

# 原子炉の燃えかすから取り出したアイソトープの利用

Utilization of Fission Produced Radioisotopes

佐藤乙丸\*

Otomaru SATO

原子力発電所の増設に伴い、使用済燃料の処理処分が問題となっている。ここでは、この中に含まれている主な放射性核種を処理処分と関連ずけて積極的に利用していくという立場で、利用上の特徴を明らかにしながら、利用技術開発の現状を述べる。

## 1. はじめに

原子力発電所の運転に伴ない、核燃料の燃えかすすなわち核分裂生成物(Fission Products 以下FPと称する)が大量に生ずる。このFPの中には原子番号30から66までの300種ほどの核種が含まれ、このうち約20種が利用可能性があると考えられている。

わが国の原子力発電計画を1985年までに60GW、2000年までに220GWとし、生成するFP中の主要核種の増加量を年度別に試算すると図1のようになる。図には5核種しか示していないが、このうち半減期の長い

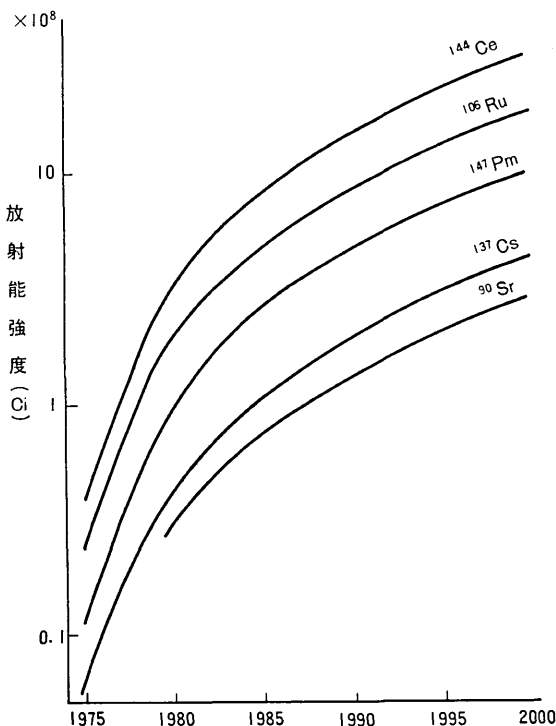


図1 FP中の主要核種の年間生成量の増加

<sup>137</sup>Csと<sup>90</sup>Srが最も問題となり、その放射能は2000年においてそれぞれ $4.5 \times 10^8$  Ci,  $3 \times 10^8$  Ciに達する。

このような事態はわが国だけでなく先進諸外国においても同様であり、各国ともFPの処理処分を重視して対応している。しかしわが国では、試験的処理施設が漸く運転段階に漕ぎついにすぎず、本格的処理処分法は依然として模索中である。外国に依頼して処理処分するという虫のいい考えが殆んど絶望的である現在、わが国の原子力産業の最大難問としてその解決がせまられている状態である。

さて、FPを利用する場合、核燃料再処理によりUやPuを分離した後の、多数の核種を含む混合核分裂生成物(Mixed FP, MFPと称する)のままでは、利用範囲、場所ともに限られてしまいそれほど使い道がない。従ってこれを所要の元素に分離し、かつ必要な化学的性状に変換しなければならない。このために多額の投資を必要とする。

FPの利用形態も、通常の放射性同位元素の利用と比べて、量的にも質的にも異なってくる。すなわち、FPの生成量に見合った大量の放射能の利用が中心となり、エネルギー源、照射線源および自発光源などが主な利用となる。このため利用に先立ち、安全技術の開発が重要となる。

このようにFPの利用にはなお多くの問題をかかえているが、FPの中には極めて有用な核種が数多く含まれている。従ってこれらをそれぞれの核種の特性に適した形で利用することは、単に廃物を利用するという観点からだけでなく、処分の一つの形態として管理しつつ利用するという意味からもきわめて重要である。

FPの利用に関しては、筆者らも参加してまとめた「核分裂生成物等総合対策懇談会報告書」<sup>1)</sup>、Fowler<sup>2)</sup>、Rohrman<sup>3)</sup>、加藤<sup>4)</sup>、佐藤<sup>5)</sup>、重松<sup>6)</sup>らの解説があるが、ここでは、その後の研究開発状況をつけ加え、表1にあげた有用ないくつかの元素を中心に述べたい。

## 2. 混合核分裂生成物

MFPは核分裂反応と中性子捕獲反応によって生成

\*東京大学生産技術研究所 第4部

表1 有用性の大きい核分裂生成核種の特性

元素名	問題となる核種	そのRIの存在比(%)	半減期(年)	比放射能(Ci/g)	比熱出力(Wth/g)	放射線種とエネルギー(MeV)	FP中の濃度 <sup>*</sup> (g/ton)	FP生成率(kg/10 <sup>3</sup> MW-y)	1985年の日本のFP推定量 <sup>**</sup> (Ci)	主な用途
Kr	<sup>85</sup> Kr	6.5	10.76	397	0.623	$\beta$ . 0.67	17	0.75	19 (7.48×10 <sup>5</sup> )	発光, ランプ, 熱源
Sr	<sup>90</sup> Sr	50	27.7	142	0.96	$\beta$ . 2.27	411	18	430 (6.22×10 <sup>7</sup> )	熱源, アイソトープ 発電器
Tc	<sup>99</sup> Tc	100	2.12×10 <sup>5</sup>	0.017	—	$\beta$ . 0.29	628	27.5	672	触媒, 合金元素
Rh	<sup>103</sup> Rh	100	安定	安定	—	$\beta$ . —	337	14.8	360	触媒, 合金元素, 耐食材
Ru	<sup>106</sup> Ru	3.3	1.0	3,375	33.1	$\beta$ . 3.54	1,708 <sup>(1)</sup>	74.7	1,755 (2.06×10 <sup>8</sup> )	触媒, 合金元素, 工業 用線源
Pd	<sup>107</sup> Pd (7×10 <sup>6</sup> 年)	16	(安定)	(安定)	—	$\beta$ . 0.035	875 <sup>(1)</sup>	40.2	778	触媒, 合金元素, 耐食材
Xe	全部安定	100	安定	安定	—	—	3,990	174.6	4,290	電球, ランプ, 麻酔剤
Cs	<sup>137</sup> Cs ( <sup>134</sup> Cs)	35	30.0 (2.1)	87 (1,271)	0.42 (13.1)	$\gamma$ . 0.66 $\beta$ . 1.17	950	41.6	979 (8.52×10 <sup>7</sup> )	照射線源
Ce	<sup>144</sup> Ce	4.5	0.78	3,190	25.6	$\beta$ . 2.99 $\gamma$ . 2.18	120	5.3	137 (4.36×10 <sup>8</sup> )	電源, $\beta$ 線源
Pm	<sup>147</sup> Pm	100	2.62	929	0.33	$\beta$ . 0.224	66	2.9	55 (5.12×10 <sup>7</sup> )	熱源, 発光, $\beta$ 電池, X線源
Np	<sup>237</sup> Np	100	2.14×10 <sup>6</sup>	0.0007	—	$\alpha$	407	18.1	373	<sup>238</sup> Puのターゲット
Am	<sup>241</sup> Am	50	458	3.25	0.11	$\alpha$ . $\gamma$ . 0.06	47	2.1 <sup>(2)</sup>	99	<sup>238</sup> Puのターゲット, $\alpha$ , $\gamma$ 線源
	<sup>243</sup> Am	50	7,950	0.2	—	$\alpha$ . $\gamma$ . 0.075	53.3	2.4 <sup>(2)</sup>	103	<sup>244</sup> Cmのターゲット
Cm	<sup>244</sup> Cm	100	18.1	82.1	2.84	$\alpha$ . $\gamma$ . 0.04	10.7	0.48 <sup>(2)</sup>	10	熱源, $\alpha$ 線源

\* 典型的な軽水炉中で25,000MWD/tonで燃焼したもの

\*\* 1,235トンの燃料を処理して回収した場合

(1) 全元素のグラム数

(2) プルトニウムリサイクル燃料の場合約20倍生成する

する各種の放射性核種が混合した再処理廃液である。一般にこの廃液はできるだけ狭い場所に保管されるので、そのまま照射容器に入れて利用するというわけにはいかない。従って、この廃液を循環させ別の場所で利用することにならざるを得ない。

線源として利用する場合は、 $\gamma$ 線束、エネルギーともに大きい方が有利である。従って、中、低レベルの廃液でなく高レベル廃液を利用することとなる。この高レベル廃液は、一般に硝酸溶液であるから、パイプによる輸送や廃液を入れる照射容器と放射線化学反応装置との組み合わせなど、線源工学的な開発研究が必要である。

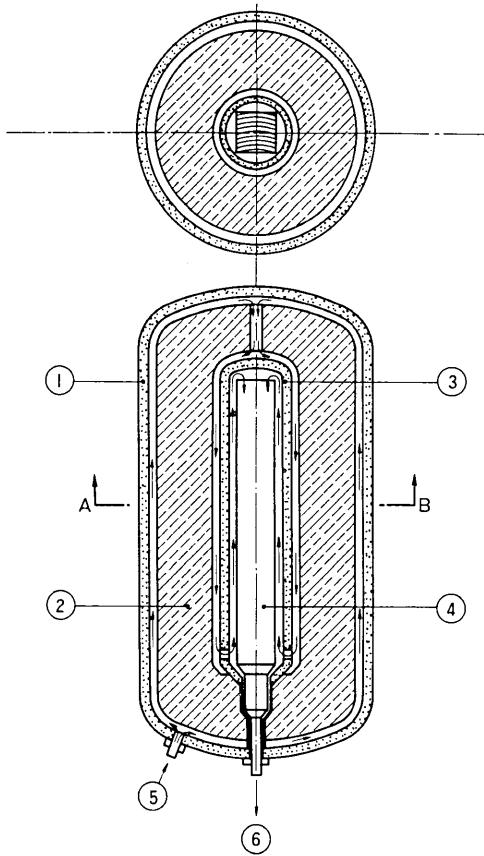
また、MFPは液状線源であるから、沈澱、付着、漏洩などの諸対策とともに、十分な安全対策を講ずる必要がある。さらにこの線源の中には、半減期の異なる多数の放射性核種が含まれているので、放射能の減衰による照射線量率の低下を補償する装置も必要となる。

以上の諸問題が解決されてはじめてMFPの線源利用が現実のものとなる。利用の場所としては、廃液の

輸送という点から再処理工場の近くを選定することとなる。現在考えられる照射試料としては、WPC (Wood Plastic Composite) やCPC (Concrete Plastic Composite) の製造、汚水や下水の処理、ビニールアセテートや塩化ビニールの乳化重合、およびオゾンの製造などが挙げられる。

MFPをエネルギー源として利用する研究もギリシャ<sup>7)</sup>で行なわれている。小さな島の多いギリシャでは、熱出力1kWth程度の熱源が重宝がられているため、MFPを熱源として利用する図2のような交換器を試作し、その熱特性を求めている。熱源を断熱材と放射線遮蔽用鉛で囲み、液体を循環させて熱を取り出す方式のものである。1kWthの熱源を用いた場合、循環液の流量を17.5kg/hとしたとき、熱源挿入後5時間で約50℃の温度上昇が得られる。

このような交換器を海水の淡水化に用いた場合、携帯用飲料水の値段を2~10ドル/m<sup>3</sup>とすれば、経済的にも十分採算がとれる。すなわち淡水化率が15ℓ/kWth・hのとき、1kWthで350ℓ/日の飲料水が得られ、1



