

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2013-531228

(P2013-531228A)

(43) 公表日 平成25年8月1日(2013.8.1)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
G 2 1 G 1/02 (2006.01)	G 2 1 G 1/02	
G 2 1 K 1/00 (2006.01)	G 2 1 K 1/00	N
G 2 1 K 1/06 (2006.01)	G 2 1 K 1/06	B

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 21 頁)

(21) 出願番号 特願2013-510687 (P2013-510687)
 (86) (22) 出願日 平成23年5月20日 (2011.5.20)
 (85) 翻訳文提出日 平成25年1月16日 (2013.1.16)
 (86) 国際出願番号 PCT/HU2011/000048
 (87) 国際公開番号 W02011/144954
 (87) 国際公開日 平成23年11月24日 (2011.11.24)
 (31) 優先権主張番号 P1000261
 (32) 優先日 平成22年5月20日 (2010.5.20)
 (33) 優先権主張国 ハンガリー (HU)

(71) 出願人 512300595
 テレキ ベーター
 ハンガリー ドアウヤファロス ボクチカ
 イ ウート 30
 (74) 代理人 110001210
 特許業務法人 Y K I 国際特許事務所
 (72) 発明者 テレキ ベーター
 ハンガリー ドアウヤファロス ボクチカ
 イ ウート 30

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 主としてランタニドおよび/または白金金属を生成するために中性子の核反応を利用する方法

(57) 【要約】

本発明による方法は、照射されるターゲットを、原子炉シェルの外側で、この目的に適切なカセットおよび/または容器内に配置構成することもできるように、原子炉内で生成されかつ熱エネルギーレベルにまで減速された中性子を介して実現される。この解決策は、生成能力を著しく増大させることができるが、照射チャンネルにも同様に適用することができる。開示は、ランタニドおよび白金金属の生成について教示するが、その他の種、例えば Re も生成することができる。技術的プロセスにおいて、ターゲット(親元素)は、そこから (n,) 核反応を介して調製された生成物(娘元素)よりも、商業的にそれほど価値はない。生成物 - 実際には親元素と(1種又は複数の)娘元素との合金 - は、先行技術の技法を用いて元素ごとに、その構成成分に完全に分離することができ、処理することができる。このように得られた生成物は、保持後(即ち、放射線レベルをノーマライズした後)に利用することができる。例示的な娘元素は Pm、Eu、Tm、Lu; および Rh、Os; および Re である。Os を生成する場合、Re が親元素の役割を果た

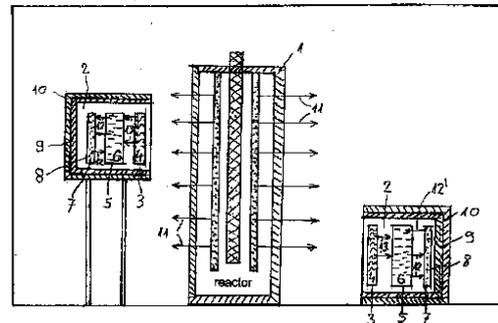


Figure 1

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

変換のため、 (n, \quad) 核反応を介して活性化されるのに適切なターゲット（親元素）が、原子炉内で発生した中性子により照射されるボリューム内に配置構成され、前記ターゲットは親元素としてRu; Nd、Sm、Gd、Er、Yb; W、Reのいずれかをそれらの任意の組合せおよび/または組成で含むものである、主としてランタニドおよび/または白金金属を生成するために中性子の核反応を利用する方法であって、前記ターゲットは、中性子源/原子炉のエンベロープの外側で、この目的のために特に採用されたカセットおよび/または容器内に、配置構成されることを特徴とする方法。

【請求項 2】

変換のため、 (n, \quad) 核反応を介して活性化されるのに適切なターゲット（親元素）が、原子炉内で発生した中性子により照射されるボリューム内に配置構成され、前記ターゲットは親元素としてRu; Nd、Sm、Gd、Erのいずれかをそれらの任意の組合せおよび/または組成で含むものである、請求項 1 に記載の、主としてランタニドおよび/または白金金属を生成するために中性子の核反応を利用する方法であって、前記ターゲットは、中性子源/原子炉の照射チャンネル内で、この目的のために特に採用されたカセットおよび/または容器内に、配置構成されることを特徴とする方法。

【請求項 3】

請求項 1 または請求項 2 に記載のターゲットであって、中性子減速材が、前記中性子源のエンベロープの外側とターゲットとの間で、この目的のために特に採用されたカセットおよび/または容器内に、配置構成されることを特徴とするターゲット。

【請求項 4】

請求項 1, 2, 3 のいずれか 1 項に記載のターゲットであって、中性子後方散乱反射材（ミラー）が、中性子源から考慮してターゲットの後ろで、この目的のために特に採用されたカセットおよび/または容器内に、配置構成されることを特徴とするターゲット。

【請求項 5】

請求項 1 または請求項 2 に記載のターゲットであって、ターゲットの親元素が、粉末、顆粒、金属の塊、バー、またはシートの形で提供されることを特徴とするターゲット。

【請求項 6】

請求項 1, 2, 5 のいずれか 1 項に記載のターゲットであって、ターゲットの親元素が、化合物、溶液、セラミックスの状態、または非晶質状態で提供されることを特徴とするターゲット。

【請求項 7】

請求項 1, 2, 5, 6 のいずれか 1 項に記載のターゲットであって、ターゲットの親元素が、炭化物、窒化物、酸化物、またはケイ化物として提供されることを特徴とするターゲット。

【請求項 8】

請求項 1, 2, 5, 6, 7 のいずれか 1 項に記載のターゲットであって、ターゲットの親元素が、少なくとも 8 重量%の量でターゲット内に存在することを特徴とするターゲット。

