

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02010/001728

発行日 平成23年12月15日 (2011.12.15)

(43) 国際公開日 平成22年1月7日 (2010.1.7)

(51) Int.Cl.			F I			テーマコード (参考)		
G 2 1 G	4/08	(2006.01)	G 2 1 G	4/08	G	4 D 0 1 7		
B 0 1 J	45/00	(2006.01)	B 0 1 J	45/00	H	4 K 0 0 1		
B 0 1 J	49/00	(2006.01)	B 0 1 J	49/00	H			
B 0 1 D	15/08	(2006.01)	B 0 1 D	15/08				
C 2 2 B	15/00	(2006.01)	C 2 2 B	15/00				

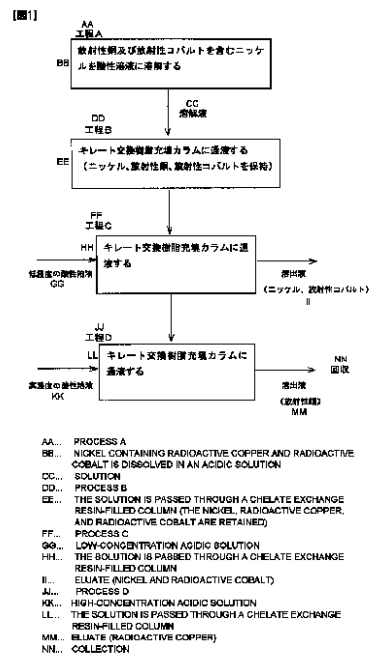
審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全 13 頁) 最終頁に続く

出願番号	特願2010-518984 (P2010-518984)	(71) 出願人	505374783
(21) 国際出願番号	PCT/JP2009/061020		独立行政法人 日本原子力研究開発機構
(22) 国際出願日	平成21年6月17日 (2009.6.17)		茨城県那珂郡東海村村松4番地49
(31) 優先権主張番号	特願2008-171032 (P2008-171032)	(74) 代理人	100093230
(32) 優先日	平成20年6月30日 (2008.6.30)		弁理士 西澤 利夫
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	渡邊 茂樹
			群馬県高崎市綿貫町1233番地 独立行政法人日本原子力研究開発機構 高崎量子応用研究所内
		(72) 発明者	石岡 典子
			群馬県高崎市綿貫町1233番地 独立行政法人日本原子力研究開発機構 高崎量子応用研究所内
		Fターム(参考)	4D017 AA13 BA13 BA15 CA17 CB01 DA03 DB10 EA05
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 キレート交換樹脂を用いた放射性銅の分離方法

(57) 【要約】

放射性銅と放射性コバルトを含むニッケルから放射性銅を迅速に分離する方法であって、放射性銅と放射性コバルトを含むニッケルを酸性溶液に溶解してキレート交換樹脂充填カラムに通液してニッケル、放射性銅及び放射性コバルトをキレート交換樹脂に保持した後、このキレート交換樹脂充填カラムに酸性溶液を通液してニッケル及び放射性コバルトを溶出し、次いでニッケル及び放射性コバルト溶出後のキレート交換樹脂充填カラムに前記酸性溶液よりも高濃度の酸性溶液を通液して放射性銅を溶出する。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

放射性銅と放射性コバルトを含むニッケルから放射性銅を分離する方法であって、放射性銅と放射性コバルトを含むニッケルを酸性溶液に溶解してキレート交換樹脂充填カラムに通液してニッケル、放射性銅及び放射性コバルトをキレート交換樹脂に保持した後、このキレート交換樹脂充填カラムに酸性溶液を通液してニッケル及び放射性コバルトを溶出し、次いでニッケル及び放射性コバルト溶出後のキレート交換樹脂充填カラムに前記酸性溶液よりも高濃度の酸性溶液を通液して放射性銅を溶出することを特徴とするキレート交換樹脂を用いた放射性銅の分離方法。

【請求項 2】

放射性銅と放射性コバルトを含むニッケルを溶解する酸性溶液、及び、ニッケル及び放射性コバルトを溶出する酸性溶液は、 $0.25 \sim 0.06 \text{ mol/L}$ の塩酸もしくは硝酸、又は $0.12 \sim 0.03 \text{ mol/L}$ の硫酸であることを特徴とする請求項 1 に記載のキレート交換樹脂を用いた放射性銅の分離方法。