1—外部熱絶縁体 2—鉛しゃへい 3—内部熱絶縁体  
4—熱源 5—循環液の入口 6—循環液の出口

図2 FPを熱源とする熱交換器

人あたり1日5ℓづつ消費するものとして約70人を賄うことができる。この程度の人口の島が数多くあるギリシャにおいては極めて有効な利用方法と言えよう。

### 3. ストロンチウム

FP中のストロンチウムには、安定な<sup>86</sup>Sr、<sup>88</sup>Srと共に、放射性的<sup>90</sup>Srおよび<sup>91</sup>Srが含まれている。<sup>90</sup>Srは1.46MeVのβ線を放射して壊変するので、かなりの発熱を伴う。しかし半減期が52.7日であるため、比較的短期間で減衰する。これに対し<sup>91</sup>Srは0.54MeVのβ線を放射して<sup>91</sup>Yとなり、これが2.27MeVのβ線を放射して安定な<sup>91</sup>Zrとなる。<sup>90</sup>Srと<sup>91</sup>Yの半減期はそれぞれ27.7年および64時間であるので、<sup>90</sup>Srの発熱量は<sup>90</sup>Srの半減期によって支配される。従って<sup>90</sup>Srを利用する場合、少くとも<sup>90</sup>Srの減衰を待たないと発熱量の変化が大きくなる。

さて<sup>90</sup>Srは<sup>90</sup>Yの発熱量を伴うため、比熱出力が0.96Wth/gであり、半減期が約30年であることも加って、海洋中や陸上におけるエネルギー源として早くから注目されてきた。化学的性状としては表2に示すような化合物のうち、主としてSrTiO<sub>3</sub>またはSrOが用いられてきたが、米国ではFPSrの処分法とからんでSrF<sub>2</sub>の利用も検討されている。

表2 ストロンチウム熱源の物理・化学的性質

性質	SrTiO <sub>3</sub>	SrO	SrF <sub>2</sub>
比熱出力 (Wth/g)*	0.235	0.411	0.336
比放射能 (Ci/g)*	34.1	61.2	50.0
密度 (g/cm <sup>3</sup> )*	5.03	4.63	4.20
熱出力 (Wth/cm <sup>2</sup> )**	1.26	2.17	1.54
融点 (°C)	2,040	2,457	1,463

\* 95%Sr—5%Ca, Mg, Ba      \*\* 理論値

すなわち、1970年代に入り米国原子力委員会は、FP中最も問題となる<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csを分離・成形・密封して保管することとし、<sup>90</sup>SrはSrF<sub>2</sub>とすることを決定した。この保管容器は外径2,625"φ×20.1"の2重カプセルで、約1.5×10<sup>8</sup>Ci (1,020Wth) のSrF<sub>2</sub>を封入したものを標準としている。

この保管容器を1~7ヶそのまま使用して組立てたアイソトープ熱電発電機の特長試験によれば、表3のように4カプセル以上用いると、電気出力1Wあたりの重量、価格共に従来のものとの差が小さく、そのまま使用することができることを物語っている。

表3 <sup>90</sup>Sr保管容器を1~7ヶ用いて設計したアイソトープ熱電発電機の特長

容器数	熱電素子対数/モジュール数	電気出力 (W)	全重量 (ポンド)	熱電変換効率 (%)	製造コスト*/電気出力 (ドル/W)
1	42/1	69.8	1,975	6,838	1,424
2	—	157	2,850	7,696	987
3	144/4	249	3,450	8,137	795
4	—/4	336	4,010	8,235	699
5	252/4	424.6	4,575	8,323	643
6	—	518	5,110	8,464	608
7	360/6	607.6	5,625	8,508	601

\* <sup>90</sup>Sr 10セント/Ciとし1975年に計画製造するものとして試算

さて、これまで製造されてきたアイソトープ熱電発電機の大部分は<sup>90</sup>Srを熱源とし、主としてPbTe系熱電素子を変換素子とするものである。このようなアイソトープ熱電発電機は、米、英、仏、ソ連をはじめとして先進諸国において製造され実用化されてきたが、台数の多いのは米国である。

表4 1970年7月の米海軍の<sup>90</sup>Sr推定需要量(MCi)

RT発電機の電気出力(W)	1970	1971	1972	1973	1974	1975	1980	1990
0~1	0.035	0.035	0.035	0.035	0.10	0.15	0.50	2.0
1~5	0.04	0.06	0.05	0.05	0.30	0.50	0.20	8.0
5~10	0.105	0.175	0.245	0.385	0.70	1.05	3.50	7.0
10~25	1.40	1.70	2.10	2.30	3.0	3.50	10.0	50.0
25~100	0.30	0.30	0.60	0.60	1.20	3.0	9.0	30.0
100~1,000	0	0	0	0	2.50	5.0	5.0	250.0
1~10k	0	0	0	0	0	0	40.0	200.0
合計	1.88	2.27	3.04	3.38	7.80	13.20	70.0	547.0

表5 <sup>90</sup>Srと<sup>238</sup>Puの特性(表中WはWth)

	<sup>90</sup> Sr	80% <sup>238</sup> Pu
半減期(y)	27.7	87.4
出力密度(W/cm <sup>2</sup> )	1.0 (SrTiO <sub>3</sub> )	4.6 (PuO <sub>2</sub> )
γ線束(photons/s-W)	9.5×10 <sup>10</sup>	6.3×10 <sup>5</sup> (製造時) 1.8×10 <sup>6</sup> (10年後)
γ線エネルギー(MeV)	0.5~2.0	0.5~7.0
中性子束(n/s-W)	—	3.1×10 <sup>4</sup> (PuO <sub>2</sub> ) 8.8×10 <sup>3</sup> (Pu <sup>18</sup> O <sub>2</sub> )
10Wしゃへい厚さ	2.1インチ(ウラン)	なし
10年後のHe	—	2.52×10 <sup>-4</sup> mol/g
価格(ドル/W)現在	30	1,250
価格(ドル/W)将来	20	500
使用される化学形状	SrTiO <sub>3</sub> /Sr <sub>2</sub> TiO <sub>4</sub>	PuO <sub>2</sub>

米国では海軍用ということで国の予算に支えられて製造されてきたのである。1970年7月の米国海軍の<sup>90</sup>Sr所要量の見積り<sup>9)</sup>を表4に示したが、この表からこの間の事情を読みとることができる。この<sup>90</sup>Sr需要量は、原子力発電所から生成する<sup>90</sup>Srの総量と比べた場合、1990年代において約80%に達する。

これらの<sup>90</sup>Srアイソトープ発電器は、灯台、ソナービーコン、気象ブイなどの海洋での利用、および通信システムなどの陸上利用に実用化されており、その有効性がすでに確認されている。わが国の場合、これらの利用のほかに、地震計や雨ロボット、無人気象観測所などにも利用可能性がある。1968年に英国原子力委員会が民間と協力して行ったアイソトープ発電器の市場調査<sup>10)</sup>によれば、製造価格すなわちその大部分を占めるアイソトープの価格が低下すれば、利用が急激に増大するという結果をまとめている(図3)。

<sup>90</sup>Srアイソトープ発電器は、<sup>238</sup>Puを熱源としたものと競合する。電気出力0.4~2,100mWの既製のアイソトープ発電器15台について、動作特性、重量、寸法などを比較検討した結果<sup>11)</sup>によれば、<sup>90</sup>Srは数100mW以

上の場合に有利である。しかし一方英国の研究者達<sup>12)</sup>は10mW以上が経済的となるとしている。表5に両熱源の特性を示したが、いずれが経済的であるかはその熱源の価格によって左右されるので、宇宙利用以外のWオーダーの場合には<sup>90</sup>Srが有利であるといつてさしつかえない。

<sup>90</sup>Srはエネルギー源としての利用のほかに、β線照射線源や工業用計測器線源として用いられている。前者の場合は、<sup>90</sup>Sr面状線源から放射されるβ線を利用するものであり、塗膜のような薄物への照射効果が期待されている。後者はβ線厚さ計や硫黄分析計などであるが、使用放射能は極めて小さい。

4. セシウム<sup>13)</sup>

動燃団の再処理計画によれば、使用済み燃料中に含まれる<sup>137</sup>Csの量は、昭和55, 60, 65年の各年においてそれぞれ0.7, 1.9, 4.0tであり、FP中のCsは重量%で約41%の<sup>137</sup>Cs, 54%前後の<sup>133</sup>Csと<sup>135</sup>Csおよび3~4%の<sup>134</sup>Csから成る。このCsの同位体組成は表6のように、原子炉の運転特性によっても異ってくる。

表6 FP中のCsの同位体組成

原子炉型式	ウラン濃縮度	炉取出し時のCs組成(wt%)			1年後のキュリー比 <sup>134</sup> Cs/ <sup>137</sup> Cs	
		134	137	133と135		
BWR	2.50	20,000	2.87	40.6	56.5	0.75
	2.50	30,000	3.74	40.8	55.5	0.92
	2.50	40,000	4.40	41.2	54.4	1.15
	2.0	25,000	3.66	41.6	54.7	0.88
	3.0	25,000	3.05	39.9	57.0	0.83
PWR	3.25	20,000	2.84	41.9	55.3	0.73
	3.25	30,000	3.89	42.1	54.0	1.00
	3.25	40,000	4.78	42.4	52.8	1.22
	2.50	25,000	3.82	43.0	53.2	0.96
	3.00	25,000	3.51	42.3	54.2	0.90

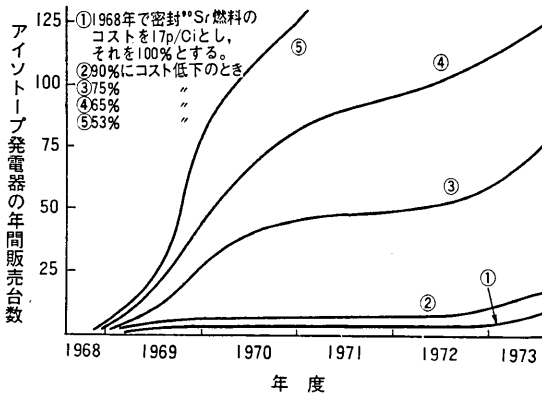


図3 <sup>90</sup>Srアイソトープ発電器の年間販売予想台数

表8 Coと動力炉Cs線源の性能の比較

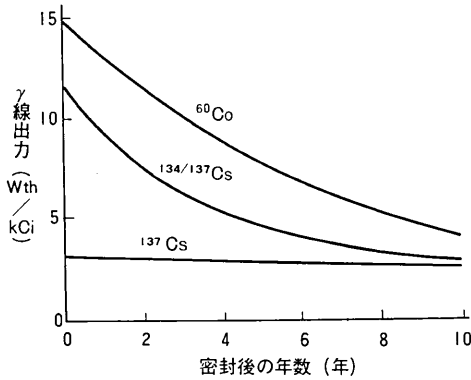


図4 <sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Cs, <sup>134/137</sup>Cs線源のγ線出力の経年変化

すなわち、半減期 $2 \times 10^6$ 年の<sup>135</sup>Csと安定な<sup>133</sup>Csとで全体の1/2以上を占め、放射性的<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの放射能比は0.7~1.2と大きく変る。これは<sup>133</sup>Csが中性子を捕獲して<sup>134</sup>Csになるからである。いま代表的な比として表6の4行目の0.88を採用した場合、γ線だけによる比熱出力の経年変化は図4のようになる。

このように使用済燃料から分離されたセシウムは、ほぼ等量の放射能の<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csを含む混合物である。これを<sup>134/137</sup>Csと記し、動力炉Cs線源(Power Reactor Cs Source)と称することがある。<sup>134</sup>Csの半減期は2.1年であるが、<sup>134/137</sup>Csの合成半減期は図4からもわかるように、利用上の競合相手である<sup>60</sup>Coの半減期5.2年に近くなる。表7にこれら3核種の放射特性を示した。

<sup>137</sup>Cs線源の価格は<sup>60</sup>Co線源の約1/2であるが、熱出力が1/4にすぎないため、放射線遮蔽上の理由のように特殊な事情がない限り、<sup>60</sup>Co線源と競合し難い。<sup>60</sup>Co線源と競合するのは<sup>134/137</sup>Cs線源であり、表8に両線源の性能の比較を示した。

この表の最下欄から分るように、照射線量率の大きいγ線源が必要な場合は、<sup>60</sup>Coの方が有利であるが、γ線照射利用においては、一般に照射線量率よりも照

表7 3核種の放射特性

	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>60</sup> Co
半減線(年)	2.10	30.2	5.26
比放射能(Ci/g)	1,271	86.5	1,131
壊変熱エネルギー(Wth/Ci)			
γ (×10 <sup>-3</sup> )	9.48	3.35	14.9
β (×10 <sup>-3</sup> )	0.85	1.0	0.56
比熱出力(Wth/g)			
γ	12.05	0.29	16.8
β	1.08	0.084	0.64

