	—	C.F	pH 8.9	5.5	—	—	
	R-102	1.7×10^2	—	C.F	pH 9.3	1.9	—	—	
I-131-1- b-t	T-002	(A) 5.4×10^2 (B) 52	—	C.F	(A) pH 8.6 (B) pH 9.0	(A) 3.0 (B) 0.19	—	—	
	T-003	(A) 3.9×10^2 (B) 29	—	C.F	(A) pH 9.2 (B) pH 9.8	(A) 3.1 (B) 0.13	—	—	
	T-004	(A) 4.2×10^2 (B) 32	—	C.F	(A) pH 9.0 (B) pH 9.3	(A) 3.7 (B) 0.13	—	—	
	T-005	71	—	C.F	pH 8.3	0.33	—	—	
	T-006	(A) 5.2×10^2 (B) 27	—	C.F	(A) pH 8.6 (B) pH 8.6	(A) 4.3 (B) 0.16	—	—	
	T-007	(A) 7.4×10^2 (B) 45	—	C.F	(A) pH 8.4 (B) pH 8.2	(A) 5.6 (B) 0.19	—	—	
	T-008	(A) 4.3×10^2 (B) 34	—	C.F	(A) pH 9.0 (B) pH 8.9	(A) 4.0 (B) 0.15	—	—	
	T-009	(A) 2.2×10^2 (B) 14	—	C.F	(A) pH 8.4 (B) pH 8.4	(A) 4.4 (B) 0.18	—	—	
	T-010	(A) 4.5×10^2 (B) 39	—	C.F	(A) pH 8.3 (B) pH 8.3	(A) 5.4 (B) 0.2	—	—	
	T-011	(A) 8.0×10^2 (B) 60	—	C.F	(A) pH 8.5 (B) pH 8.2	(A) 6.0 (B) 0.2	—	—	
	T-012	(A) 7.2×10^2 (B) 46	—	C.F	(A) pH 8.4 (B) pH 9.0	(A) 4.2 (B) 0.17	—	—	
Cs-134-1	b-001	(A) 27 (B) 1.9	—	6.4×10^3 mCi/g·Cs	(A) 0.82N (B) 0.86N	—	—	(A) <10 (B) <10	
Ba-140-1- b-t									
Sm-153-1	c-001	3.7	—	4.0×10^3 mCi/g·Sm	—	—	—	<10	
Tm-170-1	b-001	6.1	—	2.5×10^4 mCi/g·Tm	0.55N	—	—	<10	
	b-002	7.7	—	2.2×10^4 "	0.87N	—	—	<10	
Lu-177-1	c-001	15	—	3.4×10^4 mCi/g·Lu		—	—	<10	
	c-002	18	—	2.8×10^4 "		—	—	<10	
W-185-1	b-002	2.3	74.8 mg/ml	31 mCi/g·W	アルカリ性度 1.5N	—	—	<10	
	b-003	2.5	—	34 mCi/g·W	アルカリ性度 1.1N	—	—	<10	
Hg-197-1- b-t	T-001	2.9×10^2	—	4.1×10^3 mCi/g·Hg	—	—	—	—	
	T-002	95	—	6.4×10^3	—	—	—	—	
	T-101	(A) 1.5×10^2 (B) 14	—	(A) 2.0×10^3 mCi/g·Hg (B) 9.8×10^4 "	—	—	—	—	
Hg-197-1- d-t	T-001	① 1.4×10^2 ② 1.5×10^2 ③ 54	—	2.1×10^2 "	—	—	—	—	

JAERI-M 4785

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
Au-198-1	b-008	1.6 Ci/ml	—	51 Ci/g·Au	1.2 N	—	—	—	
	b-009	1.3 "	—	30 "	1.1 N	—	—	—	
	b-010	1.2 "	—	29 "	1.1 N	—	—	—	
	b-011	1.4 "	—	46 "	1.2 N	—	—	—	
	b-012	1.2 "	—	29 "	1.2 N	—	—	—	
	b-013	(A)1.4 (B)20	—	31 "	(A)0.98N (B)0.81N	—	—	—	
	b-014	9.1×10^2 "	—	28 "	1.0 N	—	—	—	
	b-015	(A)1.2 (B)17	—	23 "	(A)1.2 N (B)0.83N	—	—	—	
	b-016	1.2 "	—	29 "	1.1 N	—	—	—	
	b-017	1.3 "	—	30 "	1.3 N	—	—	—	
	b-018	(A)2.0 (B)28	—	49 "	(A)1.2 N (B)0.83N	—	—	—	
	b-019	1.2 "	—	30 "	1.2 N	—	—	—	
	b-020	1.1 "	—	29 "	1.1 N	—	—	—	
	b-021	1.2 "	—	29 "	1.1 N	—	—	—	
	b-022	(A)1.6 (B)23	—	52 "	(A)0.85N (B)0.80N	—	—	—	
	b-023	1.4 "	—	31 "	0.96N	—	—	—	
	b-024	(A)1.3 (B)18	—	23 "	(A)1.0 N (B)0.77N	—	—	—	
	b-025	1.3 "	—	30 "	0.99N	—	—	—	
	b-026	1.9 "	—	44 "	0.95N	—	—	—	
	b-101	1.7 "	—	56 "	1.1 N	—	—	—	
	b-102	1.3 "	—	30 "	1.0 N	—	—	—	
	b-103	(A)1.3 (B)22	—	32 "	(A)0.92N (B)0.76N	—	—	—	
	b-104	1.1 "	—	27 "	0.99N	—	—	—	
	b-105	1.3 "	—	32 "	0.83N	—	—	—	
	b-106	1.3 "	—	31 "	1.0 N	—	—	—	
	b-107	1.3 "	—	31 "	1.0 N	—	—	—	
	b-108	1.3 "	—	31 "	1.0 N	—	—	—	
	c-001	1.2 "	—	31 "	1.1 N	—	—	—	
	c-002	2.3 "	—	90 "	1.2 N	—	—	—	
	c-003	1.3 "	—	54 "	1.1 N	—	—	—	
	c-004	1.4 "	—	54 "	1.0 N	—	—	—	

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
Au-198-1	c-005	2.1 Ci/ml	—	5.0 Ci/g·Au	1.2 N	—	—	—	
	c-006	1.1 "	—	5.5 "	0.87N	—	—	—	
	c-007	1.5 "	—	3.8 "	1.1 N	—	—	—	
	c-008	1.4 "	—	4.0 "	0.82N	—	—	—	
	c-009	(A) 1.7 " (B) 23mCi/ml	—	3.8 "	(A) 0.99N (B) 0.74N	—	—	—	
	c-110	1.3 "	—	4.2 "	0.93N	—	—	—	
	c-101	1.5 "	—	3.4 "	0.96N	—	—	—	
	c-102	1.6 "	—	3.7 "	1.0 N	—	—	—	
	c-103	(A) 1.6 " (B) 23mCi/ml	—	2.9 "	(A) 1.1 N (B) 0.81N	—	—	—	
	d-001	1.4 Ci/ml	—	3.0 "	1.1 N	—	—	—	
	d-002	1.3 "	—	2.7 "	0.78N	—	—	—	
	d-003	1.1 "	—	2.2 "	1.1 N	—	—	—	
	d-004	(A) 1.4 " (B) 19mCi/ml	—	2.8 "	(A) 1.2 N (B) 0.80N	—	—	—	
	d-005	1.4 Ci/ml	—	3.0 "	1.1 N	—	—	—	
	d-006	1.4 "	—	2.9 "	1.3 N	—	—	—	
	d-007	1.3 "	—	2.6 "	1.0 N	—	—	—	
	d-008	1.8 "	—	3.0 "	1.2 N	—	—	—	
	M-001	1.3 "	—	3.1 "	1.0 N	—	—	—	
Hg-203-1	b-002	13	—	1.3×10^2 mCi/g·Hg	0.72N	—	—	—	
	b-003	12	—	1.0×10^2 "	0.72N	—	—	—	
	b-101	22	—	2.3×10^2 "	1.1 N	—	—	—	

項 目	製 造 番 号	化 学 形	比 放 射 能	放 射 化 学 的 純 度	
C L C - 1	001	K C N	8.6 mCi / mM	ペーパークロマトで試験	
"	002	K ¹⁴ C N	13.5 "		
"	101	K C N	11 "		
C L C - 3	101	CH ₃ OH	10 "		
"	102	CH ₃ OH	8.7 "		
ヘキサブROMベンゼン	001	C ₆ Br ₆ -(U)- ¹⁴ C	4.6 "	> 99%	
Co - ¹⁴ C		CO - ¹⁴ C	50		
項 目	製 造 番 号	個 数	1個当りの平均放射能 (mCi)	標 準 偏 差 (σ) (mCi)	全 量 (mCi)
C N B - 1	0002	48	0.87~0.90 ±10%		4.2×10 mCi
"	"	320	1.0 "		3.2×10 ² "
"	"	168	1.10~1.25 "		1.9×10 ² "
"	"	1	1.08 "		1.0 "
C N B - 3	0001	29	14.6~14.9 "	±0.64 m Ci	4.3×10 ² "
"	"	199	16.6 "		3.3×10 ² "
"	"	11	18.3~19.1 "		2.6×10 ² "
"	"	1	16.1 "		1.6×10 "
"	0002	240	13.4 "		3.2×10 ³ "
C N B - 4	0001	21	29.6~30.4 "		6.6×10 ² "
"	"	186	33.8 "		6.3×10 ³ "
"	"	32	37.2~39.1 "		1.2×10 ³ "
"	"	1	33.9 "		3.4×10 "
"	0002	200	20.0 "		4.0×10 ³ "
"	"	40	22.0~23.8 "		9.2×10 ² "
I P B - 1	0001	150	16.0 Ci / ケ	0.3 Ci	2.4×10 ³ Ci
"	"	1	16.2 "		1.6×10 "
"	0002	160	15.7 "	0.46 Ci	2.5×10 ³ "
"	"	1	16.0 "		16 "
"	0003	154	14.7 "	0.5 Ci	2.3×10 ³ "
I P B - 1 - M - t	T-0001	190	10.5 "	0.5 Ci	2.0×10 ³ "
I P C - 1	0001	10	15.4 "	0.2 Ci	1.5×10 ² "
"	0002	10	15.7 "	0.5 Ci	157 "
"	0003	7	15 "		1.1×10 ² "
"	0001	3	10.5		31.5 "

3. 研究・開発の成果

3.1 RI 製造技術の開発

昭和45年度にあっては、前年度において緊急課題として取り上げられた二酸化テルルターゲットからの ^{131}I 蒸留法と金コロイド製造法の完成に力を注ぎ、この二つの技術を完成した。

特に二酸化テルルからの ^{131}I 蒸留法の開発では、短期間に、しかも限られた条件下での検討を実施し、従来のテルル酸ターゲットから二酸化テルルターゲットへの切換えに成功し、JRR-2、JRR-3およびJMTRのいずれの炉の如何なる場所でも照射する態勢を作り上げることができた。また、ターゲットの切換えと平行して製品の放射能濃度の向上にも努力し成功した。この緊急課題は、大量の ^{131}I の安定供給を前提として実施したものであるが、需要者側との契約が不調に終わったため、定常生産体制に移行するに至らず、実能力の数分の一程度の生産規模で現在定常稼動中である。

金コロイドその他の技術開発の成果については次項以下に詳述してある。

3.1.1 ^{198}Au コロイドの製造法

^{193}Au コロイドの製造方法については開発期間が短期間に限定されていたために、第1期としてはCEAの製造方法をトレースして製造法に見込をつけ、第2期ではこれに改良を加える方針にもとづき44年11月より ^{193}Au コロイドの作製と関連事項の調査に着手した。その結果、45年度後半には一応の目標に達し、現在なお、品質向上のための開発を続けている。

(1) 製造法

2段階法から成り、第1段階ではAuコロイドの核(Seed: $40 \sim 50 \text{ \AA}$)を作成し、第2段階ではこのSeedを還元剤中で熟成させ、最終製品($300 \text{ \AA} \pm 100 \text{ \AA}$)とする方法であるが、この工程第2段階の操作についてFig. 3-1に示してある。

(2) 製造装置

装置の主要部分としては3つに区分される。第1としては溶解槽(b)、第2には濾過・滴下(d)、第3としては、還元槽(e)となり、各々の装置がAuコロイド作製工程中のポイントとなっている。この製造装置の概略図をFig. 3-2に示してある。この装置はこれに付属装置が付いているが主要部分は本図と同じである。

(3) Auコロイドの作製結果

製造開発の初期では先に示してある製造法(Fig. 3-1)と製造装置(Fig. 3-2)を使いコロイドの作製を継続した。当初にみられた作成中の凝固、粒径の不均一などは、予備実験を重ねることにより一応解決したが現在まで、なお粒径熟成条件の諸因子の相関性については把めていない。しかし粒径熟成の因子と考えるものについては定性的ではあるが分ったものもある。それは還元中の温度を 80°C にあげ自動攪拌することによって粒径が均一化し、熟成することが確認されており現在この方法を採用している。また、試薬(ゼラチンなど)の純度を高めることにより凝固がなくなり均一な製品となっている。また、Seedの添加量を変えることにより自在に粒径を変化させられることも実験で確認してある。しかし標準製造方法では粒径が目標の($300 \text{ \AA} \pm 100 \text{ \AA}$)には至らず小粒径($200 \text{ \AA} \pm 100 \text{ \AA}$)の製造しかえられていない、これを

確認するために、市販されている¹⁹⁸Auコロイド製品数動について粒径を計測したところ、小粒径(200Å±100Å)であり、カタログ表示と異ることが分った。しかし、電子顕微鏡による観察倍率の誤差があることも考えられ、上記結果からのみで小粒径の製品でよいとは考えていない。

(4) 医薬用原料としての製品化について

一般に医薬製品を頒布する場合は日本薬品方で定められている規格として3項目があげられる。

- a. バイロジェンフリー
- b. 滅菌処理
- c. 等張溶液

これに使用する原料としてのRIを製造する場合には、上記の3項目についての注意が必要となる。

これらについては製造に際して処方通りの操作をおこない、最終製品については、上記a, bについて東京都立衛生研究所に検査を依頼し、各バッチ製品についても合格している保証をうけている。また、滅菌処理(b)後の粒径への影響について電子顕微鏡により確認したところ、大きな変化はなかった。さらに使用する各試薬も一般試薬と薬局方検定済試薬のいずれでも有意な差が生じない様な製品を作製することができるとなった。この結果、薬局方の規格に入る状態での原料製品として頒布できることが技術的に確認された。

(5) 電子顕微鏡による観察と粒径の計測

電子顕微鏡によるAuコロイドの観察は比較的簡単にできるが、拡大像から粒径を直接計測することにより粒度分布を求めて製品の粒径を決める場合、観察倍率、拡大倍率、計測などの誤差が導入されるため真の粒径を決めることが難しい。

(6) まとめ

CEAのトレースから初め、現在では原研方式を確立するに至り、その製品仕様はTable 3-1に示し、製品の組成についてはTable 3-2に示してある。CEAと明らかな差がでてい項目としては粒径の表示を先に記述した理由でさげである。この点については今後も継続して解析する必要があるとされている。電子顕微鏡により観察したAuコロイド粒子の分布状態をPhoto 3-1に示してある。

3.1.2 ¹³¹I乾留法におけるターゲット物質

昭和43年度報(JAERI-5023)に、テルル酸・ポリメタテルル酸・三酸化テルルを用いて¹³¹Iの乾留を行なうと約400°Cで急速な¹³¹Iの放出が始まることを報告した。同年報に示したテルル酸の熱分解曲線(温度-重量変化)を詳細に検討すると、テルル酸から熱分解で三酸化テルルになり、これはさらに450°Cで分解して二酸化テルルに到るが、この間に安定な中間酸化物の存在が認められる。この酸化物の組成は、GMELIN'S HANDBUCH DER ANORGANISCHEN CHEMIEに記載されているTe₃O₇(またはTeO₂・2TeO₃)に相当する。この中間酸化物は約550°Cまで安定で、この温度以上で二酸化テルルと酸素に分解する。先の三種の化合物より耐熱性が高く、且つ分解に際して速やかに¹³¹Iを放出することが期待されたので、乾留法による¹³¹I製造用のターゲット物質として利用することを試みた。

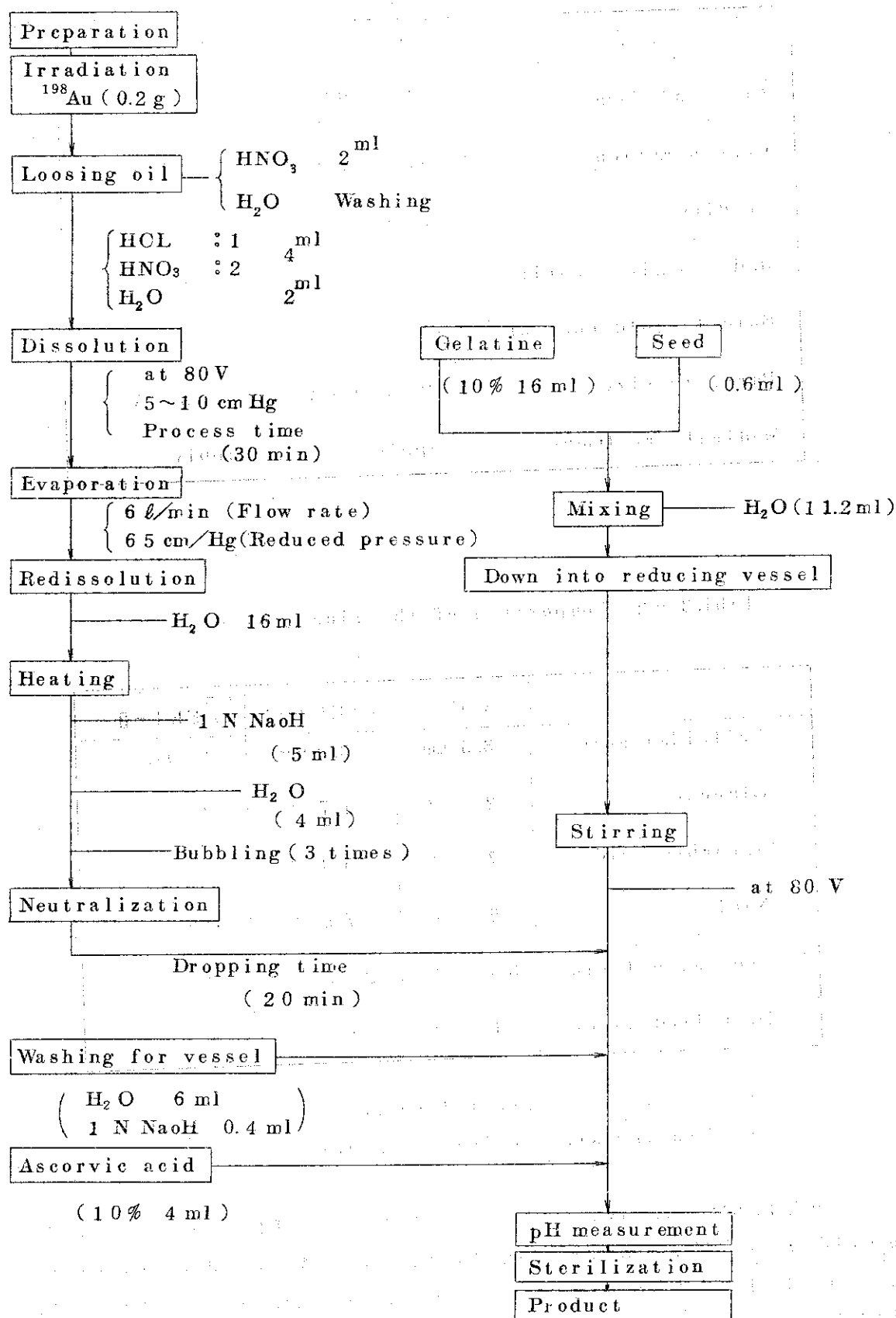


Fig.3-1 Flowsheet for the production of colloidal gold

Table.3-1 Specification of the colloidal ^{198}Au

	CEA	JAERI
Chemical form	Colloidal gold ^{198}Au	"
Concentration	$\sim 30 \text{ mci/ml}$	"
Acidity	$\text{pH} 5 \sim 7$	"
Radiochemical purity	$> 99.9\%$	$> 99\%$
Soluble gold content	$< 2\%$	$< 2\%$
Particle size	$300\text{\AA} \pm 100\text{\AA}$	$\sim 250\text{\AA}$
Medical treatment	apply	apply

Tabl.3-2 Composition of the final solution

	CEA	* JAERI-[I]	** JAERI-[II]
Colloidal gold	3.5 mg	3.2 mg	" mg
Glucose	2 "	1.7 "	"
Ascorbic acid	7 "	6.4 "	"
Nacl	5 "	7.5 "	8.8
Medical gelatine	30 "	25.3 "	"
Distilled water	1 "	1 "	"

* Treating with general reagents

** Treating with medical reagents

テルル酸を 450°C でほぼ恒量になるまで加熱した。こうして得られた物質は実際には $\text{Te}_2 \cdot 3.5\text{TeO}_3$ ないし $\text{TeO}_2 \cdot 4.5\text{TeO}_2$ の組成で一定しなかった。この 0.5 g を JRR-2 または JRR-3 で $1 \text{ サイクル } 10^{12} - 10^{13}$ の中性子束で照射した後 $400^\circ\text{C} - 600^\circ\text{C}$ の間で 2 時間乾留し、温度と ^{131}I 放出率の関係を求めた。結果を Fig. 3-3-a に、既に得られていポリメタテルル酸・三酸化テルルの結果とあわせて示した。約 500°C から ^{131}I の放出が始

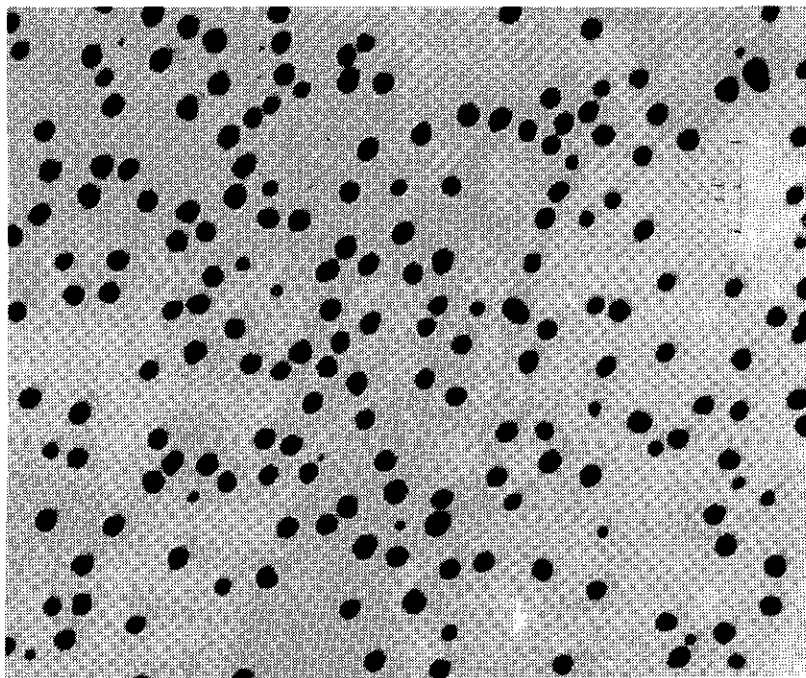


Photo.3-1 Electron micrograph of colloidal gold.
(GroSS-magnification $\times 200,000$)

