

93ZJ-1850E-0010C  
PNC TJ 6409 93-001  
JC93-0056

01

公開資料

## 安定同位体分離に関する調査

(動力炉・核燃料開発事業団 委託調査成果報告書)

1993年10月

株式会社 ペスコ

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒708-06 岡山県苫田郡上斎原村1550

動力炉・核燃料開発事業団

人形峠事業所

ウラン濃縮工場・ 技術課

Inquiry about copyright and reproduction should be addressed to: Enrichment  
~~Engineering~~  
~~Technology~~ Section, Enrichment Service and Technology Division, Uranium  
Enrichment Plant, Ningyo-toge Works. Power Reactor and Nuclear Fuel Develop-  
ment Corporation, 1550 Kamisaibara-son, Tomada-gun, Okayama-ken, 706-06, Japan

- 動力炉・核燃料開発事業団(Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) 1993

公 開 資 料

PNC TJ 6409 93-001

1993年10月

安定同位体分離に関する調査報告書

Survey Report on Stable Isotope Separation

報告者 武藤 正\*  
堤 健一\*  
広野修一郎\*  
武田 宏\*\*  
瀬川 猛\*

要 約

安定同位体の利用は医療、農業及び特に各種研究開発において、近年年ごとに需要が増大している。このための同位体濃縮技術は、古典的な電磁分離法や蒸発濃縮法が大部分で、軽元素が多いことと、需要が量的にそれ程大きくないため、遠心分離による同位体濃縮技術は旧ソ連やアメリカ等で試験的規模で行われたに過ぎない。本調査は遠心分離法の安定同位体への利用の可能性を検討したもので、医療関係、農林水産関係、バイオ関係、化学工業関係、核燃料再処理や原子炉材料等を含む原子力関係、及び核融合関係等を対象として、安定同位体に関する利用の状況、市場ニーズ、需要量、生産方法と価格について調査を行ったものである。調査方法としては、科学情報検索システムによるキーワードによる文献検索及び他の手段により関連文献を収集し、それらの情報を、核種別のフォーマットにまとめると共に、各分野の現状を総括し、最後に遠心分離法の適用性に触れた。

---

本報告書は(株)ペスコが動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した調査の成果である。

契約番号：05C0346

事業団担当課 人形峠事業所ウラン濃縮工場・生産技術部試験課

報告者の所属 \* (株)ペスコ 相談役及び顧問、\*\*同エンジニアリング事業部長

October, 1993

Survey Report on Stable Isotope Separation

Reported by Tadashi MUTO \*  
Kenniti Tsutsumi \*  
Shuichiro HIRONO \*  
Hiroshi TAKEDA \*  
Takeshi SEGAWA \*

A B S T R A C T

Recent increasing demand is noticed on the stable isotopes needed for medicine, agriculture and especially for research and development work. Classical electro-magnetic technics or evaporation separation is mostly used for their isotope enrichment, and isotope separation by means of centrifuge technology has been tried in a small scale in US and Russia. This literature survey aims to examine possibility of enrichment of stable isotopes by centrifuging, to obtain information on its utilization for medicine, agriculture, fishery, bionics, chemical industry, nuclear industry including reprocessing and reactor materials and nuclear fusion. Items surveyed for stable isotopes are status of utilization, commercial need, demand, method of production and prices, by information obtained by key word search of database and other means. The information is summarized and examined also for centrifuging application, together with registration in a format for every nuclide.

---

Work performed by PESCO Ltd. under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison; Enrichment Technology Section, Enrichment Service and Technology Division, Uranium Enrichment Plant, Ningyo-toge Works.

\* PESCO Ltd.

## 安定同位体分離に関する調査目次

はじめに .....	1
1. 最近5ヵ年の文献検索結果及び事業団提示の情報 .....	2
1.1 J I C S T検索結果 .....	2
1.1.1 J I C S T検索件数 .....	2
1.1.2 文献検索により取り寄せ検討した文献 .....	3
1.2 動燃事業団提示の情報 .....	4
1.3 関連雑誌に現れた情報 .....	5
1.4 安定同位体取扱会社の情報 .....	5
2. 主要文献情報の内容 .....	8
2.1 安定同位体利用の全般計画 .....	8
2.2 安定同位体の医学関係への利用 .....	20
2.3 安定同位体の農業関係への利用 .....	44
2.4 材料開発及び原子力における同位体分離 .....	64
2.5 安定同位体利用の基礎研究及び濃縮技術 .....	74
2.6 安定同位体の需給と生産コスト .....	101
2.7 安定同位体の核種別特記事項 .....	103
3. 遠心分離法を適用する場合の課題等 .....	104
3.1 遠心分離法の概要 .....	104
3.2 遠心分離法への適用性 .....	105
3.3 経済性と需要見込み .....	106
4. まとめ及び今後の展開 .....	108
4.1 まとめ .....	108
4.2 今後の展開 .....	108
4.3 遠心分離機への適用性 .....	109

### 付録 核種別情報データ

(① 需要量、② 生産方法、③ 価格、④ 特記事項について記載)

表一覧

表1.1	J I C S T 検索件数 (安定同位体) .....	2
表1.2	J I C S T 検索件数 (同位体) .....	2
表2.1.1	ORNLにおける同位体分離 .....	10
表2.1.2	現需要を満たさない量又は不十分な品質の同位体一覧 .....	13
表2.1.3	現在庫が過去5年間の平均年販売レベル以下の同位体 .....	14
表2.1.4	安定同位体の数 .....	15
表2.1.5	安定同位体の利用率 .....	15
表2.1.6	工業規模電磁法によって製造された最終分離サイクルの年度 .....	15
表2.2.1	各種安定同位体濃縮法の概略 .....	21
表2.2.2	主な安定同位体の供給国 .....	21
表2.2.3	日本における安定同位体の売上高と年間伸び率 .....	22
表2.2.4	主要原料の価格推移 (米国、1983~1987、\$/g) .....	22
表2.2.5	我が国のN-15の価格推移 (円/g) .....	23
表2.2.6	ライフサイエンス分野におけるS I -NMR研究報告の数 .....	25
表2.2.7	診断に利用されている主なポジトロントレーサー .....	27
表2.2.8	核医学診療実態調査 (日本アイソトープ協会) .....	30
表2.2.9	S P E C T及びP E Tのための核種と試薬の例 .....	33
表2.3.1	生存課程に不可欠な元素とそれらの安定同位体 .....	45
表2.3.2	脊椎動物の無機質含有量 .....	46
表2.3.3	現在用いられている主要な安定同位体分離法と世界の生産容量 <sup>a</sup> .....	47
表2.3.4	窒素同位体価格* .....	50
表2.3.5	炭素同位体価格* .....	52
表2.3.6	金属同位体ソースセンター .....	56
表2.3.7	安定同位体とその製法例 <sup>1)</sup> .....	62
表2.4.1	誘導放射能からみた元素の分類 .....	66
表2.4.2	同位体調整ダイヤモンドの室温における熱伝導度 .....	68
表2.4.3	レーザーによる同位体分離の例 .....	70
表2.4.4	レーザー法による <sup>92</sup> Zrの濃縮コスト .....	70
表2.5.3	SF <sub>6</sub> を使った遠心分離機による硫黄同位体S-34の濃縮 .....	78
表2.5.4	応用核物理研究に使用されたアクチニド .....	82
表2.6.1	日本における安定同位体の売上高と年間伸び率 .....	101
表2.6.2	主要原料の価格推移 (米国、1983~1987、\$/g) .....	101
表2.6.3	我が国のN-15の価格推移 (円/g) .....	102
表2.6.4	我が国で市販されているガス状安定同位体 .....	102

図一覧

図 2. 3. 1	Mound FacilityによるN-15販売量	50
図 2. 3. 2	Mound FacilityによるC-13の販売量	53
図 2. 4. 1	ヘリウム生成量に及ぼすBN中のB-11の効果	65
図 2. 4. 2	100%同位体調整した <sup>136</sup> ステンレス鋼の誘導放射能	66
図 2. 4. 3	Geの熱伝導率に及ぼす同位体効果	68
図 2. 5. 1	Xe-136の濃縮とKr-85の除去	76
図 2. 5. 2	天然のXeからKr-85の除去	76
図 2. 5. 4	天然Xe中の0.095% Xe-124を9.0%まで3段濃縮	79
図 2. 5. 5	天然Xe中の8.95% Xe-136を63.10%まで3段濃縮	80
図 2. 5. 6	天然Kr中の0.42% Kr-78を4.56%まで3段濃縮	80
図 2. 5. 7	天然Kr中の17.4% Kr-86を89.2%まで2段濃縮	81

## 安定同位体分離に関する調査

### はじめに

遠心分離法によるウラン濃縮技術は動力炉・核燃料開発事業団において、過去30年にわたって研究開発・実証が行われてきており、既にこの成果を受けた下北半島六ヶ所村のウラン濃縮工場は稼動を始めている。

一方、各分野における安定同位体の利用は各種産業及び医療や農業等において近年年ごとに需要が増大しているが、このための同位体濃縮技術は、現状では軽元素が多いためと、需要が量的にそれ程大きくないため、遠心分離による同位体濃縮技術は旧ソ連やアメリカ等で試験的な試みは見られるものの、全体としては殆ど利用されていない状況にある。

しかし、安価に大量生産することが可能になれば、一般産業界においても各種同位体に対する不活性ガスの大量分離等の種々同位体分離に対する用途や、また、原子力分野でもウランとは別の需要が想定される。

本調査は遠心分離法の多方面への応用に先立ち、各分野での安定同位体に関する利用の状況、市場ニーズ、需要量、生産方法と価格について調査を行うことを目的として行ったものである。調査した分野は、医療関係、農林水産関係、バイオ関係、化学工業関係、核燃料再処理や原子炉材料等を含む原子力関係、及び核融合関係を対象とした。

調査方法としては、科学情報検索システムによるキーワードによる過去10年の文献検索、動力炉・核燃料開発事業団から提示された情報、及び、各分野の雑誌等を基に調査を実施し、それらの情報を、核種別のフォーマットにまとめると共に、各分野の現状を総括して、重要安定同位体の核種、需要量、生産方法および価格に関する情報を抽出し、最後に遠心分離法の適用性に触れた。



## 1. 最近の文献検索結果及び事業団提示の情報一覧

安定同位体の利用について、日本科学技術情報センターのJ I C S Tを主に利用して文献検索を行った。さらに、過去5年間の日本原子力学会誌や原子力工業等の原子力関係の雑誌にも関連情報を当たった。以下その概要を示す。

### 1.1 J I C S T 検索結果

J I C S Tの検索は、NUCL ENを主として検索した。

#### 1.1.1 J I C S T 検案件数

(1) 安定同位体 (安定同位体 731件)

最初に「安定同位体」をキーワードとして検索したところ、全体で731件の出力があったが、これをさらに、医学、医療、食料等のサブキーワードで検索したところ、表1.1に示すような件数結果を得た。

表1.1 J I C S T 検案件数 (安定同位体)

安定同位体	医学	医療	食料	農業	漁業	バイオ
* 検案件数	8件	6件	5件	17件	2件	1件
安定同位体	化学工業	需要		再処理	原子炉材料	核融合
* 検案件数	2件	4件		12件	9件	98件

(2) 同位体 53,093件

次に、安定同位体でなく同位体で検索すると表1.2に示す通りである。件数は二桁近く増えたが、多くは放射性同位元素であり、例えば、下記の同位体\*食料では36件が検索されたが、目的とする安定同位体の利用に関する情報は殆ど含まれずに、アクチニド

表1.2 J I C S T 検案件数 (同位体)

同位体 *	医療	食料	農業	林業	漁業	バイオ	需要
検案件数	207件	36件	2件	1件	5件	5件	3件

の土壤/植物移行やチェルノブイリ事故の食料に対する影響あるいは放射線照射といった食品汚染やフォールアウトの影響等の RI 関連の論文が検索されたものである。

(3) 同位体製造 (1815件)

また、同位体製造で1815件が検索されたが、遠心分離との論理積検索では同位体製造\*遠心分離で 7件しか検索されなかった。

1.1.2 文献検索により取り寄せ検討した文献

(1) 安定同位体\* 医学 全 8件の内 3件 (安定同位体 731件)

a) Herring A H et al; INC-11 radioisotope production activity, LA-11670-PR  
p. 98-101, 1989

b) 森下諦三; S I -NMRの行方, アイソトープニュース No.428, p. 16-18, 1990

c) Tracy J G; Status of the isotope enrichment program at Oakridge Natl Lab.  
Nuclear Instrum Methods Phys Res Sect A, Vol.303, No.1, p. 3-8, 1991

(2) 安定同位体\* 医療 全 6件の内 該当なし

(3) 安定同位体\* 食料 全 5件の内 該当なし

(4) 安定同位体\* 農業 全17件の内 2件

a) 小山雄生, 清水誠; 放射性トレーサの野外・現場利用の歴史と現状 (II), NMR  
医学 Vol.37, No. 5, p. 303-311 (1988)

b) 須藤まどか; 畜産研究におけるアクチバブルトレーサ法の現状と展望, Isotope  
News (1987年 8月), p. 2-5

(5) 安定同位体\* 漁業 全 2件の内 1件は既出 (4.(1))

(6) 安定同位体\* バイオ 1件 該当なし。

(7) 安定同位体\* 需要 全17件の内 3件

- a) Hoff, R W; The availability of enriched stable isotopes; present status and future prospects., UCRL-94416, 14p(1986)
- b) Zisman M S; National uses and needs for separated stable isotopes in physics, chemistry, and geoscience research., LBL-14068, 97p(1982)
- c) DeWITT R; Enriched isotopes applications; Agricultural field, MLM-2715, 40p (1980)

(8) 同位体\* 需要 全 3件の内 1件

- a) Whitehead; Isotope separation in the nuclear power industry. Spec. Pub. R Soc Chem, No. 80, p. 287-305, (1990)

(9) 同位体製造\* 遠心分離 全 7件の内 (但し同位体製造 1815 件)

- a) Tikhomirov A; Modern tendencies in the enrichment of stable isotopes and their application in the USSR and elsewhere., Nuclear Instrum Methods Phys. Res. Sect B, Vol.70, No.1/4, p. 1-4, (1992)
- b) Erb, D E et al; A national biomedical tracer facility (NBTF), USDOE Rep. CONF-900802-8 12 p, (1990)
- c) Roberts W L; Gas Centrifugation of research, Nuclear Instruments & Methods Phys. Res. Sect.A, Vol.282, No.1, p. 271-276, (1989)

## 1.2 動燃事業団提示の情報

動燃事業団提示の情報は、科学技術庁ライフサイエンス推進委員会の「安定同位体とNMR計測に関する調査報告書(1988/3)」など以下に示すような7件の文献の開示を受けた。それらの内容については第2章に他の文献と共に分野別に解説した。

- a) 動燃事業団人形峠事業所; 『遠心法による安定同位体分離に関する調査』(1993)
- b) 科学技術庁ライフサイエンス推進委員会; 安定同位体とNMR計測に関する調査報告書(1988/3)
- c) 野田哲二; 同位体制御材料, 金属, 1993年 7月号, p. 32-37 (1993)
- d) 『分離科学ハンドブック』, 共立出版, 1993年 2月発行(1993)
- e) A, J. Szady; Report of Foreign Travel of Andrew J. Szady (July 1990)

- f) Stanislav P. Vesnovskii and Vladimir N. Polynov, Highly enriched isotopes of uranium and transuranium elements for scientific investigation, Nuclear Instruments & Methods in Phys. Res. B70, p.9-11, North-Holland(1992)
- g) E. Bellotti et al; Separation of rare gases from radioactive contaminants by means of an ultracentrifuge, Nuclear Instruments & Methods in Physics Research B62, p. 529-534, North-Holland(1992)

### 1.3 関連雑誌に現れた情報

過去7年間(1987~1993)までの原子力学会誌や最近の原子力工業を調査した結果では、放射性同位元素はかなりあったが、安定同位体に関する関連文献はあまり見当たらず、特集記事等で下記のような関連文献を収録できただけであった。

- a) 井上修; ポジトロン核種の医学利用 原子力工業、39巻、2号、p.60-63(1993)
- b) 小山雄生; 農業環境保全への利用、原子力工業、39巻、2号、p.35-39(1993)
- c) 山口彦之; 農業関連分野における放射線利用、原子力工業、39巻、2号、p.29-31(1993)
- d) 宍戸文男; 核医学における最近の進歩、原子力学会誌、38巻、8号、p.678-87(1993)

### 1.4 安定同位体取扱会社の情報

世界最大の安定同位体提供者であるアメリカの I S O T E C 社を傘下に収めて、我が国最大の安定同位体取扱会社となっている「日本酸素(株)」(東京都港区西新橋1-17-7)を訪問して、有用な情報提供を受けることができた。このほか、イギリス原子力公社を元に組織化された Amersham International Ltd. と中外製薬(株)を株主とする「アマシャム(株)」(東京都文京区白山5丁目1-3-101)も訪問したが、R I 販売が主で安定同位体はそれ程扱っていないようで、情報も殆ど入手できなかった。

世界の安定同位体の販売額は1992年で、50億円程度に達していると思われるが、国内のそれは約10億円に近い数字になっているようである。その中で現在国内で3000~4000台まで増えたNMR関連の出荷が50%を占めている。1987年ではNMR(核磁気共鳴, Nuclear Magnetic Resonance)用で、H-2、C-13、N-15、O-17, 18の5核種で1億5千万円強という数字があるが<sup>1)</sup>、これはNMR用の溶媒に用いられる重水素が含まれていないと思われる。

この溶媒には重水素を含む水のほか、ジメチル・サルフォキシド(DMSO)、メタノール、クロロフォルムが多く用いられ、1992年度には 4~5 億円に達したと言われる。最近のNMR用の標識化合物の販売量は年間10~20% の伸び率になっていると、日本酸素(株)の担当者は述べていたが、過去10年でSPECT(Single Photon Emission Computerized Tomography, 単一光子放射計算トモグラフィ)やPET(Positron Emission Tomography, 陽電子放射トモグラフィ)用の同位体の使用量が4倍(年間平均で15%の増加率になる)に伸びたという情報<sup>2)</sup>もあり、この分野はコンスタントに伸びているようである。特にC-13の伸びが著しいと言われている。

現在の販売量は、NMR用重水素化合物(溶媒)が約50%、ライフサイエンス用安定同位体(C-13, N-15, O-18)が20%、ポジトロンCT用SIが20%、残りが10%といった割合である。

過去、メーカーとしてはアメリカのMound Lab.が安定同位体のプライスリーダーであったが<sup>1)</sup>、1985年からはMATHESON社の子会社であるISOTEC社に移管され、MATHESON社は我が国の日本酸素(株)に1986年2月に買収されて我が国の管轄下にあるという事態になっている。日本酸素(株)は、SIプロジェクト部を持っており、国内安定同位体需要の80%を販売しているが、同社の傘下にあるアメリカのアイソテック(ISOTEC)社はヘリウム-3、窒素-15、炭素-13や希ガス類生産では世界の70%の生産を行っている。

ただし、窒素-15については昭和電工(株)の子会社の昭光通商(株)が理研で開発された化学交換法(NO-HNO<sub>3</sub>交換を利用)で製造し大きなシェアを持っている。日本酸素の担当者によると、生産量が大きければアイソテック社が行っている低温蒸留法が有利であるが、現状では、それ程需要がないとのことであった。

安定同位体の製造法としては、低原子番号のガス体が多いので、低温蒸留法が主として用いられている。遠心分離法は重金属に有利であるが、昨年からはURENCOが安定同位体濃縮に関心を寄せて日本酸素(株)に調査に来たそうである。しかし、一方重金属では、古くからやっていたORNLは最近製造を取り止めて、現在はロシアのみが扱っている。

#### 参考文献

- 1) 科学技術庁ライフサイエンス推進委員会; 安定同位体とNMR計測に関する調査報告書(1988/3)
- 2) 小山睦夫; RIの製造と利用、原子力学会誌, 31巻, 1号, p.77~8 (1989)

## 1.1 医療関係

- (a) 『Nuclear Magnetic Resonance Technology for Medical Studies』  
T. F. Budinger & P. C. Lauterbur : Science Vol. 226 p. 288-298 (1984)
- (b) 総説『医学、生理、薬理の分野における new device としてのNMR』  
三浦巖 (大塚製薬) 他 : NMR医学 Vol. 5 No. 2 p. 10-20 (1985)

## 1.4 一般産業関係

- (a) 『同位体分離の化学工学』 清瀬量平訳 ( M. Benedict, et al 著 ) :  
原子力化学工学第4分冊 日刊工業新聞社発行 (1984)

## 1.8 その他 (計測等の技術)

- (a) 『Status of Isotope Enrichment Program at Oak Ridge National Laboratory 』  
J. G. Tracy : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research  
A303 p. 3-8 (1991)
- (b) 『 Separation of Rare Gases from Radioactive Contaminants  
by Means of an Ultracentrifuge』  
E. Bellotti, et al : ibid. B62 p. 529-534 (1992)
- (c) 『 Isotope Separation in the Nuclear Power Industry 』
- (d) 『 Gas Centrifugation of Research Isotopes』  
W. L. Roberts : ibid. A282 p. 271-276 (1989)
- (e) 『安定同位体とNMR計測に関する調査』 報告書  
科学技術庁ライフサイエンス推進委員会 (1988)
- (f) 『遠心法による安定同位体分離に関する調査』 動燃ウラン濃縮工場 (1993)
- (g) 分離科学ハンドブック 第5部 『分離例』 共立出版 (1993)

## 2. 主要文献情報の内容

### 2.1. 安定同位体濃縮の全般計画等

#### 2.1.1 ORNLにおける同位体濃縮研究計画の現状[Tracy(1991)]

前文 ORNL(Oak Ridge National Laboratory)における同位体濃縮研究計画の目的は、研究・医療・工業分野に電磁的に分離された安定な同位体を、世界的に製造配布することである。この論文では施設改造の総括、現在の施設でできること、濃縮過程、及び製品の配布について述べられている。電磁分離法が増強されたことが、特殊用途向けに注文で物質を供給する特別サービスとともに、ニュースとして報道されたことがあった。アメリカエネルギー省が国の同位元素ならびにその関連計画に影響する政策を最近取り纏めている。そこでは、同位体の濃縮、放射性同位元素の生産、標的試料の製造、価格決定と市場調査および安定同位体の配布について、とくに力説されている。

#### (1) 緒言

ORNLの同位体電磁分離施設(Electromagnetic Isotope Separation Facility)と同位体頒布事務所(IDO, Isotope Distribution Office)は、高濃縮安定同位体の入手を希望する大概の研究機関や工業的な研究所によく知られている。原子力・物理・化学・材料科学・医療・生物学・地球科学・工学の全研究分野で、こうした特殊材料が使えるようになった。同位体の使用方法は変化しつつ拡大し続けてきている。広範囲の科学的調査における重要な一步は、濃縮された同位体を使うことで、種々の標的試料が得られるようになったことである。こうして濃縮同位体および同位体関連の生産物とそのサービス(最も重要で研究機関に影響が大きい)が時宜を得て利用できることになった。この論文の目的は、利用者の要求面から同位体濃縮計画の現状を総括することと、ORNLでの同位体計画に影響する政策変更について検討することであった。

エネルギー省の指示で、ORNLは約50種の同位体の生産と配布に責任を持つことになった。同所では、ウラン濃縮のために建設されていた同位体電磁濃縮施設(EMIEF, Electromagnetic Isotope Enrichment Facility)をこの目的に使用して濃縮同位体を生産し、ORNLで提供する同位体は、同位体関連の生産物とそのサービスと同じく、IDOを通して配布されている。この論文では、軽い元素、とくにリチウムとかホウ素といった同位体の濃縮については議論しないし、他の施設で行われているガスの同位体濃縮につい

ても言及していない。

## (2) 施設の改造と能力

元の分離施設に二つの大きな改造がなされた。この施設には72基の大電流電磁気質量分離装置（カルトロン CALUTRON<sup>\*</sup>, Electromagnetic High-Current Mass Spectrometer）があって、30.5mの長い磁気的なトラック2本を備え、現在の要求に応え得る施設である。トラックの1本を安定同位体の濃縮に用い、他のトラック1本を部分的にアクチナイド分離用途に変える改造が行われた。こうした試みとともに、安定な物質とアクチナイド物質の両方の処理ができる化学研究室を建設した。現時点では、研究・薬品・工業の用途に使う安定同位体および特殊な放射性同位体を大量に濃縮できる国（旧ソ連を除く）にある唯一の施設である。

多種の安定同位体の濃縮のために、カルトロン6基が撤去され、トラックの両端をつなぐ磁気分路3基を設けてトラックが改造されている。この改造で元のトラックが4分割されて、うち3部分には分離器8式が納まり、残りの1部分に分離器6式が納められた。各分割部分ごとの励磁コイル個々に通電して異なる磁場の強さにして、4分割部分のそれぞれに同時に違う元素の同位体が濃縮できるようにした。実際に磁場条件を選択することによって、1分割部分で複数元素が分離できている。この方式の制約は多元素の質量数の差と標準質量数の比が $\leq 0.1$ であることであった。第2のトラックは3分割されたが、その1分割部分にカルトロン8基が設けられ、アクチナイドなどの放射性物質の分離に使用されている。

同位体分離施設の概要は次のようである。カルトロン分離器総数は62基、うち稼働基数は39基である。その内訳として180度の均一偏向磁場をもつものが32基と特殊用途に使う1基、他の6基は255度の不均一偏向磁場のもので、安定同位体分離用に30基、アクチナイド分離用に8基が使用されている。記号Aを分離前濃度、Bを分離後濃度、mを対象核種の質量とすれば次式が近似的に成り立つ。

$$(100-A)/A \times B/(100-B) = c/m$$

ここで記号cは実験的に定まる定数で、例えば偏向角180度のものでは23,000の数値が与えられている。

---

<sup>\*</sup> 脚注; カルトロン(CALUTRON)は CALifornia University CycloTRON の略である。



### (3) 生産と頒布

週 5日、24時間/日のキャンペーン方式で、180度偏向カルトロン1～8基を使って同位体濃縮を実施している。需要にあわせて資金を調達しながら運転される。安定同位体分離用に設計された30基のカルトロンの稼働率はここ数年約35%である。濃縮作業をすることになれば、要求仕様に合致するよう仕方を決め原料材料 feed materialが選定される。原料はガス化され電離箱で直接に計測される。絶対温度700-1400度で元素あるいは化合物は気化するか、活性ガスの存在で気化性化合物に変換される。蒸気はプラズマ状になって導入され、電離して約40kVの電場で引き出され、磁場で曲げられる。磁場における荷電粒子の動きで分離が行われるが、その曲率半径  $r$  は

$$r = (2 m V)^{1/2} / G e^{1/2}$$

で与えられる。ここで  $m$  は質量、 $V$  は加速電位、 $e$  はイオンの電荷、 $G$  は磁場の強さである。同位体ごとに  $G$ 、 $V$ 、 $e$  は定数であるため、曲率半径の違いは質量の平方根の差に比例する。グラファイト、銅、アルミニウム、あるいはこれらの組み合わせの材料で作ったポケットに、分離された物質を集める。分離器から取り外されたポケットにある濃縮された同位体を化学的に純化して、質量分析と化学分析を行い、同位体を頒布にまわす。

ORNLでは遠心分離法とプラズマ分離法といった別の分離業務も実施されている。ガス遠心分離法はガスや気体状化合物に対して容易に適用することができ、the end isotopes（注：同種の同位体の中で質量数が最大あるいは最小のものか）の濃縮にとくに有用である。カルトロン方式と比較して、遠心分離法は分離係数が小さいけれども大量に処理できる特徴があって、カルトロンへの原料材料の供給に利用できる。プラズマ分離法は荷

表 2.1.1 ORNLにおける同位体分離

	カルトロン法	プラズマ分離法	遠心分離法
適用性	全元素 (ガスは非定常的)	金属	ガス (気体状化合物)
産物量	0.1-100 g	0.1-100 kg	>0.1 kg
End isotopes	Yes	Yes	Yes
Middle isotopes	Yes	Yes	ガス Yes 他 No(高転換費)
低自然存在比	Yes	Yes	Yes
高純度 (>95%)	Yes	No	Yes(多段が必要)
多種同時濃縮	Yes	No	No
軽い元素	Yes	Yes	質量数制限 >80
重い元素	Yes	不適當	Yes(優秀)

電粒子の均一磁場におけるイオンサイクロトン共鳴原理(ion cyclotron resonance) に基いている。プラズマ分離法は、処理量と分離能力の両面で他の2方式の中間に位置する。この方式はとくに金属同位体の濃縮に適する。また、低い自然存在比の同位体をカルトロンへの原料材料として用意する場合にはプラズマ分離法は極めて好都合である。表2.1.1にORNLでの同位体分離能力を示す。

## 2.1.2 濃縮安定同位体の利用：現状と今後の展望[Richard(1986)]

### 要約

本資料は、第11回電磁同位体分離器とその応用関係技術に関する会議への招待ペーパーとして準備提出したものである。

### 序言

ORNLでの同位体の電磁分離の歴史は、Manhattan Engineering Districtの大戦時の努力の一つとして、40年を越える以前に始まる。1943年 Tennessee Eastman Corporation と、テネシー州の Oak Ridgeに建設されたY-12として知られる大型の秘密電磁施設を動かすことの契約が取り交わされた。その目的は、 $^{238}\text{U}$ から大量の $^{235}\text{U}$ 同位体を分離獲得することであった。その電磁同位体分離プログラムも1945年までで、このとき、ガス拡散法が $^{235}\text{U}$ を得るための安価な方法として実証されるに及び、その後間もなく、電磁分離プラントはすたれてしまった。この期間中に、同プラントの一部を用いて、基礎と応用の研究のための濃縮同位体物質を供給する可能性を考えるための討議が行われた。運転閉鎖となったとき、Y-12の9施設棟の中の2つだけが、この目的のために、元のままの処置となって残された。

限定作業として、何が始まったのか。パイロットプラントにおける丁度4基の分離器だけは、ウラン以外の、急速にその範囲を拡げ、重要さを増すと思われる、各種安定同位体の濃縮用に用いられることになった。イオンソースの温度域を、 $40^{\circ}\text{C}$  (ウラン分離で用いられているような) から、 $2800^{\circ}\text{C}$ 程度の高温まで、天然存在のすべてと言える程に多くの安定同位体(0sを除く)が、1950年代の中期までに、同施設において少なくとも1回は処理された。1960年代の間に、Os、Am、およびCmなどの元素が、同位体濃縮元素の(対象)リストに追加された。1946年—1973年の期間において、同施設は、250を超える安定核種

につき、僅かに< 0.1 ppbと同位体不純物の低い濃縮同位体 200kgを、製造するのに用いられたと推定される。L. O. Loveが述べているように、Oak Ridgeでの同位体電磁分離に関する彼のペーパー [1]は、それまでの情報を多数盛り込んだ情報源であり、「電磁分離法は、疑いなく、同位体分離の最も多能的な既知手段である」と言える。

電磁同位体濃縮施設 (EMIEF : Electromagnetic Isotope Enrichment Facility)として、今、関係している現ORNL施設は、安定同位体濃縮専用としては全16基の分離器構成で(このことに関して、利用できる30基程の異なった分離器がある)、また、放射性核種の濃縮用としては8基の分離器構成で、運転を行っている。EMIEFは、現在、50元素について225濃縮安定同位体を製造するのに用いられている。これらの中には、希ガス(不活性ガス)ある種の軽元素、単一同位体元素などを除く、安定同位体に関して知られている大抵の元素が含まれている。EMIEFは、放射性核種の濃縮サンプル、例えば、ウランやプルトニウムの同位体を作るのにも、極めて好適に用いられる。これらの濃縮物は、販売在庫か研究物質収集(RMC : Research Materials Collection)の何れかに回される。販売在庫の物質は第一番業務ベースということで、第一番の顧客に対する販売用である。最新版のカタログ(2)の価格によれば、99.8%  $^{140}\text{Ce}$  : \$ 0.05/mgから98.5%  $^{176}\text{Lu}$  : \$ 1,267/mgに亙っている。RMCの物質は、非破壊実験と応用の用途向け貸付ベースということで、米国の研究者(または、米国の研究者を含むグループ)が利用できるように作られる。加えて、ある種の試料(サンプル)、ユーラトムおよびヨーロッパ-米国核データ委員会の賛助を通じた横断研究に向け、ヨーロッパの研究者達に提供されている。EMIEFの最近の運転歴としては、1982~86年までで、処理した同位体数が、23, 55, 17, 6, 15と変動しているが、在庫は、206, 195, 187, 200, 206 とあまり変化していない。

#### NAS/NRCワークショップ(1982年2月、Washington, D.C.)

1982年2月、NAS/NRC(National Academy of Science/ National Research Council)の後援の下に、科学的、医学的、および産業的な共同体における(濃縮)安定同位体のニーズを評価するための、ワークショップが開かれた。

濃縮安定同位体の応用面は、①物理、化学、および地球科学の研究、②商用、③生物医学の研究、及び④臨床で、M. S. Zisman(LBNL : Lawrence Berkeley National Lab.)の推定によれば、次のようなものが最大需要に関係している。①希土類元素、②幅広い範囲の安定同位体元素 : Ca、Ni、Zr、Mo、Sn、Sm、およびPb、並びに、③Mg-Si域の同位体。

ワークショップ報告書は、3つの勧告をもって結論づけたが、その具体的な成果として、2つの委員会が発足した。第Iが技術政策委員会 (Technical Policy Committee) であり、その第2のものがEMIEFの利用者グループ (Users Group)である。それらの機能とするところは、濃縮同位体に関する将来ニーズを評価し、同位体の利用可能性について、ユーザに情報を提供すること、ORNL管理機構に、ユーザニーズに関する情報を提供すること、等である。

1985年10月、ORNLで第2回のユーザグループ会合が開かれ、グループ活動の目標を定めたりしたが、同時に、ユーザグループは、過去において、多くの書簡を手に入れている。問題のポイントは利用 (入手) の可能性にあって、例えば、「濃縮<sup>41</sup>Kはいつから利用できるようになるのか、カタログでは1985年以降とだけしか示していないが、?」。あるいはまた、しばしば行われる無通告のままでの厳しい価格の釣り上げ問題について、例えば、<sup>58</sup>Feが1985年1月と4月の期間内に\$28/mgから\$150/mgに、<sup>29</sup>Siが\$3/mgから\$27/mgに、といった具合のもの、その他。濃縮同位体は有能な研究者の手の中にあっては、なくてはならぬ道具として認識されなければならないものなので、彼らが必要とするとき、ある合理的な限度を考えた上での緩やかな価格増となるしくみがなければならない。

#### 同位体利用の可能性の現状

販売在庫の中に含まれている濃縮同位体の現状は、表2.1.2に示す通りである。そこには、現在の需要を満たすには十分でない量/質においてしか利用できないというものにつ

表2.1.2 現需要を満たさない量又は不十分な品質の同位体一覧

核種 分類	Sb-121 A	Ba-132 A	Ba-134 A	Ba-137 A	Br-79 A D	Br-81 A D	Cd-108 C	Cd-110 B	Cd-112 C	Cd-114 C
核種 分類	Ca-42 A D	Ca-46 A D	Ce-140 A	Ce-142 A	Dy-156 A	Dy-162 A	Dy-163 B	Er-162 A	Gd-152 C	Gd-157 B
核種 分類	Ge-76 C	Hf-176 B	Hf-179 B	Pb-204 B	Mo-97 A	Ni-58 C D	Ni-60 C D	Ni-62 C D	Os-186 C	Os-187 B
核種 分類	Os-189 C	Pd-102 A	K-40 A D	K-41 A D	Re-185 A	Rb-87 A D	Ru-96 A	Sm-144 C	Se-80 C	Ag-107 C
核種 分類	Sr-84 B	S-36 C	Ta-180 A	Sn-112 B	Sn-119 A	Ti-48 B	W-180 C	W-183 C	W-186 C	

A; インベントリ無し, B; 濃縮度不十分, C; 不十分な品質, D; 製造中

表 2.1.3 現在庫が過去 5 年間の平均年販売レベル以下の同位体

アンチモン-123,	カルシウム-44,	銅-63,
ディスプロジウム-160, 161, 164,	エルビウム-167, 168, 170,	ユーロピウム-151,
ガドリニウム-158, 160,	ガリウム-71,	鉄-58,
水銀-201,	モリブデン-92, 94, 95, 96,	ネオディム-144, 145, 146, 150
ニッケル-64	カリ-39,	レニウム-187,
ルビディウム-85,	サマリウム-147, 149, 150, 152, 154	
セレン-77, 78,	銀-109,	ストロンチウム-88,
硫黄-33, 34,	テルル-128,	タリウム-203,
錫-114, 116, 117, 122, 124,	ジルコニウム-90, 92,	

いての同位体がリストされている（1986年6月30日現在）。これらは、次のサブ分類で要約されている。①在庫零の同位体、②不十分量の同位体、③質的に不十分な濃縮同位。

表 2.1.3 には、現在庫が過去 5 年間の平均年販売レベル以下である同位体についてリストされている。零在庫の同位体数のかなりの増加は、有意な可能性を示すものである。表 2.1.3

### 2.1.3 ソ連及び諸国における安定同位体濃縮とその利用における最近の傾向

[Tikhomirov(1992)]

この論文では、ソ連における安定同位体濃縮とその利用における最近の傾向を述べたもので、それらの中で核物理、放射性核種研究、材料研究やその他に用いられた主として電磁法で分離した主要な安定同位体についてそれらの用途を述べている。一部の同位体については遠心分離法を用いており、注目される。

#### 使用安定同位体

安定同位元素は表 2.1.4 にそれぞれの核種別の数と共に示す。

1965年以来、44元素の200以上の同位元素が電磁法によってソ連で生産された。これら分離機は循環式で少量の分離であり、労力を要し、高いコストとなる。いくつかの同位体は生産され、他の分離サイクルで再分離された；Ni, Cd, Zn, Feは、多くの量が分離され生産された。

Tl-203は、Tl-201の製造に際して必要とされ、一方、Mo-98はウラン核分裂生成物で得られるが、 $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ の反応でTc-99mを製造するジェネレータを作る際に必要であった。ソビエトでは、電磁法によって現在もTl-203を製造している。

