

PNC TN1420 93-009

公 開 資 料

93AN-3000D-0010C

宇宙物理，素粒子物理，核医学，
量子科学等における安定同位体の利用

1993年7月

動力炉・核燃料開発事業団

核燃料施設計画部

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。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to : Technical
Evaluation and Patent Office Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

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

宇宙物理, 素粒子物理, 核医学, 量子科学等における
安定同位体の利用

山口大美, 須藤 収,*¹
米川 茂,*² 矢戸 弓雄*¹
和田 一洋*²

要 旨

水素, 炭素, 窒素といった軽元素の同位体は, 原子力, 医学, 生物学, 農業, 化学分析等広い分野にわたって利用されており, 大量に供給する体制も整っている。一方中, 重元素の同位体は利用分野が限定されており, また必ずしも商業ベースの供給体制が確立しているわけではないのが実情である。ここでは天体物理学, 素粒子物理学、医学（診断）等の分野での中, 重元素の安定同位体の利用状況について述べる。

* 1 動力炉・核燃料開発事業団

* 2 京都大学

宇宙物理，素粒子物理，核医学，量子科学等
における安定同位体利用

動燃事業団 山口大美，須藤 収，
米川 茂，矢戸弓雄
京都大学 和田一洋

水素，炭素，窒素といった軽元素の同位体は，原子力，医学，生物学，農業，化学分析等広い分野にわたって利用されており，大量に供給する体制も整っている。一方中，重元素の同位体は利用分野が限定されており，また必ずしも商業ベースの供給体制が確立しているわけではないのが実情である。ここでは天体物理学，素粒子物理学、医学（診断）等の分野の中で，重元素の安定同位体の利用状況について述べる。

1. 天体物理、素粒子物理研究での同位体利用

(1) 太陽ニュートリノ観測における同位体利用

太陽は中心部で起きる核融合反応によって，膨大なエネルギーを発生しているが，この反応過程において様々なベータ崩壊反応とニュートリノの放出がある

(1) 。地球表面に達するニュートリノのほとんどすべては何の痕跡も残さずに地球を貫通するが、わずかに 10^{-14} の割合が地球内部で吸収される。従って、太陽ニュートリノを検出するには大量の物質を使い、適切な反応を選んで長期の期間をかけて観測しなければならない。

太陽ニュートリノの検出にはニュートリノと塩素原子との反応やガリウム原子との反応によって生じるアルゴンやゲルマニウムを放射化学的手法によって分析する方法が採用されている。 ^{37}Cl を使用する測定法は(1)の反応のしきい値が0.814MeVなので、主に ^8B の β 崩壊で生ずる比較的エネルギーの高いニュートリノに感度がある。一方 ^{71}Ga を用いる測定法はあらゆる過程からのニュートリノに感度があり、特にpp反応による低エネルギーのニュートリノを検出できる。

1970年からディビスらがアメリカのホームステーク金鉱の地下において行われている太陽ニュートリノの観測では、テトラクロロエチレン (C_2Cl_4)を615トン使用している(2)。塩素の量は525トンで ^{37}Cl は天然には24.47%含まれており、約128トンの ^{37}Cl が

使用されたことになる。ガリウム原子を用いた実験では、旧ソビエト連邦のバクサンニュートリノ観測所で行われているSAGE実験や、イタリアのグランサッソでの実験(Gallex)がある。これらの実験では30トンのガリウムが金属または塩化物として使用された。天然のガリウム中の ^{71}Ga の存在比は39.9%であるから、約12トンの ^{71}Ga が含まれている。このような実験において、塩素やガリウムを全て ^{37}Cl あるいは ^{71}Ga に置き換えることができれば、より高感度な測定が可能となるであろう。東大宇宙線研究所 神岡地下観測所では水チェレンコフ型検出器を用いた実験が行われており、カナダのSNO計画では、重水を用いている。重水を用いると、 ^8B の β 崩壊で生ずるニュートリノの反応率が軽水に比べて10倍ぐらいになる。また、 ^{11}B を含む液体シンチレーター検出器を用いるBOREX計画や液体アルゴンを用いるICARUS計画などがある。

(2) 二重 β 崩壊実験における同位体利用

二重 β 崩壊($\beta\beta$)は原子核内の二つの核子または二つのクォークがベータ崩壊して原子番号が二つ異なった原子核になる現象である。二重 β 崩壊にはニュー

トリノが放出されるものと放出されないものがある。

二重 β 崩壊実験はニュートリノの性質に係わる以下の問題に対し、例えばニュートリノの質量の有無に関して、感度のよい検証を与えると考えられている⁽⁴⁾。表7.1に示すような中、重元素の同位体が二重 β 崩壊を起こす β 線源として使用されてきた。