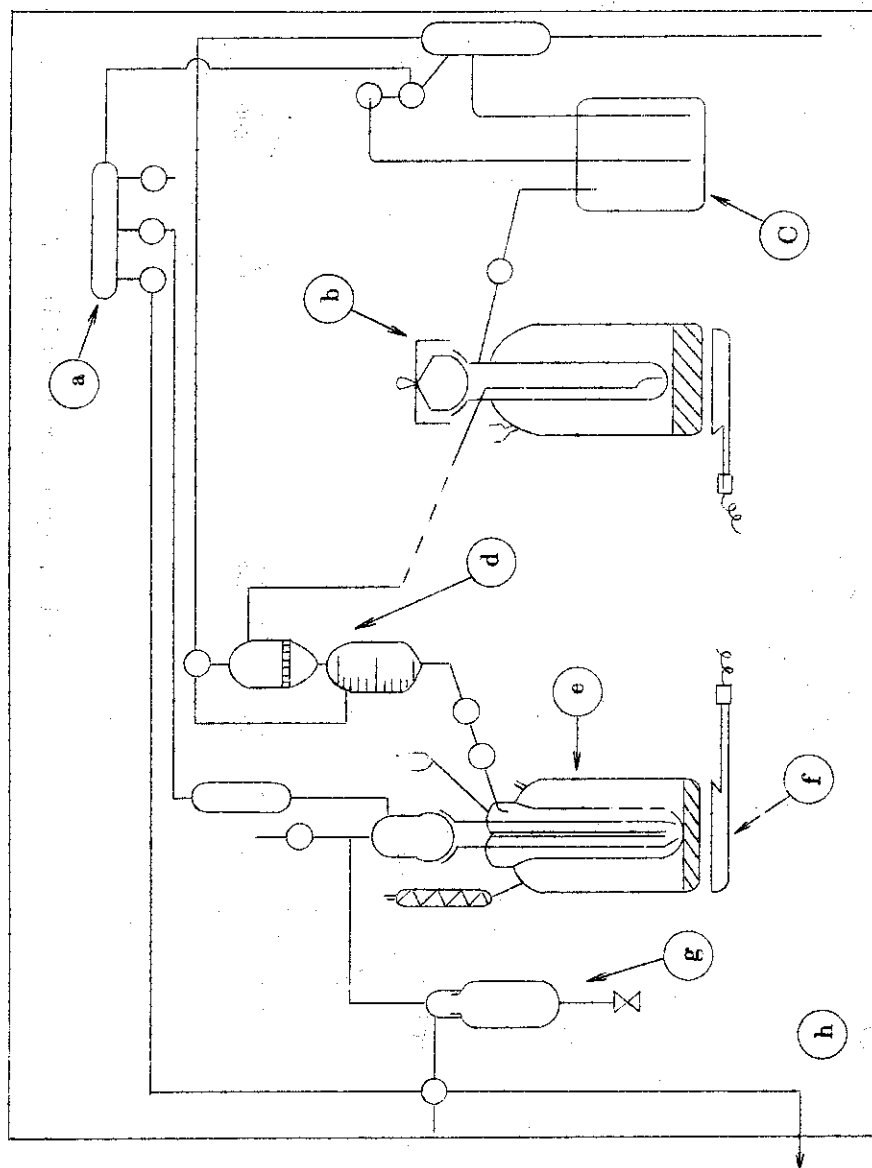


Fig.3-2 Apparatus for the production of colloidal ^{198}Au .

- a : Vacuum-tube
- b : Evaporator
- c : Reservoir for the exhaust gas and solution
- d : Transfer Vessel with glass-felt
- e : Reducing Vessel
- f : Quartz heater
- g : Stock, bottle for final products
- h : Connection to Vacuum-pump in front of cell
- o : Two or three way stop cocks

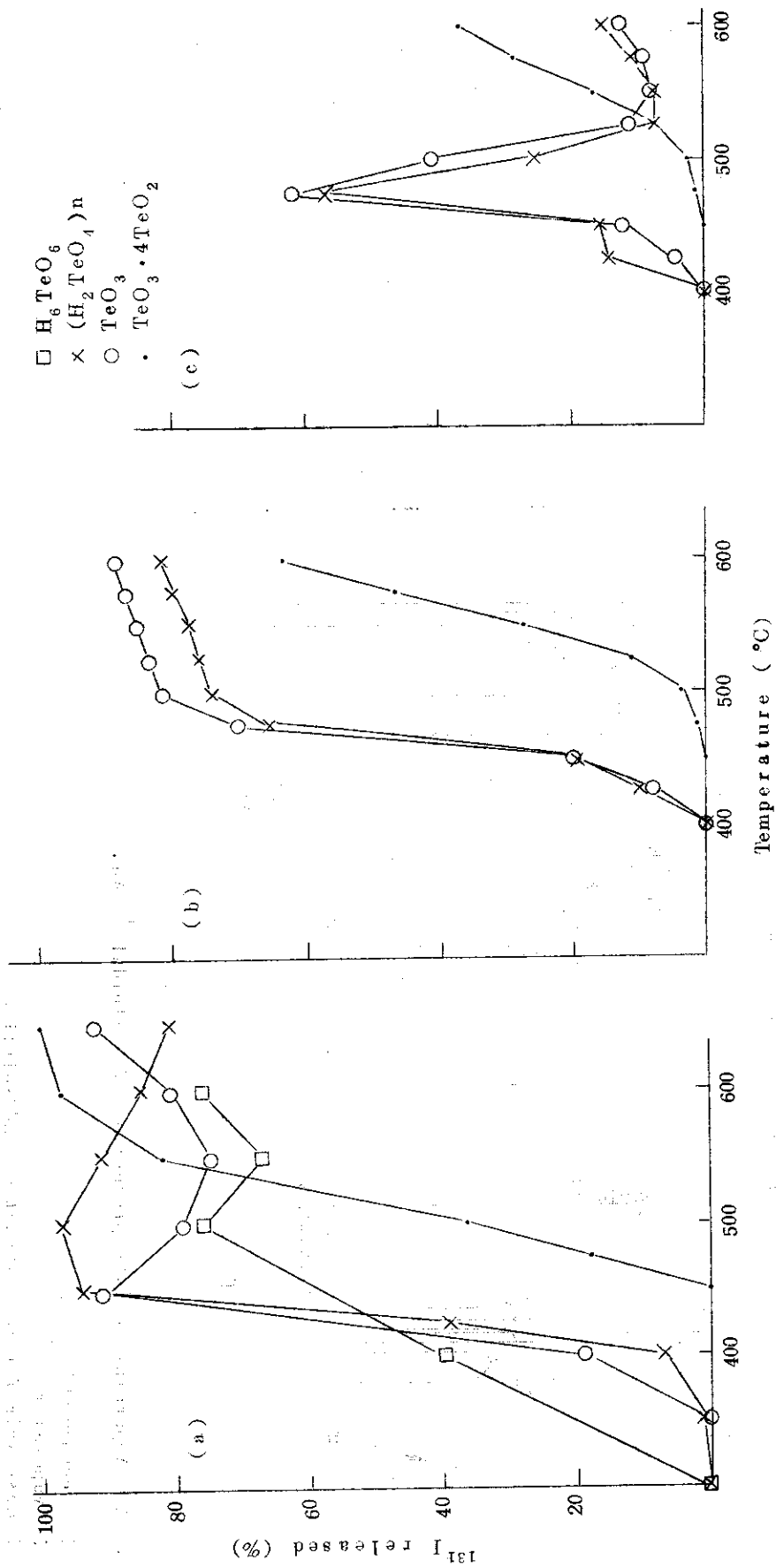


Fig. 3-3 Proportion of ^{131}I released vs temperature

まり650°Cでは100%放出された。つぎに照射した酸化物の少量を乾留管に入れ、400°Cから6分間隔で25°Cずつ600°Cまで昇温し、この間乾留管に接して置かれたシンチレーション検出器により ^{131}I の放出の状況を記録した。実験後の全放出率を各温度に分配するとFig. 3-3-bが得られる。比較のためにポリメタテル酸・三酸化テルルの結果も示した。温度 t °Cで放出された ^{131}I の割合をその温度の最初に存在した ^{131}I の割合で割った値を温度に対してプロットするとFig. 3-3-cが得られる。400°C以下でも熱分解するテル酸・ポリメタテル酸でも400°Cまで ^{131}I の放出が無いことは、この放出が単にターゲット物質の分解・結晶形の変化といった物理的原因で放出されるのではなく、たとえばテルヨー化物のような400°Cまでは安定な化合物の存在が考えられる。テル酸・ポリメタテル酸・三酸化テルルは、X線回折により特定の結晶構造を持たないが、中間酸化物は二酸化テルルとは異なる結晶形を示す。Fig. 3-3-cに見られるようにポリメタテル酸、三酸化テルルの ^{131}I 放出曲線は二段階の放出機構の存在を示し、中間酸化物では前二者の後の放出の段階に相当して ^{131}I が放出され、これはおそらく中間酸化物から二酸化テルルに移行する分解・結晶形の変化に伴って ^{131}I が遊離すると考えられる。

ここに用いられた中間酸化物は、二酸化テルルの場合のようにテルルの揮発の恐れなしに、600~650°Cでほとんど定量的に ^{131}I を回収することができる。0.5%水酸化ナトリウムに吸収させた場合にほとんど100%がヨー化物の形であることが確認された。耐熱性は二酸化テルルには及ばないが、先に報告した三酸化テルルよりは優れている。

3.1.3 ^{14}C 製造法

^{14}C 製造用のターゲットには、粉末の窒化アルミニウムに10%のアルミニウム粉末を加え加圧成形して得たペレットをさらに1000°Cで焼結したものを用いることになっている。粉末・加圧成形および加圧成形後焼結したペレットからの ^{14}C の放出については既に44年度報(JAERI-memo 4285)に報告したが、この際粉末に次いで加圧成形後焼結したペレットからの収率が良かった。

粉末を加圧成形することにより密度・熱伝導度を高め、さらに焼結して硬度を高めると照射およびその後のターゲットの取扱いが容易になる。他方多量のターゲットを準備することは非常に手数のかかる欠点がある。このようなターゲット調製の手間を省くために、加圧操作を省略した焼結によるターゲットを成形する技術を開発し、試験的には好結果を得た。この方法では、粉末窒化アルミニウム15gとアルミニウム粉末3gの混合物を直径1.5cmの磁製タンマン管につめ、真空容器中で雰囲気窒素で置換した後電気炉で窒素気流中で30分1000°Cに保って焼結する。タンマン管を注意してこわし、成形物を取り出す。

Table 3-3に、この新しい成形法で得られた窒化アルミニウムターゲットに関する種々の試験結果を他の形状のターゲットと比較して示した。密度が粉末と加圧成形ターゲットの中間であり、照射に対して熱伝導・炉内占有率の点で不利益があるが、ターゲット調製の手数は加圧成形-焼結の作業に比較してずっと少なくて済む。この方法が実用化されるためには、磁製タンマン管に代る適当な成形用の型を開発する必要がある。

Table 3-3に種々の形状のターゲットについてBET法により求められた表面積を示す。興味ある事実として、粉末窒化アルミニウムを窒素気流中で1000°Cに加熱すると表面積が

著るしく増加することが認められた。粉末を加圧成形することにより表面積は約 $\frac{1}{2}$ になり同時に同じ条件で ^{14}C の収率も低下する。しかし加圧成形後の焼結により元の表面積を回復し、 ^{14}C 収率も高くなる。焼結成形したものは粉末より密度が高いが、か焼した粉末と同程度の ^{14}C の収率を示している。

Table 3-3. Surface area of different forms of ALN target and yield of ^{14}C

Form of ALN target	Yield of ^{14}C (%)	Surface area (m^2/g)	Density (g/cm^3)	Remarks
Powder	89 ± 7	(1) 1.89 (2) 7.72	1.2	(2) Powder calcined at 1000 °C under N_2
Pellet-I	46 ± 2	0.892	2.0	Formed under pressure
Pellet-II	62 ± 3	(1) 3.18 (2) 6.78	2.0	Pellet-I calcined at 1000 °C under N_2
Pellet-III	100 ± 2	7.02	1.7	Formed by heating at 1000 °C under N_2

44年度報に示したように、照射した窒化アルミニウムからの ^{14}C の収率とターゲット中の炭素の収率に差が認められた。この現象をうまく利用すればそれだけ ^{14}C の比放射能を高くすることができる。このために照射した窒化アルミニウムから ^{14}C の分離条件の設定が一とおり終わった後で、照射窒化アルミニウム中における ^{14}C の存在状態と、ターゲットからの ^{14}C の放出機構の解明のための研究を始めた。

45年度には同年3月より10月末まで製造課員が製造技術課に出向し、 ^{14}C 製造技術の引継ぎを行ない、ここで纏められた資料をもとにして、製造課により ^{14}C 製造施設と装置が設計され、310室に建設された。

3.2 特殊 R I 製造技術の開発

フタロシアニン銅による高比放射能 ^{64}Cu の製造は完全に定常製造に移行されているが、フタロシアニン錯塩の照射にたいする著しい安定性に着目して類似のフタロシアニン錯塩につきチラルドチャルマー効果を応用した有用な高比放射能 R I 製造法の確立を進めている。本研究の一環として高比放射能 ^{65}Zn 製造法の実施に必要な放射能化学分離試験結果が得られたのでこれを報告する。

一方高比放射能 ^{51}Cr については製造方式が一応確立されたが、安定供給技術の確立になお若干の問題を残している。この面でとくに JRR-2 を利用してチラルドチャルマー効果による高比放射能 ^{51}Cr の製造を実施するさいの収率や品質の定常性に大きな影響を与えると考えられる照射温度に関する検討を開始したので、これらの結果につき報告する。

3.2.1 フタロシアニン亜鉛のチラルドチャルマー効果による高比放射能 ^{65}Zn の調製

チラルドチャルマー法を利用する定常的な R I 製造の問題点は高い収率で、高比放射能の製品を得ようとするところにある。 ^{65}Zn は半減期が 245 日と長く ^{64}Zn の核反応断面積が小さいため、ミリキュリーレベルの製造には高い中性子束でしかも長時間照射することが必要である。このような条件のときにチラルドチャルマー法を利用しようとする、短時間、低中性子束の照射結果で、たとえリテンションが低く、高い収率が期待されても、再結合反応による収率の低下や放射線によるターゲット物質の分解により比放射能の低下が避けられない。フタロシアニン亜鉛のチラルドチャルマー効果に関しては、Payne, Cook らの報告があるが定常製造をおこなうには検討課題が数多く残されている。ワンバッチあたり数ミリキュリーの高比放射能 ^{65}Zn の調製を目的として、高い中性子束で長時間照射したフタロシアニン亜鉛について、 ^{65}Zn の分離法を検討した。ターゲット物質として、 α 型フタロシアニン亜鉛を用いた。これはフタロジニトリルと亜鉛粉末の混合物から合成し、濃硫酸と水酸化カリウム溶液で精製したものである。X 線回折により結晶形を確認すると同時に、濃硫酸と過塩素酸で分解し、EDTA による滴定で亜鉛の含量を求め、生成物がフタロシアニン亜鉛であることを確めた。

中性子照射は JRR-2 の VT 孔、JRR-3 の VR 孔でそれぞれ 280 時間行なった。熱中性子束は最大 $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{e} \cdot \text{c}$ であった。分離法として濃硫酸溶解法と希薄な鉍酸による溶出法を比較検討した。濃硫酸溶解法の概要を Fig. 3-4 に示した。この方法は既にフタロシアニン銅からの ^{64}Cu の製造法として遠隔操作法が確立されているものと類似のものである。ただし亜鉛の場合には、 $\text{Zn}(\text{OH})_2$ の沈殿生成時の pH が比較的狭い範囲 (9~11) である点に注意することが必要であった。酸溶出法の概要を Fig. 3-5 に示した。溶出時間は 5 分以上であれば収率が一定となるのですべて 30 分とした。溶液および沈殿中の ^{65}Zn の放射能は γ 線スペクトロメーターにより測定し、放射能収率を求めた。また溶液中の亜鉛はジチゾン-四塩化炭素溶液を用い吸光光度法で定量し、亜鉛の溶出率、比放射能を求めた。中性子照射したフタロシアニン亜鉛について、濃硫酸溶解法で ^{65}Zn を分離した結果、JRR-2 の VT 孔照射、JRR-3 の VR 孔照射のいずれの場合も、リテンションは 10% 以下、収率は 70~90% であった。これは Yang らが報告している短時間照射の結果と一致している。一方酸溶出法では、 ^{65}Zn の収率、比放射能への酸濃度と溶出時の温度の影響を検討した。4 N 塩酸の場合、濃縮係数約 1.0 を示した。また溶出時の温度を上昇させると比放射能は減少した。濃硫酸溶解法と酸溶出

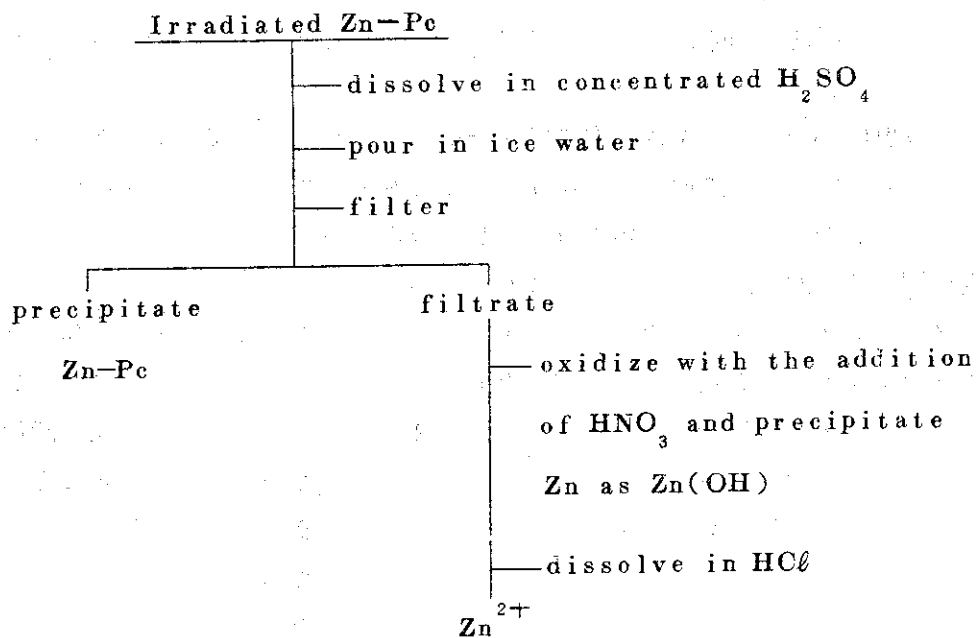
Dissolution method with concentrated H_2SO_4 

Fig. 3-4 Chemical separation procedure - 1

Extraction method (leaching with mineral acid)

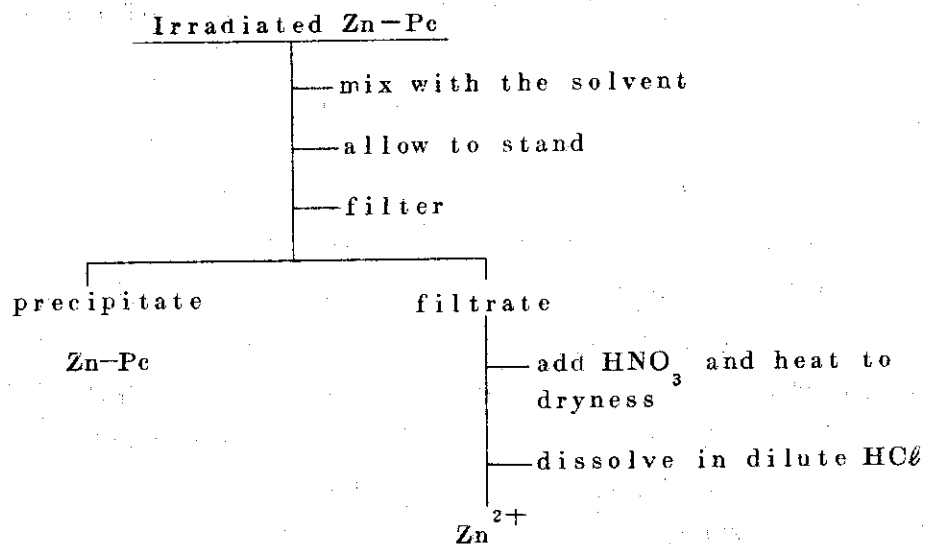


Fig. 3-5 Chemical separation procedure - 2

法による分離結果を Table 3-4 に示した。比放射能は 4 N 塩酸による溶出法がいくぶん高い値を示した。また VR 孔によるものは亜鉛の溶出率が非常に大きい、実験ごとの変動が大きく、この原因を明らかにするには至っていない。

以上の結果から、チラルドチャルマー法による ^{65}Zn の調製は、非放射性亜鉛の溶出率が銅の場合とくらべて大きく、今後この原因を究明すると同時に、ターゲット、および照射条件、化学的処理条件を検討することによってどの程度比放射能の向上が期待されるかを検討する必要がある。

3.2.2 クロム酸カリウムのチラルドチャルマー効果における照射効果

—アルミニウムスペーサーの利用試験—

原子炉照射を行なったとき、試料が受けた放射線に関する知見は、たとえば目的物の生成量、試料と同時に照射した箔の放射能などから求められ、すでにコバルト箔、ニッケル箔の照射による中性子束の測定が実施されている。ところが、チラルドチャルマー効果のような化学的な効果を問題にしようとする場合には、線量、発熱量や、これらが原因となって起った照射中の試料温度上昇に関する知見も重要な指標となるであろうと予測される。しかしチラルドチャルマー効果に関連してこれらの影響を定量的に論じたものはなかった。