ニュートリノ質量測定のため、Ca-48の数g(a dozen grams)の製造に際して電磁法でおこなうには多くの努力を要した。

表 2. 1. 4 安定同位体の数

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Be	H	O	S	Ti	Ca	Mo	Cd	Xe	Sn
F	He	Ne	Cr	Ni	Se	Ru	Te		
Na	Li	Mg	Fe	Zn	Kr	Ba			
Al	B	Si	Sr	Ge	Pd	Os			
P	C	Ar	Pb	Zr	Hf	Hg			
Sc	N	K	Ce	W	Pt	Nd			
Mn	Cl				Er	Sm			
Co	V					Gd			
As	Cu					Dy			
Y	Ga					Yb			
Nb	Br								
Tc	Rb								
Rh	Ag								
I	In								
Cs	Sb								
Au	La								
Bi	Ta								
Pr	Re								
Tb	Ir								
Ho	Tl								
Tm	Eu								
Th	Lu								

表 2. 1. 5 安定同位体の利用率

元素	安定同位体数	m/M	
		良好	不良
Sb	2	良好	0.84
Te	8		0.81
Cd	8		0.77
Ag	2		0.74
Ce	4	不良	0.10
Yb	7		0.10
In	2		0.09
Ca	6		0.03

過去30年間に電磁法で製造された同位体は、すべて等しく重要性を有してはいない。数種だけが興味ある物理的性質を有しており、多方面にわたって利用されている。このことは、同位体の製造効率の問題を投げ掛ける。多くの方面で利用された同位体の質量(m)と電磁法で製造された同じ同位体の全質量(M)との比として、この効率を定義することができる。表 2. 1. 5 はソビエトでの電磁法についての良好と不良のm/M 比を示す。

電磁法でFe, W, Sと Mo 同位体を十分に供給できなくなった時、同位体を濃縮するために遠心分離法がUSSRで開始された。表 2. 1. 6 は、工業規模電磁法によって製造された最終分離サイクルの年度を示す。

ソ連では、最初に遠心分離法によって稀ガス (XeとKr) 同位体が製造された。この方法

表 2. 1. 6 工業規模電磁法によって製造された最終分離サイクルの年度

元素 最終年	S	Fe	Mo	W
	1968	1970	1971	1972

は、また最近、GeとCr同位体に対して、そしてKr-85を含む放射性同位体の濃縮に対して有効に利用されている。

### 物理学への応用

二重ベータ崩壊や太陽のニュートリノ光束発散度(luminous emittance)についての研究のような核物理実験で現在必要とするのは、電磁法では製造できないような大量の同位体である。前者の研究では、自然の事象を観測するのに約90%に濃縮した数10(many)kgのGe-76(天然存在量は7.8%)を必要とする： $(^{76}\text{Ge} \rightarrow ^{76}\text{Se})$

同じ目的のために、Xe-136でイオンチェンバーを満たし、Mo-100を箔として使用することは興味がある。USSRで、これら同位体を濃縮するのに、遠心分離法が用いられた。

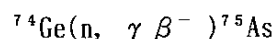
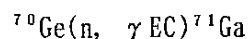
安定なZr-96, Cd-116 とNd-150は、二重ベータ崩壊の研究に必要と思われるが、今まで利用できる充分量はない。

Baksanニュートリノ観測所でのゲルマニウム-ガリウム望遠鏡についての大規模校正実験を行うのに、大量のCr-51同位体が必要であり、それは濃縮Cr-50(天然存在量は4.3%)から製造される。欧州共同体は、またこの濃縮同位体を必要としている。この同位体の必要量は、数(a dozen)kgである。

### 原子力発電施設及び一般使用

原子力発電施設及び一般使用の分野で安定同位体利用の関心は高まりつつある。数100kgの潜在的な需要が期待される。例えば、Ni-58は中性子源案内管内面に被覆される。Zn-64同位体を減らした垂鉛は原子炉プラント内で冷却材へのCo-60の放出を防ぐので、人への照射を減らし、活発に利用されている。

Geの安定同位体のGaとAsへの交換核反応変換は、よく知られている：



これらの性質によって、Ge同位体を半導体として利用する際の予想がおこなえる。Ge同位体分離に対する遠心分離の開発によって、これは可能である。

安定同位体は、度量衡において基礎物理定数の正確な測定と標準化に用いられる。これのために、Si, KrとOsの同位体の需要が増加している。

上記の要因は、多数の元素の同位体についての需要のかなりの変化を示している；その

需要は、2-3 倍でなくて、もっと大きな量である。このプロセスは、電磁法同位体製造の計画作成に影響をおよぼすだけでなく、分離製造法の開発、特に遠心分離法の開発に刺激を与える。遠心分離法の可能性は、関心のある元素が揮発性化合物の場合に実現化される。アメリカと欧州の URENCO の科学者は、安定同位体製造の手段として遠心分離法を考え、その研究をおこなった。

新分離法の 1つはプラズマ法（イオンサイクロトロン共鳴）で、米、仏、日、ソで研究されている。遠心分離法と比較して、この方法は揮発性化合物であることを要しない。それは電磁法と比較され、その生産性は遠心分離法のそれと競合すると思われる。しかし、それは実験段階である。

水銀の電離分離が困難なために、Kurchatov Institute で光化学分離法が開発された。その開発された方法では、充分な量の Hg の同位体(196, 200, 202) を生産できる。これら同位体は、物理、特に Hg の分析者に応用されている。Hg-196 同位体の濃縮物は、光束発散度を増大させるためにルミネッセンスランプに用いられる。

中性子減損同位体への需要が増大する傾向にある。これら同位体は軽く、天然存在度は低い(1% 以下)。そのような同位体の純粋度の必要性は高まっている。たとえば、医学的診断で使用されている I-123 放射性核種の製造に際して、99% 以上に濃縮した Xe-124 (天然存在度は 0.096%) が必要とされる。I-123 は、医療用診断の基本的な放射性核種の 1つとして、Tl-201 と Tc-99m と共に考えられている。高濃縮 Xe-126 (天然存在度は 0.090%) は、期待される同位体である。それは  $(n, \gamma)$  反応で医療用の Xe-127 を製造するのに用いられる。これら高濃縮同位体は、最初、Kurchatov Institute で製造された。

しばしば高純度が単一同位体に要求される。同位体として純粋な C-12 (すなわち、存在度が 1.1% だけの C-13 の外に) の特殊な熱特性について報告された新しいデータによって、特性によって明らかとなった必要量の同位体生産への要望が高まるだろう。

新しい機器は、放射性安定同位体の使用を広める。短寿命放射性核種は陽電子断層撮影に使用でき、引き続きその機器に特別に濃縮した Rb-85 (ジェネレータでは  $^{85}\text{Rb}(p, 4n)^{82}\text{Sr}$  の反応で、 $^{82}\text{Sr}-^{82}\text{Rb}$ ) と Zn-68 (ジェネレータでは  $^{68}\text{Ge}-^{68}\text{Ga}$ ) のような安定同位体が必要である。

O-17 (天然存在度は 0.037%) についての核磁気共鳴の進歩に伴い、50% 以上の濃縮が要求される。O-17 は、また医療診断にも期待されているようである。この同位体は、現在、高温超伝導セラミックスの特性の研究に使用されている。



Sm, Gdおよび Yb のような希土類元素に、引き続き関心が持たれている。特に高収率で Gd-153放射性核種を製造するための、90% 濃縮Gd-152 (天然存在度は0.2%) についての高い需要である。50% 以上に濃縮されたYb-168((天然存在度は0.14%)は、特に高い放射能を有するYb-169の原料として必要である。そのような同位体の製造に際して、電磁設備は高分散においての中間生産を必要とし、高い物質利用に備えることを要する。これには 2段セパレータの設置と不均一磁場を有するシステムが重要である。

Pt-Pd 族のすべての同位体についての、そしてHgについての少ないが定期的な需要は、効果的な分離プロセスを作ろうとする関心を抱かせる。これらの元素の中には、解決すべき問題を有するものがある。

安定同位体製造の方法の組合せるのが良いと思われる。たとえば、原料物質の相当量の予備濃縮と処理は、遠心分離とプラズマ法でおこない、次いで高純度まで電磁分離によって行われるだろう。

#### 2.1.4 放射性同位体生産[Herring(1989)]

米国ロスアラモス研究所のLAMPF(Los Alamos Molten Pultonium Facilities) は以前から同位体の製造施設があることで知られているが、一般に市販されていない放射性同位体のかなりの部分をこの研究所の I N C -11 グループは医学研究学会へ関心のある研究者にコスト回収ベースで提供している。

この文献では1988会計年度の医学研究分野への放射性同位体の供給先、積出し量(mCi)、受取量(mci)などを表に記載している。安定同位体は含まれていないが、医学用に下記のような核種が用いられていることがわかる。ただし、米国地質調査所のような医学研究を目的としない施設も記載されている。ブルックヘブン研究所やカリフォルニア大学等に出荷した量が多く、他も大学や研究所が多い。1988年会計年度に、世界の64団体と彼ら自身の Medical Radioactive Reasearch Programを含む Los Alamos の 4グループに、同位体を送り出した。

同位体体名は、Al-26, As-72, As-73, Be-7, Bi-207, Br-77, Br-82, Cd-109, Cu-67, Gd-151, Ge-68, Na-22, Rb-83, Rh-101, Se-72, Sr-82, V-48, Xe-127, Y-88 である。

出荷した総量は 30,108.36 mCi、受け取った総量は 27,793.38 mCiである。

## 紹介文献

- (1) J.G.Tracy; Status of the Isotope Enrichment Program at Oak Ridge National Laboratory Nuclear Instruments and Method in Physics Research A303(1991)p.3-8
- (2) Richard W. Hoff; The availability of enriched stable isotopes: present status and future prospect, URCL-94416(1986) Methods
- (3) A.Tikhomirov, Modern tendencies in the enrichment of stable isotopes and their applications in the USSR and elsewhere, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B70 (1992) 1-4, North-Holland)
- (4) A.H.Herring, R.M.Lopez, R.A.Mitchell, M.A.Montoya, D.C.Moody, M.A.Ott, C.P.Padilla, M.Peepies, K.E.Peterson, D.R.Phillips, L.M.Schneider, F.H.Seurer, R.C.Staroski, F.J.Steinkruger, W.A.Taylor, and D.H.Vigil; Radioactive Production, RESEARCH, LA 11670-PR (1989), 98-101

## 2.2 安定同位体の医学・生命科学への利用

### 2.2.1 安定同位体とNMR計測に関する調査〔ライフサイエンス推進委員会(1988)〕

医学・医療等、ライフサイエンス分野においては、生命現象を分子レベルの動的現象として把握するために、生物の機能を損なわない非破壊的観測手段を用いる事が不可欠である。この意味で、核磁気共鳴スペクトル(NMR)は他の何れの分光学的手法と異なっており、開発されてこの40年以上の間進歩を続けて、基礎、応用の面で多様な分野に利用されてきている。

生命現象を解明し、その成果を広範な分野で応用するには、生体成分の同定や物質代謝の測定などを、生きたままにできるだけ近い状態で行うことが不可欠である。そのためにはC-13, N-15などの安定同位体を用いたNMR(nuclear magnetic resonance、核磁気共鳴法)の技術が最も適しているとして取り纏められた報告書である。報告書は「安定同位体および標識化合物の生産技術と供給体制」と「安定同位体標識化合物を用いたNMR計測技術の現状と将来」で構成されている。

NMRは始め原子核の磁気モーメント測定法であった。今では分子中の原子を通してその集合としての物質に関する精密かつ動的情報をもたらす測定法でもある。NMRは生体機能に関連の深い蛋白質・核酸・糖類などの溶液内高次構造を、原子レベルでとらえることを可能にする唯一の一般的手法である。さらに重要なことは、生体計測技術として基本的に要求される無侵襲性に加えて、高い精度で位置情報を提供できることである。MRI(Magnetic Resonance Imaging 磁気共鳴映像法)やMRS(Magnetic Resonance Spectroscopy 磁気共鳴分光法)の手法は、医学・生理学的価値が高い情報をもたらす。安定同位体ラベル法の発展と導入とあいまって、NMRによって得られる成果は今後も増大していくと見られる。

C-13, N-15などの安定同位体で標識された種々の化合物はほとんど全量が欧米諸国から輸入され、それらは極めて高価であるが、日本国内で安定同位体の濃縮と供給を安く量産体制を伴って実現できるならば好都合である。世界の市場では濃縮度99%~99.5%の安定同位体が流通しているけれども、実際には10~数%に希釈して使用することが多い。国内に適切な規模の同位体濃縮施設(近傍に同位体標識化合物の合成施設があれば好都合)を建設し、必要な同位体あるいはその標識化合物を供給することは意義あることである。

表 2. 2. 1 各種安定同位体濃縮法の概略

分離法	適用される元素 (核種)	備考
① 電磁質量分離法	U-235 他の殆ど全ての元素	
② 電解法	H-2 Li-6, 7	
③ 蒸留法 (深冷蒸留法)	H-2 (H-3) B-10 C-13 N-15 O-18	発展余地小
④ 化学交換法 (*)	H-2 Li-6, 7 B-10 C-13 N-15 O-18	発展余地大
⑤ イオン移動法	Li-6, 7	
⑥ ガス拡散法	U-235	
⑦ ガス遠心分離法	U-235	
⑧ 気体力学分離法	U-235	
⑨ 熱拡散法	(H-3) C-13 Ar-36, 38, 40多くの元素	
⑩ レーザー分離法	原子法 U-235 (Pu-239)など	発展余地大
	分子法 U-235 C-13 Zr-90等 殆どの元素	発展余地大

(a) ライフサイエンスに必要な安定同位体

炭素、窒素、酸素の同位体が最も有用で多く用いられている。(溶媒用に重水素も多く用いられる。)

(b) 安定同位体濃縮技術の現状

安定同位体濃縮法の概略を表 2. 2. 1 に示す。表中で\*印を付した化学交換法は炭素同位体の分離法として有効と見られている。ライフサイエンス分野の核種は化学交換法、酸アルカリクロマトグラフィー法、レーザー分離法、低温蒸留法などの方法が多い。

(c) 安定同位体標識化合物の生産技術

アミノ酸、核酸、糖類に絞られる。現時点では、アミノ酸が抽出法、微生物醗酵法、酵素法、化学合成法の総合的利用により多くの標識体が安価に生産可能である。

(1) 安定同位体の需給状況

現在、安定同位体濃縮国は表 2. 2. 2 に示す国のみで、原料生産は重水を除きアメリカが

表 2. 2. 2 主な安定同位体の供給国

核種	国名	米国1984年	販売量 単価	
		販売金額		
H-2	カナダ、フランス、ノルウェー、ソ連、中国			
C-13	アメリカ、ソ連	7,730万円	6,093 g	12.7
N-15	アメリカ、ソ連、日本、中国、東独	10,800万円	9,779 g	11.0
O-17	アメリカ、ソ連、イスラエル	1,350万円	243 g	55.6
O-18	アメリカ、ソ連、イスラエル	2,870万円	5,462 g	5.3

\*報告の1984年の米国数値からの計算値 (単価: 千円/g)

中心になっている。Los Alamosや Mound Laboratory といったエネルギー省傘下の研究機関が製造の中心になっていたが、現在は民営化されて Isotec 社が大部分を製造している。他の国では、カナダがMSD社、フランスはCEA、英国はもとAEAであったが現在、Amersham International Ltd. と何れも原子力開発の元になった機関が生産している。

安定同位体（S I）は70年代に急速に消費が伸びたが、これは増産により比較的安価になったためである。我が国の1987年の総売上金額は、上記5核種で1億5千5百万円であったが、1992年の売上は約10億円である。

我が国の安定同位体生産では、窒素-15 が理研で昭和22年から行われ、現在、酸化窒素と硝酸の間で化学交換反応法で昭和32年に99.9 at%濃縮に成功した。昭和47年からは昭光通商(株)という民間企業が濃縮業務を行っている。他の安定同位体は全て輸入に頼っており、大部分が米国からの輸入になっている。

表 2. 2. 3 日本における安定同位体の売上高と年間伸び率

化 合 物	H-2	C-13	N-15	O-17, 18	合 計
金額（百万円）	22	61	52	20	155
年間伸び率（%）	108	105	104	110	106

年間伸び率は1985～1987年の金額変化から計算。

近年の日本における安定同位体の売上高と年間伸び率を表 2. 2. 3 に示す。

上記年間伸び率は、1992年現在で我が国における売上高は年間約10億円となり、これを年率に直すと、1987年以来5年間で平均40% を超える伸び率となる。

## (2) 原料と標識化合物の価格動向

安定同位体の価格は少しずつ上昇している傾向にある。表 2. 2. 4 に主要な核種の価格推

表 2. 2. 4 主要原料の価格推移（米国、1983～1987、\$/g）

原料	年次	1983	1985	1986	1987
C-13-炭酸ナトリウム	98Atom%	123.6	133.5	138.0	146.0
N-15-硫酸アンモニウム	98Atom%	154.1	177.7	184.0	182.0
O-18-水	95Atom%	71.0	81.7	76.0	95.1

メーカーは 1985 年までが Mound Lab. 、1986年からは Isotec Co.

表 2.2.5 我が国のN-15 の価格推移 (円/g)

	1965	1982	1987
硫酸アンモニウム 99Atom%	30,900	36,000	23,000
塩化アンモニウム 99Atom%		42,000	26,000
尿素 99Atom%		90,000	63,000
グリシン 99Atom%		80,000	41,000

移を示した。

一方我が国では、現在、C-13 やN-15 等の安定同位体の殆ど全量が欧米から輸入されている。唯一の国産安定同位体であるN-15の価格推移を表2.2.5に示した。

安定同位体の製造価格の大部分が人件費で原材料費の占める割合は低いと言われているが、事実同じ核種を用いるものでも、標識化合物の化学形によって値段が大幅に異なる。安定同位体の標識化合物は非常に高価であるが、その理由としては以下のように考えられている。

- (a) 標識原料が高価であること。
- (b) 原料が高価なため、反応収率を高めるため特殊な反応操作等を用いて人件費が高い
- (c) 標識原料の形態が限定されていて製造プロセスが限定されること。
- (d) 少量生産のためスケールメリットが期待できないこと。

コストは量産の必要性が生じれば、遠心分離濃縮法を含む大量生産技術により、大幅にコストを削減することが可能であるが、例えば、Mound Lab.の1969年のフィージビリティ研究では、炭素-13 については現行の深冷分離法と比較して、1000kg/年以上の需要があれば、ガス拡散法の経済性が成立するとしている。

### (3) 同位体核種の分野別応用実績と主な標識化合物

分野別応用実績として以下のような同位体核種が利用されている。

- ・農学 (土壌、栄養等) N-15 (H-2)
- ・医学・生化学 (臨床、生理代謝等) C-13 N-15 (B-10 Ca-44 Ne-22)
- ・薬理・分析化学 (合成、構造解析等) N-15 C-13 O-18 O-17 H-2
- ・地球化学・環境化学 O-18 S-34 (N-15)
- ・理工学・原子力 U-235 B-10 H-2 (O-18, O-17)

この中で医学等のライフサイエンス、医学・医療分野での応用の観点から注目される安

定同位体は、

NMR分析、代謝反応機構	N-15	C-13	O-17
代謝反応機構	H-2	H-3	
中性子吸収、局部集中照射、治療	B-10		

#### (4) 安定同位体標識化合物を用いたNMR計測技術の現状と将来

近年、超電導磁石がNMRに導入され、また二次元NMR法が開発されたこと等から飛躍的にスペクトルの分解能が向上し、分子量1万程度の比較的分子量の蛋白質では全てのプロトンシグナルの帰属が可能となったと言われる。しかし、分子量1万以上の蛋白質では現在の方法では溶液構造を決定するのは困難であり、新しい方法の一つとして安定同位体の利用はブレイクスルーになる可能性を秘めている。すなわち、S Iの利用により、①不要なシグナルを選択的に排除し、②必要なシグナルを選択的に取り込むことが可能になってくる。

NMRは原子核の磁気モーメントを測定するものであるが、過去、先端技術を吸収して発展を続けている。1960年代には、超電導磁石導入による分解能及び感度の向上があり、1970年代には、計算機のミニコン領域の飛躍的拡大をベースにして2次元NMR、MR I及び固体高分解能を獲得し、現在の3極、①高分解能法、②MR I / MR S、③固体法に分離して発展するようになっている。

#### 2.2.2 医学研究に役立つ核磁気共鳴の技術[Budinger et al(1984)]

核磁気共鳴プロトン映像法(Nuclear Magnetic Resonance Proton Imaging)は計算処理をしたX線断層撮影法(X-ray Computed Tomography)よりも、人の頭部や骨盤のほか、心臓血管系(Cardiovascular System)、筋肉骨格系(Musculoskeletal System)の各所において、正常組織と異常組織を解剖学的に明瞭かつ高感度で区別できる手段である。この技術が進歩して胸部と腹部の診断映像が良くなった。陽子、C-13及びP-31の局所核磁気共鳴分光法は人の“in vivo”(生体)研究において基礎的・科学的な手段を与えて、新陳代謝不調に対する臨床診断に用いる道具として発展してきた。現在では、磁場への接近を管理する限り、核磁気共鳴法は安全であると考えられる。2テスラ以上の磁場強度にする技術の進歩によって、加熱の様子や磁場の影響などの生物物理的な研究がこれから必要になる

であろう。

### 2.2.3 S I - NMRの行方 [森下諦三(1990)]

S I - NMR (安定同位体利用核磁気共鳴法) は超伝導磁石の導入、プローブ技術の改良、ミニコンピュータの付加等で感度と分解能が向上して、新しいライフサイエンスの基礎研究手段として目ざましい展開を示した。これはNMRの感度が磁場の  $3/2$  乗に比例して向上し、超伝導により 600 MHz以上の高磁界の核磁気共鳴観測が可能になったためである。

これらといわゆるMRI (磁気共鳴画像法) の普及等で現在国際的にも利用技術は一段落した段階にあるし、今後の広い普及のためには、新しい測定法の登場と標識化合物の大幅な低価格化が必要条件とされている。

表2.2.6 は現状のライフサイエンス分野におけるS I - NMR研究報告の数を示したが、この数は需要とも関係があると思われる。

表2.2.6 ライフサイエンス分野におけるS I - NMR研究報告の数

同位体		1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988	計
H-2	世界	82	72	96	70	83	109	92	103	71	80	858
	日本	6	4	4	2	2	6	6	6	5	5	46
C-13	世界	1061	1181	1221	1050	1002	982	973	850	715	836	9876
	日本	120	134	132	101	85	95	79	86	65	81	978
N-15	世界	72	86	111	77	92	94	81	80	69	78	840
	日本	5	4	5	7	3	1	3	5	2	4	39
O-17	世界	26	35	33	32	54	52	52	54	47	55	440
	日本	5	1	4	2	0	1	4	5	1	3	26
O-18		4	7	5	10	7	5	4	7	5	8	62
F-19		158	162	178	146	159	146	146	152	131	166	1544
Na-23		83	75	99	106	89	93	105	154	158	165	1127
P-31		314	322	370	398	357	376	404	459	506	462	3968

### 2.2.4 ポジトロン核種の医学利用 [井上修(1993)]

この論文は放射性同位体を扱ったものであるが、短寿命で人体に影響を与えないという点で安定同位体と意義が類似することと、これらの短寿命核種が安定同位体をサイクロトロン照射により得られるので、ここで紹介する。



## (1) はじめに

$^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{32}\text{P}$ 等の放射性同位体は、基礎医学や生物学の分野において物質の微量定量、分布や流れの測定、及び代謝過程の分析において重要な貢献を果たしてきた。また臨床医学の分野においても、放射性同位体でラベルされたトレーサーの体内挙動から各組織の機能診断を行う核医療の方法が発展してきた。

この核医学の分野で注目を集めているのが、 $^{11}\text{C}$ 、 $^{13}\text{N}$ 、 $^{15}\text{O}$ 、 $^{18}\text{F}$ 等の陽電子放射核種である。これらの核種は主要な生体構成元素の同位体であり、多様な化合物のトレーサーとして利用が可能であることから、生体内での物質の働きや分布、代謝過程を追跡することが可能である。また、これらの核種は陽電子が消滅する際に、そのエネルギーを2本のガンマ線として放出するので、リング型の検出器で同時係数することにより同位体の空間分布を定量性よく測定することができる。

この方法は陽電子放射トモグラフィ（PET, Positron Emission Tomography）と呼ばれており、トレーサーの経時的な体内分布を断層像として画像化できる。これらの核種はその半減期が極めて短いので、アイソトープの生産から標識合成、測定に至る一連の過程を施設内で行う必要があり、加速器やPETカメラ等の高価な装置を要する。反面、短半減期であることから同一被験者に対して繰り返し検査を行うことが可能で、短期的、または長期にわたる体内の変化を経時的に追跡することができるという利点も有している。PETはガンや脳、心臓等の疾患の診断に利用されている他、脳機能の解明をはじめとする基礎的な生命科学への応用が期待されている。ポジトロン核種の医学利用の現状と将来の展望について簡単に述べられている。

## (2) 診断への利用

表2.2.7に主に疾患の診断を目的として使用されているポジトロントレーサーを示す。脳では虚血性疾患や痴呆等の病態把握のために、局所血流量や酸素代謝、糖代謝の測定が行われる。 $^{15}\text{O}$ で標識された水は、脳や心臓における局所血流量の測定によく使われているトレーサーである。脳梗塞や心筋梗塞における血流、代謝を経時的に追跡し、その病態を正確に把握することによって合理的な治療を行うことができる。米国では心臓の血流量の測定には $^{82}\text{Rb}$ が、入手が簡単なことから日常診断に使用されている。

ガン組織は正常組織と比較して一般に代謝が活発で、そのマーカーとして $^{11}\text{C}$ メチオニントがよく使われている。 $^{11}\text{C}$ メチオニンの取り組みが低下しない下垂体腫瘍の場合には

表 2. 2. 7 診断に利用されている主なポジトロントレーサー

臓器	核種	利 用 目 的
脳	$^{11}\text{C}$	メチオニン（腫瘍のアミノ酸代謝）
	$^{15}\text{O}$	酸素、二酸化炭素、水（血流量、酸素代謝）
	$^{18}\text{F}$	デオキシグルコース（糖代謝）
心臓	$^{11}\text{C}$	脂肪酸（脂肪酸代謝）
	$^{13}\text{N}$	アンモニア（循環代謝）
	$^{15}\text{O}$	水（血流量）
	$^{18}\text{F}$	デオキシグルコース（糖代謝）
がん	$^{82}\text{Rb}$	カチオンの取り込み
	$^{11}\text{C}$	ミチニオン（アミノ酸代謝）
	$^{18}\text{F}$	デオキシグルコース（糖代謝）

手術の適応になるが、PETはこのような鑑別診断に有用である。その他の臓器の機能診断にPETが利用された例はまだ少ないが、今後研究の進展と共に適用が広がるものと予想される。

### (3) ポジトロン核種の脳科学への利用

脳機能の解明は生命科学の領域で残されている最大の課題の一つである。分子生物学をはじめとする多くのアプローチのなかで、PETは生きたままの状態で脳内の生化学的過程を探れる有力な方法論として位置づけられる。特にヒトの脳を直接測定できるという点は、種々の高次機能を探る上で、また、神経-精神疾患の病態を物質レベルで把握する上でも非常に重要な点である。現在のところ、PETを用いた脳機能の解明には大別して二通りのアプローチが展開されている。一つは脳の機能局在を局所血流量の変化を介してみようというものである。一般に脳では、ある部位の神経活動に対応してその部位の局所血流量が増加するといわれており、被験者にさまざまなタスクを与え、その前後における血流量の変化を定量することにより、そのタスクに関連して活動する部位を同定することができる。この目的のためには $^{15}\text{O}$ 標識-水が、半減期が約2分と短いことから反復測定の目的には最適である。この方法は視覚、聴覚などに関連した認知機構の解明や、情動、記憶、思考などと、脳の活動状態との関係が検索されている。

他の重要なアプローチは、シナプス間隙における情報伝達の様子をPETを用いて探ろうというものである。脳における情報処理の基本は、神経細部間の化学的な情報伝達であると考えられており、現在までに多数の物質が神経伝達物質または情報伝達を修飾する物質として確認されている。このシナプス間隙における情報伝達を解明するには、個々の構

成要素についての分子レベルでの知見に加えて、各構成要素がシステムとしてどのように構築されているのか、また機能発現との関係がどうなっているかについて明らかにしていく必要がある。ポジトロントレーサ法の最大の特長は、トレーサをうまく選択することによって、分子レベルでの弁別測定ができるという点にある。またいくつかのトレーサを組み合わせて計測することにより、情報伝達系の様子をより複合的に観察することもできる。現在ドーパミン系以外にも、アセチルコリン、セロトニン、ベンゾジアゼピン、オピオイド系等種々の伝達系を測定するためのトレーサが実用化されている。

最近マウスやラット等を用いた基礎的な実験やサルを用いたPET実験でも、脳の切片やホモジネートを材料としたインビトロの結合実験結果と、生きている脳を対象としたインビボの結合実験結果との間には大きな乖離があることが明らかになりつつある。多くの場合、インビボの系でのみレセプター結合が変化し、インビトロの系で求めた結合パラメータには変化がみられない。一般にインビボの測定系では、非平衡下での反応の過程を見ていることになり、速度因子が観測データに大きく影響し、先に述べたインビボ固有のレセプター結合の変化も結合-解離速度の変化に起因すると考えられる。系統的な研究を進めることにより、将来インビボの生化学とでも呼ぶべき新しい分野が拓かれると予想される。

#### (4) ポジトロン核種の薬学への応用

ポジトロン核種はまた薬学の分野でもその利用が期待されている。薬物が人体に投与された後、標的部位にどの程度到達するのか、あるいは、その有効濃度はどの期間保持されるのか、また薬物の吸収、分布、排泄等が性差や年齢によってどのように違っているのか、こうした情報は副作用の軽減化やより適切な投与計画の作成に不可欠なものである。従来は薬物の血中濃度からの推定値に頼らざるを得なかったが、ポジトロン核種で薬物を標識することにより、直接ヒトでのデータがとれるようになった。多くの薬物は、体内のレセプターとの結合を介して、その薬理作用を発現すると考えられている。薬物を直接標識なくても、薬物によるレセプターの占有量と薬効発現との関係やレセプターレベルでの作用時間を探ることも可能である。

PETはまた薬物の作用を客観的に評価する方法論としても期待されている。ガンの治療過程や、種々の循環・代謝改善薬の効果判定を糖やアミノ酸代謝を指標として測定することができる。インビボの測定法は生体の複雑な系における最終的な効果を、客観的な指

標を用いて捉えられるという観点からみて、今後の発展が期待される。

#### (5) 超微量現象の解明をめざして

一般にラジオアイソトープを用いたトレーサ法が広く利用されている大きな理由として、その測定感度が高いことがあげられる。アイソトープ法の測定感度は、トレーサの比放射能（単位重量当りの放射能）によって規定され、理論的にはアイソトープの半減期が短いほど測定感度を上げることができる。例えば、モルヒネの鎮痛作用はオピオイドレセプターとの結合を介して発現すること、脳内には内因性のモルヒネ様物質が存在すること等はよく知られているが、このオピオイドレセプターの存在が実体として明らかになったのは、 $^{14}\text{C}$ の代わりに  $^3\text{H}$ で標識したトレーサが利用できたからである。神経伝達物質やホルモン・オータコイド等のレセプターの解析には、現在高比放射能の  $^3\text{H}$ 標識化合物がよく使われているが、その測定感度はせいぜい  $10^{-10}$  Mの領域である。生体では  $10^{-12}$  M以下で生理作用を有するものがある。このような極微量の濃度領域を探るには、ポジトロン核種による超高比放射能で標識されたトレーサの開発が重要な貢献をするものと考えられる。表2に示すように、 $^{11}\text{C}$ は理論的には  $^3\text{H}$ と比較して約34万倍の比放射能で標識することが可能であるが、現在では100倍から200倍程度のものしか得られていない。安定同位体の混入をいかにして防ぐか、また短時間での同位体濃縮法の開発、放射線分解の防止等、今後に残された課題は多いが、魅力ある研究対象の一つであると思われる。

#### まとめ

陽電子発生核種は、生体構成元素でかつ短半減期の核種であることから、単に診断のみならず、広く生命科学への利用が期待されるアイソトープである。特に体外計測により、生体のダイナミズムを追える点は、医学に新しい観点を提供することになるであろう。しかしながら、我が国における現状では施設は限定されており、その可能性を十分引き出すには至っていない。より高度な診断情報をとるためにも基礎研究が重要であり、その遂行が可能なPETセンターの設立が望まれる。

## 2.2.5 核医学における最近の進歩 [宍戸文男(1993)]

本論文も殆ど放射性同位体を用いた応用例を述べたものであるが、安定同位体で置き換える可能性も考えられるので、ここで紹介した。

要約：

原子力平和利用のひとつである核医学診断の最近の進歩は目ざましく、特に、脳神経疾患への診断的応用や脳研究への利用の点では近年著しい進歩を示しているが、本稿では、脳神経疾患への応用という観点から、計測装置と放射性医薬品の進歩、および脳神経疾患の病態解明と診断応用の進歩と現状について概説している。

### (1) はじめに

原子力の医学利用は、①疾病の病態生理解明のための基礎的研究への利用、②疾病の診断への利用、③疾病の治療への利用、に大別される。このうち、非密封R Iの医学への利用は「核医学」と呼ばれ、表2.2.8に示すような主として診断への利用が中心的役割を演じている。腫瘍の診断と心臓疾患・脳神経疾患の診断への応用が盛んになってきている。特に、脳神経疾患では、これまで病態解明の研究が進まなかった神経疾患では、これまで病態解明の研究が進まなかった神経精神疾患において、その病態解明への糸口を開く研究手段としても注目を浴びるようになっている。

一方、治療への応用を進めている施設はそれほど多くはないが、着実に成果が生まれつつあり、腫瘍の非密封R Iによる治療の効果が報告されている。しかし、現時点での核医学の多くは診断的利用であり、特に、脳神経疾患への応用はここ数年めざましい進歩を示している。

表2.2.8 核医学診療実態調査（日本アイソトープ協会）

	1982年	1987年	1992年
推定検査総計（件／年）	1,500,000	1,560,000	1,665,000
骨シンチグラフィー	23.8%	19.1%	24.7%
腫瘍シンチグラフィー	7.9%	12.1%	14.1%
心筋シンチグラフィー	3.2%	7.2%	12.2%
脳血流シンチグラフィー	—	2.5%	7.3%

## (2) 核医学診断の意義と脳神経核医学の誕生

近年のX線のCTおよび磁気共鳴イメージング(MRI)の開発と普及により、脳神経系を中心に画像診断が急速な進歩を遂げた。X線CTは1972年Hounsfieldらにより、MRIは1977年Damadianら及びHinshawらにより、人体のイメージングに成功して以来、続々と最新の装置が開発され、普及してきた。これらの装置は疾病により変化する組織や臓器の形態を断層像として描画する診断装置として、体内を切り開かなくとも、あたかも切り開いたかのような詳細な断層画像を提供する画期的な診断装置であった。これまで非侵襲的な画像診断法がなかった脳神経系疾患の分野では、このような診断法の進歩で脳血管障害や脳腫瘍の診断が容易となり、大きな医療上の利益が得られるようになった。最近では、無症候性脳梗塞や無症候性脳動脈瘤といった無症状の患者が発見されるようになり、無症状の患者をどのように扱うかという、これまでになかった問題も生まれている。また、このような非侵襲的な検査法を使って、「脳」に関する人間ドックを行おうとする動きも活発となってきている。

CTやMRIのような非侵襲的診断法の発達により、一方では機能や代謝を診断する技術に対する要求が起こってきて、核医学が見直されるようになった。組織や臓器の形状が変化する以前に機能や代謝が変化することが疾患ではしばしば経験される。疾患の早期診断・早期治療を目指せば、必然的に要求の高まる診断法であろう。特に、脳神経系疾患での要求が高く、形態診断を主とする神経放射線診断に対して、機能診断法である脳神経核医学診断とでも呼べる新しい分野が誕生しつつあるとの見方もできる状況にある。

## (3) 代謝と形態

核医学診断法が形態診断法とどのような点で異なるか、その具体的な1例を紹介する。

クロイツフェルトヤコブ病(CJD)は年間100万人に1人という極めて低い発病率の珍しい疾患で、prionと呼ばれるウイルスよりも小さなタンパク質が病原体として想定されている遅発性感染症である。発病すると、急速に痴呆症状が進行し、脳は著しい萎縮を来す。これまでは臨床症状や脳波所見などにより診断し、CTで脳萎縮が見られることで診断を確認してきているが、病状が進行しないと脳萎縮の所見が明らかになってこないため、画像診断では、早期診断が難しいとされていた。しかし、CTで形態学的な脳萎縮が進行する以前から、代謝や血液が低下していることが核医学診断により確認できるようになった。

最近でがH I V（エイズウィルス）陽性の母親から生まれた子供で、神経学的症状が現れる前に、ブドウ糖代謝の異常が出現することが報告されるに至った。代謝測定による早期診断の重要性が増しており、核医学の割合もまた増加しているといわざるをえない。

#### (4) 核医学の進歩の要因

核医学診断は体内に放射性医薬品を注入し、その体内分布や体内動態を外部から計測するという方法をとることから、重要な要因は2つに分かれる。放射性医薬品と測定装置である。進歩という点でみると、測定装置の開発が先行しているように見える。

##### (a) 計測機器の開発と進歩

測定装置は放出する放射線の種類により、2つに大別される。① $\gamma$ 線の計測により画像を得る方法と、②ポジトロンから得られる消滅放射線の同時計測を利用して画像を得る方法である。いずれの方法もC TやMR Iでの経験から、脳神経系疾患領域では断層画像撮影が主流となっている。前者の $\gamma$ 線計測による断層画像撮影法をS P E C TあるいはS P E T (single photon emission tomography)、後者をP E T (positron emission tomography)と呼ぶ。これらの測定装置の開発は比較的早く、C TやMR I装置とほぼ同時代といっている。

