



## JRR-3 を用いた $^{99}\text{Mo}$ 製造に関する概念検討

Conceptual Study of  $^{99}\text{Mo}$  Production in JRR-3

広瀬 彰 米田 政夫 木名瀬 政美 反田 孝美 和田 茂

Akira HIROSE, Masao KOMEDA, Masami KINASE, Takami SORITA  
and Shigeru WADA

東海研究開発センター  
原子力科学研究所  
研究炉加速器管理部

Department of Research Reactor and Tandem Accelerator  
Nuclear Science Research Institute  
Tokai Research and Development Center

June 2010

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,  
Japan Atomic Energy Agency  
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2010

## JRR-3 を用いた $^{99}\text{Mo}$ 製造に関する概念検討

日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 原子力科学研究所  
研究炉加速器管理部  
広瀬 彰、米田 政夫、木名瀬 政美、反田 孝美、和田 茂

(2010年2月25日受理)

放射性医薬品として核医学の分野で最も多く用いられているテクネチウム-99m ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ) の親核種であるモリブデン-99 ( $^{99}\text{Mo}$ ) について、JRR-3 を用いた製造を検討する。

$^{99}\text{Mo}$  は、その供給をすべて輸入に依存している状況にあることから、産業界と共同で  $^{99}\text{Mo}$  の一部国産化を目指すものである。

本報告書では、JRR-3 研究用原子炉を用いた  $(n, \gamma)$  反応を利用し  $^{99}\text{Mo}$  を得る「中性子放射化法」による  $^{99}\text{Mo}$  の製造プロセスの技術的な検討について述べる。

## Conceptual Study of $^{99}\text{Mo}$ Production in JRR-3

Akira HIROSE, Masao KOMEDA, Masami KINASE, Takami SORITA and Shigeru WADA

Department of Research Reactor and Tandem Accelerator  
Nuclear Science Research Institute  
Tokai Research and Development Center  
Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 25,2010)

We investigated the production process of  $^{99}\text{Mo}$ , which is parent nuclide of  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , in JRR-3.  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  is most commonly used as a radiopharmaceutical in the field of nuclear medicine.

Currently the supplying of  $^{99}\text{Mo}$  is only dependent on imports from foreign countries, so JAEA is aiming at domestic production of a part of  $^{99}\text{Mo}$  in cooperation with the industrial arena.

This report presents the technical study for the production process of  $^{99}\text{Mo}$  by using the neutron radiation method of  $(n, \gamma)$  reaction in JRR-3.

Keywords: Mo-99, Tc-99m, JRR-3,  $(n, \gamma)$ , Nuclear Medicine, Radiopharmaceutical

目 次

1	はじめに	1
2	$^{99}\text{Mo}$ 利用の現状と $^{99}\text{Mo}$ 製造検討の背景	2
3	JRR-2, JRR-3 による $^{99}\text{Mo}$ 製造の実績	3
3.1	JRR-2, JRR-3 による核分裂法による $^{99}\text{Mo}$ の製造	3
3.2	JRR-2 による中性子放射化法による $^{99}\text{Mo}$ の製造	4
4	JRR-3 の概要	5
4.1	$^{99}\text{Mo}$ 製造炉の選択	5
4.2	JRR-3 による $^{99}\text{Mo}$ 製造用照射設備の選択	6
5	JRR-3 照射による $^{99}\text{Mo}$ 製造プロセスの検討	6
5.1	$^{99}\text{Mo}$ 製造全体プロセスの検討	6
5.1.1	照射前工程	7
5.1.2	照射中工程	8
5.1.3	照射後工程	9
5.2	製造量に関する検討	9
5.3	計算手法及び計算モデル	10
5.3.1	計算手法	10
5.3.2	計算モデル	11
5.4	オンパワー方式による $^{99}\text{Mo}$ 製造の検討	11
5.4.1	水力照射設備による照射・製造の検討	12
5.4.2	$^{99}\text{Mo}$ 照射用取扱装置による照射・製造の検討	12
5.4.3	配管内移送装置照射による製造の検討	13
5.5	JRR-3 運転計画変更方式による $^{99}\text{Mo}$ 製造の検討	14
5.5.1	9 日間照射による検討	14
5.6	$^{99}\text{Mo}$ 生成量の計算結果	15
6	まとめ	16
	謝辞	17
	参考文献	18

付録

1	事業所内輸送容器の検討	60
2	RI製造棟整備の検討	60
3	PZCの実証試験の検討	60
3.1	PZCの概要	60
3.2	PZC実証試験の検討	61
4	課題提言	62
4.1	安定供給に係る検討	62
4.2	技術継承	62
4.3	原子炉停止翌日の上部遮へい体の開操作について	62

Contents

1	Introduction	1
2	Current status of utilization of <sup>99</sup> Mo and Background of <sup>99</sup> Mo production study	2
3	Previous results of <sup>99</sup> Mo production in JRR-2 and JRR-3	3
3.1	Production of <sup>99</sup> Mo from nuclear fission method in JRR-2 and JRR-3 irradiation	3
3.2	Production of <sup>99</sup> Mo from neutron activation method in JRR-2 irradiation	4
4	Outline of JRR-3	5
4.1	Selection of reactor for <sup>99</sup> Mo production	5
4.2	Selection of irradiation facility in JRR-3 for <sup>99</sup> Mo production	6
5	Estimation of <sup>99</sup> Mo producing process in JRR-3 irradiation	6
5.1	Estimation of <sup>99</sup> Mo producing process	6
5.1.1	Pre-irradiation process	7
5.1.2	Irradiation process	8
5.1.3	Post irradiation process	9
5.2	Estimation concerning the amount of the production	9
5.3	Calculation methods and models	10
5.3.1	Calculation methods	10
5.3.2	Calculation models	11
5.4	Estimation of <sup>99</sup> Mo production from on power irradiation method	11
5.4.1	Estimation of <sup>99</sup> Mo production with Hydraulic Irradiation Facility	12
5.4.2	Estimation of <sup>99</sup> Mo production with handling device for <sup>99</sup> Mo irradiation	12
5.4.3	Estimation of <sup>99</sup> Mo production with concrete supply system in piping	13
5.5	Estimation of <sup>99</sup> Mo production by the change of JRR-3 operation plan	14
5.5.1	Estimation of <sup>99</sup> Mo production by nine days interval irradiation	14
5.6	Results of calculation of the amount of <sup>99</sup> Mo	15
6	Conclusion	16
	Acknowledgments	17
	References	18

Attached material

1	Estimation of the transport packages in site	60
2	Estimation of the maintenance of RI production building	60
3	Estimation of demonstration test of PZC	60
3.1	Outline of PZC	60
3.2	Estimation of PZC demonstration test	61
4	Proposals	62
4.1	Estimation of stable supply	62
4.2	Technological succession	62
4.3	Operation of the top shielding materials on reactor at the day following the reactor shut down	62

## 1. はじめに

病院などの医療機関で診断や治療に様々な放射性同位元素（以下「RI」という。）が使用されている。なかでもモリブデン-99（以下「 $^{99}\text{Mo}$ 」という。）（半減期=65.9時間）の娘核種であるテクネチウム-99m（以下「 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 」という。）は、放射線検出が容易な140keVの $\gamma$ 線のみを放出し、半減期も6.1時間と短く、生体組織を損傷させやすい $\alpha$ 線や $\beta$ 線を出さないので人体に負担の少ない検査用RIとして、最も多く診断に使用されている。

その具体的使用方法として、患者に投与されたRI標識薬剤は、疾患に対応して特有の分布を示すので、これをシンチレーションカメラやシングルフォトンCT（SPECT(Single photon Emission Computed Tomography)）装置で画像化して診断に用いる。また、骨の病変や肝疾患の検査にも用いられる。日本国内の $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の使用量は2008年度（平成20年度）で年間約449TBq（約12,135Ci）であり、放射性医薬品全体の83.7%を占めている<sup>1)</sup>。現在、その全てを海外からの輸入に依存している。そのため、万一海外で異変が生じ輸入がストップした場合には、半減期も短く貯蔵もできないことから逼迫した状況に陥る。このような状況をできるだけ軽減するには、輸入量の一部を国産化することが必要である。

$^{99\text{m}}\text{Tc}$ 国産化に向けた対策に資するため、現在稼働しているJRR-3を用いた $^{99}\text{Mo}$ 製造について検討を実施した。

原子炉を利用して $^{99}\text{Mo}$ を製造するには、 $^{98}\text{Mo}$ をターゲットとして(n,  $\gamma$ )反応を利用し $^{99}\text{Mo}$ を得る「中性子放射化法」もしくは、高濃縮ウラン\*1をターゲットとし $^{235}\text{U}$ の核分裂生成物として $^{99}\text{Mo}$ を得る「(n, f)法」（以下「核分裂法」という。）がある。独立行政法人日本原子力研究開発機構（以下「原子力機構」という。）の前身である日本原子力研究所（以下「原研」という。）ではその両方の製造経験がある<sup>2)</sup>。核分裂法による製造経験としては、JRR-2、改造前JRR-3において、2.6%低濃縮ウランをターゲットとし、 $^{235}\text{U}$ の核分裂生成物から $^{99}\text{Mo}$ を得る製造技術を開発し、1977年～1979年（昭和52年～54年）にかけて試験的に製造頒布した実績がある<sup>3)</sup>。この際、本方法は作業時間が長いことや化学処理の複雑さがあるとともに、供給量が必要量に比べ非常に少ないということが確認され、採算性の観点も配慮し、その後供給中止となった。更に核分裂法は高レベル放射性廃棄物が大量に出るといった課題を有していた。この様な欠点を補う方法として、 $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ 反応を利用した中性子放射化法による製造法を開発し、JRR-2照射で製造した経緯がある。ただし、本方法は、前法よりも製造量は一桁多いが比放射能の高い $^{99}\text{Mo}$ を得ることが難しいという欠点があり、安定供給という面でも年間最大約26週の出荷が限度であり、利用者の要求出荷回数（約50週）を十分満足させられないことから、後にこれも製造中止となった。しかしながら、ターゲットに入手の容易な三酸化モリブデン( $\text{MoO}_3$ )を使用すれば、照射したターゲットをNaOH水溶液に溶解するだけの簡単な工程で製造できる。取り扱う放射能は $^{99}\text{Mo}$ と $^{99\text{m}}\text{Tc}$ だけであり、放射線の遮へいも容易である。また、核燃料を扱わないので問題になるような放射性廃棄物が発生しないことも大きな利点である。

---

\*1： 2007年、OPAL炉（オーストラリア）では、低濃縮ウランをターゲットとした $^{99}\text{Mo}$ 製造を開始した。

本検討では後述するように原子力機構の材料試験炉 JMTR（以下「JMTR」という。）と JRR-3 の両研究炉により  $^{99}\text{Mo}$  を製造することで上述の欠点を補うことが出来るため、中性子放射化法による製造法を採用することとした。

本報は、JRR-3 を利用した中性子放射化法を用いた製造方法の検討を行い、JRR-3 の照射設備を改造した場合及び運転パターンを変更した場合の  $^{99}\text{Mo}$  製造量を示すとともに、 $^{99}\text{Mo}$  製造に必要なとなる設備対応についても検討した結果を示し、社会に貢献できる製造量確保の道筋を立てる概念検討を行ったものである。原子炉による  $^{99}\text{Mo}$  製造法を Table 1.1 に示す。

## 2. $^{99}\text{Mo}$ 利用の現状と $^{99}\text{Mo}$ 製造検討の背景

RI から放出される放射線は、物質自体はごく微量であっても確実に検出・定量することができ、この性質を利用してシンチグラフィによる検査、診断が行われている。これに用いる医薬品はいわゆる“放射性医薬品”と呼ばれる。放射性医薬品に用いられる RI には半減期が短く、放射線の透過力の優れたガンマ線を出すものが適している。このうち  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  は代表的な放射性医薬品であり、臓器の形を画像として捉えることのできるガンマカメラまたはシンチレーションカメラの普及により、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  製剤の使用量は急増している。

放射性医薬品として用いられる  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の利用には、医療機関が親核種である  $^{99}\text{Mo}$  を原料とした  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  発生装置(以下「ジェネレータ<sup>\*2</sup>」という。)を各々医療機関が保有して、使用の都度、放射平衡途中にある  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を採取・調合するか、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の利用の増加に従い大規模ジェネレータ(マスターミルク)を備えた製薬業者による  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  製剤の直接供給を受ける方法も増加してきている。 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータシステムを Fig. 2.1 に示す。

現在世界で使用されている  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  のほぼ 100%が海外の原子炉を用いた核分裂法により製造されている。それらの原子炉は、高経年化が進んでおり、中でも世界需要充当率が約 38%<sup>4)</sup>のカナダ原子力公社が有する NRU は、モリブデン生産ライセンスの有効期限である 2011 年(平成 23 年)までの失効が迫り、確実に更新されるかは定かではない。その様な中で、2009 年(平成 21 年)5 月には、重水漏洩事故により停止してしまい、2009 年度(平成 21 年度)末まで運転は再開できない見込みである。 $^{99}\text{Mo}$  を製造している世界の主な原子炉一覧を Table 2.1 に示す。

\*2: ジェネレータシステム: 放射平衡にある親核種の長寿命 RI から短寿命の娘核種を必要に応じて化学分離する操作はカウ(雌牛)・ミルクシステムまたはジェネレータシステムとよばれる。代表的なジェネレーターとして、 $^{90}\text{Sr}$ (28.74h)/ $^{90}\text{Y}$ (64.10h)、 $^{99}\text{Mo}$ (65.94h)/ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6.01h)、 $^{188}\text{W}$ (69.4h)/ $^{188}\text{Re}$ (17.005h)等が医学及び学術研究用として利用されている。原理的には、アルミナなどの吸着体に親核種を吸着しておき、生理食塩水などによる溶離で娘核種をミルクする。無担体(キャリアフリー)の RI が得られることから、放射性医薬品に標識し、診断・治療に有用である。また、病院内で必要な時に容易に調製出来る利点がある。患者に投与された RI 標識化合物は、疾患に対応して特有の分布を示すので、これをシンチレーションカメラやシングルフォトン CT (SPECT) 装置で画像化して診断に用いる。

今後の<sup>99m</sup>Tcについての需要予測を Fig. 2.2 に示す。この図によると需要は2020年までに年率約16%の伸びを示すと考えられている。医療分野において現在承認されている放射性医薬品のうち、2008年度(平成20年度)に販売実績があった放射性医薬品としての非密封RIの供給量を Table2.2 に示す。この中で、<sup>99m</sup>Tc は製薬会社で<sup>99</sup>Mo から<sup>99m</sup>Tc をミルキングし放射性薬剤溶液として供給されたものであり、Mo/Tc は<sup>99</sup>Mo から<sup>99m</sup>Tc を取り出すジェネレータである。これで分かるように、放射性医薬品として供給されている非密封RIの中では<sup>99</sup>Mo が約85%<sup>5)</sup>を占めている。

<sup>99</sup>Mo の安定供給が危機的状況にあることを深刻に受け止めているカナダ政府の要請で、「医療用RIの供給確保に関するOECD/NEA国際会議」を2009年(平成21年)1月29日～30日にフランスのパリで開催した。この会議では、今後の<sup>99</sup>Mo 安定供給の課題が議論された。

<sup>99</sup>Mo の安定供給は世界各国共通の課題であるが、特に、世界の全生産量の約14%<sup>6)</sup>を消費している我が国にとって、必要不可欠な量の<sup>99</sup>Mo を安定確保するための<sup>99</sup>Mo の国産化は喫緊の課題であると同時に国際的な責任を果たす観点でも重要である。

このような情勢を鑑みて、原子力機構大洗研究開発センターでは、1965年～1975年代(昭和40年～50年代)に実施した<sup>99</sup>Mo 製造の経験を活かして2011年度(平成23年度)に再稼働する計画で進めているJMTRの利用の一環として、<sup>99</sup>Mo の製造が計画されている<sup>7)</sup>。JMTR再稼働に合わせて、照射後の処理等の面で利点のある中性子放射化法による<sup>99</sup>Mo 製造の技術的検討の中で、安定供給の観点から、高出力炉であるJRR-3を利用した<sup>99</sup>Mo 製造の技術的検討を行った。

### 3. JRR-2,JRR-3による<sup>99</sup>Mo 製造の実績

原研は<sup>99</sup>Mo を製造するため、1972年(昭和47年)から1985年(昭和60年)にかけて、JRR-2及びJRR-3により、核分裂法及び中性子放射化法の両方式の技術開発を進め、製造技術を確立し、<sup>99</sup>Mo を定期的に供給した実績を残した。

この過程で、原子炉の運転中に炉心領域に試料を挿入、取り出して高い中性子束で任意時間照射を行う技術、放射性ヨウ素を含む大量の非密封FPの取扱い技術、放射性廃液の処理技術など、原子力開発全般への波及効果の期待できる多くの技術的成果を挙げることができた<sup>3)</sup>。

以下にJRR-2及びJRR-3による<sup>99</sup>Mo 製造の実績を記述し、過去の問題点の整理と課題を見いだす。

#### 3.1 JRR-2,JRR-3による核分裂法による<sup>99</sup>Mo の製造

原研では、1956年(昭和31年)の設立以来、独自の技術開発を積み重ねて、多くの精製RI、線源RI及び有機標識化合物の製造技術を開発してきた。原子炉は大量の中性子が長期間にわたって利用できる優れた中性子源であり、その中性子による(n,  $\gamma$ )、(n, p)、(n,  $\alpha$ )、(n, f)反応等を利用して、医療用、工業用、学術研究用などの数多くのRIを製造頒布してきた<sup>8)</sup>。

原研アイソトープ事業部製造部では、1972年(昭和47年)から、天然金属ウラン及び二酸化ウラン燃料を使用していた改造前JRR-3で核分裂法による<sup>99</sup>Mo の製造技術開発に着手し、医療用RIとして<sup>99</sup>Mo の製造などに定常的に良品の製品を試供することができた。

しかし、この核分裂法では、原料となる高濃縮ウラン(一般にはHEU:<sup>235</sup>U濃縮度約95%、原研ではLEU:2.6%を使用)はIAEAや国の検査対象であること、<sup>99</sup>Mo の製造に伴い処理できないプルトニウム(<sup>239</sup>Pu)廃棄物などが生成し、長年の製造によって大量の放射性廃棄物の貯留が

必要となり問題が多い。また、作業時間が長いことや化学処理の複雑さがあり、製造量も限られる<sup>7)</sup>。

JRR-2、改造前 JRR-3 による  $^{99}\text{Mo}$  の製造は、技術開発、施設の整備、検査を経て 1977 年（昭和 52 年）7 月に 740GBq(20Ci)/週の製造を開始した。その後、1979 年（昭和 54 年）3 月まで  $^{99}\text{Mo}$  製品を 30 回製造頒布し、製造技術の実用性を立証した。しかし、 $^{99}\text{Mo}$  需要は、当初予測の 7 倍を上回り、全需要の十分の一にも満たない状態となった。また、製造廃液貯蔵タンクの健全性の懸念、製造規模の拡大、継続には多くの困難を伴うと判断して 1979 年（昭和 54 年）3 月に製造を中止した<sup>2)</sup>。

### 3.2 JRR-2 による中性子放射化法による $^{99}\text{Mo}$ の製造<sup>2)</sup>

1975 年（昭和 50 年）以降、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の需要増に対応するため、 $^{99}\text{Mo}-^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータに加えて、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を診断用標識体の溶液として病院へ供給する、いわゆる溶液型<sup>\*3</sup>  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  が全体の 25% 程度使用されるようになったことから、天然モリブデンをターゲットとする中性子放射化法で大量の  $^{99}\text{Mo}$  を製造する方向へ方針転換した。

1977 年（昭和 52 年）頃、JRR-2 において中性子放射化法による  $^{99}\text{Mo}$  がどの程度生産できるか検討することになり、 $^{98}\text{Mo}$  の放射化断面積が熱中性子に対して 0.13~0.14b<sup>9),10)</sup> とバラツキの少ないデータが報告されているが、熱外中性子（実効カドミウム、カットオフ・エネルギー ( $E_0$ ) 以上) に対しては、文献<sup>10)</sup>によると 6.9~21.0b とバラツキが見られた。このため、JRR-2 の実験孔を使い  $^{98}\text{Mo}$  の放射化断面積測定実験を行った。その結果、 $^{98}\text{Mo}$  の放射化断面積は熱中性子に対して  $0.15 \pm 0.03\text{b}$ 、熱外中性子 ( $E_0 < E$ ) に対して  $11.6 \pm 0.18\text{b}$  の値を得た<sup>11)</sup>。

1978 年（昭和 53 年）、JRR-2 中空円筒燃料内 3A 照射孔（以下「インコア 3A 照射孔」という。）を用い、照射位置の特性と生成する  $^{99}\text{Mo}$  の放射能を確認する照射試験を行った。原子炉稼働中に照射試料の挿入、取り出しの出来る照射試料装荷取出装置を設計、製作した。

ターゲット物質には三酸化モリブデン（以下「 $\text{MoO}_3$ 」という。）と金属モリブデンを選定し、化学的安定性、中性子の自己遮へい、化学処理の面から比較実験を行った。その結果、自己遮へいが少なく容易に化学処理が出来る  $\text{MoO}_3$  を選択し、ペレットに成型して用いた。同年、 $\text{MoO}_3$  ペレット 340 g をアルミニウム合金製の計装キャプセルに封入し、インコア 3A 照射孔で実規模照射時の安全性と生成する  $^{99}\text{Mo}$  放射能を確認した。

1979 年（昭和 54 年）RI 製造棟に鉛厚 10 cm のセルに 2.2TBq(60Ci)/回を扱える製造装置を組み込み JMTR、JRR-2 を用いた試験製造を実施した。試験製造では、照射後の  $\text{MoO}_3$  ペレットを 10M 水酸化ナトリウム水溶液で溶解・攪拌後、水で希釈してモリブデン酸ナトリウム水溶液の製品とし、製造時比放射能約 74GBq/g.Mo、放射能濃度 19GBq/ml(0.5Ci/ml)、放射能量 7.4TBq の製造を行い、利用者に提供した。

中性子放射化法の開発は、核分裂法に比べて簡単なこともあり、1980 年（昭和 55 年）には JRR-2 により定常製造に入った。途中、1981 年（昭和 56 年）から一時停止したが、1982 年（昭和 57 年）2 月から定常的な出荷を実施し、1983 年（昭和 58 年）から 11.1TBq(300Ci)/週の規

\*3：  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  は、既に標識された  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  溶液製剤を医薬品メーカーから入手して使用する場合が多い。

模で年間 26 週の製造を行った。しかし、前述した様に原研が有する原子炉の稼働状況では、年間、最大 26 週の出荷が限度であり、利用者の要求を十分に満足させられないこと、さらにカナダからの供給が確保されたことが相まって原研製品の需要がなくなり、1985 年（昭和 60 年）に  $^{99}\text{Mo}$  大量製造を中止した。その後 JRR-2 は、1996 年（平成 8 年）に原子炉運転を終結し、現在は解体中である。