【請求項 9】

請求項 1, 2, 5, 6, 7 のいずれか 1 項に記載のターゲットであって、任意の娘元素の親元素から誘導された前記娘元素の同位体組成が、 $(n, 2n)$ 核反応を介して変化することを特徴とするターゲット。

【請求項 10】

請求項 1, 2, 5, 6, 7 のいずれか 1 項に記載のターゲットであって、任意の娘元素の親元素から誘導された前記娘元素の同位体組成が、中間共鳴中性子の (n, \quad) 核反応を介して変化することを特徴とするターゲット。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

10

20

30

40

50

【0001】

本発明の概念および本発明の目的は、以前から既に公知の教示に基づくものであり、その教示によれば、ある元素を工業的規模で（即ち、比較的大量に）、ある態様からより高い値のその他の元素に変換することで、原子炉の利用を増大させることができる。

【背景技術】

【0002】

[関連するハンガリー特許出願は、ペーター・テレキにより1998年11月28日にP8806077という番号の下で出願され、「Method of utilizing the (n,) reaction of thermal neutrons」という名称が付されており、国際特許出願は、PCT/HU89/00054出願（国際公開のWO 90/06583に相当、特許文献1）という番号の下で出願され、「Method of Utilizing the (n,) Reaction of Thermal Neutrons」という名称が付され、ならびに「Method of Utilizing the (n,) Reaction of Thermal Neutrons」とい名称のカナダ特許出願公開第2003671号（特許文献2）が出願されている。]

10

【0003】

上述の文献は、元素YbおよびWの変換性、例えばYb Lu、ならびにW Reの変換性について開示し、得られた生成物は、少なくとも2種の成分（その他の娘元素、例えばHfおよび/またはOsも形成することができる。）の合金と見なすことができ、前記生成物（およびターゲットも）は、好ましくはシートの形をとる。

20

【0004】

本発明を定義するために、既に公知の詳細を、3つのさらなる態様で本明細書に記述する。

【0005】

1. 任意のランタニドは、それに先行して元素の周期系内に位置付けられた元素から生成することができるが、下記のタイプのターゲット（親元素）生成物（娘元素）遷移：Nd Pm、Sm Eu、Er Tm、Yb Luが、経済上非常に重要である。他の元素遷移も可能であり、例えばGd Tb、ならびに白金金属の場合は例えばRu Rh、Re Os（注記：Reは白金金属ではない。）、ならびにW Re、W Re Osである（これらの元素遷移 - 即ち、変換 - は当然ながら文献において公知であり、したがって本発明の部分を形成せず、現在の開示の部分になる。）。)

30

【0006】

2. 粒子におけるターゲット（親元素）の物理形態は限定されるものではなく、例えば、粉末、ならびに金属の塊またはその顆粒が等しく好ましい。本明細書では、一般に金属粉末は可燃性であり、したがって、炭化物、窒化物、酸化物、またはケイ化物の形で提供される場合がより好ましいことに、留意されるべきである。しかし、ホウ素（B）の非常に有効な中性子捕獲断面積により、そのホウ化物変種は利用されるべきではない。さらに、フッ化物および硫化物成分は、それらの化学的に侵襲的な性質により回避されるべきであり、それにも関わらず、この成分は禁止されていない。上記定義は、さらなる説明を必要としない。

40

【0007】

3. ターゲットの配置構成に適切な特定のカセットおよび/または容器（以後、互いに区別される。）の十分詳細な開示は、本発明の教示を完成させるのに必須であり、前記手段は - 考えられる実施形態に応じて - 原子炉シェルの外側（原子炉エンベロープ）および/または原子炉の照射チャンネル内に配置することができる。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】国際公開第90/06583号パンフレット

【特許文献2】カナダ特許出願公開第2003671号

【発明の概要】

50

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明の目的は、工業的規模で、本明細書に具体化された娘元素を生成することであり、また生産性の著しい増大に到達することでもある。顕著な例は、世界市場におけるOsの位置である。オスミウム(Os)は、地球上で最も硬質な金属であり、タングステン(W)の約2倍ほど硬質であり、その合金元素として使用することができるが、世界的な取引で存在するオスミウムの量は、年間100kg未満である。本発明のプロセスによれば、1原子炉当たり、年間約1000kgの量を生成することができる。

【課題を解決するための手段】

【0010】

次に本発明の目的の達成について顧みると、原子炉の工業的利用では、いわゆる照射チャンネルを活用することができるだけでなく、照射されるターゲットを、原子炉シェルの外部ケーシング(原子炉エンベロープ)の直接隣に展開することができ、その結果、得られる生成物の量が著しく増加する(上記Osの課題を参照。)。

【0011】

この解決策は、ターゲットが原子炉の外側に位置付けられ、ターゲット(親元素)生成物(娘元素)変換核反応がいずれにせよ有害な「廃棄物」中性子によりなされるので、原子炉の中性子バランスにも、原子炉内で生じるその他のプロセスにも、影響を及ぼすことがない。

【0012】

本来、原子炉のそれぞれのタイプごとに、優先的なゾーンが存在することになり、これらのゾーンは、原子炉のタイプごとに選択されなければならない。ターゲットと原子炉エンベロープとの間に中性子照射に対する遮蔽がない場合、前記遮蔽は、ターゲットの全システムの後ろに完全に展開されなければならないことが好ましい。好ましくは、必ずしも必要ではないが、熱中性子化減速材がターゲットと原子炉シェルとの間にあり、中性子シャワーを熱レベルにまで減速させる。このために、例えば原子炉用黒鉛を有利に使用することができ、例えば既に述べたカセット内のアルミニウムシートの間に適用することができる。ターゲットは、他のカセット内に配置構成することもでき、次いで中性子反射材(ミラー)を外側から - 個別のカセット内にも - 配置構成することができ、その内部で中性子はターゲットに向かって後方散乱する。このゾーンも好ましいが、必須ではなく、したがってゾーンの適用は自由裁量による。

