

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2013-113821

(P2013-113821A)

(43) 公開日 平成25年6月10日(2013.6.10)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>G 2 1 G</b> 4/08 (2006.01)	G 2 1 G 4/08 Z	4 K O O 1
<b>C 2 2 B</b> 15/00 (2006.01)	C 2 2 B 15/00 1 O 4	
<b>C 2 2 B</b> 23/00 (2006.01)	C 2 2 B 23/00 1 O 2	
<b>C 2 2 B</b> 3/42 (2006.01)	C 2 2 B 3/00 M	
<b>C 2 2 B</b> 7/00 (2006.01)	C 2 2 B 7/00 G	

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 13 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2011-263139 (P2011-263139)  
 (22) 出願日 平成23年11月30日 (2011.11.30)

(71) 出願人 000002107  
 住友重機械工業株式会社  
 東京都品川区大崎二丁目1番1号  
 (71) 出願人 504147243  
 国立大学法人 岡山大学  
 岡山県岡山市北区津島中一丁目1番1号  
 (74) 代理人 100088155  
 弁理士 長谷川 芳樹  
 (74) 代理人 100113435  
 弁理士 黒木 義樹  
 (72) 発明者 小田 敬  
 愛媛県新居浜市惣開町5番2号 住友重機械工業株式会社愛媛製造所内

最終頁に続く

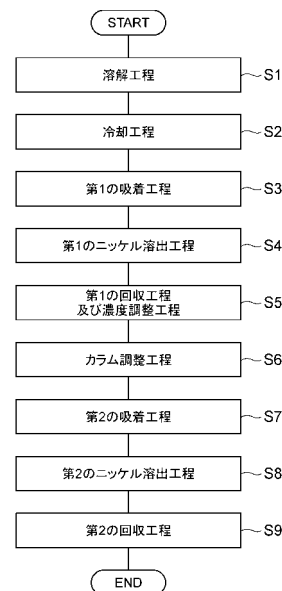
(54) 【発明の名称】 64Cuの分離精製方法及び64Cuの分離精製装置

(57) 【要約】

【課題】本発明は、高精度な<sup>64</sup>Cuの分離精製を行うことができる<sup>64</sup>Cuの分離精製方法及び<sup>64</sup>Cuの分離精製装置を提供する。

【解決手段】本発明は、混在するNi及び<sup>64</sup>Cuの中から<sup>64</sup>Cuを分離精製する<sup>64</sup>Cuの分離精製方法であって、Ni及び<sup>64</sup>Cuを溶液中で溶解する溶解工程と、溶解したNi及び<sup>64</sup>Cuを通すことで、<sup>64</sup>Cuを第1の陰イオン交換手段に吸着させる第1の吸着工程と、第1の陰イオン交換手段に吸着した<sup>64</sup>Cuを当該溶液に溶出させ、<sup>64</sup>Cuを含む溶液を回収する第1の回収工程と、<sup>64</sup>Cuを含む溶液の濃度をニッケル溶出用濃度に調整する濃度調整工程と、調整した溶液を通すことで第2の陰イオン交換手段に<sup>64</sup>Cuを吸着させる第2の吸着工程と、第2の陰イオン交換手段から<sup>64</sup>Cuを含む溶液を回収する第2の回収工程と、を有する。

【選択図】図2



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

混在する Ni 及び  $^{64}\text{Cu}$  の中から  $^{64}\text{Cu}$  を分離精製する  $^{64}\text{Cu}$  の分離精製方法であって、

混在する Ni 及び  $^{64}\text{Cu}$  を溶解する溶解工程と、

前記溶解工程で溶解した Ni 及び  $^{64}\text{Cu}$  を含む溶液を第 1 の陰イオン交換手段に通すことで、 $^{64}\text{Cu}$  を前記第 1 の陰イオン交換手段に吸着させる第 1 の吸着工程と、

前記第 1 の陰イオン交換手段にハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度が銅溶出用濃度の溶液を通すことで、前記第 1 の陰イオン交換手段に吸着した  $^{64}\text{Cu}$  を当該溶液に溶出させ、 $^{64}\text{Cu}$  を含む溶液を回収する第 1 の回収工程と、

10

前記第 1 の回収工程で回収した  $^{64}\text{Cu}$  を含む溶液におけるハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度をニッケル溶出用濃度に調整する濃度調整工程と、

前記濃度調整工程でニッケル溶出用濃度に調整した溶液を第 2 の陰イオン交換手段に通すことで前記第 2 の陰イオン交換手段に  $^{64}\text{Cu}$  を吸着させる第 2 の吸着工程と、

前記第 2 の陰イオン交換手段にハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度が銅溶出用濃度の溶液を通すことで、前記第 2 の陰イオン交換手段に吸着した  $^{64}\text{Cu}$  を当該溶液に溶出させ、 $^{64}\text{Cu}$  を含む溶液を回収する第 2 の回収工程と、

を有することを特徴とする  $^{64}\text{Cu}$  の分離精製方法。

## 【請求項 2】

前記第 1 の陰イオン交換手段は前記第 2 の陰イオン交換手段と同一である請求項 1 に記載の  $^{64}\text{Cu}$  の分離精製方法。

20

## 【請求項 3】

前記第 1 の回収工程の後、前記第 2 の吸着工程の前に、前記第 1 の陰イオン交換手段にハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度がニッケル溶出用濃度の溶液を通す陰イオン交換手段調整工程を有する請求項 2 に記載の  $^{64}\text{Cu}$  の分離精製方法。

## 【請求項 4】

混在する Ni 及び  $^{64}\text{Cu}$  の中から  $^{64}\text{Cu}$  を分離精製する  $^{64}\text{Cu}$  の分離精製装置であって、

混在する Ni 及び  $^{64}\text{Cu}$  を溶解するための溶解槽と、

前記溶解槽からの溶解した Ni 及び  $^{64}\text{Cu}$  を含む溶液を通して  $^{64}\text{Cu}$  を吸着する第 1 の陰イオン交換手段と、

30

ハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度が銅溶出用濃度の溶液を前記第 1 の陰イオン交換手段に送るための第 1 流路と、

