

ポ ス タ ー

1. はじめに: β-ジケトンの種々金属錯体を応用しての昇華分離法は、近年放射化学的分野でも広く用いられ、その特徴ある分離法と相まって多くの成果を収めている。我々は、この方法で核分裂生成物の昇華分離を試み、水溶液系および固相系からFPのβ-ジケトナト錯体を作らしめ、核分裂生成物の昇華挙動について一連の検討を行って来た^{1,2)}。

ここでは、固体の²³⁵Uと不昇華性のβ-ジケトン金属錯体との間で、核分裂反応およびその反跳効果を利用して、直接的にFP、β-ジケトナト錯体を作らしめて、その昇華挙動について実験した。また、昇華分離する直前に昇華性錯体を混合し、その添加効果についても検討したので報告する。

2. 実験方法: U₃O₈(²³⁵U 19.8% 濃縮) 粉末と不昇華性β-ジケトン錯体 { Y(acac)₃, Ce(acac)₃, Sr(acac)₂, Ba(acac)₂, K(acac) } を乳鉢にて良くすりつぶし (U:β-ジケトン錯体は20:1) 原子炉照射を行った。(KUR Pm-2, 20sec) これを約2~3時間冷却した後之時間真空昇華を行った。また、照射済試料に昇華性β-ジケトン錯体 { Y(acac)₃, Zr(acac)₄, Zr(dpm)₄ 等 } を試料と同量程度混合して、これも乳鉢にて良くすりつぶし昇華を行った。

昇華分離装置は、Fig. 1 に示す。なお分離効果を上げる意味からも、なるべく直線的な温度勾配が得られるよう電気炉を四つの部分に分け、各々が独立に調節できるように工夫した。種々のβ-ジケトン金属錯体の真空昇華に一応適し、しかも最適温度分布をFig. 2 のように得た。

昇華終了後、内側管を取り出し、GM管にて(5cm 間隔) 放射能分布を調べ、その沈着帯および錯体の沈着部位を切り取り有機溶媒にて沈着物を溶かし出し、Ge(Li) 半導体検出器にて測定し、計算機解析により核種およびその量を決定した。

3. 結果: 不昇華性錯体での昇華分離結果は、何も加えない場合、即ち不昇華性錯体中に生成したFPは、Ba(acac)₂ および K(acac) 錯体では、ほとんど昇華分離核種はなく、錯体自体が昇華しないならば、その中に生成したFPも昇華できないことを物語っている。

にしかわさたろう

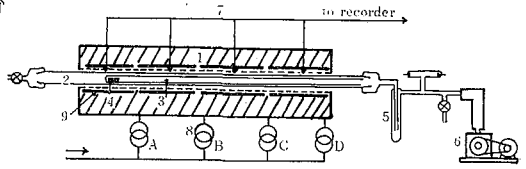


Fig. 1 Schematic view of the vacuum sublimatographic system.
1. electric furnace, 2. outer glass tube, 3. inner glass tube,
4. sample boat, 5. cold trap, 6. rotary pump,
7. thermocouple, 8. slide-trans., 9. heating element