人間での測定可能なP E T装置は1976年にワシントン大学から公表され、後に市販された。国内でも、1979年11月、日本で最初のポジトロンC T (POSITOLOGICA)の人体利用が放医研で始まった。S P E C T装置も、1976年に開発されたが、S P E C T装置が威力を発揮するのは $^{123}\text{I}$  M Pが市販されるようになってからである。最近では、 $^{123}\text{I}$  M P、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -HM-PAOといったS P E C T用放射性医薬品が市販されるに至り、装置の開発も活発となっている。S P E C Tトレーサの普及に果たした役割は大きい。

このようなP E T・S P E C T装置の開発が進む一方で、核医学診断にとって大きな転換点となるような放射性薬剤が開発されるようになった。

##### (b) 放射性薬剤（トレーサ）の開発

P E T用の薬剤については、1977年にSokoloffらにより発表された $^{14}\text{C}$ -deoxyglucoseを用いたラットの脳ブドウ糖消費率の測定法が基礎になり、1978年井戸らがブルックヘブン研究所 (BNL)において $^{18}\text{F}$ -fluorodeoxyglucose ( $^{18}\text{F}$  D G)を合成し、1979年にKuhlらが開発したS P E C T装置であるMark IVに高エネルギー用(511 keV)のコリメータを装着して、最初に人体で行った脳ブドウ糖消費量の測定が核医学診断における画期的

表2.2.9 SPECT及びPETのための核種と試薬の例

SPECT	Tc-99m	I-123	Xe-133	
PET	C-11	C-15	O-15	F-18

な出来事であったと思う。この事実は核医学的手法により、人体で脳エネルギー代謝が測定でき、脳活動をモニタできることを示したことになる。いわゆる“in vivo 生化学”を実証した最初であると評価できる。それから、約1年後、日本ではBNLから帰った井戸が放医研で $^{18}\text{F}$ FDGの製造を開始し、1980年10月から臨床利用が開始された。

その後、PETのための放射性薬剤の開発はめざましいものがあり、表2.2.9のような核種を含む例示のような物質が開発された。最近では、脳内の神経伝達物質やその受容体の画像化に関して、人体への応用が行われつつある。

一方、SPECT薬剤の開発は脳血流分布SPECT製剤である $^{123}\text{I}$ IMPが日本で市販されるようになったのが最初であった。1981年にWenche11らが $^{123}\text{I}$ IMPを合成し、その有用性を報告したが、その2年後の1983年から日本で治験が開始され、1986年8月には脳血流分布の診断薬として市販が始まった。これはSPECT製剤が臨床診断用として供給されるようになった世界で最初である。

それまでのPETによる脳神経系の循環代謝測定の有用性の研究が基礎となり、 $^{123}\text{I}$ IMPの市販と回転型 $\gamma$ カメラSPECT装置の普及により脳神経形の核医学診断の普及と発展はめざましいものがある。日本アイソトープ協会がまとめた核医学利用統計と核医学診療の現状によると、in vivo 検査項目頻度で、脳血流シンチグラフィは1987年が2.5%で全体の10位であったものが、1992年には7.3%で4位にまで増加している。

SPECT製剤として $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 標識薬剤の研究も進められ、ヨーロッパで $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -HM-PAOが開発されている。日本では1986年に治験が始まり、1989年9月に市販が開発された。また、アメリカで開発された $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -ECDが現在日本で治験中である。

$^{99\text{m}}\text{Tc}$ 標識薬剤の開発により、十分なカウント数が確保されているようになり、SPECT装置もより精度のよい画像が得られるSPECT専用機の開発と普及の方向へ進んでいるようである。



## (5) P E TとS P E C Tの特徴と相互関係

### (a) P E Tの特徴

P E Tはポジトロン放出核種から出る陽電子が電子と結合して発生する2本の511 keVの光子を同時計測する点に特徴を有する。この消滅放射線同時計測法という特徴的な計測法を使うことにより、体内での放射線の減衰を補正し、生体内に存在する核種の量を正確に測定することが可能となる点の一つの利点である。

もう一つの利点は、炭素(C)、窒素(N)、酸素(O)、フッ素(F)といった生体内の生理的物質のトレーサを作り易い核種が利用可能であるという点にある。これらの特性を生かして、脳組織の血流量・酸素消費量・ブドウ糖消費量を定量的に測定する核医学検査法がP E Tであるといっているであろう。

代謝・血流のほかに、最近では、脳内の神経伝達物質の受容体やアミノ酸代謝などが測定されるようになってきている。しかし、短寿命のため放射性核種の製造からトレーサの合成を病院内で行う必要があり、それに伴う設備と専門家を必要とするため、P E Tを利用可能な施設に限られてくるという問題点をもっている。

### (b) S P E C Tの特徴

$\gamma$ 線放出核種を用いて断層画像を得る方法がS P E C Tと呼ばれる方法である。S P E C Tでは生体内の核種の存在量を正確に測定することが原理的には困難であること、生理的なトレーサの合成がしにくいこと、などが問題点とされている。しかし、S P E C T装置も測定精度を向上させる工夫が試みられていること、脳血流分布を測定するトレーサが市販されるようになったことなどから、臨床例に簡単に利用できるようになり、脳神経疾患の核医学的臨床検査法として常用されるようになってきている。

## (6) 脳神経核医学の進歩

1970年代前半までは、脳神経系に關与する核医学的診断法の主流は $^{99m}\text{Tc}$ -D T P Aを用いた脳シンチグラムと呼ばれる方法で、脳腫瘍や脳梗塞巣の局在を診断していた。この方法は脳血液関門の破綻を検出して画像とする診断法である。しかし、その後に急速に発達したC T・M R Iの方が分解能の点で格段に優れ、1970年代後半には $^{99m}\text{Tc}$ -D T P Aを用いた脳シンチグラムはC T・M R Iに取って替わられてしまった。

1970年代後半から1980年代前半ではP E Tによる脳の血液代謝の測定が研究され、その有用性が確認されるようになった。さらに、1980年代後半からは、S P E C Tが本格的に

脳血流測定は臨床診断法として利用されるに至っている。現在、PETとSPECTは車の両輪のように相補いながら、核医学診断の進歩を推し進めている。PETによる病態解明と定量的な計測データをもとに、簡略化されたSPECT測定で病態の解釈を行い、診断を行うという具合である。

これらのSPECTによる脳神経系核医学診断の進歩は選考して研究されていたPETでの研究成果が重要な役割を担っている。脳血流分布測定に関していえば、PETでの臨床研究の成果がSPECTで臨床に役立つことが確認されたことにより、血流分布をみるSPECT製剤が市販されるに至ったという経過をたどっている。また、この間に測定精度のよいSPECT専用装置が開発され、普及してきていることも重要な要因である。

PETでの研究は、初めは脳血流とエネルギー代謝に関する測定が中心であったが、最近ではアミノ酸や薬剤などの代謝、神経伝達物質やその受容体との結合性などの検討が行われるようになってきている。これに伴い、まだ臨床的な利用の報告は少ないが、アミノ酸代謝や神経伝達物質の代謝や受容体の測定を目指したSPECTトレーサが開発されるようになっている。

#### (a) 脳血管障害診断の進歩

虚血性脳血管障害患者でこれまでのCT、MR Tでは得られない重要な情報が得られることが明らかとなってきている。一つは虚血急性期の治療方針の決定に関するものであり、もう一つは大血管の閉塞の診断に関することである。

虚血急性期の治療方針の決定；脳血管障害において虚血巣が可逆性をもっているか否かは、治療方針を考える上で非常に重要な情報である。したがって、梗塞に陥る脳血流代謝量のしきい値を測定すれば、治療方針の決定に役立つ。X線CTにより脳梗塞と診断できるような病巣では、血流量で12~16ml/100ml/min.、酸素消費量では1.3~1.8ml/100ml/min.程度の値を示す。少なくともこの値以上でなければ、虚血急性期の外科的治療や血栓溶解治療の適応はないと考えられる。不必要な外科治療や薬剤の使用を減らすことが可能になると考えられる。

一過性脳虚血発作の原因究明；脳内の大血管の閉塞があり、一過性脳虚血発作を起こす症例が時々みられる。一過性脳虚血発作は原因により、その後の治療が異なる。その原因の追求には、これまでは脳血管撮影が必要であった。この脳血管撮影を行う必要のある患者を選択する診断法として、非侵襲的なSPECTが有用である。

#### (b) 痴呆患者の鑑別診断（アルツハイマー型痴呆と脳血管性痴呆の鑑別）

CT、MRIではアルツハイマー型痴呆と脳血管性痴呆の鑑別を行うことは困難であった。しかし、脳血流SPECTを行い血流の低下した領域（すなわち機能低下した領域を意味する）の分布の違いをみることにより、両者の鑑別が比較的容易となった。

(c) てんかん焦点の診断

てんかんの焦点検出でも、CT、MRIは不得意なところである。これまでのPETでの研究により、てんかん発作中の焦点ではブドウ糖代謝と血流の増加を示し、発作間欠期ではブドウ糖代謝と血流の減少を示すことが明らかとなっている。

(d) ミトコンドリア脳筋症の病態解明と診断（エネルギー産生に関わる代謝の測定）

ミトコンドリアは細胞質にある小器官で、細胞にとって必要なエネルギーはほとんどここで産生される。脳と筋肉にあるミトコンドリア機能が低下する疾患がミトコンドリア脳筋症である。これまでは、筋肉での機能異常は生検で確認できたが、脳のミトコンドリア機能異常は、患者の生前に確認することはできなかった。しかし、PETによる患者の脳循環代謝測定を行い、脳内の病態の確認が可能になった。

(e) 下垂体腺腫に対する薬物治療反応性の予測

脳下垂体に発生する腫瘍の一つにプロラクチン産生下垂体腺腫がある。これは下垂体ホルモンの一つであるプロラクチン（乳腺刺激ホルモン）を産生し、プロモクリプチンという薬剤が効果を発揮する。薬剤の効果の予測はこれまでは難しいとされていたが、PETにより、薬剤の有効性が予測できる可能性のあることが明らかとなった。

(f) 神経伝達物質受容体の計測

神経細胞（ニューロン）は樹状突起を介して互いに密な連絡を行い、複雑な情報の処理を行っていると考えられている。この神経細胞体と樹状突起との連絡を行うシナプスでの情報の伝達に関する機構は、情報を流すシナプス前細胞の樹状突起からある化学物質が分泌され、シナプスを介してこれを特異的に識別して捉える受容体と呼ぶ構造をもった神経細胞に捉えられ、情報が伝達されるという仕組みになっている。

神経伝達物質そのものあるいはその類似物質の放射性薬剤を合成し、PETでその動きを測定し、脳の活動の基本である神経伝達物質とその受容体に関する“in vivo 計測”が核医学的手法により人間で測定可能となってきている。

(7) おわりに

脳神経系に対する核医学診断の最近の進歩と現状を概説した。脳神経系の疾患では難病

といわれる疾患が多く、その病態と同時に、臨床診断法の確立が急がれる。今後の核医学診断の研究と実用化に期待がかかっている。

## 2.2.6 国立生物医学トレーサ施設 (NBTF) [Erb et al(1990)]

### 序

DOEの製造および研究施設に由来する同位体の製造、供給、および販売、ならびに関係業務は、DOEとその以前の機構(AECおよびERDA)の長期継続業務として続いている。この活動の権限は、原子力エネルギー法に定められている。

安定同位体と放射性同位体は、関係業務と合わせて、今、DOEの幾つかの基地、すなわち、ANL(Argonne National Laboratory)、BNL(Brookhaven National Laboratory)、Mound(EG&Mound Laboratory)、INEL(Idaho National Engineering Laboratory)、LANL(Los Alamos National Laboratory)、ORNL(Oak Ridge National Laboratory)、WHC(Westinghouse Hanford Company)、およびPNL(Pacific Northwest Laboratories)にある、数多いDOEの製造施設と研究施設で、製造が続けられている。

同位体の製造と関係業務は、多くの例において、それらの製造と処理が、DOEによって所有され、かつ、DOEのために運転される製造と研究の施設においてのみ実施できるという点で、他に類を見ないユニークなものである。例をあげれば、DOEは西側世界における、このような同位体製造と関係業務の、唯一の供給者なのである。

これらの製造と関係業務は、DOE(ERDAおよびAEC)研究プログラムの自然のなりゆきであり延長であり、研究、産業、農業、医学診断(法)や治療(法)への広範な応用を見出している。これらの技術、ならびに、関係する製造と業務は、今、世界中で享受されている“quality of life”に関して、重みのある効果を持ち続けてきた。

1989年の中期に先立ち、同位体の製造と配付(IP&D:Isotope Production and Distribution)プログラム活動の管理と援助に関わるDOE本部の責任は、エネルギー研究、防衛プログラム、ならびに、管理と経営について、DOEの関係局内の幾つかの異なった

機構単位に割り当てられた。1988年の後期に、IP&Dプログラムの目的が、DOE本部の管理責任の一元化の確立によって、よりよく機能するだろうとの決定をみた。1989年5月30日、IP&DのDOE本部局が設立され、同プログラムの政策、目的及び管理の展

開に関わる総括責任が割り当てられた。

DOEの同位体製造と分離は、原子炉、カルトロン (calutrons:電磁同位体分離装置)、遠心分離 (機)、深冷蒸留 (cryogenic distillation)、および適切な他の施設を用いて行われる。

#### (1) 粒子加速器同位体

DOEの粒子加速器同位体は、BNLとLANLで製造される。BNLでは、同位体はBLIP (Brookhaven Linac Isotope Production Facility) において製造される。BLIPは、200 MeV、60  $\mu$  amps のプロトン束を用いており、また、標準的には、年に13~18週の運転を行っている。LANLでは、粒子加速器同位体はLAMPF (Los Alamos Meson Physics Facility) において製造される。ここでは、800 MeV、1.1m amps のリニア加速器が用いられていて、年に6か月までの運転を実施している。幸いにも、BLIPとLAMPFのスケジュールは重複していない。しかし、不幸にして、それらの組み合わせ運転時間は、1年中、運転を寄せ合わせるという訳にはいかない。したがって、必要な同位体 (それらの多くは短寿命で、かつ、著しく、医学応用に用いられるようになっている) の連続利用を保証しない。

このように問題は、なくてはならぬ粒子加速器による製造同位体の供給を、いかに連続ベース、かつ、がまんできるコストで保証できるかなのである。これは何も、新しく発見された問題ではない。それは、1988年8月16~17日、LANLで開催されたDOEワークショップで検討された。さらに、DOEの核医学プログラムの保健と環境研究諮問委員会の見直しにおいて考慮された。これら2つの見直しによって米国は、不確かな物理プログラム予算 (医学と他の応用のためのなくてはならぬ同位体の供給に関係) に、頼り続けるべきでないことを結論づけた。したがって、DOEワークショップとHERAC (Health and Environmental Research Advisory Committee) 諮問委員会とともに、DOEが専用の医学同位体製造用粒子加速器 (約70 MeV、500  $\mu$  amps) を作って運転すべきであると勧告した。

#### (2) 国立生物医学トレーサー施設 (NBTF)

1989年中期に、NBTF (National Biomedical Tracer Facility、国立生物医学トレーサー施設) が設立されて以降、DOEのIP&D局は先の勧告を調べて、粒子加速器の役

割とその妥当性を検討した。これらの検討によって、次の3つの前面賛同的な役割と妥当性が是認されることとなった。すなわち、

- ① 核医学と他の市場向け同位体の製造
- ② 教育と訓練
- ③ 同位体製造と核医学のR & D

製造同位体(70 MeV, 500  $\mu$  amps の装置で製造できる同位体)

(a) 核医学分野

$^{82}\text{Sr}$  : この同位体への需要は、少なくとも、1 Ci/月と思われる。 $^{82}\text{Sr}/^{82}\text{Rb}$ 発生器は、現在、食品と薬品の管理によって承認されている。したがって、 $^{82}\text{Sr}$ の需要は急速に増加すると期待される。同様に、ポジトロンエミッション断層撮影法(PET)センターの数の増大も期待でき、1991年までには2 Ci/月、1995年までには5 Ci/月へと需要が伸びると思われる。この需要は、やろうと思えば恐らく、2000年までには、10 Ci/月に伸ばし得るだろう。

$^{68}\text{Ge}$  : これは、PETの将来に向けて重要である。それは、患者における減衰をモニタするための伝達像発生用に用いられるからである。この応用代替はあるにはあるが(すなわち、 $^{18}\text{F}$ )、不便だと思われる。 $^{68}\text{Ge}$ は、また、 $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ 発生器の親同位体として重要である。需要は、1995年までには1 Ci/月の方向に向けて推移するものと期待される。 $^{68}\text{Ge}$ の需要は、2000年までには2 Ci/月に伸ばし得るだろう。

$^{67}\text{Cu}$  : 現需要は、600m Ci/月である。開発中の研究同位体向けの需要を正確に予測することは困難であるが、連続供給が需要を助けることになり得よう。この同位体の市場開発に対して、専用施設が絶対不可欠である。 $^{67}\text{Cu}$ の供給の活発化に伴い、また、不断の進歩が単クローン抗体使用の癌処理向けになされるならば、その需要は成長し続けることができる。

$^{123}\text{I}$  : この物質には、既存の大きな市場がある。これは、主として、SPECT(Single Photon Emission Computed Tomography)の脳画像剤として用いられる。この物質に加えて、幾らか質は落ちるが余り高くつかない物質[ $^{127}\text{I}$  (P, 5 n)  $^{123}\text{I}$ ]の研究が、ひょっとすると出てくるかもしれない。DOEの専用施設は、これらの目的を満足し得るものである。

$^{129}\text{Xe}$  : この核種には、変らざる需要(3-4 Ci/月)がある。BNLとLANLはともに、本物質を製造している。多くの臨床医は、 $^{133}\text{Xe}$ のベンチレーション研究の中にあ

っても、もし、連続的で信頼できる供給が続けられるならば、 $^{127}\text{Ge}$ の使用の方を選ぼうと考えている。

$^{57}\text{Co}$ ：この同位体は核医学において広く用いられているが、需要を満たせない状況にある。現在の需要は、8 Ci/年を超えている。DOEの専用施設による同位体製造は、高優先事項に値するものであろう。

(b) 他の分野

核医学共同体は、DOE施設によって製造された放射性同位体の唯一のユーザではない。幅広い分野の科学者が、放射性核種を研究に用いている。放射性同位体は、健康な細胞と病気の細胞の何れの生物化学的プロセス研究に用いられる。それらは、殺虫剤の行動モードと環境の巡り合わせの研究にも用いられた。放射性核種は、環境防護や清浄システムを評価し、モニタするのに用いることができる。幾つかの核種は、分析的な、また、医学的な応用のためのX線源として用いられるし、その他、各方面の用途をもっている。全包含的な訳ではないが、核医学以外に放射性同位体の市場を考えることの重要性を示すことには意味がある。

$^{67}\text{Cu}$ ： $^{67}\text{Cu}$ に対する現需要の殆どが、核医学（診断と治療）の研究にある。この核種は、Menke およびWilson病のような代謝的な慢性疾病におけるCuの役割を明らかにすることにおいて、重要な役割を演じている。このような生物医学的応用のため全需要は、多分、核医学の需要に比べては小さいものであろうが、このことは同位体が他の応用において持ち得る価値を示すものである。生物医学的および環境トレーサとしての、この同位体への需要は、核医学からの需要の10-20%まで増加することがあり得ると思われる。

$^{73}\text{As}$ ：2年前、米国地質調査所 (United States Geological Survey)は、採鉱作業によるAs汚染の研究用環境トレーサとしての $^{73}\text{As}$ への関心を表明した。この同位体は、LANLで、 $^{68}\text{Ge}$ の代わりに処理された Rb Brターゲット溶液から、研究目的に得られ、かつ、回収された。ある物理グループは、この同位体を、Mossbauer 測定 $^{73}\text{Ge}$ 上での実施という基礎研究に用いている。 $^{73}\text{As}$ の需要は増加しつつあり、1995年までには、0.5~1 Ci/年に達するかもしれない。2000年までには、2 Ci程にはなりそうに思われる。

$^{55}\text{Fe}$ ：これは主として、X線蛍光分光法の重要な低エネルギーX線源として用いられる。

$^{55}\text{Fe}$ は炉製造の放射性核種として入手できるが、現在及び計画中の活動は、高レベル源を生み出すには余りにも小さい。放射X線の自己吸収により、現在入手可能な物質を

用いて作られる 100m Ci源は、400m Ci を超える<sup>55</sup>Feを必要とする。この同位体に関する理論的最大比放能は、2300 Ci/gであるが、原理的には、この純度の<sup>55</sup>Feは、<sup>55</sup>Mnターゲットを低エネルギー粒子加速器を用いて、アプローチすることができよう。

もし、高比放射能物質が入手できるとするならば、全世界の年間需要は4～5 Ciになるだろう。かりに、粒子加速器による製造物質が入手できるようになれば、500m Ci 源が製造でき、年間需要は、今から2000年までの間に、劇的に増加すると信じられる。

<sup>57</sup>Co：この同位体は研究応における放射性トレーサとして、また、X線蛍光分光法用の線源として用いられる。現在の応用では、<sup>57</sup>Coは、Co-56/Co-58 の含有が0.25%以下であること、また、その比放射能が5000 Ci/g以上であることを要求している。これらの仕様は、粒子加速器を用いてこの同位体を製造することによってしか、達成することができない。現在は、主として短寿命のPET向け同位体製造用サイクロトロンのスベア時間を用いることにより、この同位体の供給が行われている。PETが伸びるに従って、<sup>57</sup>Coのような非医学的同位体の製造用ビーム時間の激減が予想される。この同位体に対する現在の需要は8～10Ci/年であり、また、DOEの施設がこの需要量の大部分を満たすものと予測されている。本同位体の伸びの可能性は未知であるが、信頼できる供給が、来るべき10年間にわたる同核種の利用増大につながるものと信じられる。

<sup>179</sup>Ta：Am-241は、X線蛍光源として用いられている核種であるが、粒子加速器による<sup>179</sup>Taは、そのコスト高と短半減期にも拘らず、<sup>241</sup>Amに取って代わる有利さをもっている。その利点は、①長寿命αエミッタの中断使用、②超ウラン廃棄物処分関連の問題の排除、③55-60 KeV域でのフォトン高収率、④<sup>241</sup>Amの利用ができない国々への拡大市場、⑤製造と線源利用における安全性の増大、⑥許認可の容易さ、⑦より高い比放射能、を含んでいる。<sup>179</sup>Taは、現在、商用製造がなされていないので、その市場の可能性の評価は困難である。<sup>241</sup>Amの現在のコストは約\$3/mCiであるが、これに廃棄物処分のコストが加わる。<sup>179</sup>Taに関係した利点により、mCi当たりのコストが<sup>241</sup>Amの3-5倍になったとしても、10-15Ciの年間需要を見込めることが示唆されている。しかし、これを実現させるためには、Ta同位体の有利さを実証しなければならない。

<sup>48</sup>V：栄養学者や環境学者は、最近、Vトレーサ同位体の有用性に関心を表明した。<sup>48</sup>Vは、これらの応用に対して、よく適合したγ粒子エミッタである。現在のところ、<sup>48</sup>Vに対する大口需要はない。逆説的に言えば、大規模製造がないし、同核種に帯する市場（開発）努力もない。それはまさに、斬新な応用の成功にかかっている。



$^{95}\text{Tc}$ 、 $^{96}\text{Tc}$  : Tcの化学の研究は、1930年にTcが発見されて以降、基礎化学研究の重要な部分であった。実際、核医学におけるTcの放射性薬学研究の殆どが、これらの基礎研究に依存している。これらの仕事の殆どは、 $^{98}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 発生器からの $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を用いて行われている。核医学応用の可能性をもった同位体である $^{96}\text{Tc}$ の製造についても、BNLで研究が行われている。この同位体はまた、Tcの基礎化学に関する研究用トレーサのニーズをも満たすことができる。それは、濃縮 $^{96}\text{Mo}$ を用いて、専用のホトン粒子加速器上で製造することができる。

### (3) 同位体製造と核医学のR & D

DOEは新放射性核種を開発し、また、これらの同位体を核医学共同体に分配するための主役を演じている。この共同体は、研究用放射性核種の供給についての、不動の役割を強く支持している。PET、SPECTおよび一般画像用、ならびに、単クローン抗体標識用の放射性核種は、大きな評価を手にした。HERACレポートは、核医学の開発と適切な放射性核種の有用性との間の結びつきを支持し、また、これら物質の現在と将来の利用可能性について関心を表した。提供の専用粒子加速器に注がれた、大きな初期評価にかなう研究用放射性核種のリストは次のようなものである。これは決して徹底リストというものではなくて、ワークショップとHERACレポート、ならびに、DOEのワークショップで確定した粒子加速器パラメータ (70 MeV、500  $\mu$  amps) に重きを置いたものだけである。

$^{109}\text{Cd}/^{109}\text{Ag}$  : この同位体に向けた相変わらずのR & Dを保証しながら、可能な循環系の画像応用と いう核医学共同体において、本同位体は不動の関心を持ち続けている。

$^{72}\text{Se}/^{72}\text{As}$  : 本発生器は、PET応用に対して大きな可能性をもっている。 $^{72}\text{Se}$ の低エネルギープロトン生成に関しては、データは何も見出されなかった。70 MeV以下のエネルギーでのAsターゲットに関する横断測定は、やろうとすれば、できないことはなかろう。

## 2.2.7 安定同位体の医学・ライフサイエンスへの利用のまとめ

(1) X線CTが1972年に開発されたのに引き続き、放射線を用いないMRIが1977年に開発されて、人体のイメージを描くことに成功した。これに利用されるC-13 やN-15は年々大きな需要の伸びを示している。

- (2) 放射線を利用する技術では、ほかに、核転移による弱い $\gamma$ 線の計測により断層画像撮影を行うSPECT(Single Photon Emission Tomography)と陽電子から得られる消滅 $\gamma$ 線の同時計測を利用したPET(Positron Emission Tomography)が開発されて利用されてきている。これらは1970年代末期に開発されたが、近年良いトレーサの普及により目ざましく発展しつつある。これらに用いる核種の多くは安定同位体から製造される。
- (3) 一方、機能や代謝を診断する技術への要求が出てきて、核医学が見直されることになった。血流測定にはSPECTが用いられている。てんかんの発作中の焦点ではぶどう糖代謝と血流の減少を示すことが明らかになった等の成果が示されている。
- (4) 脳神経系の疾患では難病といわれる疾患が多く、その病態と同時に、臨床診断法の確立のため、近年著しい進歩を見せた今後の核医学診断の研究と実用化に期待がかかっている。

#### 紹介文献

- (1) 科学技術庁ライフサイエンス推進委員会；安定同位体とNMR計測に関する調査報告書、(昭和63年 3月) (1988)
- (2) T.F.Budinger & P.C.Lauterbur; Nuclear Magnetic Resonance Technology for Medical Studies, Science Vol.226 p.288-298(1984)
- (3) 森下諦三；S I -NMRの行方, Isotope News 1990年 2月号, p.16 (1990)
- (4) 井上修；ポジトロン核種の医学利用, 原子力工業 第39巻 第2号, p.60 (1993)
- (5) 矢戸文男；核医学における最近の進歩, 日本原子力学会誌 Vol.35, No.8, p.678 (1993)
- (6) Donald E. Erb, David Moody, Eugene Peterson, Leonard Mausner, Robert Atcher; A National Biomedical Tracer Facility, CONF-900802-8 (1990)

## 2.3 安定同位体の農業利用

### 2.3.1 濃縮同位体の応用：農業部門 [DeWitt(1980)]

#### 序言

ここでは、農業部門での濃縮同位体の供給要件について述べている。濃縮同位体は、作物部門の増大、家畜食糧の改良、及び農産業の環境面の評価に係わっている。1950年代に、放射性同位体は、肥料の使用と害虫管理の理解と改良のために、研究室と限られた分野での研究に広く使用されていた。これらの研究によって、農地の改良と共に、多くの耕作地が産み出された。多くの研究は、P-32, C-11, C-14, H-3, S-35, 及びCa-45 のような放射性同位元素を用いたトレーサ法である。放射性磷は、土壌からの磷酸塩の吸着と磷酸塩の成長植物への使用方面の研究に用いられた。放射性炭素と水素は、光合成の過程の研究に使用された。同様に、放射性硫黄とカルシウムは、これら元素を含む化合物の取り込みと使用を明らかにするために用いられた。これらの多くの情報は、直接化学分析によって求められるが、トレーサ法によって得られた情報は、植物によって取り入れられた物質の出所、経緯、及び終点を確定するさらに多くの情報を与えてくれる。

放射性同位体は、また害虫の管理のための殺虫剤の開発と応用に重要な役割を演じている。少量だが検知可能量の放射性物質で昆虫を汚染させることによって、卵から幼生、幼生から蛹、そして蛹から昆虫へのライフサイクルが明らかにされうる。食事と交配の習慣は、この手法によって求めることができる。そのような昆虫の成長様式と生活習慣を知ることによって、ある特定の殺虫剤を使用する最適時期と場所が確定される。Sr-89 及びI-131 は、この自然の研究に使用される代表的同位体である。

C, O, H, Mg, 及びN の安定同位体を含むこれらの研究は、放射性核種を用いた以前の研究から得られた知識の基礎を大きく拡大させた。安定同位体によって、長期間にわたって有効な拘束のない大規模な野外研究ができるようになり、したがって、重要な環境調査、特に肥料窒素の研究が可能となった。しかしながら、N-15以外の安定同位体の農業への使用は、主として高い単位原価、高い分析コストと安定同位体使用法の理解の欠如から、非常に限定されている。

1975年に、硫黄と塩素の安定同位体のグラム量が利用出来るようになり [7a, b]、これによって、除草剤と殺虫剤の研究、特にそれらの使用による環境面に関する研究が進捗した。経済的と社会的圧力とから、施肥と害虫管理の経済性を向上させる方法を見出すため、

及びそれらの使用の環境への影響を最小にするために、放射性同位体に対立するものとして安定同位体への必要性が増大しているようである。上記の安定同位体に加えて、植物と動物の生活に重要と考えられるすべての元素の安定同位体が、将来の研究に求められる。産業界起源による土壌と水の汚染の増大のために、毒性(重)物質の安定同位体は、公害の影響の調査にトレーサとして特に重要であろう。

(1) 植物と動物に不可欠な元素の同位体

表2.3.1に示す植物と動物の生存過程で不可欠と考えられる25元素について、有機物(maceral type)を構成する元素の同位体、たとえば、H, O, C とNが、農業研究でトレーサとして用いられている。それら同位体トレーサは適切な価格で大量に入手でき、そして高感度で比較的安価な分析機器と方法がそれらの検出のために開発されたので、これら4元素の同位体トレーサを含む研究は、主としておこなわれている。他方、無機物として分類される残りの20元素の同位体を使用する比較的僅かなトレーサ研究は、文献中に示される。

最適な植物成長と生殖に不可欠であると知られている元素の大半は、土壌から植物に供

表2.3.1 生存過程に不可欠な元素とそれらの安定同位体

グループ: I	元素	同位体(原子量)
有機物(Maceral type)	H	1, 2
	O	16, 17, 18
	C	12, 13
	N	14, 15

	元素	同位体(原子量)	元素	同位体(原子量)
グループ II	Ca	40, 42, 43, 44, 46, 48	Co	59
	P	31	Cr	50, 52, 53, 54
	S	32, 33, 34, 36	Mo	92, 94, 95, 96, 97, 98, 100
	Na	23	Se	74, 76, 77, 78, 80, 82
	Cl	35, 37	F	19
	Mg	24, 25, 26	Ni	58, 60, 61, 62, 64
	無機物	Fe	54, 56, 57, 58	V
Zn		64, 66, 68, 70	Mn	55
Cu		63, 65	Sn	112, 114, 115, 116, 117, 118, 119, 120, 122, 124
I		127		
Br		79, 81		

給される。植物品質収量が最大限に活用できるには、すべての元素は植物によって受け入れられる化学形態で存在しなければならない。ある一つの必須元素の不足によって、作物の収穫が失敗に終わることがある。他方、いくつかの元素が過剰だと、他の必須元素の植物利用を妨害し、不良生産品ができたり、収穫が悪かったりする。必須元素を植物が利用する機構は、土壌中に存在できる他のいくつかの必須でない元素（ほとんどは無機物）によって妨害されるので、さらに複雑となる。同位体トレーサ研究は、植物が必須元素を利用する経路と機構を見分けること、及び最大収穫量に達することに用いられるであろう。同様なことが動物に対しても用いられる。

無機物質は、脊椎動物の体重の 4% に過ぎないが、生存過程で役割を演じる無機質の多様性は、大きな将来のトレーサ研究となるであろう。脊椎動物の無機質含有量(平均値)は、表 2.3.2 に示す。多くの主要元素、例えば、Ca, P, K, NaとS は放射性同位体なので、これら元素についてのトレーサ研究は常に報告されている。さらに必須であると知られている 25 にのぼる付加元素は、動物の体内に存在し、そしてこれらの多くは、ある濃度では毒性であると考えられる。

表 2.3.2 脊椎動物の無機質含有量

主要元素	体中存在量(%)	主要元素	体中存在量(ppm)
Ca	~1.5	Fe	80
P	~1.0	Zn	30
K	0.3	Cu	3
S	0.3	I	0.4
Na	0.2	Mn	0.3
Cl	0.2	Co	0.2
Mg	0.05	Cr	-
		Mo	-
		Se	-
		F	-
		Ni	-
		V	-
		Si	-

(2) 必須元素の濃縮同位体の入手可能性

表 2.2.1 のグループ I 及びグループ II の S-34 と Cl 同位体濃縮するために、大規模生産プロセス( キログラム量程度まで) が、世界の多くで開発されている。水素の同位体は著大な規模( トン規模) で利用可能である。グループ II に示された残りの同位体は、電磁分離

法( Calutron process) で少量( グラムオーダーまたはそれ以下) が生産されている。

表2.3.3は、C, N, O ( 上記はICON) 及びS とClとの同位体について、用いられた方法と現在の世界での生産量をまとめて示した。現在、研究開発している他の方法、すなわちレーザ励起による選択分離は近い将来に大きな影響をもつことは期待できない。

表2.3.3 現在用いられている主要な安定同位体分離法と世界の生産容量\*

同位体	天然存在量 (mole %)	方法別の化学形			濃縮率 (at. %)	世界生産 (kg/yr)
		蒸留	化学交換	熱拡散		
C-12	98.98	CO			99.99	10-20
C-13	1.11	CO	(CO <sub>2</sub> /carbonate)	(CH <sub>4</sub> )	90-99	20-25
N-14	99.64	NO			99.99	1000s
N-15	0.36	NO	NO/HNO <sub>3</sub>		95-99	15-20
O-16	99.759	NO, H <sub>2</sub> O			99.98-99.99	1000s
O-17	0.037	NO, H <sub>2</sub> O			20-40	2-5
O-18	0.204	NO, H <sub>2</sub> O, D <sub>2</sub> O		O <sub>2</sub>	96	0.01
S-34	4.22		(SO <sub>2</sub> /bisulfite)	CS <sub>2</sub>	90-99.99	15-20
Cl-37	24.23			CH <sub>3</sub> Cl	50-90	0.2-0.4
Cl-35	75.77			CH <sub>3</sub> Cl	50-90	0.3-0.5
					50-90	1-2

\* データソースになった文献は56頁に記載した。

表2.3.3に示した濃縮同位体の主要生産者は米国エネルギー省(DOE)である。C, OとNの濃縮同位体は、Los Alamos Scientific LaboratoryとMound Facilityで分離され、後者によってDOEに分配された。例えば、C-13(99+%の20kg/yr)は、COの低温蒸留によって分離される。一方、NとOとの同位体(16kg/yr N, 1.8kg/yr Oと10kg/yr O)はNOの低温蒸留によって同時に生産される。同位体的に純粋な多量(>100kg/yr)のC-12(99.95%)、N-14(99.99%)とO-16(99.98%)は、C-13の分離の際に生産される。SとClの同位体はMound Facilityにおいて液熱拡散で分離される。

トレーサとして最も需要がある濃縮同位体は、分析による検出が比較的容易なので、一般に天然存在量が最も少ない同位体である。したがって、分離過程の製造率は少なくコストのかかるNとCのような同位体に対して最善に対処される。しかし、最近の分析感度の進歩と天然存在量の多い同位体の独特な一定の性質(たとえば、C, NとO)から、それらの需要は増大した。需要増加の現行率でもってしても(研究への関心の著しい増加は、最近発表された研究から明らかである[6])、使用が、近い将来(5-10年)にこれらの高濃縮同位体の世界での製造能力を上回るだろうことはないであろう。

表2.3.3に示した残りの濃縮同位体(S-34, O-17, O-18, C1-35とC1-37)の製造容量は、近い将来に需要を満足する以上の容量を有していると思われる。一般に、これら濃縮同位体の少量だけが小規模トレーサ及び分子結合と構造研究のような研究目的に用いられている。これら濃縮同位体の増大する需要は、商業上の使用や大気公害、除草剤と殺虫剤の大規模な野外研究のためとおもわれるが、現時点では少なくともこれら大規模な必要性への関心はほとんどないように思われるので、生産容量は近い将来の需要を満足させるより以上であると思われる。

農業部門での濃縮同位体の使用についての最近の出版物(Appendices 参照)では、農業研究のすべての面に、先ず既開発国から、次いで発展途上国へと使用は拡大するだろうと評価している。

### (3) 濃縮同位体の使用

Maceral type物質の主要構成成分であるC, OとN(ICON)の同位体の使用は、Los Alamos Scientific Laboratory(LASL)とArgonne National Laboratory(ANL)における米国エネルギー省(DOE)とNational Institute of Health(NIH)の計画によって容易となった。

開発途上国での濃縮同位体の使用を促進するために、安定同位体使用について技術研究委員会はIAEAとMetal Economic Assistance(CMEA)に対して、次の段階をとることを勧告した：

- (a) 安定同位体の使用を促進すべき指示を与える。
- (b) 農業、生化学、生物と医学研究に対して安定同位体製造と分析を容易にするために地域貯蔵センターを発展させる。
- (c) 製造、試料調製と分析を含む安定同位体の取扱い、訓練コースと研修会を発展させる。
- (d) 安定同位体を扱う協会と科学者は、情報を交換し共有するよう、及び進歩した研究室で訓練する機会を与えるよう促す。

### (4) 有機組成の同位体

窒素及び炭素の安定同位体の使用が、近い将来での需要を満足させるために、実在するプロセスの容量と将来の供給需要とを比較して評価する試みと共に要約されている。表2.3.1(グループI)に示した他の同位体は、将来のことを考えなければ、充分過剰に生産