前記第 1 流路を通じて前記第 1 の陰イオン交換手段に送られ、前記  $^{64}\text{Cu}$  が溶出した溶液を回収する第 1 の回収容器と、

前記第 1 の回収容器に回収され、かつ、ハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度がニッケル溶出用濃度に調整された溶液を通して  $^{64}\text{Cu}$  を吸着する第 2 の陰イオン交換手段と、

ハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度が銅溶出用濃度の溶液を前記第 2 の陰イオン交換手段に送るための第 2 流路と、

40

前記第 2 流路を通じて前記第 2 の陰イオン交換手段に送られ、前記  $^{64}\text{Cu}$  が溶出した溶液を回収する第 2 の回収容器と、

を備えることを特徴とする  $^{64}\text{Cu}$  の分離精製装置。

## 【請求項 5】

前記第 1 の陰イオン交換手段は前記第 2 の陰イオン交換手段と同一である請求項 4 に記載の  $^{64}\text{Cu}$  の分離精製装置。

## 【請求項 6】

ハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度がニッケル溶出用濃度の溶液を前記第 1 の陰イオン交換手段に送るための第 3 流路を更に備える請求項 4 又は請求項 5 に記載の  $^{64}\text{Cu}$  の分離精製装置。

50

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、放射線金属核種である $^{64}\text{Cu}$ の分離精製方法及び $^{64}\text{Cu}$ の分離精製装置に関する。

10

## 【背景技術】

## 【0002】

放射性金属核種である $^{64}\text{Cu}$ の製造方法として、金プレートにメッキされた金属ニッケルに陽子ビームを照射することにより $^{64}\text{Ni}(p, n)^{64}\text{Cu}$ 核反応を利用して $^{64}\text{Cu}$ を得る方法が知られている。この方法では、金属ニッケルメッキ中に極少量の $^{64}\text{Cu}$ が混在することとなり、 $^{64}\text{Cu}$ を精度良く分離精製する必要がある。

## 【0003】

$^{64}\text{Cu}$ の分離精製方法としては、 $^{64}\text{Cu}$ が混在する金属ニッケルメッキを塩酸等で溶解させた後、 $\text{Cu}$ と $\text{Ni}$ のクロロ陰イオン錯形成能の差異を利用して陰イオン交換樹脂により分離することが知られている（非特許文献1～3参照）。

20

## 【先行技術文献】

## 【非特許文献】

## 【0004】

【非特許文献1】Production of therapeutic quantities of  $^{64}\text{Ni}$  using 12MeV cyclotron Atsushi Obata, et al., Nuclear Medicine and Biology 30(2003) 535-539.

【非特許文献2】Simultaneous production of high specific activity  $^{64}\text{Cu}$  and  $^{61}\text{Co}$  with 11.4MeV protons on enriched  $^{64}\text{Ni}$  Nuclei. Miguel A. Avila-Rodriguez, et. al., Applied Radiation and Isotopes 65 (2007) 1115-1120.

【非特許文献3】Chelating ion-exchange methods for the preparation of non-carrier added  $^{64}\text{Cu}$  Shigeki Watanabe, et. al., Nuclear Medicine and Biology 36 (2009) 587-590.

30

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0005】

しかしながら、前述した従来の分離精製方法により得られた $^{64}\text{Cu}$ の溶液に対して所定量の標識原料を反応させても、所望量の標識化合物ができないということが分かった。その原因を探ったところ、 $^{64}\text{Cu}$ だけではなく、溶液に残存する $\text{Ni}$ も標識原料と反応していることが明らかとなった。

## 【0006】

そこで、本発明は、高精度な $^{64}\text{Cu}$ の分離精製を行うことができる $^{64}\text{Cu}$ の分離精製方法及び $^{64}\text{Cu}$ の分離精製装置を提供することを目的とする。

40

## 【課題を解決するための手段】

## 【0007】

本発明は、混在する $\text{Ni}$ 及び $^{64}\text{Cu}$ の中から $^{64}\text{Cu}$ を分離精製する $^{64}\text{Cu}$ の分離精製方法であって、混在する $\text{Ni}$ 及び $^{64}\text{Cu}$ を溶解する溶解工程と、溶解工程で溶解した $\text{Ni}$ 及び $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を第1の陰イオン交換手段に通すことで、 $^{64}\text{Cu}$ を第1の陰イオン交換手段に吸着させる第1の吸着工程と、第1の陰イオン交換手段にハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度が銅溶出用濃度の溶液を通すことで、第1の陰イオン交換手段に吸着した $^{64}\text{Cu}$ を当該溶液に溶出させ、 $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を回収する第1の回収工程と、第1の回収工程で回収した $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液におけるハロゲンイオン

50

濃度又は擬ハロゲンイオン濃度をニッケル溶出用濃度に調整する濃度調整工程と、濃度調整工程でニッケル溶出用濃度に調整した溶液を第2の陰イオン交換手段に通すことで第2の陰イオン交換手段に $^{64}\text{Cu}$ を吸着させる第2の吸着工程と、第2の陰イオン交換手段にハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度が銅溶出用濃度の溶液を通すことで、第2の陰イオン交換手段に吸着した $^{64}\text{Cu}$ を当該溶液に溶出させ、 $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を回収する第2の回収工程と、を有することを特徴とする。

【0008】

上記分離精製方法によれば、溶解したNi及び $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を第1の陰イオン交換手段に通すことで、 $^{64}\text{Cu}$ を第1の陰イオン交換手段に吸着させると共にNiを第1の陰イオン交換手段から排出することができる。更に、上記分離精製方法では、第1の陰イオン交換手段から $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を回収した後、 $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液におけるハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度をニッケル溶出用濃度に調整して第2の陰イオン交換手段に通す。これにより、 $^{64}\text{Cu}$ が第2の陰イオン交換手段に吸着されると共に、残存するNiが溶液に溶出されて第2の陰イオン交換手段から排出される。そして、第2の陰イオン交換手段から $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を回収することで、Ni混入量を大幅に低減した高精度な $^{64}\text{Cu}$ の分離精製を行うことができる。