線源の区別	Co-1	Cs-2	Cs-3
アイソトープ	<sup>60</sup> Co	<sup>134/137</sup> Cs	<sup>134/137</sup> Cs
長さ(in)	12	21	21
外径(in)	0.303	0.6	1.1
SS被覆の厚さ(in)	0.026	0.04	0.04
RIの重量(g/線源)	86.6	161	644
比放射能(Ci/gr) Co-60	50		
Cs-137		23.8	23.8
Cs-134		20.9	20.9
全放射能(Ci) Co-60	4,330		
Cs-137		3,830	15,320
Cs-134		3,370	13,500
自己吸収(%)	20.3	19.0	27.7
放出γ線エネルギー(%)	79.7	81.0	27.3
放出γ線強度(Wth/ft <sup>2</sup> )	1,020	208	403

射線量の総量が問題であり、かつ被照射物質が均一な線量を受けることが重要である。これらとγ線の遮蔽の難易をふくめて検討するとき、両線源に優劣をつけ難くなる。従って、いずれの線源を利用するかは、線源のコストと線源に対する好みによって決められることとなる。

米国ではPNL (Pacific Northwest Laboratory) に大量に貯蔵中の再処理廃液から、<sup>137</sup>Csと<sup>90</sup>Srを分離・精製・固化・密封して、強制循環冷水プール中に保管しつつあるが、その年間処理量は1,000万Ciと言われている。<sup>134</sup>Csが減衰しているため、<sup>137</sup>Csの放射化学的純度は98%以上であり、残り2%が<sup>134</sup>Csである。化学的形状はCsClで、これをステンレス鋼316Lで作った内側容器(2 $\frac{1}{4}$ "×20"×95ミル)内にとかして流し込み固化させてから密封し、さらにこれを外側容器(2 $\frac{5}{8}$ "×21"×109ミル)に2重封入して保管している。1個あたりの放射能は約60kCiである。

この<sup>137</sup>Csは、需要に応じて10セント/Ciの価格で60kCi単位に売却されるとのことである。この価格は<sup>60</sup>Co線源の標準価格である40セント/Ciと比べると、そのγ線出力の比1:4と同じとなり、このような<sup>137</sup>Csを利用する限り、両線源が共存しうることを物語っている。しかし塩化セシウムは水溶性なため、難溶性でしかも高温で安定な、TaやNbとの合金やセラミック状の線源の開発が行なわれている<sup>14)</sup>。

<sup>137</sup>Csはラジオグラフィやγ線応用計測器に古くから利用されてきたが、γ線照射用としては<sup>60</sup>Coにかなわなかった。しかし、半減期が数倍も長いこと線源補充の手間が省けること、およびγ線エネルギーが小さく遮蔽が容易であるという特長を持っている。例えば、同一出力の場合の遮蔽材が、<sup>137</sup>Csを用いたとき、コンクリートで20%、鉛で4%節約することができる。

この特長を生かし、移動式照射装置の線源として、

フランス, アメリカ, カナダ, ソ連などにおいて, 10~170kCiの<sup>137</sup>Csが用いられてきた. フランスのIRMA-400装置は最高400kCiまで装着可能であり, 得られる線量率も最高 $1.2 \times 10^6$ R/hと称されている. 主として食品照射, WPCの製造, 医療器具の滅菌などに用いられ, その処理能力は, 所要線量0.3Mradの魚類照射の場合に200kg/h, WPC(所要線量1~2Mrad)の場合に30~60kg/h, 医療器具(所要線量2.5Mrad)の場合に10~15kg/hである.

さて<sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Csおよび<sup>134</sup>/<sup>137</sup>Csの3線源が競合するものとし,  $\gamma$ 線照射利用のすべてをいずれか一つの線源で賄うものと考えた場合のそれぞれの線源の年間需要数量(MCi)は図5のようになる. この試算は, 食品照射, 放射線化学, 医療品滅菌, 污水处理などへの利用のうち, 食品照射利用がかなり開発されており, 大規模な污水处理利用が未開発であると仮定して, Woodら<sup>15)</sup>が行ったものである.

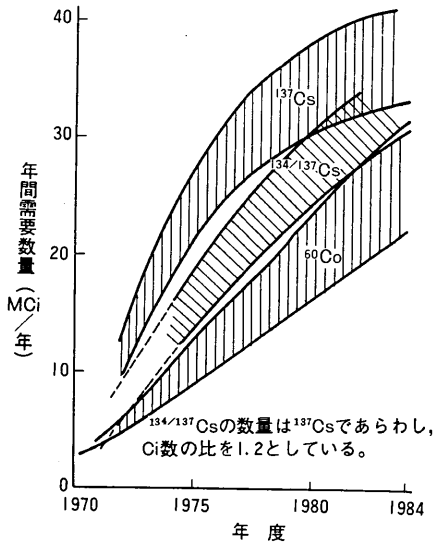


図5 3線源のいずれかで $\gamma$ 線照射利用をすべて代用したときの需要数量の推定

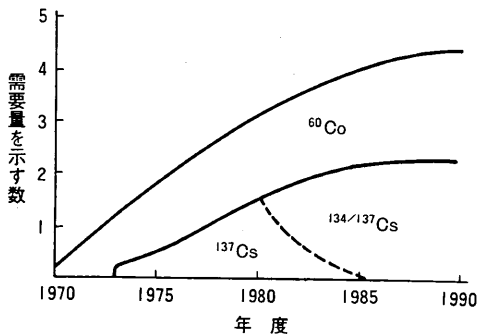


図6 <sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Cs, <sup>134</sup>/<sup>137</sup>Cs線源の需要予測

Mckee<sup>13)</sup>は, 縦軸をたとえば<sup>60</sup>Co等価Ci数であらわし, これら3線源の米国における需要の予測を試み, 図6をまとめた. これによると, <sup>134</sup>/<sup>137</sup>Csは1980年代より<sup>137</sup>Csにとって変ることとなり, かつ依然として<sup>60</sup>Coの需要が大きいたことがわかる. この場合の<sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Csおよび<sup>134</sup>/<sup>137</sup>Csの価格は, それぞれ, 40, 12~15, 30~33セント/Ci(<sup>134</sup>/<sup>137</sup>CsのCi数は<sup>137</sup>CsのCi数)である. 需要が増大し, <sup>60</sup>Coの大量製造が行なわれるようになるにつれ, <sup>60</sup>Coの価格低下が予想されるので, <sup>134</sup>/<sup>137</sup>Csの利用を増加させるには25~30セント/Ciで供給できるだけの製造体制の確立と需要量の拡大が望まれる.

なお, わが国における<sup>60</sup>Co照射線源の需要推定量をそのまま<sup>137</sup>Csに換算すると表9のようになる. <sup>137</sup>Csの代わりに<sup>134</sup>/<sup>137</sup>Csを用いる場合は, 表中の数値を1/2程度に読み直す必要がある.

表9 わが国の $\gamma$ 線照射線源をすべて<sup>137</sup>Csで代用したときの推定需要数量(単位kCi)

年 度	1975	1980	1985	1990	2000
放射線化学用	300	480	720	1,000	—
食品照射用	196	868	3,160	6,640	—
殺菌滅菌用	140	320	470	1,680	2,400
その他の医学・工業用	30	70	110	400	—
計	666	1,738	4,460	9,720	—

### 5. プロメシウムとセリウム

<sup>147</sup>Pmは半減期2.6年の低エネルギー $\beta$ 線放射核種で,  $\gamma$ 線とX線を放射しないために, 遮蔽が容易である. 従って, 外部への漏洩放射線を少なくして使用する必要がある場合の熱源や原子電池, 夜光塗料などの自発光源, 工業用放射線応用計測器線源などに用いられてきた.

酸化プロメシウムを焼成したペレット状のものが熱源として用いられ, 米国では, 寸法1.5"φ×1.5"熱出力約65Wthのものが軍用に製造されている.

<sup>147</sup>Pmを用いた原子電池には, ウェーハー状のp, n接合型シリコン素子と<sup>147</sup>PmO<sub>2</sub>薄板を何層か重ねたいわゆる $\beta$ 電池と,  $\beta$ 線を蛍光物質にあてて生ずる蛍光を太陽電池で電気出力に変換するものがある. 前者は, 電気出力370 $\mu$ W, 外寸法2.3φ×2.44cmの, 図7のような電池<sup>16)</sup>が米国のDouglas社から売り出されており, 心臓ペースメーカー用電源として人体内に埋め込まれている.

後者の場合は, 10Ci/cm<sup>2</sup>程度の<sup>147</sup>Pmを用い, 蛍光効率10%のZnCdS:Agと光電効率5%のシリコン光電池を組み合わせたものが試作<sup>17)</sup>されている. このときの熱電変換効率は全体で0.5%前後であるが, 蛍光

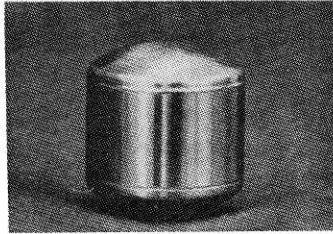
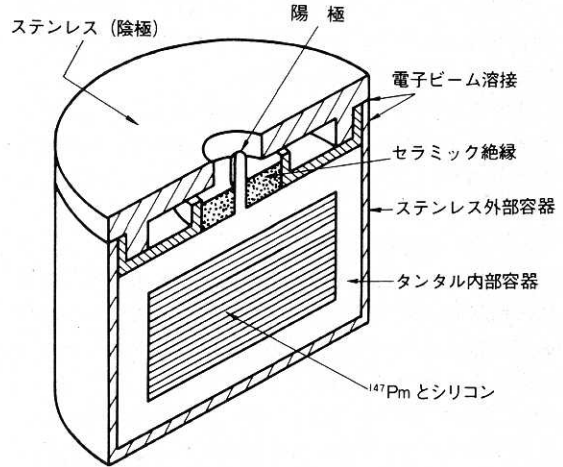


図7(a)  $^{147}\text{Pm}$ ベータ電池 (実物大)



(b)  $^{147}\text{Pm}$ ベータ電池の構成

物質調製中に生ずる発光量の減少を避けることができれば、全効率を1%に近づけることが可能となる。

自発光源としては、時計用の夜光塗料が最も有名である。国内では時計1個あたり $100\mu\text{Ci}$ 以下を使用しているが、外国では $250\mu\text{Ci}$ 以上の $^{147}\text{Pm}$ を用いた時計も売り出されている。また米国では、 $^{147}\text{PmO}_2$ を溶出しにくいガラス状の小球に成型し、この小球を並べた夜光標識<sup>18)</sup>が実用化されている。このほか、 $\beta$ 線透過型厚さ計用線源や $\beta$ 線励起X線源としても用いられている。

$^{147}\text{Pm}$ を大量に使用する場合に問題となるのは $^{146}\text{Pm}$ の混在である。 $^{146}\text{Pm}$ は半減期が短いのですぐ減衰しそれほど問題とならない。しかし $^{146}\text{Pm}$ は半減期が4.4年でしかも $0.45\sim 0.78\text{MeV}$ の $\gamma$ 線を放射するので、その生成量をできるだけ少くしなければならない。

$^{146}\text{Pm}$ の放射化断面積が3,500バーンで極めて大きいことを利用し、 $^{147}\text{Pm}(n, 2n)^{146}\text{Pm}$ 反応を押える条件で $^{147}\text{Pm}$ と $^{146}\text{Pm}$ の混合物を原子炉内に入れて中性子照射し、 $^{146}\text{Pm}(n, \gamma)^{147}\text{Pm}$ 反応によって $^{147}\text{Pm}$ に変換し、 $^{146}\text{Pm}$ を0.1ppm以下に減少させる技術<sup>19)</sup>が確立された。

$^{144}\text{Ce}$ は、FPからかなり大量に生成し、半減期0.78年で高いエネルギーの $\beta$ 、 $\gamma$ 線を放出するため、比熱出力が $25.6\text{Wth/g}$ と極めて大きく、エネルギー源として有望である。米国やソ連において、初期のアイソトープ発電機の熱源として $^{144}\text{CeO}_2$ が用いられたのは、正にこのためである。しかし、半減期が短いためにその後使用されなくなっている。 $^{144}\text{Ce}$ はこのほかに $\beta$ 線厚さ計用の線源としても使用されている。