されている。

## N-15

トレーサでの使用: N-15の濃縮安定同位体化合物は通常で使用されており、植物と動物の研究にその使用は急速に成長している。1930年代の最初の安定同位体研究が報告されてから[11]、農業のほとんどすべての分野に関する約2000の論文が発表された。1970年までの期間のこれらの研究(約1500論文数)は、Hauck とBystrom によって引用文献の中に広く取り入れられている[12]。この研究領域でのごく最近の活動について、安定同位体は環境領域を含む農業のほとんどすべての面にわたって世界的に利用されていると、我々は評価している。

ごく最近の環境への使用(1971-1976年の期間)は、“A Selected Bibliography of Biomedical and Environmental Applications of Stable Isotopes III -  $^{15}\text{N}$  1971-1976.” (Klein & Klein) によってまとめられている。窒素同位体トレーサ研究についての多くの報告は、使用法の開発を含んでおり、土壌と肥料との窒素研究についてトレーサ使用例も多い。発表の増加は、これら窒素同位体研究への興味の増大を示している。研究の主要点は、土壌、植物と動物中の窒素新陳代謝を含んでいる。トレーサ使用必要性の増加が期待される主領域は、次のようである:

- 1) 土壌中の窒素変換及び浸出と脱窒素によるトレーサ損失の定量的研究。
- 2) 異なる土壌と環境条件下での種々の作物への効果的な窒素利用の決定。
- 3) 人と動物の栄養についての蛋白質量を決定するために植物中への肥料窒素の生化学的変換の研究。

濃縮N-15か N-14 は、これらの多くの研究に使用できることに留意されたい。

N-15は、N-14よりも高価であるが、それは簡単で安価な分析機器で測定できるので、トレーサとしてより有効である。N-15が最も有益な他の分野は、同位体の希釈がおこりそうな長期実験である。C-13のように、N-15は核磁気共鳴に活性なので、結合窒素の科学的性質を調べるのに特に有効である。

販売(現在と将来): LASLからの濃縮窒素の入手以前に、その高価と不足のため、農業分野でトレーサとしてN-15濃縮化合物の使用は極度に制限された。同位体の供給が増加することによって(表 4参照)、少なくとも短期間は、供給とコストの問題は軽減された。しかしながら、農業分野の専門家と最近の文献によると、濃縮窒素同位体への需要の将来



表 2. 3. 4 窒素同位体価格 \*

同位体濃縮形態	同位体 1g 当たりの価格	
40%-(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub> ( 固体)	N-14, 99.99%, 水溶液	148.90/kg
	二重標識	205.30/kg
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> KNO <sub>3</sub>	N-15, 40%	64.30
		64.30
N <sub>2</sub> ガス (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> NH <sub>3</sub> HNO <sub>3</sub> (100%) KNO <sub>3</sub>	N-15, 98%	99.80
		99.80
		99.80
		99.80
		99.80

\* 1980会計年度価格

の成長は、過去 7年よりもさらに急速に増加していることが示されている。販売の増加によって濃縮同位体単位原価が低くなり、需要が増加する方向に刺激されるだろう。

LASLで製造したN-15の販売の成長傾向は、図 2. 3. 1 で示した。1973年に始まった最初の販売は、野外研究でのいくつかの大量販売と調査研究での少数少量の販売であった。

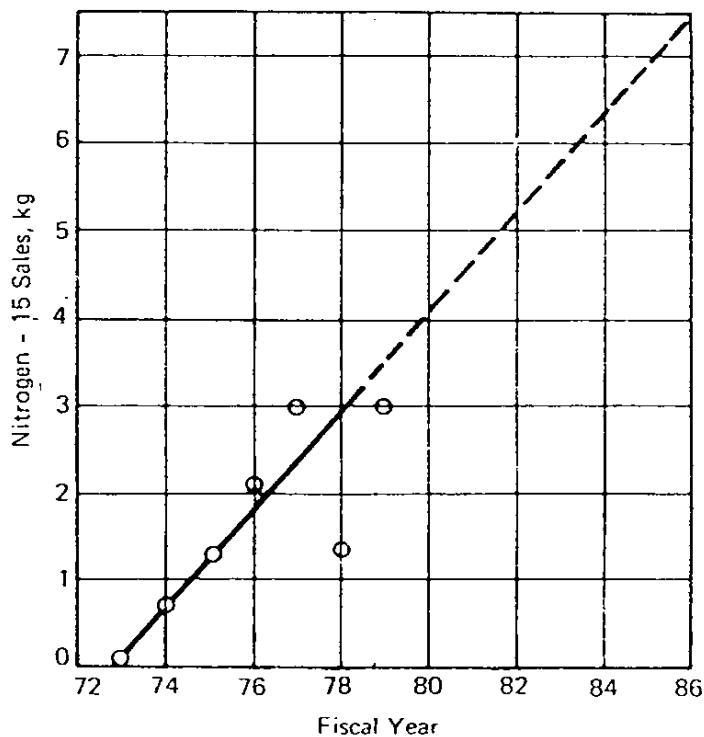


図 2. 3. 1 Mound FacilityによるN-15販売量

この販売傾向は1978年まで続き、それから大量販売は減少し総販売量は減退した。1979年に総販売量の減少は、研究目的のための少量販売の増加によって反転した。少量販売は農業研究だけでなく、窒素含有化合物の分子構造を確定するNMRでの使用として物理的研究にもまた期待されている。上述した想定が確実とすると、それらの目的のためにN-15濃縮化合物を引き受ける商業会社では販売が大きく増加するに違いない。N-15標識化合物に対してのNMR感度は、C-13標識化合物よりもかなり低いので、N-15濃縮物が分析目的のために必要である。しかしながら、NMR機器の開発によって、この増大する使用量を減少させるだろう。

最終7年間の販売量の控え目な外挿法での推定によると、1990年まで濃縮N-15への需要は、米国での生産容量を超えるだろう。他の国(英国、スペイン、日本、ロシア、ルーマニア)はこの同位体を生産するけれども、将来の需要を満足させるに十分な供給は期待できない。他方、我々の現在の評価が正しく、販売率が増加すれば、LASL生産容量は1985年初期の需要を満足させることができないだろう。

勧告: 低コストでN-15のキログラム量を生産する新しい方法が開発されることが勧告される。N-15の大規模な生産についてのいくつかの方法は、最近の報告で紹介されたが、紹介されたプロセスで、NO-HNO<sub>3</sub>化学交換システムの修正案が将来最も有力であると思われる。

### C-13

トレーサ使用: 高感度検出技術に対しての分析機器の進歩とあいまって、低コストでの高濃縮C-13の利用の増加で、研究と開発でのこの安定同位体についての需要は確実に増大した(表2.3.5参照)。初期(1962 - 1971)の研究のいくつかは、概要文献中に記述されている[23]。さらに最近(1971 - 1976)の生物医学と環境への使用は、[21]に詳細に述べられている。現在の関心と将来の研究活動を例証するために、最近発表された論文から選択してAppendix Aに記した。C-14が使用される多くの適用法において、放射性廃棄物の処分について最近さらに厳しい基準があるので、C-13が将来使用される可能性が高いであろう。

一般に、C-13は生体中の重い同位体の影響を研究するのに用いられる。主要な関心は、成長速度、細胞組織と細胞化学にある。一重及び二重標識化合物は、電子常磁性共鳴、核磁気共鳴と赤外線が分析に用いられる種々の物質交代の研究に有用である。

農業研究でのトレーサとしてのC-13の使用は過去数年間にわたって確実に増加している

表 2. 3. 5 炭素同位体価格 \*

同位体濃縮形態	グラム当たり価格	同位体濃縮形態	グラム当たり価格
	<u>C-12, 99.9%</u>		<u>C-13, 90%</u>
CO <sub>2</sub>	6.40	CO <sub>2</sub>	57.40
BaCO <sub>3</sub>	22.50	CO	57.40
	<u>C-12, 99.95%</u>	CH <sub>4</sub>	79.90
CO	4.50	BaCO <sub>3</sub>	68.00
		C	80.10
			<u>C-13, 98+%</u>
		BaCO <sub>3</sub>	80.10
			<u>C-13, 99%</u>
		CO <sub>2</sub>	69.20
		CO	69.20
		CH <sub>4</sub>	92.30
		C	103.10

\* 1980会計年度価格

が[25]、農業の研究はC-13の使用の主要分野ではなく、近い将来も主要とはなりえないであろう。強い指摘があるが[3]、しかしながら、生物医学分野でのC-13の将来での必要性は、臨床への適用の関心が高まっているので、急激に増加するだろう。したがって、C-13の現在での供給は、両分野の必要量を満足させるには充分ではないかもしれない。さらに石炭及び化石燃料化学の基礎的研究への関心の高まり[25]と共に、C-13核磁気共鳴技術の最近の発展(Appendix B 参照)から、一般的な研究へのC-13の需要に対して、この濃縮同位体の供給は重い負担となるであろう。

販売(現在と将来): 一般へのC-13の販売は1969年に始まったが、高単位原価(\$1,000 - \$4,000/g)なので、販売はグラム量(20-30g)であった。LASLのC-13生産容量の増大で低単位原価(90 at.%で ~\$80/g)でMount Facilityを通じて入手できるようになったので、キログラム量の販売に近づいた(図 2参照)。1980年価格(90 at.%で\$57.40/gそして99 at.%で\$69.20/g)で、年間販売は5.0kgに近づいている。

C-13の現在の販売上昇率で、近い将来に生産容量を超えとは思われない。医学への使用が開発中であるが臨床への適用が充分になされるならば、需要は現在の生産容量を超えるだろう。

勧告: 低コストC-13の将来の供給充分量を確保するために、少なくとも、レーザ法が経済性を有し大量分離が確実にできるまでは、将来の同位体分離の研究と開発は、液体法[27]に集中することが勧告される。過去に注目されたそのような方法の一つ[28]は、CO<sub>2</sub>-ア

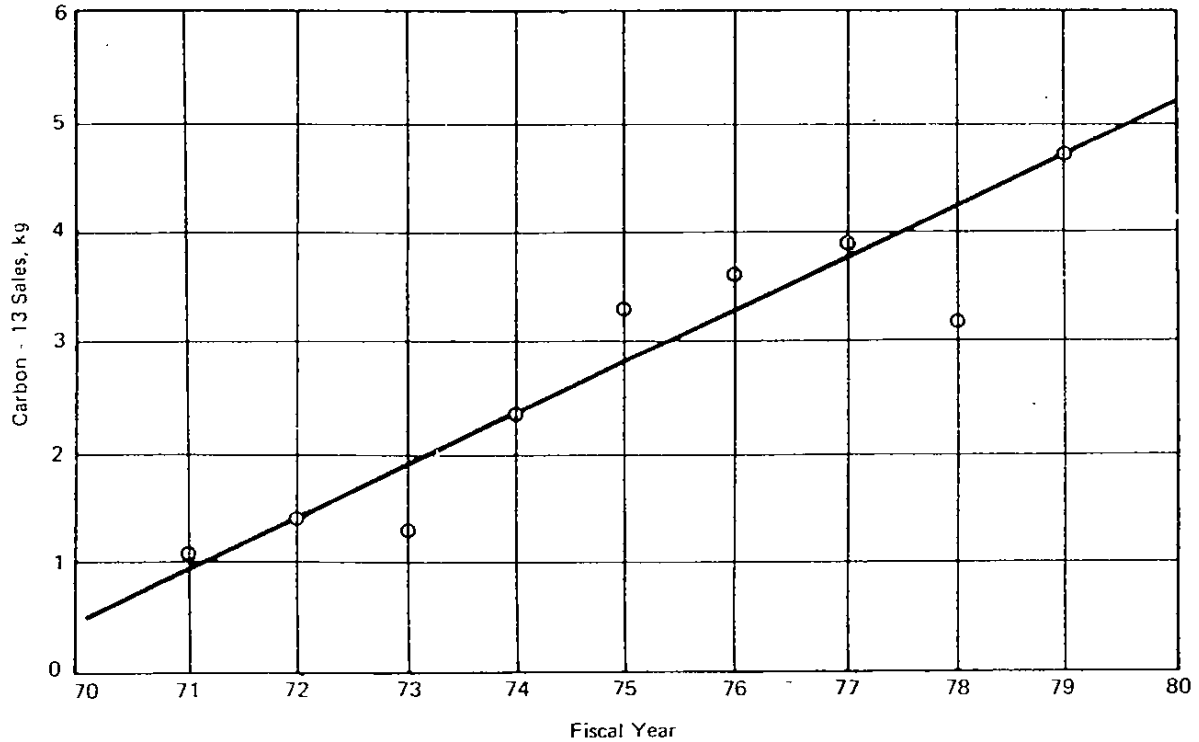


図 2.3.2 Mound FacilityによるC-13の販売量

ミン炭酸塩システムでの化学的同位体交換による炭素同位体の分離である。

(5) 無機元素の同位体

ある安定同位体(表 1: グループ II 参照)は高価で不足しているので、農業関係での安定同位体トレーサ研究は厳しく制限された。S とClとの同位体を除き、これらの安定同位体は、現在 Oak Ridge National Laboratory (ORNL) において電磁分離(Calutrons)で得られている。多目的ではあるが、このプロセス(Calutron)は小容量(低処理量)で労働力を必要としエネルギー消費型である。したがって、このプロセスで得られた濃縮同位体は、一般よりも高価で供給には限りがある。さらに、農業と生物分野の科学者は、同位体比分析に必要な核磁気共鳴、赤外線と質量分析などの技術と機器に不慣れなために、彼らの研究に安定同位体は敬遠された。放射性トレーサは容易に利用でき、高感度で測定が容易だったので、このような分析方法には、今まで興味がなかった。環境への金属公害問題の増加、研究と臨床への利用での人への放射線被曝を最小にする重要性と、人、動物と植物の生存プロセスでの無機質の演じる役割を明らかにする必要性から、生命科学の研究に対して濃縮無機同位体の低コストとグラム量が、将来必要になるだろう。事実、Ca, Mg,

FeとCrのような金属の安定同位体についての要望が、Mound Facilityにあった。進歩した金属同位体分離法と金属同位体分析についての研究は、各 Mound Facility と Argonne Bioanalytical Centerでおこなわれている。

同位体分離の最近の進歩によって、価格を低くし、生命科学に必要とする濃縮安定同位体の供給を増加する優れた手段が提供される。同様に、金属同位体分析技術の進歩によって、生命科学で使用する安定金属同位体の将来の増加の可能性は増すだろう。

濃縮同位体トレーサ手法は知られているが、トレース金属、ウルトラトレース金属と金属質の汚染物質量の増大に伴う植物と動物の被曝が増大していることは、金属の植物、動物と人への栄養学的、物質代代的と毒性の影響の調査に対しての方法に新たな関心を生じた。過去に大きな科学的重要性を有していたこの関心は、我々の食物とエネルギーシステムのための貿易から生じる金属汚染物質の影響のために強められた。

濃縮金属同位体は、下記の一般的な領域で必要とされるであろう： 1) 特に植物と人を含む動物の病状に対して、金属汚染物質の環境状況に関する要因を立証するため； 2) 環境中の無機物質と生理上、病理上の反応との間の相互作用を確認するため； 及び 3) 自然地球化学的な環境での人の活動の影響を評価するため。金属は動物の体重の構成成分のだけであるが、適切な金属の微妙な均衡が、健康のために必要である。金属の過剰、不足、または利用能力の無いことは、植物にも動物にも特定の不調が生じ、ある場合には、重大な病気や死に至ることがある。濃縮安定金属同位体は、症状を診断し、多くの不調を取り扱うのに必要な機構を明らかにする。

Appendix Cは、種々の金属安定同位体が、将来の農業研究にトレーサとして使用され得ることを記述した最近の研究を集めている。

#### (5) 金属同位体研究の特別な必要性

世界的によく知られている金属に関係する代謝作用のいくつかの不調と人の病気への濃縮金属同位体の使用の可能性は、特別な領域として認められよう。これらの同位体は、次の使用法を有する： ① 代謝作用の不調と器官の機能障害についてのトレーサとして、及び、② 診断と治療法のトレーサとして。

濃縮金属同位体トレーサは、生存に必要な金属を含む。ICONトレーサは、人の蛋白質液と含水炭素の代謝として、そして治療手段として使用されるので、金属同位体トレーサは、

人の生存過程で用いられる金属の役割を明らかにするのに必要であろう。生存過程でのトレーサの重要な役割は、いくつかの金属の生物学的な機能を研究することである。K, Mg, Ca, Fe, Cu, MoとZnのような金属は、一つ以上の安定同位体を有するので、これら金属の低い天然存在量の安定同位体は、同位体トレーサとして役立つ。ICONと異なるおおくの使用について、金属は、単純な塩や有機化合物として植物と人に入れることができるので、容易となり、高価な標識化合物製造の必要はない。

金属が不足そして効果のない時は、種々の兆候を生じる。亜鉛は、傷の治り、味覚の感知、糖尿病、及び肝臓硬変に重要な役割を有する；そして人は亜鉛の不足によって性機能不全と皮膚病になる。銅の不足により人は血管の不調の原因となる。モリブデンは虫歯と食道の癌に関係する。クロムは糖尿病に関係し、そしてカドミウムは高血圧に関係する。

金属の毒性は、人の行動障害をおこさせる。いくつかの金属とそれらの毒の影響は、行動と中枢神経系機能の変化である。いくつかの金属は、発癌物質と考えられている；As, Cd, CrとNiの4金属は、疫学的調査に基づき人に癌を発生させる金属と考えられている。Be, Cd, Co, Cr, Fe, Ni, Pb, Ti,とZnの9金属は、実験動物で癌をおこすと報告されている。

金属の最も重要な生物学的機能は、明らかにそれらの酵素との関連である。金属は、酵素-蛋白質分子の必須部分としてか、または酵素の活性剤として機能し、そして蛋白質、DNAとRNA合成中に含まれるだろう。Fe, Cu, Zn, Mo, CaとMgを使用する濃縮同位体トレーサは、金属-酵素の生物学的機能の複雑な機構を明らかにするために用いられる。

同位体トレーサとしての他の可能性のある使用は、金属過剰の影響の調査である。植物と動物での金属の異常量は、多くの病気と代謝の不足となると思われる。異なったトレース金属間の複雑な相互作用は、栄養物吸収と組織の代謝に影響することは留意すべき関心事である。たとえば、ダイエット中の過剰のカルシウムは、亜鉛摂取が通常の時でさえ、亜鉛不足の兆候を示す。銅は鉄利用の見地から必要とされる。過剰の亜鉛摂取は、銅不足の兆候が生じる。

これらの使用を促進するために、正当な価格と同位体分析の早くて安価な方法が要求されるだろう。ICONトレーサ研究に際してのLASL, ArgonneとMound Facilityにおける計画と同様な政府提案の計画が、安定同位体の生命科学適用に大きい機会を与えた。

(5) 勧告

生命科学領域に濃縮金属同位体トレーサ使用を促進するために、金属同位体ソースセンターが設立されることを勧告する。このセンター（表2.3.6参照）は、重要な安定同位体製造の安価な方法の開発と同位体検出の最新式の分析手法の改良をおこなうだろう。

表 2.3.6 金属同位体ソースセンター

機能	同位体分離提唱法	可能性のある関心元素
①同位体分離	a) 液体熱拡散(LTD)	Ca
	b) 液体クロマトグラフ(LC)	Ca, Fe, Ni
	c) 2相液抽出(TPLE)	Li, Ca, Fe, Mg
	d) レーザ(励起)同位体分離(LIS)	Ca, Fe, Mg
②同位体比分析	a) 質量分析(NAA)	Ca, Fe, Ni, Zn, Mg
	b) 中性子放射化分析(NAA)	Ca, Fe, Ni, Zn, Mg
	c) 核磁気共鳴(NMR)	Ca-43
③使用	a) カルシウム代謝	Ca-46, Ca-48, K-40
	b) 必須金属の生物医学使用	- - - -
	c) 植物学と人の栄養学	Ng, Zn, Fe

(6) 要約

N-15以外の安定同位体トレーサの使用は、農業研究で非常に限定されている。C-13、酸素同位体と必須元素の同位体（大部分は金属）は、将来の研究に待たれる。安定同位体トレーサへの関心が増加して、その結果、N-15についての需要が1985年初期に世界の生産容量を超過した。生命科学でのC-13の需要は、臨床への使用が医学分野無しの要求を満たせば、現在の生産量を超過するであろう。N-15とC-13の大規模生産法が開発され、そして液体法が、必須（金属）元素の同位体のグラム量の生産にまで開発されることを勧告する。

表 2.3.3 の出典になった文献

- (1) W. M. Rutherford & W. J. Jones; "Isotope Ratios as Pollutant Source and Behavior Indications", Proc. Symposium on Isotope Ratios as Pollutant Sources, Vienna, 18-22 Nov. 1974, p.295-304.
- (2) W. M. Rutherford; Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., V.17, 77-81(1978).
- (3) IAEA; "Stable Isotopes in the Life Science", Proc. Technical Committee Meeting on Modern Trends in the Biological Applications of Stable Isotopes, Leipzig, Germany, 14-18 Feb. 1977, p.399-420.
- (4) D. E. Armstrong et al; "Stable Isotopes Proceedings of the 3rd Intern. Conf. p.175, Academic Press, Inc.(1979).
- (5) D. E. Armstrong et al; "ibid." p.177(1979).

### 2.3.2 放射性トレーサの野外・現場利用の歴史と現状 [小山雄生ほか (1988)]

セン  
位体

RIトレーサの農水産利用は、わが国では先ず施肥法の改善について始められた。そのためのRIの野外使用の安全性確認、大量に生じる放射性収穫物の処理方法、作物中の比放射能の正確な測定法などの問題が解決された。P-32やN-13を用いての肥料の行方、肥料吸収率の測定など、RIの野外利用の基礎が確立された。また安定同位体(SI)についての試験法なども共にその基礎が作られた。

実例としては：

隣肥料の施用必要量を求めるために、RIやSIの追跡ほ場試験がP-32とN-15を用いて実施された。

水稻-玉葱二毛作で水稻の作柄が不安定になり、これは玉葱作の施肥窒素の影響と考えられたので、N-15とP-32を用いた追跡肥料ほ場試験が実施された。この結果、玉葱の寒季窒素肥料吸収率は23%と低く、玉葱の寒季施肥窒素の水稻におよぼす影響が大きいことがわかった。(1958)。

その他に、大麦、小麦、大豆、テンサイ、白菜、ゴボウ、柿などの野外作物やビニールハウスのトマトなどについて、RIやSIが盛んに使用された(1964-1968)。

ミカンに代表される永年作物では木を切り倒すことは許されないので、施肥条件の試験でP-32を用いて良い結果が得られた(1962)。柿成木についても同様の試験がおこなわれた(1968)。

またRI標識農薬としてP-32マラソン、S-35メチルバラチオンを用いてその移行状況を調べた(1960)。

しかし1970年を最後として、わが国でのRIの本格的野外利用はおこなわれなくなった。現在ではRIの野外での使用は事実上不可能となったので、その代替として安定同位体やアクチバブルトレーサ法が行われている。

H-3の代わりに重水が、C-14の代わりにC-13が使用され、また、P-32ではO-18の入った $PO_4$ の利用が検討されている。土壌中の水の挙動、作物の根活力の研究にはEuなどの希土類元素やBrなどハロゲン元素を用いてのアクチバブルトレーサ法が従来のI-131やP-32の代わりに使用されている。

海外での状況は、1947-1955年頃は、P-32で標識された過燐酸石灰を用いて米国で施肥条件の試験などがおこなわれたが、最近ではRIを使用した実験を限定されてきて、安定同

酸  
ト  
容  
せ  
夜

r

ig

5,



位体を用いた実験、例えばN-15使用のほ場試験はきわめて多い。

C-14で標識した作物、ライムギ、トウモロコシで土壤中の残存量や形態変化を調べた(1965、1968)。これらの試験は数年間または10年間ほどの試験期間が多い。

またP-32は半減期も短く、また追跡子として使用できる安定同位体も存在しないことから現在でもなおほ場試験として利用されている。例としては、FAOとIAEAのP-32を使用した根活力分布の測定例がある(1975)。これは、ウガンダでバナナ、スペインと台湾ではミカン、ガーナではココア、コロンビアとケニアではコーヒー、及びフィリピンとスリランカではココヤシを用いて行われた。

水産利用では、C-14を用いての光合成活性の測定に用いられ、標準的測定法となっている。しかし日本では1970年頃より放射性同位元素の使用制限が厳しくなり、事実上野外での使用は不可能になったため、野外での光合成活性の測定は1973年以降ほとんど無くなった。この方法のように放射性核種使用量がごく少量〔1日最大使用量は3.7MBq(100 $\mu$ Ci)を超えることはなく、法令上放射性同位元素と認められない量で実施できる。〕実験がなぜ許可され難いか理解に苦しむが、事実は上記の通りである。代替としてC-13を用いる方法があるが、質量分析計が高価で普及しないことや測定に費用がかかる。

ニジマスでの実験では、1959年のZn-65を稚魚一匹当たり37kBq(1 $\mu$ Ci)注射して標識し、カワガラスによって捕食された推定量を鳥糞中のZn-65を測定して、2ヶ月間の損耗率を97%と推定した。1980年にはCo-60針、Au-198針を腹腔に入れ、またはZn-65、P-32の非密封使用で、その分布範囲、減耗率を調べた。

### 2.3.3 畜産研究におけるアクチバブルトレーサ法の現状と展望〔須藤まどか(1987)〕

畜産におけるRIトレーサ利用で最も大きな問題は、中、大型畜産を用いた実験である。体重600kgを超えた牛にRIを投与する場合、飼育できる特殊なRI実験棟が必要であり、一頭の一日の排泄物として30kg以上、実験終了後には死体として600kg以上の放射性廃棄物を作りだされる。搾乳牛だとこれに一日30kgのミルクが加わり、搾乳作業への汚染防止措置に要する時間と労力は大きい。

これに対してアクチバブルトレーサ(AT)法は、実験中は非放射性で、サンプルは濃縮や抽出処理後に少量となり、それを放射化分析するので、きわめて有用である。ただし放射化には特殊施設(原子炉)を必要とし、利用可能核種が限定されていること、分析感度は

RIに及ばないことなどがある。

家畜へのミネラル給与の実験では、その利用率の測定に通常はRIによる同位体希釈法が使用される。RIを経口的に摂取させ、血液、臓器、排泄物の放射化学的分析で吸収量を求めている。これをSIによるAT法に代替することで、大動物の長期間にわたる試験がきわめて容易におこなえるようになった。しかし、SIはバックラウンドとなる天然存在比が高い場合が多く、体内で希釈されても測定可能な濃度を得るにはかなり大量に必要となる。

アクチバブルトレーサのもう一つの利用法は、体内には吸収されないトレーサ元素を用いて、体内の外部環境つまり消化管内における、飼料の粒子としての移動を追跡する方法である。これに最もよく使用するのはEu( $\text{EuCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ) である。これはEuの植物中濃度が灰分中0.5ppm程度と低く(La で 2 ppm)、放射化断面積がEu-151( $n, \gamma$ ) Eu-152で5,900 barnと大きい(Sm で 210barn)。またEuの半減期は12.7年と長く、Na、Clのガンマ線が十分に減衰してから測定出来る。

#### 2.3.4 農業環境保全への利用 [小山雄生 (1993) ]

大気汚染の農業への関連調査では、硫黄酸化物、窒素酸化物、フッ素化合物の農作物への影響解明のためにS-35、N-15、F-18がトレーサとして使用された。作物の光合成に及ぼすオゾンの影響を検討するためにC-14が使用された。

1972年に香川県でミカンの葉に黒斑が生じた。その部分を原子炉に入れ非破壊分析すると大量のV が検出された。A 工場の煙突排出物は大量のV とS が含有していたことから、黒斑の原因はA 工場にあり、重油中のV によることがわかった。

土壌汚染解明には、フェニール酢酸水銀の薬効をしらべるためにHg-202で標識した同剤を水稻に散布して分布をラヂオオートグラフで調べた結果、水銀が穂にも移行集積することがわかったので、同農薬の使用禁止の有力な根拠となった。

またNa、Ca、Al、FeのAs-74 で標識した砒素化合物が作られ、水稻のポットに添加された。この結果水稻への阻害作用はCa型とNa型が最も強く、次いでAl型で、Fe型が最も作用が弱かった。

臭素を過剰に摂取すると人体に悪影響をもたらすので、殺虫、殺菌、燻蒸などに使用されている臭素の農作物中への残留濃度を測定するのに放射化分析が高感度に分析でき、大いに役立った。

畜産物の安全性研究で、重金属や放射性核種の家畜体内代謝とミルク、肉、卵などへの移行が調べられた。Cd-115m を用いた結果、大部分は糞として体外に排出されるが、体内に取り込まれたものは、肝臓、腎臓に蓄積し、その排出にはかなりの年月を要し、微量はミルクへ移行することがわかった。また、原子炉災害などで発生し、特にミルクに移行し易いI-131 使用の実験では、I-131 で汚染された牧草を食べた乳牛でも、1週間後のミルクではかなり安全であることが確かめられた。

### 2.3.5 農業関連分野における放射線利用 [山口彦之 (1993) ]

遺伝子DNA を構成する塩基配列を読み取る方法として、RIで標識した新DNA を検出し、決定されたクローニング遺伝子DNA を細胞内で効率よく発現させると、遺伝子の構造と機能との関係が明らかになる。

微生物、動物や植物に非密封RIをトレーサとして投与して、RIから出る放射線を追跡すると、生物体における各種元素、化合物の動態を知ることができる。これにはRIで標識した化合物が広く利用されており、基礎研究の必須基盤的技術として普及するだろう。

またトレーサは、農薬の薬理的機構の解明、施肥法の改良、家畜の代謝・産卵・泌乳機能の判定による生産性の向上、疾病の診断のために広く利用されている。これらには安全性を考慮して、超短半減期RIの利用が活発になるだろう。短寿命RIによる実験では、放射能汚染廃棄物は半減期からみて一定期間後にはバックグラウンド以下になる。しかし、現行の規制では、これをRI廃棄物として管理しなければならない。合理的なRI廃棄物の処理処分体制の確立が望まれる。

放射線による突然変異での品種改良では、Co-60 ガンマ線によって多くの農作物で農業形質の改良された品種が育成されており、実用技術となっている。今後は寒暑や病虫害などの環境ストレスに対する耐性の獲得、蛋白質、炭水化物、脂質など含有成分に関する品質の改良が当面の目標となろう。さらに効率よく突然変異を得るために種々の放射線ビームの利用などが望まれる。

放射線照射で生じる不妊虫放飼法による害虫駆除、飼料の滅菌、食品照射、およびアクチバブルトレーサ法に関する放射化分析について概括的に述べている。

### 2.3.6 安定同位体の農業利用の総括

農業関係においての同位体使用は、他の分野と同様に放射性同位体 (RI) を用いて始められた。これの求めやすさと試料の分析の容易さによりトレーサとして多くの方面に使用された。生物科学、とくに生化学には必須であり、畜産、栄養、生理、繁殖など種々の方面で利用される。しかしながら、野外の大規模実験、大型家畜などの実験では、多量の放射性廃棄物が生じる結果となり、その処理が問題となる。

これに対して非放射性同位体では、実験中は非放射性であり、試料は濃縮後に放射化、核磁気共鳴、質量分析などによって分析される。

これらに使用される安定同位体は、C-12、C-13、N-14、N-15、O-16、O-17、O-18、P-32、S-34、Cl-35、Cl-37などである。これらの中で、製法がわかっているものについては、その製法例を表2.3.7に示す<sup>1)</sup>。

C-13と C-14 は、オゾンが植物の光合成に及ぼす影響の解明や成長速度、細胞組織、細胞化学での解明にトレーサとして使用されている。

C-14を用いた研究の実例は、ライグラスに施用して、土壤中の残存量の調査<sup>2)</sup>、トウモロコシで有機物の土壤中での形態変化<sup>2)</sup>などがある。

最近では、C-14よりも、半減期が長く安定同位体のC-13が広く使用され、野外での実験にはほとんどC-13が用いられている<sup>2)</sup>。

N14 とN-15の中で、N-15は多方面にわたって利用されている。土壌と肥料とでの窒素の関係、とくに、土壌中の窒素の変換、脱窒素などでのトレーサ損失の研究、違った条件下での効果的な窒素利用研究、植物に吸収される肥料窒素の生化学的変換の研究、および大気汚染物質である窒素酸化物の農作物への影響の研究などに用いられた<sup>1)</sup>。N-15は、とくに同位体の希釈が生ずる可能性のある長期実験に有益である<sup>1)</sup>。

N の同位体は、P の同位体と共に用いられることが多く、実例としては、磷、窒素肥料のタマネギへの吸収率測定、水稻への磷、窒素肥料の最適量の研究などがある<sup>2)</sup>。

P-32は、N-15と同じように磷肥料と土壌との関係、効果的な施肥法や植物に吸収された磷の生化学的変換の研究などに用いられた。

実例としては、P-32を用いたミカンへの施肥法の研究やP-32での水稻活力分布の品種間相違の研究などがある<sup>2)</sup>。しかしながら、現在では、RIの野外使用が事実上不可能となったので、その代わりに安定同位体やアクチバブルトレーサ法がおこなわれている<sup>2, 3)</sup>。

金属同位体は植物および動物の生存に必要な金属が大部分を占める。家畜へのCu給与による成長、耐病性の研究。動物の体内に吸収されない希土類元素、Eu, Dy, La, Smなどをトレーサとして、体内における飼料の移動を追跡する研究<sup>3)</sup>、植物と動物での金属過多と過少の影響の研究などに使用される。

表 2.3.7 安定同位体とその製法例<sup>1)</sup>

同位体	製法
C-12	CO 蒸留
C-13	CO 蒸留、(その他、CO <sub>2</sub> /炭酸塩化学交換、CH <sub>4</sub> 熱拡散)
N-14	NO 蒸留
N-15	NO 蒸留、NO/HNO <sub>3</sub> 化学交換
O-16	NO, H <sub>2</sub> O 蒸留
O-17	NO, H <sub>2</sub> O 蒸留
O-18	NO, H <sub>2</sub> O, D <sub>2</sub> O 蒸留
S-34	CS <sub>2</sub> 熱拡散、(その他SO <sub>2</sub> /重亜硫酸塩化学交換)
Cl-35	CH <sub>3</sub> Cl 熱拡散
Cl-37	CH <sub>3</sub> Cl 熱拡散

実例として、P-32マラソンとS-35メチルパラチオンのRI標識有機燐殺虫剤を用い、植物組織内への浸透、移行の研究がある。魚では、ニジマスの腹にCo-60 針を挿入しての存在位置の確認<sup>2)</sup> や、ニワトリの成育過程でSe-74, Zn-70, Ca-46 などを経口的に与えて筋肉や臓器に取り込ませ、これを摂取した人での消化管内吸収を調べる研究<sup>3)</sup> などがある。また、S-35, F-18がN-15と共にトレーサとして、大気汚染が農作物におよぼす影響の研究<sup>4)</sup>、Hg-203 で標識したフェニール酢酸水銀の薬効を水稻で調べラジオオートグラフを撮って分布を調べた研究、As-74 を用いて砒素の化学形態と水稻の障害発生との関連を調べた研究、Cd-115m やI-131 を用いて家畜のミルク、肉、卵などへの移行への研究などがある<sup>4)</sup>。農学および関連領域でのトレーサー研究における濃縮安定体アイソトープの利用は医学利用に次いで多く、環境中あるいは生体内でのある物質の挙動を知るための標識物質として利用されている。この目的のためには放射性アイソトープがよく用いられているが、適切な放射性アイソトープを持たない元素があったり、また生体への影響が心配される時に安定体アイソトープの利用が行われている。しかし、安定同位体は比較的高価であり、この価格の問題を考慮すれば現状ではその供給は需要を十分に満しているとは言い難く、将来はさらに需要が増大すると考えられている。

## 参考文献

- (1) Robert DeWitt, Enriched isotope applications: Agricultural field, Monsanto MLM-2715(June 9, 1980), p. 38
- (2) 小山雄生、清水誠; 放射性トレーサの野外・現場利用の歴史と現状 (II), RADIOISOTOPES, 37(1988), p. 303-311
- (3) 須藤まどか; 畜産研究におけるアクチバブルトレーサ法の現状と展望, Isotope News( 1987年 8月), p. 2-5
- (4) 小山雄生; 農業環境保全への利用、原子力工業(1993)、vol. 39, no. 2, 35-39
- (5) 山口彦之; 農業関連分野における放射線利用、原子力工業(1993)、vol. 39, no. 2, p. 29-31

## 2.4 材料開発及び原子力産業における同位体分離

### 2.4.1 同位体制御材料 [野田(1993)]

材料の基本となる元素はBe、F、Al、P、Mn、Coなどいくつかの元素を除いて単一の質量の核種ではない中性子の数が異なる2種類以上の同位体からなっている。たとえば、天然の水素は99.985%の軽水素(H)と0.015%の重水素(D)から構成される。

同位体制御材料とは、元素ではなく同位体レベルで材料組成が制御された材料のことである。

元素の数は現在知られている範囲で103個であるが元素を構成している安定同位体は約280個、さらに不安定核種は約1600個にもものぼる。

同位体の制御で最もよく知られているのは、原子力の燃料となるウランであろう。自然界に存在するウランの中で0.7%存在する $^{235}\text{U}$ は分離・濃縮されて核分裂物質として利用されている。そのほかの同位体の利用範囲は、トレーサから核磁気共鳴による物質の構造解析など幅広いが、材料として使用されることはほとんどなかった。

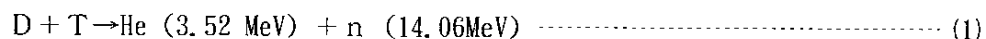
本稿では元素を構成している安定同位体を自由に組み合わせて材料を作ることができた場合には、どのような特性は期待できるかについて述べたい。さらに、その実現のためのカギとなる金属の同位体分離技術の現状について紹介する。