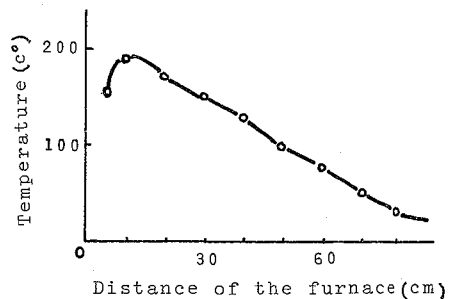


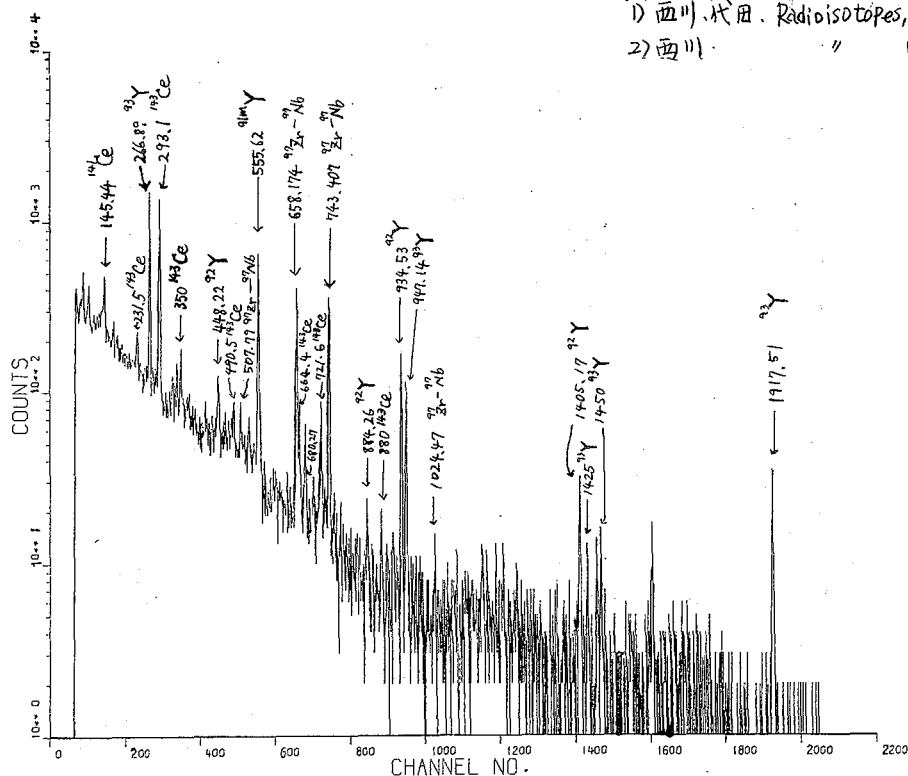
Fig. 2 Temperature gradient in the furnace.

次に $\text{Fe}(\text{acac})_3$ では、 ^{97}Zr - ^{97}Nb 、 ^{105}Ru 、 ^{91}mY 、 ^{92}Y 、 ^{93}Y (照射後約5時間) が、ほぼわづか分離され、また $\text{Ce}(\text{acac})_3$ については、 ^{141}Ce 、 ^{143}Ce 、 ^{91}mY 、 ^{92}Y 、 ^{93}Y が、これもごくわづか分離された。 $\text{Sm}(\text{acac})_2$ では、 ^{97}Zr - ^{97}Nb 、 ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 ^{143}Ce 、 ^{147}Nd 、 $^{87\text{m}}\text{Sr}$ 、 ^{90}Sr - ^{91}mY 、 ^{92}Y 、 ^{93}Y (5時間後) が、わづか分離された。これらは昇華分離核種から考えてキヤッチャキレート自体が昇華していることが考えられる。

次に昇華性錯体を、照射後の試料に混合して昇華分離を行った場合では、 $\text{Ba}(\text{acac})_2$ 、 $\text{K}(\text{acac})$ のようにキヤッチャキレート自体昇華しないものでも、 $\text{Zr}(\text{acac})_4$ の混合では、 ^{97}Zr - ^{97}Nb 、 ^{105}Ru 、 ^{91}mY 、 ^{92}Y 、 ^{93}Y 等の核種分離をみた。また、これら核種分離パターンは、 $\text{Y}(\text{acac})_3$ 、 $\text{Ce}(\text{acac})_3$ 、 $\text{Sr}(\text{acac})_2$ 等でも同じようにみられた。 $\text{Y}(\text{dmp})_3$ を混合錯体にした場合では、これも同じく $\text{Ba}(\text{acac})_2$ 、 $\text{K}(\text{acac})$ でも ^{97}Zr - ^{97}Nb 、 ^{141}Ce 、 ^{143}Ce 、 ^{91}mY 、 ^{92}Y 、 ^{93}Y 等が分離された (Fig. 3)。またその他のキヤッチャキレート錯体の場合でも、ほぼ同じ核種分離パターンであった。

これらの分離結果から、昇華性錯体の照射後の混合効果については、照射時に存在するキヤッチャキレートの種類よりも昇華時に存在する錯体の種類によって、分離核種が大きく影響されることが判る。これは昇華時に加えられる温度の効果を検討する必要がある。