6. 希ガス<sup>20)</sup>

FP中のKrとXeガスは表10のように、大気中に元来

表10 FPと大気中のKr, Xeの組成

同位元素	FP生成物(%)	大気中(%)
Kr 78	—	0.354
	—	2.27
	0.2	11.56
	11	11.55
	31	56.90
	6	—
	52	17.37
Xe 124	—	0.096
	—	0.090
	0.01	1.92
	0.08	26.44
	0.04	4.08
	10.34	21.18
	16.61	26.89
	29.21	10.44
	43.70	8.87

存在する希ガスの同位体組成と異なるが、使用済み燃料を再処理するために溶解するとき生ずる排ガスから、比較的簡単に捕集できる。また他の物質と反応しにくい性質を持っているため、放射線障害を人体に与えることも少なく、各種の利用が考えられている。

FPKrガスは、表10のように約6%の放射性核種 $^{85}\text{Kr}$ を含むほかは、すべて安定な核種である。 $^{85}\text{Kr}$ は半減期10.76年で $0.67\text{MeV}$ の $\beta$ 線を放出して壊変するが、0.4%の壊変率で約 $0.5\text{MeV}$ の $\gamma$ 線を伴い、比熱出力が $0.623\text{Wth/g}$ である。

FPKrガスは大部分が安定なKrから成るため、 $^{85}\text{Kr}$ の有用性を著しく制約している。再処理工程で捕集さ

れる<sup>85</sup>Krに大気中のKrが混入し、実際に得られる<sup>85</sup>Krの存在比率は約5%となる。この<sup>85</sup>Krは厚さ計やβ線励起蛍光X線分析装置のβ線源、煙探知器、放電管の特性改善などに用いられるほか、トランジスタなどの小型部品の気密性試験にも使われてきた。これらはいずれも1台または1回あたりの使用数量が100mCi以下であり、このほかに以下の大量利用が考えられている。

一つは放射線照射利用<sup>6)</sup>であり、密封線源によるβ線の飛程内の表面層の物理化学的特性改善、および原研高崎研で開発した半密封照射方式による気体や液体の反応促進と、固体や粉体の表面処理である。後者はいずれも密封槽内で照射するのであるが、照射後の<sup>85</sup>Krの回収、照射条件など今後一層の研究が望まれる。

もう一つは自発光源としての利用である。β線のエネルギーが<sup>147</sup>Pmと比べて2倍以上であり、かつ半減期も4倍近いために長期間発光し続け、かつ<sup>147</sup>Pmを用いた夜光時計よりも1,000倍も明るい自発光源が得られる。<sup>85</sup>Krガスを気密な小容器中に封入し、容器の内壁に蛍光塗料を塗ったものが使われている。1ヶあたり1Ciの<sup>85</sup>Krを含む小容器65個から成る交通標識が米国で試用<sup>21)</sup>されている。

以上のほか、<sup>85</sup>Krを各種の物質に包接させた、いわゆるクリプトネート物質を利用して摩耗度合や温度測定素子の取付けができない箇所の温度測定および自動車排気ガスの測定などへ利用する方式が開発されている。また<sup>85</sup>Krイオンを金属箔に注入してβ線源、リークテスト線源、自発光源に利用しようという研究<sup>22)</sup>も進行中であり、Al, Sn, Pb, Cu, Ni箔の中でAlが最良であると報じられている。

このような<sup>85</sup>Krの利用を一層有利なものとするために、<sup>85</sup>Krを簡単に濃縮する研究が数年来米国において行われている。すでに試験的には熱拡散カラムによる45~50%までの濃縮方式が確立され、4.5mの長さのカラムで分離率と平衡時間の測定が行われている<sup>23)</sup>。こうして得られた約50%の<sup>85</sup>Krを用いると、自発光標識の明るさの改善だけでなく、熱源としての利用も可能となってくるので、FPからの<sup>85</sup>Krのすべてを利用しつくすこととなろう。

XeガスはFPから最も多く生成する元素であり、放射性核種も生成するが、いずれも半減期が短いために、再処理時には殆んど安定核種のみとなり、FPKrと同時に捕集される。このため利用に際しては、<sup>85</sup>Krの混在率をできるだけ少くすることが重要である。

FPからの廃ガス中で問題となる放射性核種は<sup>85</sup>Krのみであるが、その大部分がXeである。従って、両者を分離することは、Xeの利用にとって必要なだけでなく、<sup>85</sup>Krの保管容積を減らして貯蔵コストを下げるためにも要求されている。

原子炉から取り出してから1年後のFPXe中のXeの放射能は減衰により $10^{-10}$ Ci/l程度しか含まれていない。放射能が問題となるのは混在する<sup>85</sup>Krによるものである。さて、KrとXeの分離技術は現在5ppm程度まで可能となっているので、FPKr中の<sup>85</sup>Krを6%、Krと分離したFPXe中のKr濃度を5ppmとすれば、<sup>85</sup>KrによるFPXe放射能濃度は約450μCi/lとなる。

米国ORNL (Oak Ridge National Lab.) ではこの濃度のFPXeは、一般に使用するには放射能が大きすぎるので、低温ガスクロマトグラフ法によって、<sup>85</sup>Krの濃度0.05~1μCi/lのFPXe2,450lを精製した。<sup>23)</sup>このXe純度は99.7%で、Xeに換算した<sup>85</sup>Kr濃度は10ppb以下となる。残りの3%の大部分は窒素である。この程度のFPXeは容積100m<sup>3</sup>のキセノン電球用としても安全に使用することができる。

大量の利用が考えられる人体を麻酔させるガスとして、果して使用可能かどうか、米国原子力委員会の委託研究をうけてPNL (Pacific Northwest Lab.) で研究中である。またXeガスシンチレーターや電離箱として利用する目的で、上述のFPXeをさらに精製する研究も行われている。このほか、FPXe中に微量の<sup>85</sup>Krが含まれていることを逆用した、電子管の内部圧力や気密性、機能劣化を検査する方式、深さ $\frac{1}{1000}$ インチ、巾 $\frac{1}{10000}$ インチ程度の微小欠陥の非破壊検査方式などが試みられている。

以上がFPXeの主な用途であるが、大気から精製されるXeガスは極めて高価であるのでFPから大量に生成するXeの積極的利用を推進する必要がある。

## 7. 貴金属元素とTc<sup>24, 25)</sup>

これらの元素のうち、放射性核種の特性は表11のとおりである。<sup>107</sup>Pdを除き半減期はいずれもそれ程長くはないので、減衰を待てば使用可能な比放射能の元素となる。しかし多少とも放射性核種を伴うので、利用に際して、環境への放射能分散を避けること、とりわけ自然から精製した元素に混入させて汚染を拡散させないこと、およびこれらを使用している装置や器具を操作する人に放射線障害を与えないことが重要である。

RhのFPは安定な<sup>103</sup>Rhだけであるが、<sup>103</sup>Rh(n, 2n)<sup>102m</sup>Rh。<sup>102</sup>Rh反応によって、<sup>102m</sup>Rh(半減期3.4年)と<sup>102</sup>Rh(半減期206日)が混入してくる。燃焼率33,000MWd/tの軽水炉FPから燃料を取り出した時点で、Rh1gあたり<sup>102m</sup>Rhと<sup>102</sup>Rhが、それぞれ約0.3mCi, 2mCi混入しておりいずれもγ線を放出する。

したがって、冷却期間が短い場合には、FP生成Rhからの照射線量率はかなり大きくなる。一例を挙げると、90%Pt, 10%FPRhの白金触媒20kgを硝酸工場 で用いた場合、炉から取り出し時には<sup>102</sup>Rh 1.9mCi/g



表11 放射性Rh, Pd, RuおよびTc核種の核特性

核種	半減期	壊変形式	β線(MeV)	γ線(MeV)	比放射能(μCi/g)
<sup>102</sup> Rh	206日	β <sup>-</sup> , β <sup>+</sup> , EC	1.29	(%) 0.475(57) 0.511(25) 0.632(54) 0.698(41) 1.110(22)	1900
<sup>102m</sup> Rh	3.4年	EC	なし	0.418(13) 0.475(95) 0.632(54) 0.768(30) 1.050(41) 1.110(22)	290
<sup>107</sup> Pd	7×10 <sup>6</sup> 年	β <sup>-</sup>	0.035	なし	81
<sup>103</sup> Ru	39.6日	β <sup>-</sup>	0.217	0.497(88) 0.610(6)	5×10 <sup>6</sup>
<sup>106</sup> Ru	367日	β	(2) 3.54	(3) 0.512(21) 0.622(11) 1.050(1.5) 1.130(0.5) 1.550(0.2)	5×10 <sup>6</sup>
<sup>100</sup> Tc	2.12×10 <sup>6</sup>	β	0.292	なし	1.7×10 <sup>6</sup>

- (1) 炉取り出し時のFP中の比放射能
- (2) <sup>106</sup>Ru $\xrightarrow{\beta^-}$ <sup>106</sup>Rhでできる<sup>106</sup>Rhからのβ線である。<sup>106</sup>Ruのβ線は、0.0392MeVでありγ線はない。
- (3) <sup>106</sup>Rhのγ線である。

<sup>102m</sup>Rh 0.29mCi/g あって1mで1R/hを越すが、5年後および20年後ではそれぞれ250mR/h, 10mR/h以下となる。この程度の照射線量率になれば、十分な管理を行えば使用可能であり、製品への放射能汚染は皆無となろう。

Rhは白金の代用品としてメッキや熱電対などに用いられ、もっとも有望なFP生成貴金属である。1973年中頃2,500円/gで表1の1985年におけるFPRhの生産量360kgをこの目的に使用すれば、国内のRhの需要のかなりをまかなうことが可能である。

Pdの生成量はかなり多く、Pd-104~110の7核種が生成する。このうち放射性核種は表11のように半減期7×10<sup>6</sup>年の軟β放射体(約35keV)<sup>107</sup>Pdのみである。しかし、<sup>106</sup>Ru $\xrightarrow{\beta^-}$ <sup>106</sup>Rh $\xrightarrow{\beta^-}$ <sup>106</sup>Pdで生成する<sup>106</sup>Pdもかなりの量となるので、Pdの同位元素比は冷却期間によって若干変化する。核燃料をとり出してから3.5年たてば、<sup>106</sup>Ruの90%は<sup>106</sup>Pdに壊変するので、このときの<sup>107</sup>Pdの同位体比を16.9wt%とすれば、<sup>107</sup>PdによるFPPdの比放射能は81μCi/gとなる。

FPPdは長半減期核種を含むため、冷却期間を置いても放射能を減らすことができない。しかし、γ線を

放出せず、軟β線(35keV)しか放出しないので、簡単な遮蔽を施すことにより、取扱者の外部放射線被曝を無視することができる。

8cm×8cmのNi板上に0.5gのFPPdを電着すると8mg/cm<sup>2</sup>のPd層となり、<sup>107</sup>Pdのβ線の飛程4mg/cm<sup>2</sup>の2倍の厚さになる。この電着板からの照射線量率は、7mg/cm<sup>2</sup>の吸収層を置いた時OmR/hで、吸収層がないときは800mR/hである。7mg/cm<sup>2</sup>の厚さは皮層の表皮の厚さと等価であり、かりに外部放射線障害があったとしても、皮層表面に限定されることを意味している。

Pdは1,000円/g程度の貴金属で、化学反応触媒、特殊合金用元素および耐食材料、電気接点材料として用いられており、FPPd 0.79mgを含む巾0.51mm、厚さ0.06mmのリレー接点を皮膚に密着させた場合の外部線量率は1.6ラド/hで、すべて表皮で吸収される。

RuはFP取り出し時の放射能が極めて大きい。Ru-99~102および104の安定核種のほかに、<sup>103</sup>Ruと<sup>106</sup>Ruの高エネルギーγ線放射核種が生成するからである。このうち、<sup>103</sup>Ruは半減期約40日であるから、FPの分離精製時にはかなり放射能が減衰している。従ってFPRuの放射能を左右するのは、半減期約1年の<sup>106</sup>Ruである。