1991年に江尻らが ^{100}Mo のニュートリノを伴う二重 β 崩壊の直接測定に成功した⁽⁵⁾。高感度素粒子核分光器 (ELEGANTS V号) と呼ばれる装置は、11連のシリコン半導体検出器と10枚の ^{100}Mo 濃縮金属箔からなる小型多連検出器である。バックグラウンドの比較補正用の天然の Mo 約100 gと共に94.5%に濃縮された ^{100}Mo 約100 gが使用された。表7.1の同位体のうち Ge , Ca , Cd , Te 及び Xe は、二重 β 崩壊を起こす β 線源であるとともに自己吸収のない β 線検出器としても使用されている。濃縮された同位体試料を使用して二重 β 崩壊実験を行うことは、より高感度な測定が可能となる利点がある。しかし、比較的高濃縮の同位体が数100g~Kgのオーダーで必要となるため、この分野の進展はいかに安価にこれらの同位体が

入手できるかにかかっているといえる。

2. 核医学診断における同位体利用

核医学診断技術はX線CT (Computed Tomography)を初めとして、めざましい発展をとげた。最近では短寿命の γ 線放出核種の放射性薬剤を被検者に投与し、体外の γ 線検出器により放射能分布の時間変化を三次元的に測定することにより、臓器・組織の機能の計測や診断を行う方法が注目されており、陽電子放出核種を薬剤として陽電子消滅による2個の消滅 γ 線を同時計測するPET(Positron Emission Tomography)と、 γ 線放出核種を薬剤として、放出 γ 線を計測するSPECT(Single Photon Emission Tomography)の二種類の方法がある。

使用される放射性同位体はほとんどが加速器を使用して製造されるが、核反応のターゲットとして天然同位体組成の元素を用いた場合、共存同位体に同時に種々の核反応が起き、比放射能の高い放射性物質が生成し、被ばく量の点から薬剤として投与できない場合がある。このような場合は高濃縮の安定同位体をターゲ

ットとして使用しなければならない。

生態内での挙動がカリウムと非常によく似ていることから、心筋局所の血流分布測定等に使用される ^{201}Tl (3.044d, EC100%) は濃縮度98.6%の ^{202}Hg (天然の存在率: 29.8%) の (p, 2n) 反応によるか、濃縮度96.60%の ^{203}Tl (天然の存在率: 29.5%) の (p, 3n) 反応で生成する ^{201}Pb (9.4h, EC>99%) をジェネレーターとして製造されている⁽¹⁷⁾。腫瘍診断のために使用される ^{67}Ga (78.2h, EC100%) は高濃縮の ^{68}Zn (天然の存在率: 4.11%) の (p, n) 反応によって製造されている。甲状腺機能検査をはじめとして広い用途のある ^{123}I (13.2h, EC100%) は濃縮度89.3%の ^{123}Te (天然の存在率: 0.87%) の (p, n) 反応により製造されている⁽¹⁷⁾。膵臓検査に使用される ^{73}Se (7.15h, β^+ 65.6%・EC34.3%) は濃縮度96.4%の ^{72}Ge (天然の存在率: 27.5%) の (^3He , 2n) または (α , n) 反応で製造されている⁽¹⁷⁾。

研究炉で照射し (n, γ) 反応によって製造されている $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6.02h, IT100%), ^{153}Gd (242d, EC100%), ^{59}Fe (44.6d, β^- 100%) も、それぞれ濃

縮された ^{98}Mo (天然の存在率: 24.2%, ^{98}Mo (n, $\gamma\beta^-$)) $^{99\text{m}}\text{Tc}$), ^{152}Gd (天然の存在率: 0.2%), ^{58}Fe (天然の存在率: 0.31%) がターゲットとして使用されている。

3. その他の分野での同位体利用

(1) 半導体製造での同位体利用

Si 単結晶を中性子で照射すると ^{30}Si (n, $\gamma\beta^-$) ^{31}P の核反応によってリンが均一にドーブされたN型半導体ができる。この方法は、NTD (Neutron transmutation Doping) 法と呼ばれており、NTD 法により製造された半導体シリコンは全世界の供給量の約5% (170トン) を占めるに至っている。 ^{30}Si の天然の存在率は3.12%と低く照射効率が悪いが、30%程度まで濃縮したものをターゲットとして使用すれば、現状の中性子照射設備のままで、生産性は理論上、10倍程度になるはずであり、 ^{30}Si の大量濃縮技術開発は魅力的なテーマである。

また、 Ge 同位体の高濃縮が可能になれば、 ^{70}Ge (n, γEC) ^{71}Ga や ^{74}Ge (n, $\gamma\beta^-$) ^{75}As の核反

応による半導体製造も可能である⁽¹⁸⁾。

(2) レーザーでの同位体利用

CO₂ レーザーは 9~11 μm の赤外域に90本前後の発振線を有する気体レーザーで、CO₂ 分子の上下の振動回転準位間の遷移で発振する。CO₂ は中心にCがある直線状分子で、普通は下準位の回転量子数が偶数のものしか発振しない。CO₂ を通常の¹²C¹⁸O₂ からOを同位体置換した¹²C¹⁶O¹⁸O に変えると、CO₂ 分子の対称性が崩れるため奇数番号回転準位の発振が可能となり、発振線の数が増える^(19, 20)。実際は、¹²C¹⁶O₂ と¹²C¹⁸O₂ を等量混ぜて使用すると放電により、¹²C¹⁶O₂ : ¹²C¹⁶O¹⁸O : ¹²C¹⁸O₂ が1 : 2 : 1の割合で出来る。