また照射後に加える昇華性錯体の経時変化およびその添加量の分離核種へおよびる影響についても検討したい。



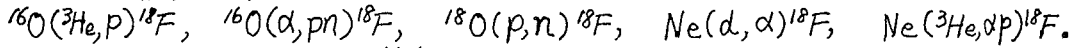
1) 西川、代田、Radioisotopes, Vol. 27, No. 3 (1978)

2) 西川、" " Vol. 29, No. 3 (1980)

Fig. 3 γ -ray spectrum of deposited radioactive zone of $\text{K}(\text{acac}) + \text{U}_3\text{O}_8$ mixed with $\text{Y}(\text{dmp})_3$ (after 5 hr.)

(理 研) ○野崎 正・岩本正子

〔目的〕 ^{18}F は化学をはじめ、核医学、農学等広い分野で使われる有用な核種であり、 ^{18}F 生成の際の ^{18}F の反跳飛程を知ることは、次のような点で重要である。(1) 気体照射により ^{18}F を製造する時のターゲット箱のデザインに有用な情報となる。(2) 酸素の荷電粒子放射化分析で、内部酸素と表面酸素を個別に定量したいときの基本的データとなる。(3) 一般軽元素の生成する反応にたいする前方反跳飛程を推測する上で有力な根拠となる。(4) 実験結果と計算値(複合核が形成されると仮定して算出)との比較は、仮定の適用範囲等を考える上で興味深い。以上のような理由から、次の諸反応により生成する ^{18}F の反跳飛程を測定した。



このうちの一部は、昨年の本討論会で報告したが、つきつぎ他の反応について測定を完了し、相互の関連を見るために、まとめて報告する。

〔方法〕 SiO_2 の薄膜またはネオン薄層中で生成した ^{18}F を、高純度ケイ素板中に反跳入射させ、ケイ素を layer by layer にエッチして、エッチ途中の ^{18}F とケイ素とを定量した。詳細は、昨年報告した通りである。

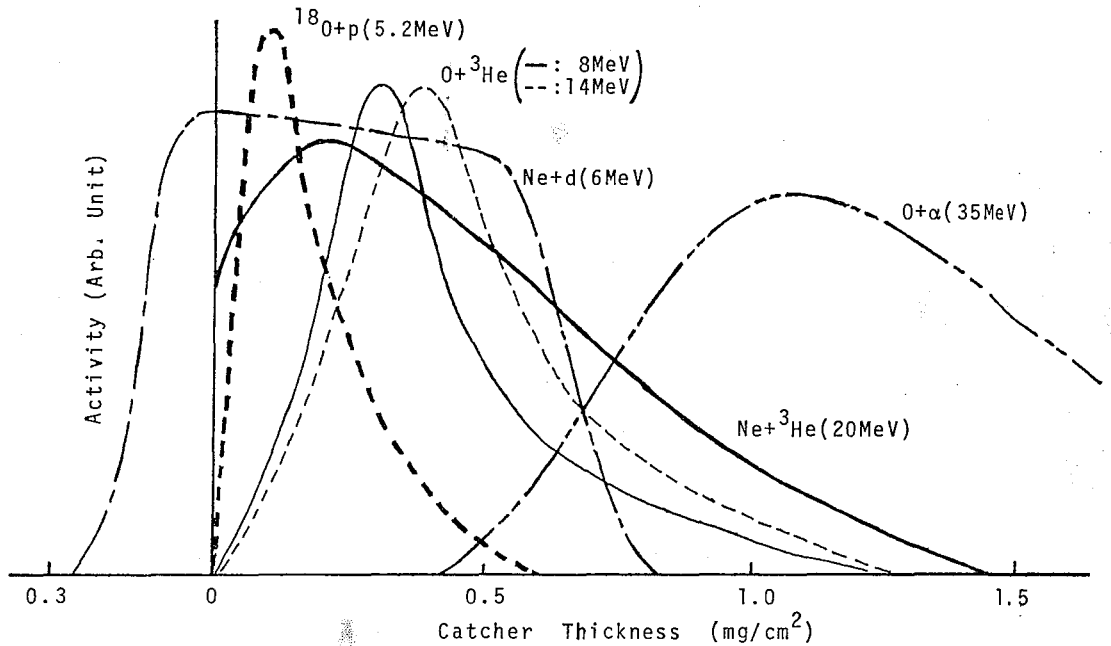


FIG. 1 Distribution of Forward Recoil Range of ^{18}F (in Si) Formed by Various Reactions