【請求項 3】

ニッケル及び放射性コバルトを溶出後に放射性銅を溶出する酸性溶液は、 0.5 mol/L 以上の濃度の塩酸もしくは硝酸、又は 0.25 mol/L 以上の濃度の硫酸であることを特徴とする請求項 1 に記載のキレート交換樹脂を用いた放射性銅の分離方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、キレート交換樹脂を用いた放射性銅の分離方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

これまでCu-60、Cu-61、Cu-62、Cu-64、Cu-67等、銅の放射性核種（以下、放射性銅ともいう）の製造では、ニッケルの安定同位体であるニッケルターゲットに陽子、重陽子、あるいはアルファ粒子のビームを照射することで放射性銅を生成させ、ニッケルターゲットに含まれる放射性銅を化学的に分離・精製する方法が知られている（特許文献1、非特許文献1参照）。例えば、非特許文献1では、照射した ^{64}Ni ターゲットを濃塩酸に溶解し、その溶液を陰イオン交換樹脂に通すことで放射性銅を分離する方法が報告されている。また、非特許文献2では非特許文献1の方法を用いたCu-64製造装置が提案されており、3時間以内でCu-64を製造できることが報告されている。

【0003】

ところで ^{64}Ni ターゲットに陽子ビームを照射すると、放射性銅とともに副生成物であるCo-55、Co-56、Co-57、Co-58等、コバルトの放射性核種（以下、放射性コバルトともいう）が生成する。したがって目的とする放射性銅を高純度で得るためには、ニッケル及びコバルトの放射性核種を除去する必要がある。そこで非特許文献3では、非特許文献1の方法の改良型として、照射した ^{64}Ni ターゲットを 0.3 mol/L 塩酸を含むエタノール溶液に溶解し、その溶液を陰イオン交換樹脂に通すことで放射性銅を分離する方法を報告している。

【特許文献1】特表2007-512118号公報

【非特許文献1】D. W. McCarthy et al., Nucl. Med. Biol., 24, 35-43 (1997)

【非特許文献2】A. Obata et al., Nucl. Med. Biol., 30, 535-539 (2003)

【非特許文献3】X. Hou et al., Appl. Radiat. Isot., 57, 773-777 (2002)

【発明の開示】

【0004】

しかしながら、陰イオン交換樹脂を用いた分離法では、副生成物である放射性コバルトを分離することが難しく、高純度の放射性銅を分離するためには陰イオン交換樹脂を多量に使用して樹脂との接触時間を長くする必要があった。その結果、(1)分離に時間がか

10

20

30

40

50

かり、これに伴い(2)作業者の被曝量が増える、(3)分離に多量の塩酸水溶液が必要である、(4)装置の規模が比較的大きくなり、放射線を遮蔽するためのセル内への設置が制限される、という問題があった。

【0005】

本発明は、以上のとおりの事情に鑑みてなされたものであり、放射性銅を迅速に分離することができるキレート交換樹脂を用いた放射性銅の分離方法を提供することを課題としている。

【0006】

本発明のキレート交換樹脂を用いた放射性銅の分離方法は、上記の課題を解決するために、以下のことを特徴としている。

【0007】

第1に、放射性銅と放射性コバルトを含むニッケルから放射性銅を分離する方法であって、放射性銅と放射性コバルトを含むニッケルを酸性溶液に溶解してキレート交換樹脂充填カラムに通液してニッケル、放射性銅及び放射性コバルトをキレート交換樹脂に保持した後、このキレート交換樹脂充填カラムに酸性溶液を通液してニッケル及び放射性コバルトを溶出し、次いでニッケル及び放射性コバルト溶出後のキレート交換樹脂充填カラムに前記酸性溶液よりも高濃度の酸性溶液を通液して放射性銅を溶出する。

【0008】

第2に、放射性銅と放射性コバルトを含むニッケルを溶解する酸性溶液、及び、ニッケル及び放射性コバルトを溶出する酸性溶液は、 $0.25 \sim 0.06 \text{ mol/L}$ の塩酸もしくは硝酸、又は $0.12 \sim 0.03 \text{ mol/L}$ の硫酸である。

【0009】

第3に、ニッケル及び放射性コバルトを溶出後に放射性銅を溶出する酸性溶液は、 0.5 mol/L 以上の濃度の塩酸もしくは硝酸、又は 0.25 mol/L 以上の濃度の硫酸である。