JRR-2 による  $^{99}\text{Mo}$  製造の歴史を Fig. 3. 2-1 に、照射要件と照射場の選定を Fig. 3. 2-2 に、照射試料の装荷及び取出装置を Fig. 3. 2-3 に、ラジオアイソトープ製造棟（以下「RI 製造棟」という。）での Mo 製造の流れを Fig. 3. 2-4 に示す。

## 4. JRR-3 の概要

### 4.1 $^{99}\text{Mo}$ 製造炉の選択

原子力機構で現在稼働している研究用原子炉は、JRR-3 及び JRR-4 である。2011 年度（平成 23 年度）に JMTR が再稼働予定であるため、 $^{99}\text{Mo}$  を製造する原子炉として JMTR との補完的役割を果たす原子炉を選択する必要がある。

JRR-4 は、最大熱出力 3500kW（3.5MW）の 20%低濃縮  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  分散型板状燃料を用いた軽水減速軽水冷却のプール型原子炉である。最大熱外中性子束は  $1.3 \times 10^{17} \text{ n/m}^2 \cdot \text{sec}$  である。医療照射や原子力人材育成研修のための専用運転やシリコン照射、医療用 RI 製造等のための運転を行っている。運転時間は、1 日約 6 時間のデイリー運転方式であるため、 $^{99}\text{Mo}$  の安定供給には比放射能及び放射エネルギーの面から適さない。

一方、JRR-3 は、最大熱出力 20,000kW（20MW）の 20%低濃縮  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  分散型板状燃料を用いた軽水減速軽水冷却重水反射体のプール型原子炉である。原子炉運転計画は、運転日前週の試料挿入、燃料交換、施設の点検等に係る 1 週間及び翌週月曜日から 4 週目金曜日までの連続 26 日間（4 週間）を含めた 5 週間で 1 サイクルとしている。1 年間に 6 又は 7 サイクル行い、残りは施設定期自主検査期間となる。

JRR-3 は、26 日間連続運転方式原子炉で、年間に約 180 日間の稼働時間があり、かつ、最大熱外中性子束は  $2.0 \times 10^{18} \text{ n/m}^2 \cdot \text{sec}$  であるため、JMTR の補完的役割を果たす原子炉として選択した。JRR-3 H21～H23 年度運転計画（案）を Fig. 4. 1-1 に示す。

JRR-3 は 1983 年（昭和 58 年）から 1990 年（平成 2 年）にかけて原子炉本体を交換する大規模な改造工事が行われ、既存の原子炉建家、使用済燃料貯蔵施設等を再利用し、原子炉建家に隣接して新たに原子炉制御棟、実験利用棟等を配置した。実験利用棟にはビームホールを設け、原子炉で発生した中性子を中性子導管を通して同施設内の実験装置まで導くことにより中性子ビーム実験の飛躍的な利用拡大を図った。

炉心は、26 体の標準型燃料要素、6 体の制御棒付きフォロー型燃料要素、ベリリウム反射体及び照射筒で構成され、その外側に水平実験孔及び垂直照射孔を備えた重水タンク（重水反射体）を配置している。プール型原子炉上部には、開閉式の上部遮へい体が設置され、原子炉運転中は、閉止した上部には Si 照射用均一照射装置が設置される。JRR-3 照射設備配置鳥瞰図を Fig. 4. 1-2 に示す。

利用設備は、照射利用設備と中性子ビーム実験設備に大別される。照射利用設備は、垂直照

射孔内で各種試料の中性子照射を行うためのもので、6種類の設備により大形状材料の照射、医療用及び工業用 RI 線源の製造、Si 半導体の製造、計装キャプセルの照射、短寿命核種の放射化分析、放射性同位元素の生産等が可能で、利用者の照射ニーズの多様化に 대응できるようにしている。JRR-3 照射利用設備平面図を Fig. 4.1-3 に示す。一方、中性子ビーム実験設備において、中性子ビームを取り出す水平実験孔は、速中性子や $\gamma$ 線を除去し、熱中性子や冷中性子だけを取り出せるように炉心に対して接線方向に取り付けられている。水平実験孔の一つに、熱中性子を約 $-250^{\circ}\text{C}$ の液体水素中を通過させ、速度を遅くして冷中性子ビームとして取り出す冷中性子源装置が設置されている。

#### 4.2 JRR-3 による $^{99}\text{Mo}$ 製造用照射設備の選択

JRR-3 は、試料をキャプセル（照射設備で使用する試料等を内蔵し搬送する容器）に収納し、それを原子炉内の燃料領域、ベリリウム反射体領域及び重水反射体領域で中性子照射試験等を行うために以下に示す照射設備が設置されている。JRR-3 照射設備の配置平面図及び照射設備の特性一覧を Fig. 4.2-1 に示す。

- |                        |                   |
|------------------------|-------------------|
| ① 水力照射設備 (HR-1、HR-2)   | : RI の製造、中性子放射化分析 |
| ② 垂直照射設備 (VT、RG、BR、SH) | : RI の製造、照射試験     |
| ③ 気送照射設備 (PN-1、PN-2)   | : 中性子放射化分析        |
| ④ 放射化分析用照射設備 (PN-3)    | : 中性子放射化分析        |
| ⑤ 均一照射設備 (SI-1)        | : シリコン照射          |
| ⑥ 回転照射設備 (DR-1)        | : 大型試料の照射         |

この中で、 $^{99}\text{Mo}$  製造の検討を行った照射設備は、水力照射設備 (HR-1、HR-2) 及び垂直照射設備 (VT、RG 及び BR) である。

本検討では、 $^{99}\text{Mo}$  を定期的に生産するための最適な照射設備としては  $^{99}\text{Mo}$  試料の装荷、 $^{99}\text{Mo}$  の取り出しの利便性を考慮すると水力照射設備 (HR-1、HR-2)（以下「水力照射設備」という。）が優位である。しかし、 $^{99}\text{Mo}$  を多く生産するためには、高い熱外中性子が必要となるため、垂直照射設備 (VT、RG、BR)（以下「垂直照射設備」という。）が優位である。そのため、 $^{99}\text{Mo}$  生産頻度と生産量を比較検討材料に両設備を対象設備として検討した。水力照射設備及び垂直照射設備の概要は 5.1.2 項に示す。

### 5. JRR-3 照射による $^{99}\text{Mo}$ 製造プロセスの検討

#### 5.1 $^{99}\text{Mo}$ 製造全体プロセスの検討

本検討では、水力照射設備及び垂直照射設備を使用して原子炉を停止せずに Mo 照射ができるオンパワー方式と、垂直照射設備を使用して原子炉運転日数を現状の 26 日から、 $^{99}\text{Mo}$  の製造に適した運転日数に短縮し原子炉停止後に  $^{99}\text{Mo}$  の取り出し、 $^{99}\text{Mo}$  試料の挿入を行う運転計画変更方式の 2 方式について検討した。

以下に示すように Mo の照射・製造プロセスは大きく、①照射前工程、②照射中工程、③照射後工程の 3 つに分かれる。①照射前工程は、原料の調達から試料のキャプセル封入までを、②照射中工程は、照射装置での試料の照射・取り出しまでを、③照射後工程は、照射済み試料か

らの<sup>99</sup>Moの溶解、製品検査、配分、梱包、出荷までのプロセスを意味する。各方式に共通の工程を記述する。水力照射設備及び垂直照射設備仕様を Table5.1-1 に、<sup>99</sup>Mo 製造プロセスを Fig. 5.1-1 に示す。

### 5.1.1 照射前工程

以下に示す(1)ターゲットの選定、(2) MoO<sub>3</sub> ペレットの製法及び(3)MoO<sub>3</sub>の不純物同定に関するデータは、JRR-2 照射時のデータを参考にしてまとめたものである。

#### (1) ターゲットの選定

中性子放射化法により<sup>99</sup>Moを製造するターゲットは、照射中の熱及び放射線に対する安定性、中性子自己遮への影響、照射後の化学処理の難易等が挙げられる。この条件を満たすものとしてMoO<sub>3</sub>を選定した。

MoO<sub>3</sub>は、粉末状態の試料取扱時の飛散、充填密度の不均一を考慮し、さらには、高い比放射能、照射中の中性子自己遮への影響が少ないことなどからMoO<sub>3</sub>ペレットにして取り扱う方が良い結果が得られる事が実験結果からもわかっている。

MoO<sub>3</sub>は、照射中の中性子自己遮への影響が少なく、金属モリブデンに比べ2倍近い比放射能が得られることと、アルカリ溶液で簡単に溶けることが分かっており、MoO<sub>3</sub>をペレットとして選定した。

#### (2) MoO<sub>3</sub>ペレットの製造法

MoO<sub>3</sub>ペレットの製造法は、高純度のMoO<sub>3</sub>の粉末を原料とし、これに樟脳と2w/oエチレングリコールのバインダーを加えて焼結してペレット状に成型する。

高純度MoO<sub>3</sub>は、市販特級モリブデン酸アンモニウムをアルミナカラムで精製し、結晶モリブデン酸アンモニウムとし、100℃で5時間乾燥後、700℃で2時間仮焼して粉末として得られる。この焼結体ペレットは、型くずれもなく、カドミウムや鉛よりは堅く、スズ、銅、アルミニウムより柔らかいペレットが得られた。三酸化モリブデンペレットの物性値をTable5.1-2に、MoO<sub>3</sub>ペレットの大きさと比放射能の関係をFig. 5.1-2に示す。

焼結温度実験結果：500℃以上で急激に硬くなり、600℃から750℃で一定。

決定した焼結条件：昇華性を有することを考慮して720℃、2時間。

ペレット寸法：高さ約10mm、外径約28mm

重量：20g/個

#### (3) MoO<sub>3</sub>の不純物同定

<sup>99</sup>Mo-<sup>99m</sup>Tc 製品中の放射性不純物には、原子炉照射によってMoO<sub>3</sub>製造課程の途中で含まれる不純物が放射化されるものと、照射中の副反応によって生成するものがあり、これらの不純物の同定を行うことは製品純度を決定する上で非常に大切なことである。

MoO<sub>3</sub>中の不純物で放射性医薬品としての使用上問題になるのは、タングステンである。タングステンは、モリブデンと同族(第VI族 a 元素)であり、混入量の低減化は難しく、原子炉で照射することにより、次の反応で<sup>188</sup>Wは<sup>188</sup>Reとなり製品に混入する。



レニウムは、テクネチウムと同族（第Ⅶ族 a 元素）であり、 $^{99m}\text{Tc}$  のミルク操作時に同伴するため問題となる。このことからタングステン含有量が低いほど望ましい。

その他の不純物は、アルミキャプセルからの  $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$  と、アルミキャプセル不純物の  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  で、 $\gamma$ 線放出エネルギーが高く放射線遮へい上の問題となる。これらの不純物の含有量の少ないこともターゲットの選定条件となる。そこで、入手が容易で  $\text{MoO}_3$  の表示純度の高い国産 MK 社の他海外を含む合計 6 社から 6 種類のペレット照射による不純物同定を実施した。その結果、 $^{92m}\text{Nb}$  が 8 日減衰後に検出された。これは  $^{92}\text{Mo}(n, p)^{92m}\text{Nb}$  反応の副反応生成物であり、短時間での除去は不可能である。 $^{99}\text{Mo}$  製品が崩壊後の廃棄物で問題になる長半減期核種は、極微量の  $^{60}\text{Co}$ 、 $^{65}\text{Zr}$ 、 $^{95}\text{Zr}$ - $^{95}\text{Nb}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{182}\text{Ta}$  である。

医薬品会社が  $\text{Na}_2\text{MoO}_4$  製品溶液からメチルエチルケトンを用いて  $^{99m}\text{Tc}$  を溶媒抽出し、放射性医薬品とする方法と同様の処理の結果、 $^{99m}\text{Tc}$  の放射化学的純度は、99.99%以上であることが分かり、製品の品質は使用上問題のないことを確認した。

照射による不純物同定結果を Table 5.1-3 に示す。 $^{99}\text{Mo}$  製造照射前工程を Fig. 5.1-3 に示す。

#### (4) キャプセル構造

試料の  $\text{MoO}_3$  ペレットは、アルミニウム合金製のキャプセルに封入して取り扱う。キャプセル内部の雰囲気は照射による放射化ガスの生成を抑え、 $\gamma$ 加熱による徐熱の熱伝導を高め、かつキャプセル封入後のヘリウムリーク試験を行うため、ヘリウム等の不活性ガスを封入して使用する。キャプセル内部をヘリウム等の不活性ガスで封入するには、溶接方式が一般的であるが、溶接熱により  $\text{MoO}_3$  ペレットの昇華が考えられる。そのため溶接部の熱影響部が少なく、キャプセルの温度上昇を押さえることの出来る電子ビーム溶接 (EBW) を適用する。適用においては試作による確認が必要である。キャプセルの構造図を Fig. 5.1-4 に示す。

### 5.1.2 照射中工程

$^{99}\text{Mo}$  製造照射中工程を Fig. 5.1-5 に示す。

#### (1) 水力照射設備の概要

水力照射設備は、試料の入ったキャプセルを炉内まで搬送し、照射するための照射系、未照射キャプセルを挿入機から照射系へ搬送し、照射済キャプセルを冷却した後照射系から詰替セルへ搬送するための転送系から構成されている。水力照射設備は、照射後のキャプセルを JRR-3 実験利用棟の詰替セルから地下転送設備を利用して RI 製造棟へ水力により転送出来る設備であるため、照射直後約 30 分後には RI 製造棟に転送が完了し、 $^{99}\text{Mo}$  の放射エネルギー減衰を考慮すると工程の短縮化を図るのに適した設備である。

水力照射設備は、原子炉運転中に 10 分から最大 1 サイクル (602 時間) までの任意の時間、試料を中性子照射するために重水タンク内にある照射孔へ試料を挿入し、取り出しを行う設備であり 2 基設置されている。1 基あたり、キャプセルは最大 3 本積み重ねて照射できる。1 キャプセルあたりの  $\text{MoO}_3$  ペレット最大重量は、約 90g (標準) である。熱中性子束は  $1.0 \sim 1.2 \times 10^{18} \text{ n/m}^2 \cdot \text{sec}$ 、速中性子束は約  $1.4 \sim 1.7 \times 10^{16} \text{ n/m}^2 \cdot \text{sec}$  である。

試料容器となるキャプセルは、外径 32 mm、長さ 150 mm の純アルミニウム製である。搬

送時の衝撃吸収及びキャプセル開封後の取扱いのため、試料をアルミニウム箔で包んでキャプセルに入れて照射する。キャプセルは、試料を内部に入れてから溶接方式によって密封される。HR-1 系統は、実験利用棟の詰替セルを経由して隣接する RI 製造棟の 602 号室鉄セルまで転送することが出来る。HR-2 系統から RI 製造棟に転送するには、実験利用棟詰替セルで RI 製造棟転送系に切り替えて行うこととなる。

## (2) 垂直照射設備の概要

垂直照射設備は、燃料領域中心領域の VT 孔、燃料領域の周辺に RG-1 から RG-4 まで 4 孔ある RG 孔、ベリリウム反射体領域に BR-1 から BR-4 まで 4 孔ある BR 孔を利用してキャプセル照射を行う設備である。

熱中性子束は、 $2.0 \sim 3.0 \times 10^{18} \text{ n/m}^2 \cdot \text{sec}$ 、速中性子束が  $1.0 \sim 2.0 \times 10^{18} \text{ n/m}^2 \cdot \text{sec}$  と高く、また、1 照射孔内に  $\text{MoO}_3$  ペレットを多く照射できるため、大量生産が可能となる。これらの照射設備は、燃料・材料の照射試験、RI の製造に用いられる。

照射は、任意の時間で挿入、取り出しが出来るオンパワー方式と運転を停止して挿入、取り出しを行う運転計画変更方式により工程が違う。両方式の概略照射工程は、5.4 項及び 5.5 項に示す。

$\text{MoO}_3$  入りキャプセルは、両方式共にアルミニウム製のバスケットに入れて照射孔に挿入し、任意時間の照射を行う。1 キャプセルあたりの  $\text{MoO}_3$  ペレット最大重量は、約 318.65g (標準) である。バスケットは、アルミニウム製で外径約 55 mm、長さ約 1,065 mm 以下である。キャプセル寸法は、外径約 34 mm、長さ約 145 mm である。

照射終了後は、垂直照射試料事業所内輸送容器 (以下「垂直キャスク」という。) にバスケットを収納し、隣接する RI 製造棟にフォークリフトにより運搬する。垂直照射設備バスケット構造図を Fig. 5.1-6 に、垂直照射用バスケットの取扱作業写真を Fig. 5.1-7 に、垂直キャスク概念図を Fig. 5.1-8 に示す。

### 5.1.3 照射後工程

$^{99}\text{Mo}$  製造照射後工程を Fig. 5.1-9 に示す。RI 製造棟の 602 号室鉄セルに転送 (水力照射設備使用時) または垂直キャスク (垂直照射設備使用時) により搬入されたキャプセルは、602 号室鉄セル内でバスケット及びキャプセルを開封装置により開封する。開封後、キャプセルに封入されている  $\text{MoO}_3$  ペレットの取り出しは製造セルに移送して行う。

取り出した  $\text{MoO}_3$  ペレットの溶解工程、吸着工程を経て  $^{99}\text{Mo}$  吸着体として製品化する。RI 製造棟の配置図を Fig. 5.1-10 に示す。

なお、本報告では、RI 製造棟内で  $\text{MoO}_3$  ペレットを溶解する工程を前提として検討したが、 $\text{MoO}_3$  ペレットのまま固体として JMTR のホットラボ施設に輸送して処理する方法により、RI 製造棟の改修費を節約することも選択肢のひとつとして検討し、付録の第 2 章に記述した。

## 5.2 製造量に関する検討

$^{99}\text{Mo}$  製造量の目標値は、「JMTR を用いた  $^{99}\text{Mo}$  製造設備の概念検討」<sup>7)</sup> と同様、国内での  $^{99}\text{Mo}$  需要量である 1,110TBq/年 (22.2TBq/週) から推定される  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  供給メーカーの  $^{99}\text{Mo}$  購入量 (推定) は、4,440TBq/年 (88.8TBq/週) であり、全量が海外の単一社からの輸入品であることから、輸

入が途切れた場合のリスクを分散することを目的として、予備量に相当する量の国産化を図ることを目的として、また、製薬メーカー等の要望も考慮し、以下の目標値を設定した。

- 1) 比放射能： $^{99}\text{Mo}$  メーカー引渡し時、 $1\text{Ci/g. Mo}$  ( $37\text{GBq/g. Mo}$ ) 以上
- 2) 総放射能： $^{99}\text{Mo}$  メーカー引渡し時、 $1,000\text{Ci/週}$ 以上 ( $37\text{TBq/週}$ ) (定期的 (毎週又は隔週) 供給 (根拠：1社あたり  $^{99}\text{Mo}$  購入量(推定)の約 20%)
- 3)  $^{99}\text{Mo}$  メーカー引渡し日時：土曜日正午

本検討では、 $^{99}\text{Mo}$  引渡し時間は土曜日正午と仮定することとした。冷却時間は、オンパワー方式及び運転計画変更方式それぞれで照射時間が違うため、土曜日正午引き渡しに合わせた冷却時間となる。なお、冷却時間は、Mo 照射後 RI 製造棟内で照射後工程を経て、当機構原子力科学研究所から製薬メーカーまでの輸送工程も含めた時間とする。

### 5.3 計算手法及び計算モデル

#### 5.3.1 計算手法

$^{99}\text{Mo}$  製造量の解析計算にあたっては、モンテカルロ法 MVP コード<sup>12)</sup>を用いた。中性子断面積ライブラリーには、燃料領域のウラン同位体、軽水等の物性データに JNDL-3.3<sup>12)</sup>を用い、その他の構造物については、JNDL-3.2<sup>13)</sup>を用いた。 $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$  反応及び不純物計算で求めた  $^{92}\text{Mo}(n, p)^{92}\text{Nb}$  反応の断面積については、MVP 付録の断面積ファイルにはないため、MCNP5 付録のポイントワイズ断面積ファイル (ドジメトリファイル) を使用した。

本計算に用いた  $^{98}\text{Mo}$  の原子数密度は  $4.64 \times 10^{-3}$  ( $\times 10^{-24} \text{ n/cm}^3$ ) とし、モリブデンペレット ( $\text{MoO}_3$ ) の密度を  $4.60 \text{ g/cm}^3$  とした。計算の流れを以下に示す。

計算コードで求まる値から、 $\text{Ci/g. Mo}$  を求める処理方法の流れの概要を記す。MVP を用いた計算において、 $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$  反応率はポイントワイズ断面積ファイルを使用して求めているが、この時、MVP から出力される値は、対象領域 (ここではペレット) において、単位体積当たりには 1 個の  $^{98}\text{Mo}$  が存在しているとした場合の、反応数である。この値を  $R_N$  とおく (単位は  $\text{n/cm}^3$ )。 $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$  反応率を求めるために、 $R_N$  に  $^{98}\text{Mo}$  のペレットにおける原子数密度 ( $\text{n/cm}^3$ ) 及び出力規格化定数 (20MW 換算) を乗じる必要がある。これらの値を  $R_N$  に乗じた値を  $R$  とすると、 $R$  はペレット単位体積当たり、1 秒間に反応する  $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$  反応数を表し、単位は  $\text{n/cm}^3\text{s}$  となる。 $\text{MoO}_3$  ペレットの密度を  $D \text{ g/cm}^3$ 、 $\text{MoO}_3$  の分子量を  $143.95$ 、 $^{98}\text{Mo}$  の同位体比を  $0.24$ 、原子炉出力規格化定数を  $P$  とすると、 $R$  は次のように表すことができる。

$$R = R_N \times D \times \frac{1}{143.95} \times (6.022 \times 10^{22}) \times 0.24 \times P \quad \dots (1)$$

照射中  $^{99}\text{Mo}$  の原子数密度は増加するが、 $^{99}\text{Mo}$  の半減期は 66 時間であるため、数日間の照射では照射中の減衰効果も大きくなる。照射日数を  $T(\text{d})$  とおくと、照射直後の  $^{99}\text{Mo}$  の原子数密度  $N_{\text{Mo-99}}$  は次のようになる。ここで  $\lambda$  は減衰定数で、 $\ln(2)/(66 \times 3600)$  である。また、照射に伴う  $^{98}\text{Mo}$  原子数減少の効果及び、生成した  $^{99}\text{Mo}$  と中性子の反応についての効果は無視できる程度と考えられるため、ここでは考慮していない。

$$N_{Mo-99} = \int_0^T R \cdot e^{-\lambda(T-t)} dt = R \cdot \frac{1}{\lambda} (1 - e^{-\lambda T}) \quad \dots (2)$$