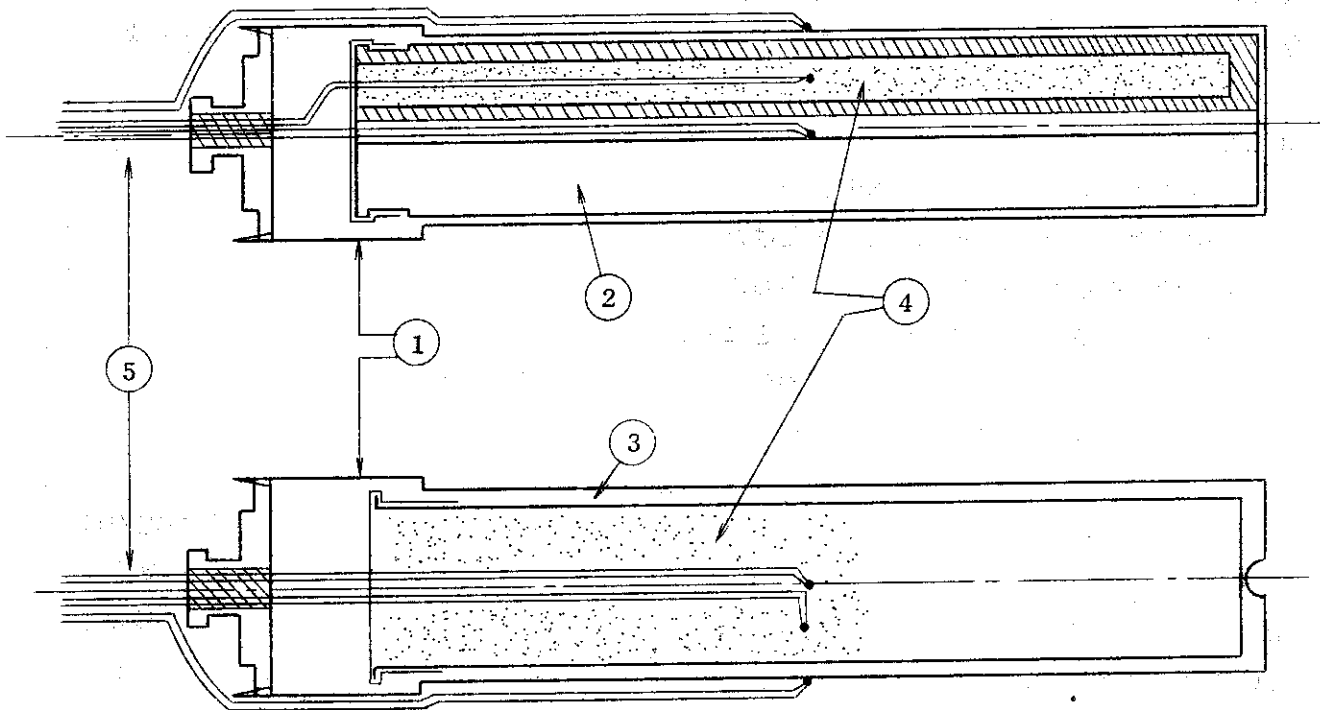
クロム酸カリウムのチラルドチャルマー効果において JRR-4 を利用し、照射中に熱電対による測定を行ないこの結果を照射後の箔による中性子束の測定値、チラルドチャルマー効果の結果と対比させることによって、照射温度がチラルドチャルマー効果にたいし明らかに影響していることを実証し、高比放射能 ^{51}Cr の製造目的にアルミニウムスペーサーが有効に働くことを認めることができた。

JRR-4 の 2.5 MW 運転時に Fig. 3-6 のような照射カプセルを T パイプに挿入して 1 時間の照射を行なう。熱電対は 0.32 mm の銅コンスタンタンを用い、熱起電力を横河電機製電圧計により記録した。えられた結果を Table 3-5 に示した。ここで T, C, C はカプセルの中心部におかれた熱電対の定常状態における指示温度を示す。リテンションはランタン共沈法によって求め、 ^{51}Cr の定量には校正したイオン電離箱を、クロムの定量には比色法を用いた。

この結果から N 型のカプセルでは、カプセル内部が加熱されこれが原因となって ^{51}Cr の収量の減少とリテンションの増加をもたらしていること、R 型では試料温度はアルミニウムの場合と同程度であることが分った。この結果を中性子束と対比すると N 型と R 型の照射における有意の差は認められず、クロム酸カリウムのチラルドチャルマー効果の相異は温度の相異にもとづいたものであると結論できる。

Table. 3-6 に JRR-2, VT-2 孔の軽水浸漬照射孔で行なった ^{51}Cr の製造結果を示したが、この差の原因も明らかに照射温度の差にもとづくものと考えてよい。

R-Type



N-Type

- ① Al - outer capsule
- ② Al - spacer
- ③ Al - inner capsule
- ④ Target (K_2CrO_4)
- ⑤ thermo-couple

Fig.3-6 Set up of irradiation assembly(aluminum capsule)
for measuring temperature.

Table. 3-4 Results on the preparation of ^{65}Zn and ^{64}Cu in the Szilard-Chalmers effect of phthalocyanines

Target	Treated with	Neutron Irradiations Reactor-Hole	Total Neutrons n/cm^2	Specific Activity Ci/g. Me	Percentages of the Decomposed Zinc or Copper
Zinc-Phthalocyanine	Conc. H_2SO_4	JRR-2 VT-4	1.6×10^{19}	0.77	5.2
Zinc-Phthalocyanine	4N H_2SO_4	JRR-2 VT-4	1.6×10^{19}	0.96	3.6
Zinc-Phthalocyanine	Conc. H_2SO_4	JRR-3 VR	4.1×10^{18}	0.039	2.3
Copper-Phthalocyanine	Conc. H_2SO_4	JRR-2 VT-4	1.6×10^{19}	3500	1.3
Copper-Phthalocyanine	Conc. H_2SO_4	JRR-3 VR	1.9×10^{18}	2100	0.48

Table. 3-5 The results on the Szilard-Chalmers effect
of K_2CrO_4 in T pipe irradiation of JRR-4

	T.C.C °C	Thermal Neutron Flux n./cm ² . s.	Fast Neutron Flux n./cm ² . s.	Retention %	⁵¹ Cr Yield mCi/g K_2CrO_4	Specific Activity Ci/g. Cr
A 1	66	—	—	—	—	—
N-1	170	2.8×10^{13}	3.5×10^{12}	91	0.10	19
N-2	170	2.0×10^{13}	3.5×10^{12}	91	0.10	20
R-1	63	3.5×10^{13}	4.3×10^{12}	87	0.19	23
R-2	61	2.9×10^{13}	3.9×10^{12}	83	0.21	27

Table. 3-6 Results on the ⁵¹Cr production in VT-2 hole JRR-2
by the use of normal and improved capsules

Capsules	Thermal Neutron Flux n./cm ² . s.	Total Neutrons n./cm ²	Specific Activity Ci/g Cr	⁵¹ Cr Yield mCi/g K_2CrO_4
N - Type	2.0×10^{13}	2.1×10^{19}	5.1 ± 24	3.3 ± 1.6
R-Type 1	2.0×10^{13}	8.9×10^{18}	180	3.8
R-Type 2	1.5×10^{13}	7.1×10^{18}	190	2.0
R-Type 3	1.5×10^{13}	1.6×10^{19}	140	—

3.3 有機標識化合物製造技術の開発

44年度までに完成させたマイクロ規模の高圧接触反応は安全性を最重点項目として検討した技術であり、この関係の技術の基本形となるものであった。44年度以降は、この基本技術を具体的な反応例を通じて展開し、多様な経験の蓄積を積極的に進めることを重点目標とした。アセチレン、一酸化炭素の反応、およびベンゼン誘導体の合成が45年度の技術開発の中心になることでは前年度と変わらないが、係として頒布の実績をあげることに徹したことが異なる点である。したがって、継続中の技術開発作業に優先して、特殊サービスや技術協力を積極的にすすめた。

アセチレン-1,2- ^{14}C の反応のうち、プロパギルアルコール-2,3- ^{14}C 、ブチン-1,4-ジオール-2,3- ^{14}C 、アクリロニトリル-1- ^{14}C 、アクリルアミド-1- ^{14}C の合成に関する基本条件の検討を終え、45年度にはそのホットランを行なった。特にアクリルアミド-1- ^{14}C の製造技術の確立が急がれたので、得られた試料について試験依頼をおこなった。その結果は非常に良好であった。

外部から強い要望のあった品種は、一酸化炭素- ^{14}C エチレン-1,2- ^{14}C 、アニリン-U- ^{14}C 、モノクロルベンゼン-U- ^{14}C 、フェノール-U- ^{14}C 、ヘキサブROMベンゼン-U- ^{14}C 、などであったが、結局45年度中に技術的検討をすすめ、試験依頼または特殊サービスを行なったものは、一酸化炭素- ^{14}C 、エチレン-1,2- ^{14}C 、ヘキサブROMベンゼン-U- ^{14}C の三種類である。これらは、すでに得られた技術を比較的容易に適用できる例であったが、この種の技術開発は限られた時間内で行なわれる点に大きな特色がある。合成に手数のかかる標識化合物を短時間で確実に合成することは、非常に厳しい条件である。これを解決するには、合成経路の短縮と効果的な精製技術の開発が必要である。

上記三種類以外の品種については、技術以外の問題が関係するので、頒布サービスに結びつくに至らなかったが、芳香族化合物に対する要望の強さからみて、今後の技術開発計画にとって参考となった。

分析・測定技術の開発については、“ラジオ・ガスクロマトグラフ装置による標識化合物の分離・定量”にひきつづき、“標準物質の合成と純度の研究”なるテーマのもとに東京大学理学部・島村研究室と協力研究をすすめることになった。これは、標識化合物の放射能測定精度を高める目的で、液体シンチレーションカウンター用の内部標準線源物質を開発する研究である。45年度、標準物質としてトリフェルメタン-king- ^{14}C を合成し、その精製方法などの検討を行ない、有益な情報が得られた。

3.3.1 アクリロニトリル-1- ^{14}C 、アクリルアミド-1- ^{14}C の合成

44年度に装置・操作法・反応条件等の検討が終了した。45年度には、これらの方法によりホットランを行ない、製造技術として確立させた。ホットランを通じて一部分の改良がなされ、最終的に主要条件は次の如くなった。

1 m mole 規模でのアクリロニトリル-1- ^{14}C の合成

反応容器 容量 5 ml, パイレックスガラス封管

反応物質 アセチレン 1 ~ 1.2 m mole

シアン化カリウム ^{14}C , 1 m mole

反応圧 約 5 kg/cm^2

反応温度 100°C

反応時間 1 hr.

精製 分取用ガスクロマトグラフ装置による。

以上の操作により、アクリロニトリル- $1-^{14}\text{C}$ の収率はシアン化カリウム- ^{14}C の量に対し40%
1 mmole 規模でのアクリルアミド- $1-^{14}\text{C}$ の合成

反応容器 容量2mlのバイレックスガラス封管

反応物質 アクリロニトリル- $1-^{14}\text{C}$ 1容

加水分解用硫酸溶液 2容

硫酸溶液の組成 硫酸 89.5%

水 10%

硫酸銅 0.5%

反応温度 $65\sim75^\circ\text{C}$

反応時間 90 min

中和液 アンモニア水

精製 $10^{-1}\sim10^{-2} \text{ mmHg.}$, 100°C で昇華

以上の反応の結果アクリルアミド- $1-^{14}\text{C}$ の収率はアクリロニトリル- $1-^{14}\text{C}$ に対して7.0~7.5%。製品の放射化学的純度はペーパークロマトグラフによって検定し、十分満足できるものであった。このものを試験依頼した結果も非常に良好であった。

3.3.2 特殊サービスに関する合成

ヘキサブロムベンゼン- $\text{U}-^{14}\text{C}$ 、一酸化炭素- ^{14}C 、エチレン- $1,2-^{14}\text{C}$ の合成—

(1) ヘキサブロムベンゼン- $\text{U}-^{14}\text{C}$

H. Hahnの発明になる特許の方法を参考にしてヘキサブロムベンゼン- $\text{U}-^{14}\text{C}$ の合成方法の検討を行なった。この方法は1 mmole 規模の合成法であるため、同じ操作方法是適用できず、マイクロ封管反応を用いる方法に改めた。反応容器は分離精製を容易にし、同時にこれらの操作を安全に行なうためFig. 3-7に示す特殊な封管を利用した。

反応は、鉄粉、沃素を触媒とし、三酸化硫黄を約30%含む濃硫酸を溶媒として用いて行なり。これらの混合物を十分混合してから、電気炉により2時間、 100°C に加熱する。封管内はいくぶん加圧状態となっている。折出する生成物を封管内の圧を利用して汙過し、十分水洗してから、再結晶法によって精製する。得られたヘキサブロムベンゼン- $\text{U}-^{14}\text{C}$ はベンゼン- $\text{U}-^{14}\text{C}$ に対して約50%であった。比放射能は 4.6 nC/mM で十分高い値を示した。

(2) 一酸化炭素- ^{14}C の合成

一酸化炭素による動物体の慢性中毒現象の研究に必要な放射性一酸化炭素の供給を依頼され、同時にこのものの取扱い技術について協力を求められた。すでに一酸化炭素の合成技術についてはある程度検討されていたが、上記の目的には比放射能の高い試料が必要であるため、特に少ない量の合成についても検討することにした。

二酸化炭素- ^{14}C を金属亜鉛で還元すると定量的に一酸化炭素- ^{14}C になる。通常の合成は1 mmole 程度の規模で行なうが、 50 nC/mM の比放射能のものを得るには、0.1 mmole 規模で操

作する必要がある。しかし装置の容量を無限に小さくできないため、二酸化炭素- ^{14}C をヘリウムで希釈して反応を行なった。結果としては成功であったが混合したヘリウムを除去できないので、常に利用できる方法ではない。

これらの経験を通じて、装置、および取扱いに関する貴重な経験を得た。また、この試料の使用に際しては、実験装置の設計、測定方法について技術協力を行なった。(Fig. 3-8)

(3) エチレン- $1,2-^{14}\text{C}$ の合成

エチレン- $1,2-^{14}\text{C}$ はアセチレン- $1,2-^{14}\text{C}$ の選択的水素添加により合成できる。水素化の触媒としてはパラジウムが最も効果的である。ただしこの反応は副反応をともしない、エタンの副生はさけられない。エチレンの収率を高める最適条件を求めるための検討を行なった。結局ヘリウムで希釈したアセチレン- $1,2-^{14}\text{C}$ をおだやかな条件下で還元し、分取用のガスクロマトグラフ装置で精製することにより、高純度のエチレン- $1,2-^{14}\text{C}$ を得ることに成功した。しかし、途中操作に技術的な問題があり、エチレン- $1,2-^{12}\text{C}$ の収率は予想より低かった。今後さらに検討の必要がある。

上記三種の標識化合物は、計画・検討・製造を短期間で行なったため、方法の細部については検討不十分な点があり、一応の目的を達した後追加検討を行ない、合成技術として確立させる。(Fig. 3-9)

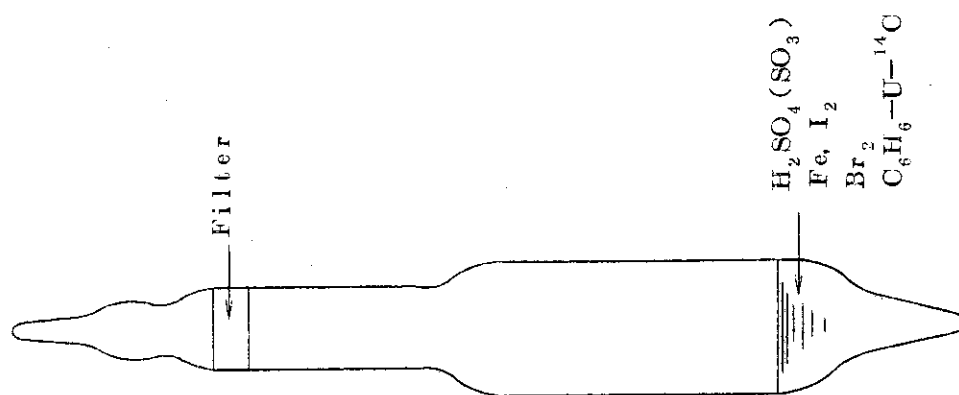


Fig. 3-7 Reaction tube for the preparation of hexabromobenzene -U- ^{14}C .

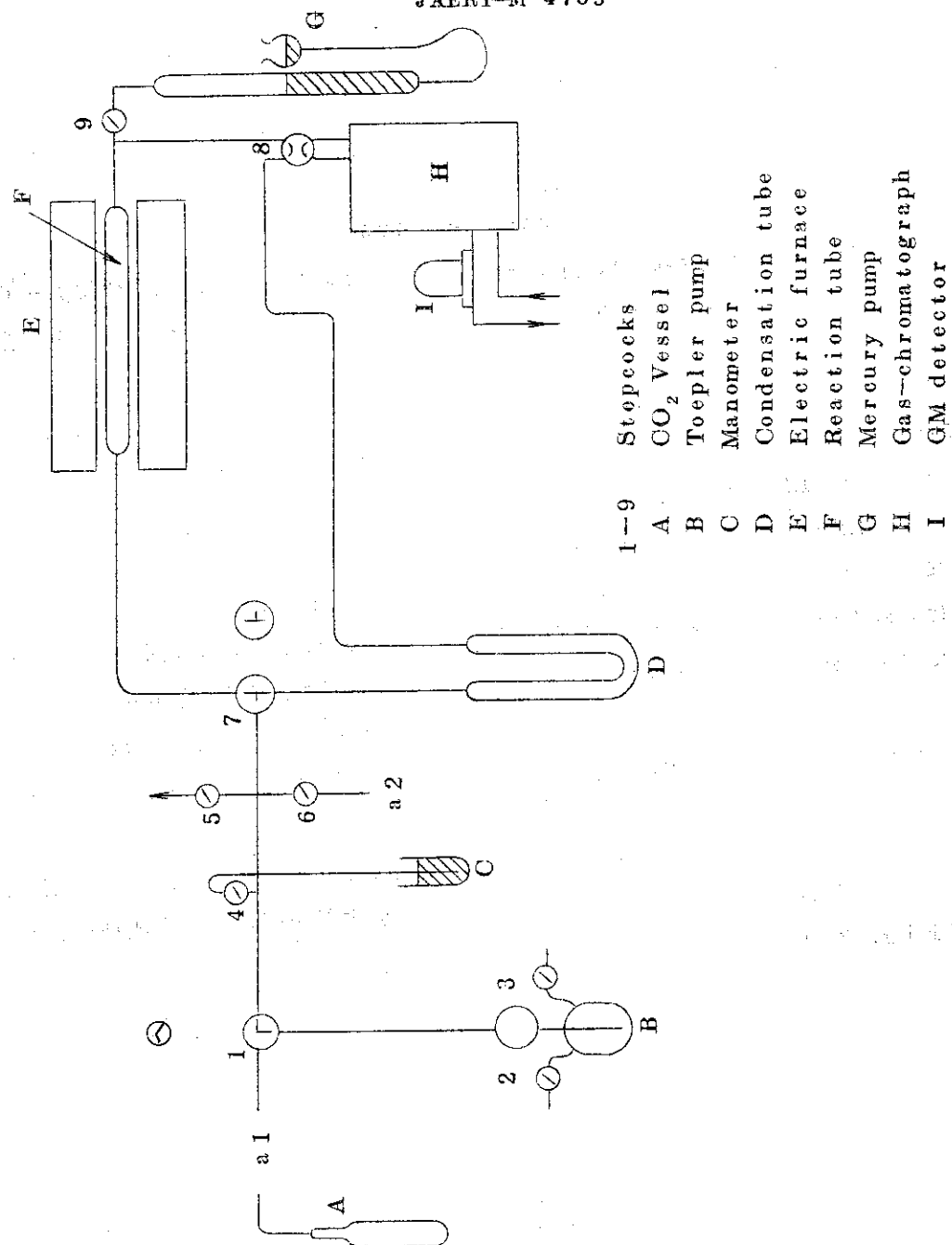


Fig. 3-8 Apparatus for the preparation of carbon monoxide- ^{14}C

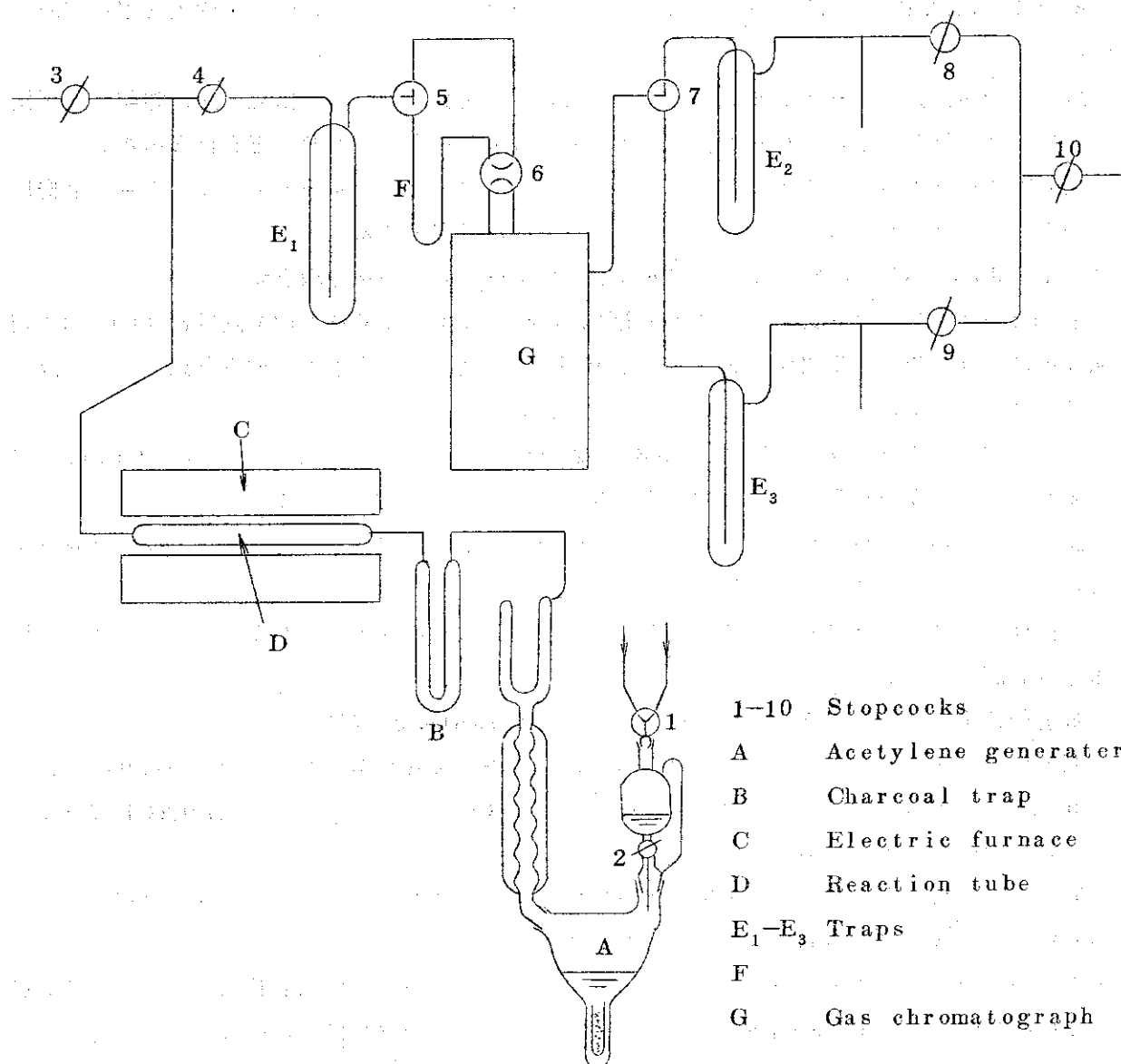


Fig. 3-9 Apparatus for the preparation of ethylene-1, 2-¹⁴C.