【図面の簡単な説明】

【0010】

【図1】図1は、キレート交換樹脂を用いて放射性銅を分離する工程を示すフローチャートである。

【図2】図2は、キレート交換樹脂を用いた放射性銅の分離装置の模式図である。

【図3】図3(a)は、図2の分離装置における加熱容器の斜視図であり、図3(b)は容器の斜視図である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0011】

本発明は前記のとおりの特徴をもつものであるが、特に放射性銅と放射性コバルトを含むニッケルからの放射性銅の分離においてキレート交換樹脂を用いたことが重要である。キレート交換樹脂のこれまでの使用例としては、河川や海水に含まれる微量金属の濃縮・回収や分析溶媒中に含まれる微量金属の除去等が一般的である。銅に関しては酸性～中性～塩基性のどの条件でもキレート交換樹脂に保持されるので特に試料中からの濃縮・回収あるいは除去には利用されることが多いが、コバルトやニッケルなど遷移金属との分離という例はない。これは分離を行う酸性溶液の条件設定が難しく、銅と遷移金属との分離が困難であると考えられていたからである。放射性銅の分離に関しては、上述したように特許文献1や非特許文献1において、照射した ^{64}Ni ターゲットを濃塩酸に溶解し、その溶液を陰イオン交換樹脂に通すことで放射性銅を分離する方法が報告されている。しかしながら、実際には照射した ^{64}Ni ターゲットには放射性コバルトも生成しており、非特許文献3では放射性コバルトと放射性銅との分離が難しいことが報告されている。本発明者らは、このような背景下で放射性銅と放射性コバルトを含むニッケルからの放射性銅の分離を実現するための検討を鋭意行い、キレート交換樹脂に着目して本発明を完成している。以下に、本発明を実施するための最良の形態を説明する。

【0012】

10

20

30

40

50

図1はキレート交換樹脂を用いて放射性銅を分離する工程を示すフローチャートである。以下、図1に従って本発明のキレート交換樹脂を用いた放射性銅の分離方法の一実施形態について説明する。

【0013】

図1における工程Aでは、放射性コバルトと放射性銅を含むニッケルに酸性溶液に加えて溶解する。ここで「放射性コバルト」はCo-55、Co-56、Co-57、Co-58等のコバルトの放射性同位体であり、「放射性銅」はCu-60、Cu-61、Cu-62、Cu-64、Cu-67等の銅の放射性同位体である。「放射性コバルトと放射性銅を含むニッケル」は、例えば、ニッケルの安定同位体をターゲット物質にして加速した陽子や重陽子、またはアルファ（ヘリウム）粒子を照射して放射性銅と放射性コバルトを生成させたものや、この放射性銅と放射性コバルトを生成させたターゲット物質を過酸化水素を含む塩酸に溶解して蒸発乾固させて得られる塩化ニッケル、もしくは塩酸に代えて硝酸や硫酸を用いて得られる硝酸ニッケルや硫酸ニッケル等が挙げられる。ターゲット物質は、Ni金属を電着したものやNiOを用いることができる。

10

【0014】

放射性コバルトと放射性銅を含むニッケルを溶解する酸性溶液は、例えば、0.25～0.06 mol/L、より好ましくは0.2～0.08 mol/L、特には0.15～0.1 mol/Lの塩酸もしくは硝酸、又は0.12～0.03 mol/L、より好ましくは0.1～0.04 mol/L、特には0.07～0.05 mol/Lの硫酸を使用することができる。このような濃度範囲の酸性溶液を用いることで、後述する工程Bにおいてキレート交換樹脂にニッケル、放射性銅及び放射性コバルトが保持されるが、特に放射性銅を優先的に保持させることができる。0.25 mol/Lより高濃度の塩酸もしくは硝酸を使用すると、ニッケルおよび放射性コバルトとともに銅が溶出する可能性があるため好ましくない。また、0.06 mol/Lより低濃度の酸性溶液を使用するとニッケルおよび放射性コバルトが、後述するキレート交換樹脂充填カラムに保持されたまま溶出しなくなる可能性があり、これは放射性銅を高濃度の酸溶液で溶出する際にニッケルおよび放射性コバルトが混入し、放射性銅の純度を著しく低下させることが懸念される。したがって、ニッケルおよび放射性コバルトのみを選択的に溶出させるには塩酸や硝酸の濃度範囲を0.25～0.06 mol/Lとすることが好ましい。同様の理由で、硫酸の濃度範囲を0.12～0.03 mol/Lとすることが好ましい。