<sup>106</sup>Ruは39.2keVのβ線のみを放出して壊変し、半減期30秒の<sup>106</sup>Rhとなる。従って<sup>106</sup>Ruからの外部照射線量率は<sup>107</sup>Pdと同様に殆んど問題がない。ただ放射平衡にある娘核種<sup>106</sup>Rhからのβ線およびγ線が伴うので、外部照射線量率、比熱出力ともに大きくなる。

FPRuの比放射能は、同じ形式の原子炉でも設計時点の相異により若干異なるが、<sup>106</sup>Ruの放射能のみを考えた場合、245Ci/g前後である。娘核種<sup>106</sup>Rhが3.54MeVのβ線を放出するので、比熱出力は表1に見られるように33.1Wth/gとなり、FP生成核種の中で最高であるが、安定な核種を多量に含むため実際は2.1~2.6Wth/gとなる。

この値はかなり大きいので、金属状の熱源としての利用が考えられる。熱出力は1年ごとに半減するので交換可能な場合に限られるが、無用となった熱源は約30年経てば放射能のないPdとなり、貴金属元素固有の触媒や合金元素として再使用することができる。

Rh, Pd, Ruは南アフリカ, ソ連, カナダの3国で全世界の生産の98%を占めており、他国はこれら3国から輸入して使用している。Clarkらの市場調査<sup>26)</sup>によれば、これらの貴金属に対する需要が増大するのは20数年後と考えられ、それまでは白金の代用品であるRhを除き、特別な場合以外はFPを利用せざるを得ないような状況にはならないものと述べている。

TcはFPからしか生成しない元素であり、100%<sup>99</sup>Tcの形で分離される。<sup>99</sup>TcはFP中での生成率も大きく

約0.3MeVのβ線のみ放出し、半減期 $2.1 \times 10^5$ 年で壊変する。その比放射能は16.98mCi/gで、(n, 2n)反応によってγ線を放出する極微量の<sup>98</sup>Tc(半減期 $1.5 \times 10^6$ 年)を伴う可能性があるが、現在までのところ検出されていない。

<sup>99</sup>Tcのβ線の飛程は80mg/cm<sup>2</sup>以下なので、大量に取扱う場合にゴム手袋を2重に着用すれば、取扱者の手の被曝をさけることができる。Tcを白金解媒の代りに使用する試みや、Reの代りの合金元素としての利用法などが検討されているが、いまだに有効な用途は開発されていない。

8. 短半減期核種

核反応の直後には、原子番号95および140附近に最大収率をもつ200種以上の核種が生成している。したがって、原子炉取り出し直後にこれらの核種を分離すると、数多くの各種のアイソトープを同時に製造することができる。このとき得られる核種は、ほとんど無担体であり、原子炉内で(n, γ)反応によって製造されるアイソトープより、極めて高い比放射能を持つ。

ORNLにおいては、<sup>89</sup>Sr, <sup>90</sup>Y, <sup>91</sup>Y, <sup>95</sup>Nb, <sup>95</sup>Zr, <sup>99</sup>Mo, <sup>103</sup>Ru, <sup>132</sup>Te, <sup>131</sup>I, <sup>132</sup>I, <sup>140</sup>Ba, <sup>133</sup>Xe, <sup>143</sup>Pr, <sup>147</sup>Ndなどの短寿命アイソトープの製造が行なわれて

おり、この中需要の多い核種は<sup>99</sup>Mo, <sup>131</sup>I, <sup>133</sup>Xeで主に医学方面に用いられる。

<sup>99</sup>MoのFP中における収率は6%程度で、同時にはほぼ同じ収率で安定同位元素<sup>95</sup>Mo, <sup>97</sup>Mo, <sup>98</sup>Mo, <sup>100</sup>Moが生成する。<sup>99</sup>Moは半減期66.7時間で<sup>99m</sup>Tc(半減期6,049時間)に壊変し、この娘核種が表12のように、巾広く各種臓器の診断に用いられている。アメリカの核医学会で口頭発表された論文文中に取り扱われた放射性医薬品の延件数を核種ごとにまとめ、その比率の多いものから5種を表示すると、表13のようになり、1972年で50%をこえている。わが国においても、1971年以来放射性医薬品のうち最も利用数量の多い核種となった。

このように<sup>99m</sup>Tcが賞用される理由は、核異性体転移により140keVのγ線および19keVのTcKX線、120~137keVの変換電子などを放出し、かつ半減期も短いため、人体内に大量に投与(~20mCiに及ぶ)でき、しかも140keVのγ線が、良質の画像を得るのに最適なためである。

表13からもわかるように<sup>99</sup>Moのほか、<sup>131</sup>Iと<sup>133</sup>Xeがかなり多量に使用されている。<sup>131</sup>Iは沃素が甲状腺ホルモンの構成元素であり、甲状腺と特殊な関係があることを利用し、甲状腺の機能検査や治療に古くから用いられてきた。また沃素は蛋白質や種々の有機化合物と結合し易いため、医療用標識化合物としても賞用されている。

<sup>133</sup>Xeは半減期5.27日で81keVのγ線を放出する。希ガスであるために生物学的半減期が短かく、肺を1回通過するときに、その95%以上が血液の中から気相に移ってしまい、ほとんど循環しない。このため肺機能や脳循環を中心とする血流測定用に最適である。

<sup>131</sup>Iと<sup>133</sup>XeはFP中でそれぞれ3%、6~7%生成する。<sup>131</sup>Iの場合は<sup>129</sup>Iを除き、生成する同位元素の半減期より長く、約8日であるので、<sup>129</sup>Iとの分離が問題となってくる。<sup>133</sup>Xeの場合は、同時に生成する同位元素のすべてが安定核種であり、かつ希ガスであるため捕集しやすい。

原子炉によっても<sup>99</sup>Moや<sup>131</sup>Iの製造が可能であるが、製造量だけでなく比放射能の点でも、FP処理によるものよりはるかに劣っている。FPから分離しなくとも、<sup>235</sup>Uの一部を再循環させると、 $10^{13}$ 程度の中性子束密度の原子炉において大量に製造することが可能である。

さてFPから<sup>99</sup>Moを分離精製する場合<sup>27)</sup>、他の短寿命核種、例えば<sup>131</sup>Te, <sup>133</sup>Xeなどを同時に分離し利用しないと経済性が低くなる。U-Al合金(93%<sup>235</sup>U)55gを $2 \times 10^{14}$ n/cm<sup>2</sup>・secで7日照射し、2日冷却後、分離し約900Ciの<sup>99</sup>Moが得られる。

この場合まず<sup>131</sup>I, <sup>133</sup>Xeをできるだけ除去しないと

表12 <sup>99m</sup>Tcの臨床応用

<sup>99m</sup> TcO <sub>4</sub>	脳スキャン、唾液腺スキャン、胃スキャン、アイソトープ血管造影法、関節スキャン
<sup>99m</sup> Tc ヒト血清アルブミン	心プールスキャン、胎盤スキャン、心送血量肺スキャン(換気)
<sup>99m</sup> Tc マクロアグリゲート	肺スキャン(血流)
<sup>99m</sup> Tc マイクロスフェア	気道粘膜機能
<sup>99m</sup> Tc Sコロイド	肝スキャン、脾スキャン、骨髄スキャン、リンパ腺スキャン
<sup>99m</sup> Tc ミクロアグリゲート	肝・脾スキャン
<sup>99m</sup> Tc Fe 錯体	腎スキャン
<sup>99m</sup> Tc ゼラチン	腎スキャン
<sup>99m</sup> Tc ジアトリゾート	腎スキャン
<sup>99m</sup> Tc コログラフィン	} GFR
<sup>99m</sup> Tc DTPA	
<sup>99m</sup> Tc ポリ磷酸(PP46)	骨スキャン

表13 米国で研究に多用された放射性医薬品

	1969年(%)	1970年(%)	1970年(%)	1972年(%)
1	<sup>99m</sup> Tc 38	<sup>99m</sup> Tc 40	<sup>99m</sup> Tc 45	<sup>99m</sup> Tc 51
2	<sup>131</sup> I 21	<sup>131</sup> I 16	<sup>131</sup> I 16	<sup>131</sup> I 11
3	<sup>113m</sup> In 12	<sup>133</sup> Xe 11	<sup>67</sup> Ga 7	<sup>67</sup> Ga 6
4	<sup>133</sup> Xe 5	<sup>113m</sup> In 7	<sup>18</sup> F 6	<sup>133</sup> Xe 6
5	<sup>51</sup> Cr 4	<sup>131</sup> I 4	<sup>133</sup> Xe 5	<sup>51</sup> Cr 4

製品の純度が上らないので、溶媒抽出等の精製サイクルを繰返し、ついでアルミナに $\text{MoO}_4^{2-}$ と $\text{TeO}_4^{2-}$ が選択的に吸着されることを利用して、1M  $\text{NH}_4\text{OH}$ で $^{99}\text{Mo}$ の80%、3M  $\text{NaOH}$ で $^{132}\text{Te}$ の70%が回収される。オーストラリアでは、天然ウラン $\text{UO}_2$ ペレット16gを $4 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で7日照射15時間冷却し、 $^{3}\text{Ci}$ の $^{99}\text{Mo}$ を上記の方法で製造している。

米国では、U-A1合金を照射後 $\text{NaOH}$ に溶解し、このとき気体状で放出される $^{133}\text{Xe}$ をモレキュラシープによって精製、溶液に移った $^{131}\text{I}$ および $^{99}\text{Mo}$ は、硫酸酸性溶液として蒸留することによって $^{131}\text{I}$ を、また残留液をD2 EHPA(ジ-2-エチルヘキシルリン酸ケロシン)で抽出精製して $^{99}\text{Mo}$ を得ている。ウランの沈澱中に残ったその他のFPは、陽イオン交換法やアルミナカラム法によって精製している。

一方最も需要の多い $^{99}\text{Mo}$ は現在主として $^{99}\text{Mo}(n, \gamma)$  $^{99}\text{Mo}$ によって製造提供されている。すなわち、 $\text{MoO}_3$ や金属ターゲットを原子炉で照射し、短寿命の誘導放射性核種 $^{92m}\text{Nb}$ や $^{98}\text{Nb}$ などの不純物の冷却を待って、アンモニアまたは $\text{NaOH}$ に溶かす。Moターゲット中の不純物ReはMo、Tcとの分離が困難なので予め除去しておく必要がある。

さて、FP法と $(n, \gamma)$ 法による $^{99}\text{Mo}$ から得られる $^{99m}\text{Tc}$ の放射性純度は表14のとおりである。FP法によるものの方が不純物が多い。しかし、FP法によるものは比放射能が著しく高いので、 $^{99m}\text{Tc}$ 溶液の液量が非常に少なく済むという長所を持っている。従って、1日に2回ミルクングして使うことも可能であるし、また種々の $^{99m}\text{Tc}$ 標識化合物を製造する場合に便利である。問題は値段が極めて高いことである。

$(n, \gamma)$ 法による $^{99}\text{Mo}$ の比放射能をあげるために、濃縮した $^{98}\text{Mo}$ ターゲットの使用が考えられるが、 $^{98}\text{Mo}$

表14 FPと $(n, \gamma)$ 法による $^{99m}\text{Tc}$ 中の放射性核種純度(10<sup>-4</sup>%)

	定量例	$^{99}\text{Mo}$	$^{131}\text{I}$	$^{132}\text{I}$	$^{140}\text{La}$	$^{163}\text{Ru}$
FP $^{99}\text{Mo}$	25	7	0.5	1.5	0.5	0.1
$(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$	8	4	0.1	—	—	—

の存在比が23.78%であるため、かりに98.78%に濃縮したものをを用いたとしても、改良係数は4にすぎず、高価となるだけである。

さて、最近の核医学者の推定によると、1975年に $^{99}\text{Mo}-^{99m}\text{Tc}$ の $\frac{1}{3}$ がFPからのものとなる可能性があるといわれており、また日本原子力研究所においてもFPからの $^{99}\text{Mo}$ の製造研究が行なわれつつある現在、FP処理施設の建設いかにかかっているといえよう。