のぎきただし・いわもとまさこ

【結果・考察】 測定結果を Fig. 1 に示す。

各反応についてはそれぞれ3~6回の測定を平均をとった。入射粒子のエネルギーは、おのこの反応断面積が最大になるように設定したので、反応によって異なる。図からあきらかなように、各反応について、顕著に異なる分布曲線が得られた。これらにより、 ^{18}F 製造や、表面酸素の放射化学分析の際、選んだ反応に

ついては、反跳の影響をどの程度考慮すればよいか明瞭になる。Fig. 1 の反跳飛程の積分曲線（与えられた厚みを通過する間に、何%の ^{18}F が静止するかを示す曲線）を Fig. 2 に示す。また複合核形成を仮定して算出した反跳エネルギーの最大値、最小値、最高分布値と、実験によって得た前方反跳飛程の最大分布値、80% 静止値（80%の ^{18}F が静止する厚み）を Table 1 に示す。計算値と測定値の相互の大小関係はほぼ一致し、各反応にたいする平均反跳飛程の大小関係は、計算による角相に近い結果となった。

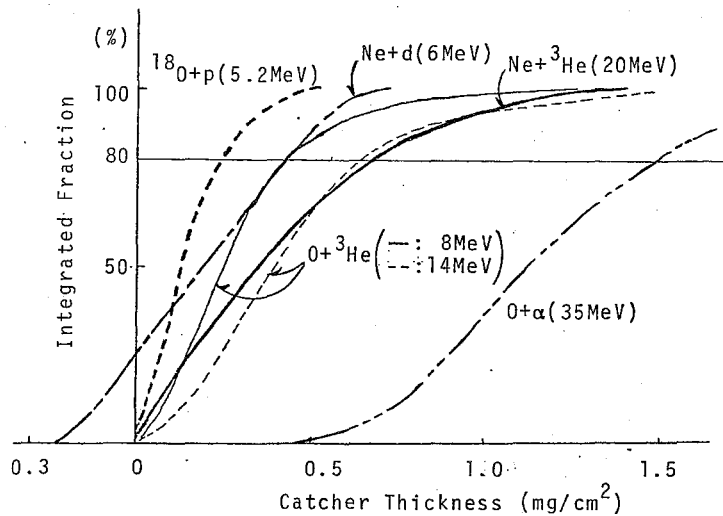


Fig. 2 Catcher Thickness VS ^{18}F fraction Stopped in It for Various Reactions

Table 1. Forward Recoil Energy and Forward Recoil Range (in Si) of ^{18}F

Formation Reaction	$E_{\text{incid.}}$ (MeV)	Forward Recoil Energy (MeV)			Forward Recoil Range (mg/cm ² in Si)	
		Max.	Min.	Highest Distribn.	Highest Distribn.	80% Stop
$^{16}\text{O}(^3\text{He}, p)^{18}\text{F}$	8	3.15	0.17	1.20	0.3	0.45
	14	5.29	0.35	2.09	0.4	0.65
$^{16}\text{O}(\alpha, d)^{18}\text{F}$	35	12.89	3.12	6.30	1.0	1.5
		$^{16}\text{O}(\alpha, pn)$	10.59			
$^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$	5.2	0.93	0.003	0.26	0.1	0.25
$^{20}\text{Ne}(d, \alpha)^{18}\text{F}$	6	3.58	-0.31	0.45	-0.1~0.5	0.45
$^{20}\text{Ne}(^3\text{He}, \alpha p)^{18}\text{F}$	20	8.91	-0.02	2.04	0.2	0.7