3.4 線源製造技術の開発

JRR-3 V.C-II 孔で長期照射中の⁶⁰Co 大線源の中途抜き取り試験が開始され、高比放射能¹⁹²Ir 線源の照射技術確立のために薄円板状ターゲット(ウェファ-)を用いた照射実験が行なわれ、いづれも満足すべき結果を得た。

そのほか JMTR を利用し⁶⁰Co 大線源を製造するためのターゲットの検討・購入などを実施した。

耐食性⁶⁰Co 線源のターゲットの開発のため東北大金属材料研究所の依頼研究は昨年度に引続き実施され、実験に用いられる板状ターゲットの入手、技術打合わせなどを行なった。

線源製造ケーブのモックアップによる試験は内装機器とマニプレータ(ホットラボより借用)操作との関連を中心に行なったが、次年度も継続する予定である。

3.4.1 JRR-3 VC 孔で照射した⁶⁰Co 大線源用ターゲットの抜き取り試験

「JRR-3 による⁶⁰Co 大線源の国産化計画、4.2.4」にもとづく抜き取り試験は JRR-3 の運転休止により前年度は出来ず、5 月、7 月、9 月の計 3 回試料の中途抜き取り試験を行ない、ホットランは定常製造のケーブ使用日程を調整し実施した。

試験の内容はターゲット(円板形、8.3φ×2.3 mm、20 μ 厚ニッケルメッキおよび 0.6 mm 厚アルミニウム被覆)の外観検査、放射能測定および表面汚染試験が主な項目である。

試料の取扱いは試料が磁性体であるので電磁石操作も可能であるが、寸法的にマニプレータで容易につかめるのでこの方法にした。

外観検査の結果は特に異常なく、照射カプセル(アルミニウム製 DL 型外カプセル)の識別番号は判読できることがわかった。

放射能測定は検査課と協力して実施したが結果は Table. 3-7 に示す。

表面汚染検査はスミヤ法およびしゃふつ法によりおこなったが、スミヤの結果は 9 試料につき 0.05~0.12 μCi であり、しゃふつ試験の結果は 8~9 ケを 1 群にして 1.79 μCi 以下であり、被覆の破損による汚染はないものと思われる。

問題点としては第 2 回の中性子束測定の値が予定値の $2.3 \times 10^{13} \text{ v/cm}^2 \cdot \text{sec.}$ の約 39% である $0.91 \times 10^{13} \text{ v/cm}^2 \cdot \text{sec.}$ の低い値を示したことであり、これは全試料取出時の予定比放射能 ~6 Ci/g を越えることが困難であることが判明した。原因として照射孔内の他の試料数の影響(6 カプセル/ホルダ、8~18 ウェフ/カプセル)、制御棒位置による影響などが考えられるが、今後の検討が必要である。

なお本試料は次年度第 4 回目の抜き取り試験を経た後比放射能 ~4 Ci/g、全数 498 ケ、全放射能 ~2000 Ci のものを高崎研究所に引渡し予定である。引渡し時期は 47 年 3 月の見込みである。

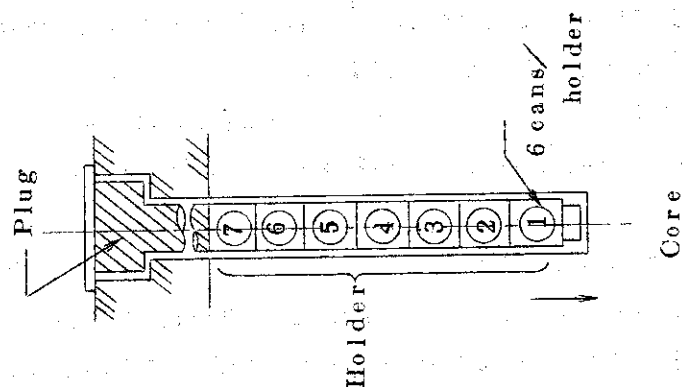
3.4.2 薄板型 Ir ターゲットの照射試験

高比放射能の¹⁹²Ir の製造を目的とした照射技術を行なうために各種薄円板状ターゲット(2 mm φ×0.2 mm、2 mm φ×0.5 mm、7.6 mm φ×0.8 mm)を用い JRR-4 T パイプ、JRR-2 V T-1 孔において照射し、それらの比放射能、中性子自己しゃへい効果、詰め合わせ効果などの検討^{*}を行なった。

本試験において薄円板状のターゲットを選んだ理由は従来の 2 mm φ×2 mm 微小円柱状(ペレ-

Table. 3-7 Specific activities of ^{60}Co produced
under each sapmpling Test

No. of sampling Tests	I	II	III
試料 No. Sample No.	43	44	45
Position of irradiation	Holder No. 7	Holder No. 6	Holder No. 8
Time of irradiation	728.7hr May 1970	1501.9hr July 1970	~ Sept 1970
Type of targets	Al-cladding	Ni-plating	Al-cladding
Numbers of targets	8 (8.8 g)	18 (19.8 g)	17
Numbers of irradiation -can	1	1	1
Specific activities	ave. 0.50 Ci/g (0.55 Ci/piece)	ave. 1.09 Ci/g (1.2 Ci/piece)	ave. 2.34 Ci/g (2.58 Ci/piece)



ト) ターゲットに比較して表面積が小さく自己しゃへい効果が少ないこと、取扱い限界の最小寸法であることなどを考慮したことによる。

照射試験は二段階に分けて行なった。予備試験は JRR-4, T パイプにおいて短時間照射 ($1 \text{分} \cdot 3.7 \times 10^{13} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec.}$) し各種ターゲットの比放射能, ターゲットの配列, その他の基礎データを得た。

本格試験は予備試験で得た知見にもとづき定常製造と同一の照射条件 ($10 \text{MW}, 957 \text{h}, 9.5 \times 10^{13} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec.}$) を得るために JRR-2, VT-1 孔で実施した。

ターゲットとして $2 \text{mm} \phi \times 0.2 \text{mm}$ を 20 枚用いた。この理由は $2 \text{mm} \phi \times 2 \text{mm}$ と比較しやすいこと、 0.5mm 厚のターゲットに比較し自己しゃへい効果が少ないことなどによる。

ターゲット間の間隔は 3mm とし、照射容器は JRR-2 の定常製造用の容器を使用した。本試験により下記の項目の知見を得た。

- (1) エアーピンセットの補助具を用い取扱いは容易である。
- (2) $2 \text{mm} \phi \times 0.2 \text{mm}$ のターゲットは $2 \text{mm} \phi \times 2 \text{mm}$ の場合の比放射能の 2.6 倍となる。
- (3) $2 \text{mm} \phi \times 0.2 \text{mm}$ を 4 枚重ねることにより $2 \text{mm} \phi \times 2 \text{mm}$ 1 枚の ^{192}Ir 線源 (14Ci) に相当するものができる。 $2 \text{mm} \phi \times 0.2 \text{mm}$ を重ね合わせたとき、 γ 線自己吸収効果による見かけ上の放射能の低下は、4 枚以下では無視することができる。
- (4) $2 \text{mm} \phi \times 2 \text{mm}$ の相当重量 (140mg) まで重ねるとその放射能は 70% 増しとなる。
- (5) JMTR の照射により更に高比放射能の ^{192}Ir 線源が製造可能である。

3.5 FPよりのRI製造技術の開発

照射した酸化ウランから比較的短寿命の核分裂生成物(FP)をイオン交換法によって連続的に分離し、製造する方法については44年度までにはほぼその方式を確立した。しかしながら照射酸化ウランを7規定硝酸に溶解する時の ^{131}I による異常な空気汚染の原因については明らかではなく製造装置に改良を加える必要があった。

45年度においては加熱溶解装置の部分にポリエチレン製棒ピンを使用することと ^{131}I の装置外への漏洩との関連について検討し、ポリエチレン製容器の使用は ^{131}I による異常な空気汚染の原因となることをつきとめた。この実験結果にもとづき溶解部分に改良を加え、石英アンブル破壊部分をステンレス製、加熱溶解部分をガラス製容器に換え、約100mCiの ^{131}I を取扱うことができた。

FP分離装置を改良する一方では、404室鉛セル内に ^{99m}Tc , ^{132}I ジェネレータ製造装置および ^{140}Ba 精製装置を完成、合計3回の ^{140}Ba 試験製造を行なった。

短寿命FPの分離製造法の技術開発とならんで45年度においては再処理廃液からの長寿命FPの分離回収について文献調査を開始した。また現在貯蔵中の原研再処理廃液については、実験によって溶液の酸性度、放射能濃度、総塩濃度など溶液組成についての基礎データを集め、動燃からの再処理廃液については溶液の放射能濃度などについての情報を収集し、長期にわたるFP処理開発計画への礎とした。

3.5.1 連続式イオン交換法による ^{140}Ba の調製実験

中性子照射したハ三酸化ウランを硝酸に溶解し、蒸発乾固した後0.2規定塩酸溶液とし、この中に含まれるFPを陽イオン交換法によって連続的に分離し精製する方法については ^{99}Mo , ^{132}Te について44年度には完了した。

45年度においては陽イオン交換分離したフラクションから ^{140}Ba を精製する方法について検討し、その精製装置を完成した。

(a) 陽イオン交換分離後のBaフラクションの精製

FPを陽イオン交換法によって連続的に分離した場合にはすべてのフラクションに ^{95}Zr , ^{103}Ru などの不純物が検出される。陽イオン交換カラムから最後に0.5モルクエン酸アンモニウム(pH6.04)によって ^{140}Ba を溶離したフラクションにも ^{140}Ba 減衰後の γ 線スペクトルの測定からごくわずかの ^{95}Zr , ^{103}Ru が検出された。その量は ^{95}Zr については0.2規定シュウ酸フラクションに含まれる量の約0.009%, ^{103}Ru については陰イオンフラクションに含まれる量の約0.7%であった。これらの不純物をBaフラクションから除くために、溶液に含まれるアンモニウムイオンと当量の濃塩酸をBaフラクションに加えた後、蒸留水を加えて0.36モルクエン酸溶液40mlとし、H型の陽イオン交換カラム(Diaion SK-1, 100~200メッシュ, 8mm ϕ 0.25ml)に注いた。0.5規定塩酸50ml, 0.2規定シュウ酸40ml, 1規定塩化アンモニウム60ml, 0.25モルクエン酸アンモニウム溶液(pH3.91)40ml, 0.25モルクエン酸アンモニウム溶液(pH5.99)40mlをつぎつぎにカラムに注いで不純物を溶離した後、0.5モルクエン酸アンモニウム溶液(pH6.04)40mlで ^{140}Ba を溶出した。このようにして精製した ^{140}Ba フラクションに含まれる ^{95}Zr の不純物は初めに述べた0.2規定シュウ酸フラクション中に含まれる量の0.001%以下、 ^{103}Ru については陰イオンフラクションに含まれる量の0.001%以下であった。 ^{235}U を

288時間熱中性子照射し一週間放置した後における ^{140}Ba の生成量に対する ^{95}Zr および ^{103}Ru の生成量の比は計算によればそれぞれ 3.5×10^{-3} , 5.2×10^{-3} であるから、精製した ^{140}Ba フラクション中に含まれる ^{95}Zr および ^{103}Ru の不純物量は ^{140}Ba , ^{95}Zr , ^{103}Ru の化学的収率をほとんど同じとした場合、それぞれ $4 \times 10^{-6}\%$ 以下、 $5 \times 10^{-6}\%$ 以下となり高純度の ^{140}Ba の製造が可能である。

(b) $^{140}\text{BaCl}_2$ の調製

精製した ^{140}Ba フラクションは0.5モルクエン酸アンモニウム溶液(pH6.04)40mlとなっており、製品とするためには塩化バリウムへの転換が必要である。溶液中に含まれるアンモニウムイオンに当量の濃塩酸をBaフラクションに加えて、0.36モルクエン酸アンモニウム溶液としたものを小型の陽イオン交換カラム(Diaion SK-1, 100~200メッシュ, 6mm ϕ 1.5ml)に注ぎ、 ^{140}Ba を吸着し、有機酸およびアンモニウムイオンを除く方法について検討した。その結果、 ^{140}Ba の溶液を10ml注いだところで ^{140}Ba のカラムからの流出が認められた。0.5モルクエン酸アンモニウムの溶液に塩酸を加えた後、4倍に希釈して(0.125モル)カラムに注いだ時には、160ml流した場合においても ^{140}Ba の流出は認められず、また、その後カラムに0.5規定塩酸30mlを注いでアンモニウムイオンを完全に溶出した場合においても ^{140}Ba の流出は認められなかった。最後に4規定塩酸10mlを用いて ^{140}Ba をカラムから溶離、溶液を蒸発乾固した後、1規定塩酸を加えて製品とした。

(c) ^{140}Ba の試験製造

ハ三酸化ウラン320mgを293時間JRR-2で照射し、20日後にケープ内のFP連続分離装置でBaフラクションを得、これを404室鉛セル内装置で精製した結果、57mCiの ^{140}Ba の製品を得ることができた。その一部はRI研修所に試供品として出荷した。

3.5.2 密閉型照射ウラン溶解処理装置からの ^{131}I の洩れの機構の解明

照射した酸化ウランを密閉型のポリエチレン製棒ビンの中で7規定硝酸に加熱溶解する時、 ^{131}I による異常な空気汚染が認められた。また製造操作が終った後においても、溶解時における汚染よりもはるかに低い値であるが、長期にわたって ^{131}I による空気汚染が認められた。これらの原因としては装置内で蒸発した ^{131}I の漏洩によるものおよび溶液中からポリエチレン製容器などの実験装置に直接吸着したものが漏洩する場合とが考えられる。45年度においては後者の原因による空気汚染の検討を始める前に、アルカリ性溶液中で1価の陰イオンである ^{131}I を用いて、この溶液を種々の酸性度の硝酸、塩酸および硫酸などの溶液とした時に、ガラス装置およびポリエチレンなどの高分子材料に吸着する ^{131}I の量を求めた。また硝酸酸性溶液とした時に生成するヨウ素の原子価状態を調べ、 ^{131}I の吸着との関係を調べた。最後にポリエチレン製の容器に吸着した ^{131}I の漏洩について検討し、 ^{131}I の吸着が空気汚染の重要な原因となっていることを確認した。

実験の結果は ^{131}I を種々の酸性度の硝酸溶液としてガラス製容器に保存した時の ^{131}I の吸着率は1規定硝酸溶液の時最も高く、1週間放置で約20%となった。実験装置に一般に用いられているポリエチレン製容器に対する吸着率はFig.3-10に示すように硝酸溶液のとき1規定前後で最大となり、24時間放置した時約35%となった。また塩酸溶液の場合には6規定で最大となり約39%となった。約15日間保存した時には硝酸溶液で70%、塩酸溶液で92%にも達

した。硫酸溶液の場合には酸性度の変化による吸着率の変化は少ないが、酸性度が高くなるにつれて吸着率は増加した。実験装置に使用する各種の高分子材料への吸着はテフロンやイラックスチューブへの吸着が最も少なく、1規定硝酸溶液で24時間放置した時の吸着率は10～20%、塩化ビニールやシリコンチューブでは70～80%となった。

吸着した ^{131}I はポリエチレン製容器(約1mm厚)などから漏洩し、Fig. 3-11に示すように7規定硝酸溶液を室温で1ヶ月放置した時には全体の放射能の約2%に達した。

1規定硝酸溶液の場合には約0.4%の漏洩率となり、吸着率の酸性度変化による傾向とは逆の結果となった。

溶液を加熱した時の漏洩は速やく、 ^{131}I の7規定硝酸溶液を10分間沸とう水で加熱した時の漏洩率は約0.6%にも達した。この現象は照射ウランをポリエチレン製棒ビンの中で7規定硝酸に加熱溶解する時に経験した ^{131}I の異常な空気汚染の原因として考えることができる。このように ^{131}I を酸性溶液で取扱う実験装置においては、ポリエチレンなどの高分子材料の使用は ^{131}I の吸着による損失と、空気中への漏洩をひきおこすことなどから適当でない。使用の際にはできるだけ溶液に触れる時間を短縮し、使用直後には水洗するなどの処置をとることが望ましい。45年度においてはこれらの実験結果にもとづき、照射酸化ウランの石英アンプル破壊部分と溶解部分に改良を加え、ポリエチレン製容器から破壊部分についてはステンレス製、溶解部分についてはガラス製容器に換え、 ^{131}I の漏洩をより少なくすることができた。

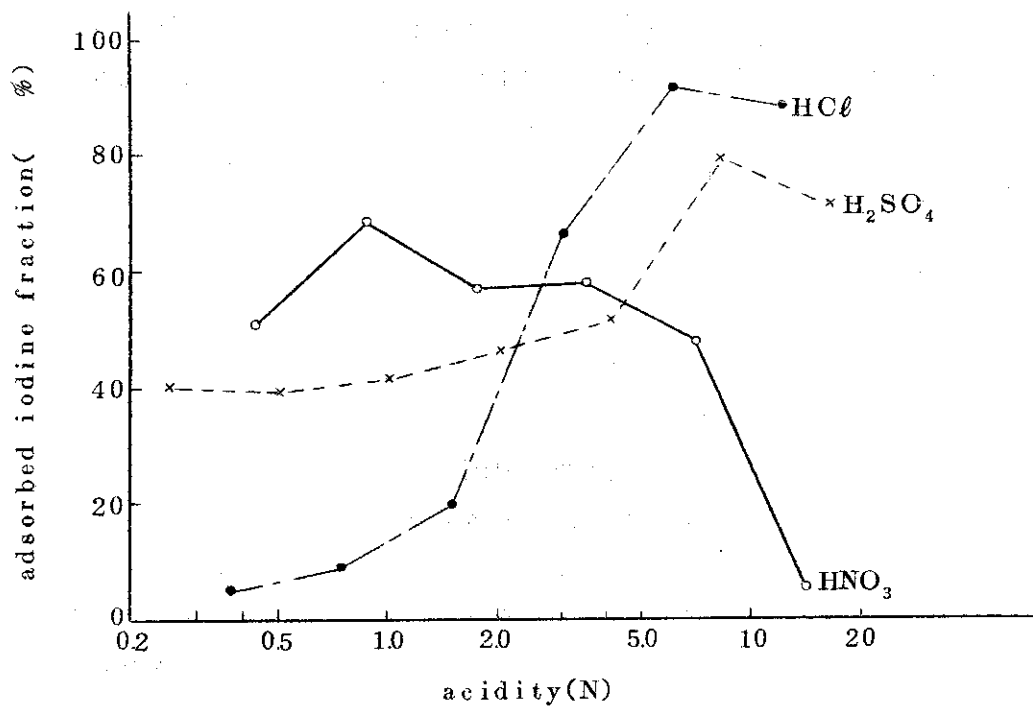


Fig. 3-10 Effect of acidity of various mineral acids on ^{131}I -adsorption on a polyethylene vessel

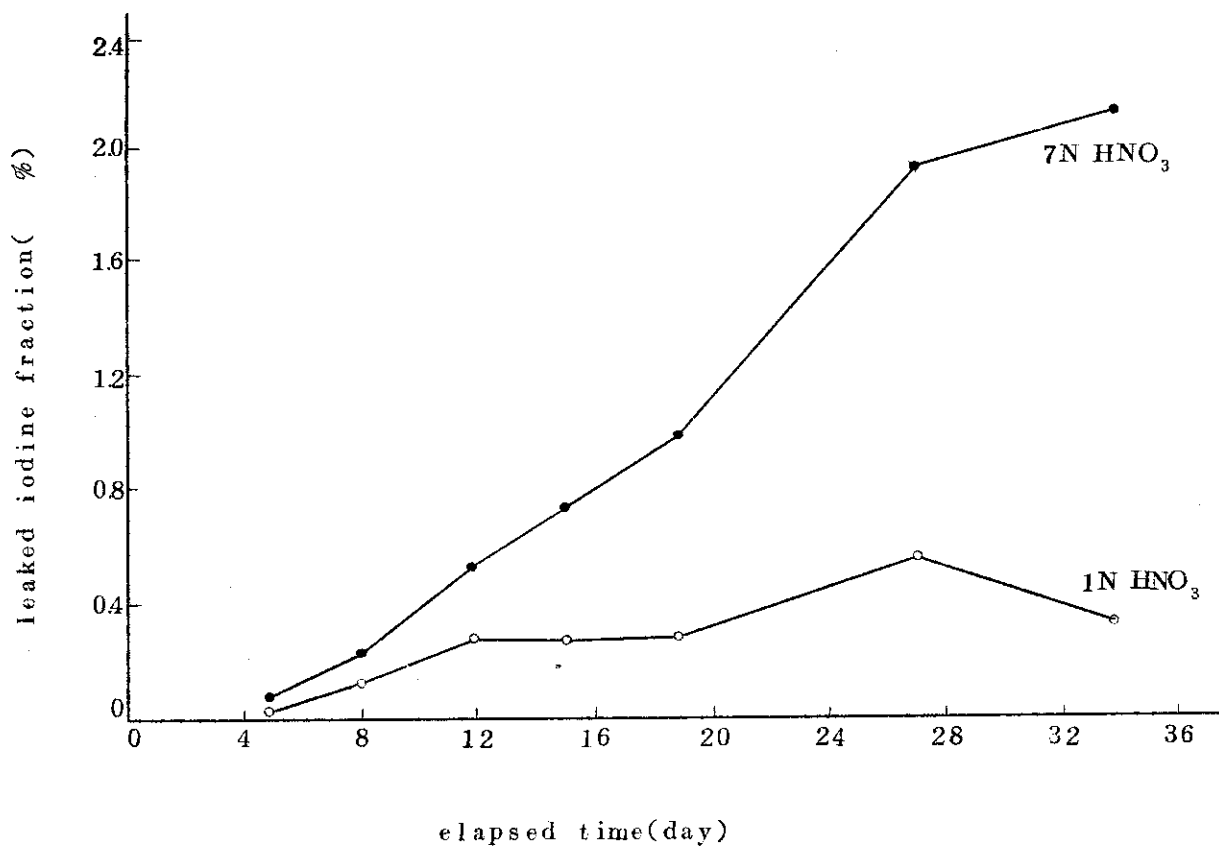


Fig. 3-11 Rate of ^{131}I -leakage from a polyethylene ampoule

3.6 無機標識化合物製造技術の開発

44年度に引続き、多種類の化合物が利用されている ^{35}S 無機化合物の製造技術の開発を行なった。無担体硫酸から出発して、標識した元素状イオンを43年度に、また標識亜硫酸ナトリウムを44年度にそれぞれ製造技術を確立した。45年度はこれら化合物とともに利用の多い標識硫酸ナトリウムの製造技術の開発を行なった。従来一旦無担体の硫酸の形で製造した ^{35}S に担体を加えて化学形の転換を行なうのが一般的な方法であるが、需要量の多い標識化合物の製造では無担体で製造した原料物質に担体を加える製造法は不必要な工程を含み、それだけ時間・手数が無駄になる。標識硫酸塩の製造技術開発ではこの点を考慮して、中性子照射した塩化カリウムから、無担体硫酸を経ないで、直接標識硫酸塩を得る技術の確立を目標とした。このように、一旦他の形に製造されたものをさらに加工して望みの化合物を得る手のかかる方法を避け、原子炉で照射した物質から直接目的とする化合物を製造し、あるいは原子炉照射中に目的とする化合物の形でRIを生成させるといった技術の開発が、今後の標識化合物製造技術開発の一つの目標となろう。

3.6.1 ^{35}S 標識硫酸ナトリウムの製造法

^{35}S で標識硫酸ナトリウムはそのままトレーサーとして、あるいは ^{35}S 標識有機化合物合成の原料として利用度が高い。無担体硫酸の形で製造されている ^{35}S に硫酸ナトリウムの担体を加えて得られるし、またKUCHARSKI等(Kernenergie 5,171-2 (1962))に担体に硫酸を用い、 Na^+ 型とした陽イオン交換樹脂柱に流すことによりナトリウム塩に転換している。いづれにしても得られるのは水溶液であり、固体を得るためには蒸発乾固させなければならない。