10

【0009】

上記分離精製方法において、第1の陰イオン交換手段は第2の陰イオン交換手段と同一であっても良い。

この場合、一つの陰イオン交換手段で高精度な $^{64}\text{Cu}$ の分離精製をすることができるので、陰イオン交換手段を複数用いる場合と比べて、 $^{64}\text{Cu}$ の分離精製におけるコスト低減を図ることができる。

20

【0010】

上記分離精製方法において、第1の回収工程の後、第2の吸着工程の前に、第1の陰イオン交換手段にニッケル溶出用濃度の溶液を通す陰イオン交換手段調整工程を有していても良い。

この場合、第2の吸着工程において $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を第1の陰イオン交換手段に通す際に、溶液の濃度が低下して $^{64}\text{Cu}$ が溶出することを防ぐことができるので、より確実に $^{64}\text{Cu}$ を第1の陰イオン交換手段に吸着させることができる。従って、更に精度の高い $^{64}\text{Cu}$ の分離精製を行うことができる。

30

【0011】

本発明は、混在するNi及び $^{64}\text{Cu}$ の中から $^{64}\text{Cu}$ を分離精製する $^{64}\text{Cu}$ の分離精製装置であって、混在するNi及び $^{64}\text{Cu}$ を溶解するための溶解槽と、溶解槽からの溶解したNi及び $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を通して $^{64}\text{Cu}$ を吸着する第1の陰イオン交換手段と、ハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度が銅溶出用濃度の溶液を第1の陰イオン交換手段に送るための第1流路と、第1流路を通じて第1の陰イオン交換手段に送られ、 $^{64}\text{Cu}$ が溶出した溶液を回収する第1の回収容器と、第1の回収容器に回収され、かつ、ハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度がニッケル溶出用濃度に調整された溶液を通して $^{64}\text{Cu}$ を吸着する第2の陰イオン交換手段と、ハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度が銅溶出用濃度の溶液を第2の陰イオン交換手段に送るための第2流路と、第2流路を通じて第2の陰イオン交換手段に送られ、 $^{64}\text{Cu}$ が溶出した溶液を回収する第2の回収容器と、を備えることを特徴とする。

40

【0012】

上記分離精製装置によれば、溶解したNi及び $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を第1の陰イオン交換手段に通すことで、 $^{64}\text{Cu}$ を第1の陰イオン交換手段に吸着させると共にNiを第1の陰イオン交換手段から排出することができる。更に、上記分離精製装置では、第1の陰イオン交換手段から $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を回収した後、 $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液におけるハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度をニッケル溶出用濃度に調整して第2の陰イオン交換手段に通す。これにより、 $^{64}\text{Cu}$ が第2の陰イオン交換手段に吸着されると共に、残存するNiが溶液に溶出されて第2の陰イオン交換手段から排出される。そして、第

50

2の陰イオン交換手段から $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を回収することで、 $\text{Ni}$ 混入量を大幅に低減した高精度な $^{64}\text{Cu}$ の分離精製を行うことができる。

【0013】

上記分離精製装置において、第1の陰イオン交換手段は第2の陰イオン交換手段と同一であっても良い。

この場合、一つの陰イオン交換手段で高精度な $^{64}\text{Cu}$ の分離精製をすることができるので、陰イオン交換手段を複数用いる場合と比べて、 $^{64}\text{Cu}$ の分離精製におけるコスト低減を図ることができる。

【0014】

上記分離精製装置において、ハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度がニッケル溶出用濃度の溶液を第1の陰イオン交換手段に送るための第3流路を更に備えても良い。

この場合、 $^{64}\text{Cu}$ が吸着された状態の第1の陰イオン交換手段に対してハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度がニッケル溶出用濃度の溶液を送ることで、第1の陰イオン交換手段に残留する $\text{Ni}$ を溶出して排出させることができる。また、 $^{64}\text{Cu}$ を含む溶液を第1の回収容器内に回収した後、第1の回収容器内の溶液を第2の陰イオン交換手段に通す前に、ハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度がニッケル溶出用濃度の溶液を第1の陰イオン交換手段に送ることで、第1の回収容器に回収された溶液を第1の陰イオン交換手段に通す際に、溶液の濃度が低下して $^{64}\text{Cu}$ が溶出することを防ぐことができるので、より確実に $^{64}\text{Cu}$ を第1の陰イオン交換手段に吸着させることができる。従って、この分離精製装置によれば、更に精度の高い $^{64}\text{Cu}$ の分離精製を行うことができる。

【発明の効果】

【0015】

本発明によれば、高精度な $^{64}\text{Cu}$ の分離精製を行うことができる。

【図面の簡単な説明】

【0016】

【図1】本発明に係る $^{64}\text{Cu}$ の分離精製装置の一実施形態を示す図である。

【図2】本発明に係る $^{64}\text{Cu}$ の分離精製方法を示すフローチャートである。

【発明を実施するための形態】

【0017】

以下、本発明に係る $^{64}\text{Cu}$ の分離精製装置及び $^{64}\text{Cu}$ の分離精製方法の好適な実施形態について、図面を参照して詳細に説明する。

【0018】

図1に示されるように、本実施形態に係る $^{64}\text{Cu}$ の分離精製装置1は、金プレートにメッキされた $\text{Ni}$ に陽子ビームを照射することにより微量の $^{64}\text{Cu}$ を得た後に、混在する $\text{Ni}$ 及び $^{64}\text{Cu}$ の中から $^{64}\text{Cu}$ を分離精製するものである。

【0019】

分離精製装置1は、溶解槽2、中間バッファタンク3、陰イオン交換樹脂カラム4、第1の溶液リザーバタンク群5、第2の溶液リザーバタンク群6、 $\text{Ni}$ 回収バイアル7、廃液バイアル8、粗 $\text{Cu}$ 回収バイアル9、及び $\text{Cu}$ 回収バイアル10を備えている。