【0013】

前記反射材(ミラー)ゾーンは、減速材ゾーンと同様に、アルミニウム、ベリリウム(Be)、ならびに防火の観点から許可される場合にはPE(ポリエチレン)によって、密封できることに留意されたい。したがって、想定される減速材/ターゲット/反射材(ミラー)システムは、原子炉シェルと実際の放射線遮蔽材との間に位置付けられる。この3構成要素システムの構成要素は、構成要素のいずれかを互いに独立して移動させることができるようになるので、構成要素自体の個別のカセットに配置構成される場合が好ましく、しかし必ずしもそのようにする必要はない。さらに、前記3構成要素カセットシステムは、追加の放射線遮蔽材を供えた共通の容器内に配置構成することができる。

【0014】

上記技法および実施形態は、(研究用)原子炉の照射チャンネルの場合にも利用することができ、ここでは生成パッチがさらに小さくなるが、生成物は、より短い時間で調製することができる。予算を考慮する限り、原子炉シェルの隣への展開が適用される場合、前記「廃棄物」中性子は、むしろ実験を経て推奨されるチャンネルタイプの実施形態の場合とは対照的に、ならびにより少ない生成量および/または研究の目的で、費用をかけることなく役割を果たす。

【0015】

しかし、本発明の目的で指定された親元素のいずれか(任意の組合せおよび/または組成)は、少なくとも8.0重量%の量でターゲットに含有されることが、要件である。

10

20

30

40

50

Wが選択される場合のいくつかの可能な例は、下記の通りである：W 9 0 / T i 1 0、W 7 5 / W 2 5、W 9 0 / C r 1 0、W 6 0 / C u 4 0、W 9 0 / A g 1 0、W 7 5 / R e 2 5 など、ならびにW C、W O₃、W S i₂であるが - 先に述べたように - W₂Bは推奨されず、一方W S₂は好ましくない。

【 0 0 1 6 】

ターゲットの材料が減速材および/または反射材(ミラー)構成要素も含有する場合、前記構成要素は、ターゲットとして実際に考慮に入れるべきではないことに、留意されたい。生成物は、基本的に特殊合金になり、即ち、親元素と(1種または複数の)娘元素との混合物になるが、それはこれら元素の種が、実際に互いに合金を形成するからである。同じプロセスにおいて、後でより詳細に論じられるように、例えばW R e O sのプロセスなどによって二次娘元素が生成されるように、娘および親元素を活性化することも可能である。

10

【 0 0 1 7 】

次にカセットの詳細な記述について顧みると、照射チャンネル構造の場合、重要な因子は明らかに、一般にサイズが約10cmであるチャンネルの内径である。原子炉シェルの場合、例えばサイズが90×90cmのベースプレートを備えたカセットタイプの実施形態が好ましいが、この実施形態は単に可能性ある例を表すだけである。前記カセットのベース材料は、Mg、Al、Fe、Zr、ならびにそれらの任意の適切な合金にすることができる。カセットは、減速材/ターゲット/反射材(ミラー)の3つにグループ分けすることができ、各グループ(カセット)は互いに分離される。ターゲットのそれぞれのカセットは、他の2つのカセットから切り離して取り出せる場合が、非常に好ましい。減速材カセットおよび/または反射材カセットは、非常に稀に変位させなければならないので、ターゲットカセットを別々に変位させることができることも好ましい。明らかに、前記カセットの変位は、ロボットおよびマニピュレーターによって行われる。

20

【 0 0 1 8 】

以下の記述では、カセットタイプおよび容器について、より詳細に論じる。

【 0 0 1 9 】

(a) 減速材カセットは、原子炉の中性子スペクトルおよび中性子束によってほとんど決定される。一目的は、前記カセットの出口側で最大になる、熱中性子炉の中性子収率を提供することである。ほとんどの原子炉タイプは、減速材がなくてもターゲットを活性化するのに十分な熱中性子を生成するが、より低速で進むプロセスであることに留意されたい。減速材は、原子炉用C黒鉛、H₂O、D₂O、パラフィン、およびHeにより提供することができる。高速中性子および(原子炉)中子を減速させるのにパラフィンが使用される場合、それぞれ約40cmおよび約20cmの厚さが必要である。C黒鉛の場合、厚さは約10cmであるべきである(この厚さが最も有利であると見なされる。)

30

【 0 0 2 0 】

(b) ターゲットカセットは、先に述べた(おそらく、より多くの)親元素の1種で満たされる。材料の厚さを選択する場合、(1種または複数の)ターゲット元素の自己吸収と、得られる(1種または複数の)娘元素の自己吸収を、考慮しなければならない。したがって推奨される材料の厚さは、好ましくは10から15cmに及ぶ。正味の体積が100dm³であるカセットを形成することが好ましい。カセットの充填に応じて、カセットは2から4トンの総質量を有する。

40

【 0 0 2 1 】

(c) 反射材(ミラー)カセットは、同様の原理を念頭に置いて構成され、しかし中性子の後方散乱が、熱価と共に考慮される。Beの使用が好ましいが、その中毒性により、むしろBeOが推奨される。PEは、その水素含量により、散乱媒体であるが、耐熱性ではない。主にNiおよびFe、ならびにその任意の適切な合金、および/またはBi、Pb(それほど好ましくはない。)、Bi₂O₃であって、十分に安定であり耐熱性および耐薬品性であるものも、得ることができる。