このような手間のかかる方法を避け、中性子照射した塩化カリウムから直接固体の標識硫酸塩を得ることを目的として製造技術の開発を行なった。水-エタノール混合系で硫酸ナトリウムは塩化ナトリウムに比較して溶解度がかなり小さいことに着目し、中性子照射した塩化カリウムの水溶液を H^+ 型陽イオン交換樹脂柱に流し、流出液を水酸化ナトリウムで中和して塩化ナトリウムに転換し、担体硫酸ナトリウムを加え、さらにエタノールを加えてこれを沈殿させ、標識硫酸塩を得ることを試みた。JRR-2またはJRR-3で $10^{13}\text{ n/cm}^2/\text{sec}$ 台の中性子束で照射した塩化カリウム1gを蒸留水5mlに溶かす。この溶液を H^+ 型の陽イオン交換樹脂柱(Diaion SK#1, 1cm ϕ , 15cc)に流し、さらに蒸留水10mlで樹脂柱を洗浄する。流出液は合わせて、最初は6N、最後は0.5Nの水酸化ナトリウムでpH6-7に中和する。硫酸ナトリウム71mgを含む水溶液1mlを加えた後蒸留水で全量を20mlにする。撹拌しながらエタノール(99.5容量%)120mlを加える。生じた沈殿を遠沈分離後少量のエタノールで洗浄し、一旦5mlの水に溶解した後30mlのエタノールを加えて再沈殿させる。このようにして比放射能 $\sim 100\text{ mCi/mM}$ の標識硫酸塩が90%以上の収率で得られる。塩化ナトリウムの除染係数は 4×10^4 以上である。塩素の中性子照射で生ずる ^{32}P の量が無視できない時は、これはほとんどすべてが硫酸ナトリウムと共沈するので、この共沈を防ぐ必要がある。これは単に硫酸ナトリウムの沈殿の生成時に85mgのリン酸を保持担体として加えることにより達せられる。 ^{32}P に対する除染係数は 1×10^4 以上である。

水溶液にエタノールを加えることにより塩化物を液相に残して硫酸塩を沈殿させる方法は、照射した塩化カリウムの水溶液に硫酸カリウム担体を加えて標識硫酸カリウムの製造にも利用

できる。この場合は塩化物-硫酸塩の水-エタノール系に対する溶解度がナトリウム塩と硫酸塩とで異なるので、水溶液中の塩濃度および加えるエタノールの量の変更が必要である。

44年度報(JAERI-memo 4285)に標識した硫酸銅の熱分解により発生する二酸化イオウを水酸化ナトリウム水溶液に吸収させて標識亜硫酸塩を製造する方法を報告した。ここに用いられた標識硫酸銅は無担体硫酸³⁵Sで硫酸銅を標識して得たが、照射した塩化カリウムから出発し、エタノール添加法により直接固体の標識硫酸銅を製造できる可能性があるので、今後この問題について開発を進める。

3.7 照射技術の開発

45年度は、5月より開始予定のJMTRの試験期間での照射にそなえ、前年度に引き続いて高中性子束下での照射技術の開発を目標とした。しかしながらJMTRの試用期間が9月より延期され、一部試料の照射は後述の様に行なわれはしたが、大洗のホットラボの使用の遅れから照射後試料の引渡しが遅れ、試料の処理は46年度に持ち越された。JRR-3のVC改造照射孔を利用する⁶⁰Co大線源の照射技術は、途中運転停止期間、7MW運転の悪条件にも拘わらず、照射試料の抜取試料による生成量測定、表面汚染など各種の試験が行なわれた。これについては3.4.1に述べられている。

これらの照射技術の開発は、前年度同様に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密接な協力により行なわれた。

3.7.1 JMTRによる照射試験

熱出力50MWのJMTRの炉心部は熱中性子束 3×10^{14} n/cm²・sec. 速中性子束 1×10^{14} n/cm²・sec.であり、高速炉に匹敵する程のpower densityを有し、10Watt/g程度の非常に大きなガンマ加熱が存在する。JMTRを利用してRIを製造しようとする場合、JRR-2、JRR-3ではさほど問題とならなかった。ターゲット物質の炉内照射中溶解、放射線分解、その他脱水等による照射後のターゲット不溶性などの問題を生じることが予想された。そこでJMTRを利用して本格的に製造を予定しているRIのためのターゲット26種(Au, Zn, Ni, Co, Cr, Cd, Ag, Pt, Fe, Sn, Ir, S, Ta₂O₅, Sn₂O₃, MoO₃, Fe₂O₃, TeO₂, HgO, MgO, Rb₂CO₃, Cs₂CO₃, CaCO₃, BaCO₃, AlN, KCl, K₂CrO₄)を選定し、45年度JMTR試用期間中の3サイクルから7サイクルまで(各30MW運転)に照射試験を実施した。45年度中に照射されたRIから提出された試料カプセル数は、計測用も含め64本、ハイドロラビットカプセル9本であった。大半の核種が46年度に引き続き処理される予定である。これらの中45年度中に試験製造されたものに水力ラビット照射による⁶⁰Co針状線源があり、この中¹⁹⁸Auは一部製品として使用された。(2.1.1の(4)参照)

なお45年度JMTRによる照射実績を一覧表としてTable.3-8に示した。

Table.3--8 The actual irradiation schedule by JMTR
in the fiscal year of 1970.

Cycle No. irradiation time irradiation hole	2	3	4	5	6	7
		4 5.9.4 ~ 9.2 5	4 5.1 0.1 6 ~ 1 1.6	4 5.1 1.2 7 ~ 1 2.1 8	4 6.1.2 2 ~ 2.1 2	4 6.3.5 ~ 3.2 6
M - 6		67M-45R Au, Zn, Ni Ta, KCl Al N	67M-46R Sm ₂ O ₃ , Rb ₂ CO ₃ Au, Cs ₂ CO ₃ Cr, K ₂ CrO ₄ Ca CO ₃	67M-47R Au, Zn, Ni Ta, KCl Al N		67M-50R Zn, Ni Ta, Pt Al N
M - 7					67M-48R Sm ₂ O ₃ , Rb ₂ CO ₃ Au, Cs ₂ CO ₃ Cr, K ₂ CrO ₄ Ca CO ₃	67M-52R Al N Cd, Cs ₂ CO ₃ Cr, KCl CaCO ₃
K - 4					67M-49R Cr, K ₂ CrO ₄ Al N Au, Cd CaCO ₃ , Ag. Mo O ₃	
J - 7 - 1						67M-53R Ni, Fe BaCO ₃ , Sm ₂ O ₃
I - 11		68M-4R Ir	68M-20R Ir Ir	68M-23R Fe, Sn	68M-24R Fe, Sn	70M-2R Cr ₂ O ₃ TeO ₂ Ir Mo O ₃ Co
G - 11	68M-1R Ir					
K - 11	68M-2R Ir					
P - 11		68M-3R Ir				
J - 9 - 3						70M-12R S × 2
M - 8						70M-17R Al N × 5
N - 7						70M-18R Al N × 5

3.8 RI 検定技術の開発

サブテーマⅠの RI 測定技術の開発に関しては、まず¹⁹⁷Hg の絶対測定について濃縮ターゲットの照射試料を用い、X-γ 同時計数法、シングルクリスタルによる Sum peak 法について実施し、総合精度±4%以内で測定できることを確めた。

半導体検出器を用いる高分解能γ線スペクトロメトリーについては、年度前半までに基礎的事項をかため、¹⁹⁸Au 中の¹⁹⁹Au、¹⁵²Eu などの測定のほか、前記¹⁹⁷Hg の絶対測定に必要となる低エネルギーγ線の分離定量に適用した。

液体シンチレーション計数法では、試料を封じめるために用いる接着用硬化剤による異常発光現象にたいしてその原因を追求するとともに、¹⁴CO ガス系試料の測定法の開発について製造課担当係と協力し実施中である。

以上の他に、放射能濃度も高く、検定頻度も多い³²P については、現行の2πガスフロー計数法に比して、簡便かつ安全な、電離箱を用いて制動放射 X 線を検出する測定法への移行を目標に種々検討を加え、±数%の精度で測定可能であるとの見通しを得たが、定常検定への移行のためにはなお基礎的に検討、解決をはかるべき項目も多く、次年度継続実施の予定である。

サブテーマⅡの化学検定技術の開発で45年度最重点項目としてとりあげたのは前年度後半より着手していた¹⁹⁸Au コロイド製品の検定技術の開発であり3.8.2に詳細が述べられる。また電気化学分析法による微量元素の定量に関するものとして、前年度までに完成した交流ポーラログラフ法による銅の定量にひきつづき、インバースポーラログラフ法による亜鉛の定量に着手し基礎的な実験から実際の製品への応用をはかり満足すべき結果を得た。(3.8.3 参照)

電気化学分析法による微量元素の定量について本年度から新しくとりあげたものとしてはイオン電極による各種イオンの直接定量法の開発に着手した。イオン電極としては Beckman 社製の Select Ion の中から陽イオン電極 (Na または K の測定用)、塩化物用電極、沸化物用電極硝酸塩用電極、硫化物用電極などを購入し、これらの電極の特性を調べた。

これらの電極は不純物が混在せず最適酸性度で測定を行えばほぼカタログ記載値に近い起電力が得られ、検量線は良い直線性を示すが、水素イオン濃度が著しく高い場合や低い場合は起電力の読みに大きな誤差を生じる。従って実際の製品に適用する場合に酸性度の調整を必要とする場合が多い。また高い放射線の存在下で電極の特性に変化が生ずるか否かという問題などがあり、ひきつづき次年度にも検討を重ねた上で定常検定に採用するかどうかを決定する予定である。

3.8.1. ¹⁹⁷Hg の絶対測定

軌道電子捕獲により崩壊する¹⁹⁷Hg (Fig. 3-12) の放射能の絶対測定には水銀の揮発性のため、薄膜上に滴下乾燥された試料を用いる4πX(e)計数法のような精度のよい測定法を適用することがむずかしい。ここでは77Kevのγ線と軌道電子捕獲に伴う特性 K X 線との同時計数をとる「X-γ 同時計数法」を採用した。

この方法は試料調製は簡単であったが、崩壊形式の複雑さに基く補正項について詳しい検討が必要であった。

試料調製、中性子照射した酸化水銀を希硝酸に溶解し、一定量を直径6mmのポリエチレン瓶に封入した。この状態でもγ線と K X 線のエネルギーが近いのでそれぞれの自己吸収の差が

無視でき、測定試料とすることができた。天然の水銀をターゲットとして用いた場合、半減期 24 時間の ^{197m}Hg と 48 日の ^{203}Hg が不純物として存在する。このため 25 倍に濃縮された ^{196}Hg をターゲットに用い照射後 10 日経過して測定を行なった。

測定 検出器には厚さ 20μ のアルミニウム窓をもった $50\text{mm}\phi \times 3\text{mm}$ の NaI シンチレータを用いた。測定回路は原研型モジュールシステムで構成し、高計数率の測定を可能にした。同時計数回路の分解時間 $2\pi = 0.96\mu\text{sec}$ 、各チャンネルの最高計数率 10^4 cps であった。

NaI 検出器では 77 Kev の γ 線と KX 線が分離できないので各チャンネルの計数率 N_1, N_2 および同時計数 N_c との関係は複雑になる。J. G. V. Taylor {Standardization of Radionuclides, 341, IAEA (1967)} によれば真の崩壊率 N_0 は次式で与えられる。

$$N_0 = \frac{(N_1 + N_c/2)(N_2 + N_c/2)}{2N_c} \cdot f, \quad f = \frac{4K}{(1+K)^2}$$

ここで f は γ 線と軌道電子捕獲に伴う KX 線の放出割合が 1 でないことに基く補正項である。K は γ 線と KX 線との放出割合の比である。 f を除いた部分の N_0 の測定については井戸型の NaI クリスタルを用いたサムピーク法による値と 1% 以内の差で一致することから上式の妥当性を確認した。

補正項 f の検討 Fig. 3-12 で 2% の軌道電子捕獲の分岐を無視すると $K = PK\omega K(1+\alpha)$ で表わされる。ここで PK は K 殻の軌道電子を捕獲する割合、 ωK は KX 線の蛍光収率、 α は 77 Kev γ 線の内部転換係数であって文献より得られ、 $K = 3.8$, $f = 0.66$ になる。使用した α の値 4.2 について、つぎのような検討を行ないその妥当性を確認した。

半導体検出器によれば、 ^{197}Hg の KX 線は K_α (68 Kev) と K_β (78 Kev) に分離できる。77 Kev の γ 線は K_β と区別できない。したがって γ 線スペクトルの面積より K_α と $K_\beta + \gamma$ の比が得られ、 α を計算すると 4.5 になる。この値からは $K = 4.0$, $f = 0.64$ が計算され文献より得られる上記の値とほぼ一致する。このことから文献値の核データに大きな誤まりはないものと考えられる。採用した補正項 f は文献値を使用し崩壊形の 2% の分岐を修正して、 $f = 0.65 \pm 3\%$ を用いた。

以上より ^{197}Hg は精度 $\pm 4\%$ 以内で絶対測定が可能である。本測定で得られた試料を用い、定常作業用井戸型電離面の較正も完了した。本較正により γ 線エネルギー 10.0 KeV 程度の低エネルギー領域における較正值が得られ、井戸型電離面にたいするエネルギー特性を求めるデータのの一つとすることができた。

3.8.2. ^{198}Au コロイドの検定

医療用として大きな需要が見込まれるコロイド状 ^{198}Au 製品原料を当部において製造供給することが前年度に決定され、前年度後半から製造課において試験生産が開始された。これにもなって検査課においてもこの製品の検定技術を開発することが急務となり、製造課と歩調を合わせて前年度後半から検討を開始した。

この製品は従来当部で取扱っていた RI 製品とは性格が著しく異り、医薬品としての仕様が満足するためには従来当課で実施していなかった各種の検査が必要となる。すなわち一般製品

について実施している放射能濃度、比放射能、酸性度、主元素量、放射化学的不純物含有量などの他に金イオンの含有量、コロイド粒子の粒径分布、無菌テスト、発熱性物質の試験などが必要とされる。

放射能の測定に関しては従来の Au-198-1 製品（真性溶液）に適用している γ 線用井戸型電離箱による測定法がコロイド溶液に関しても適用しうるかどうかを検討する必要があり、また製造法が異なることによって放射化学的純度が変らないかどうかを検討した。

遊離の金イオンの存在は医療用製品として甚だ好ましくないのでその存在量を知ることは検査項目として重要である。当課においてはペーパークロマトグラフ法を検討し、金イオンの含有量を求めるとともに、非常に小さい粒径のコロイドの存在までも定性的に検出できる方法を確立した。

コロイドの粒径を測定する方法としては電子顕微鏡による直接測定法が最も有効な手段となるが、種々の事情から当課に電子顕微鏡を設置することができないので、二次的な測定法として吸収スペクトルを分光光度計で測定して、一次原器としての電子顕微鏡による測定結果とを対応させて粒径を求める方法を検討し、ほぼ満足すべき結果を得た。

無菌テストおよびパイロゲンテストについては製造課と協力して、依頼試料を作成し外部機関に依頼し、現在までの試験製品については全数問題ないことを確かめた。しかし製造法が完全に固まるまではなお依頼検定をつづけ、定常生産を開始してからも数バッチごとに依頼検定を行ない、品質の確認を常時つづける必要があると考えている。

放射能測定 放射性金コロイド溶液について放射能検定項目を行なうとともに従来の真性溶液の検定方法と同じでよいのかも検討した。濃度測定では、コロイド溶液にほぼ当量の硝酸溶液を加えることにより真性溶液に変え、前後での放射能強度を比較した。その結果、通常 ^{198}Au 真性溶液に用いられている γ 線測定用井戸型電離箱の較正常数がそのまま ^{198}Au コロイド溶液の測定に使用できることを確認した。半減期測定では、約 10 半減期にわたって放射能強度を測定したところ 2.7 日の半減期で減衰していることを認めた。また β 線エネルギーの測定は、GM 計数装置を用いてアルミニウム吸収板による吸収曲線をとったところ、ほぼ ^{198}Au の β 線最大エネルギー (962 Kev) に近い最大飛程を得た。 ^{199}Au (β 線最大エネルギー・460 Kev) については、最大飛程を確認できるまでの吸収曲線は得られなかった。 γ 線エネルギー測定では、3" ϕ $\times$ 3" の NaI (Tl) クリスタルシンチレーターを用いた γ 線スペクトロメーターにより測定したところ、 ^{199}Au 以外の放射性不純物は認められなかった。以上各項目にわたり検討した結果、放射性金コロイド溶液に対する放射能検定法は、従来の真性溶液に対する方法と変わりなく実施できることがわかった。

金イオンの分離定量 金コロイド製品中の金イオンの分離定量をするために、塩酸、水、アセトンの混合溶液を展開剤として用い、ペーパークロマトグラフ法によって行なった。この展開剤により展開すると、コロイド状金は原点にとどまり金イオンは Rf 値 0.9~1.0 に現われる。金コロイドと金イオンの比率は両フラクションの放射能強度の比から求めた。使用したロ紙は東洋ロ紙 No. 51A で、また展開剤の組成比は塩酸：水：アセトンが 10：20：70 で展開時間は 2 時間である。

本法により試料を展開すると、金コロイド粒子がきわめて小さい場合はテーリング現象を起

し、これによって微少コロイドの存在は定性的に同定可能である。

金コロイド粒子の測定 金コロイド粒子の吸収スペクトルを分光光電光度計で測定し、200～300Å周辺に平均粒径をもつ金コロイド粒子の大きさを測定する方法について検討を行なった。

400Å以下の金コロイド粒子から成り立っている金コロイド分散体の希薄溶液に、平行光線を投射すると入射光の大部分は強い光吸収（分散粒子の光散乱による見掛け上の吸収）を示し、510～530mμの波長領域に最大吸収をもつ吸収スペクトルを観察することができた（Fig. 3-13）。この極めて希薄なコロイド溶液の吸収スペクトルの強さは、コロイド粒子の粒度分布を一定にすると近似的に Lambert-Beer の法則に従って変化し、最大吸収帯の位置（mμ）は、コロイド分散体の大きさに対応して変動することがわかった（Fig. 3-14）。また、吸収スペクトルの波形は、金コロイド分散体の分布状態に応じて一定の規則性を示すことがわかった。とくに、400Å以上のコロイド分散体の存在比が高くなるに従って、光散乱の効果が顕著に現われ最大吸収帯周辺における吸収スペクトルの再現性が悪くなってくる。Fig. 3-14 の関係は、金コロイド粒子の粒度分布を一定にすると、平均粒径と最大吸収帯（mμ）との間に一定の規則性があることを示している。また、吸収スペクトルを全域測定することにより、金コロイド粒子の平均粒径と粒度分布を推定できることがわかった。さらに測定方法の簡素化と測定精度の向上をはかるため、金コロイド分散体の光学的な挙動について幾つかの検討を試みた。得られた基礎事実をまとめると、つぎのようなことが明らかになった。金コロイド粒子の粒径に対応して変動する函数として、吸収スペクトルの光学的強度比（最大吸収の強さ／最小吸収の強さ）を用いると粒子濃度の変動による影響をほとんど受けないことがわかった。Fig. 3-15 に光学的強度比と平均粒径との対応性について示す。100～400Åの粒子領域において、ほぼ同種の粒度分布をもつコロイド溶液の平均粒径は、二つの特定波長における光吸収の強度比を求めることによって、Fig. 3-15 の関係から外挿できることがわかった。これまでは、主に相似形状の程度分布をもつ金コロイド溶液の光学的な諸性質について、基礎データの収集を行ない本測定法の有用性を確めた。今後、粒度分布が正規分布を示さないような金コロイド溶液、あるいは粗大粒子を含む金コロイド溶液の光学的な挙動について検討を加え、本法の実用性を高める予定でいる。

以上に述べたように本製品の検定に関しては、放射能濃度、比放射能、放射化学的不純物、金イオンの検出などの項目は問題なく定常作業に移行できることが示されたが、無菌テスト、バイロゲンテストは外部への依頼検定という形式となり、コロイド粒子の大きさの測定については光学的な方法で実施するとなれば未だ多少の問題点を残しており、カタログ化の時期までには検定法を完成したいと考えている。しかしこの光学的検定法が適用されることになっても当初の数バッチについては電子顕微鏡による測定を外部に依頼して、二つの検定法を平行して実施する予定である。

3.8.3 アノードリックストリッピングボルタンメトリーによる放射性

亜鉛製品中の微量亜鉛の定量

医療用などに用いられるラジオアイソトープ製品は、使用目的から無担体または高比放射能のものであることが要求され、これらの製品の比放射能を正確に求めるためには微量元素の定

量が必要とされる。われわれは高感のアノードックストリップ法を検討し、ホットアトム効果を用いて製造した高比放射能亜鉛製品中の微量亜鉛の定量に適用し、好結果を得た。

装置 作用電極としては吊下げ水銀滴電極を用い、電着時の対極として白金線を用いた。また溶出の際には対極として Ag/AgCl 電極を使用した。これら電極は電解セルの蓋部分の穴に装着し、固定した。定電位電解装置を電着に、通常のポーログラフ装置（柳本製 PA-102 型）を溶出電流の測定に用い、これらの各々の装置間の切換えはスナップスイッチにより行なった。電解セルは一定温度とするためにウォータージャケット付きのものとし、循環型の恒温槽を用いた。吊下げ水銀滴電極は半径が 0.0575 cm で表面積は 0.0415 cm^2 であった。放射性の試料の分析には電極部を鉛セル内に入れ、他の装置類はすべて鉛セル前面（操作側）に置き、遠隔操作により実施した。

実験 支持電解質は 0.1 M 硝酸カリウムで、 1 N 酢酸ナトリウム、 0.1 N 塩酸を緩衝液として加え、蒸留水で希釈して一定量とする。窒素ガスを通じながら温度を $25 \pm 5^\circ\text{C}$ に保ち、攪拌をしながら -1.3 V で 15 分間電着を行ないさらに 1 分間溶液を静止させる。電着後、スナップスイッチによりポーログラフ装置に切換え、 -1.2 V から -0.5 V まで電位走査を行ない、溶出曲線を記録する。含有量の求めかたは標準添加法により行なった。用いた試薬は再精製を行ない、とくに塩酸はデシケーター中で精製し、蒸留水については最終段階で非沸騰蒸留法で製造したものを用いた。

結果と検討 定量条件を定めるために行なった予備的な実験として、酸素の影響、 pH 、妨害元素の影響、電着時間と電解効率の測定などについて検討を行なった。溶存酸素は完全に除去することが必要で、 10 分程度窒素ガスを通じた場合は溶出曲線のベースラインが少し立ち上がる傾向にあり、 30 分程度窒素ガスを通じることにより、ベースラインはフラットな曲線となる。

電着、溶出の際は窒素ガスを電解セル中に流し、酸素が試料中に溶けこむのをおさえる必要があった。溶液の液性は、 $\text{pH } 5 \sim 7$ の範囲で良好な波形、波高が得られ、とくに $\text{pH } 5.5$ 附近では一定している。妨害元素については、亜鉛製品の製造過程から混入すると考えられる元素を対象とし、鉄、鉛、アルミニウムなどについて検討し、各々 $100\text{ }\mu\text{g}$ 程度まで影響のないことを確めた。電着時間と電解効率との関係は、電着時間が長くなると亜鉛の析出量は増加するが、 1 時間以上では反対に電解効率の減少がみられ、最終的に 16 分程度が定量条件によいことを確めた。