【0020】

溶解槽2は、陽子ビームの照射により微量の $^{64}\text{Cu}$ が生成されたニッケルメッキ(ターゲットプレート)を溶解させるための槽である。ニッケルメッキ中には、微量の $^{64}\text{Cu}$ に対して例えば数十万倍以上の $\text{Ni}$ が存在している。溶解槽2では、塩酸溶液を加えることで、混在する $\text{Ni}$ 及び $^{64}\text{Cu}$ の溶解が行われる。なお、溶解に用いる溶液は塩酸溶液に限られず、 $\text{Ni}$ 及び $^{64}\text{Cu}$ を溶解可能なものであれば良い。

【0021】

中間バッファタンク3は、溶解槽2で溶解された $\text{Ni}$ 及び $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液の濃度調整及び冷却を行うためのタンクである。中間バッファタンク3では、 $^{64}\text{Cu}$ が溶出しない濃度となるように塩酸溶液の濃度調整が行われる。塩酸溶液の濃度調整は、 $\text{Cl}^-$

10

20

30

40

50

イオンの濃度調節に等しい。また、溶解時の反応によりNi及び $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液は高温状態にあるため、常温近くまで冷却される。

【0022】

陰イオン交換樹脂カラム4は、Niと $^{64}\text{Cu}$ とのクロロ陰イオン錯形成能の差異を利用してNiと $^{64}\text{Cu}$ とを分離させるためのものである。陰イオン交換樹脂カラム4は、内部に充填された多数の陰イオン交換樹脂を有している。陰イオン交換樹脂カラム4では、上方の入口部4aから入り込んだ塩酸溶液が充填された陰イオン交換樹脂の間を進み、下方の出口部4bから排出される。なお、陰イオン交換樹脂カラム4は、塩酸溶液の流入に伴って内部から気体を排出するための排気用管及びフィルタF1を有している。

【0023】

ここで、塩酸溶液中においては、 $^{64}\text{Cu}$ は陰イオンであるテトラクロロ銅イオン( $[\text{CuCl}_4]^{2-}$ )、Niは陽イオンであるニッケルイオン $[\text{Ni}^{2+}]$ として存在する。このため、溶解したNi及び $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液が陰イオン交換樹脂カラム4を通ると、陰イオンとして存在する $^{64}\text{Cu}$ は陰イオン交換樹脂に吸着され、陽イオンとして存在するNiは樹脂に吸着することなく、塩酸溶液と共に排出される。但し、一部のNiは各種の相互作用の影響で陰イオン交換樹脂カラム4内に残留する。陰イオン交換樹脂カラム4は、特許請求の範囲に記載の第1の陰イオン交換手段及び第2の陰イオン交換手段に相当する。

【0024】

第1の溶液リザーバタンク群5は、ニッケル溶出用濃度の塩酸溶液が貯留されたタンク群である。ニッケル溶出用濃度とは、Niが塩酸溶液中に溶出する $\text{Cl}^-$ イオンの濃度であり、例えば5~8 mol/Lの塩酸濃度を意味する。塩酸以外の溶液を利用する場合ニッケル溶出用濃度の範囲も変化する。第1の溶液リザーバタンク群5は、四本の溶液リザーバタンク5A~5Dを備えている。

【0025】

第2の溶液リザーバタンク群6は、銅溶出用濃度の塩酸溶液が貯留されたタンク群である。銅溶出用濃度とは、 $^{64}\text{Cu}$ が塩酸溶液中に溶出する $\text{Cl}^-$ イオンの濃度であり、例えば3 mol/L以下の塩酸濃度を意味する。塩酸以外の溶液を利用する場合ニッケル溶出用濃度の範囲も変化する。第2の溶液リザーバタンク群6は、二本の溶液リザーバタンク6A、6Bを備えている。

【0026】

Ni回収バイアル7、廃液バイアル8、粗Cu回収バイアル9、及びCu回収バイアル10は、塩酸溶液を回収するための容器である。各バイアル7~10が回収する塩酸溶液の違いについては後述する。バイアル7~9には内部の空気を排出するための排気用管を有しており、各排気用管にはフィルタF2~F4が取り付けられている。また、最終的に $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液を貯留するCu回収バイアル10では、内部の気体も放射線の影響下にある可能性が高いため、専用の気体用流路Gが設けられている。粗Cu回収バイアル9が特許請求の範囲に記載の第1の回収容器、Cu回収バイアル10が特許請求の範囲に記載の第2の回収容器に相当する。

【0027】

分離精製装置1は、塩酸溶液等が流れる流路R1~R8を有している。流路R1~R8は、複数の配管を連結して形成されており、配管の途中に配置されたバルブV1~V13の開閉操作によって流れが切り換えられる。

【0028】

具体的には、流路R1は溶解槽2と三方弁V1とを接続する流路であり、三方弁V1を介して流路R2に繋がっている。流路R2は、第1の溶液リザーバタンク群5の溶液リザーバタンク5Aと中間バッファタンク3とを接続する流路である。流路R2は、中間バッファタンク3の手前に配置された三方弁V2を介して流路R3に繋がっている。

【0029】

流路R3は、流路R2の三方弁V2と陰イオン交換樹脂カラム4の入口部4aとを接続

10

20

30

40

50

する流路である。これらの流路 R 1 ~ R 3 は、溶解槽 2 から陰イオン交換樹脂カラム 4 の入口部 4 a に至る流路を形成している。

【 0 0 3 0 】

流路 R 4 は、陰イオン交換樹脂カラム 4 の出口部 4 b と N i 回収バイアル 7 及び廃液バイアル 8 とを接続する流路である。N i 回収バイアル 7 と廃液バイアル 8 との切り換えは、三方弁 V 8 によって行われる。流路 R 4 は、三方弁 V 7 を介して流路 R 5 と繋がっている。流路 R 5 は、三方弁 V 7 と粗 C u 回収バイアル 9 とを接続する流路である。流路 R 4 及び流路 R 5 は、陰イオン交換樹脂カラム 4 の出口部 4 b から粗 C u 回収バイアル 9 に至る流路を形成している。

【 0 0 3 1 】

また、流路 R 3 は、途中の三方弁 V 4 を介して流路 R 6 と繋がっている。流路 R 6 は、三方弁 V 4 と粗 C u 回収バイアル 9 とを接続する流路である。流路 R 3 及び流路 R 6 は、粗 C u 回収バイアル 9 から陰イオン交換樹脂カラム 4 の入口部 4 a に至る流路を形成している。