#### (1) 同位体制御材料の特性

##### 核的特性

同位体間の基本的な違いは、原子核を構成している中性子の数が異なっていることである。この差が顕著に現れるのは、核的な性質である。

将来の究極のエネルギー源として、核融合が期待されているが、克服しなければならない技術的課題が数多くある。その1つとして1億Kを超す高温プラズマの閉じ込め技術の難しさがあげられる。とくにプラズマに接する容器材料は過酷な粒子線照射環境にさらされるため、



による高速中性子によって主に熱が生み出される。しかし、高速中性子は、材料中の原子のはじき出しと同時に核変換反応を起こし、大量の水素やHeを生成して材料を劣化させる。実用炉規模の100dpa(displacement per-atom)の損傷に対してステンレス鋼では数千appm

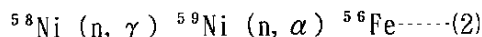
のHおよびHeが生じる。さらに、材料構成元素は核変換により多くの放射性的核種に変化するため、材料組成によっては環境安全面からも問題となる。

はじき出し損傷については、材料の組織を制御して損傷を受けにくくするか、照射後の熱処理などで組織を回復させることによって、ある程度軽減することができる。しかし、核変換に伴う水素やHeの生成によって生じる損傷については材料組織の調整によっても減らすことはできない。とくに溶解しにくいHeは高温では結晶粒界などで優先的にガス気泡となり、材料をぜい化させる。このため、He生成は、その量を抑制しなければ材料にとって致命的にガス気泡となり、材料をぜい化させる。このため、He生成は、その量を抑制しなければ材料にとって致命的となる。Heガスなどの生成量は基本的に元素すなわち同位体の核的特性によって決まるものである。これは、材料の放射化についても同じである。

中性子との相互作用の程度は核種の吸収断面積の大小に依存している。たとえば、Bは自然界では約20%の $^{10}\text{B}$ と80%の $^{11}\text{B}$ からなっている。しかし $^{10}\text{B}$ は熱中性子を吸収しやすく、Heを生成する断面積が $^{11}\text{B}$ より7桁以上も大きい。したがって、もしB中の $^{10}\text{B}$ を取り除けば、Heの発生量が大幅に低減できる。

図2.4.1に耐熱材料として期待されるBNについて、通常のBNとB中の同位体をすべて $^{11}\text{B}$ に置き換えた $^{11}\text{BN}$ のHeの生成量の比較を示す。 $^{11}\text{B}$ を使用することによってHe量がきわめて抑制されることがわかる。同じようなことは、Ni中の $^{58}\text{Ni}$ についてもいえる。

$^{58}\text{Ni}$ は以下の式で多くのHeを発生する。



従って、Ni中の $^{58}\text{Ni}$ を取り除けば、He発生量の低減をはかることが可能となる。

他方、逆に $^{10}\text{B}$ や $^{58}\text{Ni}$ はHe生成をしやすいため、合金のHe照射損傷研究に利用されている。軽水炉の燃料被覆管としてジルカロイが使用されている。その理由の1つに、ステンレス鋼に比べて熱中性

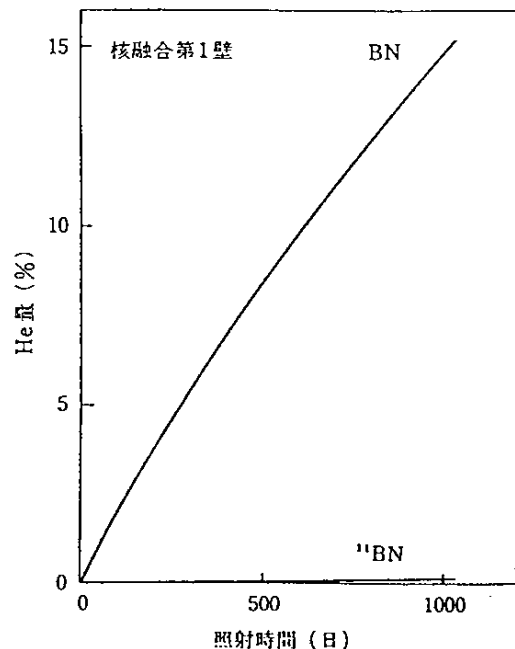


図2.4.1 ヘリウム生成量に及ぼすBN中のB-11の効果



表 2.4.1 誘導放射能からみた元素の分類

① 極低放射化元素（2週間以内に安全レベルまで減衰）	Li, Be, B, C, N, O, Mg, Si, P, S
② 低放射化元素（1月～5年以内に減衰）	Ti, V, Cr, Zr, W, Pb, Y
③ 中程度放射化元素（10年～30年以内に減衰）	Mn, Fe, Zn, Hf
④ 高放射化元素（減衰時間が100年以上）	Co, Ni, Cu, Nb, Mo, Sn

子吸収断面積が1桁以上も低いことがあげられる。Zrは51.5%が<sup>90</sup>Zrからなるが、これを100%近くまで濃縮すれば、中性子吸収断面積が約1/10になり、さらに中性子経済の改善をはかることができる。その場合、Uの消費を40%以上節約できる。

核融合炉は究極のエネルギー源として期待されている。しかし、熱源としてエネルギー粒子を利用するため、壁在中性子照射による核変換を避けることができない。中性子との反応の結果、材料は多くの放射性核種を生じ、材料によっては数百年以上にわたって、冷却しない場合がある。構造体は数千～数万tにもなるため、核融合炉は必ずしもクリーンではないとの議論がなされている。このため、核融合炉材料においては、照射損傷と並んで低放射化材料の開発がキーテクノロジーの1つとなっている。

表2.4.1は、誘導放射能からみた材料の分類を示す。低放射化材料は放射能の減衰ができるだけ速い材料のことであるが、この表にみられるように、軽い元素ほど低放射化特性に優れており、重金属類は好ましくないことがわかる。したがって、B、SiCあるいは酸化物などの軽い元素から構成されるセラミックスが最も良好な材料と考えられる。しかし、セラミックスは、一般にぜい性材料であり、じん性などの特性の改善は容易ではなく、構造部在としては金属材料に機械的な信頼性の点で、はるかに劣っている。

一方、ステンレス鋼のような構造材料の低放射化が実現されれば、このような安全性の問題が克服される。例えば、Feは5.8%の<sup>54</sup>Fe、91.8%の<sup>56</sup>Fe、2.15%の<sup>57</sup>Fe、0.29%の<sup>58</sup>Feからなっている。放射性核種として問題となる<sup>55</sup>Feと<sup>54</sup>Mnは主に<sup>54</sup>Feから生成するため、Feから<sup>54</sup>Feを除くことができれば、Feの放射能減衰はきわめて速くなる。Connらは同位体調整によって、高放射化材料を低放射化材料に変えることができる可能性を示した。

図2.4.2には同位体調整したステンレス鋼と従来材料との誘導放射能減衰の違いを示した。100%の<sup>53</sup>Cr、<sup>57</sup>Fe、<sup>61</sup>Niおよび<sup>97</sup>Moからなる低放射化ステンレス鋼では、従来材料に比べてより短時間で冷却する。Niを含まないフェライト鋼では、同位体調整によってセ

ラミックスなみの低放射化を達成できる。

(2) 材料物性に及ぼす同位体効果

物性面で同位体効果が顕著に現れるのは、まず、原子核の構造に基づくものである。核子である陽子や中性子はスピン運動量をもっているため、同位体は、磁気モーメント、核四極子モーメントなどに差を生じる。これらを利用して、核磁気共鳴、核四極共鳴など物質の構造解析が行われている。

同位体の質量の違いは、原子、分子間の振動量子、慣性モーメントに差を生じ、反応速度に影響を与える。水素、炭素、窒素などで透過、吸着及び各反応に及ぼす同位体効果が調べられている。

材料物性に関する効果は、格子振動で現れる。端的な例として誘導体の熱伝導がある。固体中の熱伝導では、金属では主に電子が寄与するが、半金属やセラミックスではフォノンが支配的となる。絶縁性結晶の熱伝導率、Kは次式で与えられる。

$$K = \frac{1}{3} C V \ell \dots\dots\dots(3)$$

ここで、Cは比熱、Vはフォノンの速度、 $\ell$ がフォノンの平均自由行程である。同じ材料でもフォノンの自由行程は、結晶の欠陥、不純物、粒界さらに同位体の分布状態に依存する。近年、熱伝導率に及ぼす同位体効果が注目されてきた。これは一般に同位体散乱効果と呼ばれている。

図2.4.3にはGeの熱伝導率に及ぼす同位体効果が示されている。Geを95.8%まで濃縮し

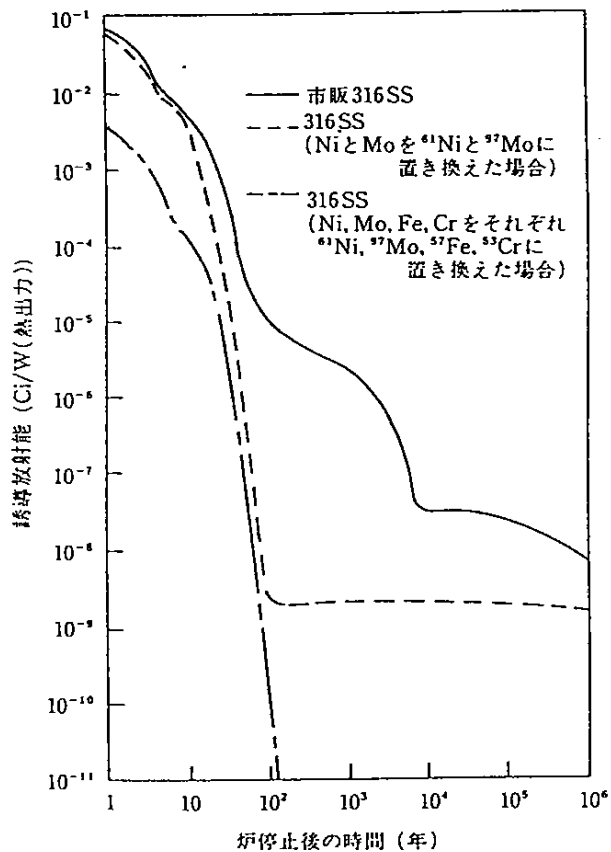
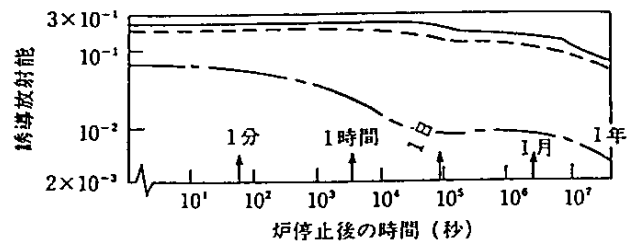


図2.4.2 100%同位体調整した316ステンレス鋼の誘導放射能

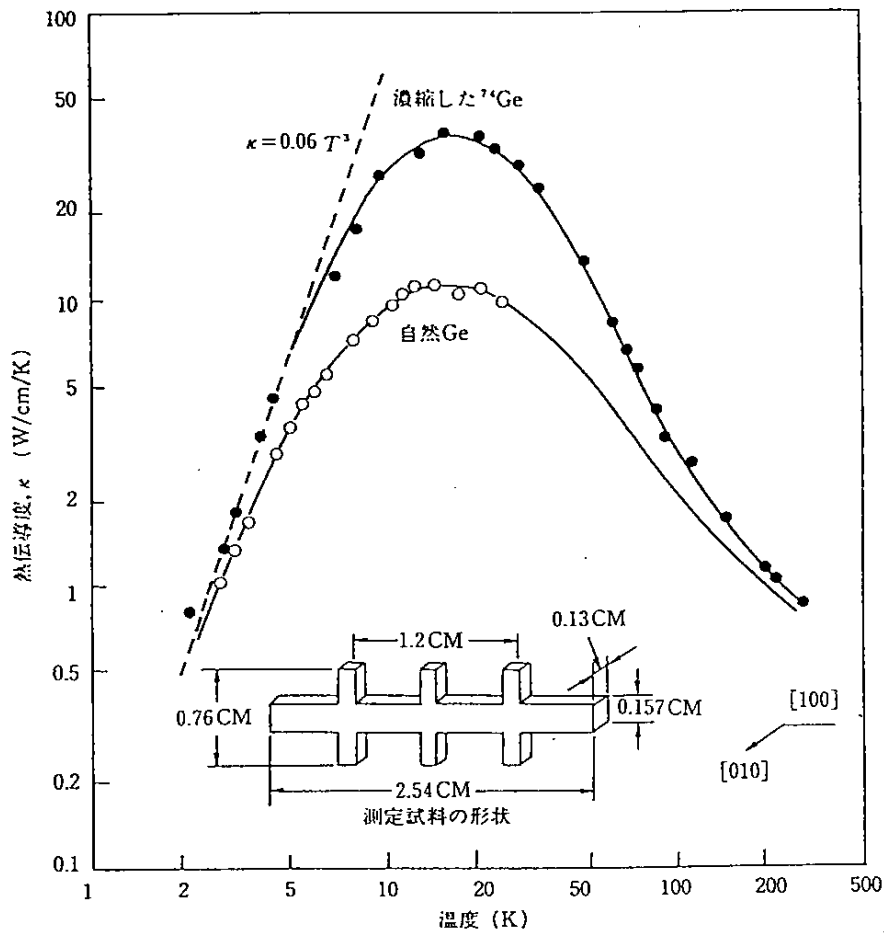


図 2. 4. 3 Ge の熱伝導率に及ぼす同位体効果

たGeでは最大熱伝導率が通常の同位体組織に比べて約3倍の値が得られている。<sup>7</sup>LiFでも同様な効果が観察されている。同位体効果はデバイ温度が高いほど顕著となる。最近、同位体を調整したダイヤモンドで異常に高い熱伝導度が報告されている。

表 2. 4. 2 は同位体調整ダイヤモンドの室温における熱伝導度を示している。

表 2. 4. 2 同位体調整ダイヤモンドの室温における熱伝導度

材 料	熱拡散率(cm <sup>2</sup> /s)	熱伝導率(W/cm/K)
0.07% <sup>13</sup> C ダイヤモンド	18.5	33.2
0.50% <sup>13</sup> C ダイヤモンド	14.5	26.0
1.00% <sup>13</sup> C ダイヤモンド	12.4	22.3
自然 ダイヤモンド	12.2	21.9
CVD ダイヤモンド	—	12.0
SiC	1.25	4.0
Si	0.86	1.6

天然の炭素は99%の $^{12}\text{C}$ からなる。 $^{12}\text{C}$ を99.9%まで濃縮していくと、約1.5倍の異常に高い熱伝導度が得られた。現時点では室温で最大の熱伝導率を示す材料という。

格子振動に起因する同位体効果は、このほか、低温での電子伝導にの影響を与える。超電導のBCS理論では、遷移温度と質量の間に、

$$T_c \propto M^{-1/2}$$

という関係が成立する。酸化超電導体で $^{16}\text{O}$ を $^{18}\text{O}$ に置換して遷移温度がシフトするとの報告もあるが、現在までのところ大きな同位体効果が認められる材料は見出されていない。

### (3) 同位体制御技術

同位体制御材料の材料物性については、明らかになっていない点が多い。これは材料として用いるほどの量を容易に入手できないためである。同位体の中でH、C、N、Oなどの同位体は比較的得られやすいが、金属の同位体となると、10mgで数十万円と非常に高価である。これは、Uを除いて金属元素の同位体分離が電磁分離法で行われていることにもよる。この方法は、ほぼすべての元素に適用されるものの、分離される量はきわめて少量である。したがって、同位体を制御した材料の実現のためには、手軽でかつ大量の同位体分離が可能となる技術が開発されなければならない。

いくつかの同位体分離法の中で小規模の装置で大量の同位体分離の可能性を有しているのはレーザー分離法である。一般に原子スペクトルや分子スペクトルでは同位体によって波長が異なる。原子スペクトルでは、その原因は核の質量の差、電荷の分布の違いによる体積効果、核スピンの差による効果などである。分子スペクトルの場合は、質量差から分子の振動あるいは回転スペクトルに同位体シフトが現れる。これらの特徴を生かして原子法および分子法のレーザー分離が行われている。原子法では電子ビームなどにより金属を蒸発させ、その蒸気に色素レーザーを照射して特定の同位体をイオン化させ、パルス電磁場で捕集する。一方、分子法では、同位体分子の選択解離あるいは反応を利用する。分子スペクトルの同位体シフトは原子スペクトルに比べて数桁大きく、大量の同位体分離には有利であるが、分離に適した作業物質を探さねばならない難しさがある。

表2.4.3にレーザーによる各種元素の同位体分離の例を示す。原子励起、分子励起ともそれぞれ対象物質に応じて使い分けられている。金属については主に原子法で行われている。筆者らは分子法によるSiの同位体分離により同位体制御のSiCの合成を試みている。

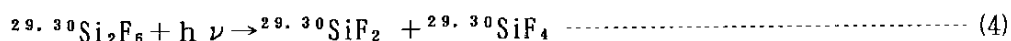
表2.4.3 レーザーによる同位体分離の例

元 素	濃縮方法	反応ガス	レーザ光源
D	多光子解離	CDF <sub>3</sub>	CO <sub>2</sub>
T	多光子解離	CTF <sub>3</sub>	CO <sub>2</sub>
Li	光イオン化	Li	Ar
B	多光子解離	BCl <sub>3</sub>	CO <sub>2</sub>
C	多光子解離	CF <sub>2</sub> Cl <sub>2</sub>	CO <sub>2</sub>
N	光解離	NH <sub>3</sub>	CO <sub>2</sub> +UV
O	光イオン化	OCS	CO <sub>2</sub> +KrF
Si	多光子解離	Si <sub>2</sub> F <sub>6</sub>	CO <sub>2</sub>
S	多光子解離	SF <sub>4</sub>	CO <sub>2</sub>
Cl	電子励起	ClF	Dye
Ca	光イオン化	Ca	Dye+Ar
Se	多光子解離	SeF <sub>4</sub>	NH <sub>3</sub>
Br	光解離	HBr	YAG
Rb	光イオン化	Rb	Dye+ルビー
Mo	多光子解離	MoF <sub>6</sub>	CO <sub>2</sub>
Ba	原子線偏向	Ba	Dye
Nd	光イオン化	Nd	Dye
Sm	光イオン化	Sm	Dye
Os	多光子解離	OsO <sub>4</sub>	CO <sub>2</sub>
U	光イオン化	U	Dye+Hg
U	多光子解離	UF <sub>6</sub>	H <sub>2</sub> +ラマン

表2.4.4 レーザー法による<sup>92</sup>Zrの濃縮コスト

同位体 組成(%)	同位体制御							
	自然 状態							
<sup>90</sup> Zr	51.45	25.73	10.29	5.15	2.57	1.03	0.057	
<sup>91</sup> Zr	11.27	25.45	33.96	36.79	38.21	39.06	0.013	
<sup>92</sup> Zr	17.17	38.77	51.73	56.05	58.21	59.51	99.91	
<sup>94</sup> Zr	17.33	8.67	3.47	1.73	0.87	0.30	0.019	
<sup>96</sup> Zr	2.78	1.39	0.56	0.28	0.14	0.06	0.003	
同位体制御 コスト \$/kg	0	\$66	\$198	\$296	\$391	\$511	\$2097	

Siの同位体分離では、 $\text{Si}_2\text{F}_6$ を作業物質として用いる。自然界のSiは92.2%の $^{28}\text{Si}$ 、4.7%の $^{29}\text{Si}$ および3.1%の $^{30}\text{Si}$ からなる。 $\text{Si}_2\text{F}_6$ ガスに赤外域のパルスレーザを照射すると、次式のように特定の同位体を含むガスが分解する。



この結果、未反応の $\text{Si}_2\text{F}_6$ には $^{28}\text{Si}$ が濃縮される。 $\text{SiF}_4$ と $\text{Si}_2\text{F}_6$ では沸点がかなり違うため低温で容易に分離できる。現在まで得られて濃縮度は $^{29, 30}\text{Si}$ では合わせて約50%、 $^{28}\text{Si}$ の方は99.7%にまで達している。この方法の利点は反応ガスに所定のレーザビームを照射すれば、連続的に分離したガスが得られることである。 $\text{SiF}_4$ に換算した $^{30}\text{Si}$ でg/時間の生産が可能である。

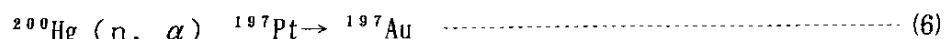
核融合炉材料のような構造体では、数千kg以上の同位体制御が必要となる。このような規模の同位体制御材料が実際には可能であろうか。米国の核融合炉設計において、安全面からトリチウム増殖の $\text{Li}_2\text{ZrO}_3$ およびプラズマ遮蔽材料のWを同位体制御する提案がなされている。その際、レーザ法による同位体分離コスト計算が行われている。

表4は $^{92}\text{Zr}$ の濃縮に伴う費用を示している。濃縮度とともにコストは上昇するが、99.9%濃縮 $^{92}\text{Zr}$ を1kg得るのには約20万円と見積もっている。

#### (4) 核変換利用

核変換による照射損傷においては、粒子線と同位体の反応断面積がわかれば、損傷量と照射された物質がどのような元素に変わるかについて、ある程度推定できる。この核変換の利用は、同位体制御材料とは異なるが、かなり精力的に行われている研究領域である。とくに、原子炉燃料などから排出される $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{129}\text{I}$ 、 $^{99}\text{Tc}$ などの放射性廃棄物をイオンあるいは中性子などを用いて無害な物質に変換しようとする消滅処理技術開発が進められている。これらも同位体の特性を生かしたものといえよう。

同位体の核反応特性を把握し、かつ粒子線のエネルギーを制御できれば、現代の錬金術も夢ではない。自然界のHgには $^{198}\text{Hg}$ 、 $^{200}\text{Hg}$ がそれぞれ10%、20%含まれている。高エネルギーの中性子線を照射すると、



の反応に従って金が生み出される。実際には、このような反応だけを取り出すのはなかなか困難であるが、理論的には可能である。

## おわりに

同位体制御材料では、元素を最小単位と考えるのではなく、元素を構成している同位体で材料をとらえようとするものである。同位体の数は安定同位体で 280 近くあり、材料としての組み合わせは 4 万近くになる。しかし、U、T などを除いて同位体は、アイソトープ、トレーサー、分析などの利用にとどまり、材料としては、ほぼ未知の領域である。残念ながら、同位体制御材料の物性に関しては、まだその多くが知られていない状況である。現状では同位体元素は微量しか手に入らず、まだ非常に高価である。とくに金属同位体については、効率的で大量の同位体分離を行う技術の確立が必要である。レーザ同位体分離法は、非常に魅力ある手法であり、今後、分離用の作業物質の探索とともに広波長域で高出力のレーザの出現が望まれる。

### 2.4.2 原子力工業における同位体分離[Whitehead(1990)]

原子力工業では濃縮された物質を最も多く必要としている。CANDU 炉で年間数トンの重水が使われ、AGR, BWR, PWR といった発電炉に使用される核燃料を製造するためには、年間数千トンの割で U-235 が濃縮されたウランを必要とする。この報告ではウラン濃縮について述べ、ガス拡散法及びガス遠心分離法レーザー法に触れ、今後経済性を持つようになると思われるレーザー分離技術についても（注：教科書的に）記述されている。

### 2.4.3 高速炉用窒化物燃料への窒素同位体の利用[Bokelund & Glatz(1986)]

#### (I) 窒化物燃料の特性

窒化物燃料は高速増殖炉用の核燃料として、陽イオンと陰イオンとの比が 1 : 1 のいわゆる単窒化物(Mono-nitride) の (U, Pu)N の形で用いられる。この物質は単炭化物燃料、あるいは近年再評価されている金属燃料と同様に、現在、高速炉用に一般的に用いられている混合酸化物(MOX, Mixed Oxide) 燃料と比較して、高密度で熱伝動度が良く、また、溶融金属冷却材との両立性の良い等多くの炉物理的乃至化学的な利点を持っている。

しかしながら、窒化物燃料を照射すると天然の窒素中の大部分を占める  $^{14}\text{N}$  から放射性の  $^{14}\text{C}$  が生成する問題がある。

## (2) $^{14}\text{C}$ の生成と環境影響評価

大気中の窒素は 99.63% の  $^{14}\text{N}$  と 0.366% の  $^{15}\text{N}$  を含んでいるが、 $^{14}\text{N}$  は中性子を受けると、 $^{14}\text{N} (n, p) ^{14}\text{C}$  反応により、 $^{14}\text{C}$  を生成する。この核種の半減期は 5730 年で長いと生物体内に取り入れられやすいため環境影響としては注意する必要がある。

窒化物燃料に大気中の窒素を用いると、32.4 t の MN を使用する 1000 MWe の原子炉では、 $\text{N}^{14}$  のインベントリーの 1.4% に相当する 800 mole の  $\text{C}^{14}$  を 20 at.% の燃焼度で生成し、この  $\text{C}^{14}$  は燃料中で 450 ppm に相当すると言われている。

このこの窒化物燃料を用いた炉周辺には、 $^{14}\text{C}$  はそれ程放出されないが、再処理工場周辺では、1 年間の操業による全身の 50 年最大被ばく線量預託は、酸化物燃料が 2.8 mrem であるのに対し、59 mrem に達する。

これは 1 年間の操業の結果与えられる被ばく量であり、このような高い継続的な被ばくは現状で認められる範囲をはるかに超えている。従って、窒化物を使用しようとするば、 $^{14}\text{C}$  の除去が前提にならざるを得ない。その意味で、空気中で 0.36% しか含まれない  $^{15}\text{N}$  を同位体濃縮した窒素を燃料原料として用いる方法が提唱されているが、現在のコストでは恐らく経済的に成立しえないと思われる。

もし遠心分離法のような大量濃縮技術が可能となればそれが可能となろう。

## 紹介文献

- (1) 野田哲二；同位体制御材料，金属，1993年7月号，p.32]
- (2) C. Whitehead: *Isotope Separation in the Nuclear Power Industry, Conference on Gas Separation* p.287-305 (1990)
- (3) H. Bokelund and J. P. Glatz; *Head-end Problems in Reprocessing of Nitride Fuels Containing  $^{14}\text{N}$  or  $^{15}\text{N}$* , Transactions of ENC 86 FORATOM IX, Geneva, 6/1-6/1986, Vol. 4, p.197



## 2.5 研究開発及び濃縮技術

### 2.5.1 放射性汚染物から遠心分離機を使っての希ガスの分離[Bellotti et al(1992)]

#### 前文

米国テネシー州Oak Ridge のエネルギー省(USDOE) では遠心分離装置(Ultracentrifuge system) を使って Xe-136 を濃くした Xe 試料を生産した。使用したのは不純ガスを除去するためのクリーンナップ系設備であった。多槽型比例計数管 (multicell proportional chamber) で放射能を測定して、Krの除去に遠心分離法が実際に極めて効果的であることを示した。

#### (1) 緒言

二重ベータ壊変(double beta decay) をする核種に含まれる希な出来事を調べる実験に、特定同位元素の濃度を高めた試料線源を使用することが次第に普通になってきた。二重ベータ壊変が起こる割合は極めて小さく、できれば放射性汚染を起こさないような材料を使うのが普通であった。しかし、使用した装置が以前に濃縮工程に使われていたので、ウラン系列の核種などで汚染したり、汚染した雰囲気にあたりしていた。このために、濃縮した試料で得た計数スペクトルから、汚染度が異なる濃縮していない天然の同質量のそれをブランクとして差し引くことで正味の結果を得ようとする方法に、疑問が生じた。この論文では3種のガス試料(天然のXe、遠心分離機でXe-136を濃縮したXe、同位体組成を変えることなしにクリーンナップのために遠心分離機を通過させた天然のXe)の放射性汚染結果について報告している。

#### (2) 濃縮方法

USDOE は 1960-1985年の間、原子力発電所の燃料に使うために、核分裂性のU-235 を濃縮するガス遠心分離機を開発適用する計画に投資した。世界的な燃料需要が停滞した1985年にこの計画が終わり、Martin Marietta Energy Systemsが運営するテネシー州Oak Ridge のUSDOE 施設で少数の遠心分離機が他の同位体を濃縮するために改造された。摩擦熱と駆動力を下げるために真空容器の中で、回転胴が高速回転している。回転胴両側の支持機構で重量を支え振動を弱めている。固定された中心軸の中間部分から回転胴にガスが入り、回転胴の両極端にある二つの固定抽出部からガスが出る。上端の流れでは軽い同位体が濃

縮され、重いものは減じている。逆に下端の流れでは重いものが増し、軽いものは減っている。ガスの軸方向の循環流は回転流の分離効果を高める。遠心分離機の両端での濃縮性能はガスの抽出割合 fraction of feed withdrawn によって制御される。上端流量の供給流速に対する比をカット machine cut と言うが、この比も抽出割合で制御される。軽い同位体の濃縮性能の向上は上端抽出部流量を下げることで、つまり低カットにすることで達成される。同様に、重い同位体を濃縮する場合には、下端抽出部の流量を下げることで、つまり高カットにすることである。

Oak Ridge の遠心分離設備が Xe, Kr, S, Cr の濃縮に使われ、Xeの濃縮実験ではそれに加えて、Xeの中のKrのような好ましくない微量汚染成分の除去にも用いられた。天然組成のXeをXe-136 63%に濃縮し、通常的にありうる Kr-85の微量汚染が除去できることを示す分析評価が、次に示す図2.5.1のカスケードの図である。

この場合には二つの目的が同時に達成されている。試験はカスケードのカットを0.92にして行なわれ、重い同位体が下部スクープから産物流 productとして抽出された。最終的な分析評価ではXe-136 64%が得られ、軽いガスであるKr-85 は下部抽出流からは除かれていた。図中に measured と記入した評価は質量分析装置 Mass Spectrometer (VG 1201 Gas Analysis System)を使って正確に測定された値である。しかし、Kr-85 の汚染は質量分析装置の測定範囲以下であったために、多槽型比例計数管で測定された値を用いている。遠心分離機出口の Kr-85の値は測定したXeのデータから分離係数を求めて計算したものである。

Xeの濃縮に次いで、Krで汚染していない天然のXeの比較試料 reference source で調べた。図2.5.2に天然Xeからの Kr-85除去を示す。クリーンアップの場合だけのことであるがカットは0.07で、下部スクープで望む産物流を得ている。Xeの天然組成から僅か変わっていたが、Kr-85 は実質的に除去されていた。図2.5.1の場合と同様にXe組成が実測された。Xeの実測値に基づいて分離係数を使って Kr-85の計算をした。図2.5.1では産物流の1/0.08倍の供給流を要したが、図2.5.2では1/0.93倍の供給流であった。クリーンナップだけの点では供給流をかなり減らすことができ、結果的に運転時間が短縮されて低コストになる。トリウムやウランの系列の場合のように汚染がひどい場合は、高いカット値で軽い上部流を僅かに濃縮するようにすれば、実質的に重い成分を除去して浄化できる。

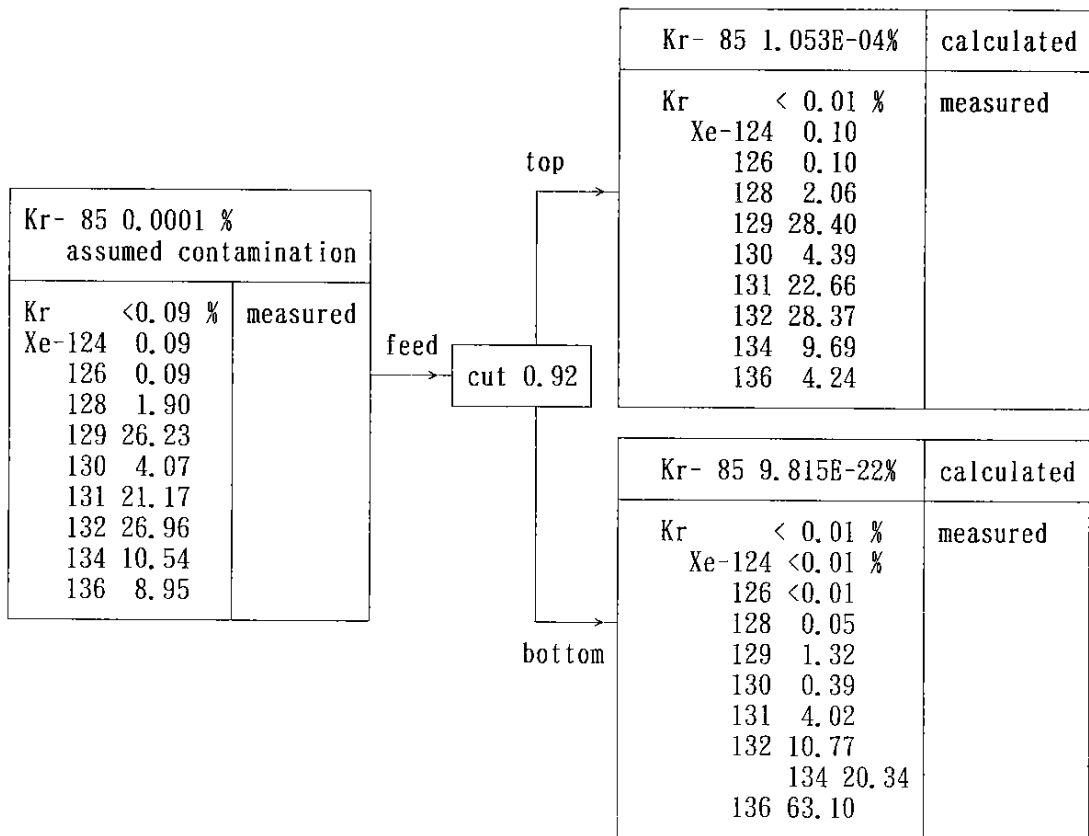


図 2.5.1 Xe-136の濃縮と Kr-85の除去

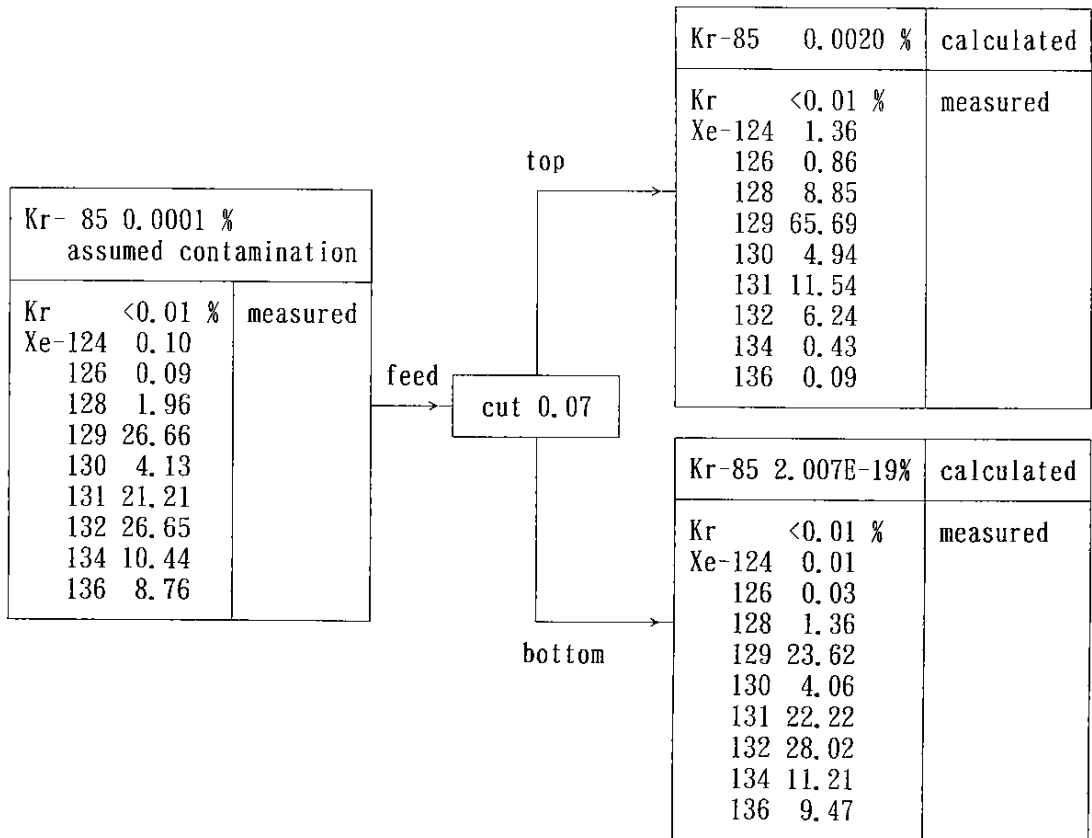


図 2.5.2 天然のXeから Kr-85の除去

### (3) 放射能測定

多槽型比例計数管 Multielement Proportional Chamberは鋼フランジ付きの水平チタン管内に設置され検出部容積は 79.4 litersである。計数管構成材料に放射性汚染がないことをガンマ線検出器で検査済であった。検出器はさらに、最低5cm厚さの無酸素銅の層と、最低15cm厚さの鉛層で環境放射能から遮蔽されていた。Gran Sasso Underground Lab.に全測定装置が設置された。こうしてバックグラウンドとしての荷電宇宙線を5桁落とし速中性子を4桁落としした。酸素のような不純物はZr-V-Feゲッターを連続循環させることによって、0.1ppm以下に保った。電子式読取装置で信号のエネルギー(200keV以上)と時刻をセル毎に記録した。装置の利得ゲインの安定性と検出器の総合挙動はCo-57, Cr-51, Cs-137, Na-22, Th-232の線源を使って普段に試験した。平均分解能はエネルギーの0.5乗の依存性を示して、120keVで18%, 1600keVで5%の範囲にあった。

### (4) 結果

検出器の圧力は9.5barであった。20ppm以下のKrを含む天然のXeに対する実効作動時間は660時間、Xe-136に富んだXeに対して6210時間、遠心分離機で前記のようにクリーンアップした天然Xeに対して5120時間であった。Kr汚染の研究に係する低いエネルギー領域で考えている。天然Xe試料での計数率は他の2試料(遠心分離機でXe-136を濃縮したXe試料と、同位体組成を変えることなしにクリーンアップのために遠心分離機を通過させた天然キセノン試料)よりも確実に高い。天然キセノンに対するKr-85の汚染度は原子数で、 $7 \times 10^{-17}$ であった。そして、上記の2試料についてKr-85がほとんど除去されていることが測定により分かった。