一方、同位体置換により分子の基準振動数も多少シフトするためにCやOを同位体置換することにより発振線を増やし、発振波長域を広げることが出来る。このように同位体置換したCO₂ を用いるレーザーには、封じきり型やガス循環型のレーザー管が使用される。同位体置換したCO₂ の使用量は、レーザー装置一台当

たり封じきり型で数10cc, 循環型で1000リットルである。

HeCdレーザーはホローカソード電極により赤(636.0, 635.5 nm), 緑(537.8, 533.8 nm), 青(441.6 nm)の三色を同時に発振する白色レーザーであるが, 陽光柱放電では325 nmの紫外光を発振し, 簡便なCW紫外光源として産業界で広く用いられている。この紫外光のピークパワーを上げるために, Cdの8つの安定同位体の中で最も存在比の大きい ^{114}Cd (38.86%)を98%に濃縮したものが使用されている。使用量はレーザー管一本当たり4~5 gで, ^{114}Cd 価格の占める割合はレーザー装置全体の25%を超える。ところで, このレーザー管の寿命は約7000時間しかないため, 連続して使用すると1年に1本程度の割合で交換する必要があり, 定常的な ^{114}Cd の需要が生じる。世界全体の ^{114}Cd の需要はレーザー産業だけで数10kgになると思われる。

参考文献

- (1) 中村健蔵 : 日本物理学会誌, 44[8], 566 (1989)
- (2) Davis, R. Jr.: Proc. 7th Wksp. Grand Unification/ICOBAN '86, Toyama, 237 (1986)
- (3) 戸塚洋二 : 東大宇宙線研レポート ICR-Report-180-88-26 (1988)
- (4) 江尻宏泰, 岡田憲志 : 日本物理学会誌, 42[5], 453 (1987)
- (5) Ejiri, H. et al.: Phys. Lett. B, 258[1,2], 17 (1991)
- (6) Ke You et al.: Phys. Lett. B, 265[1,2], 53 (1991)
- (7) Der Mateosian, E., Goldhaber, M.: Phys. Rev., 146[3], 810 (1966)
- (8) Caldwell, D.O. et al.: Phys. Rev. Lett., 54, 281 (1985); Phys. Rev., D33, 2737 (1986); Phys. Rev. Lett., 59, 419 (1987); Nucl. Phys., B13 (Proc. Suppl), 547 (1990)
- (9) Vasenko, A.A. et al.: MOD. Phys. Lett., A5, 1299 (1990)

- (10) Klapdor, H.V. et al.: Proc. WEIN'89 Conf.
Montreal, Mar 89, (1989) World Scientific
- (11) Avignone, F.T. III, Brodzinski, R.L., Miley,
H.S., Reeves, J.H.: Proc. WEIN'89 Conf.
Montreal, May 89, (1989) World Scientific
- (12) Elliot, S.R., Hahn, A.A., Moe, M.K.: Phys.
Rev. Lett., 59, 2020 (1987); Neutrino Physic
s. Proc. Int. Workshop on Particles and
Nuclei, Oct. 1987, Heidelberg, Ed. Povh, B.,
Klapdor, H.V., Springer, 213 (1988)
- (13) Mitchell, L.W., Fisher, P.H.: Phys. Rev.,
C38[2], 895 (1988)
- (14) Barabash, A.S. et al.: Nucl. Instrum.
Methods Phys. Res., B17, 450 (1986)
- (15) Wong, H.T. et al.: Phys. Rev. Lett., 67[10],
1218 (1991)
- (16) Klimenko, A.A., Pomansky, A.A., Smolnikov,
A.A.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., B17
, 445 (1986)

(19) R. B. Gibson et al., IEEE J. Quantum Electron.,

QE-15, 1224(1979)

(20) Charles Freed et al., IEEE J. Quantum Electron.,

QE-16, 1195(1980)

(21) L. C. Bradley et al., IEEE J. Quantum Electron.,

QE-22, 234(1986)

表 7.1 二重β崩壊実験に使用された同位体

同位体	存在比 (天然)	濃縮度	使用量	備考	参考文献
Ca-48	0.187%	天然	43g	CaF ₂ シンチレーター	(6)
		96.59%	11.4g		(7)
Ge-76	7.8%	天然	全Ge量 7.2 Kg	Ge検出器	(8)
		85%	全Ge量 ~ 1.0Kg		(9)
		86%	12.2Kg		(10)
		50%	1.3Kg		(11)
Se-82	9.2%	97%	全Se量 14g		(12)
Mo-100	9.6%	95.4%	~100g		(5)
Cd-106	1.25%	天然	使用量不明	CdTe検出器	(13)
Cd-114	28.7%	天然			
Cd-116	7.5%	天然			
Te-128	31.7%	天然			
Te-130	34.5%	天然			
Xe-136	8.9%	濃縮度不明	627g	TIME PROJECTION CHAMBER 又はMULTIELEMENT PROPORTIONAL CHAMBER	(14)
		62.5%	3.6Kg		(15)
Nd-150	5.6%	濃縮度不明	50.5g		(16)