【 0 0 2 2 】

50

(d) (3 構成要素) カセット支持体容器は、その名称にも反映されるように、3つのカセットと一緒に保持するのに適切な手段である。そのベース材料に関する限り、材料はカセットの場合と同一である。さらに容器は、化学的、熱的、および機械的損傷に耐えられるように、また構造材料としてそれほど活性可能でもなくなるように、機械的に設計される。容器は、変位および接続を行うのに適切な手段および要素も備える。その寸法は、優先的には約90×90×60cmであり、十分広まっているインチの単位で表されかつ国際的な実施で使用されるサイズに十分対応する。原子炉に面する容器の面(即ち、正面)を除き、前記容器には追加の放射線遮蔽材を設けることができる。カセットを備えた容器の総質量は、約8から10トンである。

【0023】

照射チャネルの場合、状況はより単純であることに留意されたい。熱中性子束は、原子炉の組込み式濾過手段により最初から影響を受ける可能性がある。したがって、この場合明らかに円筒状のケーシングである減速材カセットが必要であるのか、確かではない。構成は、原則的に、カセットを備えたシステムの場合に従うが、このように、さらにより少ない重量の手段が提供され、ケーシングのベース材料はAlおよび/またはFeにすることができる。前記円筒状ケーシングの長さは、前記カセットの幅に対応する。これは、好ましくはかつ目的に適う状態で、各ケーシングが10から20cmの長さであることを意味する。この場合、容器支持の必要がないので、放射線遮蔽カセットは、第4の構成要素として前記反射材(ミラー)カセットの後に配置構成することもできる。

【図面の簡単な説明】

【0024】

【図1】主としてランタニドおよび/または白金金属を生成するために中性子の核反応を利用する方法に即する装置構成の一例を表す図である。

【発明を実施するための形態】

【0025】

下記では、本発明について、図を参照しながら概説する。

【0026】

I. (原子炉) 原子炉シェル1内から離れる中性子11は、容器2の正面に移動し、次いで適切に選択された減速材物質4を含有する減速材カセット3に進入する。ここから中性子は、最大熱中性子収率13で前進し、ターゲットカセット5、およびターゲット6の親元素へと進入する。残りの熱中性子12はさらに移動し、適切に選択された反射材(ミラー)物質8を含有する反射材(ミラー)カセット7に進入し、ここに進入した熱中性子12の一部をターゲット6に向けて後方散乱させる。容器2自体は、その正面を除き、好ましくはFeをベースにした外部エンベロップ10により保護された追加の放射線遮蔽材9を備えている。

【0027】

II. 照射チャネルについては、さらなる説明は必要ない。

【0028】

ここで先行技術の技法および技術を顧みると、C. ルビア(1997年6月19日出願のPCT/EP97/03218)の優れた研究についてここで触れるべきであり、この研究は、原子炉から逃げる中性子を活用するが、その他の中性子源も同様に利用する。これは主に、既存の放射性廃棄物(発電所)が、より短い半減期の元素に変換されるようにさらに活性化される場合に好ましい。筆者は - とりわけ - 様々な(医療用)同位体の生成可能性、SiおよびGeをベースにした元素への不純物のドーピングなども開示する。しかし本質的に、ランタニドおよび白金金属の転換(変換)については発明の目的の中で言及されていない。筆者は、筆者の装置により生成することができるNaからThまでの全ての元素およびそれらの同位体を収集した表を構成したが、前記装置は説明的ではなく、したがって本明細書に開示される本発明の主題によるカセットおよび容器を含むシステムに対して価値あるものではない。

【0029】

10

20

30

40

50

次に、いくつかの強調される実施例を参照しながら、本発明による変換（元素転換）の主な放射線物理特性について顧みると、前記実施例には、表と一致して番号が付されており、符号「a」、「c」、および「e」は常に親元素を指し、一方、符号「b」、「d」、および「f」は娘元素を指すが、共に親または娘元素である可能性がある R e の場合（下記参照）は除き、即ち親元素 娘元素の転換プロセスは、例えば「a b」という表記により示される。

【0030】

所定の元素の化学記号の前にある原子番号、元素の可能性ある同位体（前記記号の下）と前記元素におけるそれらの自然界での存在比（単位：％）、各同位体の熱中性子捕獲断面積（単位：バーン）（丸めた値）、各同位体の半減期（ $T_{1/2}$ ）、および同位体に特徴的な放射線のタイプも示される（ α 、 e^- 、 γ 、 K ；本明細書で K は、特徴的放射線を表し、様々なタイプの電子照射は、独自の形で示される。この状態は崩壊の方法も決定し、即ち親元素は、それよりも1だけ少ない原子番号を有するその他の元素に転換される。）。いわゆる核異性体は、標識「m」によっても示される。

10

【0031】

ネオジウム プロメチウム

プロメチウムは、安定した同位体を得た。

【表1】

	％	バーン	半減期($T_{1/2}$)	放射線
60Nd		48		
142	27.11	18		
143	12.17	240		
144	23.85	5	1×10^{15} 年	α
145	8.30	60		
146	17.22	2		
147			11.0 日	$e^- \gamma$
148	5.73	4		
149			1.8 時間	$e^- \gamma$
150	5.62	2		
151			12.0 分	$e^- \gamma$

20

30

表 1a

注記：天然Ndは、 α 線放射体も含有し、同様の元素はSm、Gd、Hf、Pt、Pb、Th、およびUである。

【0032】

変換中、Nd 144は、著しく濃縮されるようになり（Nd 143同位体が高い中性子捕獲断面積で得られた。）、Pm同位体が形成されることになる。

【0033】

【表2】

	％	バーン	半減期($T_{1/2}$)	放射線
61Pm		60		
147			2.6 年	e^-
149			53.0 時間	$e^- \gamma$
151			1.1 日	$e^- \gamma$