(阪大理) 音在清輝・○斎藤 直・○篠原 厚・森本 聡
 (阪大教養) 荒川隆一
 (阪大工) 裏 克己・藤岡 弘・中前幸治・藤東 修

NEET(電子遷移による核励起)は、これまで¹⁸⁹O_s(電子と核の相互作用はE2)と²³⁷Np(E1)とにおいて見出されており、次に磁氣的相互作用(特にM1)についての知見が望まれる。¹⁹⁷Auには、図1に示すように、KM₁電子遷移に非常に近いエネルギーを持つ核遷移があり、かつ両者の多重度がM1と等しいので、NEETの条件が満足されている。そこで、¹⁹⁷AuにおけるM1相互作用によるNEETの研究を行なうことにする。

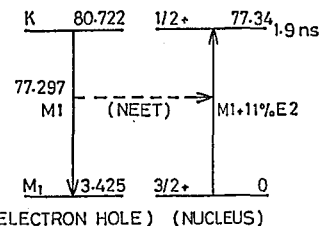


図1. ¹⁹⁷AuのNEET遷移

¹⁹⁷AuにおけるNEETの検出には、NEETで励起される核準位が半減期1.9nsの短寿命の第一励起状態であるため、先に¹⁸⁹O_sで用いた核異性体の放射化法や、²³⁷Npで用いた中間準位からのγ線のインビーム・シングルス測定法は有効ではない。そのため、電子線をパルス照射してK殻をイオン化した後、励起核の失活の際に放出される半減期1.9nsの内部転換電子(c.e.)を観測することによってNEETを検出する方法を採ることとした。同目的のために特別なナノ秒ストロボ電子分光装置を南発製作し、順次改良を重ねて実験を行なっている。

NEET観測の原理 図2に実験装置の概略を示す。まず、よく集束した100keV電子ビームを偏向器I(25MHz、直線偏向)によってスリット上で単振動させて、幅1ns周期20nsのパルスビームを発生させる。これを¹⁹⁷Auターゲットに照射して¹⁹⁷Au原子のK殻をイオン化する。次に、NEETによって励起した核準位から放出されるc.e.(主成分の63keVのエネルギーをもつL₁-c.e.に注目する)を、入射軸と垂直に置いたレンズで集束したのち、偏向器II(25MHz、直線偏向)によって再びスリット上で単振動させてパルスを取り出す。この偏向器IとIIの位相差の調節より、両スリットで発生するパルス相互の時間情報を得るこ

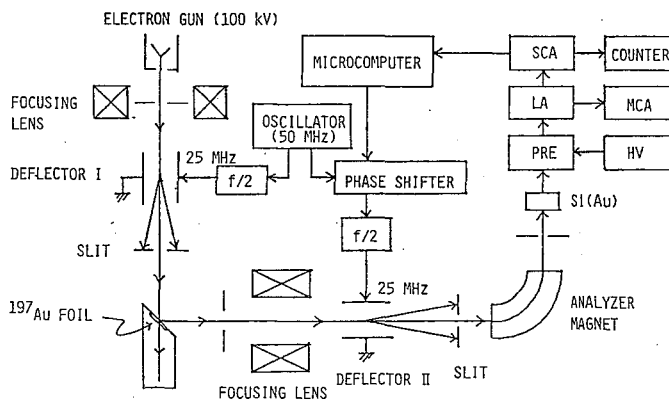


図2. ナノ秒ストロボ電子分光法によるNEET観測装置

おとざいきよてる・さいとうただし・しのはらあつし・もりもとさとし・あらかわりゆういち・うらかつみ・ふじおかひろむ・なかまえこうじ・ふじつかおさむ

とができる。最後に分析電磁石で63keVの電子を選別し、Si(Au)検出器(63keVでFWHM \approx 10keV)を使って検出する。検出器出力はMCAでモニターすると同時にSCA(63keV電子のピークのFWHMに窓を設定)を通してマイクロコンピュータによってもデータ収集される。この μ -COMはデータ収集と同時に、移相器の制御で偏向器の位相差を変化させることができ、それにより63keV電子の0.1ns単位の時間スペクトルを測定できる。このスペクトル中に、1.9nsの崩壊曲線が観測されたなら、それはNEETによる77keV準位の励起によるものである。