本法を ^{65}Zn および $^{69\text{m}}\text{Zn}$ 製品に適用した結果、試料量が 0.02 mL 程度で精度よく定量でき、ジチゾンを用いる吸光光度法とよく一致することを確認した。また亜鉛濃度で 10^{-8} M 程度まで定量可能であり、ジチゾン法にくらべて検査のための製品使用量は $1/50$ 以下となり非常に有効な手段となる。

本実験は昭和 44 年 8 月から昭和 45 年 10 月までの約一年間、IAEA の研修生として来部した台湾・清華大学・謝俊雄氏が研修テーマのなかで実施したもので、当係より 1 名参加の形で行なわれた。当部にとっても今後の検定手段として非常に有用なものであり、謝氏の努力に負うところが多く、感謝の意を表する。

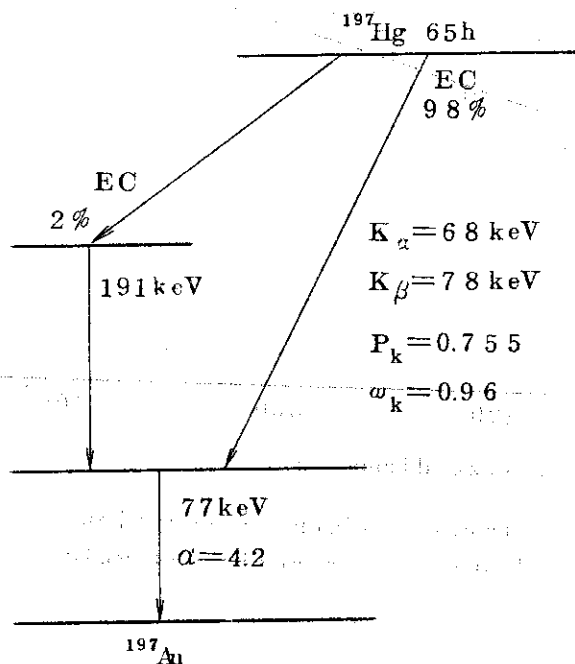
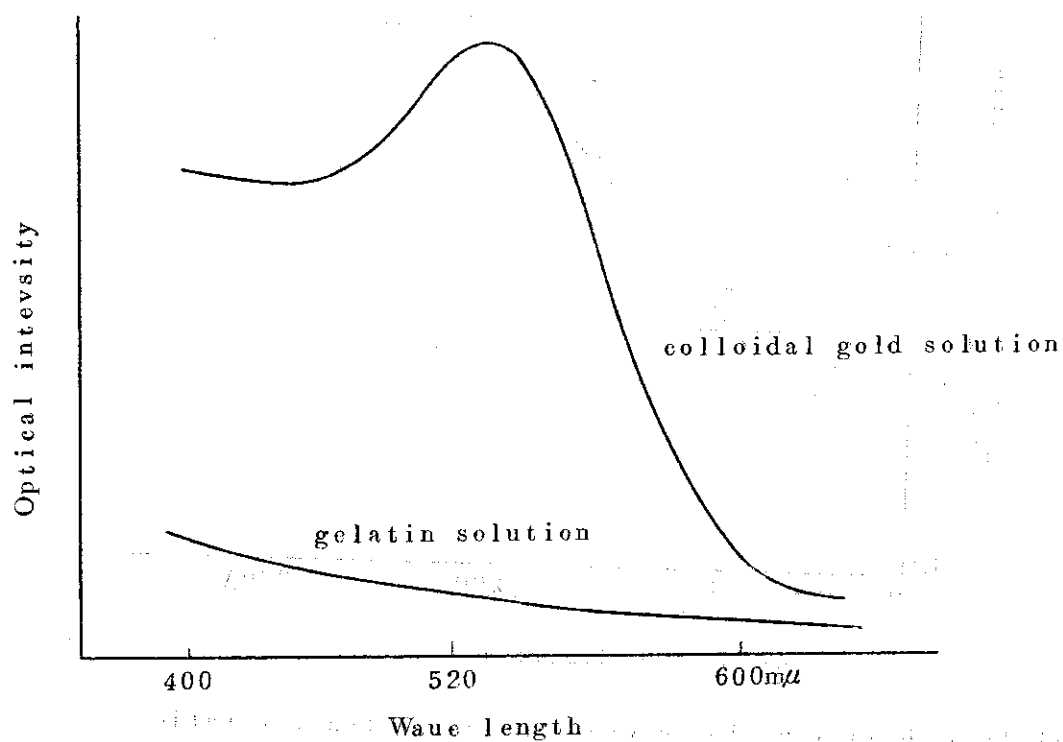
Fig. 3-12 Decay scheme of ^{197}Hg 

Fig. 3-13 Typical absorption spectra of colloidal gold and gelatin solution

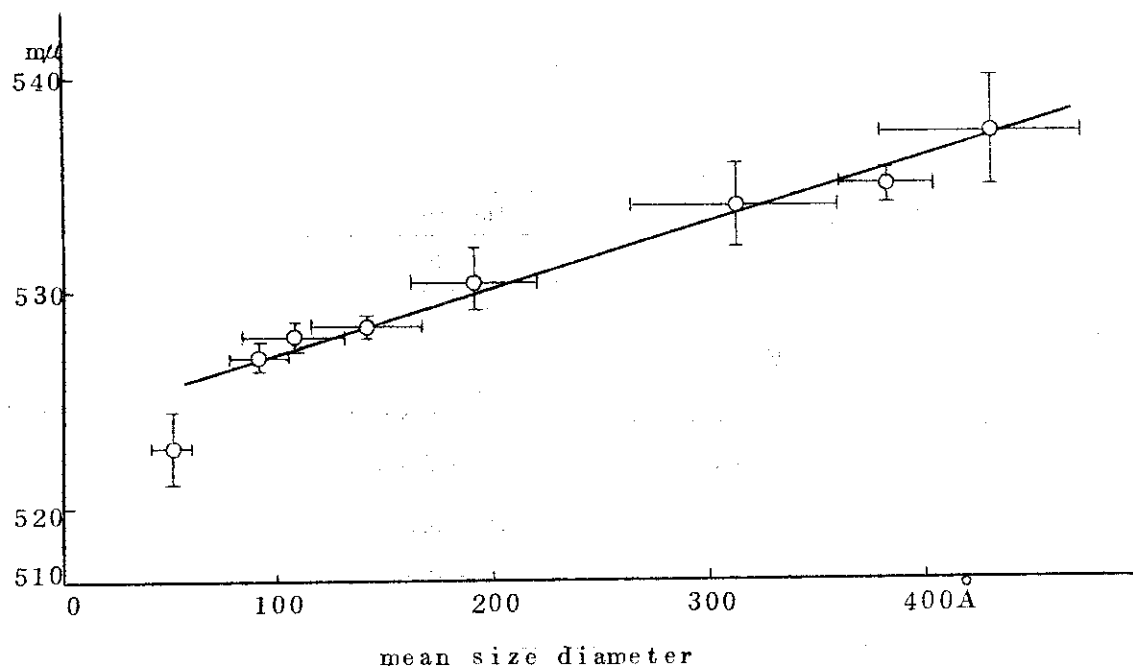


Fig. 3-14 Relationship between maximum of sorption and mean size diameter for colloidal gold

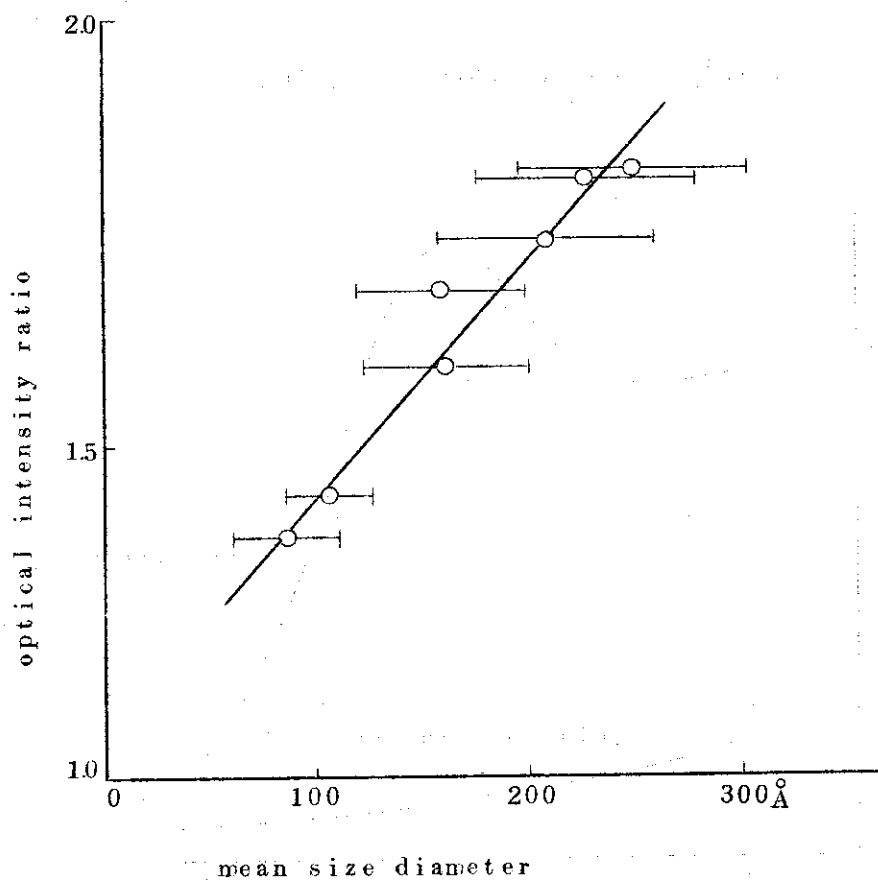


Fig. 3-15 Relationship between optical intensity ratio and mean size diameter for colloidal gold

3.9 RI 製造研究

45年度におけるRI製造研究は、前年度と同じくRI製造に有用なホットアトム効果の研究と核反応の研究の二つに大別される。

ホットアトム効果の研究においては、主として銅フタロシアニン錯塩について1) α 型と β 型結晶の混合系、2) 金属錯塩と無金属錯塩の混合系における初期リテンションと熱アニーリングに関する研究を行い反応機構に関し示唆に富んだ結果を得た。また、熱アニーリング過程において結晶転移を生ずる系の研究を行い興味ある結果を得た。これらの結果を前年度までに蓄積された結果と比較しつつ、フタロシアニン系のホットアトム効果に関する総括的なまとめを試みた。また他方では、物理的手法によるホットアトム効果の研究を行う目的でメスバウア効果測定装置を用いる予備的な実験を開始した。

核反応の研究においては、多年にわたり続行して来た ^{238}U の陽子誘起核分裂反応の研究結果のまとめが最終段階に近づき、前年度までの成果をもとにして質量分布曲線の構成とその解析、核分裂断面積の評価と反応機構の考察等を行った。

またデータ処理の自動化については、前年度の年報において指摘したように、解析結果の信頼性により一層の重点を置いた研究が進められた。すなわち、与えられたスペクトルをいかに精度よく解析するかという問題を解決すると共に、いかに信頼性の高い測定を行うかという点にも注意が払われ、1) 波高分析器の直線性、プリセット時間の正確さといった測定器自身の信頼性の検討、2) 測定試料の強度変化に伴うベースライン・シフトやゲイン変動、エネルギー対波高値の非線性の与える効果等検出器の信頼性の検討、3) バイルアップ効果、ジオメトリ変化とスペクトル形変化の関係等測定条件の信頼性の検討が行われた。これらの成果は、すでに開発したスペクトル解析コードの普遍化、充実化を図る段階で大きな役割を果たした。Ge(Li)スペクトル解析用コードについては後述するので省くが、NaI(Tl)スペクトル解析コードの最終的な形は、これまでに完成した γ 線スペクトルの解析関数表示と普遍化されたピーク認識のサブプログラムを組み合わせ、検出された複合ピーク群毎に、各構成ピークと多項式表示によるバックグラウンドとに分解するという方式となる予定である。

3.9.1 銅フタロシアニンにおける反跳原子の挙動におよぼす結晶形転移の影響¹⁾

α -銅フタロシアニン(α -CuPc)は、250°C以上での加熱によつて β -CuPcへ結晶形転移を起す。この温度領域での ^{64}Cu 反跳原子の熱アニーリング過程(stage II)について詳細な検討を加えた。その結果、結晶形転移に伴う結晶の内部エネルギーの変化が、 α -CuPcのstage II アニーリング反応に大きな影響を与えていることが判明した。

α -CuPcをJRR-2で10秒間、ドライアイス温度で照射したものについて得られた等温熱アニーリング曲線をFig. 3-16に示した。260°C以上の熱アニーリング曲線に加熱温度の上昇とともに時間軸を左側に移動する変曲点の存在が認められる。 β -CuPcのアニーリング曲線との比較をFig. 3-17に示した。 β -CuPcは α -CuPcを300°Cで4時間加熱し、予め β -形に転移させたものであり、照射およびアニーリングの条件は、 α -CuPcと全く同一である。この場合には、一般的な単調なアニーリング曲線が得られた。このことから、 α -CuPcで見られる異常な現象は、 α - β 結晶形転移の効果によるものであると考えられる。ここでもう一つ注意すべき点は、アニーリング曲線が変曲点を境にして急激に立ち上がる

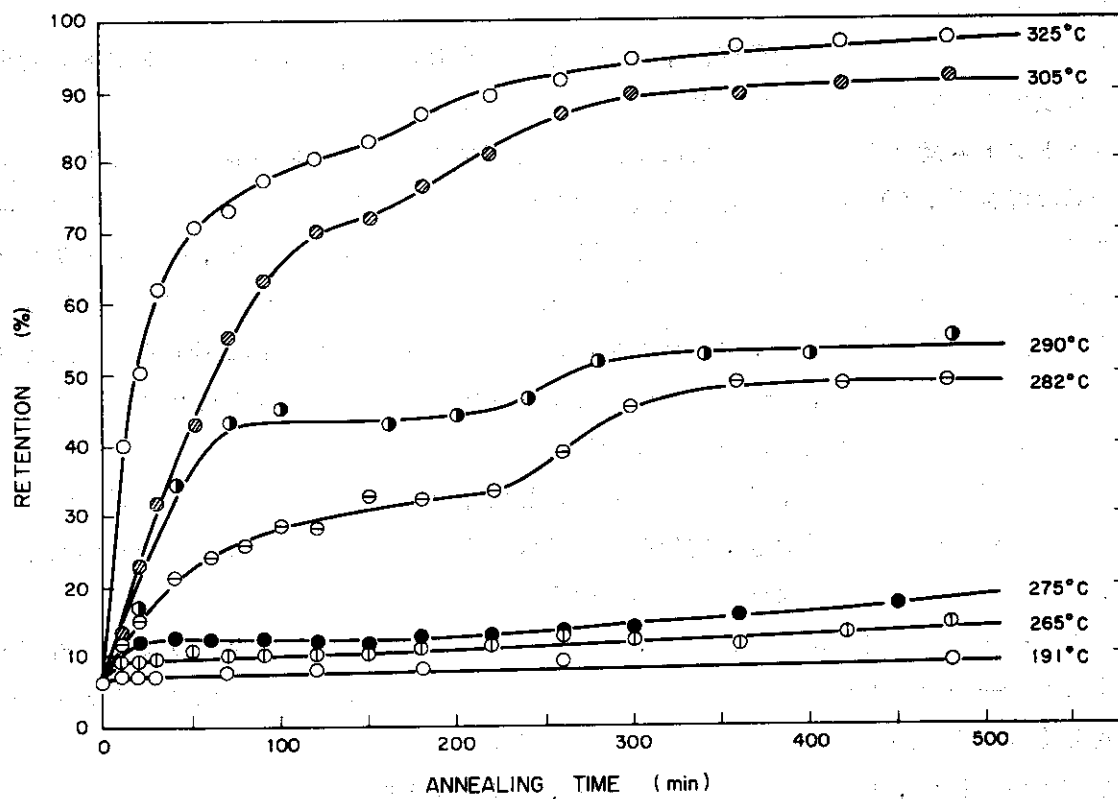


Fig. 3-16 Isothermal annealing curves of α -copper phthalocyanine

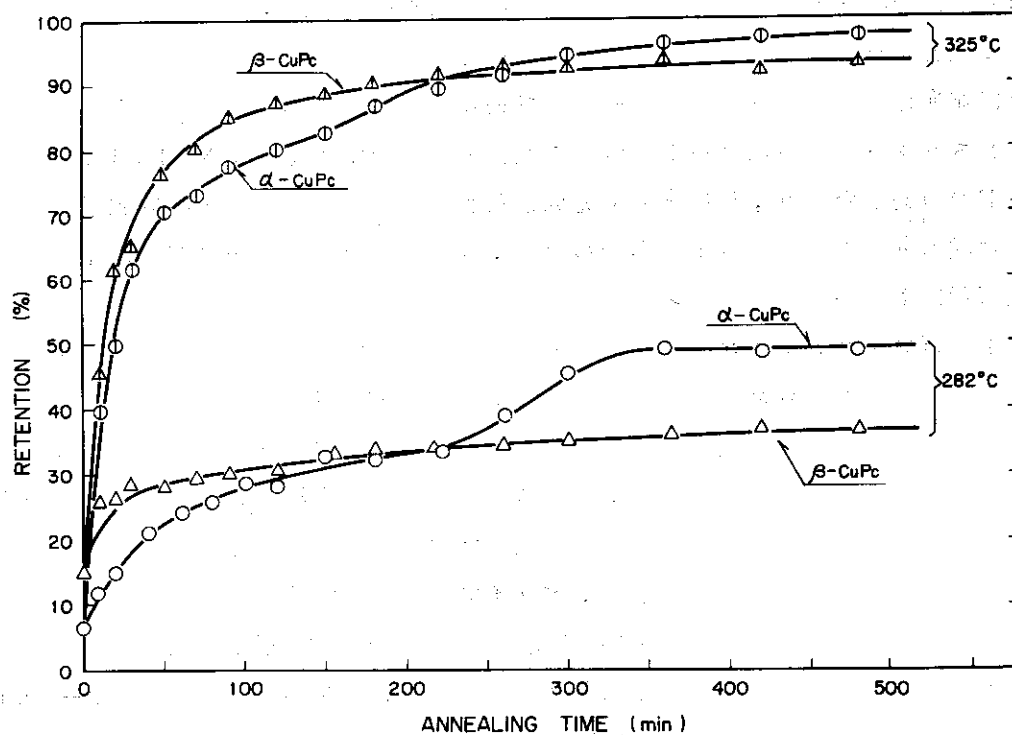


Fig. 3-17 Comparison of the isothermal annealing between α -CuPc and β -CuPc (β -CuPc was prepared from α -CuPc by heating at 300°C for 4hr.)

り、リテンションのプラトー値が β -CuPeのそれよりも高くなることである。

α -CuPeでのアニーリング曲線に対し、動力学的な解析を行なった。ここでFig. 18に示したように曲線を単調な過程（一次反応と仮定）と結晶形転移に影響されて進行する仮定（図の点線）とに分離し、解析をおこなった。後者は、全体のアニーリング反応に対し量的には大きなものではないが、変曲点および β -CuPeよりも高いプラトー値を説明するためには重要な意味を有しており、この部分について詳しく検討した。

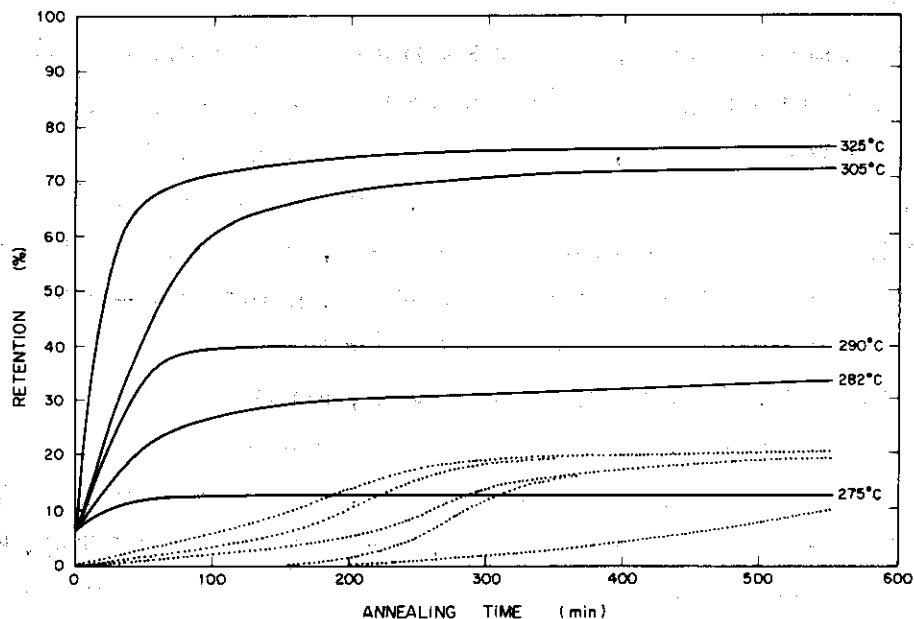


Fig. 3-18 Two components of the isothermal annealing processes in α -CuPe.