20

30

【0015】

放射性コバルトと放射性銅を含むニッケルとこれを溶解する酸性溶液の組み合わせは特に限定されるものではないが、放射性銅をより効果的に分離するためには放射性コバルトと放射性銅を含むニッケルを高い溶解度で酸性溶液に溶解しておくことが好ましく、好ましい組み合わせとしては、例えば、塩化ニッケルと塩酸、硝酸ニッケルと硝酸、硫酸ニッケルと硫酸を例示することができる。

【0016】

この工程では、少量の酸性溶液、例えば0.5～2 mLの酸性溶液に放射性コバルトと放射性銅を含むニッケルを溶解している。

【0017】

工程Bでは、工程Aにおいて放射性コバルトと放射性銅を含むニッケルを酸性溶液に溶解したその溶解液をカラムに充填したキレート交換樹脂に接触（チャージ）させている。この工程においてカラムにチャージさせる溶解液は、上述したように0.5～2 mLの酸性溶液を用いた溶解液であり、その容量は少量であるためカラム中に存在する形になっている。これにより、ニッケル、放射性銅及び放射性コバルトがキレート交換樹脂に効果的に吸着されて保持される。

40

【0018】

キレート交換樹脂は、ニッケル、放射性銅及び放射性コバルトを吸着し得るキレート樹脂であればよい。このようなキレート交換樹脂は、これまで食品消化物や河川水、海水などの環境試料中に含まれる微量のニッケル・銅・コバルトの濃縮・捕集、あるいは分析試

50

料中に含まれるニッケル・銅・コバルトの除去などに利用されてきたものを使用することができ、溶液のpHを変化させることで選択的に銅のみを捕捉、溶出することが可能である。具体例として、スチレン-ジビニルベンゼン共重合体等のスチレン系や、メタクリレート重合体等のアクリル酸エステル系の高分子樹脂（マトリックス）に、ニッケル、放射性銅及び放射性コバルトとキレート形成し得る配位基としてのイミノ二酢酸やエチレンジアミン三酢酸等のアミノカルボン酸類を導入した樹脂及び固相充填剤を挙げることができる。

【0019】

工程Cでは、ニッケル、放射性銅及び放射性コバルトが保持されたキレート交換樹脂充填カラムに酸性溶液を通液する。これによってニッケル及び放射性コバルトのみが溶出する。ここで使用する酸性溶液は低濃度であることが好ましく、例えば、工程Aで使用した酸性溶液と同様、 $0.25 \sim 0.06 \text{ mol/L}$ 、より好ましくは $0.2 \sim 0.08 \text{ mol/L}$ 、特に $0.15 \sim 0.1 \text{ mol/L}$ の塩酸もしくは硝酸、又は $0.12 \sim 0.03 \text{ mol/L}$ 、より好ましくは $0.1 \sim 0.04 \text{ mol/L}$ 、特に $0.07 \sim 0.05 \text{ mol/L}$ の硫酸を使用することができる。 0.25 mol/L より高濃度の塩酸もしくは硝酸を使用すると、ニッケルおよび放射性コバルトとともに銅が溶出する可能性があるため好ましくない。また、 0.06 mol/L より低濃度の酸性溶液を使用するとニッケルおよび放射性コバルトが、後述するキレート交換樹脂充填カラムに保持されたまま溶出しなくなる可能性があり、これは放射性銅を高濃度の酸溶液で溶出する際にニッケルおよび放射性コバルトが混入し、放射性銅の純度を著しく低下させることが懸念される。したがって、ニッケルおよび放射性コバルトのみを選択的に溶出させるには塩酸や硝酸の濃度範囲を $0.25 \sim 0.06 \text{ mol/L}$ とすることが好ましい。同様の理由で、硫酸の濃度範囲を $0.12 \sim 0.03 \text{ mol/L}$ とすることが好ましい。