【 0 0 3 2 】

流路 R 6 は、途中の三方弁 V 5 を介して流路 R 7 と繋がっている。流路 R 7 は、溶液リザーバタンク 5 A を除いた第 1 の溶液リザーバタンク群 5 及び第 2 の溶液リザーバタンク群 6 と三方弁 V 5 とを接続する流路である。この流路 7 を通じて、銅溶出用濃度の塩酸溶液やニッケル溶出用濃度の塩酸溶液が陰イオン交換樹脂カラム 4 の出口部 4 b に送られる。流路 R 7 は、特許請求の範囲に記載の第 1 流路、第 2 流路、第 3 流路として機能する。

【 0 0 3 3 】

また、流路 R 4 は、三方弁 V 6 を介して流路 R 8 と繋がっている。流路 R 8 は、三方弁 V 6 と C u 回収バイアル 1 0 とを接続する流路である。流路 R 4 及び流路 R 8 は、陰イオン交換樹脂カラム 4 の出口部 4 b から C u 回収バイアル 1 0 に至る流路を形成している。

【 0 0 3 4 】

また、分離精製装置 1 は、窒素供給源 2 0、供給量制御部 2 1、及び気体用流路 H を備えている。窒素供給源 2 0、供給量制御部 2 1、及び気体用流路 H は、不活性ガスである窒素ガスの供給により、その圧力で塩酸溶液等を移動させるための構成である。なお、塩酸溶液等の移動に用いられる気体は窒素に限られない。

【 0 0 3 5 】

窒素供給源 2 0 から供給された窒素ガスは、供給量制御部 2 1 によって供給量が制御され、気体用流路 H を通って溶解槽 2 等の各設備に送られる。窒素ガスの供給先は、気体用流路 H を形成する配管上に設けられたバルブ V 1 4 ~ V 2 2 の開閉操作によって切り換えられる。

【 0 0 3 6 】

次に、本実施形態に係る分離精製装置 1 を用いた  $^{64}\text{Cu}$  の分離精製方法について図 2 を参照して説明する。

【 0 0 3 7 】

図 2 に示されるように、本実施形態に係る  $^{64}\text{Cu}$  の分離精製方法では、ステップ S 1 として溶解工程が行われる。溶解工程では、陽子ビームの照射により微量の  $^{64}\text{Cu}$  が生成されたニッケルメッキを溶解する。溶液リザーバタンク 5 A から塩酸溶液を溶解槽 2 に供給することにより、混在する N i 及び  $^{64}\text{Cu}$  の溶解が行われる。溶解された N i 及び  $^{64}\text{Cu}$  を含む塩酸溶液は、流路 R 1 , R 2 を通じて中間バッファタンク 3 へと送られる。

【 0 0 3 8 】

ステップ S 2 では、溶解された N i 及び  $^{64}\text{Cu}$  を含む塩酸溶液の濃度調整及び冷却を行う冷却工程が行われる。冷却工程では、中間バッファタンク 3 内に一時貯留された状態で塩酸溶液の濃度調整及び冷却が行われる。

【 0 0 3 9 】

中間バッファタンク 3 内で、塩酸溶液は  $^{64}\text{Cu}$  が溶出しない濃度となるように調整さ

10

20

30

40

50

れる。塩酸溶液は $^{64}\text{Cu}$ が溶出せず、 $\text{Ni}$ のみが溶出するニッケル溶出用濃度になるように調整されても良い。

【0040】

濃度調整は、中間バッファタンク3内に予め所定濃度の塩酸溶液を入れておくことにより行うことができる。また、外部から所定濃度の塩酸溶液を追加する方法であっても良い。冷却工程における濃度調整及び冷却が終了すると、中間バッファタンク3内の塩酸溶液は、流路R2, R3を通じて陰イオン交換樹脂カラム4の入口部4aへと送られる。

【0041】

ステップS3では、 $^{64}\text{Cu}$ を陰イオン交換樹脂カラム4の陰イオン交換樹脂に吸着させる第1の吸着工程が行われる。第1の吸着工程では、溶解された $\text{Ni}$ 及び $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液を陰イオン交換樹脂カラム4に通すことで、塩酸溶液中に陰イオンとして存在する $^{64}\text{Cu}$ が陰イオン交換樹脂に吸着する。一方、陽イオンとして存在する $\text{Ni}$ は陰イオン交換樹脂に吸着することなく、塩酸溶液と共に大部分が排出される。排出された塩酸溶液をメッキ通過液とする。メッキ通過液は、流路R4を通じて $\text{Ni}$ 回収バイアル7に回収される。

10

【0042】

ステップS4では、陰イオン交換樹脂カラム4にニッケル溶出用濃度の塩酸溶液を通すことで、陰イオン交換樹脂カラム4内に残存する $\text{Ni}$ を塩酸溶液に溶出させる第1のニッケル溶出工程が行われる。第1のニッケル溶出工程では、複数回に分けてニッケル溶出用濃度の塩酸溶液を通過させることができる。

20

【0043】

具体的には、塩酸溶液を貯留する溶液リザーバタンク5Bからニッケル溶出用濃度の塩酸溶液を所定量(例えば8mL)供給して陰イオン交換樹脂カラム4に通す。これにより、陰イオン交換樹脂カラム4内に残存する $\text{Ni}$ の一部は塩酸溶液に溶出して陰イオン交換樹脂カラム4から排出される。陰イオン交換樹脂カラム4から排出された塩酸溶液を洗浄液Aとする。洗浄液Aは、流路R4を通じて $\text{Ni}$ 回収バイアル7に回収される。

【0044】

次に、溶液リザーバタンク5Cからニッケル溶出用濃度の塩酸溶液を所定量(例えば5mL)供給して陰イオン交換樹脂カラム4に通す。陰イオン交換樹脂カラム4から排出された塩酸溶液を洗浄液Bとする。洗浄液Bは、流路R4を通じて $\text{Ni}$ 回収バイアル7に回収される。