40

表 1b

【0034】

変換反応は、原則的に下記の通りである：

a、Nd 147 Pm 147 Sm 147 Eu 147。

b、Nd 149 Pm 149 Sm 149。

c、Nd 151 Pm 151 Sm 151 Eu 151。

【0035】

50

これから、実際に純粋な e^- 線放射体として(0.225 MeV) Pm 147を利用することができ、半減期が 1.2×10^{11} 年(2.23 MeV)である純粋な γ 線放射体である $^{62}\text{Sm}147$ として「安定化」する。ここで生成物は、Nd 147 / Pm 147 同位体を約10%から15%の程度まで濃縮することができる。

【0036】

サマリウム ユーロピウム

【表3】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
^{62}Sm		5820		
144	3.09	2		
145			340.0 日	γ K
146			5×10^7 年	α
147	14.97	87	1×10^{11} 年	α
148	11.24			
149	13.83	40810		
150	7.44			
151		14000	93.0 年	$e^- \gamma$
152	26.72	140		
153			47.0 時間	$e^- \gamma$
154	22.71	5		
155			23.5 分	$e^- \gamma$
156				

10

20

表 2a

【0037】

その非常に高い中性子捕獲断面積により、Sm 151はさらに活性化されることになり、したがってEu 151の形成は特徴的ではなく、Eu 153はSm 153ターゲット内に濃縮されるようになり、および/またはEu 155 64 Gd 155の変換を、微量のSm 155から検出することができると考えられる。

【0038】

【表4】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
^{63}Eu		4400		
151	47.82	1700		
$^{152\text{m}}$			9.2 時間	e^\pm K
152		6200	12.2 年	$e^\pm \gamma$ K
153	52.18	440		
154		1690	16.0 年	$e^- \gamma$
155		15800	1.7 年	$e^- \gamma$

30

表 2b

【0039】

Eu $^{152\text{m}}$ の異性体状態は、最終的には64 Gd 152として安定化することになる。全体として、Sm 153 Eu 153の生成物状態は、約20%から25%のEu濃度と共に選択することができる。

40

【0040】

変換反応は、原則的に下記の通りである：

- Sm 145 Pm 145 Nd 145 (Sm 145はK崩壊を受けるので。)
- Sm 151 Eu 151。
- Sm 153 Eu 153。
- Sm 155 Eu 155 Gd 155。

【0041】

エルビウム ツリウム

50

【表 5】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
68Er		160		
162	0.13	2		
163			75 分	γ K
164	1.56	2		
165			10 時間	γ K
166	33.41			
167 ^m			2.5 秒	γ
167	22.90			
168	27.07	2		
169			9.5 日	e^- γ
170	14.88	9		
171			7.8 時間	e^- γ

表 3a

【0042】

Er の K 放射線により、Ho のみを、Er 165 までエルビウムターゲット内に形成することができる。Er 166 から Er 168 の範囲が本発明者らには好ましく、この場合 Er 168 同位体は、著しく濃縮されることになり、低断面積（単位：バーン）を僅かに補償する。

【0043】

【表 6】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
167			9.6 日	γ K
168			87.0 日	e^- γ K
69Tm		130		
169	100.00	130		
170		170	129.0 日	e^- γ K
171			1.9 年	e^- γ

表 3b

【0044】

全体として、Er 169 Tm 169 の変換プロセスでは、Er の 50% も Tm 169 状態に転換することができる。Ho および Yb は、数% で合金中に現れることになる。

【0045】

変換反応は、原則的に下記の通りである：

- a、Er 163 Ho 163 Dy 163。
- b、Er 165 Ho 165 Ho 165。
- c、Er 169 Tm 169。
- d、Er 171 Tm 171 Yb 171。

【0046】

イッテルビウム ルテニウム

このプロセスは、先に引用された特許文献に既に論じられており、したがって下記の内容は、単に思い起こすための助言として機能することに、本明細書では留意すべきである。

【0047】

10

20

30

40

【表 7】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
70Yb		37		
168	0.13	12400		
169 ^m			46.0 秒	γ
169			31.8 日	γ K
170	3.03			
171	14.31			
172	21.82			
173	16.13			
174	31.84	60		
175 ^m			0.0 秒	γ
175			101.0 時間	e ⁻ γ
176	12.73			
177 ^m			6.5 秒	γ
177			1.9 時間	e ⁻ γ

10

表 4a

【 0 0 4 8 】

Y b 1 6 9^m 1 6 9 の安定化プロセスは T m 1 6 9 に至り、このプロセスは、Y b 1 6 8 の高断面積値（単位：バーン）と Y b 1 6 9 の K 崩壊との直接的な結果である。

【 0 0 4 9 】

20

L u は、Y b 1 7 5^m 1 7 5 のプロセスが生じる場合に形成することができ、その他の Y b 同位体の形成は不可能である。

【 0 0 5 0 】

【表 8】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
174 ^m			90.0 日	γ
174			163.0 日	γ K
71Lu		108		
175	97.40	35		
176 ^m			37 時間	e ⁻ γ
176	2.60	4000	2×10 ¹⁰ 年	e ⁻ γ
177			6.7 日	e ⁻ γ

30

表 4b

【 0 0 5 1 】

生成物の合金中、L u は、少なくとも 5 0 % まで濃縮することができ、不純物は T m および H f である可能性がある。

【 0 0 5 2 】

理論的変換反応は、下記の通りである：

- a、Y b 1 6 9 T m 1 6 9。
- b、Y b 1 7 5 L u 1 7 5。
- c、Y b 1 7 7 L u 1 7 7 H f 1 7 7。