この(1)式に $\lambda$ を掛けてBq/cm<sup>3</sup>を求め、更に $3.70 \times 10^{10}$ で割ることにより、Ci/cm<sup>3</sup>が求まる。この値を $C_{Mo-99}$ とおくと、次のように表すことが出来る。

$$C_{Mo-99} = \lambda \cdot N_{Mo-99} \cdot \frac{1}{3.70 \times 10^{10}} = R \cdot (1 - e^{-\lambda T}) \cdot \frac{1}{3.70 \times 10^{10}} \quad \dots (3)$$

上記(3)式で求まる値は、MoO<sub>3</sub>ペレット 1cm<sup>3</sup>当たりの値であるため、モリブデン 1g 当たりに換算するには(Ci/g, Mo を求めるため)、(2)の値をモリブデンの密度であるDgで割り(MoO<sub>3</sub>ペレット 1g 当たりの値)、更にMoO<sub>3</sub>中のMoの原子量比である0.666で割る必要がある(モリブデン 1g 当たりの値)。この値を $C'_{Mo-99}$ とおくと(単位: Ci/g, Mo)を求めると次式(4)のようになる。

$$\begin{aligned} C'_{Mo-99} &= R \cdot (1 - e^{-\lambda T}) \cdot \frac{1}{3.70 \times 10^{10}} \cdot \frac{1}{D \times 0.666} \\ &= \left( R_N \times D \times \frac{1}{143.95} \times (6.022 \times 10^{22}) \times 0.24 \times P \right) \times \left( (1 - e^{-\lambda T}) \times \frac{1}{3.70 \times 10^{10}} \times \frac{1}{D \times 0.666} \right) \\ &= 4.10 \times 10^9 \times R_N \times P \times (1 - e^{-\lambda T}) \quad \dots (4) \end{aligned}$$

(4)式からも分かるように、Ci/g, Mo単位の比放射能の値は、密度(D)に依存しないことが分かる。このことから、比放射能を高めるために、高密度ペレットを用いても効果がないことが分かる(むしろ、逆にMoO<sub>3</sub>の自己遮へい効果により比放射能は若干下がる)。比放射能を高めるためには、中性子束を上げる方法、照射を<sup>98</sup>Mo(n,  $\gamma$ )<sup>99</sup>Moの共鳴領域があるエネルギーの高い領域で行う方法、<sup>98</sup>Moを濃縮する方法が考えられる。

### 5.3.2 計算モデル

垂直照射孔(VT, RG, BR)照射モデルをFig. 5.3-1に、水力照射設備及び垂直照射設備の配置断面図をFig. 5.3-2に、水力照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能の関係(オンパワー方式照射日数決定用)をFig. 5.3-3に、垂直照射孔における照射日数・冷却日数と比放射能の関係(オンパワー方式照射日数決定用)をFig. 5.3-4に、垂直照射孔における照射日数・冷却日数と比放射能の関係(運転計画変更方式照射日数決定用)をFig. 5.3-5に、<sup>99</sup>Mo製造方式別出荷スケジュールをFig. 5.3-6に示す。

### 5.4 オンパワー方式による<sup>99</sup>Mo製造の検討

オンパワー方式は、原子炉を停止せずに<sup>99</sup>Moが製造できるので、他の照射利用者や実験者への利用日数減少などの影響がなく、既存の26日運転サイクルが実施できる。また、<sup>99</sup>Mo製造に関しても上部遮へい体を閉止のまま照射できるため、試料の挿入、取り出しに要する時間も短時間で出来ることから、半減期66.9時間と<sup>99</sup>Moの放射能減衰との兼ね合いからも利点が多い。

一方、現原子炉設置許可では、原子炉運転中に炉心内の照射利用設備への試料挿入、取り出しは行わないこととなっている。ただし、反応度制限値（反応度添加率）の面から考えると<sup>98</sup>Moの挿入、<sup>99</sup>Moの取り出しでは、反応度制限に影響ないことを計算により確認しているため、原子炉の安全上問題ではない。実用化の目処が立った時には、運転中の取り出しに係る原子炉設置許可変更の許認可申請が必要となる。この他、照射装置の設計、製作、据付等、時間と経費を費やすこととなる。

1 サイクルの照射時間は、照射済 Mo キャプセルの取り出し、RI 製造棟への輸送、Mo ペレット処理等の作業時間を考慮し、現状の運転日程の中で土曜日正午から逆算した日程を選択し、木曜 9:00～翌週木曜 9:00 までの 7 日間(168h)とした。また 7 日間照射時の比放射能は、Fig. 5.3-4 垂直照射孔における照射日数・冷却日数と比放射能の関係（オンパワー方式照射日数決定用）で示すように、連続 26 日運転時の比放射能曲線から最大値の約 83%値と高い値を示すことから、7 日間照射日数と定めた。7 日間照射を繰り返すことにより、1 サイクル内に 3 回の試料供給が可能となる。照射孔は、RG 孔で照射した計算を行う。

オンパワー方式は、水力照射設備による照射・製造の検討、<sup>99</sup>Mo 照射・製造用取扱装置による照射・製造の検討及び配管内移送装置による照射・製造の検討の 3 方式について検討した。

#### 5.4.1 水力照射設備による照射・製造の検討

水力照射設備は重水領域であり、原子炉運転中の試料挿入、取り出しは反応度制限値（ $7.3 \times 10^{-4} \Delta k/k$ ）以下であれば良い。さらに、既存設備を使用するため JRR-3 での新たな設備投資が必要ない。照射条件は、以下のとおり。

- (1) MoO<sub>3</sub> ペレット密度：4.60g/cm<sup>3</sup>（焼結密度：90～95%TD）
- (2) MoO<sub>3</sub> ペレット寸法：直径 19.8 mm、高さ 12.5 mm
- (3) MoO<sub>3</sub> ペレット数量：8 個/キャプセル
- (4) MoO<sub>3</sub> ペレット重量：90g/キャプセル
- (5) キャプセル数：6 個/HR-1, HR-2
- (6) 照射設備：HR-1（上段、中段、下段）及び HR-2（上段、中段、下段）
- (7) 照射時間：7 日間（168h）/キャプセル
- (8) 指定検定日までの冷却時間：51 時間

#### 5.4.2 <sup>99</sup>Mo 照射用取扱装置による照射・製造の検討

上部遮へい体上は、SI-1 孔上にシリコン照射を用途とする均一照射設備が設置してあるため、耐荷重を考慮して、SI-1 孔と対角にある RG-3 孔上に Mo 製造用取扱装置を設置する検討を行う。

<sup>99</sup>Mo 照射用取扱装置は、JRR-2 で使用した実績のあるハンドリングキャスクを原型とした装置 (Fig. 3.2-3 参照) とする。総重量は、上部遮へい体の耐荷重を考慮して 12 トン以下とする。JRR-3 <sup>99</sup>Mo 照射用取扱装置概略図を Fig. 5.4-1 に示す。

<sup>99</sup>Mo 照射用取扱装置は、炉頂の上部遮へい体上に設置する <sup>99</sup>Mo 照射用取扱装置本体及び台座、制御盤並びに吊具が対象構成物となる。原子炉プール内の案内管及び案内管スパーサーは既設の上段及び下段支持クランプにより固定する構造とし、垂直照射孔（RG-3）に接続する。<sup>99</sup>Mo 照射用取扱装置による <sup>99</sup>Mo 照射方法概念図を Fig. 5.4-2 に示す。

キャプセルを3本収納したバスケットは、上昇・下降の速度が可変できる昇降駆動装置により、RG-3孔上部に設置した案内管内を通過し照射を行う。所定時間照射後、RG-3孔から引き上げ、プール内でバスケットやキャプセルに使用しているアルミニウム合金の放射エネルギー減衰のため一時的に冷却する。その後、 $^{99}\text{Mo}$ 照射用取扱装置本体内に収納し、そのまま輸送容器として運搬するか、又は垂直キャスクに移し替え後にRI製造棟まで運搬する方法がある。

JRR-3原子炉設置許可の照射利用設備の設計方針は、炉心内の照射利用設備では、原子炉運転中に試料の挿入、取り出しは行わない事となっている。従って、本装置を使用するには、炉設置許可の変更申請が必要となる。なお、一時的に原子炉を停止して試料の挿入、取り出しを行う場合には、この限りでない。照射条件は、以下のとおり。

- (1)  $\text{MoO}_3$ ペレット密度：4.60g/cm<sup>3</sup>（焼結密度：90～95%TD）
- (2)  $\text{MoO}_3$ ペレット寸法：直径27.8mm、高さ12.5mm
- (3)  $\text{MoO}_3$ ペレット数量：9個/キャプセル
- (4)  $\text{MoO}_3$ ペレット重量：318.65g/キャプセル
- (5) キャプセル数：3個/バスケット
- (6) 照射設備：RG-3
- (7) 照射時間：7日間（168h）/バスケット
- (8) 指定検定日までの冷却時間：51時間

#### 5.4.3 配管内移送装置照射による製造の検討

配管内移送装置を利用した照射設備は、炉室詰替セルからSFプール、カナルを經由し、RG-4照射孔まで配管を敷設し、炉室詰替セル内に設置した $^{99}\text{Mo}$ 取扱装置により、試料の挿入、取り出し操作を行うものである。

炉室詰替セル壁面、SFプール及びカナル壁面には、予備穴が空けられており、閉止板でカバーされている。この予備穴に配管を敷設する。配管内移送装置は、試料の移送駆動装置、ステンレス製照射配管、試料詰替装置から構成される。

照射孔上部には、 $^{99}\text{Mo}$ 試料が安全に照射孔に挿入、取り出しが出来る様にするための案内管を設置する。案内管は、燃料交換等の作業に支障を来す場合には、原子炉上面からトング等にて取り外し、移動出来る構造とする。

$^{99}\text{Mo}$ ペレットを収納したキャプセルは、キャプセル移送装置により、挿入及び取り出しの速度を調節しながら反応度への影響を考慮して照射を行う。照射後は、原子炉詰替セル上部にセットした垂直キャスク内に照射済キャプセルを吊り上げ、RI製造棟まで運搬する。また、もう一つの方法としては、原子炉セル内の既存水力照射設備転送機を改造し、本照射キャプセルを単体に分解後、実験利用棟詰替セル経由でRI製造棟に転送することも可能である。この方法により、短時間でRI製造棟に移送することが可能となる。

JRR-3原子炉設置許可の照射利用設備の設計方針は、炉心内の照射利用設備では、原子炉運転中に試料の挿入、取り出しは行わない事となっている。従って、本装置を使用するには、炉設置許可の変更申請が必要となる。なお、一時的に原子炉を停止して試料の挿入、取り出しを行う場合には、この限りでない。

JRR-3配管内移送装置の配管敷設平面図をFig. 5.4-3に、 $^{99}\text{Mo}$ 照射用配管内移送装置による照射方法概念図をFig. 5.4-4に示す。照射条件は、以下のとおり。

- (1) MoO<sub>3</sub>ペレット密度：4.60g/cm<sup>3</sup>（焼結密度：90～95%TD）
- (2) MoO<sub>3</sub>ペレット寸法：直径27.8mm、高さ12.5mm
- (3) MoO<sub>3</sub>ペレット数量：9個/キャプセル
- (4) MoO<sub>3</sub>ペレット重量：318.65g/キャプセル
- (5) キャプセル数：3個
- (6) 照射設備：RG-4
- (7) 照射時間：7日間（168h）
- (8) 指定検定日までの冷却時間：51時間

## 5.5 JRR-3 運転計画変更方式による<sup>99</sup>Mo製造の検討

運転計画変更方式は、原子炉停止中に試料の出し入れを行い、反応度測定後に原子炉を起動する。キャプセルに入れた試料は、バスケットに挿入して照射孔に手動で挿入する。原子炉運転中は、試料の出し入れは出来ないため、1サイクル照射となる。運転計画変更方式による<sup>99</sup>Moの製造は、試料取り出し及び挿入のために原子炉を一端停止する必要がある。このため、現状の26日運転パターンは、<sup>99</sup>Mo供給が1カ月に1回となり、また、<sup>92</sup>Nb（半減期1.6E7年）、<sup>93</sup>Zr（半減期1.53E6年）など長半減期核種の不純物が生成されることから、運転時間を短縮する運転計画見直しを検討した。検討にあたっては、次の3条件を基本に検討した。

- ① <sup>99</sup>Mo比放射能が最大値の70%以上。
- ② 1年間の運転時間は、現状運転時間と比べ出来る限り短縮しない。
- ③ VT孔、RG孔及びBR孔既存利用者の利用率を考慮した照射孔を選択する。

比放射能は、Fig. 5.3-5 垂直照射孔における照射日数・冷却日数と比放射能の関係（運転計画変更方式照射日数決定用）で示すように、連続26日運転時の比放射能曲線から最大値の約90%値の9日間を照射日数と定め、1年間の運転日数及び利用率を含め総合的に検討し採用した9日間照射方式について紹介する。

1サイクルの照射時間は、原子炉停止後、照射済Moキャプセルの取り出し、RI製造棟への輸送、Moペレット処理等の作業時間を考慮し、土曜日正午から逆算した日程を選択し、月曜15:00～翌週水曜16:30までの9日間(217h)とした。照射孔は、VT孔で照射した計算を行った。

### 5.5.1 9日間照射による検討

最適照射時間の検討については、照射において週平均の放射エネルギーを稼ぐには短い照射インターバルで行うほうが良いが、比放射能が低下する。逆に高い比放射能を得るために、長い照射を行うと、照射回数が少なくなるため、出荷する週平均の放射エネルギーが低くなる。こうしたことから比放射能と週平均出荷放射エネルギーのバランスを考慮することによって、最適な照射時間を求めた。

決定した照射時間は、既存運転の26日間運転を2分割し、10日間連続運転後、4日間停止後のパターンを繰り返す方式とした。これは、最高比放射能の約90%値にあたる照射日数9日間(217h)であり、1サイクル内に2回の試料供給を可能にする。しかし、年間運転日数は、現状方式と比べて、42日（7サイクル換算）減ることとなる。

<sup>99</sup>Mo製造方式別出荷スケジュールはFig. 5.3-5に示してあるので参照のこと。照射条件は、以下のとおり。

- (1) MoO<sub>3</sub>ペレット密度：4.60g/cm<sup>3</sup>（焼結密度：90～95%TD）
- (2) MoO<sub>3</sub>ペレット寸法：直径27.8mm、高さ12.5mm
- (3) MoO<sub>3</sub>ペレット数量：9個/キャプセル
- (4) MoO<sub>3</sub>ペレット重量：318.65g/キャプセル
- (5) キャプセル数：3個
- (6) 照射設備：VT-1、RG-1～RG-4、BR-1～BR-4
- (7) 照射キャプセル数：4個/バスケット
- (8) 照射時間：9日間(217h) /バスケット
- (9) 指定検定日までの冷却時間：67.5時間

## 5.6 <sup>99</sup>Mo 生成量の計算結果

オンパワー方式及び運転計画変更方式による検討結果を Table 5.6-1 に示す。

解析計算結果と照射試験データの検証は、2002年(平成14年)2月15日に水力照射設備(HR-1)において実施した照射試験結果と比較した。照射条件は、JRR-3 水力照射設備(HR-1)下段にて、MoO<sub>3</sub>ペレット密度3.4g/cm<sup>3</sup>、ペレット重量1gを6時間照射した。その結果、照射直後の照射試験結果は、<sup>99</sup>Mo比放射能が1.5GBq/g.Mo(0.041Ci/g.Mo)、生成放射能は0.99GBq/MoO<sub>3</sub>.g(26.7mCi/MoO<sub>3</sub>.g)、それに対し解析計算結果は、比放射能が1.3GBq/g.Mo(0.036Ci/g.Mo)、生成放射能は0.90GBq/MoO<sub>3</sub>.g(24.3mCi/MoO<sub>3</sub>.g)でありほぼ一致している事が確認できた。

5.4.1項で検討した水力照射設備による検討結果は、水力照射設備が重水タンク領域にあるため、熱外中性子が $1.7 \times 10^{16}$  n/m<sup>2</sup>・secと低いため、照射直後におけるキャプセル2個の平均比放射能がHR-1で15.5GBq/g.Mo(0.42Ci/g.Mo)、HR-2で13.4GBq/g.Mo(0.36Ci/g.Mo)と非常に低く、生成放射能はHR-1で2.8TBq(75Ci)、HR-2で2.4TBq(65Ci)であり、目標値に及ばない事が判明した。

5.4.2項の<sup>99</sup>Mo照射用取扱装置照射による検討、5.4.3項の配管内移送装置照射による検討及び5.5項のJRR-3運転計画変更方式による<sup>99</sup>Mo生成の検討結果は、JRR-3運転計画変更方式による9日間照射のVT-1孔が、1サイクル(5週間)あたりの最大製造量を得たケースである。指定検定日(照射67.5時間後)で比放射能は77.0GBq/g.Mo(2.08Ci/g.Mo)、生産量は49.0TBq(1,324Ci)である。この方式の結果は、製造目標値である比放射能及び生成放射能を満足するものである。

また、オンパワー方式のRG-3孔照射は、指定検定日(照射51時間後)で比放射能は49.1GBq/g.Mo(1.33Ci/g.Mo)、生成量は31.3TBq(845Ci)であり、製造目標値の生成放射能である1000Ci/週に達しないが、1サイクル5週間内に3回の<sup>99</sup>Moが供給可能であり、安定供給に適した方式である。

これらの1サイクルあたりの生成量は、運転計画変更方式では、98TBq(2,648Ci)、オンパワー方式では、93.9TBq(2,536Ci)となり、両方式ともに同程度の製造・供給が可能である。

HR-1における中性子エネルギースペクトルをFig.5.6-1に、HR-2における中性子エネルギースペクトルをFig.5.6-2に、VT-1における中性子エネルギースペクトルをFig.5.6-3に、RG-1における中性子エネルギースペクトルをFig.5.6-4に、BR-1における中性子エネルギースペクトルをFig.5.6-5に、<sup>99</sup>Moの共鳴吸収反応断面積をFig.5.6-6に、9日間照射(照射直後)に

におけるキャプセル位置に対する  $^{99}\text{Mo}$  の比放射能 (VT-1) を Fig. 5.6-7 に、9 日間照射 (照射直後) におけるキャプセル位置に対する  $^{99}\text{Mo}$  の比放射能 (RG-1) を Fig. 5.6-8 に、9 日間照射 (照射直後) におけるキャプセル位置に対する  $^{99}\text{Mo}$  の比放射能 (BR-1) を Fig. 5.6-9 に示す。

この Fig. 5.6-7 から Fig. 5.6-9 の 9 日間照射 (照射直後) におけるキャプセル位置に対する  $^{99}\text{Mo}$  の比放射能グラフから分かるように、キャプセル D の位置は、フラックスが低く比放射能が低下するため、本報では、キャプセル A、B、C 位置の 3 キャプセルによる平均比放射能値を用いた。

現状の運転計画を変更せずに実施できる 26 日間照射は、オンパワー方式及び運転計画変更方式と比較して VT-1 孔の場合、照射 67.5 時間後の比放射能は 85.6 GBq/g. Mo (2.31 Ci/g. Mo)、生成量は 54.5 TBq (1,473 Ci) と高くなるが、1 サイクル (5 週間) あたりの製造・供給量は、1 回の製造・供給となり最低となる。また、照射 67.5 時間後の設定は、原子炉停止後の翌日の土曜日、日曜日に運搬作業等を実施する場合であり、土日を除き、翌週月曜日からの運搬等の作業を実施した場合の冷却時間である 115.5 時間後の比放射能は 51.7 GBq/g. Mo (1.4 Ci/g. Mo)、生成量は 32.9 TBq (890 Ci) と低下する。さらに Fig. 5.6-10 に示す  $\text{MoO}_3$  ペレット中の不純物量により生成される不純物核種のグラフから分かるように、 $^{93}\text{Zr}$  (半減期 1.53E6 年) の長半減期核種や  $^{65}\text{Zn}$  (半減期 6.02 時間)、 $^{69\text{m}}\text{Zn}$  (半減期 14 時間) 等の生成量の高い核種が生成される。(ORIGEN-JR<sup>14</sup>) で解析)

## 6. まとめ

Mo を製造している世界の主要原子炉 5 基は、高濃縮ウランの核分裂反応により  $^{99}\text{Mo}$  を製造する核分裂法と呼ばれる方法で製造する原子炉で、いずれも 40 年以上経過し高経年化が進んでいる。なかでも世界需要充当率が約 38% のカナダ原子力公社が有する NRU は、Mo 生産ライセンスの有効期限である 2011 年 (平成 23 年) までの失効が迫り、確実に更新されるかは定かではない。その様な中で、2009 年 (平成 21 年) 5 月には、重水漏洩事故が起り停止してしまった。

この様な情勢のなか、 $^{99}\text{Mo}$  の安定供給は世界各国共通の課題であり、特に、世界の全生産量の約 14% を消費している我が国にとって、必要不可欠な量の  $^{99}\text{Mo}$  を安定的に確保するための国産化は喫緊の課題であると同時に、国際的な責任を果たす観点でも重要である。

これらの逼迫した状況を鑑み、原子力機構は、2011 年度 (平成 23 年度) から再起動予定の JMTR と共に現在稼働している JRR-3 とでお互い補完し合いながら  $^{99}\text{Mo}$  製造を行う計画がある。これら原子炉による  $^{99}\text{Mo}$  製造方式は、 $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$  反応を利用するものがある。

検討目的は、約 1,000Ci (37TBq) の Mo を製造する方法を導き出すことであり、以下の 4 つの条件を設定した。

- (1) 土曜日正午引き渡し日と設定し、定期的 (毎週又は隔週) に  $^{99}\text{Mo}$  を供給する。
- (2) 既存運転日数を極力減らさない。
- (3) 1 Ci/g. Mo 以上の比放射能  $^{99}\text{Mo}$  を生産する。
- (4) 予算・工期を極力少なくする。

これら 4 条件をもとに運転計画変更方式及びオンパワー方式の二つの方式について具体的検討を行った。検討条件は、2 方式ともに Mo 引き渡し日を土曜日正午と設定した。

運転計画変更方式は、既存運転の26日間連続運転を2分割し、10日間連続運転後、4日間停止のパターンを繰り返す方式で、これは、1サイクル内に2回の<sup>99</sup>Mo供給が可能。

オンパワー方式は、現状の運転日程の中で新設Mo照射取扱装置等を用いて7日間照射を繰り返すことにより、1サイクル内に3回の<sup>99</sup>Mo供給が可能となる。