$^{98}\text{Mo}$ 、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{133}\text{Xe}$ の利用は、表13や先に述べた国内の利用現状から明らかなように、我が国においても急激に増加しつつある。原研の試算によれば、1975年度の $^{99}\text{Mo}$ の国内の需要は600~3,600Ciに達するものとされている。したがってFP中の $^{99}\text{Mo}$ の精製は、経済的にも重要なものとなろう。

9. 超ウラン元素

FPから生成する超ウラン元素には、 $^{237}\text{Np}$ をじはめとして、Pu、Am、Cmなどの同位元素がある。この中には、分離してそのまま利用できる $^{241}\text{Am}$ や $^{242}\text{Cm}$ などもあるが、大部分はより有効な超ウラン元素の製造用ターゲットに用いられる。こうして製造される有効な超ウラン元素として注目されているのは、 $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{242}\text{Cm}$ 、 $^{252}\text{Cf}$ などである。表15に、主な超ウラン元素核種の特性と用途を示した。

これらの用途<sup>28)</sup>は、大別してエネルギー利用と放射線利用とに分けられる。いずれの場合も、これらの核種

表15 主な超ウラン元素核種の核的性質と用途

核種	半減期		$\alpha$ 線エネルギー(MeV)	比放射能(Ci/g)	自発核分裂(n/sec·g)	比出力(Wth/g)	製 造		用 途	
	(実効)	自発核分裂					出発核種	核反応	エネルギー利用	放射線利用
$^{238}\text{Pu}$	87.4y	$4.9 \times 10^{10}$ y	5.49 5.45	17.2	$2.6 \times 10^8$	0.55	$^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am}$	$(n, \gamma), \beta$ $(n, \gamma), \beta, \alpha$	保温, 加熱装置, 宇宙用, 医療用電源	$(\alpha, n)$ 中性子源 ULX線源
$^{241}\text{Am}$	458y	$2.3 \times 10^{14}$ y	5.48 5.43	3.43	9	0.11	$^{238}\text{Pu}$	$(n, \gamma)^2, \beta$		$\alpha$ 線源 $\gamma, \text{NpLX}$ 線源 $(\alpha, n)$ 中性子源
$^{242}\text{Cm}$	163d	$7.2 \times 10^6$ y	6.11 6.07	$3.32 \times 10^3$	$2.0 \times 10^7$	122	$^{241}\text{Am}$	$(n, \gamma), \beta$	宇宙用電源	$\alpha$ 線 PuLX線源( $\alpha, n$ ) 中性子線源
$^{244}\text{Cm}$	18.1y	$1.3 \times 10^7$ y	5.798 5.755	80.9	$1.1 \times 10^8$	2.83	$^{238}\text{Pu}$	$(n, \gamma)^3, \beta^2$	宇宙用電源として開発中	
$^{252}\text{Cf}$	2.646y	85.5y	6.12 6.08	533	$2.34 \times 10^{12}$	39.0	$^{242}\text{Pu}$ $^{241}\text{Am}$ $^{244}\text{Cm}$	$(n, \gamma)^{10}, \beta^4$ $(n, \gamma)^8, \beta^3$ $(n, \gamma)^5, \beta^2$		中性子源として多方面に使用される。

の生物学的半減期が長く、かつ人体への毒性が強いため、カプセル内に厳重に密封して使用する必要がある。

天然に存在しないこれらの超ウラン元素の製造法<sup>29)</sup>には①中性子捕獲、②ミルキング、③荷電粒子照射による方法がある。①の中性子捕獲による方法は原子炉を使用する方法である。したがって、使用済燃料から分離するという事は、原子炉内で中性子捕獲によってできた超ウラン元素の分離・精製（相互分離）に他ならない。なお図8に超ウラン（Trans Uranium, TUと称す）元素の主な合成経路を、また図9に熱源用TU元素の生成反応を示した。

<sup>238</sup>Puはつぎのようにして製造される。<sup>30)</sup> すなわち、<sup>237</sup>Np酸化物を  $2 \times 10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>・sec 程度の炉で照射し、<sup>233</sup>Npの減衰を待って濃硝酸に溶かし、希釈して1M硝酸とする。この中からPuを溶媒抽出しFPから分離する。有機相のPuを0.5M蓚酸で逆抽出した後、7M硝酸から陰イオン交換樹脂により<sup>238</sup>Puを精製する。

この場合、<sup>237</sup>Np ( $\gamma, n$ )<sup>236</sup>Np ( $\beta$ )<sup>236</sup>Puおよび<sup>237</sup>Np ( $n, 2n$ )<sup>238</sup>Np ( $\beta$ )<sup>238</sup>Puによって生成される<sup>238</sup>Puが10 ppm程度混入してくる。

<sup>238</sup>Puはその壊変系列中に<sup>212</sup>Pb, <sup>212</sup>Bi, <sup>208</sup>Tlなど

の $\gamma$ 線放射核種を有し、時間とともに $\gamma$ 線の放出が増大していく特長をもっている。このため ( $n, 2n$ )や( $\gamma, n$ )反応をできるだけ避けるような条件で<sup>237</sup>Npの照射

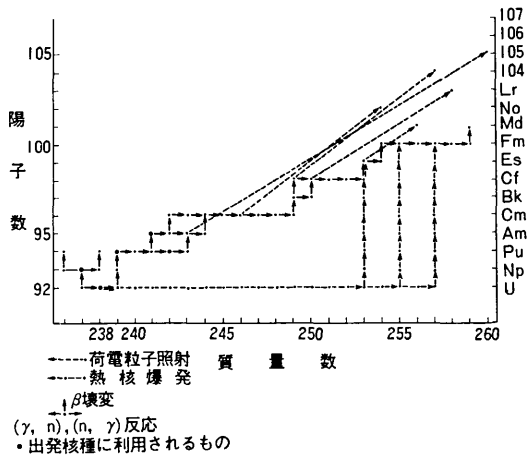


図8 超ウラン元素の主な合成経路

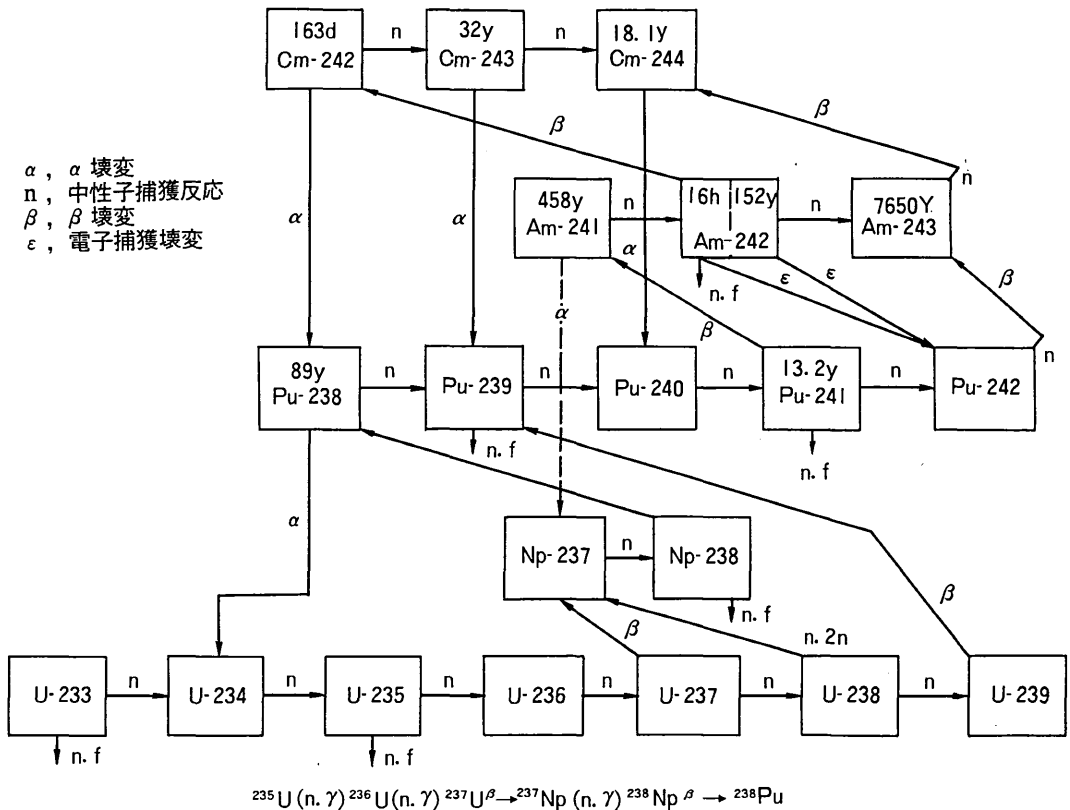


図9 熱源用超ウラン核種の生成

を行なわないと、人体用のエネルギー源として好ましくないものとなる。現在では、 $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ を0.2ppm以下にする方法が確立されている。

$^{238}\text{Pu}$ はまた $^{241}\text{Am}$ からも製造できる。すなわち、 $^{241}\text{Am}$  ( $n, \gamma$ ) $^{242}\text{Am}(\beta)$  $^{242}\text{Cm}(\alpha)$  $^{238}\text{Pu}$ によって作られる。この場合 $^{241}\text{Am}$ の半減期が長いので、 $^{241}\text{Am}(\alpha)$  $^{237}\text{Np}$ の生成量が少なく、したがって $^{238}\text{Pu}$ の混入はきわめて少ない。しかし、 $^{242}\text{Am}$ の16%がEC壊変して $^{242}\text{Pu}$ となるため $^{241}\text{Am}$ の照射後18ヶ月経過させて半減期163日の $^{242}\text{Cm}$ を減衰させても、 $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ が75%にすぎず、 $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ が16%も生成する。

発電炉のFPから回収される $^{237}\text{Np}$ はその収率が90%であり、米国の試算<sup>31)</sup>によると1974年で約170kgと称されている。この1kgをPWRで照射すると、約3年で $^{237}\text{Np}$ と $^{238}\text{Pu}$ の重量比が1となり、かつ $^{238}\text{Pu}$ の生成量(0.37g)は飽和に達する。したがって表16のように1974年以降 $^{238}\text{Pu}$ の製造量が增大する。こうして、発電炉からの $^{241}\text{Am}$ 、 $^{242}\text{Cm}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ の使用可能数量は、米国の場合表17のようになる。

但し $^{242}\text{Cm}$ は再処理後の数量である。 $^{241}\text{Am}$ は $^{241}\text{Pu}$ の $\beta$ 壊変生成物であるので、照射終わってから次第に多くなる。したがってFPの冷却期間の長短によって大きく左右される。

一方 $^{242}\text{Am}$ や $^{242}\text{Cm}$ は、照射中に蓄積された $^{241}\text{Am}$ からしか生成しないため、その生成量は燃料照射経歴に左右される。また $^{244}\text{Cm}$ は $^{241}\text{Pu}(n, \gamma)$  $^{242}\text{Pu}(n, \gamma)$  $^{243}\text{Pu}(\beta)$  $^{243}\text{Am}(n, \gamma)$  $^{244}\text{Am}(\beta)$  $^{244}\text{Cm}$ によって生成されるのが大部分である。 $^{241}\text{Pu}$ の半減期が13.2年であるため、その $\beta$ 壊変による損失は小さく、かつ $^{244}\text{Cm}$ の半減期も長い(18.1年)ので、冷却中の減衰損失もそれ

表16  $^{237}\text{Np}$ の回収量と $^{238}\text{Pu}$ の製造量

年	$^{237}\text{Np}$ (kg)	$^{238}\text{Pu}$ (kg)
1970	10	—
1971	21	—
1972	34	—
1973	84	—
1974	179	10
1975	394	32
1976	556	83
1977	674	149

表17 発電炉からの $^{241}\text{Am}$ 、 $^{242}\text{Cm}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ などの生成量(kg)

核種	1972	1973	1974	1975	1976	1977
$^{241}\text{Am}$	3.36	5.34	14.8	26.2	63.2	86.5
$^{242}\text{Cm}$	2.82	4.27	10.0	19.8	52.1	69.8
$^{244}\text{Cm}$	0.24	0.38	0.92	1.70	4.20	5.52
$^{244}\text{Cm}$	0.71	2.14	2.26	4.70	13.9	18.3