【0020】

工程Dでは、ニッケル及び放射性コバルト溶出後のキレート交換樹脂充填カラムに高濃度の酸性溶液を通液する。これによってキレート交換樹脂に保持された放射性銅が溶出する。ここでは放射性銅のみが酸性溶液に溶出するので、この溶出液を回収することで放射性銅を分離することができ、目的とする放射性銅を得ることができる。工程Dで使用する酸性溶液は、工程A及び工程Cで使用した酸性溶液よりも高濃度の酸性溶液を使用する。例えば、 0.5 mol/L 以上の濃度の塩酸もしくは硝酸、又は 0.25 mol/L 以上の濃度の硫酸を使用することができる。 0.5 mol/L 未満の濃度の塩酸や硝酸を使用すると、放射性銅がカラム内で保持されて溶出しないことが懸念されるため好ましくない。同様の理由により、 0.25 mol/L 未満の濃度の硫酸の使用は好ましくない。上限値は特に限定されるものではなく、装置に影響を与えることのない入手可能なものであればよい。

【0021】

以上、実施形態に基づき本発明を説明したが、本発明は上記の実施形態に何ら限定されるものではなく、その要旨を逸脱しない範囲内において各種の変更が可能である。以下、本発明の実施例を具体的に説明する。

【実施例】

【0022】

<実施例1>

図2は、キレート交換樹脂を用いた放射性銅の分離装置の模式図である。

【0023】

まず、ターゲットにはニッケルの安定同位体を濃縮した ${}^64\text{NiO}$ （濃縮度99.6%） 150 mg を用い、入射エネルギー 11 MeV の陽子ビーム（電流値 $5 \mu\text{A}$ ）を1時間照射して放射性銅（ ${}^64\text{Cu}$ ）及び放射性コバルトを生成させた。次いで、照射した ${}^64\text{NiO}$ を加熱容器3に投入し、ヘリウムによる圧送によりマスフローコントローラ7でその流量を調整しつつ溶媒貯留槽4aから加熱容器3へ過酸化水素を含む塩酸を加えた。ここで加熱容器3は石英製のものを使用する。これによって、例えば、放射性銅標識薬剤の

合成等、医学分野での利用を考えた場合、その放射性銅標識薬剤の合成を阻害する不純物の混入を最小限することができる。また図3(a)に示すように、V型形状の底を有しており溶液を効率よく回収できるようになっている。また、加熱装置1には加熱容器3の形状に合わせた空洞を持っており、効率よく加熱できるようになっている。蓋14(キャップ部)は穴あきキャップ14aとブチルセブタム14bを組み合わせたものからなり、シリンジ又はPEEKチューブ等の送液用チューブ15をブチルセブタム14bに直接差し込めるようになっており、加熱容器3を開封することなく圧送による送液、減圧による蒸発乾固が行えるようになっている。

【0024】

次に、加熱制御部2で加熱装置1の加熱温度を制御して加熱容器3を150以上まで加熱し、加熱容器3に投入された ^{64}NiO が完全に溶解するまで加熱を継続した。 ^{64}NiO が完全に溶解した後、加熱装置1で加熱容器3を200以上まで加熱してこの ^{64}NiO 溶解液を蒸発させた。蒸発した酸は、ソーダライム等の塩基性の物質から構成される酸捕捉部8にてトラップされ、外部に酸が漏れないようになっている。その後、溶媒貯留槽4bから三方バルブ9を経由して加熱容器3に0.1mol/L塩酸を加えて加熱容器3に残る固体(塩化ニッケル(NiCl_2))を完全に溶解し、この溶解液を三方バルブ9,10を経由して圧送によりキレート樹脂(GLサイエンス社、Inert sep mini ME-1)(配位基:イミノ二酢酸基、母体(マトリックス):メタクリレート重合体)を充填したキレート交換カラム6aと固相抽出カラム6bで構成されている分離部6に添加した。これによって、溶解液に含まれ得るニッケル、放射性銅及び放射性コバルトをキレート樹脂に保持させた。固相抽出カラム6bは、酸性条件下で溶出することが考えられるキレート部位(有機化合物)を除去するためのものである。例えば、キレート部位は放射性銅標識薬剤合成において阻害剤として働くことが懸念されるため、この段階で除去する必要がある。

【0025】

前記塩酸溶液を分離部6に通液した後、溶媒貯留槽4bから三方バルブ9,10を経由して分離部6に0.1mol/L塩酸を圧送により通液してニッケル及び放射性コバルトを溶出した。ニッケル及び放射性コバルトの溶出液は三方バルブ12,11を経由して圧送により加熱容器3に戻るようになっている。