<sup>99</sup>Moの製造及び製造設備の選択について検討し、次の結果を得た。

<sup>99</sup>Moの指定検定日における生成量及び比放射エネルギーの計算結果は、比放射エネルギーが、運転計画変更方式ではVT-1、9日照射で77.0 GBq/g.Mo (2.08 Ci/g.Mo)、オンパワー方式ではRG-3、7日照射で49.1 GBq/g.Mo (1.33 Ci/g.Mo)。指定検定日における、照射時間あたりの生産量は、運転計画変更方式では49.0 TBq (1,324 Ci)、オンパワー方式では31.3 TBq (845 Ci)となった。

これらの1サイクルあたりの生産量は、運転計画変更方式では98TBq (2,648 Ci)となり、オンパワー方式では93.9TBq (2,536 Ci)となった。

以上のことから、どちらの方式を採用したとしても社会に貢献できる製造量確保の道筋を立てることが出来る。

照射後工程に使用するRI製造棟は、RIの製造や技術開発等を目的に建てられたもので、現在、<sup>192</sup>Irや金グレインなどの医療用RIなどを扱っている。現在のRI使用能力は、使用数量が少ないこともあり、許可量を減らしている。Mo製造には、<sup>99</sup>Mo溶解や<sup>99m</sup>Tcを抽出するためのセルを用意する必要がある。このセル設置予定の309号室は、過去に試験的にMoを製造した時に使用したセルが設置されていた部屋で、重量物に対する床が耐荷重構造となっており、セル設置に際する耐震補強は必要ない。これらのセル設置に伴う整備を行うことにより、Moの溶液化や<sup>99m</sup>Tc抽出が可能となる。

今後実用化に向けた課題として、照射後工程に使用する施設であるRI製造棟の整備検討、PZCの実用化又は他方法の開発検討、課題について付録に記述した。

## 謝辞

本報告を作成するにあたり、株式会社千代田テクノル 山林尚道氏をはじめ、研究炉技術課 田村格良氏には貴重なご教示をいただき、研究炉加速器管理部、山下清信部長、楠剛次長には、熱心なご指導、ご鞭撻をいただきました。また、佐川尚司研究炉技術課長、市村茂樹研究炉利用課長代理にも、多くの助言をいただきました。ここに深く感謝の意を表します。

〔参考文献〕

- 1) 社団法人日本アイソトープ協会 発行 「アイソトープ等流通統計 2009」
- 2) 日本原子力研究所アイソトープ部：「アイソトープ製造 35 年誌」平成 7 年 3 月 31 日
- 3) 四方英治、他 1 名：日本原子力学会誌「核医学における Mo-99 の利用とその製造」Vol. 26, No.8 (1984) P28
- 4) Nucl. Eng. Int., July 2008
- 5) 日本学術会議 基礎医学委員会・総合工学委員会合同・放射線・放射能の利用に伴う課題検討分科会：「提言 我が国における放射性同位元素の安定供給体制について」平成 20 年 7 月 24 日
- 6) 「医療用 RI の供給確保に関する OECD/NEA 国際会議」平成 21 年 1 月 29 日～30 日、パリ、2007 Global Mo-99/Tc-99m Demand(CANADA プレゼン資料より)
- 7) 飯村光一 他 7 名：「JMTR を用いた <sup>99</sup>Mo 製造設備の概念検討」JAEA-Technology 2008-035(2008)
- 8) 日本原子力研究所研究炉管理部：「JRR-3 改造炉とその利用の将来展望」JAERI-M 85-149(1985)
- 9) Neutron cross sections, Vol.1, (3rd Ed.), BNL-325, (1973)
- 10) “Handbook on Nuclear Activation Cross-Sections”, Tech. Rep. Ser., No.156, (1974), IAEA
- 11) 黒沢正義、他 1 名：「Mo-99 の(n,  $\gamma$ )法による生成量の評価」日本原子力学会誌 Vol. 21, No.6(1979)
- 12) Shibata K., et al. : Japanese evaluated nuclear data library version 3 revision-3: JENDL-3.3” J. Nucl. Sci. Technol., 39, p.1125-1136(2002)
- 13) Nakagawa T., et al. : Japanese evaluated nuclear data library version 3 revision-2: JENDL-3.2” J. Nucl. Sci. Technol., 32, p.1259-1271(1995)
- 14) Kinji KOYAMA, et al : “ORIGEN-JR :A Computer Code for Calculating Radiation Source and Analyzing Nuclide Transmutations” . JAERI-M 8229(1979)

Table 1.1 原子炉による  $^{99}\text{Mo}$  製造法

	核反応 (中性子束密度)	ターゲット	$^{99}\text{Mo}$ 生成量 (比放射能)	製造プロセスの難易 度
原子炉	$^{235}\text{U}(\text{n}, \text{f})^{99}\text{Mo}$ ( $10^{17}\sim 10^{18} \text{ s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ )	HEU (LEU) 高濃縮 $^{235}\text{U}$	$\sim 370$ (TBq/g $\cdot$ Mo)	複雑
	$^{99}\text{Mo}(\text{n}, \gamma)^{98}\text{Mo}$ ( $2 \times 10^{18} \text{ s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ )	Mo, $\text{MoO}_3$ ( $^{98}\text{Mo}$ 天然存在比)	$\sim 74$ (GBq/g $\cdot$ Mo)	非常に簡単
	$^{99}\text{Mo}(\text{n}, \gamma)^{98}\text{Mo}$ ( $2 \times 10^{18} \text{ s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ )	Mo, $\text{MoO}_3$ ( $^{98}\text{Mo}$ 濃縮)	$\sim 296$ (GBq/g $\cdot$ Mo)	簡単
	$^{99}\text{Mo}(\text{n}, \gamma)$ 反跳 $^{98}\text{Mo}$ ( $10^{17}\sim 10^{18} \text{ s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ )	Mo 化合物	期待値 $37\sim 370$ (GBq/g $\cdot$ Mo)	化学処理複雑

出典：第 46 回アイソトープ・放射線研究発表会 2009 年 7 月 1 日  
山林 尚道 (株)千代田テクノル

Table 2.1  $^{99}\text{Mo}$  を製造している世界の主な原子炉一覧

国名	研究機関名	原子炉 の名称	熱出力 (MW)	初臨 界年	ターゲット ウラン濃縮度	供給業者	世界需要 充当率
カナダ	カナダ原子力公社 (AECL)	NRU	135	1957	93%	MDS-Nordion	38%
オランダ	オランダエネルギー研究 機構 (NRG)	HFR	45	1961	93%	Covidien, IRE	16% 10%
ベルギー	ベルギー原子力研究セン ター (SCK $\cdot$ CEN)	BR-2	100	1961	74 $\sim$ 93%	Covidien, IRE	10% 3%
フランス	フランス原子力庁 (CEA)	OSIRIS	70	1966	93%	IRE	3%
南アフリカ	南アフリカ原子力公社 (NECSA)	SAFARI-1	20	1965	36 $\sim$ 45%	NTP	15%
その他	OPAL, RA-3, RSG-GAS, HWRR-II, Dhruva 他						5%

(出典) Nuclear Engineering International July 2008 から和訳

Table 2.2 放射性医薬品としての非密封 RI の供給量

	核種	半減期	放射能 (MBq)	国産・輸入	主な検査項目
In vivo	F-18	110 分	21,973,190	国産	悪性腫瘍の診断
	Cr-51	27.7 日	1,536	輸入	循環血液量・循環赤血球量の測定
	Ga-67	3.26 日	7,207,822	国産	悪性腫瘍の診断
	Rb-81/Kr-81m(G)	4.57 時間	590,335	国産	局所肺血流検査
	Y-90	64 時間	155,400	輸入	悪性リンパ腫治療
	Mo-99/Tc(G)	65.9 時間	141,679,350	輸入	骨シンチグラフィ、心シンチグラフィ、脳腫瘍及び脳血管障害の診断
	Tc-99m	6.01 時間	307,304,295	輸入	
	In-111	2.81 日	169,312	国産	脳脊髄液腔シンチグラフィ
	I-123	13.3 時間	22,932,471	国産	局所脳血流シンチグラフィ、心筋シンチグラフィ
	I-131	8.02 日	11,721,540	輸入	甲状腺機能亢進症・甲状腺癌の治療
	Xe-133	5.24 日	2,762,790	輸入	局所肺換気機能の検査
	Tl-201	72.9 時間	21,688,845	国産	心筋シンチグラフィ
In vitro	Fe-59	44.5 日	3,818	輸入	血清中の総鉄結合能(TIBC)の測定
	I-125	59.4 日	31,874	輸入	腫瘍マーカー

(G)はジェネレータを表す

出典：放射性医薬品流通統計 2009 社団法人日本アイソトープ協会のデータ

日本学術会議 基礎医学委員会・総合工学委員会合同・放射線・放射能の利用に伴う課題検討分科会：「提言 我が国における放射性同位元素の安定供給体制について」平成 20 年 7 月 24 日 P18、表 A4 を基に作成

Table 5.1-1 水力照射設備及び垂直照射設備仕様

照射設備	HR-1	HR-2	VT-1	RG-1~4	BR-1~4
最大熱中性子束 (n/m <sup>2</sup> ・s)	9.6×10 <sup>17</sup>	9.8×10 <sup>17</sup>	3.0×10 <sup>18</sup>	2.0×10 <sup>18</sup>	2.0×10 <sup>18</sup>
最大速中性子束 (n/m <sup>2</sup> ・s)	1.7×10 <sup>16</sup>	1.4×10 <sup>16</sup>	2.0×10 <sup>18</sup>	1.0×10 <sup>18</sup>	1.0×10 <sup>18</sup>
試料重量(標準) (g)	最大 90	最大 90	最大 90	最大 90	最大 90g
試料寸法(mm)	φ約20×φ100	φ約20×φ100	φ約20×φ100	φ約20×φ100	φ約20×φ100
試料の発熱量(W)	200	200	600	600	600
キャプセル表面温度(°C)	≤100	≤100	≤100	≤100	≤100
輸送キャスクの最大取扱量 : <sup>60</sup> Co 相当生成量(Bq)	—	—	3.7×10 <sup>14</sup>	3.7×10 <sup>14</sup>	3.7×10 <sup>14</sup>
外径寸法(mm)	φ32×φ150	φ32×φ150	φ34×φ150	φ34×φ150	φ34×φ150
溶接方式	溶接方式、圧着方式、他	溶接方式、圧着方式、他	溶接方式	溶接方式	溶接方式
材質	アルミニウム合金	アルミニウム合金	アルミニウム合金	アルミニウム合金	アルミニウム合金
重量 g/個 (最大)	300	300	500	500	500
線出力密度 (W/cm)	—	—	≤900	≤900	≤900
発熱量 (最大)	3kW	3kW	70kW	70kW	70kW
挿入個数/1系統 (最大)	3個	3個	4個	4個	4個
照射時間	10分~1サイクル	10分~1サイクル	1サイクル~9サイクル	1サイクル~9サイクル	1サイクル~9サイクル

出典：研究炉利用ハンドブック（改訂第2版）平成11年 日本原子力研究所東海研究所 研究炉部

Table 5.1-2 三酸化モリブデンペレットの物性値

MoO <sub>3</sub> ペレットの特性	ペレット密度 昇華開始温度 線膨張係数  熱伝導率 *	3.25~3.4 g/cm <sup>3</sup> ~750°C 1.75×10 <sup>-5</sup> /°C (軸方向、平均値)  4.4×10 <sup>-5</sup> /°C (径方向、平均値)  K=2.07-2.05×10 <sup>-3</sup> T -4.64×10 <sup>-6</sup> T <sup>2</sup> +1.38×10 <sup>-8</sup> T <sup>3</sup> W/m·K
MoO <sub>3</sub> 物性値 (粉末)	分子量 <sup>98</sup> Mo 存在比 α相結晶 密度 融点 溶解度 電気伝導度 生成熱	143.95 (Mo 66.6%, O 33.3%) 23.75% 斜方晶系 4.692 g/cm <sup>3</sup> 780°C 融解 1~2 g/l H <sub>2</sub> O (pH 4.0~4.5) 誘電性 -745.7 kJ/mol

\* 60°C~300°C, T [°C] , ρ = 3.28 g/cm<sup>3</sup> のもの

出典：飯村光一 他7：「JMTR を用いた <sup>99</sup>Mo 製造設備の概念検討」 JAEA-Technology 2008-035  
P13 Table1 より

Table 5.1-3 照射による不純物同定結果

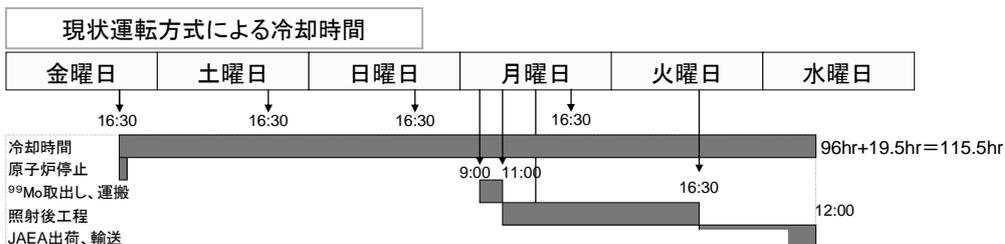
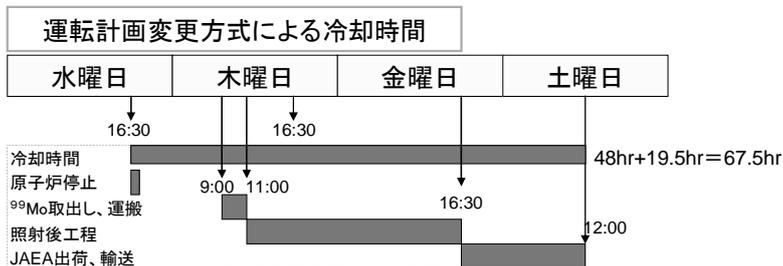
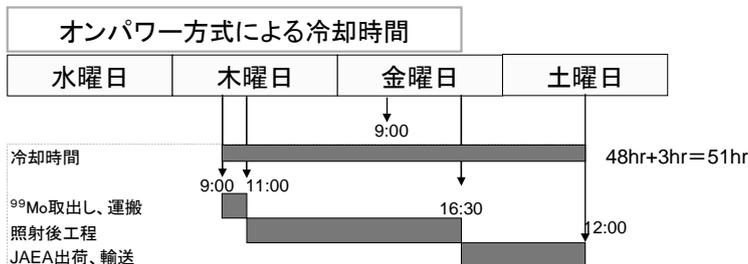
核種	半減期	<sup>99</sup> Mo との放射能比 ( $\times 10^{-11}$ )		
		8 日後	53 日後	409 日後
<sup>60</sup> Co	5.27y	—	5.4	2.9
<sup>65</sup> Zn	243.7d	—	6.0	41
<sup>86</sup> Rb	18.7d	—	3.6	—
<sup>92m</sup> Nb	10.15d	3100	190	—
<sup>95</sup> Zr	64.6d	—	9.0	39
<sup>95</sup> Nb	35.1d	—	15	580
<sup>134</sup> Cs	2.06y	—	5.4	21
<sup>182</sup> Ta	111d	—	6.0	36

出典：私信；JRR-2 インコア 3A 孔で 11 日間照射結果（1985 年 3 月）

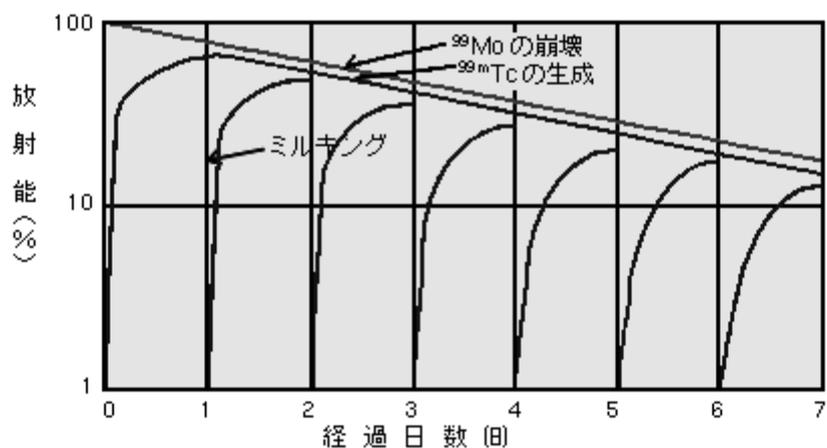
- W 含有量 1.3ppm 使用
- 照射場：JRR-2(3A)
- 照射日数：11 日
- 検出器：Ge(Li) 半導体
- ペレット形状：φ28×H10 (mm)、20g/個

Table 5.6-1 オンパワー方式及び運転計画変更方式による検討結果

方式	照射孔名	照射日数	冷却時間	比放射能 GBq / g. Mo (Ci / g. Mo)	1照射あたりの 生産量 TBq (Ci)	1サイクル あたりの生産量 TBq (Ci)	1照射孔 あたりの ペレット 重量	メリット	デメリット			
										照射直後		
										指定検定日		
オンパワー	HR-1	7日 (168hr)	0hr	15.5 (0.42)	2.8 (75)	8.4 (225)	269g	1. 3回/5We供給可能 2. 年間稼働時間の現状維持	1. 運転中による試料挿入、取出及び案内管常設は炉設置許可 2. 1孔のみでのMo製造 3. 予算、工期増大			
			51hr	9.4 (0.25)	1.7 (45)	5.0 (136)						
	HR-2	7日 (168hr)	0hr	13.4 (0.36)	2.4 (65)	7.2 (195)	269g					
			51hr	8.1 (0.22)	1.5 (39)	4.4 (118)						
	RG-3	7日 (168hr)	0hr	84.0 (2.27)	53.0 (1,445)	159 (4,335)	956g					
			51hr	49.1 (1.33)	31.3 (845)	93.9 (2,536)						
比較												
運転計画変更	VT-1	9日 (217hr)	0hr	156.3 (4.22)	99.5 (2,689)	199.0 (5,378)	956g	1. 高比放射能 2. 最小限予算 3. 工期が短い 5. 複数孔でMo製造可能	1. 年間稼働時間が減る(年間42日減) 2. 2回/5We供給可能			
			67.5hr	77.0 (2.08)	49.0 (1,324)	98.0 (2,648)						
	RG-1	9日 (217hr)	0hr	90.8 (2.45)	57.8 (1,562)	115.6 (3,124)	956g					
			67.5hr	44.7 (1.21)	28.5 (769)	56.9 (1,538)						
	BR-1	9日 (217hr)	0hr	80.9 (2.19)	51.5 (1,392)	103.0 (2,784)	956g					
			67.5hr	39.8 (1.08)	25.3 (685)	50.7 (1,370)						
現状運転	VT-1	25日 (600hr)	0hr	174.0 (4.70)	110.8 (2,994)	956g	備考					
			67.5hr	85.6 (2.31)	54.5 (1,473)		炉停止後、土日に作業を実施。 原子炉停止後、翌週月曜から作業。					
			115.5hr	51.7 (1.40)	32.9 (890)							
	RG-1	25日 (600hr)	0hr	101.1 (2.73)	64.4 (1,740)	956g	備考					
			67.5hr	49.8 (1.35)	31.7 (856)		炉停止後、土日に作業を実施。 原子炉停止後、翌週月曜から作業。					
			115.5hr	30.0 (0.81)	19.1 (517)							
	BR-1	25日 (600hr)	0hr	90.0 (2.43)	57.3 (1,549)	956g	備考					
			67.5hr	44.3 (1.20)	28.2 (763)		炉停止後、土日に作業を実施。 原子炉停止後、翌週月曜から作業。					
			115.5hr	26.8 (0.72)	17.0 (460)							



冷却時間タイムスケジュール



$^{99}\text{Mo}$  の崩壊に伴う  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の生成曲線

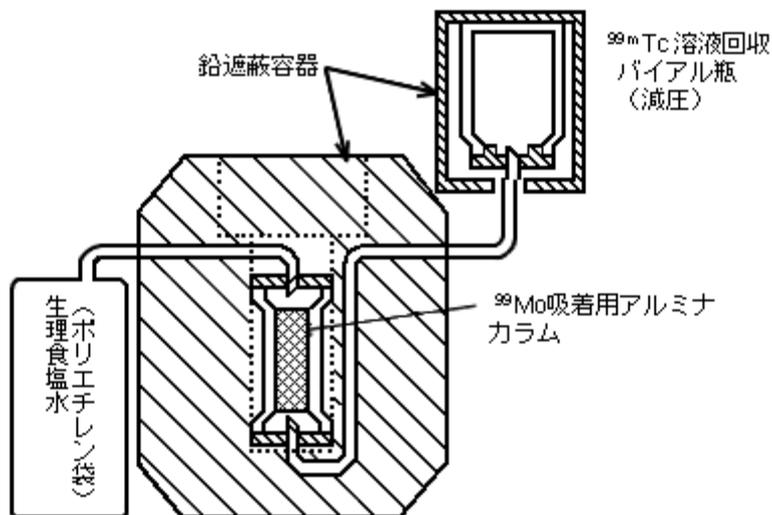
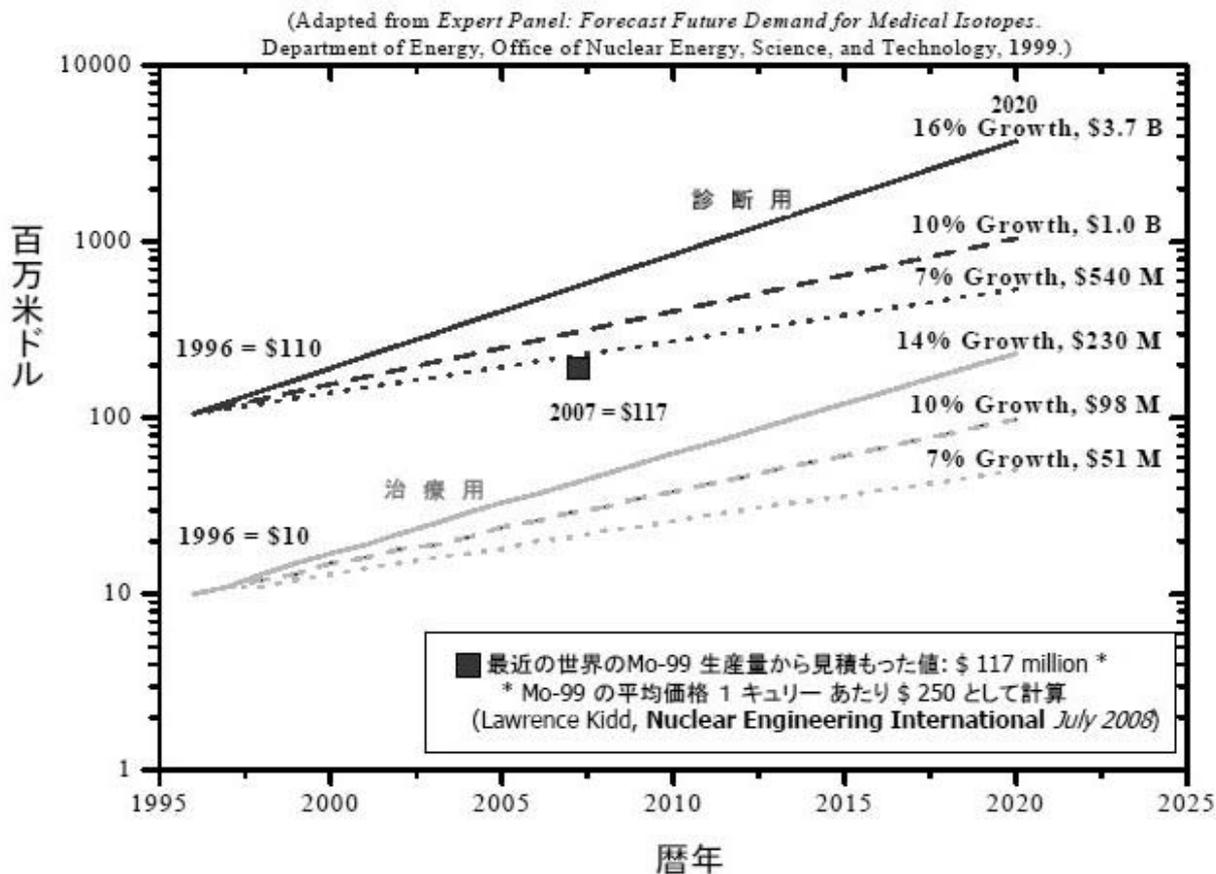