### (5) 結論

高分子量のガスのクリーニングに対して、遠心分離法によるKr-85のような軽い放射性汚染の除去が有効であることを示した。逆に、低分子量ガスに対してこの方法が重いガスの放射性汚染の除去にも役立つはずである。同位体の分離に使われる遠心分離法が、同位体組成を変えることなしに、ガスの浄化に簡単に使えることを指摘したいと思う。実際に微量不純成分の浄化手段として考えてよい。

## 2.5.2 研究用の気体状同位体の遠心分離[Roberts(1989)]

米国は過去25年間にわたってウラン濃縮用遠心分離法の開発を進め、回転胴直径約 7.6 cm、長さ約 38.1cm の <1kgSWU/y遠心分離機から、回転胴直径約 0.61m、長さ約 12.2mの 200 kgSWU/y の遠心分離機まで性能を向上させてきた。1kgSWU/yの遠心分離機では濃縮度 3%の原子炉級濃縮核燃料を1/4 kg/y生産できる分離性能がある。なお、テイルは 0.2% U-235 としている。米国は世界のウラン市場の低迷のために遠心分離法開発計画を1985年に終了させたが、キセノン、クリプトン、タンゲステン、モリブデン、硫黄、ゲルマニウム、クロム及びその他の適当なガス状化合物を持つ同位体を濃縮できるように、Oak Ridge の K-25施設にある少数の遠心分離機をウラン濃縮用から改造した。この論文では遠心分離機の基礎的な技術説明がなされ、例えば、遠心分離機の分離性能は分子量比 A/Bではなく分子量差 A-Bの平方に比例すること、絶対温度 298-570度の温度範囲でガスが安定であるべきこと、遠心分離機からのガス洩れをなくするために分子量が70以上であること、また、蒸気圧が絶対温度 310度で少なくとも 666.6 Pa はあるべきことが述べられている。

Oak Ridge で 遠心分離機を使って得られた実験結果では、キログラム程度の同位体分離に有効であることが分かる。表2.5.3に示すように、 $^{34}\text{S}$ は単一遠心分離機による1回通過で 4.5%の供給から10.1%まで濃縮された。 $\text{SF}_6$ がプロセスガスとして用いられた。

表 2.5.3  $\text{SF}_6$  を使った遠心分離機による硫黄同位体 S-34 の濃縮

Sulfur Isotope	Feed Stream	Enriched Stream	Depleted Stream
32	94.7	88.6	96.4
33	0.76	1.2	0.64
34	4.5	10.1	3.0
36	0.015	0.059	0.0037

$^{124}\text{Xe}$  は図2.5.4に示すように、同様条件の下で、天然分析 0.095%から0.56%分析まで濃縮された。この濃縮物を、2回目の遠心分離にかけることによって 1.8%に濃縮でき、さらに3回目によって9%の濃縮物を得ることができた。

分離実験において、 $^{136}\text{Xe}$ は単一遠心分離機による1回の通過で、天然分析8.95%から61.3%に濃縮されたことが図2.5.5でわかる。

図2.5.4に示す同様な実験において、 $^{78}\text{Kr}$ が、単一遠心分離機での3回の通過によって、天然分析0.42%から4.56%に濃縮された。 $^{86}\text{Kr}$ は図2.5.6で、2回の通過によって、天然分析の17.4%から89%に濃縮された。

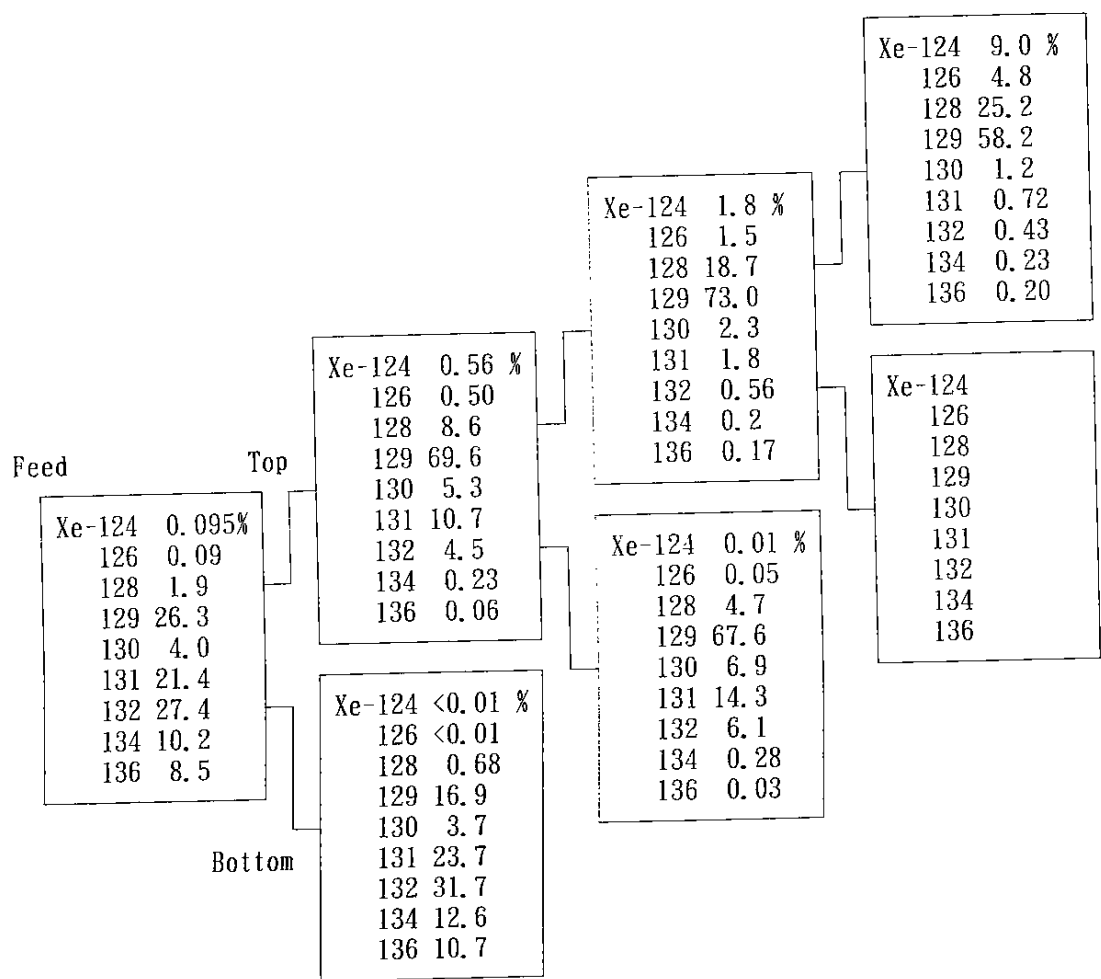


図2.5.4 天然 Xe 中の0.095% Xe-124 を9.0% まで3段濃縮

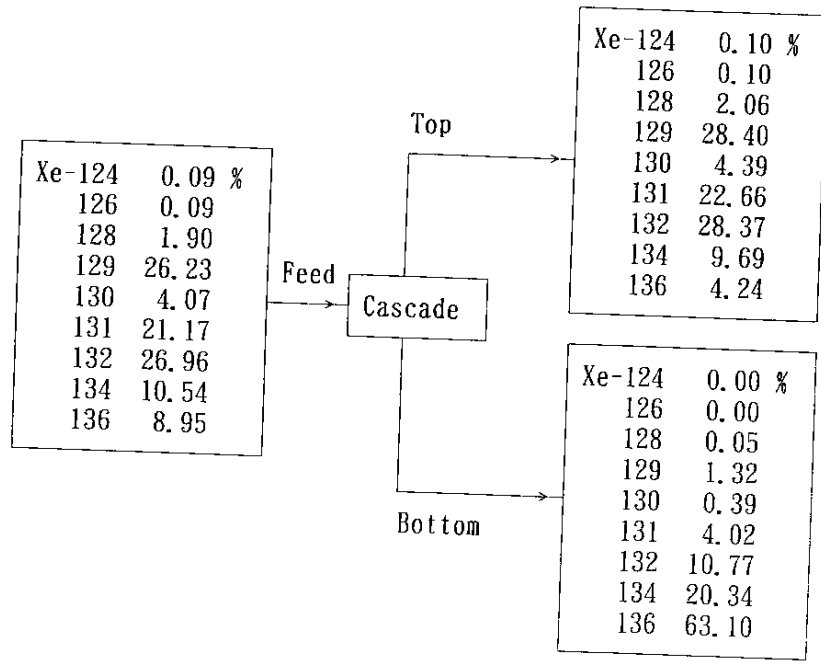


図2.5.5 天然 Xe 中の 8.95 % Xe-136 を 63.10 % まで濃縮

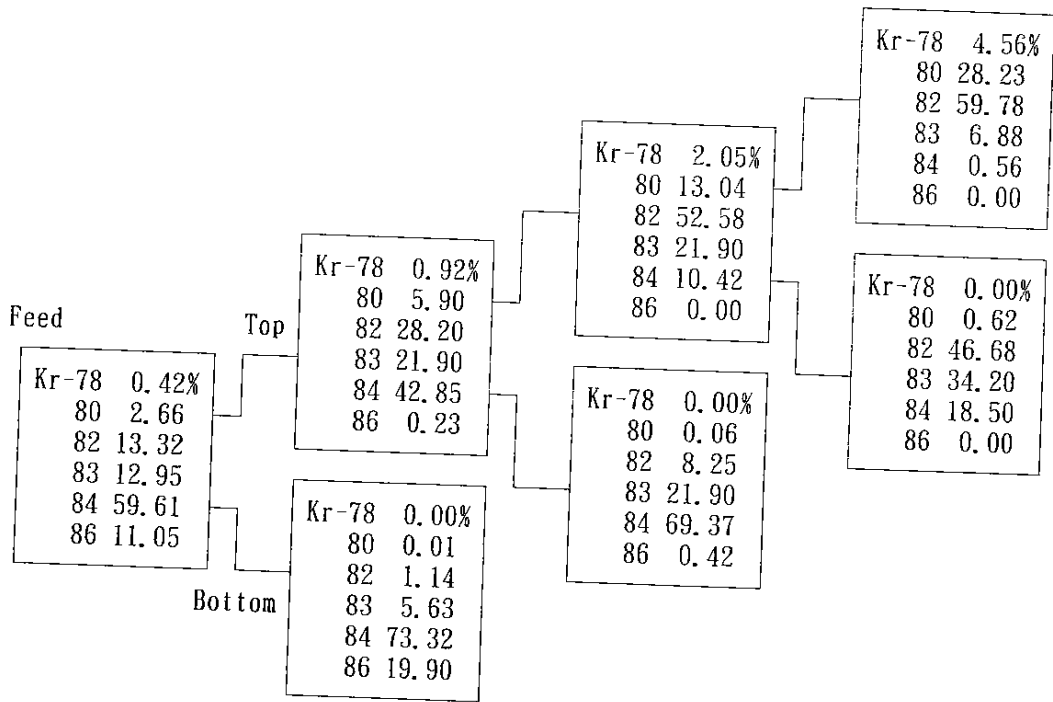


図2.5.6 天然 Kr 中の 0.42 % Kr-78 を 4.56 % まで3段濃縮

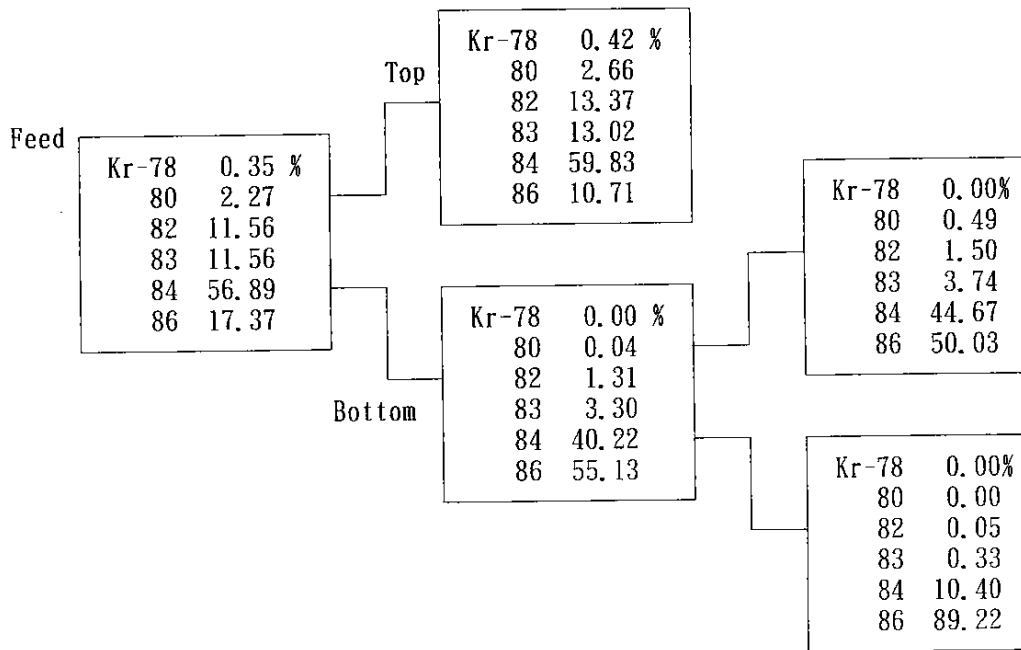


図2.5.7 天然 Kr 中の17.4 % Kr-86を 89.2 % まで2段濃縮

### 2.5.3 科学的調査のためのウラン及び超ウラン元素の高濃縮同位体[Vesnovskii et al (1992)]

高濃縮のU(233, 234, 235, 236および238)、Pu(238-242および244)、Am(241-243) およびCm(243-248) が最大200 mgまで生産され、応用核物理学研究に使用された。その純度と量の表が示されている。

#### (1) 一般的事項

超ウラン元素の性質を研究するために、電磁同位体分離の研究室が設立された。そこには、比較的小さな質量の差を有する放射性重元素の同位体を高い効率で分離するように特に作られた電磁質量分離機が設置された。

アクチニドの無水三塩化物(Water-free trichloride)の 1g までが供給物質として用いられ、平均 5% の利用率で分離できる。



1969年以来、高濃縮のU(233, 234, 235, 236及び238)、Pu(238-242及び244)、Am(241-243)およびCm(243-248) が生産され、応用核物理研究に使用された。その純度と量は、下表に示す。

表 2.5.4 応用核物理研究に使用されたアクチニド

同位体	主要同位体含有量と不純物含有量(%)						現在利用 可能量(mg)
	238	239	240	241	242	244	
<sup>238</sup> Pu	99.6	0.4	0.015				20
<sup>239</sup> Pu		99.5					200
<sup>240</sup> Pu		99.997	2×10 <sup>-3</sup>	2×10 <sup>-4</sup>	1×10 <sup>-4</sup>		50
		4×10 <sup>-3</sup>	99.9	6×10 <sup>-2</sup>	1×10 <sup>-3</sup>		
<sup>241</sup> Pu		3×10 <sup>-2</sup>	90.7	9.0	0.2		150
		10 <sup>-3</sup>	0.17	99.6	0.23	10 <sup>-3</sup>	
<sup>242</sup> Pu		10 <sup>-4</sup>	3×10 <sup>-4</sup>	99.998	1.6×10 <sup>-3</sup>	10 <sup>-4</sup>	100
		10 <sup>-3</sup>	0.1	2.0	97.8	7×10 <sup>-4</sup>	
<sup>244</sup> Pu		5×10 <sup>-4</sup>	5×10 <sup>-4</sup>	0.04	99.96	5×10 <sup>-4</sup>	0.01
		5×10 <sup>-2</sup>	0.4	5×10 <sup>-2</sup>	1.8	97.8	
		3×10 <sup>-4</sup>	0.3	7×10 <sup>-3</sup>	0.7	98.9	0.005

同位体	主要同位体含有量と不純物含有量(%)						現在利用 可能量(mg)
	240	241	242	243	244	245	
<sup>241</sup> Am		99.99					200
<sup>242</sup> Am		30.5	55.1	18.2			2.0
		13.0	85.6	1.6			1.0
<sup>243</sup> Am		0.7	0.1	99.2	0.1		20
		1.6×10 <sup>-3</sup>	4×10 <sup>-4</sup>	99.999			

同位体	主要同位体含有量と不純物含有量(%)						現在利用 可能量(mg)
	243	244	245	246	247	248	
<sup>243</sup> Cm	93.3	0.6	4×10 <sup>-4</sup>	0.6	10 <sup>-2</sup>	10 <sup>-2</sup>	0.1
	99.99	8×10 <sup>-3</sup>	5×10 <sup>-5</sup>	10 <sup>-4</sup>	10 <sup>-4</sup>	10 <sup>-4</sup>	0.05
<sup>244</sup> Cm	5×10 <sup>-2</sup>	99.3	6×10 <sup>-2</sup>	4×10 <sup>-3</sup>	10 <sup>-3</sup>	10 <sup>-2</sup>	100
		1.3	98.4	0.3			10
<sup>245</sup> Cm		6×10 <sup>-3</sup>	99.998	2.5×10 <sup>-3</sup>			3
		10 <sup>-2</sup>	6	98.0	10 <sup>-2</sup>	10 <sup>-2</sup>	40
<sup>246</sup> Cm		10 <sup>-2</sup>	8×10 <sup>-3</sup>	99.8	10 <sup>-2</sup>	10 <sup>-2</sup>	10
	0.5	12	7	7	70.3	1.4	2
<sup>247</sup> Cm		2.7	0.8	5	90.2	0.5	1
	0.1	2.8	0.04	1.24	0.1	95.8	3
<sup>248</sup> Cm	0.1	2.2		0.7		97.0	1.5

## 2.5.4 物理、化学、地球科学研究における分離安定同位体の国家的用途と必要性

[Zisman(1982)]

要約： 物理、化学および地球科学の領域における安定分離同位体の目下の利用に関し、現在の供給問題を確認して将来のニーズを求めるために、調査が行なわれた。分離同位体の需要は強く、過去3年間に220の異核種が用いられた。核物理研究が、同位体の量と多様性の面からみて、最大のニーズをもっていることが分る。現在抱えている問題は、多くの核種が利用可能な状態にないこと、稀な核種の満足できない濃縮度、および、ある種の重要同位体の価格がとてつもなく高いことである。分離同位体の需要は、概して言えば、高濃縮の稀な同位体への一層の要請にに向けての移行があるにしても、現在レベルの維持が止まるであろうと思われる。様々な加速器でエキゾチックイオンビームを作るために、 $A=100$  未満の中性子の多い核種に顕著な用途が、作り出されるだろう。核磁気共鳴スペクトル用の遷移金属核種の使用は拡大するであろう。加えて、比較的少量であるが、Sm/Nd法やLu/Hf法のような放射線年代測定の新技術用の校正標準が求められることになろう。研究社会の殆んどメンバーは、安定同位体の適切な供給を維持するため、彼らが今払っているより以上の支払いをしようとしている。

### (1) まえがき

本資料において我々は、分離安定同位体に対する現在と将来のニーズ、ならびに、それらの分離安定同位体が物理や化学の研究において、置かれつつある（または、置かれるであろう）用途を当ててみたいと思う。他の著者からは、安定同位体の生物医学、臨床、および産業用途について論ずるだろう。本情報は、今や特に、かかる同位体の利用可能性に対して、影響を与え始めるようになった問題が出てきてから（近年のこと）関係ができた。とりわけ、ORNL (Oak Ridge National Laboratory)で電磁法により分離された多数の同位体供給が出尽され、新規供給コストが非常に高くつくことになり、それに、ORNLの分離器（カルトロン）\*の寿命が近づいてきている。

第2次世界大戦以来、特に、核物理の分野の基礎研究社会が、この国の同位体分離を担う大きな能力の所有を手にした存在理由に依ってきた。このことは、核物質が極めて広範囲な同位体物質を必要とすること、即ち、あるとき、または別なときに、殆んどすべての安定元素の分離同位体が、核物理の研究に用いられてきた（用い続けられてきた）

という意味において正しい。かかる多種多様なニーズは、核物理学者にとって関心のあ  
る特別な効果や特性が研究中の特定核に関係し、また、単核子の付加とか除去によっ  
ても、その結果としてドラスチックに変化し得るのだから、何も驚くには当たらない。従っ  
て、分離同位体物質を離れて核特性を研究することは、不純な試薬を用いて化学反応を  
研究するようなものだろう。つまり、観察効果を研究の下にある系の特性と相関づける  
のは困難なことで、多分、不可能である。

〔もとより、単同位体の元素もあるが、それらは 280の安定同位体の中の僅か20に過  
ぎない。それらの多くは物理や化学の研究に用いられるが、それらは分離を必要としな  
いので、ここでは重視しないことにする。さらに我々は、 $^3\text{He}$ といった気体同位体、  
または、 $^{252}\text{Cf}$ 、 $^{148}\text{Gd}$ 、 $^{57}\text{Co}$ 、 $^{22}\text{Na}$ 等といった、比較的普通の放射性線源の需  
要や利用も論じないことにする。何れの場合も、重要でないから省略されたと取られて  
はならない。……。〕

研究科学者が各種様々な分離同位体物質を求めるというのは、一般的に言ってそう  
なのであるが、個人としての使用量はさして多いものではなく、通常、各同位体につき、  
10-1000mg/年の程度である。このことは、分離同位体の“応用”用途と比べて対照的  
で、応用用途では、相当量の比較的少数同位体利用の傾向にある。少数高需要品目の供  
給維持の方が、多様多数中（程度）量の分離同位体物質の維持よりも、明らかにもっと、  
経済的な問題を含んでいる。これが、研究社会が直面している問題である。米国の研究  
者による安定同位体の利用現状の概要を囲むため、大学や国立研究所を含む、1000以上  
の全国規模の物理や化学の部門に質問書が送られた。

その回答に基づいて言えば、分離同位体のための重要な要件を取り込んだ本報告書関  
連の研究分野は、

- ① 核物理/核化学
- ② 中エネルギー物理
- ③ 放射化学
- ④ 他の化学（物理、無機、分析）
- ⑤ 他の物理（原子、固溶態）
- ⑥ 地球科学

これらの各分野のための分離同位体要件が、当該物質の置かれている利用例に従って  
(2)に示されている。当然のことながら、完全な選択例という訳にはいかないが、少なく

とも、様々な領域における最近研究の幾つかについて概観を試みたい。同位体の現供給関連問題は(3)で述べられ、また、(4)では、これらの研究分野における将来要件の傾向が論じられる。最後に(5)で現在の研究と目下の結論を集約する。

## (2) 安定同位体の要件と最近の利用

### A 核物理

核物理は核の構造と特性を含み、核相互を保持する基本力の理解にその狙いがある。恐らく核は、天然に利用できる最も多彩な量子的多体系である。それは、単分子現象（殻構造）から集団現象（振動、回転）までに亘る、様々な興味深い、かつ、複雑な現象を示している。

最近の10年間に、核物理の研究はかなりの変化をみた。例えば、“軽イオン”ビーム ( $A \leq 4$ ) から“重イオン”ビーム ( $A \geq 6$ ) へ、それにまた、高速ビームエネルギーに向けた傾向へと、重点が置きかえられている。この分野における分離同位体へのニーズを概観するため、最近3年間の利用状況を調べたが、kg以上の核種は、Fe-56, Li-6, B-10のみである。ビームを生み出す幾つかの同位体利用の報告はあるものの、大抵の同位体はターゲット物質として用いられている。しかしながら、同位体濃縮ビーム物質の利用が、粒子加速器の新規発生に伴って著るしく増大することが期待される。〔ここで、現在の機器は、しばしば、気体状の同位体、例えば、 $^2\text{H}$ 、 $^3\text{He}$ 、 $^{18}\text{O}$ 、 $^{86}\text{Kr}$ および $^{136}\text{Xe}$ をビームとして利用するが、これらは電磁法によっては分離できないので、現調査から省略されていることに注意しなければならない。〕

#### (a) 軽イオン物理

高分解能研究；プロトンまたはジュウテロン（重陽子）といった軽イオンビームは、核の単粒子特性を測定するのに用いられる。これらのビームを用いる実験は、極めて高い分解能をもってしか行なえないので、核レベルの微細構造について、多くのことが学びとれる。例えば、(P,P) 共鳴実験が約400eV の総括エネルギー分解能をもって、Triangle Universities Nuclear Laboratoryで実施された。

偏りビーム；軽イオンの反応はまた、ジュウテロンの偏りビームによっても研究することができる。この場合、その測定が、様々な単粒子または集団状態についての情報を与えることになる。Ge同位体に関わる偏りジュウテロンの非弾性散乱結合チャ

ネル分析は、 $^{72}\text{Ge}$ から $^{74}\text{Ge}$ への移行における、oblateからprolateへの形状変化の理論予測に支持を与えるものである。

ジャイアント共鳴；ジャイアント共鳴現象の研究は、核の集団構造について興味ある情報を与える。馴じみのジャイアント双極共鳴の外に、プロトンおよびアルファ粒子の非弾性散乱を通しての、ジャイアント四極共鳴（GQR：giant quadrupole resonance）とジャイアント単極共鳴（GMR：giant monopole resonance）の確証が、ここ数年において見出されている。

エキゾチック核；分離同位体の利用可能性に依存する軽イオン誘導反応の分野は、ベータ安定の谷間から遠く離れたところでの核の生み出し問題を含んでいる。このようなエキゾチック核の質量測定が、様々な理論モデル、例えば、Garvey-Kelson、あるいは、Coleらの拡張殻モデル計算の予測を検討するのに用いられる。大抵のモデルは、既知核基底状態の質量を合理的によく予測するが、それらの予測は安定から遠ざかるように発散する傾向がある。

Tribblらの使用例であるが、ターゲットにおける相当量の $^{64}\text{Ni}$ の不純物の存在によって妨害され、測定不能となった例がある。このタイプの研究はまた、完全なアイソスピン多重項の観察と質量測定を可能にしており、さらに、核における高次の荷電依存力の可能な存在に関し、情報を与えている。

#### (b) 重イオン物理

深非弾性散乱；重イオンに関する特有な研究の一分野として、深非弾性散乱（DIS：deeply inelastic scattering）法の研究がある。

異常大角度散乱；最近発見された興味のある現象の一つが、ある一定種の重イオン系に見られる、所謂、異常大角度散乱（ALAS：Anomalous Large Angle Scattering）である。

核融合；重イオン系軽量域の核融合プロセスの、エネルギー依存性に関わる広範な研究がある。 $^{16}\text{O} + ^{12}\text{C}$ といった、“アルファ粒子”核からなるある一定種の系において、核融合断面積がその反応断面積から著しく離れ始めるエネルギー範囲の核融合断面積において、思わぬ振動が観察されている。

高スピン状態；重イオン発射体の特殊現象の一つが、（HI、xn）反応か、または、クーロン励起の何れかを通しての、核に対して有意な角運動を与える能力である。

再来エキゾチック核; 重イオン発射体を有効に利用して、安定状態から遠く離れたところに核を生み出すことにより、我々の研究能力を高め、極めて特異な条件の下での核観察に、その機会を与えてくれている。

(c) 中性子物理

放射捕獲; 遅い中性子をもった原子核構造の研究は、核物理の最も古い部門であり、多くの初期実績が、Ra-Beソースからの中性子を用いて生み出された。近來の研究では、BNL (Brookhaven National Laboratory) の中性子高フラックスビーム炉といった、研究炉で可能な中性子高フラックスを利用している。

中性子散乱と全断面積; 荷電分布か、または、物質分析の何れかの観察によって、核変形を調べることができる。中性子は弾性散乱と非弾性散乱、さらには、全断面積の測定により、物質変形の有効なプローブとして働くことができる。

(d) 電磁相互作用

電子励起; 電子散乱は、核サイズや核構造の様々な様相について、よりよく理解するのに用いられる。その一例が、ジャイアント多極状態に関わる探査である。非弾性電子散乱は、この目的のために使用できる。

光核反応; 光子と核が衝突して起る光核反応は、光中性子（光殻反応で核から放出される中性子）の放出と光核分裂（核が高エネルギーの光子を吸収した結果起る核分裂）を含む、重い核のGDR崩壊特性研究に用いられる。というのは、光子はこの“状態”の中に、非常に強く吸収されるからである。

光子散乱; 弾性的と非弾的に散乱された光子の測定によって、核特性に関する貴重な情報を得ることができる。荷電粒子の散乱と比べて、光子の散乱はクーロン効果による妨害がなく、周知の態様での相互作用という利点をもっている。

(e) 弱い相互作用

二重ベータ崩壊; MoreとLowenthalは、 $^{82}\text{Se}$ における二重ベータ崩壊に関わる実験的なハントに努力を傾けている。彼らは、中性子放出を伴うのか、または、伴わないのかの何れかについて、本プロセスに関わる直接的な確証発見を希求している。

## B. 中エネルギー物理

中エネルギー物理は、中間子生成が意味をもつ枠組の中への、低エネルギー核物理の拡張である。重要研究のトピックスの一つは、核における質量分布についてである。過去3年間の中エネルギー物理における分離同位体物質の利用が、Tab. IIに示されている。

### (a) プロトン散乱

中性子密度決定；中エネルギープロトン ( $E_p \sim 1000\text{MeV}$ )の弾性散乱は、核の物質分布を研究するための強力な技術である。このような研究は、基底状態の物質密度に関わる理論的な核構造の決定に匹敵する、重要な情報を与える。

### (b) パイオン ( $\pi$ 中間子) 誘導反応

純プロトンと中性子核内遷移；(3、3)共鳴近傍の自由核子から散乱する $\pi$ 中間子において、 $\pi^-$ 対 $\pi^+$ の断面積の比は、プロトンについては約1/9、中性子については9である。

パイオン電荷交換；全量子数が荷電スピン(量子力学的変数)を除けば、同一であるという核の類似状態が知られており、長年、研究されている。

### (c) X線研究

核荷電分布；ミュウ粒子原子(電子の一つが、負電荷の $\mu$ 粒子によって置き変わったもの)のX線測定が、ある場合には、静的と動的の四局能率を含む核荷電分布に関して、極めて機能的な情報を提供できることが、これまでによく知られている。

パイオン-核ポテンシャル；拘束原子のパイオンが、核電荷分布のプロブとして特に有用という訳ではないが、それはパイオン-核総合作用ポテンシャルの幾つかの特性決定の可能性を与えるものである。

## C. 放射化学

安定同位体の使用に関連しての“放射化学”には、幾分かの不明瞭さがつきまとう。というのは、放射化学法を含む技術が、多くの研究分野に幅広く適用されているからである。ここでは、少なくとも、研究努力の一部のために、化学技術を用いる核化学のそれらの分野を、放射化学と呼んで用いるものとする。最近の3年間の放射化学における安

定同位体の利用では、Li-7が 1kgに達しているが、大部分はmgのオーダーである。

(a) 重および超重元素

超アクトノイド化学；放射化学研究の一つの重要な分野は、超アクトノイド元素の化学性の研究を含んでいる。かかる情報は、原子番号未知の放射性核種を決定するのに重要となり得るものである。ここでは、化学分離が必要な同定法を与えている（例えば、104番〈原子番号〉の重元素の化学）。

超重元素の調査；近年、かなりの努力が、所謂、超重元素（SHE：superheavy elements）を生み出して、同定しようとする試みに向けられている。これらは、閉殻の故に、核分裂に対して極めて安定と思われる  $Z \sim 114$  の元素である。

核分裂研究；重い核の核分裂崩壊については、例えば、熱中性子、拘束中性子、軽イオン、重イオン、パイオン、および反陽子によって誘導された様々な異種反応の研究が広範に行なわれている。

高エネルギー反応；軽イオンや重イオンによって誘導された高エネルギー核反応で生じた核種の分布研究は、反応機構について興味ある情報を提供できる。大抵の場合、生成の範囲が幅広いので、放射化学技術のグローバル性にとって好適である。

D. 他の化学

化学研究の“核”特有面の外に、濃縮安定同位体の利用可能性に関わる幾つかの他の化学分野がある。明らかに有力な利用は、核磁気共鳴（NMR：nuclear magnetic resonance）分光学的方向である。この分野で用いられる分離同位体は、 $^2\text{H}$ 、 $^{13}\text{C}$ 、 $^{15}\text{N}$ 、および $^{17}\text{C}$ を含んでいるが、特に $^2\text{H}$ は、個人の研究グループにより、数 100～数1000 g／年の範囲の量で用いられている。表IVに見られるように、量的には比較的小さいものであるが、多分、時代とともに成長していくだろう。

(a) NMR分光学

丁度今、述べたばかりのことであるが、NMR分光学的に用いられる同位体は、主として、軽元素のH、C、N、およびOを含むものであるが、この目的のために有用な、核スピン  $I = 1/2$  をもった多くの重い核がある。Acereteらは、ヘテロポリとイソポリのタングステンのNMRによる構造研究のために、 $^{183}\text{W}$ の有用性を実



証した。

$^{183}\text{W}$ は唯一のNMR-活性W同位体であるけれども、そのプロトンに比したときの感度は $7 \times 10^{-5}$ である。従って、 $^{183}\text{W}$ の天然存在比14.3%を超えたものに濃縮することが重要となる。 $^{25}\text{Mg}$ と $^{43}\text{Ca}$ のNMR挙動は、文献にレビューされているが、一方、 $^{45}\text{Sc}$ 、 $^{89}\text{Y}$ 、 $^{139}\text{La}$ 、 $^{47, 49}\text{Ti}$ 、 $^{51}\text{V}$ 、 $^{93}\text{Nb}$ 、 $^{181}\text{Ta}$ 、 $^{53}\text{Cr}$ 、 $^{95, 97}\text{Mo}$ 、 $^{55}\text{Mn}$ 、 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{185, 187}\text{Re}$ 、 $^{57}\text{Fe}$ 、 $^{187, 189}\text{Os}$ 、 $^{59}\text{Co}$ 、 $^{103}\text{Rh}$ 、 $^{195}\text{Pt}$ 、 $^{63, 65}\text{Cu}$ 、 $^{107, 109}\text{Ag}$ 、 $^{67}\text{Zn}$ 、 $^{111, 113}\text{Cd}$ 、および $^{199, 201}\text{Hg}$ が、文献[(R. G. Kidd; Annu. Rept on NMR Spectroscopy, V. 10A, p. 1(1980)]にレビューされている。一般的に言って、必要量はそう極端に多いものではなく、研究用としては恐らく、0.5~1 g/年のオーダー量といった程度のものであろう。

(b) E S R分光学; 広範囲の同位体が有用される別の分野は、電子スピン共鳴 (E S R : Electron Spin Resonance) 分光学の技術による分子の研究である。

(c) 非弾性散乱

電氣的な四極状態の選択とレーザ蛍光検知を用いた新技術により、NC $\ell$ 、DC $\ell$ 、及び、HCN分子との衝突における、 $^7\text{LiH}$ 分子の四極非弾性散乱について研究を行なっている。

(d) 質量分析法

安定同位体を用いる質量分析技術が、化学研究の中で拡がりを見せている。これらの技術は分子反応の機構研究に、また、安定核種と放射性核種の濃縮の(度)測定という分析の仕事にも利用されている。

## E. 他の物理

核および中エネルギー物理の外に、安定同位体に関わる他の二つの物理部門がある。その一つは原子物理であり、他のもう一つは固溶態物理である。1979~81年の最近3年間のこれらの研究分野に関わる同位体利用では、これもLi-6, 7がそれぞれ、180 g及び380 g、B-11が10 gで他の各種はいずれもmgオーダーであった。

(a) 原子物理

レーザ分光学; 原子物理において、原子核“同位体”性の主たるインパクトは、所謂、同位体シフトであり、それは同一元素の同位体間超微細レベルの中心シフトを含んでいる。

(b) 固溶態物理

Moessbauer分光学; Moessbauer効果として理解されているガンマ線の核共鳴吸収が放射（または、吸収）核の環境を、極めて高感度なやり方で調べることを可能にしている。特に、このような測定は、異性体シフト、磁気超微細スプリットング、および電気四極スプリットングについて、情報を与えてくれる。

摂動角相関; Moessbauer分光学と同様に、摂動角相関の研究は広範多様な環境における物質特性について学ぶ機会を与えている。この技術は、反跳状態の  $g$  - 因子の測定、結晶構造の検討、さらにまた、分子内の化学結合を明らかにするのに用いられる。

F. 地球科学

様々な元素の同位体存在の研究は、地球物理や地球化学において重要な役割を果たしている。それが知られている最大の理由は、恐らく、同位体比が地質学的対象物の年代の同定に感度のよい方法を提供しているということである。別の理由は、物理性（蒸気圧、融点等）や化学性（反応速度）に変化を与える同位体効果についてである。表VIは、地球科学において使用され、電磁法によって分離された安定同位体と、誘導的な放射性同位体をリストしたものである。この表の中には、 $^{17}, ^{18}\text{O}$ 、 $^{34}\text{S}$ 、 $^{36}, ^{38}\text{Ar}$ 、 $\text{Kr}$ 、および  $\text{Xe}$  といった気体状同位体が含まれていない。多分、極く少量が必要なかろう。

(a) 放射能年代測定

放射能年代測定は、様々な地質対象物の年令を測定するのに用いられる技術である。絶対年表 (absolute chronology) を得るためには、地球の歴史を通して、同一速度で存在しているプロセスに基づき、時間測定が行なわれることになる ( $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ 、 $^{87}\text{Rb}/^{87}\text{Sr}$  等)。

(b) 同位体異常

地球科学者にとっての関心事の一つの問いは、地球上に見出された同位体比が、地球外物質に見られるそれらと一致するのか、一致しないのかということである。隕石中のU、Ti、およびAgの様々な同位体について、この問題に対する研究が行なわれているが、 $^{235}/^{235}$ Uにおいては何の異常も見られなかったのに対し、Ti同位体の場合には、特に、中性子の多い同位体である $^{50}$ Ti ( $^{48}$ Caも)において有意な異常が見られた。Agについては、 $^{107}$ Ag /  $^{109}$ Agの比が、正常値の1.09に比べて、1.7~2.8 という異常な値を示した。

(3) 安定同位体の供給問題

研究分類別のユーザのアンケートの回答は回収率 26%で得られたが、同位体使用の大口ユーザの側に、不具合を示す数字 (%) が大きいという傾向が見られる。回答の中の不具合の問題は、次の4つに主に区分することができる。