実験及び結果 非弾性散乱電子(KLMオージェ電子も含む)によるピークが2個出現するように0-50nsの位相差について0.1ns間隔で測定して図3のスペクトルを得る。そのピーク位置より中心位相を決めた。次にピーク間のみ注目し、0.2ns間隔で各チャンネルの収集時間を4msとして合計 10^5 -1回走査した。ターゲットは10 μ m厚の金箔で照射電流は45 μ Aであった。右裾部分より左裾部分を差し引いてバックグラウンドを除いたのが図4で、誤差が大きくて有意の値は得られていない。

考察 ^{197}Au でのNEET確率Pは、 $\Gamma(X)$ をX殻の準位幅、 E' を核と電子のM1相互作用エネルギー、 Δ を電子遷移と核遷移のエネルギー差として、

$$P = [1 + \Gamma(M_1)/\Gamma(K)](E'/\Delta)^2 \quad (1)$$

と表わされる。いま、 $\Gamma(M_1)/\Gamma(K) = 0.42$ 、 $\Delta = -43\text{eV}$ 、さらに E' は -0.15eV と概算されるので、 $P = 1.7 \times 10^{-5}$ を得る。本実験の条件下で検出されるべきc.e.の計数率C(cps)は、電子の飛行時間を補正した位相差を φ としたとき、

$$C = 2.8 \times 10^4 P \exp(-3.65 \times 10^8 \varphi) = 0.48 \exp(-3.65 \times 10^8 \varphi) \quad (2)$$

となり、それを図4に実曲線で示した。同図で明らかのように、理論的予測値と較べて実験精度が十分だとは云えない。これはピークの裾の部分に非弾性散乱電子が混入してきたためと考えられるので、2次ビーム系の再調整を中心とした装置の改良に努めている。その裾の部分でのバックグラウンドを約1桁下げうる改良の余地があるので、この改良によって ^{197}Au におけるNEETを観測できると期待される。

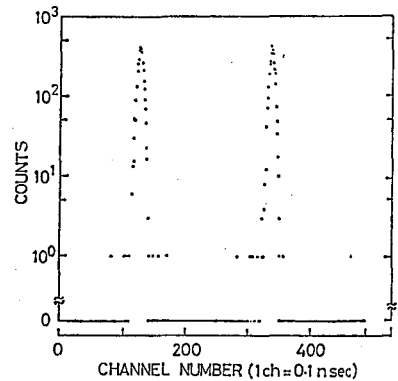


図3. 63keV電子の時間スペクトル。ピークの右裾にc.e.の崩壊曲線の出現が期待される。

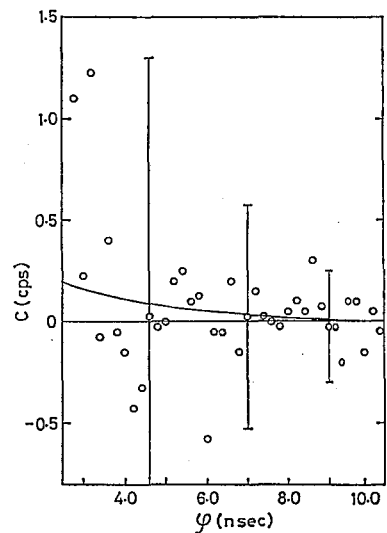


図4. 解析結果と理論値(曲線)

株式会社日本製鋼所 加速器部 飯島 昭

開発技術本部 〇山田輝雄

1. 医学におけるRIの役割はきわめて大きい。医学研究のみならず日常の診療においても、広く利用されている。これらの多くは、原子炉で生産される中性子過剰核種で、β崩壊する。サイクロトロンで加速された荷電粒子の照射を用いれば、中性子欠損のRIを無担体に生産することができる。その中には、 ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{18}F , ^{18}F , ^{67}Ga , ^{67}Ga , ^{111}In , ^{111}In , ^{212}Pb , 等の医学的に重要な短寿命核種が多く含まれている。これらのうち超短半減期RIであり、主要生物体構成元素である陽電子放出核種、 ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{18}F は従来のX線CT検査に比して形態図の上核能図を依り、臓器組織の機能、内分泌系の制御機構を知ることを可能にすることから、診断能力を飛躍的に向上させることが期待されている。これ等のRIを手軽に病院内で製造可能にしたγビースイクロトロンを当社が開発したので紹介する。