Fig.2.1  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  ジェネレータシステム

出典： 財団法人 日本アイソトープ協会  
 ATOMICA RI の化学的作用の応用原理(08-04-03-06)

## 世界の医用ラジオアイソトープ市場予測



出典：飯村光一 他 7：「JMTR を用いた  $^{99m}\text{Tc}$  製造設備の概念検討」JAEA-Technology 2008-035 P24 Fig.2 より

Fig.2.2  $^{99m}\text{Tc}$  についての需要予測

## Mo製造出荷に向けて

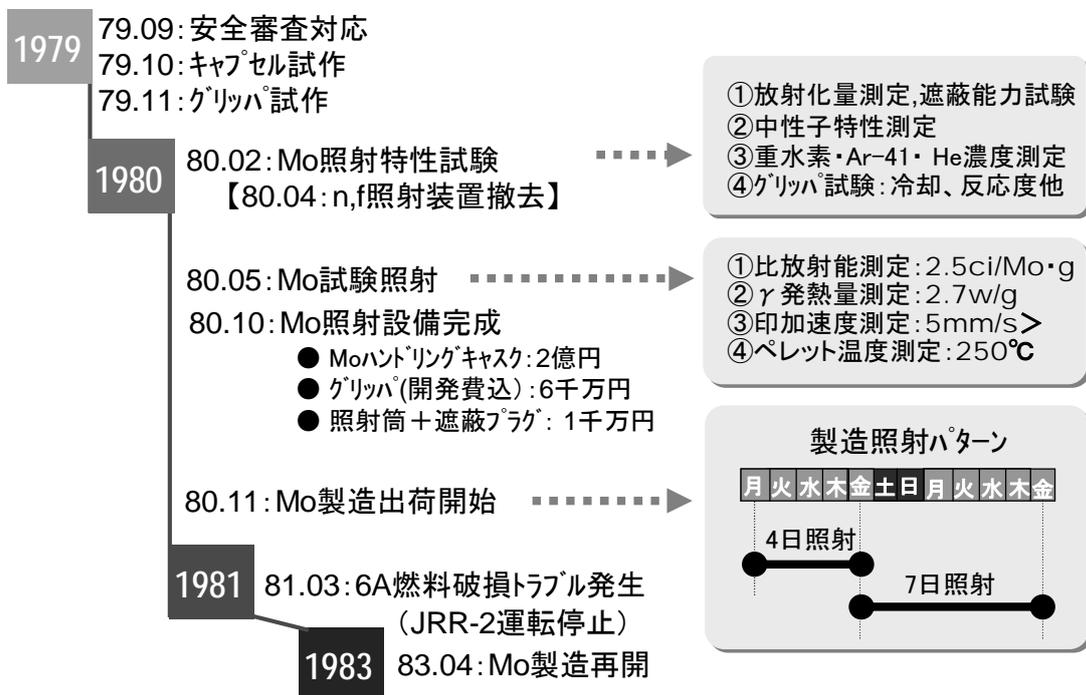


Fig.3.2-1 JRR-2による<sup>99</sup>Mo製造の歴史

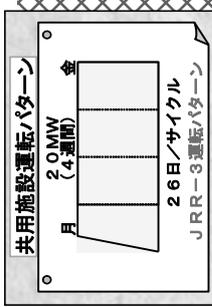
## 照射要件と照射場の選定



Fig.3.2-2 照射要件と照射場の選定



研究炉加速器管理部  
平成21年3月



原子炉起動時刻 : 11:00  
定格熱出力(20MW) : 15:00  
原子炉停止時刻 : 16:30

# JRR-3

## H21~H23年度運転計画(案)

方法	運転日数*1	運転パターン				
運転パターン 比較用 現状運転	1サイクル 26日 照射:25日 *2	第1週 月~日 試料挿入・取出し、 燃料交換等	第2週 月~日	第3週 月~日	第4週 月~日	第5週 月~日 炉心 冷却

\*1:運転日数は、起動~停止までの日数。\*2:照射日数は、定格出力20MW到達~停止までの日数。

年度	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
二十一年度	21-01	21-02	21-03						21-04	21-05	21-06	01
二十二年度	22-01	22-02	22-03	22-04	22-05	22-06	22-07					
二十三年度			23-01	23-02	23-03	23-04	23-05					

施設定期自主検査(20週) 官庁立会検査  
施設定期自主検査(32週) H21年度: 156日 H22年度: 182日 H23年度: 182日

Fig.4.1-1 JRR-3 H21~H23 年度運転計画(案)

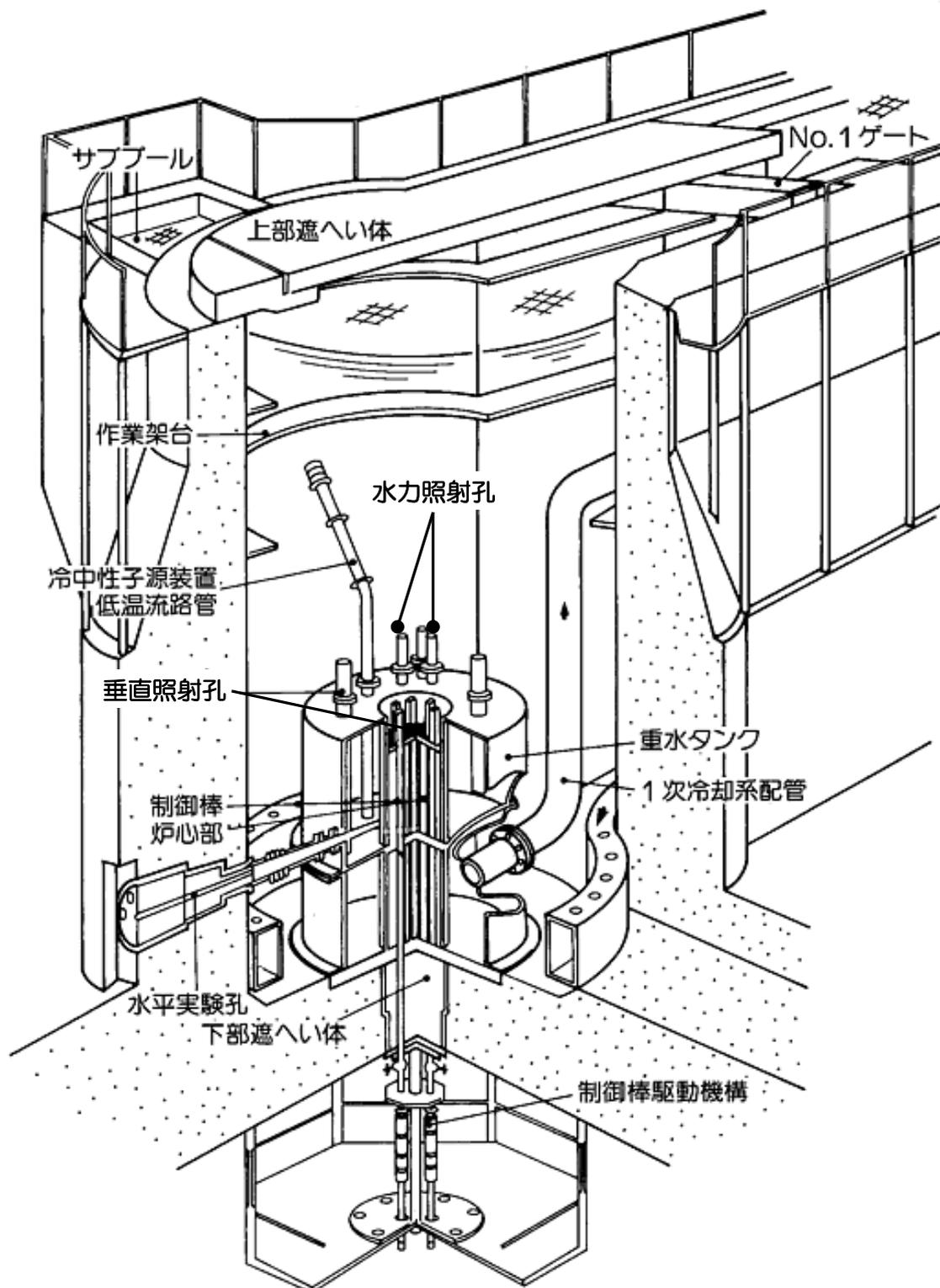
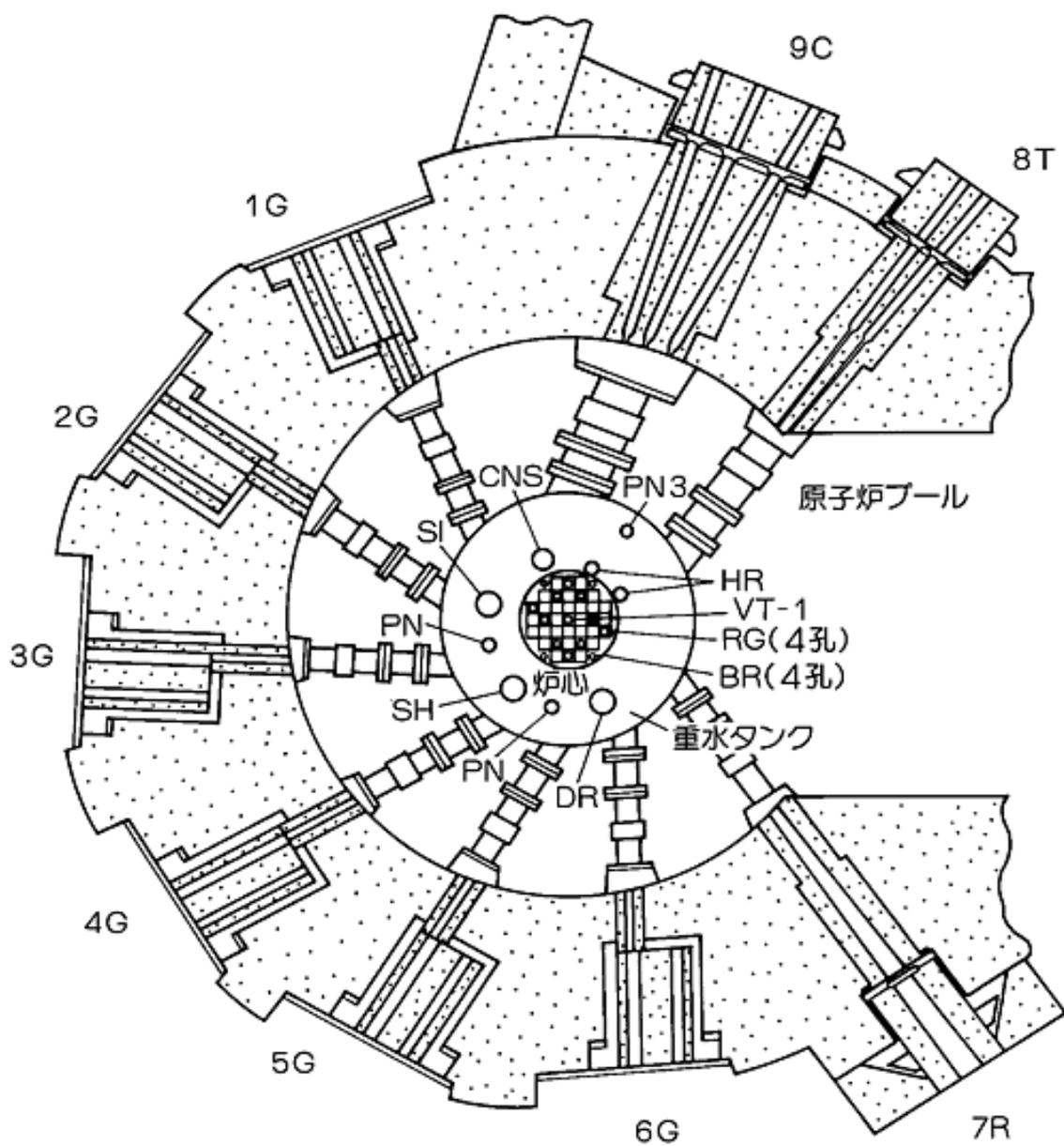
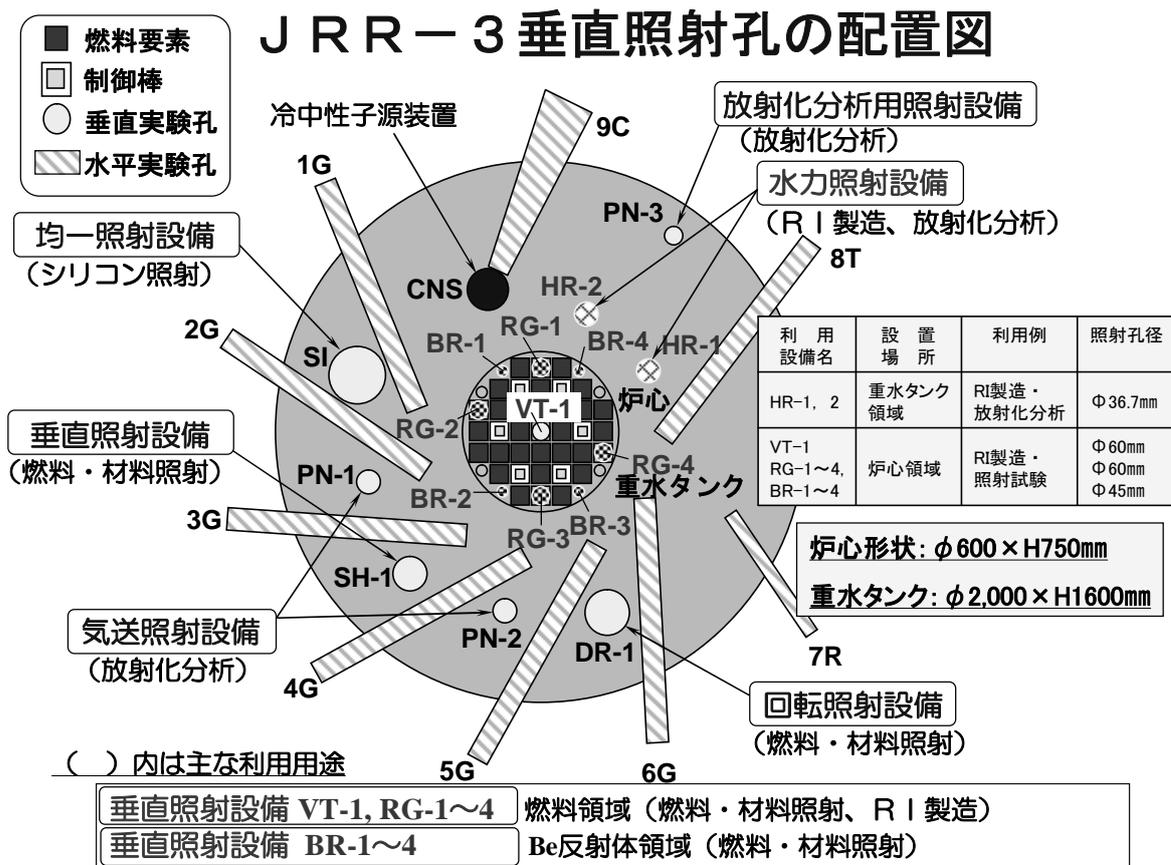


Fig.4.1-2 JRR-3 照射設備配置鳥瞰図



( 垂直実験孔 : HR, PN, PN3, SI, DR )  
 ( RG, VT-1, BR, SH )  
 水平実験孔 : 1G~6G, 7R, 8T, 9C )

Fig.4.1-3 JRR-3 照射利用設備平面図



### JRR-3 照射設備の特性一覧

照射設備	照射時間	照射キャプセル		熱中性子束 (Max.) (n/m <sup>2</sup> s)	速中性子束 (Max.) (n/m <sup>2</sup> s)	主な利用目的
		形状 (mm)	最大数			
水力照射設備 HR-1,2	10min to 1cycle	Φ32x150L	3	9.6x10 <sup>17</sup> 9.8x10 <sup>17</sup>	1.7x10 <sup>16</sup> 1.4x10 <sup>16</sup>	• RIの製造 • 中性子放射化分析
気送照射設備 PN-1,2	1min to 20min	Φ33x95L	2	5.2x10 <sup>17</sup> 4.7x10 <sup>17</sup>	1.2x10 <sup>15</sup> 1.1x10 <sup>15</sup>	• 中性子放射化分析
放射化分析用照射設備 PN-3	5sec to 20min	Φ17x30L	1	1.5x10 <sup>17</sup>	4.4x10 <sup>13</sup>	• 中性子放射化分析
均一照射設備 SI-1	1hr to 1cycle	—	6	2.0x10 <sup>17</sup>	—	• シリコン照射
回転照射設備 DR-1	1cycle ≤	Φ130x1000L Φ34x150L	1 24	3.0x10 <sup>17</sup>	—	• 大型試料の照射
垂直照射設備	VT-1	1cycle ≤	Φ55x900L Φ34x150L	1 4	3.0x10 <sup>18</sup> 2.0x10 <sup>18</sup>	• 照射試験 • RIの製造
	RG-1,2,3,4	1cycle ≤	Φ55x900L Φ34x150L	1 4	2.0x10 <sup>18</sup> 1.0x10 <sup>18</sup>	
	BR-1,2,3,4	1cycle ≤	Φ40x900L Φ34x150L	1 4	2.0x10 <sup>18</sup> 1.0x10 <sup>18</sup>	
	SH-1	1cycle ≤	Φ90x1000L Φ34x150L	1 12	4.0x10 <sup>17</sup>	

Fig.4.2-1 JRR-3 照射設備の配置平面図及び照射設備の特性一覧

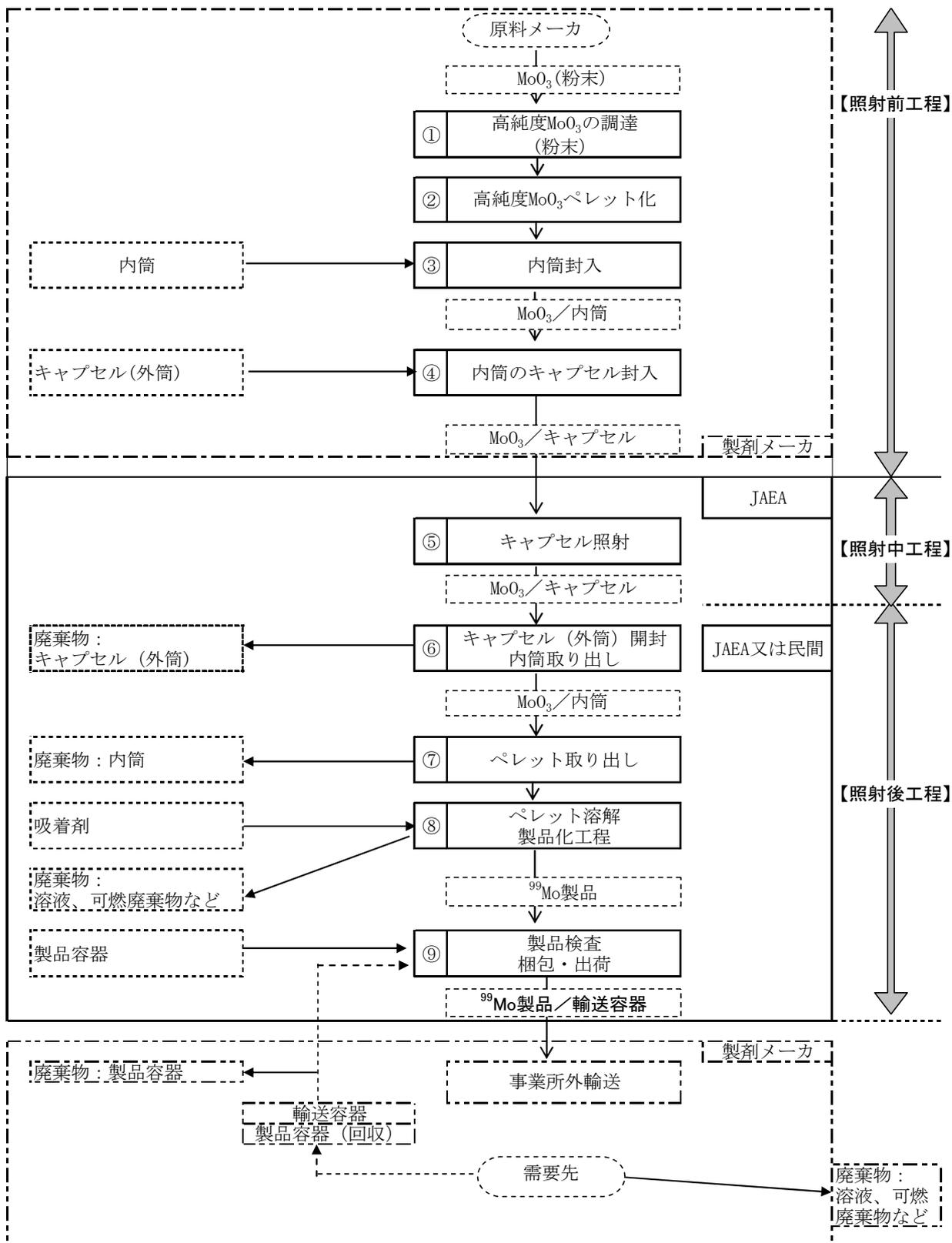
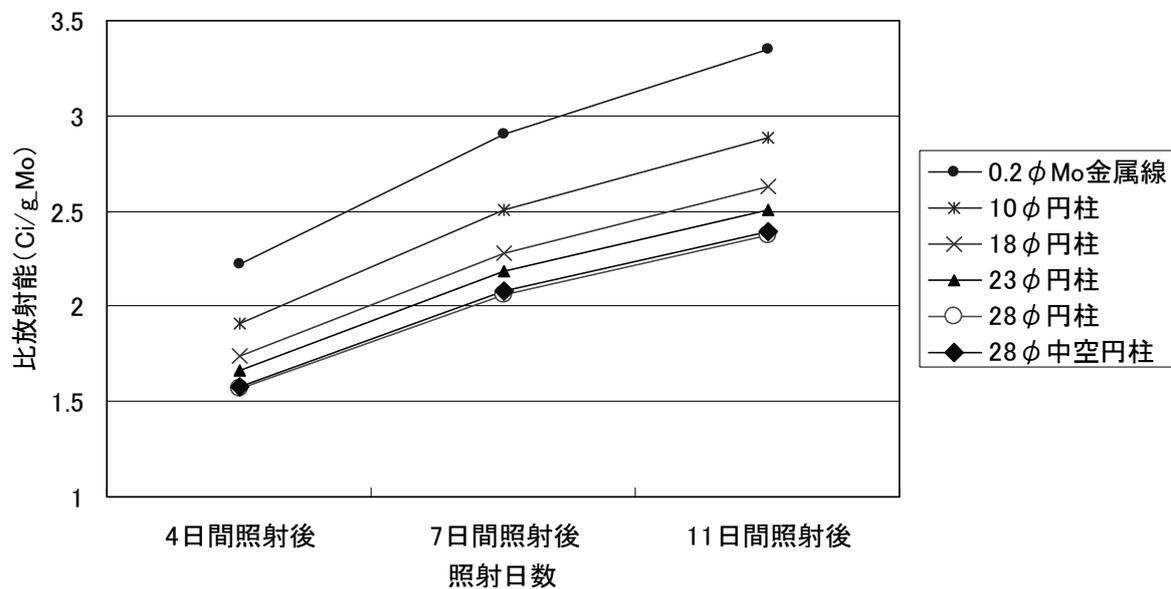