40

注記：上記具体化された反応プロセスの他に、その他のランタニドも同様に生成することが可能であり、例えば既に述べた G d T b 元素の変換を参照されたい。

【 0 0 5 3 】

したがって、既に公知であるように：

タングステン レニウム

【表 9】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
75W		18		
180	0.13	10		
181			145 日	γ K
182	26.41	20		
183 ^m			5.3 秒	γ
183	14.40	11		
184	30.64	2		
185 ^m			1.6 分	γ
185			73.2 日	e ⁻ γ
186	26.41	34		
187		90	1.0 日	e ⁻ γ

10

表 5a

【0054】

W 1 8 4 は、活性化プロセスで濃縮されるようになるが、W 1 8 5 Re 1 8 5 の変換プロセスは低効率で行われ、対照的に W 1 8 7 Re 1 8 7 のプロセスは、非常に好ましい。

【0055】

W 1 8 1 の K 崩壊により、T a 汚染が形成され、さらに O s 1 8 8^m O s 1 8 8 の結果、レニウム娘元素は O s 1 8 8 を含有するようになる。

20

【0056】

【表 10】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
75Re		84		
185	37.07	120		
186 ^m			1.0 時間	γ
186			88.9 時間	e ⁻ γ K
187	62.93	69	6×10 ¹⁰ 年	e ⁻
188 ^m			18.7 分	γ
188		2	18.0 時間	e ⁻ γ

30

表 5b

【0057】

Re 1 8 7 の e⁻ 放出は、強度およびエネルギー共に非常に低いことに、本明細書では留意すべきである。

【0058】

理論的変換反応は、下記の通りである：

- a、W 1 8 1 T a 1 8 1。
- b、W 1 8 5 Re 1 8 5。
- c、W 1 8 7 Re 1 8 7。

40

【0059】

目的が O s を生成することである場合、タングステンをさらに活性化することができる。

W Re O s

(5 a 5 b 6 b の解釈に一致する。)

【0060】

このプロセスは、原子炉シェルタイプの技術の場合、極めて有利であり経済的である。

【0061】

既に述べたように、T a 1 8 1 成分は、生成物中に少量で現れることになり、レニウムの大部分は Re 1 8 7 同位体になり、一方オスミウムは、典型的には O s 1 8 8 によって

50

形成される（この後者は、生成物の10%から20%程度を形成することができる。）。

【0062】

オスmiumは、天然のレニウムそのものから、より効率的な方法で生成することができる。

レニウム オスmium

(以下のプロセス6a 6bを参照されたい。)

【表11】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
76Os		15		
184	0.02	200		
185			93.6日	γ K
186	1.59			
187	1.64			
188 ^m			26.0日	γ
188	13.30			
189 ^m			5.7時間	γ
189	16.10			
190 ^m			10.0分	γ
190	26.40	40		
191 ^m			14.0時間	γ
191		8	16.0日	e^- γ
192	40.95	2		
193		600	30.6時間	e^- γ
194			1.9年	e^-

表6b

【0063】

Re185からRe186^mへの活性化 - 186の活性化は e^- により安定化することになり、W186およびOs186同位体としてのK崩壊は、Os部分がより高くなるような方法である（即ち、Os186の初期量1.59%は増加する。）。

【0064】

理論的変換反応は、下記の通りである：

a、Re186 Os186 + W186。

b、Re188 Os188。

【0065】

生成物中にOs185はなく、スペクトルのその他の部分は、極めて低い強度のものである。生成物中に、Irは微量で存在することもできる。

【0066】

本明細書では、天然のOsの最も価値ある安定した同位体は、Os187であり、天然のOsの1.64%を形成する。本発明のプロセスによって得られたオスmium生成物は、同位体Os186およびOs188と同位体Re185およびRe187の混合物である。以下において、ここから同位体Os187を生成する2つの異なる方法が提供される。

【0067】

(a) 原子炉中性子の(n, 2n)反応では、Os186の断面積が0.04バーンであり、一方Os188の断面積は0.005バーンである（したがって、Os188は、Os187に転換することができ、一方Os186は、安定な同位体のままでもある。Re安定化剤の一部がWである場合、その別の部分はOs186として安定化する。）。

【0068】

(b) エネルギーが1eVから100keVに及ぶ中間共鳴中性子を用いることにより、Os186 Os187およびOs188 Os189^m Os189を誘導すること

10

20

30

40

50

ができ、この場合 R e の状態はほとんど変化しない。ここで形成される O s 同位体は、任意の変形例で複雑な分離技法を用いてのみ、分離することができる。

【 0 0 6 9 】

白金金属の中で、ロジウムの生成可能性についてより詳細に論じる。しかし、先に開示された元素に加えその他の元素を生成することも同様に可能であることは、当業者に明らかである。

【 0 0 7 0 】

ルテニウム ロジウム

【表 1 2】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
44Ru		3		
96	5.53	1		
97			2.9 日	γ K
98	1.87			
99	12.72			
100	12.62			
101	17.07			
102	31.61	1		
103			39.7 日	e^- γ
104	18.58	1		
105		1	4.5 時間	e^- γ

10

20

表 7a

【 0 0 7 1 】

【表 1 3】

	%	バーン	半減期(T1/2)	放射線
45Rh		150		
103 ^m			57.0 分	γ
103	100.00	149		
104 ^m		900	4.4 分	γ
104		45	42.0 秒	e^- γ
105 ^m			45.0 秒	γ
105			35.0 時間	e^- γ
106 ^m			2.2 時間	e^- γ
106			30.0 秒	e^- γ