この遅れて起る反応は、結晶形転移が触媒的な役割を演ずると考えることによつて、次式で示されることが判明した。

$$[IC_2] = [IA_2] \{ 1 + 1/a \cdot \exp(-kt) \} \quad (1)$$

ここで $[IC_2]$ はリテンション、 $[IA_2]$ はアニーリングを受けるものの割合 (annealable portion), k は反応の速度定数である。パラメーター a は、遅れて起る反応の誘導期を決定するものであり、 α -CuPe 中に結晶形転移によつて生じてくる β -CuPe に対する濃度比に比例する量である。

解析の結果、結晶形転移にともなう効果として、次のようなことが考えられる。結晶形転移の進行とともに、新しい核の生成、格子の揺動、分子配置の変化がおこる。その際、結晶粒子の大きさ、表面の性質、欠陥濃度も変化し、遅れて起る反応を誘起させる原因となる。銅フタロシアニンの α - β 結晶形転移より転移熱が放出される。²⁾ このことは、実験に使用した試料の示差熱分析 (DTA) によつても確かめられている。この放出されたエネルギーは、stage II アニーリング反応をさらに加速する効果をもつものと考えられる。

この実験結果の考察から、格子間原子として存在する反跳原子、反跳現象によつて励起また

は“ゆがみ”を受けた分子、および結晶中の各種欠陥のもつ過剰エネルギーが、アニーリング過程で解放され、このエネルギーが固体フタロシアニン錯体における反跳原子の反応の駆動力として寄与することが示唆される。

1) H. Kudo, submitted to the Bull. Chem. Soc. Japan

2) J. H. Beynon and A. R. Humphries, Trans. Faraday Soc, 51, 1065

(1955)

3.9.2 Ge(Li) 検出系の与える γ 線スペクトルの解析コード BOB7-シリーズの開発¹⁾

前年度までに、Ge(Li) 検出系からの γ 線スペクトルを光電ピーク法によつて解析する電算機プログラムの主要部分を組立て、その解析結果の信頼度について、種々テストをおこなつた。今年度は、我々はこのプログラムを基本にして、それに他の機能をつけ加えたもの、オンライン用に改訂したもの等の variation を開発する一方、それらを用いてさまざまなスペクトル解析をおこなつた。これら一連のプログラムコードを、BOB7-シリーズと名づけた。ここに、このシリーズのそれぞれの内容と応用例とを列記する。

全体の原型というべき、最も基本となるプログラムは、BOB70²⁾である。これは、前年度中に完成していたプログラムに、開発途中では必要であつたが最終的に不要になつた部分の切捨て、インプットのやり方の改善などの整備をほどこし、完成された形に仕上げたものである。Ge(Li) による γ スペクトルデータの平滑化、ピークの探索と多重度の決定、標準線源を用いての γ 線エネルギーと強度の決定及びプロットの諸機能を備えている。核燃料の燃焼率測定に際して行われた燃料中の核分裂生成物の定量にも、このコードが用いられた³⁾

BOB70を、Ge(Li) 検出系による γ 線スペクトル以外のスペクトルにも用いられるように改造した。いわば汎用プログラムが、BOB71である。これはピーク探索のサブルーチンに手を加えて、どのようなピーク形を持つスペクトルであつても、その突出部分の面積が計算され得るようになつている。従つて、BOB70の持つ機能はすべてこの BOB71に含まれている。BOB71は、NaI(Tl) 検出系による γ スペクトル、ラジオガスクロマトグラフィスペクトル等の解析に応用され、良好な結果を示した。

計算センターでは、46年度には現存の計算機の規模を拡大すると同時に、FACOM230-35を用いるオンラインシステムによるデータ通信を行う計画を持つている。我々はセンターからの呼びかけに応じて、燃開室、炉計測と共同で、スペクトルデータを FACOM230-35 にオンラインで送り込みそれを解析する方法を確立すべく準備を開始した。その準備のひとつとして、BOB70を FACOM230-35用に改訂し、これを BOB72とした。230-35が記憶容量、計算精度共に230-60数分の一であることを考慮し、BOB72はBOB70を機能的に可成り縮小した形になつている。即ち、プロットのサブルーチンは取除き、チャンネルエネルギーの関係は一次式、計数効率は内挿法によつて求める等の簡略化がされている。

以上記述した BOB7-シリーズの開発と平行して、光電ピークを関数形にフィットさせ、多重ピークを分割するためのプログラムの開発を行つた。主として、ELSCINT 社製の 50cc の同軸型 Ge(Li) 検出器によるスペクトルを用いて、光電ピーク形にフィットさせるべき数を種々検討した。すでに発表されているスペクトル解析用プログラム(例えば SAMPO等)⁴⁾

では、光電ピーク形の非対称性を再現するために複雑な 数形が用いられているが、最近は検出器の性能が向上したため、我々の場合は1箇のガウス 数にフィットさせることにより満足すべき結果が得られることを確かめた。このフィッティングの機能をBOB71につけ加える作業を今年度から来年度にわたって進め、できあがったものをBOB73とする予定である。

- 1) H. Baba, H. Okashita, S. Baba, T. Suzuki, H. Umezawa and H. Natsume, J. of Nucl. Sci. and Technology, to be published
 - 2) 馬場澄子, 岡下宏, 馬場宏 JAERI-1216 (1971)
 - 3) 夏目晴夫他 原子力学会年会 (1971年4月, 大阪)
 - 4) J. T. Routti, S. G. Prussin, Nucl. Inst. and Meth. 72 125 (1969)
- 3.9.3 中程度の励起状態での核分裂の現象論的研究^{1,2)}

我々は核分裂の解明を目的として、 $^{238}\text{U}(p, f)$ 反応の詳細な研究を続けている。その結果、核分裂物質の系統的分離法³⁾、一部の核分裂物質の精密な測定⁴⁾、いくつかの核分裂物質にみられるような多量のエネルギー内部転換電子を伴って崩壊する核種の絶対測定法^{5,6)}および中程度の励起状態での核分裂における核荷電分布の系統性⁷⁾に関する論文が、すでに出版されている。今年度は、これらすでに得られた結果に基づき、12-55 MeV の陽子で引き起される ^{238}U の核分裂における、質量分布曲線と核分裂断面積とを求め、独自の方法で解析した。又、種々の核分裂反応の質量収率曲線における peak-valley 比の値を、2形式核分裂模型に基く立場で解析し、考察をおこなった。

各励起エネルギーにおける質量分布曲線は、Fig. 3-19 および 3-20に示されている。これらの曲線は、それぞれ非対称核分裂片の重い側と軽い側の分布および対称核分裂の分布に属する3つのガウス曲線でよく再現されることに着目して解析を行なった。解析法の詳細はここでは省略せざるを得ないが、それによつて得られた結果を次経述べる。重い分裂片の中心(M_H)、軽い分裂片の分布の中心(M_L)および全曲線の中心(M_0)は励起エネルギー(E_X)によつてFig. 3-21 のように変化する。 M_0 は対称核分裂片の分布の中心でもあると仮定すれば、その巾は非対称分裂片の分布の巾(α)の1.1倍となる。 α と E_X との関係は、Fig. 3-22 のようである。分裂核の質量数は239であるから、核分裂あたりの放出中性子数(ν)と M_0 は、

$$239 = \nu(E_X) + 2 \times M_0(E_X)$$

なる関係を持つ。我々は、すでに核荷電分布の系統性の研究から $\nu(E_X)$ を求めているが、その値と上式から得られる M_0 は、質量分布曲線から得た M_0 と、Fig. 3に示すようによく一致している。このように全く異つた方法で独立に得られた M_0 なる値がよく一致するという事実は、我々の解析の妥当性を示すものとして重要なことであると考えられる。

励起エネルギー50 MeV以上の核分裂では、上記の50 MeV以下の場合とは事情が異つて来る(Fig. 3-20)。それは直接過程の反応が複合核過程の反応に混入するためと考え、直接反応の寄与を考慮に入れた解析も行つた。

我々の求めた $^{238}\text{U}(p, f)$ 反応を含め、種々の核分裂反応について、peak-valley 比の

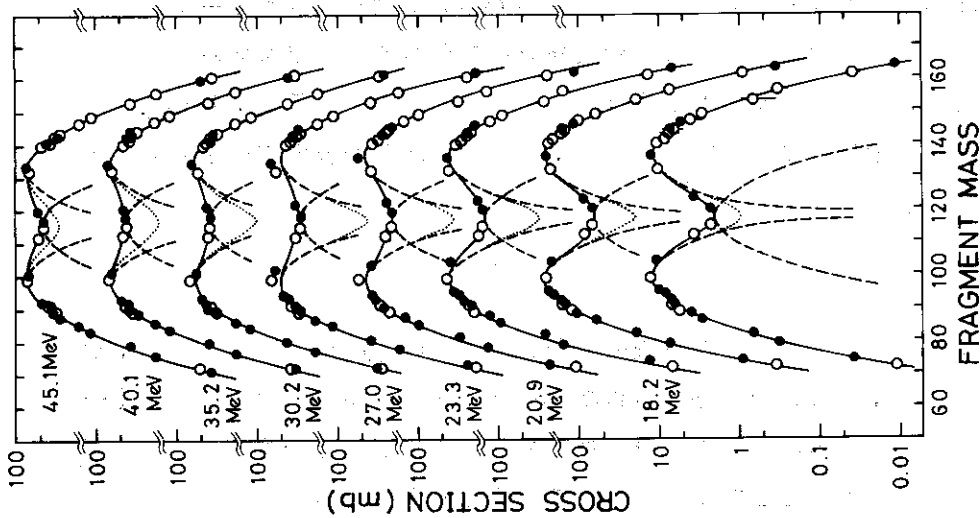


Fig. 3-19

The mass-yield curves. Open circles are observed values and closed circles are their mirror points. The dashed lines represent the resulting mass distribution curves both for the symmetric and asymmetric modes of fission; the sum of the three dashed curves equals the observed mass-yield curve drawn with the solid line.

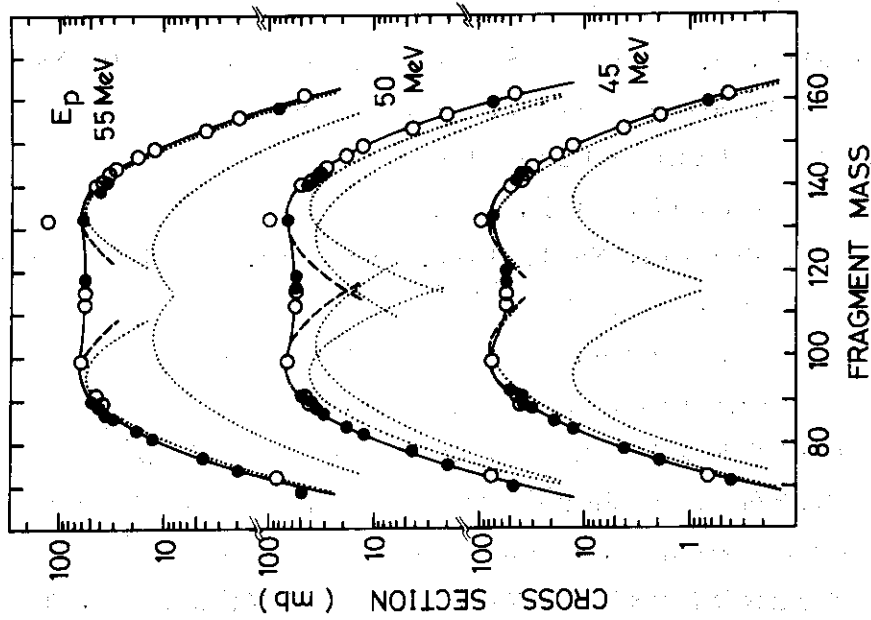


Fig. 3-20

Mass-yield curves obtained in the three proton energies, 45, 50 and 55 MeV.

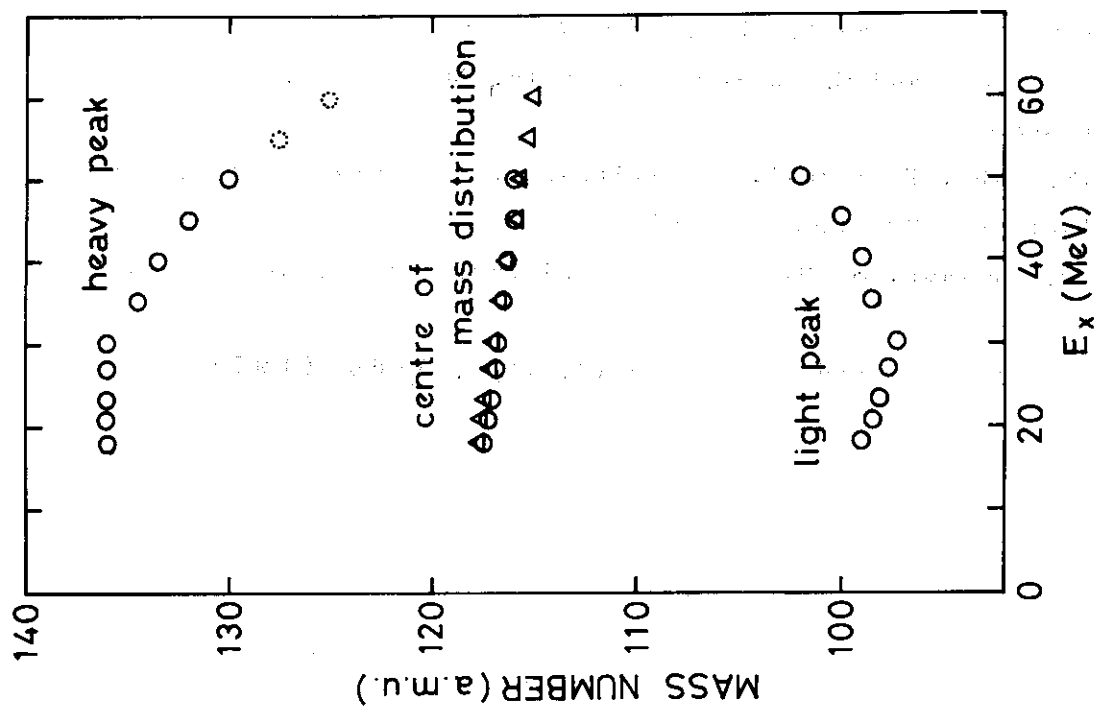


Fig. 3-21

The energy dependences of peak positions, ML, MH and MC. Triangles represent the mass distribution centre deduced from the systematics of most probable change

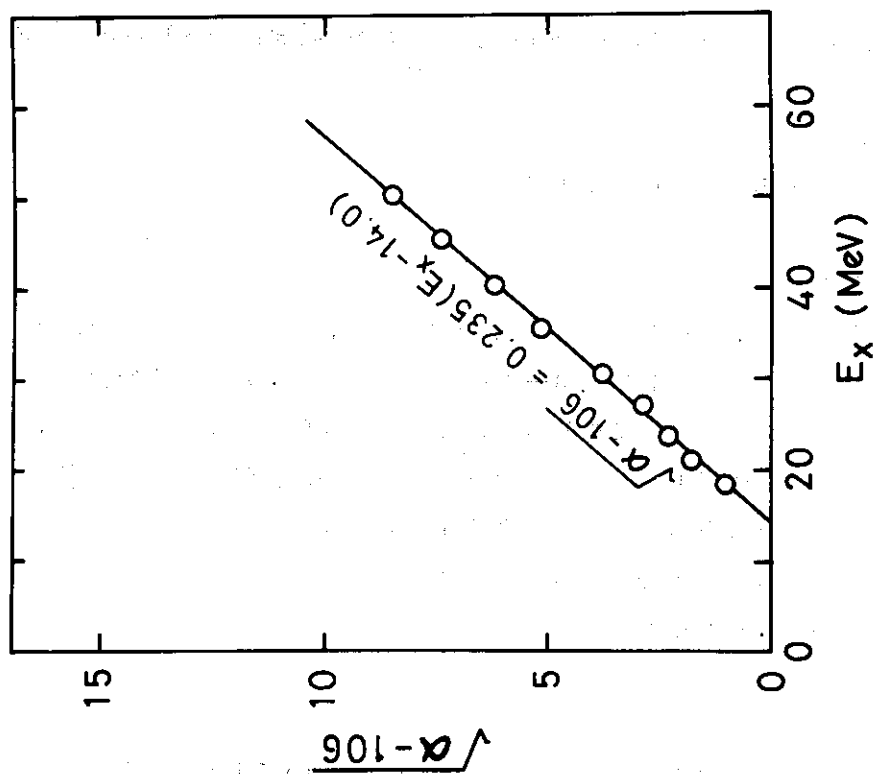


Fig. 3-22

The energy dependence of the width parameter, α , for the asymmetric mass-yield peak.

データを集め、そのエネルギー依存性を2つの仮定をした上で解析した。それらの仮定は、

a) 対称モードおよび非対称モードの核分裂は、独立の過程を経る反応であつて、それぞれ異つた saddle を持つ、

b) peak-valley 比(R)は非対称核分裂断面積(σ_a)と対称核分裂断面積(σ_s)の比と比例する。すなわち、

$$\frac{\sigma_a}{\sigma_s} = c \times R \quad (c \text{ は常数})$$

が成立するといふものである。

解析過程は省略するが、その結果、種々の核分裂反応についての、対称核分裂の障壁の高さ(B_s)とその巾(W_s)が得られた。 B_s はFig. 3-23に示すように、非対称核分裂の場合と異り分裂核の Z^2/A および Z の2つの値に支配されることが明きらかとなつた。また、中程度の励起エネルギー範囲では、中性子1個放出後の核分裂が圧倒的に優勢であることが結論された。このことは、中性子放出と核分裂の競争に関するJackson-Vandeboschの模型を拡大して中性子放出と対称および非対称核分裂の競争に関する模型とし、これを用いて行つた計算結果とよく一致した。同時に、それぞれの反応断面積を算出し、実験結果と比較したのがFig. 3-24である。

- 1) 馬場澄子, 梅沢弘一, 馬場宏 JAERI-memo 4412 (1971) 非公開
- 2) 馬場宏, 馬場澄子 JAERI-memo 4411 (1971) 非公開
- 3) H. Natsume, H. Umezawa, T. Suzuki, F. Ichikawa, T. Sato, S. Baba and H. Amano J. Radioanal. Chem. 7(1971) 189.
- 4) S. Baba, H. Baba and H. Natsume J. Inorg. Nucl. Chem. 33(1971) 589
- 5) H. Baba, S. Baba, T. Suzuki, I. Ishikawa and H. Umezawa Int. J. appl. Radiat. Isotopes 21(1970) 607
- 6) H. Baba, H. Umezawa, S. Baba and I. Ishikawa Int. J. appl. Isotopes 22(1971) 141
- 7) H. Umezawa, S. Baba and H. Baba Nucl. Phys. A160 (1971) 65

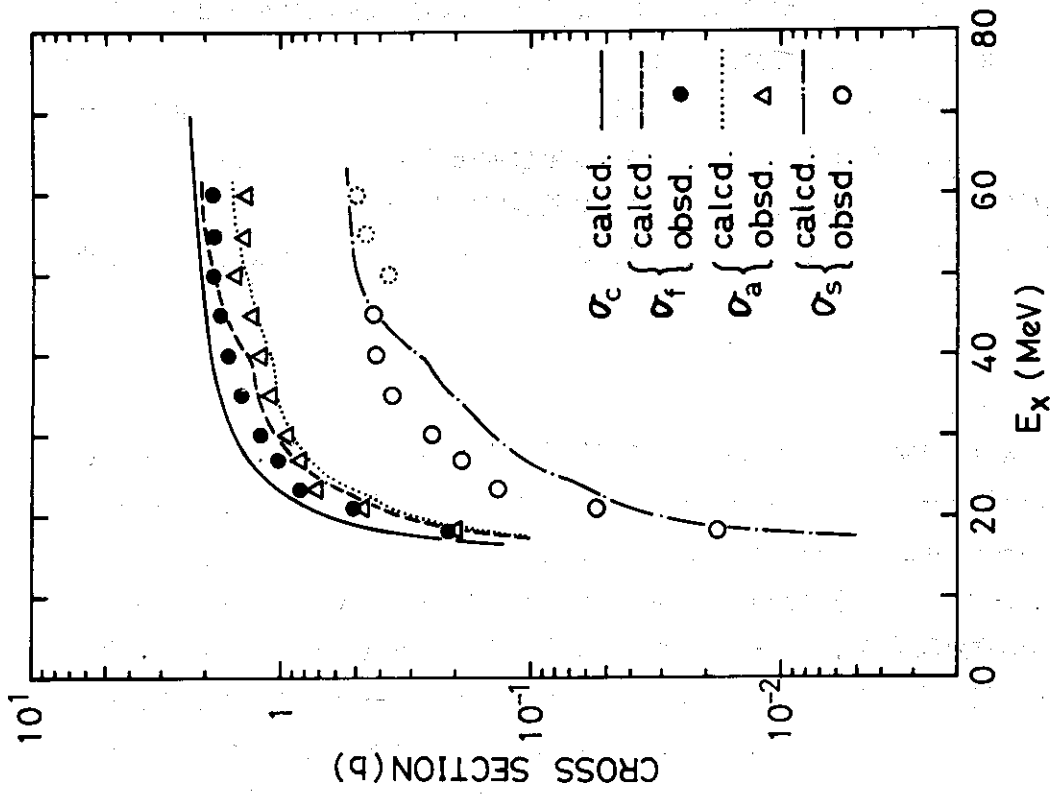


Fig. 3-24

Observed and calculated cross sections.

The solid line represents the compound nucleus formation cross section by the optical model calculation.

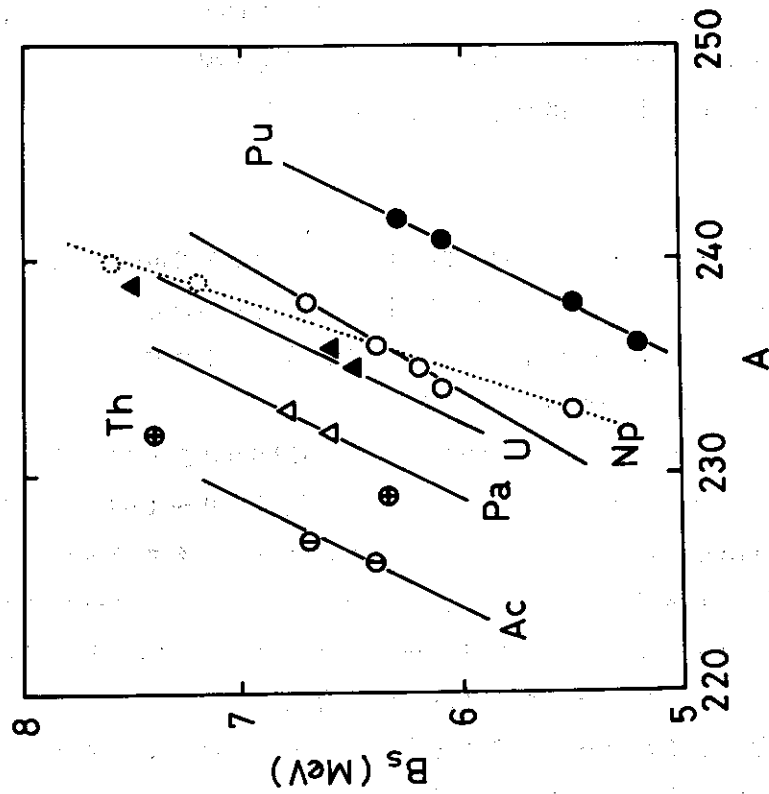


Fig. 3-23

Observed symmetric fission barriers plotted versus the fissioning mass A.