Fig.5.1-1  $^{99}\text{Mo}$  製造プロセス



出典：私信；JRR-2 インコア 3A 孔で 10kW、30 分間照射結果(10MW に換算) (1985 年 3 月)

Fig.5.1-2 MoO<sub>3</sub> ペレットの大きさと比放射能の関係

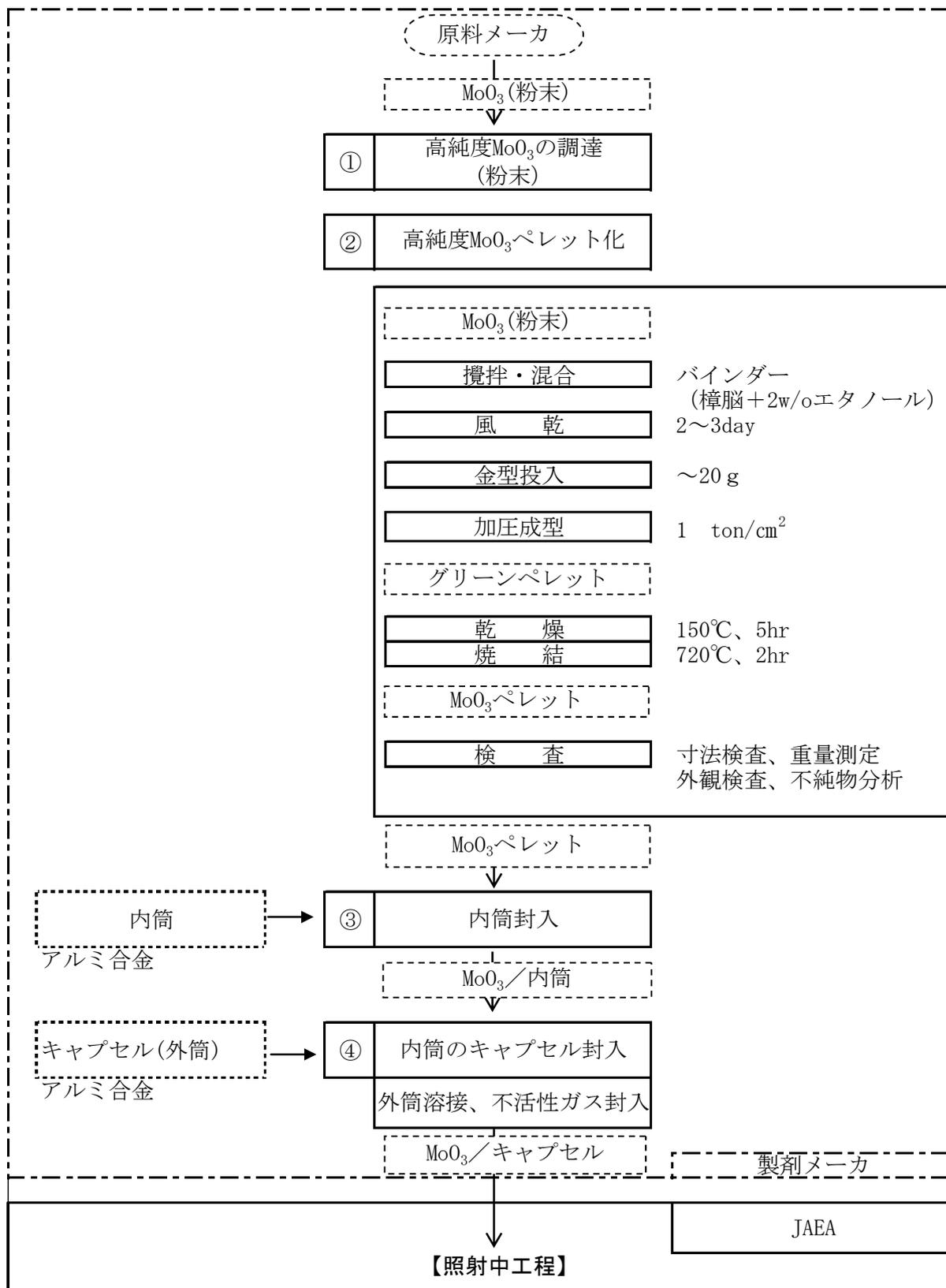
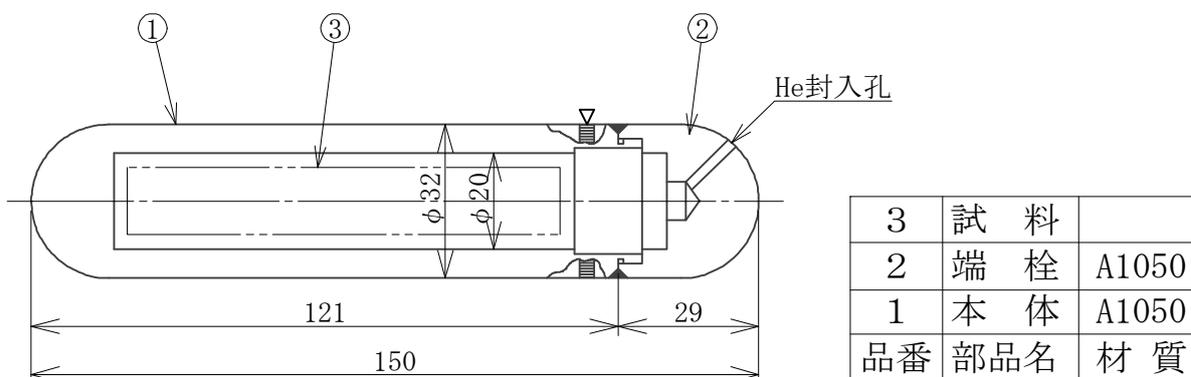
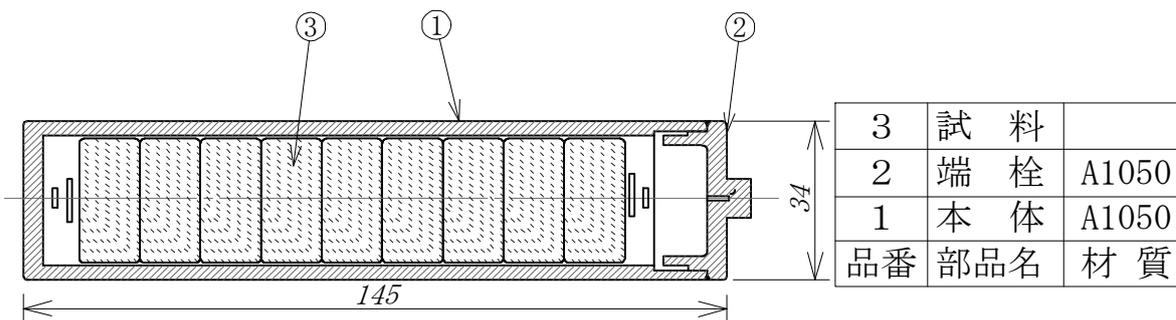


Fig.5.1-3 <sup>99</sup>Mo 製造 照射前工程



水力照射用溶接キャプセル

ペレット寸法：φ19.8×12.5h(mm)  
 収納個数：8個



垂直照射用溶接キャプセル

ペレット寸法：φ27.8×12.5h(mm)  
 収納個数：9個

Fig.5.1-4 キャプセル構造図

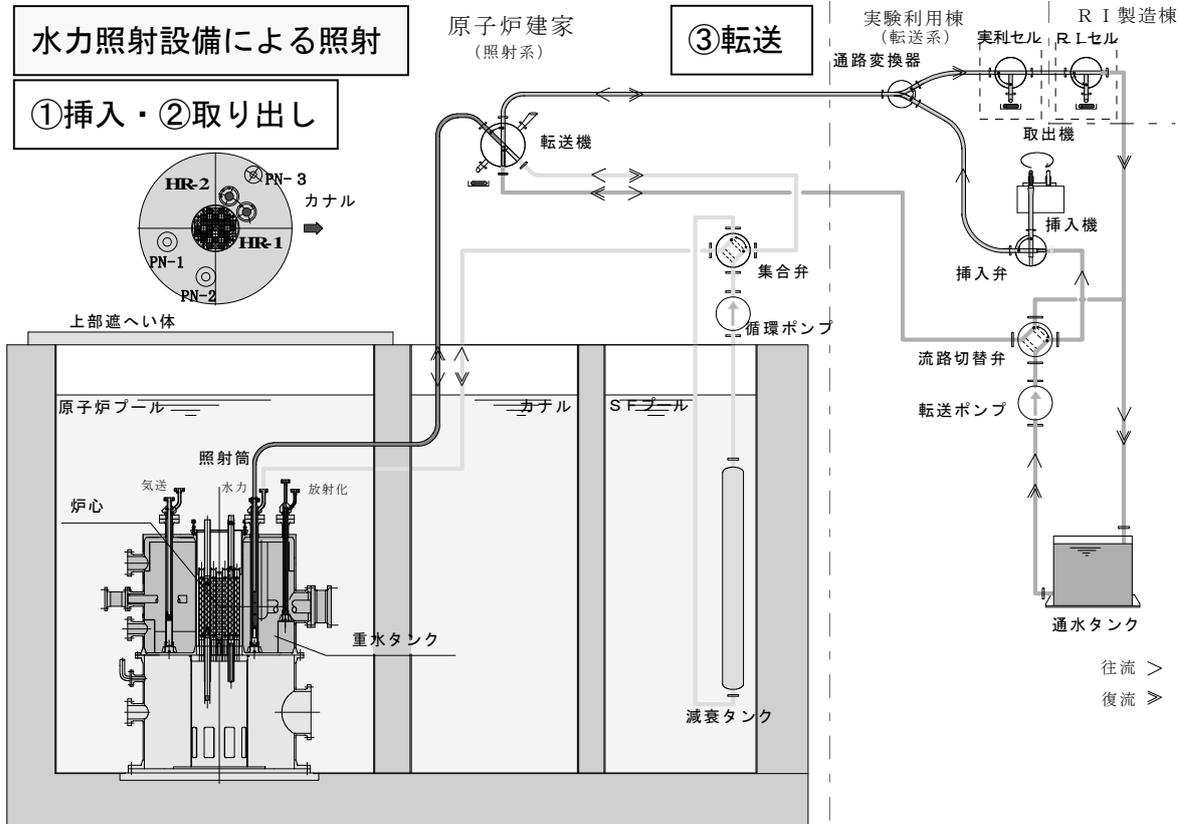
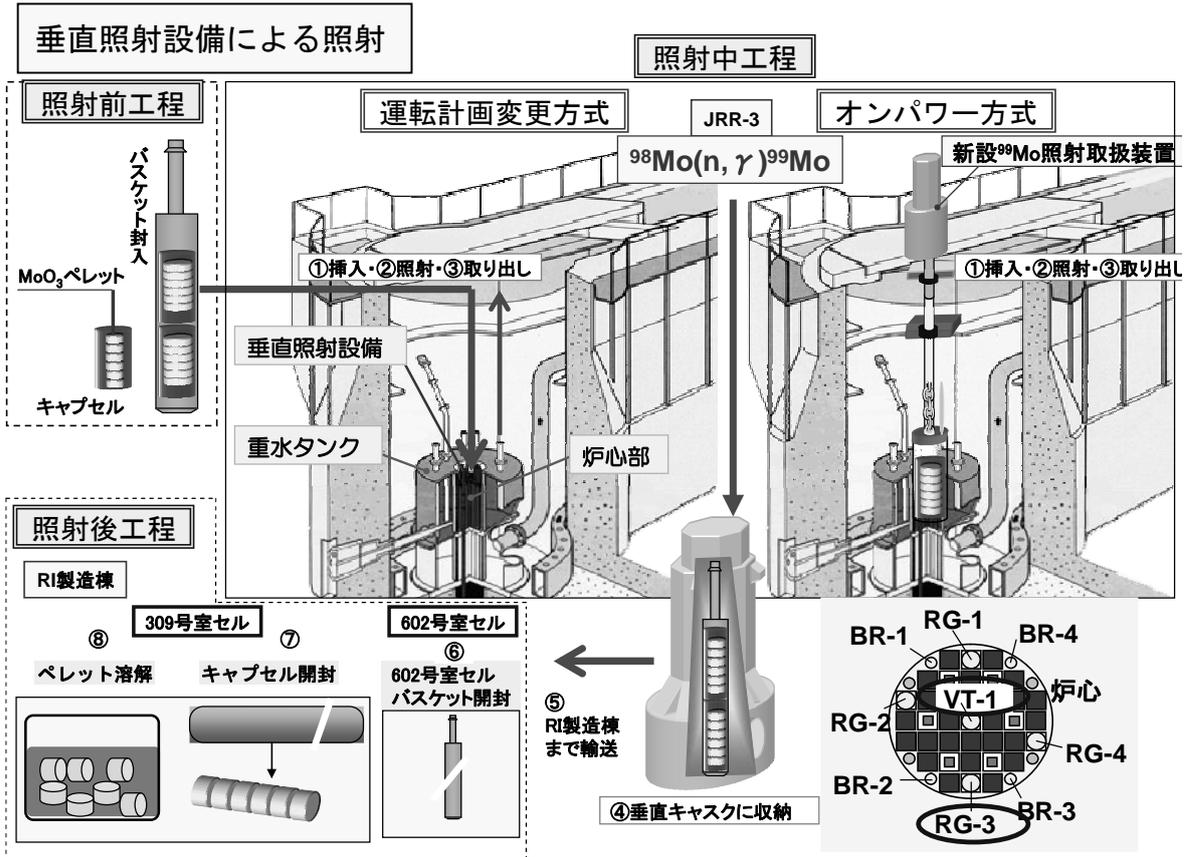
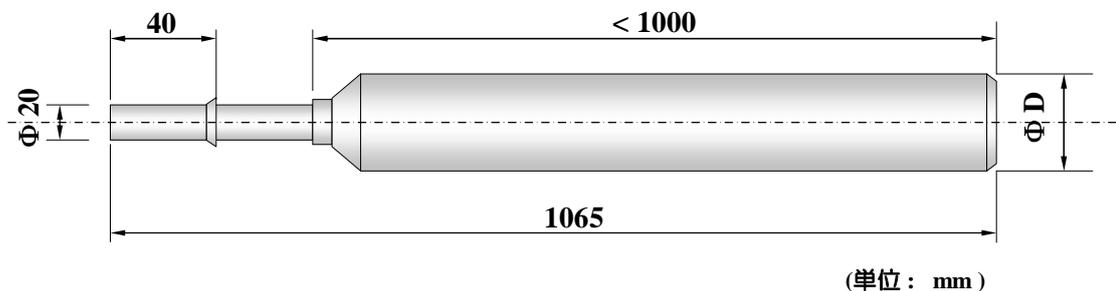


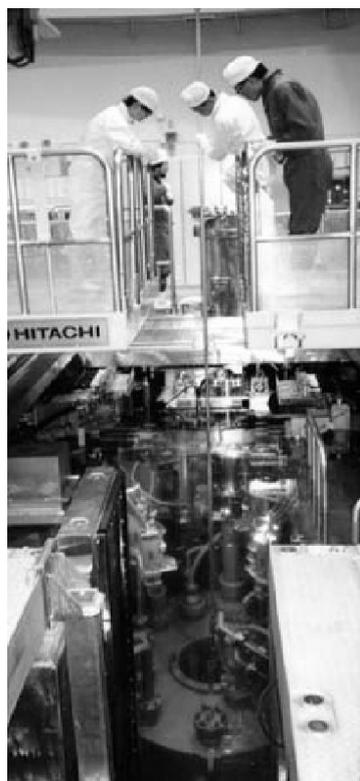
Fig.5.1-5 <sup>99</sup>Mo 製造 照射中工程



### J R R - 3 標準照射バスケットの制限

照射設備	直径 $\Phi D$	材 料
VT-1 RG-1, 2, 3, 4	55	•アルミニウム 合金
BR-1, 2, 3, 4	40	

Fig. 5.1-6 垂直照射設備バスケット構造図

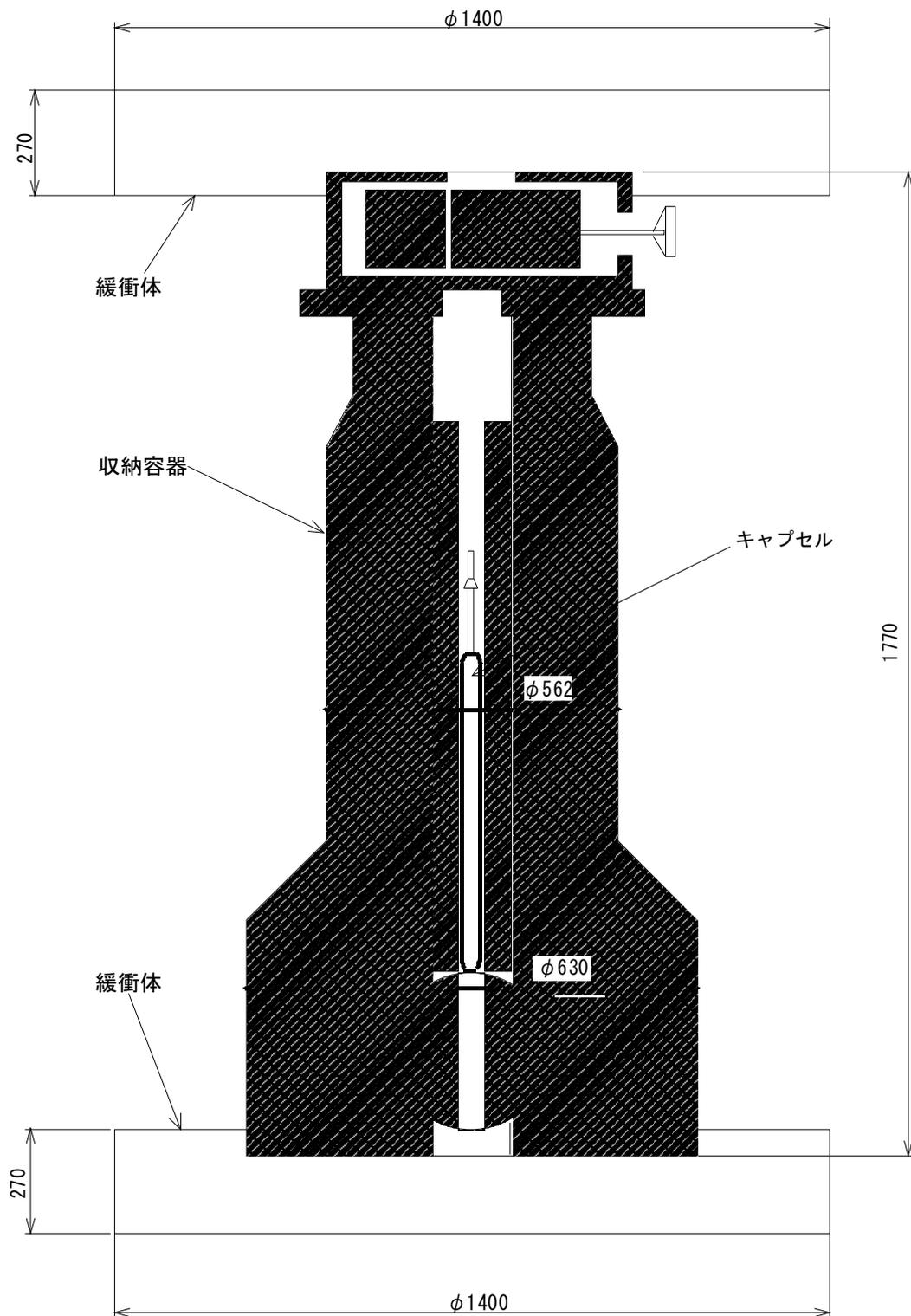


垂直照射設備への試料挿入



垂直キャスク  
(取扱制限量：370TBq)  
(10,000Ci)