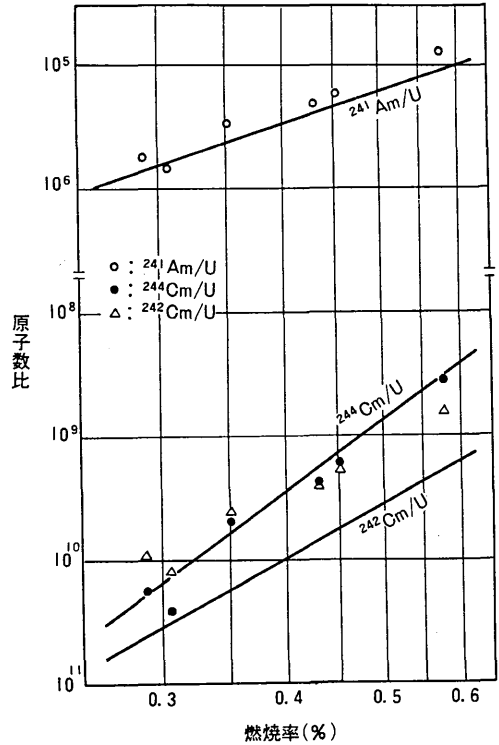


図10 JPDR-1燃料試料中の超プルトニウム核種生成量実測値と計算値(実線)との比較(3年冷却後)

ほど大きくない。図10はJPDR-1燃料試料中のこれらの核種生成量実測値と計算値を示したものである。

$^{252}\text{Cf}$ は図8の $^{243}\text{Am}$ または $^{244}\text{Cm}$ から製造される。この間 ( $n, \gamma$ ) 反応を8~9回も繰返さなければならぬため、途中の核種に半減期の短いものがあったりして、大部分がFPになり、 $^{252}\text{Cf}$ の収率は極めて小さい。表18は $^{244}\text{Cm}$ 1kgをPWRで照射した場合の照射期間による途中核種の生成量もふくめた $^{252}\text{Cf}$ の生成量を表示したもので、5年後でも約10mgしか生成しな

表18 PWR中での1kg  $^{244}\text{Cm}$ からの超プルトニウム元素の生成量(g)

核種	1年照射	2年照射	3年照射	5年照射
$^{244}\text{Cm}$	789	623	492	306
$^{244}\text{Cm}$	692	63	50.7	31.7
$^{244}\text{Cm}$	14.9	34.8	50.7	71.2
$^{247}\text{Cm}$	0.183	0.842	1.75	3.58
$^{248}\text{Cm}$	$9.34 \times 10^{-3}$	0.0938	0.314	1.19
$^{249}\text{Bk}$	$1.04 \times 10^{-4}$	$1.62 \times 10^{-3}$	$6.68 \times 10^{-3}$	0.0306
$^{250}\text{Cf}$	$3.06 \times 10^{-5}$	$8.20 \times 10^{-4}$	$4.30 \times 10^{-3}$	0.0245
$^{250}\text{Cf}$	$4.02 \times 10^{-5}$	$5.56 \times 10^{-4}$	$2.97 \times 10^{-3}$	0.0172
$^{251}\text{Cf}$	$4.45 \times 10^{-6}$	$1.74 \times 10^{-4}$	$1.07 \times 10^{-3}$	$6.99 \times 10^{-3}$
$^{252}\text{Cf}$	$1.01 \times 10^{-6}$	$8.56 \times 10^{-5}$	$8.37 \times 10^{-4}$	$9.64 \times 10^{-3}$

表19 超ウラン核種熱源を用いた宇宙利用アイソトープ発電器

(米国)

名 称	熱源核種	電気出力 ( W )	用 途	打 上 げ 時 期
SNAP 3 A	$^{238}\text{Pu}$	27-4	人工衛星 (Transit-4 A, B)	1961 (2)**
SNAP 9 A	$^{238}\text{Pu}$	25	人工衛星 (Transit-5 BN-1, 2, 3)	1963, 1964 (2)
SNAP11	$^{242}\text{Cm}$	20	サーベイヤ月面探査	1967 (実験室テスト)
SNAP15A	$^{238}\text{Pu}$	0.001	軍事情用	
SNAP19B	$^{238}\text{Pu}$	30	人工衛星 (Nimbus)	1968, 1969
ALRH*	$^{238}\text{Pu}$	15	アポロ11号	1969 (2)
SNAP27	$^{238}\text{Pu}$	70	アポロ12, 13, 14, 15, 16, 17号	1969, 1970, 1971 (2), 1972 (2)
Transit RTG	$^{238}\text{Pu}$	30	航海用衛星	1972
Pioneer-10	$^{238}\text{Pu}$	30×4	木星探査	1972
Pioneer-11	$^{238}\text{Pu}$	30×4	木星探査	1973
Viking RTG	$^{238}\text{Pu}$	35×4	火星着陸	1970年代中期
10°W RTG	$^{238}\text{Pu}$	100-200	通信衛星	1970年代中期
Isotope Brayton	$^{238}\text{Pu}$	1500-8000	宇宙ステーションTV中継用	1970年代後期~80年代初期

\* Apollo Lunar Radioisotope Heaterの略称

\*\*同一年度内に2台打上げ

い。したがって、米国より輸入する場合、 $1\mu\text{g}$ 約10ドルであり、極めて高価なものとなる。

$^{238}\text{Pu}$ はアイソトープ発電器用熱源として、米国で1961年SNAP3Aに使用されて以来表19のように数多くの宇宙用アイソトープ発電器、または熱源として利用されてきた。最近では $^{238}\text{Pu}$ より比熱出力の大きい $^{242}\text{Cm}$ が注目されてきているが、まだ $^{242}\text{Cm}$ の大量供給が困難なため、依然として $^{238}\text{Pu}$ 賞用されている。

1969年11月Apollo-12号によって月面に設置されたSNAP-27は $^{238}\text{Pu}$ 3.8kg, 1480Wthを用い、PbTe熱電変換素子による電気出力63W, 寿命1年のアイソトープ熱電発電器 (RTG, Radioisotopic Thermoelectric Generator) である。最近はいくつかの技術的改善が試みられ、いわゆるHPG (High Performance Generator) の開発が進められて、総重量あたりの電気出力が、SNAP3Aの3倍以上になってきている。

表19のうち、1972年2月と1973年5月に木星にむけて打ち上げられたSNAP19型のパイオニ10と11は、木星の放射線帯を無事に通過し、現在も動作しており、11はさらに土星に向けて (1979年到着予定) 飛行中である<sup>22)</sup>。こうして宇宙空間用エネルギー源として、きわめて優れていることが明らかとなりつつある。

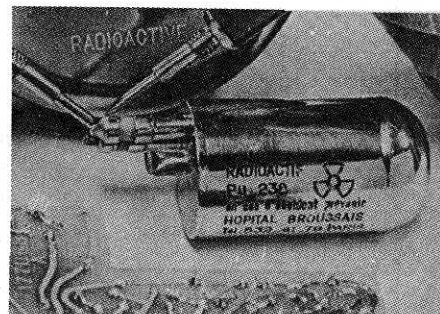
熱源利用としては、1969年6月Apollo11号によって熱出力15Wthの2台の $^{238}\text{Pu}$ 熱源を月面に設したものが有名である。これは地震計の保温に用いたもので、外気温が $-250^{\circ}\text{F}$ まで降下しても $-60^{\circ}\text{F}$ 以上に保つことができる。

このほか、宇宙船内の居住性管理用の汚水浄化装置に210Wthの $^{238}\text{Pu}$ 真空蒸発器を利用したり、また $^{238}\text{Pu}$ の小カプセルを銀亜鉛電池の保温や潜水夫の保温に用いている例がある。

$^{238}\text{Pu}$ は外部照射線量率が小さく、かつ半減期が長い (87.4年) ため、生物体内のエネルギー源、特に心臓ペースメーカーや人工心臓用の熱源として注目されている。但しこの場合製造過程で副次的に混入する $^{236}\text{Pu}$ が、壊変に伴って硬い $\gamma$ 線を放出するため、外部への照射線量率が次第に増加してくる。これを避けるため、 $^{238}\text{Pu}$ の濃度を1ppm以下に押えた、いわゆる医用純度 ( $^{238}\text{Pu}$ 0.3ppm以下) の $^{238}\text{Pu}$ の製造法が開発<sup>33)</sup>された。

心臓ペースメーカー用の $^{238}\text{Pu}$ 電池としては、 $^{238}\text{Pu}$ 150~180mgの熱源とBiTe系熱電変換ブロックで、0.2~0.4mWの電気出力が得られるものが用いられており、その寿命は10年と称されている。Alaisら<sup>34)</sup>によれば、図11に示したCIT-Alcatel社の電池が図12のように人体に植え込まれ、1970年以来1974年3月までに465ヶに達している。このうち1974年1月までに死亡17人、感染事故などで4人、リード線の不良2人の合計23ヶが回収され、そのうち10ヶは再び植え込まれている。

人工心臓用動力源として $^{238}\text{Pu}$ を用いる研究は、早くからアメリカのNHLI (National Heart & Lung

図11  $^{238}\text{Pu}$ 電池

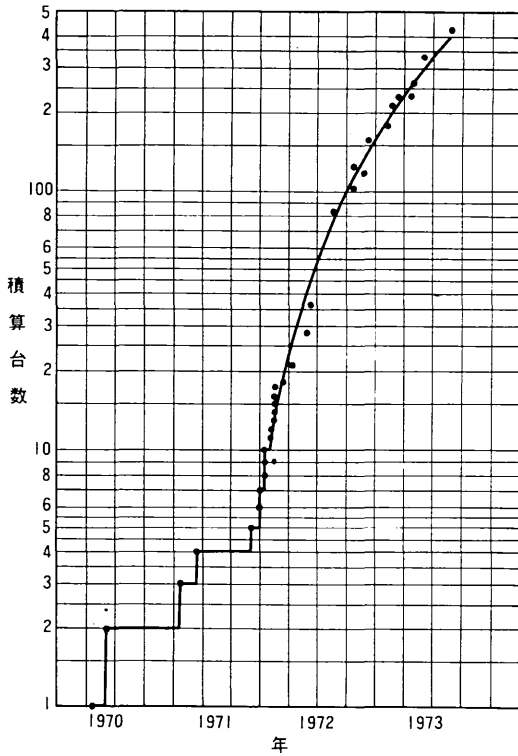


図12 Lairens-Alcatel社アイソトープベースメーカー9000型の植え込み数

Institute) で行なわれてきた。いわゆる医用純度 ( $^{238}\text{Pu}$  0.26ppm以下) の  $^{238}\text{Pu}^{16}\text{O}_2$  50Wth を用い、動力で熱電変換を行なう方式のものである。米国では人工心臓の需要が、2000年に10万人に達すると予測されており、鋭意実用化に努めている<sup>35)</sup>。

$^{238}\text{Pu}$  は以上のエネルギー源としての大量利用のほか、中性子源やX,  $\gamma$ ,  $\alpha$ 線源としての利用が行なわれている。中性子源としては  $^{238}\text{Pu}$  と Be の組み合わせが用いられており、1Ciあたりの中性子放出率は、 $2.8 \times 10^6 \text{ n/sec}$  である。中性子水分計や、生産工程中の流動物質の放射化分析などに利用されている。また  $^{238}\text{Pu}$  は低エネルギーのX,  $\gamma$ 線を放出するので、蛍光X線分析用線源として用いられるほか、 $\alpha$ 線源としても利用されている。

$^{241}\text{Am}$  は半減期458年、5.5MeVの $\alpha$ 線のほか60keVの $\gamma$ 線をはじめ、NpL, MX線を放出している。このため中性子源としてBeとともに用いられ中性子水分計の線源に使われている。外部照射線量率が小さいため、最近はほとんどこの核種が使われるようになった。

また  $^{241}\text{Am}$  の $\gamma$ 線の透過を利用した厚さ計は、0.5~0.3mmの鋼板の厚さ測定に用いられており、後方散乱 $\gamma$ 線を利用する散乱型の厚さ計は、被覆物質の厚さや