- (1) 同位体の入手不能
- (2) ぎりぎりの濃縮度または化学純度
- (3) 同位体入手の遅れ
- (4) 高いコスト

問題を報告した回答者の約半数 (全回答者の12%) が、ある種の同位体について、入手不能と了解していた。入手不能か、濃縮度が低すぎるとして明記された特別な同位体を次に示す。

$^{26}$ Mg、 $^{29, 30}$ Si、 $^{50}$ Ti、 $^{67}$ Zn、 $^{77}$ Se、 $^{84}$ Sr、 $^{96}$ Ru、 $^{110}$ Pd、 $^{113}$ Cd、 $^{112, 118, 124}$ Sn、 $^{134}$ Ba、 $^{138}$ La、 $^{150}$ Nd、 $^{154, 160}$ Gd、 $^{176}$ Lu、 $^{180}$ W、 $^{189, 190}$ Os、 $^{191}$ Ir、 $^{198}$ Pt、 $^{201}$ Hg、および $^{233}$ U

十分な濃縮度をもった濃縮物の欠如が、とりわけ、重大な問題になりつつある。多くの同位体が技術的には“在庫”であるのに、研究社会にとってのそれらは、ぎりぎりの入手可能でしかない。というのは、低濃縮にすぎるか、または、とても受け入れられないような化学純度によるものなのである。濃縮不十分の顕著な例は $^{84}$ Srで、それは地質年代測定学 (地球の岩石の絶対年代を研究する分野) において、足かせをはめられたような不具合を抱えながら、厳しく用いられている。

最近まで、アメリカ国立標準極 (NBS : National Bureau of Standards) は、この $^{84}\text{Sr}$ を高純度標準基準物質 (SRM : Standard Reference Material)として提供していたが、今はもう入手ができない。実際には、同位体純度 $>95\%$ の物質が求められているのに、 $82\%$ の純度しかないORNLからの物質と置きかえられていることが、不確かさの重要な誘因となっている。

多数の回答者が、ある一定種の分離同位体について、それらの完全な入手不能のことを報告した。研究者の殆んど $5\%$ の者が、この過去3年間に、少なくとも一回は、計画していた実験を、必要な物質の入手ができないまま断念したことを述べている。

コストについて言えば、くり返し値上げを見せた一つの問題、 $^{48}\text{Ca}$ の天文学的なコストが挙げられる。その大きなN/Z比の故に、超重元素のための研究から、パイオンを伴った核物質半径の研究に至るまでの広範囲に亘って、この同位体は多くの実験でなくてはならぬものとして用いられている。多くの計画のためには、 $^{48}\text{Ca}$ が $^{40}\text{Ca}$ の代替物になり得ないかどうかにつき、つまり、 $^{40}\text{Ca}$ と $^{48}\text{Ca}$ の挙動の比較こそが、核構造効果を明らかにできるかどうかの、最もストレートな方法であるけれども、 $^{48}\text{Ca}$ のコストが、科学社会に馬鹿高い値段をつけさせ始めたのである。同位体コストに関しては、ある程度、“標準化”されなければならないということに言及しておこう。

何れにしても、安定同位体の供給については、解決しなければならぬ多くの問題が横たわっている現実がある。

#### (4) 分離同位体要件の将来傾向

本章においては、安定同位体の様々な用途が、来るべき次の5年間に、どのように変化すると思われるかということと、それにまた、かかる変化がいかに安定同位体の需要に影響にするものかを見ておきたいと思う。1968年に、National Research Council パネルによって行なわれた安定同位体に関わる類似の調査において、“核構造”、核分光学、および核反応の研究は、全同位体の系統学に関係するものであるから、殆んど全同位体の分離試料が求められ、また、求められ続けていく”ということが言われている。現調査によっても分るように、このことには何らの変りはない。

基礎科学の実施法からみて当然のことながら、その将来ニーズの定量的な予測は、どうみても困難なことである。この理由から、ここでは、各同位体についての詳細な数値予測の試みは行なっていない。我々はむしろ、同位体の用い方に変化がありそうな分野

についての、科学的な計画とコメントということにおいて、その傾向を見ていく積りである。調査が含むトピックスの一つに、とりわけ、現在のニーズから異っていかも知れないという将来への期待があったのだが、調査によれば、驚くべきことに、全6つの研究分野に共通する様な傾向があった。それは、安定同位体の科学ニーズは、来る次の5年間に亘っても、概して一定だろうということなのであるが、このことは誰もの明らかかな一致した見方である。

第一に、歴史的に言って、基礎研究を目的とした安定同位体の最大ユーザである、核物理/核化学の領域を考えてみよう。次の5年間に於いて、核物理は、恐らくは、高エネルギー物理の進展と平行して、ある程度の進展を続けるだろうと思われる。歴史的にみて、核物理を多数の施設で実施されてきた。ところが最近では、使用施設が増える方向どころか、逆に、施設減少の方向が見られるのである。(ビームエネルギーや利用可能な実験設備が関係)。従って、核物理は“ユーザ”フェースの段階に入ったと言えよう。核物理の実験プログラムにおいて、幾つかのパターンが明らかである。その一つは、重い発射体や高速ビームエネルギーに向けた一般的な傾向である。さらに、レアプロセスの研究に、かなり力が注がれてきている。ターゲットの選択に関しては、必要同位体の正確な将来予測は可能というのが、明らかに一致した見方であるが、にも拘わらず、幾つかの一般的なポイントが調査の結果出て来た。

希土類同位体は、核構造に関して最も刺激的なもので、それに、驚くべき情報を我々にきちんと提供してくれるので、高需要を維持するだろう。高い関心が持たれると思われる他の物質に、Ca、Ni、Zr、Mo、Sn、Sm、およびPbといった幅広く利用できる同位体をもった物質がある。これらの同位体は、N/Zの比による核構造と反応機構における変化、閉殻からの距離、ならびに変形などの諸問題に説明を与えてくれる。Mg-Si範囲の同位体需要も、かなりの量となるように思われる。

過去においても同じことだったが、ターゲットの決定的な点は、それらの濃縮問題だろうと思われる。大抵の場合、僅かに1個の中性子の付加とか除去とかが、核反応に重要な影響を与え得るのである。さらに、同位体的にミックスされたターゲットに関わる競争反応の問題は、関心の反応を、殆んど訳の分らぬものにするバックグラウンドプロセスに導いてしまう。それは同位体に求められる極度の高純度性の問題であるが、この高純度同位体の入手不能の実態こと、今後、正していかなければならぬ現供給システムの弱点である。

重いイオンの実験プログラムのための別の明らかな方向は、すべての新型粒子加速器が、比較的重いビームを大抵のターゲットについて、クーロンバリアを超えるエネルギーまで加速できる能力をもっているということである。このことは、ほんの最近になって開拓され始めた用途である、エキゾチック発射体としての安定同位体の利用に刺激を与えることだろう。最も興味ある放射体の選択は $^{48}\text{Ca}$ であるが、中性子リッチの他の数イオン、 $^{26}\text{Mg}$ 、 $^{30}\text{Si}$ 、 $^{36}\text{S}$ 、 $^{50}\text{Ti}$ 、 $^{58}\text{Fe}$ および $^{64}\text{Ni}$ といったものが、これに続いていることは明らかである。これらのイオンにより、核構造の赴く限りにおいて、余り知られていない領域の、ベータ安定状態の谷間から遠く離れたところの核研究ができることになる。

ビーム用の安定同位体の利用ということは、その必要同位体量を著しく増加させることにつながっていく。長年の間、 $^{48}\text{Ca}$ のビームならびに $^{86}\text{Kr}$ や $^{136}\text{Xe}$ の濃縮ビームを加速してきたスーパーHILACでの経験に基づき、もしも適切な注意がイオンソースの設計とそれに伴う真空系に払われるならば、レア同位体の相当部分が回収できる（ $^{48}\text{Ca}$ 同位体で約80%）。加えて、同位体の純度要件は、その物質がターゲットとして用いられるときよりも、ビーム提供に用いられるときの方が遙かに厳しいことを、認識しておかなければならない。これは、大抵の粒子加速器が合理的に良好な質量分離性をもち、それによって関心の同位体だけが加速されるという理由なのである。事実、ひとたび濃縮度が50%を遙かに超えるようになると、99%へのさらなる増加は、2の倍率だけビーム強度を改良するということにつながるが、この意味において、減少戻り則（the law of diminishing returns）が働くことになる。若干の稀な同位体用については、ORNLが提供している70~80%の濃縮物が、この点から理想的である。

分離同位体、とりわけ、 $^6\text{Li}$ 、 $^{10}\text{B}$ 、および $^{56}\text{Fe}$ もまた、中性子実験用の特殊遮蔽加工、コリメータ、およびフィルタの用途へ、大量に必要となることが期待される。これらの応用においては、しばしば、kg量が用いられる。中性子の仕事においては、Cr、Fe、およびNi（これらの場合、100gの試料が用いられよう）といった構造物質の研究、ならびに $^{239}\sim^{244}\text{Pu}$ （金属の形で、各核種につき約1モルが用いられよう）といった安定な核分裂生成物やアクチノイド核の研究が注目されることになる。

中エネルギー物理においては、レア同位体ターゲット用の需要が成長し続けるだろう。例えば、 $(\pi^+, \pi^-)$ 、 $(\pi^-, \pi^+)$ 、および $(\pi^-, p)$ 反応を伴った安定端での同位体に関するエキゾチック反応の研究では、100g量の物質を必要とするだろう。電子散

乱やパイオン/ミュウオンの仕事の場合には、 $^{41}\text{Ca}$ や $^{205}\text{Pb}$ といった放射性ターゲットが興味の対象となろう。ここで触れておきたいのは、Bates Liner Accelerator およびLAMPFといった施設が、一般に、相当量のターゲットストック分をもっているということについてである。

放射化学の研究では、相当量の $^{48}\text{Ca}$ （少なくとも10g）を、将来、超重元素の研究の発射体としての用途に必要とするだろう。この目的のためには、また、アクチノイドや超アクチノイドのターゲット物質を必要とするが、それらは高放射性の故に、その必要量は絶対量において、そう大きくはないだろう（ $< 1\text{mg}$ ）。安定同位体の需要があり続ける別の分野は、NBS用の様々な放射能標準の生産であるが、この意味での特別な同位体は $^{104}\text{Ru}$ と $^{107}\text{Ag}$ である。NBSは、現在、60種以上の放射性核種の標準基準物質を提供しており、疑いなく、そのリストは拡張し続けるだろう。

化学における分離同位体の利用は、NMR、ESR、および質量分析技術を伴った実験を含んでいる。NMRの仕事における電磁分離同位体の需要が、次の数年間において、特に、 $^{29}\text{Si}$ 、 $^{43}\text{Ca}$ 、 $^{57}\text{Fe}$ 、 $^{61}\text{Ni}$ 、 $^{63}\text{Cu}$ 、 $^{67}\text{Zn}$ 、 $^{77}\text{Se}$ 、 $^{95}\text{Mo}$ 、 $^{99}\text{Ru}$ 、 $^{113}\text{Cd}$ 、 $^{123}\text{Te}$ 、 $^{183}\text{W}$ 、および $^{187}\text{Os}$ について増加するだろうということは、ありそうなことである。これらの同位体は、日常的に、新規合成化合物、不物質触媒、有機鉄化合物等の研究を含む多くのNMR施設で、約0.1–1.0g量において用いられるであろう。

質量分析実験では極めて高純度（ $> 99\%$ ）の“スパイク”溶液が、同位体の定量分析用に必要であり続けるであろう。例えば、核燃料の分析では、 $^{237}\text{Np}$ 、の測定には、 $^{236}\text{Np}$ 、 $^{235}\text{U}$ の測定には $^{233}\text{U}$ 、および $^{99}\text{Tc}$ の定量には $^{97}\text{Tc}$ （濃縮 $^{96}\text{Ru}$ から製造される）を必要とするだろう。幅広い様々な同位体もまた、核分裂生成物のモニタ用に必要となるだろう。一般的には、地質学および環境の仕事における質量分析のためのニーズも成長し続けるだろうし、それに、この成長に伴って、同位体に純粋な物質についての新規要件が出てくるだろう。しかしながら、か様な研究分野の必要量は少量である。

固溶態および原子物理における同位体の用途は、現在のところ、かなり拡張するというようには現われていない。Moessbauer分光学における一次ソースは $^{57}\text{Co}$ （ $^{57}\text{Fe}$ から製造される）であり続けようが $^{199}\text{Sn}$ （濃縮 $^{118}\text{Sn}$ から製造される）、 $^{181}\text{Ta}$ （濃縮 $^{180}\text{W}$ から製造される）および他の数ソースも疑いなく、用いられるようになる

であろう。現在のニーズの大きさは、表2.5.5に見られる通りである。

同位体シフトのレーザ分光学的研究は、同位体の使用範囲を大きく広げるものである。従って、ZrやMoといった候補が、このタイプの研究にとっての主題となり得るだろうというのは、ありそうなことである。将来の研究に向けた他の候補は、それぞれ数10mgオーダー量の $^{107, 109}\text{Ag}$ 、 $^{113}\text{In}$ 、 $^{198}\text{Hg}$ 、 $^{20}\text{Tl}$ 、および $^{204, 207}\text{Pb}$ を含むものである。

地球科学における電磁分離同位体の一次利用は、IDMS技術に関わるものだろう。特殊な将来ニーズは、多分、Sm/Nd年代測定法のための $^{149}\text{Sm}$ と $^{145}\text{Nd}$ の、U/Pb法のための $^{205}\text{Pb}$ 、及びLu/Hf法のための $^{175}\text{Lu}$ と $^{174, 177}\text{Hf}$ の標準を含むものとなろう。

本報告書の主関心事ではないけれども、分離同位体の将来コストは、明らかに、当該同位体がいかに高い価格で利用されるかに関わってくるだろう。

$^{48}\text{Ca}$ の価格については、どんなにすぐれた有用な同位体であっても、その余りの高価さの故に、事実上使用不能になりつつあることの例として、既に、Sec. IIIにおいて論じられたところである。しかしながら、緊縮研究予算にも拘らず、調査に対する回答者等は、分離同位体の選択に際して、高額を支払ってでも、研究を優先させて入手する方を選ぶことを、明らかに示した。このことは、安定同位体の入手ができなければ、彼らの研究が完全停止を余儀なくされることを思えば、何も驚くには当たらない。

安定同位体の将来ニーズに関わる一つの他の問題は、誰がそれらを使用することになるかの問題である。少なくとも、核物理社会について言えば、幾分厄介な問題は、上級科学者と卒業大学生のどちらをとっても、数的減少の傾向がみられるということである。多数の回答者によってコメントされたこの傾向は、核科学諮問委員会(NSAC: Nuclear Science Advisory Committee)のマンパワーに関するサブ委員会によって確かめられている。そのサブ委員会報告書(非公開)は、次のような結論を与えている。

- 1) 1978年と1980年の間の、2年間における基礎科学者の数が、全体数から約10%もの減少を示している。
- 2) 博士号取得後の(人口)数が、この期間中、殆んど一定に留まっている。
- 3) 卒業大学生の(人口)数が、この期間中、少なくとも10%もの減少を示している(学生数と職員数の比が、約1:1になりつつある)。

この傾向は、既に、同位体の用い方に負のインパクトを与えつつあるが、もしも歯止



めがかけられないまま放置されるならば、将来に大きなインパクトを与えることになるう。

## (5) 概要と結論

本資料において我々は、物理、化学、および地球科学の広い範囲に亘って、電磁分離の安定同位体、ならびに、そこから誘導された放射性同位体の研究利用に関する情報を提供した。本報告書に含まれる情報は、物理、化学、および地質学の1000以上もの部門の全国的な調査に基づいている。過去の研究において事実であったように、我々は安定同位体の研究利用が核物理/核化学の領域において非常に大きいことを見出した。しかしながら、多くの他の研究分野もまた、中エネルギー、原子、および固溶態物理；物理、無機、および分析化学；地質年代測定学および同位体地質学を含む分離同位体の重要なニーズをもっていることも分ってきた。米国における分離同位体の需要は、相当量に上っている。概して言えば、220の異同位体が物理、化学、および地質の研究分野で用いられた（約3000 g-atomsの全物質質量に相当、大略\$ 1.6Mのコスト）。大略、当該物質の85%がこれらの実験に消費されたが、一方、15%が非破壊<sup>7</sup>の用途に当てられた。

しかしながら、幾つかの問題が安定同位体の供給の中で報告された。最もクリチカルな問題は、多くの重要同位体の完全欠如（完全入手不能）というものであった。調査回答者の約5%は、最近において、必要とした同位体が手に入らぬことにより、少なくとも1回は実験計画の断念を余儀なくされた。現在、在庫外同位体の新規供給を作り出すのに必要な時間量は2~3年を見なければならぬが、それは、大抵の研究が実施される短時間枠組みとは相容れないものである。

別の問題は、多くの低い天然存在比の同位体の、不十分な濃縮度である。同位体分布端にある核種が利用増加の方向にあるという、明らかな傾向がある。現在、これらについては、核物理実験のターゲットの場合も、高純度放射性同位体の製造の場合にしても、多くの場合、有用な程度にまでは濃縮されていない。

宇宙ロケット用同位体のコストも、関心事のものである。<sup>48</sup>Caといった重要な同位体が、その高コストによって、急速に使用不能になりつつある。

少なくとも核物理において、有能な研究者の数が減少の傾向にあるように見える。もしも、この傾向が続くようであれば、ゆくゆく、同位体の利用に関し、負のインパクトを与え始めるだろう。しかし今のところは、次の5年間の同位体利用率は、事実上、一

定に維持されそうである。勿論、悲観材料ばかりではなく、有望な期待材料もある。例えば、希土類核種、中性子リッチの大抵の軽同位体、ならびにCa、Mo、Sn、およびSmといった多くの安定同位体がある。遮蔽加工やフィルタの問題も同様である。

分離同位体の利用可能性は、この国における物理、化学、および地球科学の研究の健全体質維持のために、是非とも、そうあらねばならぬものである。我々は、将来のため、適切に濃縮された同位体を適切に供給する能力の点で、重大な岐路に立たされている。

#### 2.5.5 研究開発用の安定同位体利用のまとめ

(1) 物理、化学および地球科学の領域における安定分離同位体の利用は、核種の種類が極めて変化に富み利用できる限り全ての同位体が用いられて200種以上に及ぶが、それぞれの必要量は少ない。米国では1980年代初期で、全体で3000グラム原子量、全体コストで160万ドル、各同位体で、10mg~1000mgのオーダーである。これは他の分野で比較的小数の多量の同位体を用いる応用的利用と比較すると両極端に位置する。

(2) 分離同位体の研究開発用の需要は強く、核物理研究が、同位体の量と多様性の面からみて、最大のニーズをもっている。現在抱えている問題は、多くの核種が利用可能な状態にないこと、稀な核種の満足できない濃縮度、および、Ca-48のようなある種の重要同位体の価格がとてつもなく高いことである。

(3) 特殊な核種の高濃縮同位体への一層の要請が将来出てくるであろうが、全体としての分離同位体の需要は、現在レベルを維持すると考えられる。特殊の用途としては加速器関連で、 $A=100$ 未満の中性子の多い核種に顕著な用途がでる可能性がある。核磁気共鳴スペクトル用の遷移金属核種の使用は拡大するであろう。

(4) 核物理学用の需要では下降傾向にあるが、中性子作業のための同位体として純粋な遮蔽材及びフィルター用に、Li-6、B-10、Fe-56等がキログラム・オーダーの相当量が必要となろう。

(5) 医学、ライフサイエンスの研究開発用の用途は、NMRやMRIの数の激増と共に毎年10%以上の伸びがなされているが、炭素-13、窒素-15、酸素-17及び-18等の少数の核種に限られる。

## 紹介文献

- (1) E. Bellotti, et al; Separation of Rare Gases from Radioactive Contaminants by Means of an Ultracentrifuge, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B62, 529-534](1992)
- (2) W.L.Roberts; Gas Centrifugation of Research Isotopes, Nucl.Instr.and Method in Phys.Research A282 p.271-276 (1989)
- (3) Stanislav P, Vesnovskii andVladimir N. Polynov, Highly enriched isotopes of uranium and transuranium elements for scientific investigation, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B70(1992), 9-11, North-Holland
- (4) M.S.Zisman; National Uses and Needs for Separated Stable Isotopes in Physics, Chemistry, and Geoscience Research, LBL-14068 (1982)

## 2.6 安定同位体の販売量と単価

我が国における安定同位体販売量は売上高は、約10億円に近づいており、全世界で約50億円程度と言われている（日本酸素㈱情報）。1987年ではNMR用で、H-2、C-13、N-15、O-17, 18の5核種で1億5千万円強に過ぎなかったが（NMR用の溶媒に用いられる重水素が含まれていないと思われる）、1992年度には4~5億円に達すると思われる溶媒用の重水素を含めて最近5年間で大幅な売上の伸びがあったことになる。最近のNMR用の販売量は年間10~20%の伸び率で、特にC-13の伸びが著しいと言われている。1987年の核種別の売上を表2.6.1に示した。

表2.6.1 日本における安定同位体の売上高と年間伸び率

化合物	H-2	C-13	N-15	O-17, 18	合計
金額（百万円）	22	61	52	20	155
売上高比率（%）	14	39	34	13	100
年間伸び率（%）	108	105	104	110	106

年間伸び率は1985~1987年の金額変化から計算。

次に、価格推移を見ると表2.6.2に示す通りである。表からO-18を除いて大幅に価格が下がっているのがわかる。O-18は過去にも価格が上昇気味であるが、理由は不明である。合わせて、唯一国産化されているN-15化合物の価格推移を表2.6.3に示した。

表2.6.2 主要原料の価格推移（米国、1983~1987、\$/g）

原料	年次	1983	1985	1986	1987	1993(円/g)
C-13-炭酸バリウム	98Atom%	123.6	133.5	138.0	146.0	3916 *
N-15-硫酸アンモニウム	98Atom%	154.1	177.7	184.0	182.0	13,248 *
O-18-水	95Atom%	71.0	81.7	76.0	95.1	42,400 *

メーカーは1985年までがMound Lab.、1986年からはIsotec Co.

\* 1993年の単価はIsotec社の親会社の日本酸素㈱の25g当たりの価格から算出したが硫酸アンモニウムは99Atom%、水は97Atom%の値段である。

我が国で1993年現在、市販されている安定同位体について、ガス状の単体及び化合物及び固体状単体についてその価格と共に、表2.6.4に示した。

表 2.6.3 我が国の N-15 の価格推移 (円/g)

N-15 含有化合物	1965	1982	1987	1993 *
硫酸アンモニウム 99Atom%	30,900	36,000	23,000	13,248*
塩化アンモニウム 99Atom%		42,000	26,000	19,040
尿素 99Atom%		90,000	63,000	36,280
グリシン 99Atom%		80,000	41,000	30,720

\*1993年は日本酸素(株)のカタログ値で 5 gまたは 25 g# 当たりの価格から算出したものであるが、他は国産している昭光通商(株)の価格と思われる。

表 2.6.4 我が国で市販されているガス状安定同位体

核種	化合物名	濃縮度 (ATOM%)	価格/数量 (千円/数量)	核種	化合物名	濃縮度 (ATOM%)	価格/数量 (千円/数量)	
He-3	単体ガス	≥99.8	?	C-12	CO <sub>2</sub> ガス	99.9	186.6/50l	
Ne-20	単体ガス	99.95	69.8/1		CO ガス	99.95	170.3/50l	
Ne-21	単体ガス	90	2,810/500ml		CH <sub>4</sub> ガス	99.9	581.2/25l	
Ne-22	単体ガス	99.9	12,200/1	H-2	CD <sub>4</sub> ガス	99	214.1/25l	
Ar-36	単体ガス	99.5	1,280/dl		N-15	N <sub>2</sub>	99	128/1
Ar-38	単体ガス	95	12,200/1	NH <sub>3</sub>		99.9	86.3/1	
Ar-40	単体ガス	99.95	129/25l	NO <sub>2</sub>		99	200/1	
Kr-78	単体ガス	99	12,700	N <sub>2</sub> O		99	337.5/1	
Kr-80	単体ガス	90	7,900/1	O-16	O <sub>2</sub>	99.98	154.9/25l	
Kr-82	単体ガス	90	1,640/500ml		CO <sub>2</sub>	99.9	287.9/5l	
Kr-83	単体ガス	70	3,070/1		CO	99.93	56.8/1	
Kr-84	単体ガス	90	520/1	O-17	O <sub>2</sub>	99.9	?	
Kr-86	単体ガス	99	463/1	O-18	O <sub>2</sub>	99.98	555.7/5l	
Xe-124	単体ガス	99.9	20,500/500ml		CO <sub>2</sub>	95	196/1	
Xe-126	単体ガス	2	2,510/1		CO	95	123.4/1	
Xe-128	単体ガス	25	?	以下固体状 (他は価格不明)				
Xe-129	単体ガス	80	1,890/1	Li-6	単体金属	95	330.4/10g	
Xe-131	単体ガス	80	3,580/1	Li-7	単体金属	99	182/10g	
Xe-132	単体ガス	60	4,040/1	S-34	単体	90	234/0.5g	
Xe-134	単体ガス	60	4,670/1					
Xe-136	単体ガス	99	7,780/1					

主な参考文献

- (1) ライフサイエンス推進委員会；安定同位体とNMR計測に関する調査報告書、科学技術庁、(1988/3)
- (2) 日本酸素(株)；パンフレット(1993)

## 2.7 安定同位体の核種別特記事項

各文献ごとに核種別のフォーマットを作ることを試みたが、大部分の文献が広範囲の核種について触れており、それぞれの核種についてはあまり記載がないため、文献ごとにフォーマットを作るのは無意味であることがわかった。従って、核種別に調査した全ての文献をまとめて、整理することとして整理した結果を付録にまとめた。

核種別フォーマットを作成するに当たって参照した文献を付録巻末に示した。

### 3. 遠心分離法を適用する場合の課題等

安定同位体分離に遠心分離機を利用する試みは、ロシア<sup>1)</sup>や米国ORNL<sup>2)</sup>で行われているが、規模についてはあまり大きくなく、現状では、試験的に実施しているに留まっているようである。しかし、URENCOが大きな関心を示しているという日本酸素株式会社の情報等もあり、今後、注意深く見守っていく必要があるだろう。以下では、比較的詳しく触れていたORNLの文献<sup>2)</sup>の内容を主に参考として記述した。

#### 3.1 遠心分離法の概要

遠心分離法は、基本的には回転円筒の中にガス流を導入し、そして、静的な中心カラムアセンブリを通して抽出するものである。近代的で高効率の分離装置としての遠心分離機は、分離容量が軸方向の向流によって強められている。遠心分離機の回転速度、ガスインベントリ、分子量、および他のパラメータに関係することであるが、大抵のガスは、運転中の遠心分離機内で、(回転筒の)壁から数cm以内にあるということに注意しなければならない<sup>1)</sup>。

ガス遠心分離法は、軽分子量物を重分子量物から、2つの(または、それ以上の)元素種に働く遠心分離力の差を用いることによって分離するものである。回転筒の頂部に軽分子濃度分が集まり、回転筒の底部に重分子濃度分が集まる。分離容量は、回転筒の軸方向の長さに直接比例する。軽分子濃度分を伴った内部流分は、上部スクープを通して回転筒から抽出される。重分子濃度分を伴った外部流分は、下部スクープを通して回転筒から抽出される。

遠心分離法の分離性能は、次式の関係によって示される。

$$\Delta \propto (M_1 - M_2)^2 L V^4$$

ここで、

$\Delta$  = 分離性能

$(M_1 - M_2)$  = 分離対象種の分子量の差

L = 回転筒の長さ

V = 回転筒の(回転速度)

明らかに、ガス遠心分離法で濃縮される同位体はすべて、元素状と化合物状を問わず、遠心分離機の内部においてガス状でなければならない。そのガスは、298 K (25°C) と 570 K (297°C) の間の温度で安定でなければならない。現在の遠心分離機設計について

言えば、遠心分離機からの漏れ防止上、

ガス分子量 $>70$

ガス蒸気圧 $>666.6 \text{ Pa} / 310\text{K}$

でなければならない<sup>2)</sup>。

### 遠心分離された同位体

各種の同位体が、ORNLのガス遠心分離機を用いて濃縮されている。

$^{34}\text{S}$ は、単一遠心分離機による1回通過で、4.5%の天然分析から10.1%の分析まで濃縮された。 $\text{SF}_6$ が、プロセスガスとして用いられた。

$^{124}\text{Xe}$ が、同様条件の下で、天然分析0.095%から0.56%分析まで濃縮された。この濃縮物を、2回目の遠心分離にかけることによって1.8%に濃縮でき、さらに3回目によって9%の濃縮物を得ることができた。

分離実験において、 $^{136}\text{Xe}$ が、単一遠心分離機による1回の通過で、天然分析8.95%から61.3%に濃縮された。

同様な実験において、 $^{78}\text{Kr}$ が、単一遠心分離機での3回の通過によって、天然分析0.42%から4.56%に濃縮された。 $^{86}\text{Kr}$ は、2回の通過によって、天然分析の17.4%から89%に濃縮された。

## 3.2 遠心分離法への適用性

遠心分離機への適用性は一般に垂鉛、キセノン、クリプトン、カドミウム-114（医療用）等が考えられているが、遠心分離法は、ウラン濃縮で達成された技術レベルが他の産業におけるレベルと比較すると、隔絶したものとなっているので、原理的に適用可能であればかなり優位な点がある筈である。この技術は単に同位体分離だけでなく、液体や気体の高性能遠心分離にも有効であるとして、米国のエネルギー省でも推奨されている。

エネルギー省の見解としては、今後の遠心分離機の応用として、部分使用済燃料のウラン-235濃縮、ウランの不要同位体の除去、蛍光灯産業への水銀-196~201同位体の濃縮利用、環境研究用の硫黄-34、CALUTRON用の粗濃縮原料（窒素、炭素、硫黄、テルル、ニッケル）、宇宙原子炉用のタングステン及びモリブデン同位体、クリプトン-85の分離（ランプ、流量計、リーク検出器、非破壊検査、重合及び医療用研究）、廃棄物からのキセノンの分離・利用（電子管、写真撮影ランプ、麻酔、放射性ヨウ素の製造）、廃棄物からのセシウムの分離が挙げられている。



### 3.3 経済性と需要見込み

安定同位体取扱ディーラーを調査した結果でも、現状で、ディーラーが安価で大量販売を企図している傾向は認められなかった。むしろ、相対価格の高い核種が歓迎されるといった傾向も認められ、特殊試薬の販売という枠に入っているものと思われる。

他のガス拡散法等の既存のウラン濃縮技術でも同様であるが、安定同位体濃縮への遠心分離機の利用には、1トンの以上の需要が必要となろう。

今回調査した範囲内では、同位体分離の技術分野への遠心分離法の寄与は限度があると思われる。ウランのような質量数の大きな核種に対して有効であるが、質量数の小さい核種の分離には不適當と見られている。この点ではむしろレーザー分離法に将来性がある。ただし、他種の混在している質量数が大きく異なる元素（例えば Xe 中の Kr）の除去に遠心分離法が使える。前記の 2.1.3項、2.5節では、化学交換法など他の分離法がライフサイエンスの分野で利用される同位体の生産に適していることを示した。遠心分離法による同位体分離に対する制約は下記の通りである。

- (a) 濃縮すべき目的の核種を含んで、2.1.3 項によれば、処理物質が単体あるいは化合物を問わず、気体であることが必要である。2.4 節には絶対温度 298~570 K の温度範囲で（化学的に）安定であること、蒸気圧が 310 Kで少なくとも 666.6Paはあるべきことの記述がある。
- (b) 重い元素（または化合物）は好都合であり、同じく 2.1.3項によって、軽い元素でも80以上の質量数（または分子量）を持つことが望ましい。ただし、2.4 節の記述によれば、ガス洩れをなくするためには分子量が70以上であることとされている。

しかし、こうした制約は一見して厳しいようであるが、上記のようにORNLのK-25施設の遠心分離機を改造して、キセノン、クリプトン、タンゲステン、モリブデン、硫黄、ゲルマニウム、クロム及び他の同位体分離のため試験を行っている。水素、炭素、窒素、酸素などの軽い単体ガスを除いて、遠心分離法の同位体分離にはなお検討の余地がある。例えば弗化硫黄 SF<sub>6</sub>その他の安定な気体状化合物の個々について、遠心分離機およびカスケードの好適な設計を粗く検討しておくことは意義あることであろう。こうした検討は濃縮技術の専門家でないと技術的に困難であろうが、この報告書の範囲を超えるので、ここでは触れない。

## 参考文献

- 1) A.Tikhomirov, Modern tendencies in the enrichment of stable isotopes and their applications in the USSR and elsewhere, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B70 (1992) 1-4, North-Holland
- 2) W.L.Roberts; Potential Commercial Applications of Centrifuge Technology, ORO EP-150, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A282(1989)

## 4. まとめ及び今後の展開

### 4.1 まとめ

安定同位体は、放射線の危険性がないため、人体や生物等のトレーサーとして利用が盛んになっているが、現状では、まだ大部分が研究機関での利用が多く、需要も限定されている。これには、放射線を測定すれば簡単にトレースできる放射性同位体と比較して、安定同位体をトレースするには大型設備が必要でコストが大きいことが要因になっている。しかし、近年安定同位体の需要がコンスタントに伸びているのは、トレースする技術、すなわち、高精度のNMR分析計や質量分析計が普及し、かつ、分析法も確立したためと思われる。MRIやMRSは今後大規模に展開する可能性があり、これは単なる研究用でなく診断に用いられるだけに今後の需要は大きい。D-GLUCOSEに炭素-13を入れて、クロマトグラフィーのような技術で時間経過と共にD-GLUCOSEが別の化合物に変わるのを追跡するような高度の技術が開発されている。

金属安定同位体は核物理学の実験に広く利用されるが、量的には極めて限定される。原研の溶接部にY-168を混ぜて中性子照射してY-169としてエネルギーの弱い $\gamma$ 線で薄い配管の欠陥を検出する方法が注目されている。

原子力関係では、照射損傷を受けにくい、すなわち、中性子照射によって $\alpha$ 線の放出によるヘリウム脆化を起こしにくい材料、あるいは、放射化しにくい材料とするために、構成元素を安定同位体に代えた材料が望まれる。後者は特に、中性子照射の厳しい核融合に要望が強い。

新規分野としては、酸化物半導体の超伝導に有効であるとのことで実験している研究者もあるようであるが、なお、はっきりしていない。炭酸ガスレーザーは酸素-18を用いるとより強力になるということで研究が続けられている。ダイヤモンドでは熱伝導が改善され半導体基盤用に有望であり、また、硬度も増すとされている。ゲルマニウムも同位体を揃えると熱伝導度が50%増になり、今後半導体材料として注目する必要がある。また、光ファイバーで同位体組成を揃えると、減光率が小さくなる。

### 4.2 今後の展開

#### 4.2.1 国内の状況

我が国の安定同位体の需要は諸外国と比較しても、より急速に増大しているようであるが、一部を除き国内では製造されていないため、殆ど輸入に頼っている。

国内の安定同位体の販売額は1992年で10億円であり、その中で現在国内で3000～4000台まで増えたNMR関連の出荷が50%を占めている。最大手の日本酸素(株)はS Iプロジェクト部を持っており、国内安定同位体需要の80%を販売している。同社はヘリウム-3、窒素-15、炭素-13や希ガス類生産では世界の70%の生産を行っている米国のアイソテック(ISOTEK)社を1986年2月に買収して100%子会社としている。ただし、窒素-15については昭和電工(株)の子会社の昭光通商(株)が理研が開発した化学交換法( $\text{NO}$ ,  $\text{HNO}_3$  交換を利用)で国内で唯一生産している安定同位体として製造している。(生産量が大きければ低温蒸留法が有利)

#### 4.2.2 今後の展望

今後のS Iの伸びはライフサイエンス用のC-13, N-15, O-18等のS Iの需要が伸びると思われる。その意味では今後、特に炭素-13の伸びが最も大きいと思われる。

その他の分野としては、核融合用の重水素やHe-3や、安定同位体ではないが、短寿命放射性核種でサイクロトロン医療用のZn-68, Tl-203(Tl-201に変えて用いる)、また、今後ポジトロンCT用原料用としてサイクロトロンでたたくSPECTが今後発展する可能性がある。これには、サイクロトロンで作ったばかりの短寿命のフッ素-18、酸素-15、炭素-11が用いられるが、これらは原料には安定同位体を用いて加速器で照射して作られるので、注目する必要がある。

また、原子力関係では、今後の高速炉用で色々利点のある窒化物燃料が、通常のN-14の多い窒素を用いると放射性的炭素-14に変わって環境影響が大きくなるため、安定同位体の窒素-15を用いる必要がある。この核種が安価に分離できるようになれば、医学用ともども利用価値は非常に大きくなる。

軽水炉等の熱中性子炉に用いられるジルカロイ被覆管中のジルコニウムは約半分をZr-90が占めるが、これを100%近く濃縮すると中性子吸収が一桁低下し、ウランの消費量が40%減少できるとされている。安価に大量生産が可能となれば有望であろう。

#### 4.3 遠心分離機への適用性

遠心分離機の安定同位体濃縮への利用は米国エネルギー省でも、それに適した元素、或いは、カルトン分離前の粗分離用として考えられており、実験が行われてきた。また、遠心分離ではアメリカよりも1日の長のあるロシアでは現実に同位体生産に使われている

ようである。

現在用いられている安定同位体の製造法としては、低原子番号のガス体では低温蒸留法が主として用いられている。遠心分離法は重元素に有利であるが、従来は需要が小さいこともあって試験的にされている程度と考えてよいであろう。ORNLの文献では、URENCOが安定同位体濃縮に関心を寄せているとの記載があったが、日本酸素(株)職員の話でも、本年春に調査に来たということで、今後の動向に注目する必要がある。しかし、一方、古くからやっていたORNLは最近製造を取り止め、現在はロシアが遠心分離機で重金属を扱っているだけという話もあり、状況の把握のためにより詳細な調査が必要であろう。海外で遠心分離機による同位体濃縮を行いあるいは行ってきた機関が、上記のような安定同位体への利用についてどう考えて、どういうアクションをとろうとしているかを知ることが極めて重要である。