30

【0045】

ステップS5では、 $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液を回収する第1の回収工程、及び回収した塩酸溶液の濃度を調整する濃度調整工程が行われる。第1の回収工程では、銅溶出用濃度の塩酸溶液を貯留する溶液リザーバタンク6Aから塩酸溶液を所定量(例えば5mL)供給して陰イオン交換樹脂カラム4に通す。これにより、陰イオン交換樹脂に吸着していた $^{64}\text{Cu}$ が銅溶出用濃度の塩酸溶液に溶出して、 $^{64}\text{Cu}$ を多く含む塩酸溶液が得られる。但し、この塩酸溶液には、陰イオン交換樹脂カラム4内に残存していた $\text{Ni}$ の一部も溶出している。 $^{64}\text{Cu}$ を多く含む塩酸溶液は、流路R4及び流路R5を通じて粗 $\text{Cu}$ 回収バイアル9に回収される。回収した塩酸溶液を粗 $\text{Cu}$ 回収液とする。

40

【0046】

濃度調整工程では、第1の回収工程で回収された粗 $\text{Cu}$ 回収液の濃度調整が行われる。本実施形態に係る分離精製方法においては、予め粗 $\text{Cu}$ 回収バイアル9に所定濃度の塩酸溶液を入れておくことにより濃度調整が行われる。このため、本実施形態に係る分離精製方法では、第1の回収工程及び濃度調整工程がほぼ同時に行われる。なお、外部から所定濃度の塩酸溶液を追加する方法で濃度調整を行っても良い。

【0047】

ステップS6では、陰イオン交換樹脂カラム4にニッケル溶出用濃度の塩酸溶液を通すことで、陰イオン交換樹脂カラム4の塩酸雰囲気調整するカラム調整工程(陰イオン交換手段調整工程)が行われる。カラム調整工程では、溶液リザーバタンク5Dから供給さ

50



れたニッケル溶出用濃度の塩酸溶液が用いられる。陰イオン交換樹脂カラム4を通過した塩酸溶液をカラム再調整液とする。カラム再調整液は、流路R4を通じて廃液バイアル8に回収される。カラム調整工程は、濃度調整工程でニッケル溶出用濃度に調整した塩酸溶液の濃度がカラム4内で減少して、 $^{64}\text{Cu}$ が塩酸溶液に溶出することを防ぐために行われる。

【0048】

ステップS7では、ニッケル溶出用濃度に調整した塩酸溶液を陰イオン交換樹脂カラム4に通すことで、再び $^{64}\text{Cu}$ を陰イオン交換樹脂カラム4の陰イオン交換樹脂に吸着させる第2の吸着工程が行われる。第2の吸着工程においても、塩酸溶液中に陰イオンとして存在する $^{64}\text{Cu}$ が陰イオン交換樹脂に吸着され、陽イオンとして存在するNiは陰イオン交換樹脂に吸着することなく、塩酸溶液と共に大部分が排出される。排出された塩酸溶液を再通過液とする。再通過液は、流路R4を通じて廃液バイアル8に回収される。

10

【0049】

ステップS8では、陰イオン交換樹脂カラム4にニッケル溶出用濃度の塩酸溶液を通すことで、陰イオン交換樹脂カラム4内に残存するNiを塩酸溶液に溶出させる第2のニッケル溶出工程が行われる。具体的には、再び溶液リザーバタンク5Cからニッケル溶出用濃度の塩酸溶液を所定量（例えば5mL）供給して陰イオン交換樹脂カラム4に通す。これにより、陰イオン交換樹脂カラム4内に残存するNiの一部は塩酸溶液に溶出して陰イオン交換樹脂カラム4から排出される。なお、第2のニッケル溶出工程も、複数回に分けてニッケル溶出用濃度の塩酸溶液を通過させても良い。

20

【0050】

ステップS9では、 $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液を回収する第2の回収工程が行われる。第2の回収工程では、銅溶出用濃度の塩酸溶液を貯留する溶液リザーバタンク6Bから塩酸溶液を所定量（例えば5mL）供給して陰イオン交換樹脂カラム4に通す。これにより、陰イオン交換樹脂に吸着していた $^{64}\text{Cu}$ が銅溶出用濃度の塩酸溶液に溶出して、Niの混入量が少なく $^{64}\text{Cu}$ を多く含む塩酸溶液が得られる。この塩酸溶液は、流路R8を通じてCu回収バイアル10に回収される。Cu回収バイアル10に回収した塩酸溶液を最終Cu回収液とする。

【0051】

以上説明した本実施形態に係る $^{64}\text{Cu}$ の分離精製装置及び $^{64}\text{Cu}$ の分離精製方法によれば、溶解したNi及び $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液を陰イオン交換樹脂カラム4に通すことで、 $^{64}\text{Cu}$ を陰イオン交換樹脂カラム4に吸着させると共にNiを陰イオン交換樹脂カラム4から排出することができる。更に、この分離精製装置1及び分離精製方法では、陰イオン交換樹脂カラム4から $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液を回収した後、 $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液の濃度をニッケル溶出用濃度に調整して陰イオン交換樹脂カラム4に通している。これにより、 $^{64}\text{Cu}$ が陰イオン交換樹脂カラム4に吸着されると共に、残存するNiが塩酸溶液に溶出されて陰イオン交換樹脂カラム4から排出される。そして、陰イオン交換樹脂カラム4から $^{64}\text{Cu}$ を含む塩酸溶液を回収することで、Ni混入量を大幅に低減した高精度な $^{64}\text{Cu}$ の分離精製を行うことができる。

30

【0052】

また、本実施形態に係る分離精製装置1及び分離精製方法によれば、陰イオン交換樹脂カラム4に一度通した後、塩酸溶液を大量に使用して $^{64}\text{Cu}$ の分離精製を行う方法と比べて塩酸溶液の使用量を大幅に低減することができる。また、 $^{64}\text{Cu}$ を利用してPET用の標識化合物を生成する際に、Niにより標識反応が阻害されなくなる。このため、高価な標識原料の損失を減らすことができる。

40

【0053】

また、本実施形態に係る分離精製装置1及び分離精製方法によれば、流路7を通じて陰イオン交換樹脂カラム4にニッケル溶出用濃度の塩酸溶液を送ることができるので、 $^{64}\text{Cu}$ が吸着された状態の陰イオン交換樹脂カラム4にニッケル溶出用濃度の塩酸溶液を送ることで、陰イオン交換樹脂カラム4に残留するNiを溶出して排出させることができる