Fig.5.1-7 垂直照射用バスケットの取扱作業写真



単位：mm

Fig.5.1-8 垂直キャスク概念図

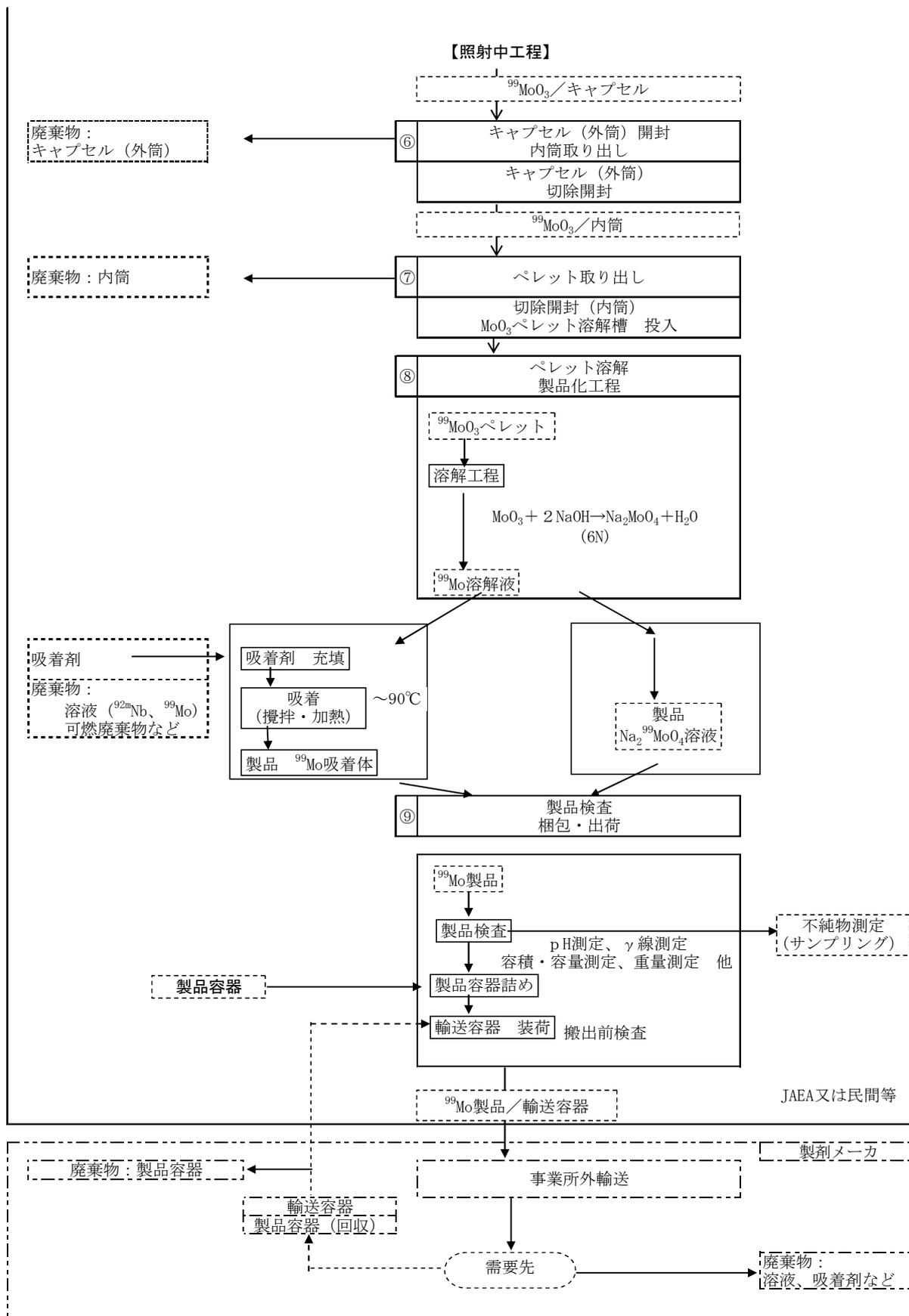


Fig.5.1-9 <sup>99</sup>Mo 製造 照射後工程

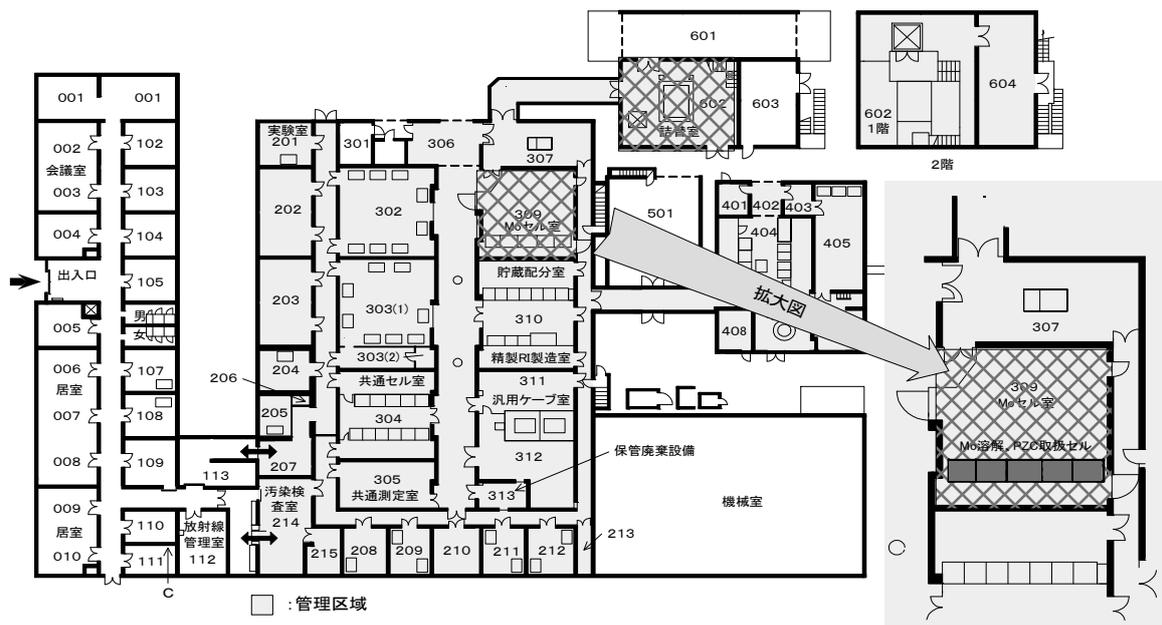


Fig.5.1-10 RI 製造棟の配置図

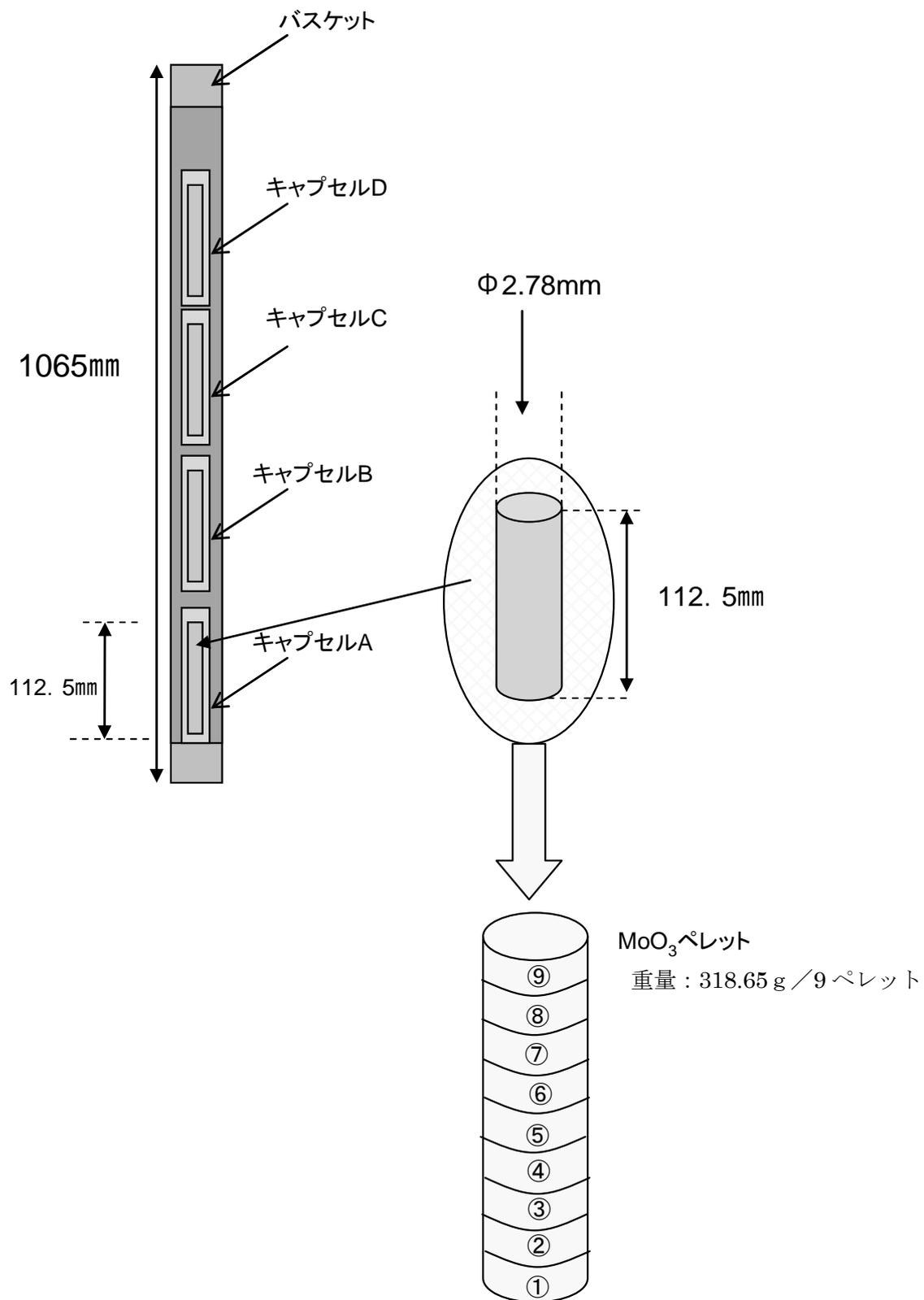


Fig.5.3-1 垂直照射孔(VT,RG,BR)照射モデル

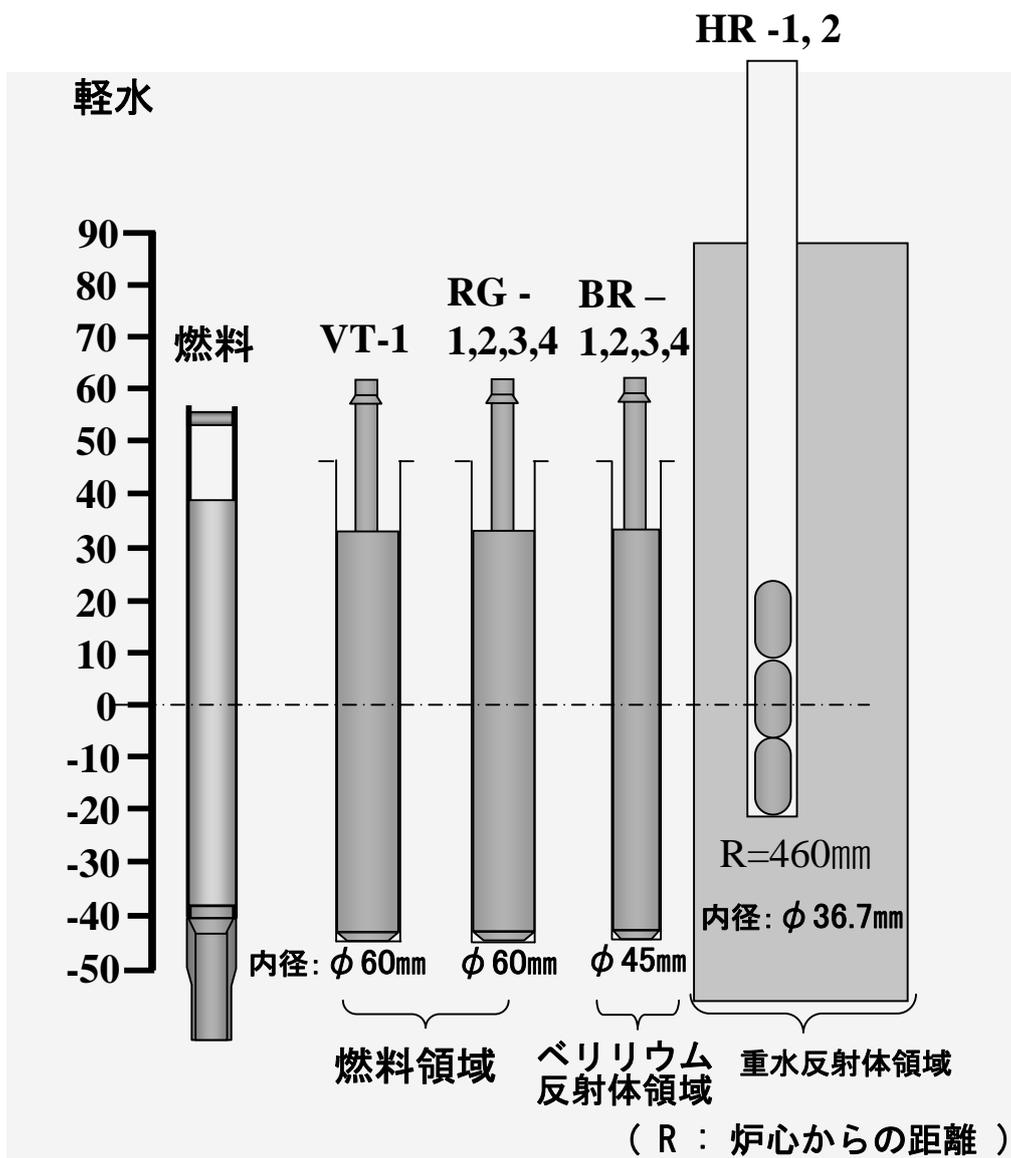
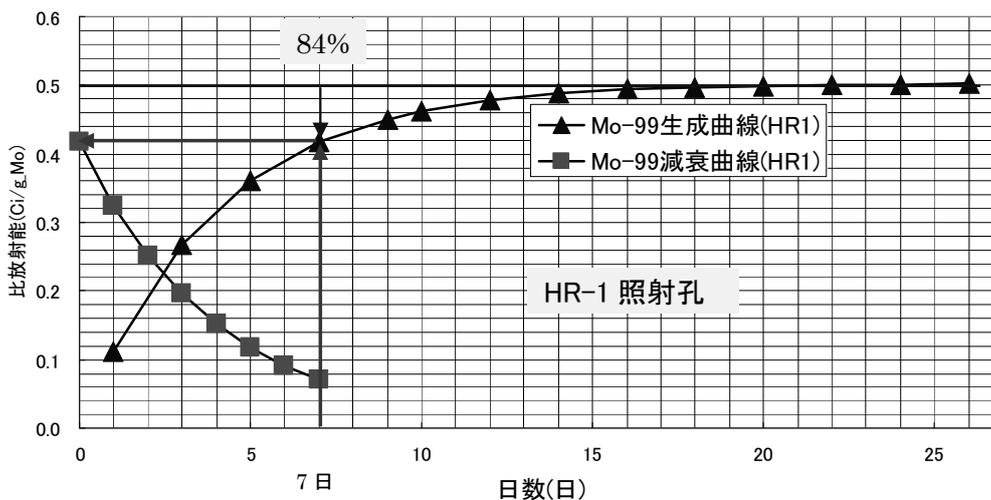


Fig.5.3-2 水力照射設備及び垂直照射設備の配置断面図



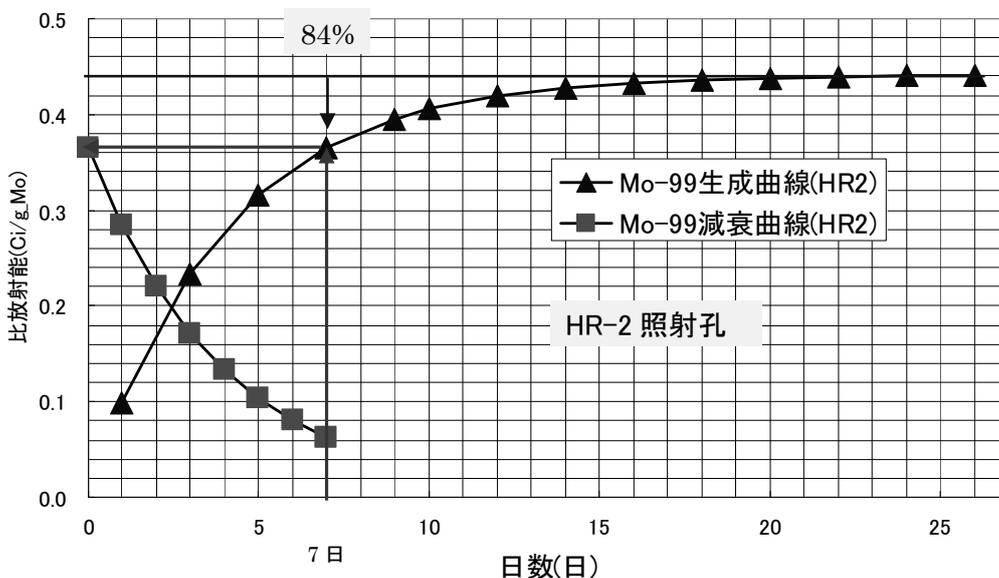
JRR-3 の HR-1 照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能(Ci/g. Mo)の関係 (MVP 計算結果)

照射日数の検討結果

26日運転の比放射能 (Ci/g. Mo) 曲線から照射日数を決めた。

照射日数：7日

比放射能：最高比放射能値の約84%で、0.42 (Ci/g. Mo)。



JRR-3 の HR-2 照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能(Ci/g. Mo)の関係 (MVP 計算結果)

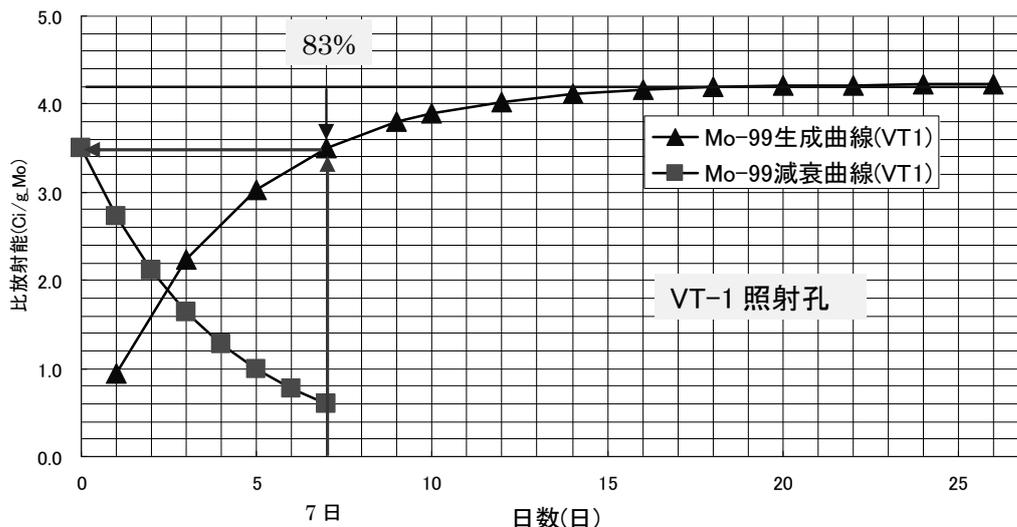
照射日数の検討結果

26日運転の比放射能 (Ci/g. Mo) 曲線から照射日数を決めた。

照射日数：7日

比放射能：最高比放射能値の約84%で、0.37 (Ci/g. Mo)。

Fig.5.3-3 水力照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能の関係 (オンパワー方式照射日数決定用)



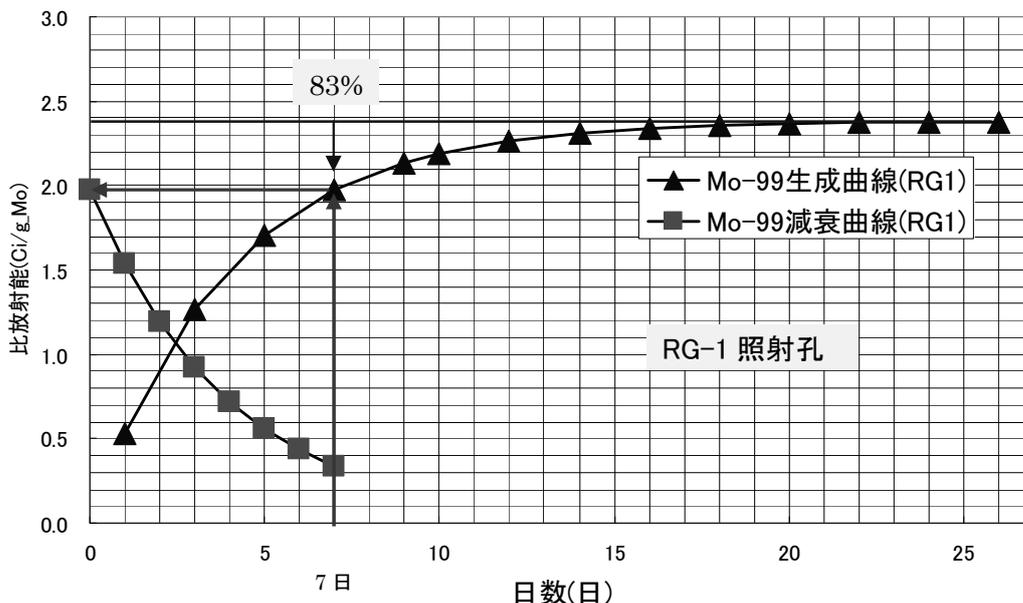
JRR-3 の VT-1 照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能(Ci/g. Mo)の関係 (MVP 計算結果)

照射日数の検討結果

26 日運転の比放射能 (Ci/g. Mo) 曲線から照射日数を決めた。

照射日数：7 日

比放射能：最高比放射能値の約 83%で、3.51 (Ci/g. Mo)。



JRR-3 の RG-1 照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能(Ci/g. Mo)の関係 (MVP 計算結果)

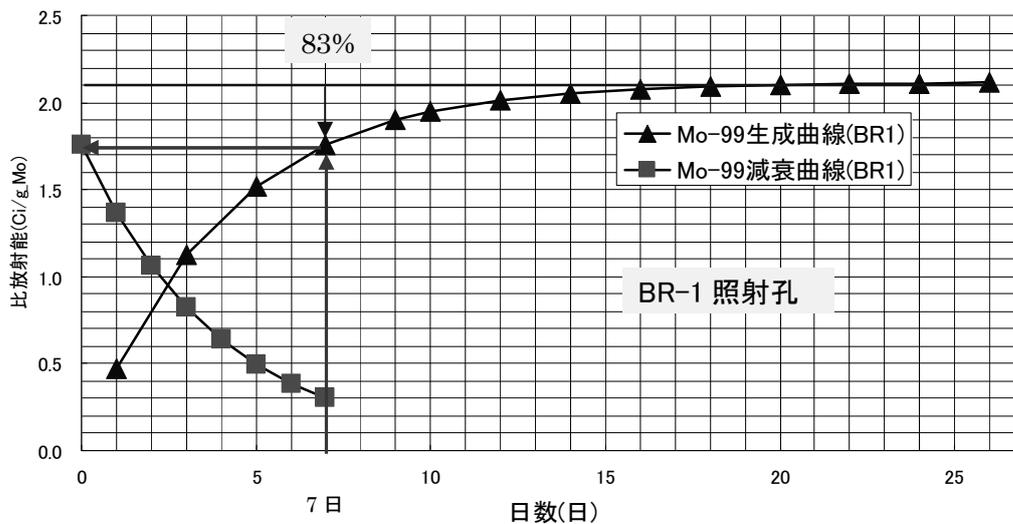
照射日数の検討結果

26 日運転の比放射能 (Ci/g. Mo) 曲線から照射日数を決めた。

照射日数：7 日

比放射能：最高比放射能値の約 83%で、1.97 (Ci/g. Mo)。

Fig.5.3-4 垂直照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能の関係(その1)  
(オンパワー方式照射日数決定用)