3.10 RI 製造施設および機器の開発

昭和35年度より設計，稼動されている各種製造用セルの諸経験に基き， ^{14}C 製造用セルの設計，建設をおこなった。設計に当つては製造第1係，第3係，製造技術課技術第2係の関係者で討論を重ね製造第3係が主となつて発注仕様書を作成した。

建設費は2,375万円，工事期間は約3ヶ月を要した。そのほか製造5係と協力し汎用ケーブの後面扉の自動化の設計，管理地域における工事管理を放射線管理室の協力を得ておこなった。特殊線源自動取扱い装置の設計およびモックアップ試験に協力した。

製造施設関係の設計図等資料も膨大な数になつていたので次年度もマイクロ図化の作業を続ける。

3.10.1 ^{14}C 製造用セルの設計および製作

(1) 概要並びに設計条件

RI 製造棟310室の ^{32}P 製造用セルに隣接して掘付けた ^{14}C 製造用セルは，原子炉照射したA β N（粉末成型焼結ターゲット）から乾溜法によつて ^{14}C 製造する装置でその取扱量は年間2～3回，200～500gのターゲットで約5Ciとした。

本セルは（Fig. 3-25 参照）は鉛100mm相当厚の遮蔽を持つてA・Bに区分けされた鉛セル1基と固体廃棄物処理装置，グローブボックス， ^{14}C 乾溜用電気炉とその制御系，給排水・給電・給ガス・換気の諸設備からなつてゐる。鉛セル内のインナーボックスは中央部を仕切り ^{32}P セル側のA部でカプセルの搬入，開封，ルツボへのターゲット投入のほか照射済カプセル屑やルツボなどの固体廃棄物の投棄操作を行なう。B部ではA部から台車で移送されたターゲット入りのルツボを電気炉内へ挿入してA β Nの乾溜を行ないその燃焼ガスはグローブボックスC部のガス酸化炉に送る。グローブボックスC部で CO_2 ガスの吸収， CO_2 ガスの反応（ BaCO_3 生成），グローブボックスD部は製品の保管・配分・取出しなどとしてセルA部からグローブボックスD部まで一連の作業ができるものとした。

(2) 各部構造概略

a 鉛セル

定常作業時の前面・側面・後面各遮蔽体表面での線量率を2mR/h以下として極端な放射線漏洩を避けるよう段付はめ込み構造を採用した。附属機器として鉛ガラス，ボールソケット，トンクマニプレータ，ブーツ，貫通軸および貫通管，ドロワ方式試料搬入装置，固体廃棄物連絡管など取りつけた（Photo3-2）。

インナーボックスは1,920巾 × 900奥行 × 1,200高さの大きさを有し作業面の床荷重200kg/m²の強度をもたせた箱型とした。換気回数0～100回/時，通常30回/時，常用-25mmAqで運転するものとして，インナーボックスの気密度は $\pm 200\text{mmAq}$ で24時間放置して1%以内の漏洩率とした。給排気系共グラスウールフィルタとAECフィルタを各1枚づつ収納できるフィルタケースをセル天井遮蔽体の上に取りつけてフィルタの目詰り，排気流量，インナーボックス内差圧（警報発信型）など換気状態の監視用測定器計器を設けた。その他インナーボックス附属機器はルツボ台車，カプセルカッター，電気炉，給電パネル，給排水設備，給ガス設備など設けた。

b グローブボックス

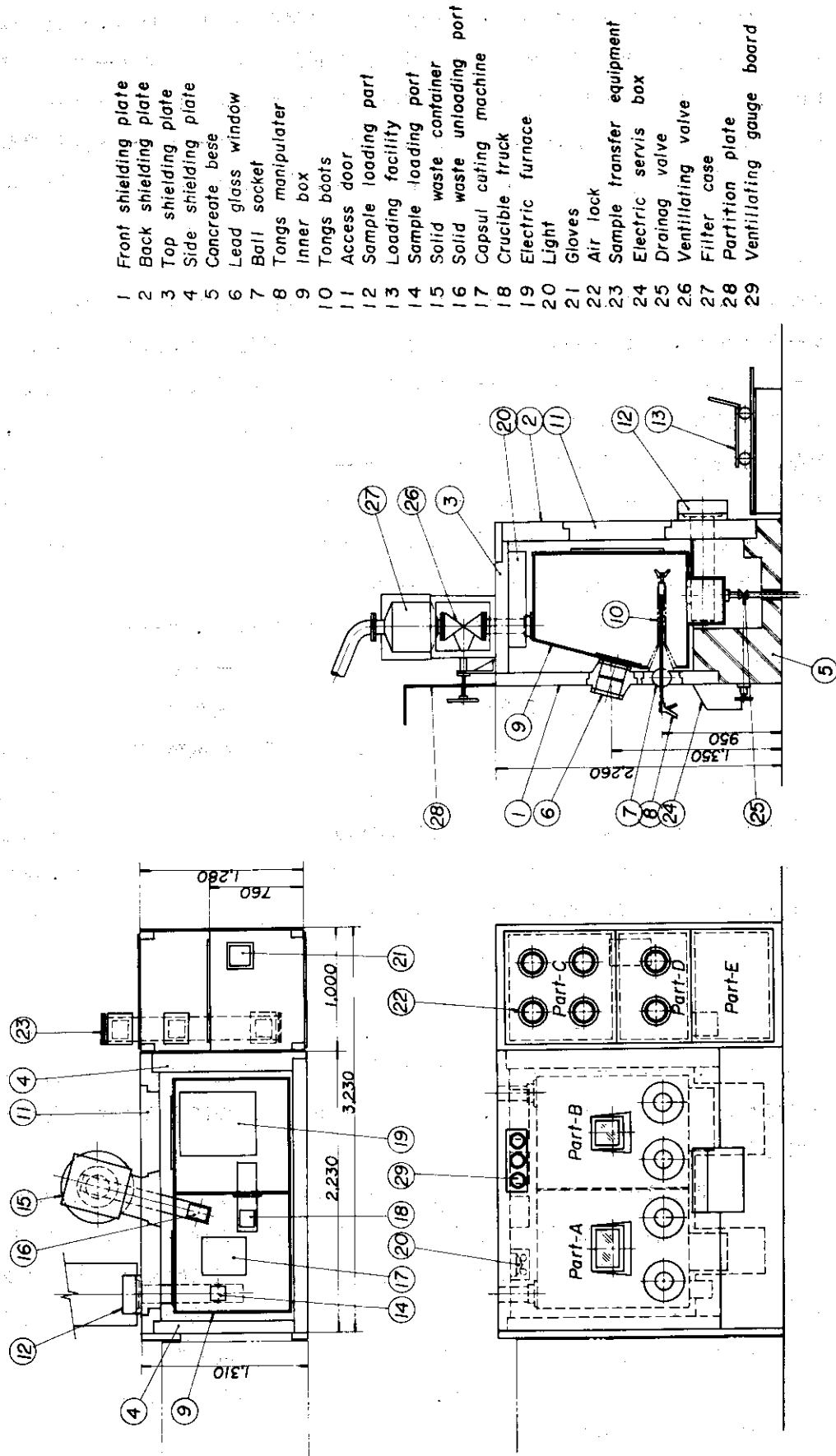


Fig. 3-25 C-14 PRODUCTION CELL

1,000巾 × 1,310奥行 × 2,250高さ のグローブボックスでガス酸化炉を取りつけて化学処理を行なうC部，製品を天秤で秤量・配分する内部空気を置換したD部，給気の取入れ口とソーダライムトラップと真空ポンプなどを配置したE部からなる。グローブボックスの前後面に10mm厚の亚克力板を用い天井・側面・底面は鋼板製とした。グローブの取付数量はC部前面と後面に各4個，D部前面に2個取り付けそのグローブポートは動燃型（樹脂製成型品）を使用した。その他換気，給排水，給ガス，給電などの附属設備は鉛セルの各仕様に準じた。

c 固体廃棄物処理装置

照射済カプセルやA₂N₂の屑，燃焼用ルツボなどの固体廃棄物をセル外で一時保管するためのものでカートリッジ，鉛100mm厚遮蔽付鉛容器および気密連絡管，鉛容器台車，基板，架台，シーラーからなる。連絡管はインナーボックスA部の廃棄物投入口から後面遮蔽体を貫通してセル背面の鉛容器内に収納したカートリッジに廃棄物を投入するためのもので，補助具として手動の廃棄物台車に載せて運ぶ。連絡管とカートリッジ間の気密保持には³¹Iや³²Pのセルで採用しているビニール袋をハンダイタイプの加熱式シーラーを用いて密封する方式とした。カートリッジは $300^{\phi} \times 300^h$ で内容積約21ℓとし1.6mm厚の鋼板製で内外面共エポキシ樹脂系塗料を塗布した（Photo 3-3）。

本装置の仕様検討段階でビニール袋の密封度の信頼性に疑問を抱き，カートリッジと連絡管を圧接して相互間の気密を保ち，廃棄物を処理場へ出すためにカートリッジと連絡管を離す場合，機械的動作によつて遠隔操作で各々別個に気密が可能な構造を設計した。これは諸外国にも類似例のある機構なので気密した時に円周状に残る汚染源は機械的な配慮によつて取り除けるものとして45年12月に起工した。しかし契約業者（芳沢機工K.K.）と種々検討の結果①¹⁴Cの半減期約5,000年と長く円周状汚染源からの内部被爆の可能性と危険性。② 気密機構に相当な精度が要求されるため製作費がかさむうえ鉛容器本体，連絡管共それぞれ約1.1トンという重量物になるため微調整が難しい。以上の2点から当初案をとりやめ前述したビニール袋方式に変更した。

d ¹⁴C乾溜用電気炉

インナーボックスB部に設置したもので電気炉本体，燃焼管，ルツボ支持台付上下装置，架台，計装盤からなり，オペレーションエリアの電気炉制御用計装盤による自動運転とトングマニプレータで行なうルツボの移動操作，電動およびハンドル操作によるルツボ上下装置の作動が円滑にできるものとした。

電気炉の電源として3相200Vを使用し炉心部（ルツボ挿入部）の常用温度 $1,100^{\circ}\text{C} \pm 50^{\circ}\text{C}$ とし，囲りの断熱材の外側には水冷ジャケットを巻きその表面温度を 50°C 以下とした。炉心管は使用せず燃焼管を直接加熱する形式で燃焼管の上端にはガス流出用プラグ（銅管接続 $8^{\phi\text{OD}}, 6^{\phi\text{ID}}$ ）と水冷却をかねた気密金具を取りつけた。燃焼管下部にも上部同様気密保持兼水冷ジャケットと雰囲気ガスの供給口を設けた。自動温度制御用としてPR熱電対を用いた温度検出部発信式自動温度調節計，電磁関閉器などからなり，冷却水の温度や断水検知器と連動させる電気回路を設けた。

(3) まとめ

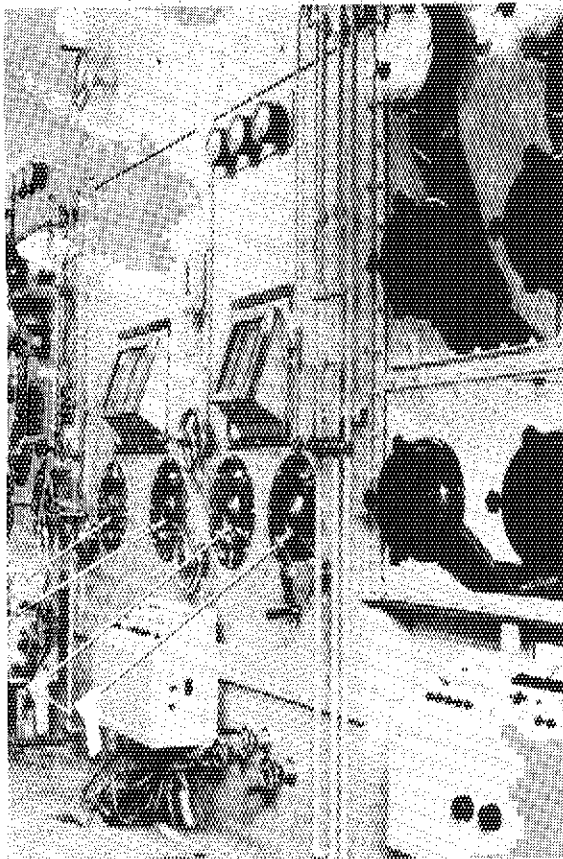


Photo-3-2

Front view of C-14 Production cell

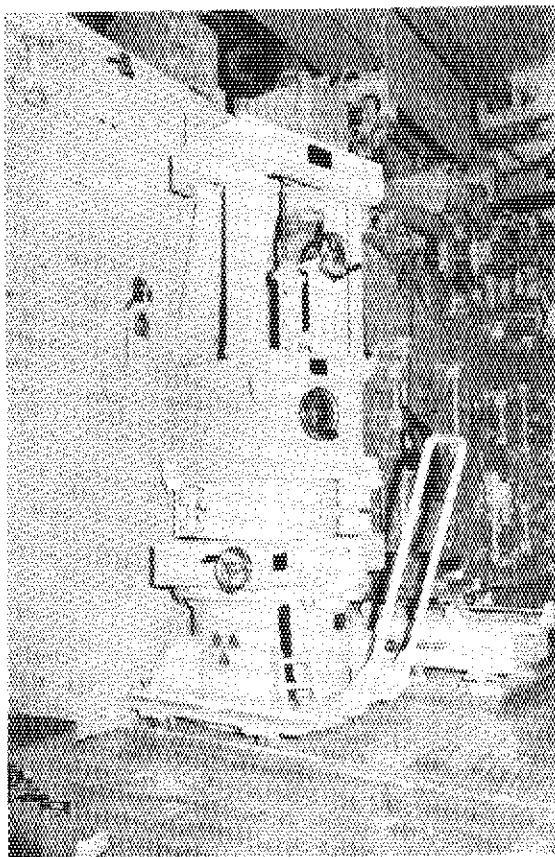


Photo-3-3

Solid waste equipment

本セル使用核種が ^{14}C のみと専用セルであるために仕様決定には焦点の絞り易さがあつた反面、専用セルであるがために微細な点まで十分な注意を要した。しかし鉛セル、固体廃棄物処理装置、電気炉などの設計にあたり製造1係、3係、技術2係からなるワーキンググループを編成して44年12月12日の第1回打合せ46年6月12日まで18回会議を重ね同年6月16日の起票に漕ぎつけることができた。翌46年3月25日にセル本体関係、7月9日に固体廃棄物処理装置がそれぞれ寸法・機能・気密・水密・放射線漏洩の検収試験に合格した。

最後に本セル設計担当者として ^{14}C の安定した定常生産を希望すると共に既設セルを含む今後のセル設計上の問題点として検討を要する点を2点下に記す。

- (1) 被爆（内外部被爆）の少ない固体廃棄物処理可能とする方式の考案。
- (2) カートリッジ、ブーツ取付座、フィルタ交換機構その他部品類、解体用治具などの規格化、標準化。

4. あ と が き

まえがきにも述べたごとく、本報告は昭和45年度においてえられた製造部の技術成果を、ハイライト形式でまとめたものである。

45年度当初に策定された計画はすべて順調に達成されたが、なかんずくJMTRが定常製造などの具体的な手段としての役割をはつきりさせはじめたことは今後のRI製品の動向を示す上で大きな意義を持つものと思う。

また、再処理工場からの廃液の処理を考慮した、核分裂生成物からの有用RI製造技術の開発は、今後の日本の原子力エネルギー供給体制の重要な一環としての役割を製造部が担う決意を示したもので、劃期的な転換と云えよう。

終りに本報告中に述べられた成果の殆んどは、研究炉管理部、保健物理・安全管理部、技術部、管理部などの研究支援部門および事務部門の方々の御助力に負うて遂行できたものであり、ここに記して厚く感謝する。

付録 1

昭和45年度口頭発表一覧

	題 目	発 表 者	発 表 機 関
1.	中性子照射した三酸化モリブデンからの ^{99m}Te の拡散と分離	館盛, 中村, 天野	日本化学会23年会 東京 (1970, 4)
2.	^{35}S 標識亜硫酸ナトリウムの製造	加瀬, 棚瀬, 四方, 天野	"
3.	イリジウム, フタロシアニンでの反跳現象にみられる照射時間の影響	工藤, 吉原	"
4.	クロム酸塩の熱中性子照射で生ずる ^{51}Cr における γ 線照射の影響	栗田, 葉, 天野, 田中,	"
5.	γ 線に対する NaI(Tl) 検出系の応答関数パラメータの系統性	関根, 馬場(澄), 馬場(宏)	"
6.	RI 製造施設について	立川	日本原子力学会第13回 エンクロージャ研究専門委員会(原研) (1970, 5)
7.	水銀照射技術の開発	山林, 小野間, 鈴木 伊藤	"
8.	放射化法によるヨウ素漏洩度試験	館盛, 久保田, 中村, 天野	日本原子力学会, 千葉 (1970, 10)
9.	NaI(Tl) 検出器系におけるパルススパイルアップによる誤差	関根, 馬場(宏), 天野	放射化学討論会, 千葉 (1970, 10)
10.	銅フタロシアニンにおける反跳原子の挙動におよぼす結晶形転移の影響	工藤, 天野	放射化学討論会, 千葉 (1970, 10)
11.	縮退した系および変形核の準位密度	馬場(宏)	"
12.	フタロシアニン亜鉛のチラルドチャルマー法による高比放射能 ^{65}Zn の分離	高橋, 黒沢, 田中, 天野	"
13.	酸性溶液中におけるヨウ素-131の実験装置表面への吸着	久保田, 天野	"
14.	Ge(Li) 検出器による γ 線スペクトル解析コード	馬場(澄), 鈴木, 岡下, 馬場(宏)	"
15.	ペーパークロマトグラフ法による放射性水銀製品中の第一水銀, 第	上沖, 海老原, 鈴木	日本分析化学会, 第20 年会, 名古屋(1970, 10)

16.	第二水銀，および銀の分離定量 RI の製造	望月	原産関西原子力懇談会主催，放射線シンポジウム 大阪，(1970,11)
-----	--------------------------	----	--

付録 2

昭和45年度所内刊行技術資料一覧

	題 目	著 者 名	刊 行 形 式
1.	FPからのRI製造 (調査報告)	天野 恕，中村治人， 久保田益充， 高橋智子，館盛勝一	JAERI-report 4051 (1970,7)
2.	Decay Analyses of Some Fission Product Nuclides with Medium Half-lives.	馬場澄子，馬場宏， 梅沢弘一，鈴木敏夫 佐藤忠，夏目晴夫， 関根俊明，馬場宏，	JAERI-report 1211 (1971,7)
3.	NaI(Tl) 検出器系におけるパルス スパイルアップ効果	山本尚道，小野間克行 本石章司	JAERI-memo (公開) 4144 (1970,9)
4.	Hg-197, 203の製造(II) 製造技術の開発	久保田益充，天野 恕	JAERI-memo (公開) 4220 (1970,10)
5.	(n,γ)反応により製造する精製 RI 中の不純物 ¹⁶⁰ Tbの純度	久保田益充，天野 恕	JAERI-memo (公開) 4280 (1971,1)
6.	(n,γ)反応により製造する精製 RI 中の不純物 ¹⁶⁵ Ybの純度	久保田益充，天野 恕	JAERI-memo (公開) 4279 (1971,1)
7.	製造部技術年報 No. 3 (昭和44年度)		JAERI-memo (公開) 4285 (1971,1)
8.	硫酸銅の熱分解を利用した ³⁵ S 標識亜硫酸塩の製造	棚瀬正和，加瀬利雄 四方英治，天野 恕	JAERI-memo (未公開) 4040 (1970,6)
9.	無機標識化合物の製造 その技術開発上の問題	四方英治	JAERI-memo (未公開) 4059 (1970,6)
10.	製造部の運営記録 No. 3 (昭和44年度)	望月，天野	JAERI-memo (未公開) 4202 (1970,11)
11.	ND520型Pulse Height AnalyzerのDead Timeと信頼性	関根俊明，馬場宏	JAERI-memo (未公開) 4269 (1971,1)
12.	活性炭に吸着した浮遊ヨウ素の回収と定量	館盛勝一，久保田益充 中村治人，天野 恕	JAERI-memo (未公開) 4278 (1971,1)
13.	酸性溶液中におけるヨウ素-131 のガラスおよびプラスチック容器 表面への吸着と漏洩	久保田益充，天野 恕	JAERI-memo (未公開) 4277 (1971,1)

14.	^{192}Ir ラジオグラフィ線源の生成量に影響する各種因子の考察	小野寺敏美, 中村治人 加藤久, 立川克浩, 武藤利雄	JAERI-memo (未公開) 4293 (1971, 1)
-----	---	-----------------------------------	------------------------------------

付録 3

昭和45年度学術誌発表一覧

	題 目	著 者 名	発表機関誌名
1.	A Study on the Preparation of ^{35}S -Labeled Elementary Sulfure	加瀬利雄, 棚瀬正和 四方英治, 天野恕	J.Nucl. Sci. Tech., 7, (4) 190-196 (1970)
2.	Loss of ^{35}S -labeled Elementary Sulfur During Counting	四方英治, 加瀬利雄 棚瀬正和,	J.Nucl. Sci. Tech., 7, (4) 210-212 (1970)
3.	Ir-192 線源の γ 線自己吸収	櫻本茂正, 小野寺敏美 加藤久	日本原子力学会誌, 12(4) 174-178 (1970)
4.	The Absolute Measurement of Beta-disintegrating Nuclides Emitting Conversion Electrons with Appreciable Proportions	馬場宏, 馬場澄子, 鈴木敏夫, 石川勇, 梅沢弘一,	Int. J. Appl. Rad. and Isotopes, 21, 607-617 (1970)
5.	Chemical Behavior of Chromium Recoil Atoms Produced in Various Chromates under Low Temperature Irradiation.	葉錫溶, 柴田長夫, 天野恕, 吉原賢二, 工藤博司,	J.Nucl. Sci. Tech., 7, (6) 300-3 (1970)
6.	"Appearance Energy" and Energy Dependence of the Recoil Product Yield in Indium Ethylene-diamine-tetra-acetate by the $^{115}\text{In}(\gamma, \gamma) ^{115}\text{In}$ Reaction.	吉原賢二, 工藤博司	J. Chem. Phys., 52, (6) 2950-2953 (1970)
7.	Chemical Behavior of Cadmium-115 Recoil Atoms in Neutron Irradiated Cadmium Phthalocyanine.	工藤博司, 吉原賢二	J. Inorg. Nucl. chem, 32, 2845-2851 (1970)
8.	A New Target Material for the Production of I-131	四方英治	J.Nucl. Sci. Tech., 7, (9) 481-483 (1970)

9.	「再処理廃棄物からのラジオアイソトープの製造とその利用」3. FP 分離, 4.むすび	天野 恕, 中村 治人, 望月 勉	日本原子力学会誌, <u>12</u> , (10) 597-610 (1970)
10.	RI の製造	望月 勉	原産編集テキスト“実用へ向う放射線と RI” (1971)
11.	Chemical Behavior of Recoil Atoms Produced by Various Nuclear Process in Metal Phthalocyanine Complexes.	楊末雄, 柴田長夫, 吉原賢二	Radiochim. Acta, <u>15</u> (1) 17-20 (1971)
12.	低温濃縮	保泉 澄	Isotope News, <u>14</u> (1971)
13.	Half-lives of Some Fission Product Nuclides	馬場宏, 馬場澄子, 夏目晴夫	J. Inorg. Nucl. Chem., <u>33</u> , 589-595 (1971)
14.	トリチウムの再生産	天野 恕	日本原子力学会誌, 「特集」 <u>13</u> , (5) 284-287 (1971)
15.	Diffusion of Tc-99m in Neutron Molybdenum Trioxide and Its Application to Separation.	館盛勝一, 天野 恕, 中村 治人	J. Nucl. Sci. Tech., <u>8</u> , (6) 295-301 (1971)
16.	Preparation of ³⁵ S-labeled Sulfite by Phrolyzation of Copper (II) Sulfate.	棚瀬正和, 加瀬利雄 四方英治	J. Nucl. Sci. Tech., <u>8</u> , (6) 302-308 (1971)
17.	Preparation of Tc-99m by Direct Adsorption from Organic	館盛勝一, 天野 恕, 中村 治人	J. Nucl. Sci. Tech., <u>8</u> , 357-362 (1971)
18.	Systematic Radiochemical Analysis of Fission Products.	夏目晴夫, 梅沢弘一 鈴木敏夫, 市川富士夫 馬場澄子, 天野 恕	J. Radioanalytical Chem., <u>7</u> , 189-202, (1971)
19.	4 $\pi\beta$ - γ Coincidence Absolute Measurement of Nuclides Emitting Soft Conversion Electrons in Appreciable Proportions.	馬場宏, 梅沢弘一, 石川 勇, 馬場澄子,	Int. J. Appl. Rad. and Isotopes, <u>22</u> , 141-148 (1971)