【0026】

次に、溶媒貯留槽4cから三方バルブ10を経由して分離部6に2mol/L塩酸を圧送により通液して放射性銅を溶出した。放射性銅の溶出液は三方バルブ12,13を経由して圧送により容器5に送液して放射性銅を回収した。ここで容器5は、図3(b)に示すように、底がV型形状を有していない以外は加熱容器3と同様に構成になっている。

【0027】

以上、本発明によれば、図2の分離装置によって、高純度の放射性銅を2時間程度で分離できるようになるなど、迅速な分離が可能になることが確認された。また、小規模の分離装置とすることもできることが確認された。

<実施例2>

種々の濃度の塩酸を用いて、キレート交換樹脂充填カラムへのニッケル、放射性コバルト、放射性銅の吸着及び溶出について検討した。キレート交換樹脂充填カラムは、実施例1と同じものを使用した。

【0028】

実験はニッケル、放射性コバルト、放射性銅を含む0.01 M, 0.03 M, 0.06 M, 0.1 M, 0.15 M, 0.25 Mの6種類の濃度の塩酸を調製し、それぞれに含まれる各元素について1 mLずつの溶出率(フラクションの放射エネルギー/全体の放射エネルギー $\times 100$)とカラムへの残存率を算出した。各元素毎の実験結果を表1及び表2に示す。表中の"カラム"欄の右側の数値は、元素のカラムへの残存率(%)である。

【0029】

10

20

30

40

【表 1】

溶媒量 (mL)	存在比 (%)					
	0.01M	0.03M	0.06M	0.1M	0.15M	0.25M
1	0	30.29252	38.63409	26.03	0	31.31574
2	0	57.66529	54.97233	51.91	97.99354	64.69626
3	0	3.521962	4.657754	18.91	1.831355	3.601884
4	0	2.171572	0.974879	1.51	0.175103	0.315452
5	0	1.691637	0.416129	0.889	0	0.070661
6	0	1.281045	0.14894	0.219	0	0
7	0	0.875928	0	0.007	0	0
カラム	100	2.500046	0.195878	0	0	0

10

溶媒量 (mL)	存在比 (%)					
	0.01M	0.03M	0.06M	0.1M	0.15M	0.25M
1	0.00	37.52	41.62	28.38	0.00	30.89
2	0.00	59.30	55.62	49.44	87.52	65.41
3	0.00	1.69	2.59	20.54	0.82	3.28
4	0.00	0.17	0.09	0.72	0.06	0.25
5	0.00	0.00	0.04	0.49	0.02	0.06
6	0.00	0.00	0.00	0.10	0.02	0.04
7	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01
カラム	100.00	1.32	0.04	0.00	0.02	0.05

20

溶媒量	存在比 (%)					
	0.01M	0.03M	0.06M	0.1M	0.15M	0.25M
1	0	30.29	38.63	26.03	0	31.32
2	0	57.67	54.97	51.91	97.99	64.70
3	0	3.52	4.66	18.91	1.83	3.60
4	0	2.17	0.975	1.51	0.175	0.315
5	0	1.69	0.416	0.889	0	0.071
6	0	1.28	0.149	0.219	0	0
7	0	0.886	0	0.007	0	0
カラム	100.00	2.50	0.196	0	0	0

30

溶媒量 (mL)	存在比 (%)					
	0.01M	0.03M	0.06M	0.1M	0.15M	0.25M
1	0.00	37.52	41.62	28.38	0.00	30.89
2	0.00	59.30	55.62	49.44	87.52	65.41
3	0.00	1.69	2.59	20.54	0.82	3.28
4	0.00	0.17	0.09	0.72	0.06	0.25
5	0.00	0.00	0.04	0.49	0.02	0.06
6	0.00	0.00	0.00	0.10	0.02	0.04
7	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01
カラム	100.00	1.32	0.04	0.00	0.02	0.05

40

【 0 0 3 0 】

【表 2】

⁶⁴Cu

溶媒量(mL)	存在比(%)				
	0.1M	0.15M	0.25M	0.5M	1M
1	0.00	0.00	0.00	1.70	47.55
2	0.00	0.00	0.00	20.40	49.64
3	0.00	0.00	0.00	19.30	2.33
4	0.00	0.00	5.36	11.70	0.00
5	0.00	0.00	8.12	4.40	0.00
6	0.00	0.00	9.94	2.50	0.00
7	0.00	0.00	0.50	1.50	0.00
カラム	100.00	100.00	76.08	0.60	0.00