50

## 【0054】

なお、本実施形態に係る分離精製装置1及び分離精製方法では、一本の陰イオン交換樹脂カラム4に粗Cu回収液を再び通している。これは、特許請求の範囲に記載する第1の陰イオン交換手段が第2の陰イオン交換手段と同一である場合に相当する。この場合、陰イオン交換樹脂カラムを複数用いる場合と比べて、 $^{64}\text{Cu}$ の分離精製におけるコスト低減を図ることができる。但し、このことは本発明において陰イオン交換樹脂カラムを複数用いることを妨げるものではなく、陰イオン交換樹脂カラムを複数用いる場合であっても本発明を有効に適用することができる。

## 【0055】

本発明は、上述した実施形態に限定されるものではない。例えば、Ni及び $^{64}\text{Cu}$ の溶解等に用いる溶液は塩酸溶液に限られない。ハロゲンイオンを含む溶液や擬ハロゲンイオンを含む溶液であれば代用することができる。この場合、ニッケル溶出用濃度は、Niが溶出するハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度を意味する。また、銅溶出用濃度は、 $^{64}\text{Cu}$ が溶出するハロゲンイオン濃度又は擬ハロゲンイオン濃度を意味する。また、図1に示す分離精製装置1の配置や構成は一例であり、これに限定されるものではない。

## 【実施例】

## 【0056】

以下、上述した $^{64}\text{Cu}$ の分離精製装置及び $^{64}\text{Cu}$ の分離精製方法の実施例について説明する。ここでは、放射性核種を生成する試験であるホットテストと、放射性核種を生成せずにホットテストと同条件を想定する物質質量を用いた安定同位体による試験であるコールドテストを行った。

## 【0057】

まずコールドテストについて説明する。擬似的なメッキ溶液として、127ngの銅(金属銅として)と25mgのニッケル(金属ニッケルとして)を含む6mol/Lの塩酸溶液を10mL用いた。陰イオン交換樹脂カラム4としてBio-Lad社製のポリプレップAG1-X8カラム(メッシュ100-200の樹脂を2mL充填済み)を使用した。予め20mLの水で陰イオン交換樹脂を洗浄した後、6mol/Lの塩酸溶液20mLで洗浄すると同時に陰イオン交換樹脂を6mol/Lの塩酸雰囲気下においた。カラム4への各溶液の移送は窒素ガスによる圧送で行ったが、精製時の塩酸溶液の樹脂通過は大気圧による自然落下で行った。金属イオンの濃度測定には、原子吸光法を用いた。

## 【0058】

溶解槽2において、10mLの擬似メッキ溶液を、ホットテストと同条件で加熱し(メッキ溶解工程として実施)、3mLの12M塩酸を加えて塩酸濃度を調整して、室温付近まで冷却した後、陰イオン交換樹脂を通過させた。この時、6mol/Lの塩酸溶液である擬似メッキ液中では、銅はテトラクロロ銅イオン( $[\text{CuCl}_4]^{2-}$ )、ニッケルはニッケルイオン $[\text{Ni}^{2+}]$ の化学系で存在することとなる。この溶液を6mol/Lの塩酸溶液で調整済みの陰イオン交換樹脂カラム4に通過させ、銅を陰イオンとして陰イオン交換樹脂に保持させた。この時に通過した容液はメッキ通過液となる。

## 【0059】

このカラム4に対し、6mol/Lの塩酸溶液8mL、6mol/Lの塩酸溶液5mLを順次通過させ、樹脂の洗浄(ニッケルの溶出)を行った。この時に通過した容液がそれぞれ洗浄液A、洗浄液Bとなる。次に、カラム4に1mol/L塩酸溶液を5mL通過させ、銅の溶出を行った。この時に通過した容液は粗Cu回収液となる。なお、この時、塩酸濃度の低下により銅は $\text{Cu}^{2+}$ の陽イオンになるため、樹脂に保持されなくなる。また、樹脂に残留していたニッケルが同時に溶出する。

## 【0060】

このようにして得られた粗Cu回収液に12mol/Lの塩酸溶液を4.5mL加えて再度約6mol/Lの塩酸溶液となるように調整した。カラム4に6mol/Lの塩酸を

10

20

30

40

50

10 mL 通過させ、再度 6 mol/L の塩酸雰囲気になるように樹脂を再調製した。この時に通過した容液はカラム再調整液となる。

【0061】

再調整後のカラム 4 に塩酸濃度調整済みの粗 Cu 回収液を通過させた。この時再度銅は陰イオンとして樹脂に保持され、ニッケルイオンの大部分は樹脂に保持されずに通過する。この時に通過した容液は再通過液となる。

【0062】

このカラム 4 に対し、5 mL の 6 M 塩酸を通過させ樹脂に残留するニッケルを洗い流した。この時に通過した容液は洗浄液 C となる。その後、5 mL の 1 M 塩酸を樹脂に通過させて銅の溶出を行い、最終 Cu 回収液を得た。

【0063】

ここで、最終 Cu 回収液の最初の 1 mL フラクションにおいては銅がまだほとんど溶出してないのに対し、ニッケルの溶出量が非常に大きいため、銅抽出液として回収せずに、廃棄した。また、5 mL 目のフラクションも殆ど銅が溶出していないため、最終的には 2 mL ~ 4 mL 目のフラクションのみを集めた。表 1 に濃度変化の結果を示す。なお、表 1 において、洗浄液 B - 1、洗浄液 B - 2 とはそれぞれ 1 mL 目の洗浄液 B、次の 2 mL 目の洗浄液 B (1 mL 目を除く) を意味している。なお、表 1 に示すライン洗浄液は、最終 Cu 回収液を得た後に分離精製装置 1 内を洗浄して回収した溶液である。ライン洗浄液には、分離精製装置 1 内に残った Ni や  $^{64}\text{Cu}$  が含まれている。