アメリカやロシアで遠心分離濃縮が考えられている核種は、亜鉛、キセノン、クリプトン、カドミウム-114（医療用）等である。遠心分離濃縮には、ある程度の量の需要が前提になるので、需要を喚起するためにある程度製造者側からも、需要の可能性を睨んだPR対策が必要かもしれない。

また、これらの核種にこだわらず、原子力用の金属材料には、安定同位体の利用によって、ヘリウム脆化の防止による照射性能の改善(Ni-58) やクラッドの放射能減少による被ばく低減(Co のみならず Fe-54の除去による Fe-56や Mn-54の抑制)、中性子吸収の減少によるウランの有効利用(Zr-90) 、また逆に、中性子吸収材の性能の飛躍的向上(B-10)等、今後展開を図れる対象も多いので、これらの利用も大いに検討すべきであろう。

## 参考文献一覧

### 1. 文献検索により取り寄せ検討した文献

#### 1.1 安定同位体\* 医学 全 8件の内 3件 (安定同位体 731件)

- (1) Herring A H et al; INC-11 radioisotope production activity, LA-11670-PR  
p. 98-101, 1989
- (2) 森下諦三; S I - NMRの行方, アイソトープニュース No.428, p. 16-18, 1990
- (3) Tracy J G; Status of the isotope enrichment program at Oakridge Natl Lab.  
Nuclear Instrum Methods Phys Res Sect A, Vol.303, No.1, p. 3-8, 1991

#### 1.2 安定同位体\* 医療 全 6件の内 該当なし

#### 1.3 安定同位体\* 食料 全 5件の内 該当なし

#### 1.4 安定同位体\* 農業 全17件の内 2件

- (1) 小山雄生, 清水誠; 放射性トレーサの野外・現場利用の歴史と現状 (II)、NMR  
医学 Vol.37, No. 5, p. 303-311 (1988)
- (2) 須藤まどか; 畜産研究におけるアクチバブルトレーサ法の現状と展望、Isotope  
News (1987年 8月), p. 2-5

#### 1.5 安定同位体\* 漁業 全 2件の内 1件は既出 (4.(1))

#### 1.6 安定同位体\* バイオ 1件 該当なし。

#### 1.7 安定同位体\* 需要 全17件の内 3件

- (1) Hoff, R W; The availability of enriched stable isotopes; present status  
and future prospects., USDOE Rep. UCRL-94416, 14p(1986)
- (2) Zisman M S; National uses and needs for separated stable isotopes in  
physics, chemistry, and geoscience research., USDOE Rep. LBL-14068, 97p(1982)
- (3) DeWitt R; Enriched isotopes applications; Agricultural field, USDOE Rep.  
MLM-2715, 40p(1980)

1. 8 同位体\* 需要 全 3件の内 1件
- (1) Whitehead; Isotope separation in the nuclear power industry.  
Spec. Pub. R Soc Chem, No. 80, p. 287-305, (1990)
1. 9 同位体製造\* 遠心分離 全 7件の内 (但し同位体製造 1815 件)
- (1) Tikhomirov A; Modern tendencies in the enrichment of stable isotopes and their application in the USSR and elsewhere., Nuclear Instrum Methods Phys. Res. Sect B, Vol. 70, No. 1/4, p. 1-4, (1992)
- (2) Erb, D E et al; A national biomedical tracer facility (NBTF), USDOE Rep. CONF-900802-8 12 p, (1990)
- (3) Roberts W L; Gas Centrifugation of research, Nuclear Instrum Methods Phys Res Sect A, Vol. 282, No. 1, p. 271-276, (1989)
2. 動力炉・核燃料開発事業団から提供を受けた資料
- (1) 動燃事業団人形峠事業所; 『遠心法による安定同位体分離に関する調査』(1993)
- (2) ライフサイエンス推進委員会; 安定同位体とNMR計測に関する調査報告書、科学技術庁、(1988/3)
- (3) 野田哲二; 同位体制御材料、金属、1993年 7月号、p. 32-37 (1993)
- (4) 『分離科学ハンドブック』、共立出版、1993年 2月発行(1993)
- (5) A. J. Szady; Report of Foreign Travel of Andrew J. Szady (July 1990)
- (6) Stanislav P. Vesnovskii and Vladimir N. Polynov, Highly enriched isotopes of uranium and transuranium elements for scientific investigation, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B70, p. 9-11, North-Holland(1992)
- (7) E. Bellotti et al; Separation of rare gases from radioactive contaminants by means of an ultracentrifuge, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B62, p. 529-534, North-Holland(1992)
3. 関連雑誌等で得られた資料
- (1) 宍戸文男; 核医学における最近の進歩、原子力学会誌、38巻、8号、p. 678-87(1993)
- (2) 小山睦夫; RIの製造と利用、原子力学会誌、31巻、1号、p. 77~8 (1989)

- (3) 井上修 ポジトロン核種の医学利用 原子力工業、39巻、2号、p.60-63 (1993)
- (4) 小山雄生; 農業環境保全への利用、原子力工業、39巻、2号、p.35-39 (1993)
- (5) 山口彦之; 農業関連分野における放射線利用、原子力工業、39巻、2号、p.29-31 (1993)
- (6) H. Bokelund and J.P. Glatz; Head-end Problems in Reprocessing of Nitride Fuels Containing  $^{14}\text{N}$  or  $^{15}\text{N}$ , Transactions of ENC 86 FORATOMIX, Geneva, 6/1-6/1986, Vol. 4, p. 197

#### 4. 一般参考書

- (1) 清瀬量平訳 (M. Benedict, et al 著); 『同位体分離の化学工学』

原子力化学工学第4分冊 日刊工業新聞社発行 (1984)



## 付 録

### 安定同位体核種別フォーマット

注)

核種は原子番号順に、また同じ原子番号の場合は質量数の軽いものから並べた。

最上段の放射性の欄に記載した数字は、非放射性であれば自然界の存在量、

放射性の核種 (○で記載) は半減期を示した。(s;秒、m;分、h;時間、y;年)

最下欄の文献名は簡略化しており、正式な題目等は巻末の引用文献を参照。

H-2 (D)	元素名：水素	原子番号：1	放射性：非(0.0148%)
製造方法（製造会社） メタン熱拡散；水精留法；水蒸気・水素化学交換法＋水精留法；同左＋電気分解法 （科技厅'88）			
①用途の分野 生化学・薬学・農学・理工学（科技厅'88）			
②用途 ：各種製剤の機構解明、NMR溶媒としての利用、同位体効果利用、土壌水分の挙動究明、原子炉遮蔽材としての利用、有機合成反応機構の解明 （科技厅'88）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態 重水素 重水素化リチウム			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法 磁気閉じ込め型核融合炉の作動物質は完全に電離された重水素とトリチウムの混合プラズマ、レーザーまたは電子ビーム入射型のものでは燃料として重水素とトリチウムまたは Li-6Dを含む小球形のものを用いられる。 （科技厅'88）			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 科学技術庁；安定同位体とNMR計測の調査報告書（1988）			

B-10	元素名：ホウ素	原子番号：5	放射性；非(19.8%)
製造方法（製造会社） 蒸留／化学交換法；イオン交換法（科技厅'88） <span style="float: right;">（科技厅'88）</span>			
①用途の分野 理工学・医学（科技厅'88）			
②用途 原子炉減速材、臓器治療ターゲット（科技厅'88）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態 重水素 重水素化リチウム			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 科学技術庁；安定同位体とNMR計測の調査報告書（1988）			

B-11	元素名：ホウ素	原子番号：5	放射性：非(80.2%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法	
電磁質量法		レーザー法	○（野田 '93） その他
①用途の分野			
原子炉材料（野田 '93）			
②用途			
耐熱材料（野田 '93）			
③使用される同位体の特徴			
中性子によるヘリウム発生の抑制（野田 '93）			
④使用時の化学形態			
BN（野田 '93）			
⑤使用時の物理形態			
固体（野田 '93）			
⑥使用方法			
同位体調整（野田 '93）			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 野田哲二：同位体制御材料，金属，1993年7月号，p.32-37（1993）			

C-11	元素名：炭素	原子番号：6	放射性：○(20.38m)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法	
電磁質量法		レーザー法	○（井上 '93） その他
①用途の分野			
医療（井上 '93）			
②用途			
ポジトロンレーザー（井上 '93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
メチオニン（脳腫瘍や他の癌のアミノ酸代謝）（井上 '93）			
脂肪酸（心臓の脂肪酸の代謝）（井上 '93）			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名			
井上修；ポジトロン核種の医学利用，原子力工業，39巻，2号，p.60-63（1993）			

C-12	元素名：炭素	原子番号：6	放射性：非(98.89%)
製造方法（製造会社） メタン熱拡散（DeWitt '80） CO蒸留、化学交換（DeWitt '80） <span style="float: right;">レーザー法（野田 '93）</span>			
用途の分野 農業（DeWitt '80） 材料（野田 '93）			
②用途 植物の成長、細胞組織、細胞化学（DeWitt '80） 高熱伝導度材料（野田 '93）			
③使用される同位体の特徴 C-12の99.9%濃縮ダイヤモンドは、天然(C-12が99%)のものに比べ、熱伝導度が約1.5倍になる。（野田 '93）			
④使用時の化学形態 CO, CO <sub>2</sub> , BaCO <sub>3</sub> , CH <sub>4</sub> , C.（DeWitt '80） C（ダイヤモンド）（野田 '93）			
⑤使用時の物理形態 各種形態 固体 野田(1993)			
⑥使用方法 トレーサ（DeWitt '80） 同位体調整（野田 '93）			
⑦価格 90%で\$57.40-80.10/g。99%で\$69.20-103.10/g（形態により価格は異なる） <span style="float: right;">（DeWitt '80）</span>			
⑧実績年間使用量 生産量は20-25kg/y（1980会計年度）（DeWitt '80）			
⑨今後の使用量見通し 増加するが、生産量を超えないだろう。（DeWitt '80）			
⑩遠心分離法に対する適用性 可能性あり（DeWitt '80）			
⑪文献名 R. DeWitt; Enriched isotope: Agricultural field, MLM-2715 (1980) 野田哲二; 同位体制御材料, 金属, 1993年7月号, p.32-37 (1993)			

C-13	元素名：炭素	原子番号：6	放射性；非(1.11%)
製造方法（製造会社） CO やメタンの低温蒸留法 メタン熱拡散 （DeWitt '80）			
化学交換法 （科技厅 '88）			
①用途の分野 医学・生化学・薬学 （科技厅 '88） 農業 （DeWitt '80）			
②用途：臨床医学における診断および病状と代謝異常の解明、臨床検査（呼気テスト） NMR イメージング、GC-MS による構造解析、生体における物質の吸収、 同化代謝排泄の解明、動物栄養におけるエネルギー利用の解明 （科技厅 '88） 科学技術庁(1988) 植物の成長 、細胞組織、細胞化学 （DeWitt '80）			
③使用される同位体の特徴 98 atom % （科技厅 '88）			
④使用時の化学形態： 炭酸バリウム （科技厅 '88）8） CO, CO <sub>2</sub> , BaCO <sub>3</sub> , CH <sub>4</sub> , C, （DeWitt '80）			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法 トレーサ （DeWitt '80）			
⑦価格：90% で\$57.40-80.10/g。 99%で\$69.20-103.10/g （形態により価格は異なる） （DeWitt '80）			
⑧実績年間使用量；生産量は20-25kg/y （1980会計年度）（DeWitt '80）			
⑨今後の使用量見通し 増加するが、生産量を超えないだろう。 （DeWitt '80）			
⑩遠心分離法に対する適用性： 可能性あり （DeWitt '80）			
⑪文献名 R. DeWitt; Enriched isotope: Agricultural field, MLM-2715 (1980) 科学技術庁；安定同位体とNMR計測の調査報告書（1988）			

C-14	元素名：炭素	原子番号：6	放射性：○(5730y)
製造方法（製造会社） ガス拡散法 電磁質量法		遠心法 レーザー法	その他
①用途の分野 農業（小山'93）			
②用途 オゾンについて作物の光合成におよぼす影響の解明。（小山'93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 小山雄生；農業環境保全への利用，原子力工業，39巻，2号，p.35-39（1993）			



N-13	元素名：窒素	原子番号：7	放射性：○(9.96m)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法	その他	サイクロトロン (井上 '93)
電磁質量法	レーザー法		
①用途の分野			
農業 (小山 '93)			
医療 (井上 '93)			
②用途			
オゾン層破壊や温暖化ガスなど、地球規模での環境変化と関係のある農耕地からの窒素ガス、窒素酸化物はどの研究。(小山 '93)			
ポジトロン・トレーサー (井上 '93)			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
アンモニア（心臓循環代謝）（井上 '93）			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
ポジトロン・エミッション・トモグラフィ（PET）（井上 '93）			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名			
小山雄生；農業環境保全への利用，原子力工業，39巻，2号，p.35-39（1993）			
井上修；ポジトロン核種の医学利用，原子力工業，39巻，2号，p.60-63（1993）			

N-14	元素名：	原子番号：7	放射性：非(99.63%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法	
電磁質量法	レーザー法		その他 NO蒸留 (DeWitt '80)
①用途の分野			
農業 (DeWitt '80)			
②用途			
トレーサ (DeWitt '80)			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> (水溶液), NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub> (固体), (DeWitt '80)			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
\$148.90-205.30/kg (1980会計年度) (DeWitt '80)			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名			
R. DeWitt; Enriched isotope applications: Agricultural field, MLM-2715 (1980)			

N-15	元素名：窒素	原子番号：7	放射性：非(0.366%)
製造方法（製造会社） ガス拡散法 蒸留法 化学交換法 イオン交換法 熱拡散法 （科技厅'88） 電磁質量法 レーザー法 その他：NOの低温蒸留 （DeWitt'80）			
①用途の分野 農業Robert(1980) 農学・医学・生化学・環境科学 （科技厅'88） 窒素肥料の行方、正確な肥料吸収率測定や土壤中に有効化した地力成分の総量を推定 （小山'93）			
②用途 土壌、肥料での窒素研究にトレーサとして使用。（DeWitt'80） 植物における物質の吸収、転流・代謝・生理の解明土壌肥料分野における窒素の役割 水産海洋分野における窒素の動向、畜産における栄養生理の機構解明、 果樹・林業・茶における栄養と生産の関係、 動物栄養における蛋白質の利用、生体における物質の吸収分布・代謝排泄の解明、 代謝産物の構造解析、動植物に対する環境汚染。（科技厅'88）			
③使用される同位体の特徴 同位体の希釈が起こりうる長期実験に有効。（DeWitt'80） 99.9 atom % (1957年、理研）（科技厅'88）			
④使用時の化学形態 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ , $\text{KNO}_3$ , $\text{NH}_3$ , $\text{HNO}_3$ , （DeWitt'80） 硫酸アンモニウム、塩化アンモニウム、尿素、グリシン （科技厅'88）8）			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法 トレーサ（DeWitt'80）			
⑦価格 尿素 63 k¥/g～硫酸アンモニウム 23 k¥/g （99 atom %, 1987年）（科技厅'88） N-15, 40% で\$64.30/g. N-15, 98%で\$99.80/g （1980 会計年度価格）（DeWitt'80）			
⑧実績年間使用量 生産量は15-20kg/y （DeWitt'80）			
⑨今後の使用量見通し 増大する。（DeWitt'80）			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 科技厅；安定同位体とNMR計測に関する調査報告書(1988) R. DeWitt; Enriched isotope applications: Agricultural field, MLM-2715 (1980) 小山雄生；農業環境保全への利用，原子力工業，39巻，2号，p.35-39 (1993)			

0-15	元素名：酸素	原子番号：8	放射性：○(1.22s)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法	
電磁質量法		レーザー法	その他
①用途の分野			
②用途 ポジトロン・トレーサ（井上'93）（宍戸'93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態 単体、二酸化炭素、水（脳血流量、酸素代謝）（井上'93） 水（心臓血流量）（井上'93）			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法 ポジトロンエミッショントモグラフィ（PET）（井上'93）（宍戸'93）			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 井上修 ポジトロン核種の医学利用 原子力工業、39巻、2号、p.60-63(1993) 宍戸文男；核医学における最近の進歩、原子力学会誌、38巻、8号、p.678-87(1993)			

0-16	元素名：酸素	原子番号：8	放射性：非(99.76%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法	その他	NO, H <sub>2</sub> O蒸留 (DeWitt '80)
電磁質量法	レーザー法		
①用途の分野			
農業 (DeWitt '80)			
②用途			
トレーサ (DeWitt '80)			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名			
R. DeWitt; Enriched isotope applications: Agricultural field, MLM-2715 (1980)			

O-17	元素名：酸素	原子番号：8	放射性：非 (0.038%)
製造方法 (製造会社)			
ガス拡散法	レーザー法	遠心法	水蒸留法 (科技厅 '88)
電磁質量法		その他	NO, H <sub>2</sub> O蒸留 (DeWitt '80)
①用途の分野			
農業 (DeWitt '80)			
医学・生化学・理工学 (科技厅 '88)			
②用途			
核磁気共鳴、医療、超伝導セラミックス特性研究 (Tikhomirov '92)			
トレーサ (DeWitt '80)			
脳代謝への適用、短寿命R Iのターゲット、炭化水素合成機構のトレーサー実験 (科技厅 '88)			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
水 (科技厅 '88)			
⑤使用時の物理形態			
50% 以上の濃縮 (Tikhomirov '92)			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名: A. Tikhomirov, Modern tendencies in stable isotopes in USSR, Nuclear Instr. & Methods in Phys. Res., B70, 1-4, North Holland (1992)			
科技厅; 安定同位体とNMR計測に関する調査報告書(1988)			
R. DeWitt; Enriched isotope applications: Agricultural field, MLM-2715 (1980)			

0-18	元素名：酸素	原子番号：8	放射性：非(0.204%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法	水蒸留法	(科技厅'88)
電磁質量法	レーザー法	その他 NO, H <sub>2</sub> O, D <sub>2</sub> O蒸留	(DeWitt'80)
①用途の分野			
農業 (DeWitt'80)			
医学・生化学・理工学 (科技厅'88)			
②用途			
トレーサ (DeWitt'80)			
脳代謝への適用、短寿命R Iのターゲット、炭化水素合成機構のトレーサー実験			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
水 (科技厅'88)			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名			
科技厅；安定同位体とNMR計測に関する調査報告書(1988)			
R. DeWitt; Enriched isotope applications: Agricultural field, MLM-2715 (1980)			

F-18	元素名：フッ素	原子番号：9	放射性：○(109.8m)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法		
電磁質量法	レーザー法	その他	
①用途の分野			
医学（井上 '93）			
②用途			
ポジトロンレーザー（井上 '93）（宍戸 '93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
水 科学技術庁(1988)			
デオキシグルコース（脳、心臓や癌の糖代謝）（井上 '93）			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
ポジトロンエミッション・トモグラフィ（PET）（井上 '93）（宍戸 '93）			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 科技厅			
井上修；ポジトロン核種の医学利用		原子力工業(1993)、Vol.39, no.2,	
宍戸文男；核医学における最近の進歩		原子力学会誌(1993)、Vol.35, No.8.	



Ne-22	元素名：ネオン	原子番号：10	放射性；非(9.22%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	0	遠心法	
電磁質量法		レーザー法	その他
①用途の分野 医学（科技厅'88）			
②用途 短寿命RIのターゲット（科技厅'88）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 科技厅；安定同位体とNMR計測に関する調査報告書(1988)			

Si-28~30	元素名：ケイ素	原子番号：14	放射性：非
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法		
電磁質量法	レーザー法○(Si <sub>2</sub> F <sub>4</sub> )	(野田 '93)	その他
①用途の分野			
その他 (野田 '93)			
②用途			
③使用される同位体の特徴			
天然Si: <sup>28</sup> Si; 92.2%, <sup>29</sup> Si; 4.7%, <sup>30</sup> Si; 3.1% ⇒約50%; <sup>28</sup> Si, <sup>29</sup> Si, 99.7% <sup>28</sup> Si (ケイ素の同位体では <sup>31</sup> Siのみ放射性) (野田 '93)			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
同位体調整 (野田 '93)			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
適用可能と思われる。			
⑪文献名			
野田哲二; 同位体制御材料, 金属, 1993年 7月号, p. 32-37 (1993)			

P-32	元素名：磷	原子番号：15	放射性：○(14.28d)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法	
電磁質量法	レーザー法		その他
①用途の分野 農業（小山'88）			
②用途 磷肥料の行方、正確な肥料吸収率測定や土壌中に有効化した地力成分の総量を推定。 （小山'88）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 小山雄生，清水誠；放射性トレーサの野外・現場利用の歴史と現状，RADIOISOTOPES， 37号，p.303-311(1988)			

S-34	元素名：硫黄	原子番号：16	放射性：非(4.21%)
製造方法（製造会社） ガス拡散法 電磁質量法			
遠心法 ○ (Roberts' 89) その他 CS <sub>2</sub> 熱拡散、(SO <sub>2</sub> / 次亜硫酸塩化学交換) (DeWitt '80)			
①用途の分野 農業 (DeWitt '80) 環境科学 (科技厅 '88)			
②用途 トレーサ (DeWitt '80) 大気汚染の影響評価 (科技厅 '88)			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法 <sup>34</sup> Sは、単一遠心分離機による1回通過で、4.5%の天然分析から10.1%の分析まで濃縮された。SF <sub>6</sub> が、プロセスガスとして用いられた。(Roberts' 89)			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 R. DeWitt; Enriched isotope applications: Agricultural field, MLM-2715 (1980) W. L. Roberts; Nucl. Instr. & Meth. Phys. Res. A282, 271-276 (1989)			

S-35	元素名：硫黄	原子番号：16	放射性：○(87.4d)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法	
電磁質量法	レーザー法		その他
①用途の分野 農業（小山'93）			
②用途 大気汚染物質が農作物におよぼす影響の解明。（小山'93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 小山雄生；農業環境保全への利用，原子力工業，Vol. 39, No. 2, p. 35-39 (1993)			

C 1 - 3 5, C 1 - 3 7 元素名: 塩素		原子番号: 17	放射性: 非
製造方法 (製造会社)			
ガス拡散法	レーザー法	遠心法	その他 CH <sub>3</sub> Cl 熱拡散 (DeWitt '80)
電磁質量法			
①用途の分野			
農業 (DeWitt '80)			
②用途			
トレーサ (DeWitt '80)			
③使用される同位体の特徴			
C 1 - 3 5	天然で 75.77%	(DeWitt '80)	
C 1 - 3 7	天然で 24.23%	(DeWitt '80)	
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名			
R. DeWitt; Enriched isotope applications: Agricultural field, MLM-2715 (1980)			

Ca-44	元素名：カルシウム	原子番号：20	放射性：非(2.09%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法	
電磁質量法	レーザー法		その他
①用途の分野 医学（科技厅'88）			
②用途			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 科技厅；安定同位体とNMR計測に関する調査報告書(1988)			

Ca-48	元素名：カルシウム	原子番号：20	放射性：非(0.19%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法		
電磁質量法	レーザー法	その他	
①用途の分野 物理学 (Tikhomirov '92)			
②用途 ニュートリノの質量測定等 (Tikhomirov '92) 核構造の影響を調べる (Zisman '92)			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法 数グラムを必要とする。 (Tikhomirov '92)			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 A.Tikhomirov, Modern tendencies in stable isotopes in USSR, Nuclear Instr. & Methods in Phys. Res., B70, 1-4, North Holland (1992) M. S. Zisman; Uses & needs for stable isotopes in physics etc. LBL-14068 (1982)			



Fe-57	元素名：鉄	原子番号：26	放射性：非(2.15%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法	レーザー法○（野田 '93）	その他
電磁質量法			
①用途の分野			
原子炉材料その他（野田 '93） （野田 '93）			
②用途			
構造材料（野田 '93）			
③使用される同位体の特徴			
低放射化材料（ <sup>53</sup> Cr, <sup>57</sup> Fe, <sup>54</sup> Ni, <sup>97</sup> Mo/ 低放射化ステンレス鋼 — <sup>57</sup> Feの除去） （野田 '93）			
④使用時の化学形態			
ステンレス鋼（野田 '93）			
⑤使用時の物理形態			
固体（野田 '93）			
⑥使用方法			
同位体調整（野田 '93）			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名			
野田哲二；同位体制御材料，金属，1993年7月号，p.32-37（1993）			

Co-60	元素名：コバルト	原子番号：27	放射性：○(5.27y)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法		
電磁質量法	レーザー法	その他	
①用途の分野 農業（山口'93）			
②用途 品種改良（突然変異による、たとえば、今後は環境ストレスに対する耐性の獲得、含有成分に関する品質の改善など）。ジャガイモの発芽防止。（山口'93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し 発芽防止は、多くの食品について実用化研究が終了し、健全生に問題がないことが確認されているが、一部消費者による反対や食品保存技術の発達などで実用化されていない。（山口'93）			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 山口彦之；農業関連分野における放射線利用，原子力工業，Vol. 39, No. 2, p. 29-31(1993)			

Si, Kr, Os 同位体	元素名 :	原子番号 :	放射性 :
製造方法 (製造会社)			
ガス拡散法	遠心法		
電磁質量法	レーザー法	その他	
①用途の分野			
②用途 度量衡の基礎物理定数の正確な測定と標準化 需要が増加している。(Tikhomirov' 92)			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名: A.Tikhomirov, Modern tendencies in stable isotopes in USSR, Nuclear Instr. & Methods in Phys. Res., B70, 1-4, North Holland (1992)			

Ge-74	元素名：ゲルマニウム	原子番号：32	放射性：非(36.5%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法	レーザー法○	（野田 '93）
電磁質量法			その他
①用途の分野			
その他（野田 '93）			
②用途			
③使用される同位体の特徴			
Ge-74 の95.8% 濃縮物は、通常のものに比較し熱伝導率が約3 倍になる。 （野田 '93）			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
固体（野田 '93）			
⑥使用方法			
同位体調整（野田 '93）			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名			
野田哲二；同位体制御材料，金属，1993年 7月号，p. 32-37（1993）			

As - 74	元素名：砒素	原子番号：33	放射性：○(17.78d)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法		
電磁質量法	レーザー法	その他	
①用途の分野 農業（小山'93）			
②用途 Na, Ca, Al, Feなど各種の砒素化合物で水稻の栽培実験をおこない、砒素化合物と障害生との関連性をしらべた。（小山'93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態 Na, Ca, Al, Feなど各種の砒素化合物。（小山'93）			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 小山雄生：農業環境保全への利用，原子力工業，Vol. 39, No. 2, p. 35-39 (1993)			

Kr-78	元素名：クリプトン	原子番号：36	放射性：非 (0.35%)
製造方法 (製造会社) ガス拡散法 電磁質量法			
遠心法: ○ (Roberts '89) レーザー法                      その他			
①用途の分野			
②用途			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法 $^{78}\text{Kr}$ は、単一遠心分離機での3回の通過によって、天然値の0.42%から4.56%に濃縮された。 <span style="float: right;">(Roberts '89)</span>			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性    適用済			
⑪文献名: W. L. Roberts; Nucl. Instr. & Meth. Phys. Res. A282, 271-276 (1989)			

Kr-85	元素名：クリプトン	原子番号：36	放射性：○ (10.72y)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法：○ (Tikhomirov '92)	
電磁質量法		レーザー法                      その他	
①用途の分野 長寿命放射性核種の除去 (Tikhomirov '92)			
②用途			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性    適用済    (Tikhomirov '92)			
⑪文献名：                      A.Tikhomirov, Modern tendencies in stable isotopes in USSR, Nuclear Instr. & Methods in Phys, Res., B70, 1-4, North Holland (1992)			

Kr-86	元素名：クリプトン	原子番号：36	放射性：非（17.3%）
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法：○（Roberts' 89）	
電磁質量法		レーザー法                      その他	
①用途の分野			
②用途			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法 $^{86}\text{Kr}$ は、2回の遠心分離機通過によって、天然分析の17.4%から89%に濃縮された。 (Roberts' 89)			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性    適用済    (Roberts' 89)			
⑪文献名： W. L. Roberts; Nucl. Instr. & Meth. Phys. Res. A282, 271-276 (1989)			



Rb-82	元素名：ルビジウム	原子番号：37	放射性：○(1.25m)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法	レーザー法○（井上 '93）	その他
①用途の分野 医学（井上 '93）			
②用途 心臓におけるカチオンの取り込み（井上 '93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法 ポジトロンエミッショントモグラフィ（PET）（井上 '93）			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 井上修；ポジトロン核種の医学利用，原子力工業，39巻，2号，p.60-63（1993）			

Zr-90	元素名：ジルコニウム	原子番号：40	放射性：非(51.5%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法	レーザー法 ○（野田 '93）	その他
電磁質量法			
①用途の分野			
その他（野田 '93）			
②用途			
耐放射線材料（野田 '93）			
③使用される同位体の特徴			
中性子吸収断面積の激減（Zr-90を100%近くまで濃縮すると、天然の場合に比べ中性子吸収断面積が約1/10になる）（野田 '93）			
④使用時の化学形態			
ジルカロイ合金（野田 '93）			
⑤使用時の物理形態			
固体（野田 '93）			
⑥使用方法			
同位体調整（野田 '93）			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名			
野田哲二；同位体制御材料，金属，1993年7月号，p.32-37（1993）			

Zr-92	元素名：ジルコニウム	原子番号：40	放射性：非(17.1%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法		
電磁質量法	レーザー法○	（野田 '93）	その他
①用途の分野 その他 野田(1993)			
②用途			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態 固体			
⑥使用方法 同位体調整 （野田 '93）			
⑦価格 99.9% 濃縮のジルコニウム-92 1 kgを得るのに約20万円と見積もられている。 （野田 '93）			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 野田哲二；同位体制御材料，金属，1993年 7月号，p. 32-37 (1993)			

Cd-115m	元素名：カドミウム	原子番号：48	放射性：○(44.8d)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法		
電磁質量法	レーザー法	その他	
①用途の分野 畜産業（小山'93）			
②用途 カドミウムの家畜体内代謝と、ミルク、肉、卵などへの移行をしらべる。カドミウムの大部分は糞として体外に排出されるが、体内に取り込まれた分は肝臓、腎臓に蓄積し、その排出にはかなり年月を要すること、また微量であるがミルクへも移行することがわかった。（小山'93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 小山雄生；農業環境保全への利用，原子力工業，39巻，2号，p.35-39（1993）			

I-131	元素名：沃素	原子番号：53	放射性：○(8.04d)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法	
電磁質量法	レーザー法		その他
①用途の分野 畜産業（小山'93）			
②用途 原子炉障害が発生して、ミルクに移行する沃素の挙動をしらべる。I-131で汚染した牧草を食べた乳牛でも、1週間後のミルクではかなり安全であることがわかった（小山'93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 小山雄生；農業環境保全への利用，原子力工業，39巻，2号，p.35-39（1993）			

Xe-124, 126 元素名:キセノン 原子番号:54 放射性:非(0.096%)		
製造方法(製造会社)		
ガス拡散法	遠心法	
電磁質量法	レーザー法	その他
①用途の分野		
②用途 医療用。Xe-124 (天然存在度は0.10%)からXe-123を作る。Xe-126 (同、0.09%)では (n, $\gamma$ ) 反応で Xe-127 を作る。(Tikhomirov'92)		
③使用される同位体の特徴		
④使用時の化学形態		
⑤使用時の物理形態 99% 以上に濃縮。(Tikhomirov'92)		
⑥使用方法 <sup>124</sup> Xe が、同様条件の下で、天然分析 0.095%から0.56%分析まで濃縮された。この濃縮物を、2回目の遠心分離にかけることによって1.8%に濃縮でき、さらに3回目によって9%の濃縮物を得ることができた。(Roberts'89)		
⑦価格		
⑧実績年間使用量		
⑨今後の使用量見通し		
⑩遠心分離法に対する適用性		
⑪文献名: A.Tikhomirov, Modern tendencies in stable isotopes in USSR, Nuclear Instr. & Methods in Phys. Res., B70, 1-4, North Holland (1992) W.L.Roberts; Nucl. Instr. & Meth. Phys. Res. A282, 271-276 (1989)		

Xe-136	元素名：キセノン	原子番号：54	放射性：非 (8.9%)
製造方法 (製造会社)			
ガス拡散法：○ (Tikhomirov' 92)		遠心法：○ (Roberts' 89)	その他
電磁質量法		レーザー法	
①用途の分野			
②用途 二重ベータ崩壊と太陽のニュートリノ発散度研究 (Tikhomirov' 92)			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法 イオンチェンバー(Xe-136 で満たし、Mo-100を箔として使用) (Tikhomirov' 92) <sup>136</sup> Xe が、単一遠心分離機による1回の通過で、天然分析8.95%から61.3%に濃縮された。(Roberts' 89)			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名： A.Tikhomirov, Modern tendencies in stable isotopes in USSR, es Nuclear Instr. & Methods in Phys, Res., B70, 1-4, North Holland (1992) nd W.L.Roberts; Nucl. Instr. & Meth. Phys. Res. A282, 271-276 (1989)			

Eu-151	元素名：ユーロビウム	原子番号：63	放射性：非(47.9%)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法	遠心法	レーザー法	その他
電磁質量法			
①用途の分野 漁業、農業。（山口'93）			
②用途 サケに与えると、耳石、魚鱗などに蓄積する。このEuは原子炉内で放射化されるので帰ってくる比率などを調べることができる。また農薬の散布状況調査、地中での作物の根活力の測定に応用できる。（山口'93）			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 山口彦之；農業関連分野における放射線利用，原子力工業，39巻，2号，p.29-31 (1993)			



Hg-203	元素名：水銀	原子番号：80	放射性：○(46.8d)
製造方法（製造会社）			
ガス拡散法		遠心法	
電磁質量法	レーザー法		その他
①用途の分野 農業 (小山 '93)			
②用途 フェニール酢酸水銀の薬効を調べるため。(水銀は穂にも移行することがわかり、同農薬の使用禁止の有力な根拠となる) 小山(1993) (小山 '93)			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態 フェニール酢酸水銀 (小山 '93)			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名 小山雄生；農業環境保全への利用，原子力工業，Vol. 39, No. 2, p. 35-39 (1993)			

Si, Kr, Os 同位体	元素名 :	原子番号 :	放射性 :
製造方法 (製造会社)			
ガス拡散法	遠心法		
電磁質量法	レーザー法	その他	
①用途の分野			
②用途 度量衡の基礎物理定数の正確な測定と標準化 需要が増加している。(Tikhomirov'92)			
③使用される同位体の特徴			
④使用時の化学形態			
⑤使用時の物理形態			
⑥使用方法			
⑦価格			
⑧実績年間使用量			
⑨今後の使用量見通し			
⑩遠心分離法に対する適用性			
⑪文献名: A.Tikhomirov, Modern tendencies in stable isotopes in USSR, Nuclear Instr. & Methods in Phys. Res., B70, 1-4, North Holland (1992)			

データシート引用文献

- 1) ライフサイエンス推進委員会；安定同位体とNMR計測に関する調査報告書，科学技術庁（1988/3）
- 2) 野田哲二；同位体制御材料，金属，1993年7月号，p. 32-37（1993）
- 3) 井上修 ポジトロン核種の医学利用 原子力工業，39巻，2号，p. 60-63（1993）
- 4) Robert DeWitt, Enriched isotope applications: Agricultural field, Monsanto, MLM-2715 (June 9, 1980)
- 5) 小山雄生；農業環境保全への利用，原子力工業，39巻，2号，p. 35-39（1993）
- 6) 山口彦之；農業関連分野における放射線利用，原子力工業，39巻，2号，p. 29-31（1993）
- 7) 森下諦三；S I - NMRの行方，アイソトープニュース，2月号，p. 16-18（1990）
- 8) 宍戸文男；核医学における最近の進歩，原子力学会誌，38巻，8号，p. 678-87（1993）
- 9) A. Tikhomirov, Modern tendencies in the enrichment of stable isotopes and their applications in the USSR and elsewhere, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B70, p. 1-4, North-Holland (1992)
- 10) 小山雄生，清水誠；放射性トレーサの野外・現場利用の歴史と現状（II），RADIOISOTOPES, 37, p. 303-311（1988）
- 11) A. H. Herring, R. M. Lopez, R. A. Mitchell, M. A. Montoya, D. C. Moody, M. A. Ott, C. P. Padilla, M. Peepies, K. E. Peterson, D. R. Phillips, L. M. Schneider, F. H. Seurer, R. C. Staroski, F. J. Steinkruger, W. A. Taylor, and D. H. Vigil; Radioactive Production, RESEARCH, LA 11670-PR, p. 98-101（1989）
- 12) Stanislav P. Vesnovskii and Vladimir N. Polynov; Highly enriched isotopes of uranium and transuranium elements for scientific investigation, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B70, p. 9-11, North-Holland (1992)
- 13) 須藤まどか；畜産研究におけるアクチバブルトレーサ法の現状と展望，Isotope News, p. 2-5（1987年8月）
- 14) Michael S. Zisman; National uses and needs for separated stable isotopes in physics, chemistry, and geoscience research, LBL-14068（1982）

- 小山雄生；農業環境保全への利用，原子力工業，39巻，2号，p. 35-39 (1993)
- 井上修；ポジトロン核種の医学利用，原子力工業，39巻，2号，p. 60-63 (1993)  
(DeWitt '80)
- R. DeWitt; Enriched isotope applications: Agricultural field, MLM-2715 (1980)  
(科技厅 '88)
- 科技厅；安定同位体とNMR計測に関する調査報告書(1988)  
(井上 '93) (宍戸 '93)
- 宍戸文男；核医学における最近の進歩、原子力学会誌、38巻、8号、p. 678-87(1993)
- A. Tikhomirov, Modern tendencies in stable isotopes in USSR,  
Nuclear Instr. & Methods in Phys. Res., B70, 1-4, North Holland (1992)
- 科技厅；安定同位体とNMR計測に関する調査報告書(1988)
- 野田哲二；同位体制御材料，金属，1993年7月号，p. 32-37 (1993)
- W. L. Roberts; Nucl. Instr. & Meth. Phys. Res. A282, 271-276 (1989)
- M. S. Zisman; Uses & needs for stable isotopes in physics etc. LBL-14068 (1982)
- 小山雄生，清水誠；放射性トレーサの野外・現場利用の歴史と現状，RADIOISOTOPES,  
37号，p. 303-311(1988)