10

⁶⁴Cu

溶媒量	存在比(%)				
	0.1M	0.15M	0.25M	0.5M	1M
1	0.00	0.00	0.00	1.70	47.55
2	0.00	0.00	0.00	20.40	49.64
3	0.00	0.00	0.00	19.30	2.33
4	0.00	0.00	5.36	11.70	0.00
5	0.00	0.00	8.12	4.40	0.00
6	0.00	0.00	9.94	2.50	0.00
7	0.00	0.00	0.50	1.50	0.00
カラム	100.00	100.00	76.08	0.60	0.00

20

【0031】

以上の結果より、ニッケルおよび放射性コバルトの大部分が溶出し、かつカラムにもほとんど残存しない塩酸の濃度範囲、すなわちニッケルおよび放射性コバルトの選択的な分離に適した塩酸の濃度範囲は、0.06 ~ 0.25 Mであることが確認された。ただ、0.25 M又はその近傍ではニッケル及び放射性コバルトとほぼ同時に放射性銅も溶出してしまい、放射性銅の分離効率が下がってしまう可能性がある。したがって、ニッケルおよび放射性コバルトを溶出するための塩酸濃度としては、0.06 ~ 0.15 Mが好適であり、最も望ましいのは0.1 Mであることが確認された。放射性銅を溶出するための塩酸濃度としては、0.5 M以上が好適であることが確認された。

30

【0032】

なお、塩酸の代わりに硝酸を用いた場合の好適な濃度条件は、上記の塩酸の濃度条件と同じである。また、硫酸を用いた場合の好適な濃度条件については、ニッケルおよび放射性コバルトを溶出するための濃度としては、0.025 ~ 0.075 Mが好適であり、最も望ましいのは0.05 Mであり、放射性銅を溶出するための濃度としては、0.25 M以上が好適である。

40

【産業上の利用可能性】

【0033】

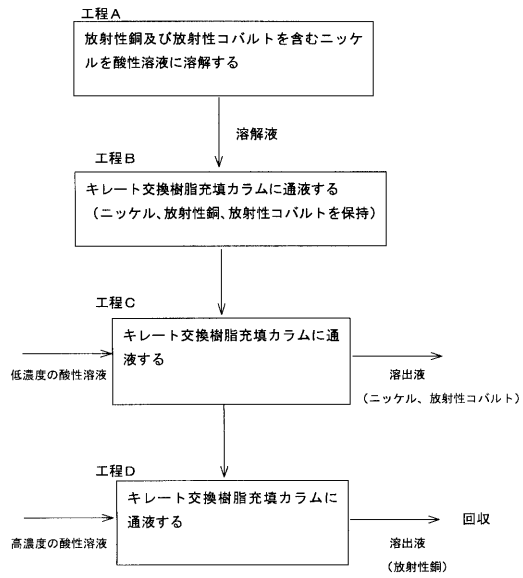
本発明によれば、高純度のCu-60、Cu-61、Cu-62、Cu-64、Cu-67等の放射性銅を2時間程度で分離できるようになるなど、迅速な分離が可能になる。また本発明を利用することによって、小規模の分離装置とすることができ、放射線を遮蔽するためのセル内への設置制限がより緩和され、放射性銅の製造作業従事者の被曝防止に有効である。

【0034】

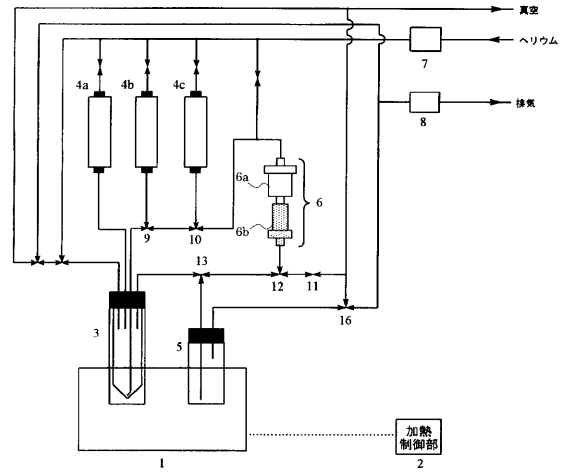
放射性銅は画像診断や治療等、医学分野において広範囲に利用される放射性同位元素であるとともに植物研究用トレーサとしても有用であることから、医療現場やRI製造施設での利用が期待される。