30

表 7b

【 0 0 7 2 】

ルテニウムの活性化は、非常に低い効率で生じる。K 崩壊を介して、R u 9 7 は T c 9 7 ^m T c 9 7 の状態、即ち半減期が長い (2 . 6 × 1 0 ⁶ 年) K 放射体同位体になる。

【 0 0 7 3 】

理論的変換反応は、下記の通りである :

40



【 0 0 7 4 】

R h は、容易に活性化することができ、したがって T c および P d 汚染物質 / 合金元素が、R u - R h 合金の他に生成物中に形成される。

【 0 0 7 5 】

生成物が放射性であることを考えると、下記において、スペクトルのエネルギー (M e V) および比照射出力 k (相対的な値) もそれら同位体に与えられ、量子の数は、1 0 0 崩壊当たり 1 0 を超える。

【 0 0 7 6 】

この場合、親元素 娘元素の転換反応は、「 c d 」というタイプの標識により示され

50

る。

【 0 0 7 7 】

様々な元素に関し、放射線の特徴およびパラメーターは下記の通りである。

【 0 0 7 8 】

【表 1 4】

	MeV	k γ			MeV	k γ
Nd			→	Pm		
144	0.09	0.8		151	0.06	0.7
	0.53				0.10	
151	0.11	3.3				
	0.12					
	0.14					
	0.25					

表 1c

表 1d

10

【 0 0 7 9 】

【表 1 5】

	MeV	k γ			MeV	k γ
Sm			→	Eu		
145	0.06	0.0		152 ^m	0.12	1.3
					0.85	
153	0.10	0.2				
				152	0.12	5.0
155	0.10	0.4				
				154	0.12	6.2
					0.73	
					0.87	
					1.00	
					1.01	
					1.28	
				155	0.06	0.8
					0.08	
					0.10	
					0.12	

表 2c

表 2d

20

30

【 0 0 8 0 】

【表 1 6】

	MeV	k γ			MeV	k γ
Er			→	Tm		
167 ^m	0.21	0.5				
171	0.11	1.8				
	0.30					
	0.31					

表 3c

表 3d

40

【 0 0 8 1 】

生成物中には、T mからの著しい放射線はない。

【 0 0 8 2 】

【表 1 7】

	MeV	$k\gamma$	→		MeV	$k\gamma$
Yb				Lu		
169	0.06	1.2		176	0.20	2.7
	0.11				0.30	
	0.13					
	0.18					
	0.20					
	0.31					
177	0.12	0.4				

表 4c

表 4d

10

【 0 0 8 3 】

【表 1 8】

	MeV	$k\gamma$	→		MeV	$k\gamma$
W				Re		
183 ^m	0.10	0.5		186	0.14	0.1
	0.11					
	0.16			188	0.15	0.4
187	0.07	2.8				
	0.48					
	0.68					

表 5c

表 5d

20

【 0 0 8 4 】

【表 1 9】

	MeV	$k\gamma$	→		MeV	$k\gamma$
Re				Os		
186	0.14	0.1		185	0.64	4.1
188	0.15	0.4				

表 5a、5b!

表 6d

30

【 0 0 8 5 】

【表 2 0】

	MeV	k γ			MeV	k γ
Ru			→	Rh		
103	0.50	1.2		104 ^m	0.05	1.0
105	0.67	3.9		105 ^m	0.13	0.1
	0.72					
				106 ^m	0.22	13.4
					0.41	
					0.45	
					0.51	
					0.62	
					0.72	
					0.74	
					0.82	
					1.05	
					1.14	
					1.22	
					1.54	

表 7c

表 7d

【0086】

生成物の親元素と娘元素と分離するための可能性ある周知の技法は、元素成分がそれらの密度の差により重力で推進されて互いに分離するようになるまで、必要な温度で維持することにより、生成物を溶融相で保持することである。生成物が粉末の場合は酸化され、特にランタニドはLaF₃およびLa₂O₃の形で安定であり、後者の酸化形態が推奨される（好ましくは、坩堝が垂直セラミック管により設けられ、セラミック管の内面は、必要に応じてAl₂O₃、Ta、W、およびIrのいずれかでコーティングされる。酸化物溶融体の場合、最も好ましいのはIrであり、一方、金属溶融体の場合はTaおよびWが推奨される。）。

【0087】

生成物の処理は、酸化形態の場合に最も簡単になるようである。

(注記：B.P. = 沸点、
M.P. = 融点、
D. = 密度)

【0088】

この場合、親元素 娘元素の変換反応は、「e f」というタイプの標識により示される。

【0089】

【表 2 1】

Nd	→ Pm	;	Sm	→ Eu
B.P.: 3068	?		1791	1597
M.P.: 1021	1027		1077	822
D.: 7.00	?		7.54	5.24
Nd ₂ O ₃	→ Pm ₂ O ₃		Sm ₂ O ₃	→ Eu ₂ O ₃
M.P.: 2272	?		2350	2056
D.: 7.24	?		7.43	8.18

表 1e

表 1f

表 2e

表 2f

【0090】

10

20

30

40

【表 2 2】

Er	→ Tm	;	Yb	→ Lu
B.P.: 2863	1947		1194	3395
M.P.: 1529	1545		819	1663
D.: 9.05	9.32		6.98	9.84
Er ₂ O ₃	→ Tm ₂ O ₃		Yb ₂ O ₃	→ Lu ₂ O ₃
M.P.: 2400	不安定		2346	不安定
D.: 8.64	8.90		9.17	9.41
表 3e	表 3f		表 4e	表 4f