2. 装置概要；本装置は、陽子エネルギーで10MeV、重陽子エネルギーで7MeVまで加速可能である。ビーム取出し半径は30cmであり、取出しビーム電流は50μAである。マグネットはAVF型を採用し、最大外径は約1.6mと小型であり、放射線に対する自己遮蔽能力(1/100)を有する。共振器は45°、2デー方式とし、共振系の小型化を図るため、高い高調波次数を採用して陽子加速を2倍、重陽子加速を4倍としている。発振器は他励振方式を採用して、周波数の安定化を図っている。イオン源は熱陰極PIG方式であり、ディフレクターは直流静電場偏向方式を採用している。RIは、マグネット内部に取り付けられたターゲットボックスで生産され、RI処理装置により酸化、還元あるいはトラップされ無核ガス体として得られる。

3. 生産される超短半減期RI— ^{11}C (半減期20分)；生産反応は、 $^{10}\text{B}(d,n)^{11}\text{C}$, $^{10}\text{B}(d,2n)^{11}\text{C}$, $^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$, などの核反応が利用される。このうち $^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$ 反応は、反応収率が良い、ターゲットが扱ひやすい、など有利である。この反応では、高純度窒素ガスをターゲットとして10MeV陽子(p)で照射する。生成した ^{11}C はターゲットガス中に混在する酸素と反応して、 ^{11}CO および $^{11}\text{CO}_2$ となる。 ^{11}CO あるいは $^{11}\text{CO}_2$ を単独で得るには、混合気体をCuOで酸化するか、 Zn で還元するかによって化学形をそろえる。 ^{11}C はまた、各種有機化合物の標識として理想的である。反応中間体として $^{11}\text{H}_2\text{O}$, $^{11}\text{H}_2\text{I}$, $^{11}\text{H}_2\text{O}$ を導き、アミン、フェノールなどのメチル誘導体の合成にもって行く。 $^{11}\text{CO}_2$ はグリニア反応で ^{11}C 有機酸を合成する材料となる。ターゲットの窒素に少量の水素を混在させて照射すると $^{11}\text{CH}_4$ が主生産され、これと放射線分解で副生した NH_3 とを加熱した白金触媒上を通すことによって $^{11}\text{H}_2\text{N}$ を生産できる。 ^{13}N (半減期10分)；生産反応は、 $^{12}\text{C}(d,n)^{13}\text{N}$, $^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$ の核反応が利用される。 $^{13}\text{N}\text{H}_3$ を製造する場合は、アンモニア水を陽子で照射して、 $^{13}\text{NO}_2$, ^{13}NO の形として生成される。これを TiCl_3 と NaOH の還元剤の中へ照射した水と共に入れ、加熱すると、約2分間

で全 N の70%が $^{13}NH_3$ として得られる。これは心臓診断に利用できる。

^{15}O (半減期2分)；生産反応は $^{14}N(d,n)^{15}O$ 反応で製造される。ターゲット内に生成される $C^{15}O_2$, $C^{15}O$, は酸化-還元之水, 必要とする化学形に精製される。これらは, 呼吸器系, 循環器系の診断に応用される。 ^{18}F (半減期110分)；生産反応は $^{20}Ne(d,\alpha)^{18}F$ 反応で製造される。この反応で製造した ^{18}F は無水の状態で得られ, 有機化合物の標識に有利である。特に脳の代謝検査に有効な ^{18}F -フロデオキシグルコースが精製できる。

表. 1 トリビ-サイクロトロンBC107型($p=10MeV$, $d=7MeV$)によって作られる超短半減期RIの製造量を示す。

表1. トリビ-サイクロトロンによるRI製造量

化学形	エネルギー(MeV)	ビーム電流(μA)	照射時間(分)	収量(mCi)	純度(%)
$^{11}CO_2$	p: 9.5	50	60	≥ 1,200	> 99.9
$^{14}NO_2^-$	p: 9.5	50	40	≥ 270	—
$C^{15}O_2$	d: 5.9	50	20	≥ 1,300	> 98
$^{18}F_2$	d: 5.7	50	240	≥ 300	> 80
—	—	—	—	—	—

p: 陽子 d: 重陽子

以上

いじまあきら・やまだてるあ