50

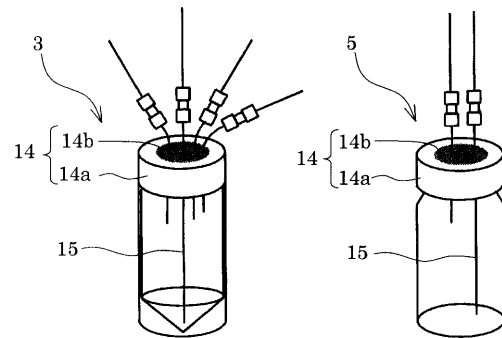
【 図 1 】



【 図 2 】



【 図 3 】



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2009/061020
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER B01J45/00(2006.01)i, B01J49/00(2006.01)i, C02F1/42(2006.01)i, C22B3/42(2006.01)i, C22B15/00(2006.01)i, C22B23/00(2006.01)i, G21G1/10(2006.01)i 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) B01J45/00, B01J49/00, C02F1/42, C22B3/42, C22B15/00, C22B23/00, G21G1/10 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2009 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2009 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2009 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) JSTPlus (JDreamII), JST7580 (JDreamII)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	Xiaolin Hou et al, "Separation of no-carrier-added ⁶⁴ Cu from a proton irradiated ⁶⁴ Ni enriched nickel target", Applied Radiation and Isotopes, 2002, vol.57, pages 773 to 777	1-3
Y	JP 61-283605 A (Hiroaki EKAWA), 13 December, 1986 (13.12.86), Page 1, right column, line 16 to page 2, upper left column, line 2; page 4, upper left column, line 6 to upper right column, line 1; page 5, lower left column, lines 2 to 13; Figs. 1, 2 (Family: none)	1-3
A	JP 60-065004 A (Hiroaki EKAWA), 13 April, 1985 (13.04.85), Full text; all drawings (Family: none)	1-3
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input 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 application or patent 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 06 July, 2009 (06.07.09)		Date of mailing of the international search report 14 July, 2009 (14.07.09)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 0 9 / 0 6 1 0 2 0									
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. B01J45/00(2006.01)i, B01J49/00(2006.01)i, C02F1/42(2006.01)i, C22B3/42(2006.01)i, C22B15/00(2006.01)i, C22B23/00(2006.01)i, G21G1/10(2006.01)i											
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. B01J45/00, B01J49/00, C02F1/42, C22B3/42, C22B15/00, C22B23/00, G21G1/10											
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2009年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2009年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2009年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2009年	日本国実用新案登録公報	1996-2009年	日本国登録実用新案公報	1994-2009年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2009年										
日本国実用新案登録公報	1996-2009年										
日本国登録実用新案公報	1994-2009年										
国際調査で使用了電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) JSTPlus(JDreamII), JST7580(JDreamII)											
C. 関連すると認められる文献											
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号									
Y	Xiaolin Hou et al, "Separation of no-carrier-added ⁶⁴ Cu from a proton irradiated ⁶⁴ Ni enriched nickel target", Applied Radiation and Isotopes, 2002, 第57巻, 第773-777頁	1-3									
Y	JP 61-283605 A (江川博明) 1986.12.13, 第1頁右欄第16行-第2頁左上欄第2行、 第4頁左上欄第6行-同頁右上欄第1行、第5頁左下欄第2-13行、 第1,2図 (ファミリーなし)	1-3									
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。											
* 引用文献のカテゴリー		の日の後に公表された文献									
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの		「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの									
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの		「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの									
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)		「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの									
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		「&」同一パテントファミリー文献									
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願											
国際調査を完了した日 06.07.2009		国際調査報告の発送日 14.07.2009									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 村川 雄一	21 3608								
		電話番号 03-3581-1101	内線 3273								

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP2009/061020
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 60-065004 A (江川博明) 1985.04.13, 全文全図 (ファミリーなし)	1-3

フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I			テーマコード(参考)
C 2 2 B 3/42 (2006.01)	C 2 2 B	3/00		M
C 2 2 B 3/04 (2006.01)	C 2 2 B	3/00		A
G 2 1 H 5/02 (2006.01)	G 2 1 H	5/02		

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(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, SE, SI, SK, 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, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

Fターム(参考) 4K001 AA09 BA23 DB02 DB03 DB04 DB05 DB36

(注) この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。