【表 1】

	コールドテスト					ホットテスト
	濃度 (ng/ml)		容量 (ml)	物質質量 (ng)		線量分布 (MBq)
	Ni	Cu		Ni	Cu	
メッキ通過液	1,807,200	2.2	12.5	22,590,000	27.5	1.7
洗浄液1	469,800	1.7	8.0	3,758,400	13.6	58.0
洗浄液2-1	34,680	0.6	1.0	34,680	0.6	108.8
洗浄液2-2	20,250	2.9	1.0	20,250	2.9	
洗浄液2-3	3,082	3.3	1.0	3,082	3.3	
洗浄液2-4	1,793	4.4	1.0	1,793	4.4	
洗浄液2-5	1,734	4.6	0.2	347	0.9	
粗Cu回収液	177	15.7	9.0	1,591	141.3	437.0
カラム再調整液	620	3.0	9.7	6,016	28.6	5.6
再通過液	229	2.1	8.8	2,011	18.5	0.0
洗浄液3-1	425	1.6	1.0	425	1.6	5.3
洗浄液3-2	182	5.0	1.0	182	5.0	
洗浄液3-3	78	2.5	1.0	78	2.5	
洗浄液3-4	77	2.8	1.0	76	2.8	
洗浄液3-5	97	3.1	1.0	97	3.1	
最終Cu回収液1	101	3.2	1.0	101	3.2	3.3
最終Cu回収液2	24	150.9	1.0	24	150.9	417.6
最終Cu回収液3	13	63.5	1.0	13	63.5	
最終Cu回収液4	6	13.6	1.0	6	13.6	
最終Cu回収液5	9	6.3	0.5	5	3.1	-
ライン洗浄液	317,480	5.4	4.5	1,428,660	24.3	64.4
疑似メッキ原液	273,340	13.9	10.0	27,334,000	139	670.6

【0064】

表 1 に示されるように、当初の疑似メッキ原液と比べて、ニッケルの混入量が十分に低く銅の回収量が十分な結果を得ることができた。

【0065】

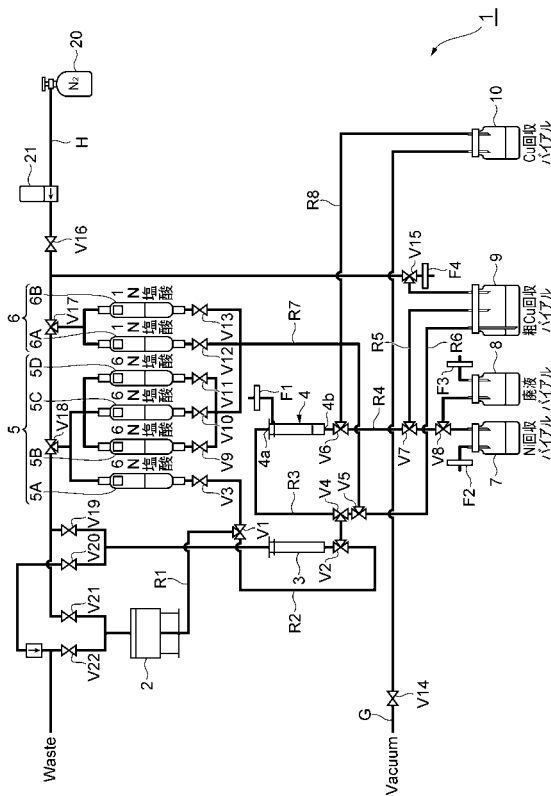
また、表 1 にホットテスト時の結果も示す。ホットテストでは、上述したコールドテストに沿って放射線核種である  $^{64}\text{Cu}$  を実際に生成して測定した。各溶液における  $^{64}\text{Cu}$  の線量分布を示す。ホットテストにおいても、ニッケルの混入量が十分に低く  $^{64}\text{Cu}$  の回収量も十分な溶液を得ることができた。

【符号の説明】

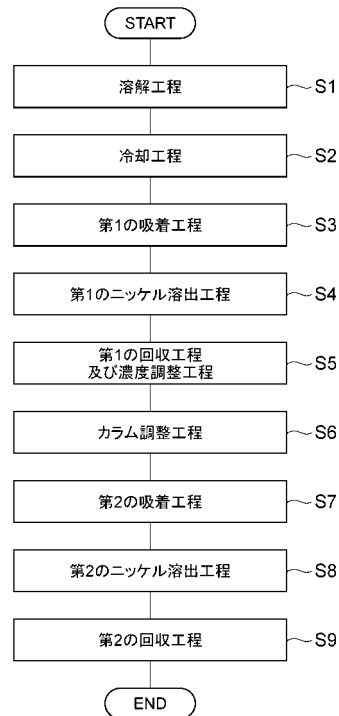
【0066】

1 ... 分離精製装置 2 ... 溶解槽 3 ... 中間バッファタンク 4 ... 陰イオン交換樹脂カラム  
 ム 4 a ... 入口部 4 b ... 出口部 5 ... 第1の溶液リザーバタンク群 6 ... 第2の溶液リ  
 ザーバタンク群 7 ... 回収バイアル 8 ... 廃液バイアル 9 ... 粗Cu回収バイアル 10  
 ... Cu回収バイアル 11 ... 移動機構 20 ... 窒素供給源 21 ... 供給量制御部 F1 -  
 F4 ... フィルタ H ... 気体用流路 R1 - R8 ... 流路 V1 - V22 ... バルブ

【図1】



【図2】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I			テーマコード(参考)	
<b>C 2 2 B 3/04 (2006.01)</b>	C 2 2 B	3/00		A	
<b>B 0 1 J 41/04 (2006.01)</b>	B 0 1 J	41/04		H	

(72)発明者 甲村 巖根

愛媛県新居浜市惣開町5番2号 住友重機械工業株式会社愛媛製造所内

(72)発明者 公文 裕巳

岡山県岡山市北区鹿田町二丁目5番1号 国立大学法人岡山大学大学院医歯薬学総合研究科内

(72)発明者 小野 俊朗

岡山県岡山市北区鹿田町二丁目5番1号 国立大学法人岡山大学自然生命科学研究支援センター内

Fターム(参考) 4K001 AA09 AA19 BA22 DB02 DB04 DB36 DB37