10

【 0 0 9 1】

【表 2 3】

W	→ Re	;	Re	→ Os
B.P.: 5660	5627		5627	5027
M.P.: 3410	3180		3180	3045
D.: 19.3	21.0		21.0	22.5
W O ₃	Re ₂ O ₇		Re ₂ O ₇	Os ₂ O ₃
M.P.: 1473	297		297	不安定
D.: 7.16	8.20		8.20	?
表 5e	表 5f		5f!表 6e	表 6f

20

【 0 0 9 2】

このように、生成物の Os 同位体は、基本的に Os 186 および Os 188 の同位体のみからなる。

【 0 0 9 3】

生成物の親元素と娘元素とを分離するには、ランタニドの場合と同じ技法が推奨される。

30

【 0 0 9 4】

【表 2 4】

Ru	→	Rh
B.P.: 3900		3727
M.P.: 2310		1965
D.: 12.20		12.40
表 7e		表 7f

【 0 0 9 5】

それらの酸化形態（実際の）はわかっていない。

40

【 0 0 9 6】

本明細書では、プロセス Ru Rh で形成される娘元素 Rh の中性子捕獲断面積は、親元素 Ru の場合よりも非常に大きいことに留意されたい。その結果、活性化によりさらに崩壊し、前記崩壊の半減期は比較的短い。（1種または複数の）親および娘元素の崩壊および形成因子、ならびに活性化時間および半減期も考慮すると、ターゲット内の Ru の濃度が少なくとも 8 重量% の値を超えない場合、ターゲットは 100% の Ru を含有する場合であっても Rh に変換できないので、生成物中に存在する娘元素 Rh はなくなる。即ち、いわゆる放射性崩壊バランスに到達すると、娘元素の活性は最大限になり、したがって親元素のさらなる活性化はもはや好ましくなく、これは変換されなかった親元素が常に存

50

在することになることを意味する(この所見は、0 s 1 8 7 が生成される場合にさらにより妥当である。)

【0097】

手短にまとめると：本明細書に論じられた生成物の生成プロセスに関連した教示は、実際に本発明の適用可能性の証明と見なされる。上記例示された「カセット - 容器および原子炉シェル」タイプの配置構成の利用に基づく技術は、有意な産業上の増大を可能にする。この増大は、それら産業部門にさらなる変化も誘導することになり、そこでは本発明の解決策が適用され、それによってこれら部門の将来も影響を受け / 変化する。

【0098】

文献：

ジャス・アルパッド (Jasz Arpad) - レンギエル・タマス (Lengyel Tamas) : Izotoplaboratoriumi zsebkönyv Muszaki Konyvkiado 1966。

Neutron Cross section - Brookheaven National Laboratory, 2nd edition 1958。

S . F . ムガバブ (S.F. Mughabghab) ら Neutron Cross section: Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Section v.1 (Neutron Cross sections Series) (Vol1) Saunders College Publishing。

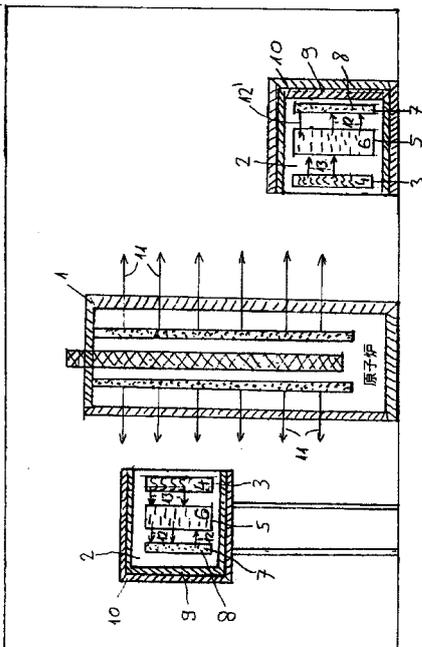
Nuclear Fission and Neutron-included Fission Cross-section (Neutron physics and nuclear data in science and technology), Pergamon Press 1981。

Atlas of Neutron Resonances, 5th edition: Resonance Parameters and Thermal Cross Sections. Z=1-100 S . F . ムガバブ (S.F. Mughabghab) ,Elsevier Science (5th edition 2006)。

10

20

【図1】



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/HU2011/000048

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. G21G1/06 ADD.		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) G21G		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2009/213977 A1 (RUSSELL II WILLIAM EARL [US] ET AL) 27 August 2009 (2009-08-27)	1,2,5, 8-10
Y	abstract; claims; figures; table 1	6,7
X	WO 90/06583 A1 (TELEKI PETER [HU]) 14 June 1990 (1990-06-14) cited in the application the whole document	1-5,8-10
Y	US 6 222 896 B1 (JIA WEI [US] ET AL) 24 April 2001 (2001-04-24)	6,7
A	claim 19	1-5,8-10
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
15 November 2011		23/11/2011
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Smith, Christopher

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/HU2011/000048

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2009213977 A1	27-08-2009	CA 2653871 A1	21-08-2009
		CN 101515483 A	26-08-2009
		EP 2093773 A2	26-08-2009
		JP 2009198500 A	03-09-2009
		RU 2009106154 A	27-08-2010
		TW 200947465 A	16-11-2009
		US 2009213977 A1	27-08-2009
WO 9006583 A1	14-06-1990	AU 4528389 A	26-06-1990
		CA 2003671 A1	28-05-1990
		EP 0400122 A1	05-12-1990
		WO 9006583 A1	14-06-1990
US 6222896 B1	24-04-2001	CA 2214089 A1	26-02-1998
		US 6222896 B1	24-04-2001

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

【要約の続き】

す。ある生成物では、本明細書で論じられるように、例えばT cなどのその他の娘元素も形成される。