パイプの肉厚測定用に賞用されている。

このほか数 $\mu\text{Ci}$ 以下の $^{241}\text{Am}$ が煙探知器用電離源として用いられている。国内ですでに、250万台もの $^{241}\text{Am}$ 煙探知器が使用されていると言われている。避雷針の有効範囲の拡大用にも使われており、60keVの $\gamma$ 線またはNpLX線を利用した蛍光X線分析も最近注目されてきている。 $^{241}\text{Am}$ の長所は半減期が長いことにある。

$^{242}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ は、ともに比熱出力がそれぞれ122, 2.83と大きいため、エネルギー源として早くから注目されてきた。米国では1967年SNAP11に $^{242}\text{Cm}$ を熱源として用いている。しかし $^{242}\text{Cm}$ は半減期が163日で短いため、特殊な場合以外は使用されない。そこで半減期の長い(18.1年) $^{244}\text{Cm}$ がとりあげられてきた。

$^{244}\text{Cm}$ は上記の特長のほか、燃料としてすぐれた化合物があること、および比較的安価に入手できることなどの性質を持っている。化学形としては $\text{Cm}_2\text{O}_3$ のほか、Irを混合して成型加工したものや、Cmと貴金属との化合物も用いられている。

$^{244}\text{Cm}$ の比熱出力は2.83Wth/gで、 $^{238}\text{Pu}$ の0.57Wth/gの約5倍であり、半減期はほぼ $\frac{1}{5}$ である。このため大量の熱源を必要とする宇宙用の場合、 $^{244}\text{Cm}$ の方が有利<sup>36)</sup>である。図13は両発電器の製造費の内訳を比べたものである。欠点は中性子の放出率が $^{238}\text{Pu}$ の約1000倍で、 $\gamma$ 線の放出も多いために、放射線の影響を受けやすい機器や人間の近くで使用する場合に遮蔽を必要とすることにある。この意味で、人工臓器等のエネルギー源としては用いることができない。例えば1kWthの熱源から1mの距離における線量率は、 $^{244}\text{Cm}$ の場合3360mrem/hで、 $^{238}\text{Pu}$ の82mrem/hの約40倍となる。

このため、地下や海水中で使用するか、または宇宙用を目標にして、現在総合的な研究が米国で行なわれている。このことは、最近の米国の原子力学会やエネルギー変換国際会議の論文によって伺うことができる。

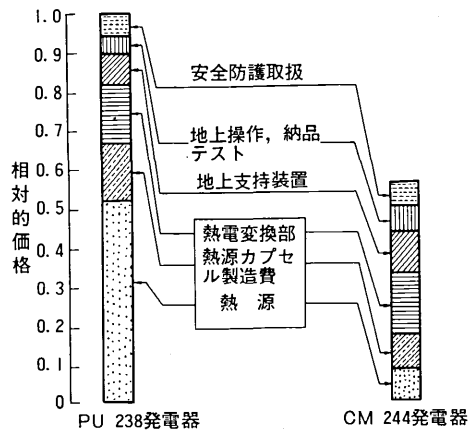


図13 宇宙用 $^{238}\text{Pu}$ 発電器と $^{244}\text{Cm}$ 発電器のコスト比較

すなわちHPGと称して、性能を改善しかつ電気出力400W程度のアイソトープ発電器の研究が勢力的に行なわれている。

なお $^{252}\text{Cf}$ は短半減期で、 $\gamma$ 線量が低く、 $^{252}\text{Cf}$ より容積大であるが、 $^{238}\text{Pu}-\text{Be}$ の約 $\frac{1}{35}$ 、 $^{241}\text{Am}-\text{Be}$ の約 $10^{-4}$ とかなり小型な中性子源となるので、中性子水分計としての利用が期待されている。また比熱出力が大きいので熱源としての利用可能性も大きい。

$^{252}\text{Cf}$ は半減期2.65年であるが、1Ciあたりの中性子放出率が、 $4.4 \times 10^9$ で、 $^{241}\text{Am}-\text{Be}$ 中性子源の2000倍に近い。 $^{252}\text{Cf}$ の核特性は表20のとおりで、半減期85.5年で自発核分裂し、1分裂あたり3.76ケの中性子を放出する。その中性子の平均エネルギーは、2.348MeVで、他の( $\alpha$ , n)反応による中性子源が4MeV前後であるに比べて、かなり小さい。小型で中性子放出率が大きく、発熱量も小さいが、半減期が比較的短かい点に難点がある。

表20  $^{252}\text{Cf}$ の性質

壊変形式	$\alpha$ 壊変	96.9%
	自発核分裂	3.1%
半減期	$\alpha$ 壊変	$2.731 \pm 0.007\text{yr}$
	自発核分裂(SF)	$85.5 \pm 0.5\text{yr}$
	有効半減期( $\alpha + \text{SF}$ )	$2.646 \pm 0.004\text{yr}$
中性子放出率		$2.31 \times 10^{11}\text{n/sec} \cdot \text{g}$
	自発核分裂当りに放出される中性子数	3.76
	平均中性子エネルギー	2.348MeV
	平均 $\alpha$ 線エネルギー	6.117MeV
	$\gamma$ 線放出率(内部転換によるX線を除く)	$1.3 \times 10^{11}\text{photons/sec} \cdot \text{g}$
空气中1m距離における線量率		
	中性子	$2.2 \times 10^3\text{rem/hr} \cdot \text{g}$
	$\gamma$ 線	$1.6 \times 10^2\text{rad/hr} \cdot \text{g}$
壊変による熱	$\alpha$ 壊変	18.8 Wth/g
	核分裂	19.7 Wth/g
線源容積(Heについてのポイド容積を除く)		$< 1\text{cm}^3/\text{g}$

Savannah River Laboratoryで作られている $^{252}\text{Cf}$ 線源の大部分は、酸化カリホルニウムを、Pt—10%Rhの一次カプセルとステンレス鋼、またはジルカロイ—2合金の二次カプセルに密封したものである。0.03 $\mu\text{g}$ 程度の $^{252}\text{Cf}$ は、障害防止法規制外の100 $\mu\text{Ci}$ 以下の密封線源として取扱うことができるので、水分計の中性子源として注目<sup>37)</sup>されている。

放射化分析用線源として小型、可搬性であることから、検層や工場内のon stream分析だけでなく、研究用の分析にも適している。10mgで $10^8\text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 程度の中性子束密度が得られるので、数mgを用いた非破壊放射化分析装置が検討<sup>38)</sup>されている。

中性子ラジオグラフィ用線源としても、安定で信頼性が高く、小型で中性子束密度が大きいいためX、 $\gamma$ 線ラジオグラフィとは異った非破壊検査像を得るのに適している。このほか、医学用や教育訓練用中性子源としても使用されつつある。したがって、将来、 $^{252}\text{Cf}$ の周囲に $^{235}\text{U}$ や $^{239}\text{Pu}$ を置いて中性子束密度を増強する技術が確立されれば、その有用性が一層大きくなるものと期待されている。

## 10. おわりに

主要なFP核種を中心にその特性、利用上の問題点、利用開発の現状を述べてきた。残念ながらわが国の対応は、世界の先進諸国と比べてきわめて遅れており、大量の放射能を持つFP核種を取扱う施設にさえ事欠く現状である。

FPの利用は、単に廃棄物を利用して経済効果を高めるということだけでなく、利用の形態を安全管理の下に置き、利用期間経過後は回収して処分するという、いわば一時保管形態の一種として考えるべきであろう。この意味からも、FPの処理・処分の一環として考える必要があることを強調しておきたい。

なお、本稿をまとめるにあたり、有益な助言を与えてくださった、加藤正夫教授、石田洋一助教授、並びにこの解説をまとめる直接の機会と便宜を与えてくれた、野村総合研究所扇田俊明、山本敬一氏らに感謝の意を表するものである。(1975年11月5日 受理)

## 参考文献

- 核分裂生成物等総合対策懇談会報告書(1973. 3)日本原子力産業会議
- E. E. Fowler; 11回日本RI会議報文集73~89(1973. 11)
- C. A. Rohrmann; 10回日本RI会議報文集58~68(1971. 11)
- 加藤正夫: スチールデザイン No. 130, 34~37(1974. 3)
- 佐藤乙丸: 原子力工業 20(11)29~32(1974. 11)
- 重松友道: 原子力工業 20(11)23~28(1974. 11)
- E. G. Mavroyannakis; 2nd Int. Symp. on Power from Radioisotopes 279~303 OECDNEA(1972. 5)
- R. Hannah, et al; Trans. of ANS 18 2~3(1974. 6)
- P. W. Wood; AECOP-1053, 12(1971. 9)
- E. R. Wiblin; 2nd Int. Symp. on Power from Radioisotopes 613~622 OECDNEA(1972. 5)
- H. C. Carney; ibid, 143~169(1972. 5)
- J. Myatt, et al; ibid, 397~419(1972. 5)
- R. W. McKee; BNWL-1686(1972. 12)
- Isotopes Development Programs TID-4067 38~39(1972. 2)
- P. M. Wood, et al; AECOP-754, 6~8(1971. 4)
- M. Lewis, et al; Nuclear Technology 17(2)160~167(1973. 2)
- D. Schalch, et al; 2nd Int. Symp. on Power from Radioisotopes, 253~258 OECDNEA(1972. 5)
- T. N. Lahr; Isotopes and Radiation Technology 7(1)64~67(1969)



- 19) Isotopes Development Programs, TID-4067 16~17 (1972. 2)
- 20) C. A. Rohrmann; Isotopes and Radiation Technology 8 (3) 253~260 (1971)
- 21) Nuclear Industry, (10/11) 45~46 (1971)
- 22) Isotopes Development Programs, WASH-1220, 3 (1973. 2)
- 23) *ibid* 6~7 (1973. 2)
- 24) C. A. Rohrmann; Isotopes and Radiation Technology 6 (4) 352~358 (1969)
- 25) F. P. Roberts; BNWL-1693 (1972. 10)
- 26) L. L. Clark, et al; BNWL-1690 (1973. 2)
- 27) 村上; Radioisotopes, 23 (4) 238~249 (1974. 2)
- 28) J. L. Crandall; DP-MS-71-52 (1971. 10)
- 29) 超プルトニウム元素の化学, 日本原子力学会誌 16 (7)349~386 (1974. 7)
- 30) R. Berger, et al; 2nd Int. Symp. on Power from Radioisotopes, 31~47 OECDNEA (1972. 5)
- 31) P. W. Wood; Isotopes and Radiation Technology, 9 (2) 129~133 (1971)
- 32) A. C. Wilbur; Trans. of ANS, 21 3~4 (1975. 6)
- 33) W. J. Lindsey, et al; Nuclear Technology 13 (1) 78~82 (1972. 1)
- 34) M. Alais, et al; Nuclear Technology, 26 307~319 (1975. 7)
- 35) H. Lurie; SAN-858-50 (1973. 4)
- 36) R. D. Casagrande, et al, 1973 IECEC Rroc. 117~128 (1973)
- 37) <sup>252</sup>Cf利用勉強会, 日本アイソトープ協会, 日本保健物理学会 (1974. 8)
- 38) W. C. Reinig, et al; 11回日本RI会議報文集 103~125 (1973. 11)

次号予告 (2月号)

研究解説

チタン材料をめぐる状況と展望.....明智 清明

研究速報

Velocity-Field Characteristics of Size-Quantized

Electrons in Thin Semiconductor Films Having Corrugated Surfaces.....榎 裕 之

粒界転位透過電顕像の電子計算機シミュレーションによるバーガスベクトルの決定(III)  
—Al—Mg 合金粒界転位の解析—.....石田 洋一  
森田 文雄  
飯田 文雄

鋼繊維補強コンクリートのコンシテンシーに関する実験的研究.....小岡 林 一  
岡村 雄 輔  
樹

異形管のロール成形に関する実験的研究 第2報.....木内 学  
新谷 賢弘  
岩崎 利 弘

応答曲線の簡便な推定法について.....佐藤 壽 芳外

対ピストン急冷法による金属・合金の高速急冷.....井野 博 満

Analysis of Three Dimensional Surface Crack Problems by Boundary Integral Method.....藤川 谷 義  
川井 忠 彦

Singular Solution of a Surface Crack Problem.....川井 忠 彦

研究室紹介

小林研究室.....小林 敏 雄