JRR-3 の BR-1 照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能(Ci/g. Mo)の関係 (MVP 計算結果)

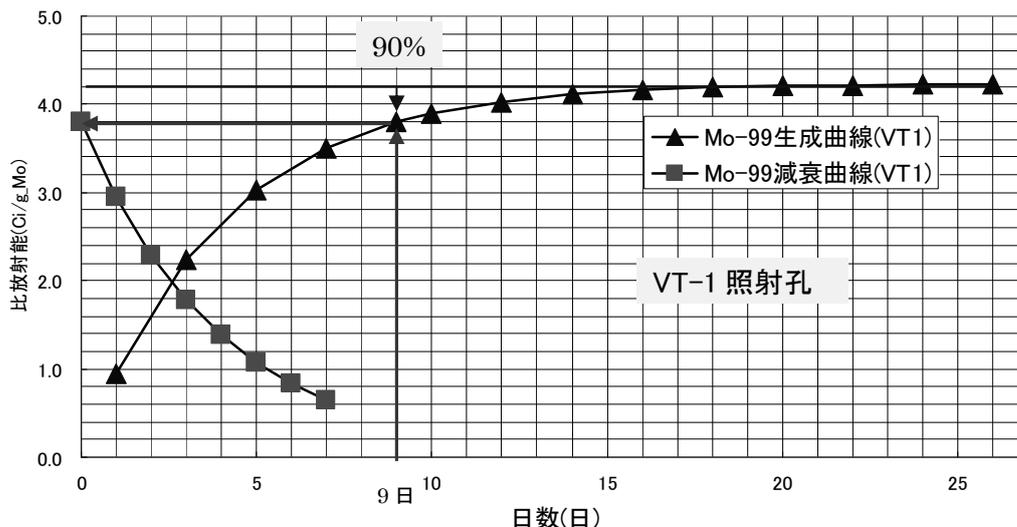
照射日数の検討結果

26 日運転の比放射能 (Ci/g. Mo) 曲線から照射日数を決めた。

照射日数：7 日

比放射能：最高比放射能値の約 83%で、1.75 (Ci/g. Mo)。

Fig.5.3-4 垂直照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能の関係(その2) (オンパワー方式照射日数決定用)



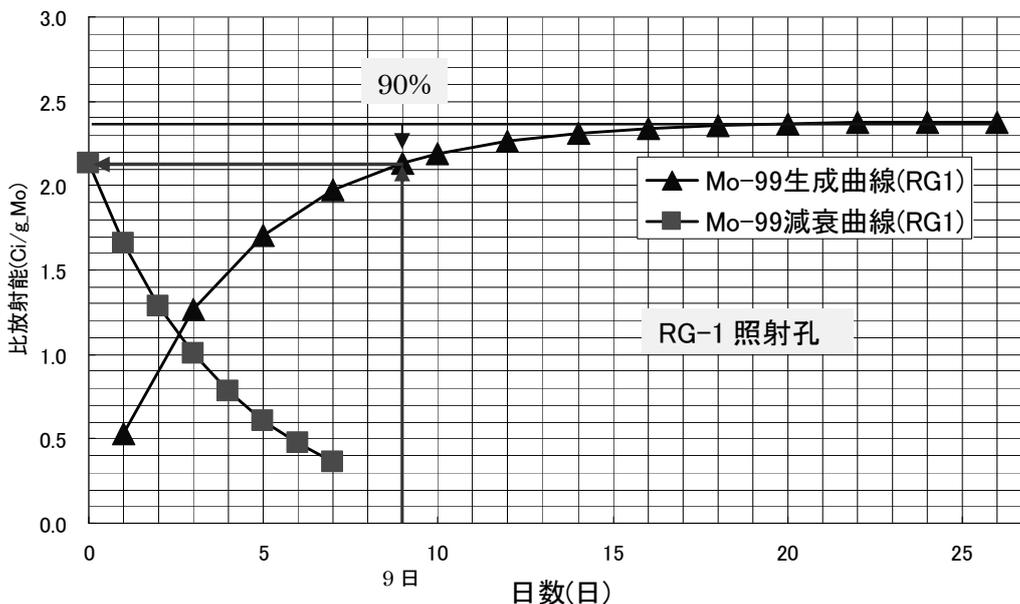
JRR-3 の VT-1 照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能(Ci/g. Mo)の関係 (MVP 計算結果)

照射日数の検討結果

26 日運転の比放射能 (Ci/g. Mo) 曲線から照射日数を決めた。

照射日数：7 日

比放射能：最高比放射能値の約 90%で、3.80 (Ci/g. Mo)。



JRR-3 の RG-1 照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能(Ci/g. Mo)の関係 (MVP 計算結果)

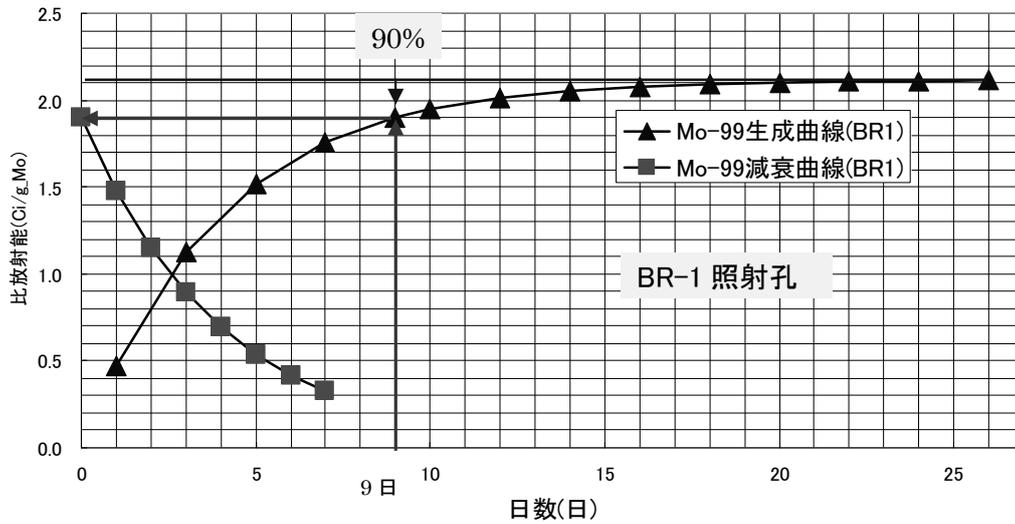
照射日数の検討結果

26 日運転の比放射能 (Ci/g. Mo) 曲線から照射日数を決めた。

照射日数：7 日

比放射能：最高比放射能値の約 90%で、2.14 (Ci/g. Mo)。

Fig.5.3-5 垂直照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能の関係(その1) (運転計画変更方式照射日数決定用)



JRR-3 の BR-1 照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能 (Ci/g. Mo) の関係 (MVP 計算結果)

照射日数の検討結果

26 日運転の比放射能 (Ci/g. Mo) 曲線から照射日数を決めた。

照射日数：7 日

比放射能：最高比放射能値の約 90% で、1.90 (Ci/g. Mo)。

Fig.5.3-5 垂直照射孔位置における照射日数・冷却日数と比放射能の関係(その 2)  
(運転計画変更方式照射日数決定用)



Fig. 5.3-6 <sup>99</sup>Mo 製造方式別出荷スケジュール

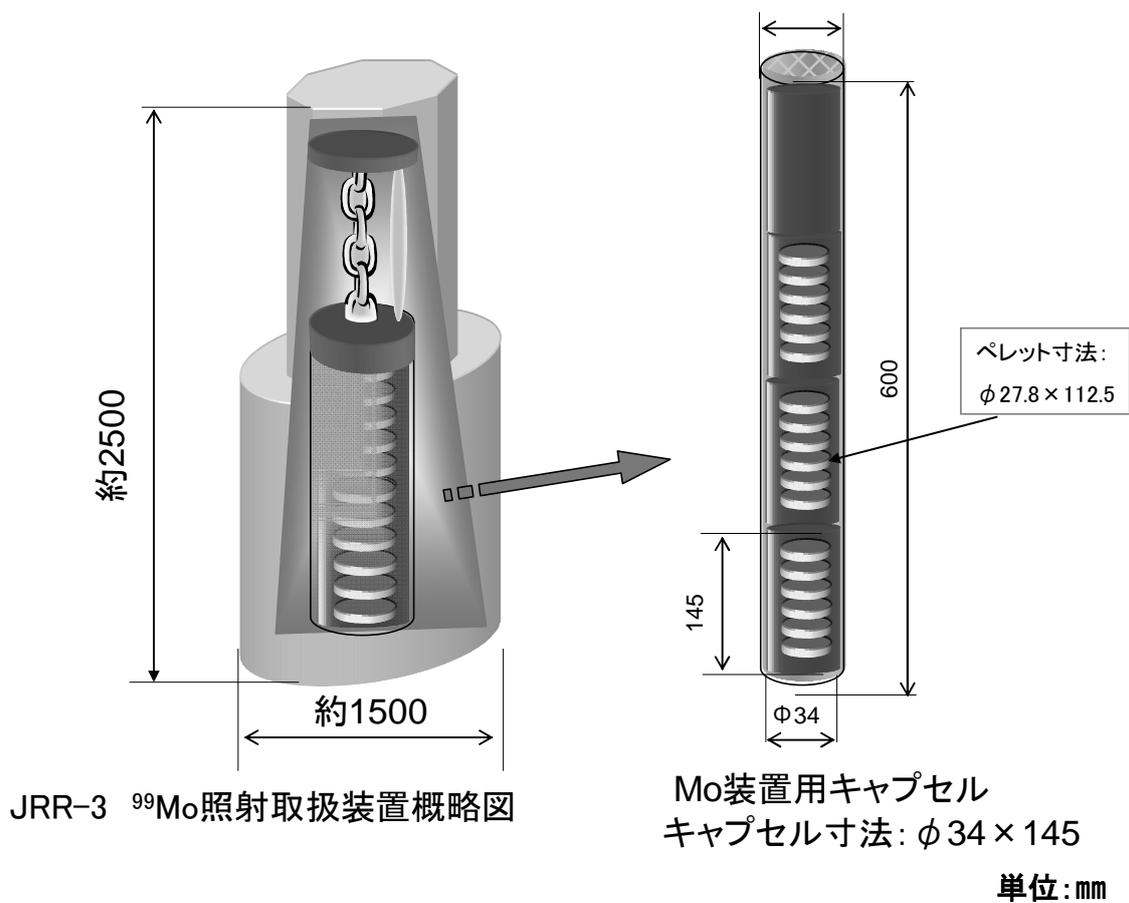


Fig.5.4-1 JRR-3  $^{99}\text{Mo}$  照射用取扱装置概略図

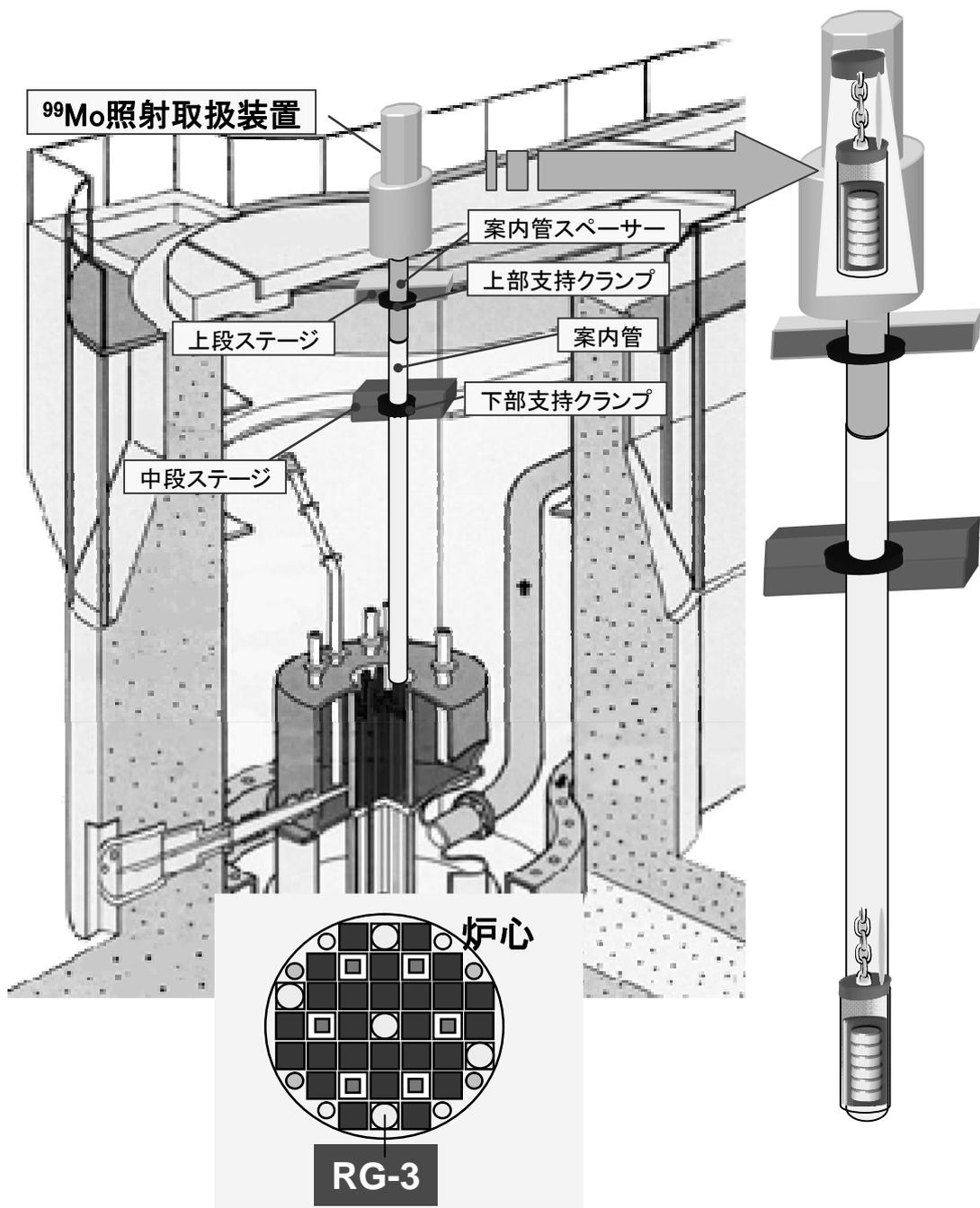


Fig.5.4-2  $^{99}\text{Mo}$  照射用取扱装置による  $^{99}\text{Mo}$  照射方法概念図

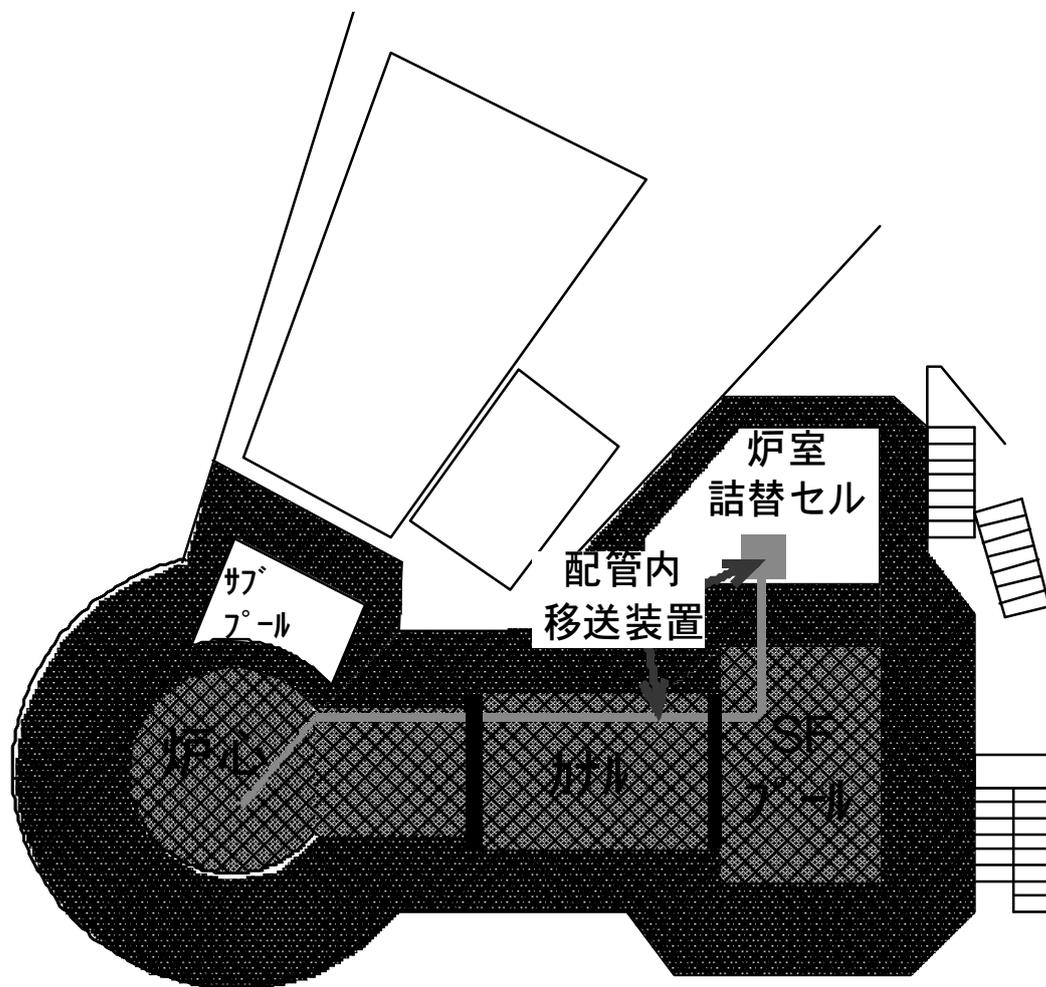
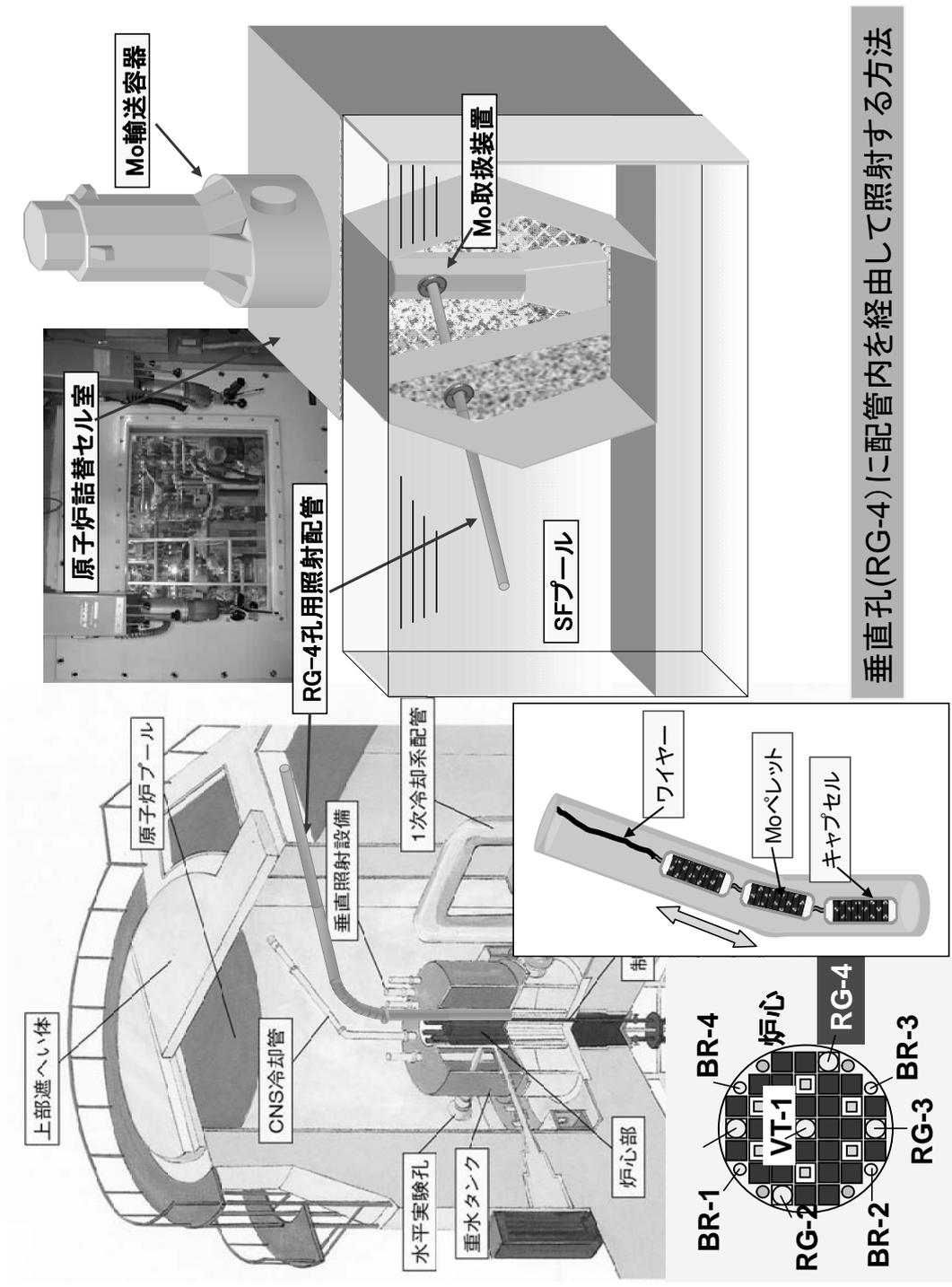


Fig.5.4-3 JRR-3 配管内移送装置の配管敷設平面図



垂直孔(RG-4)に配管内を經由して照射する方法

Fig.5.4-4 <sup>99</sup>Mo 照射用配管内移送装置による照射方法概念図

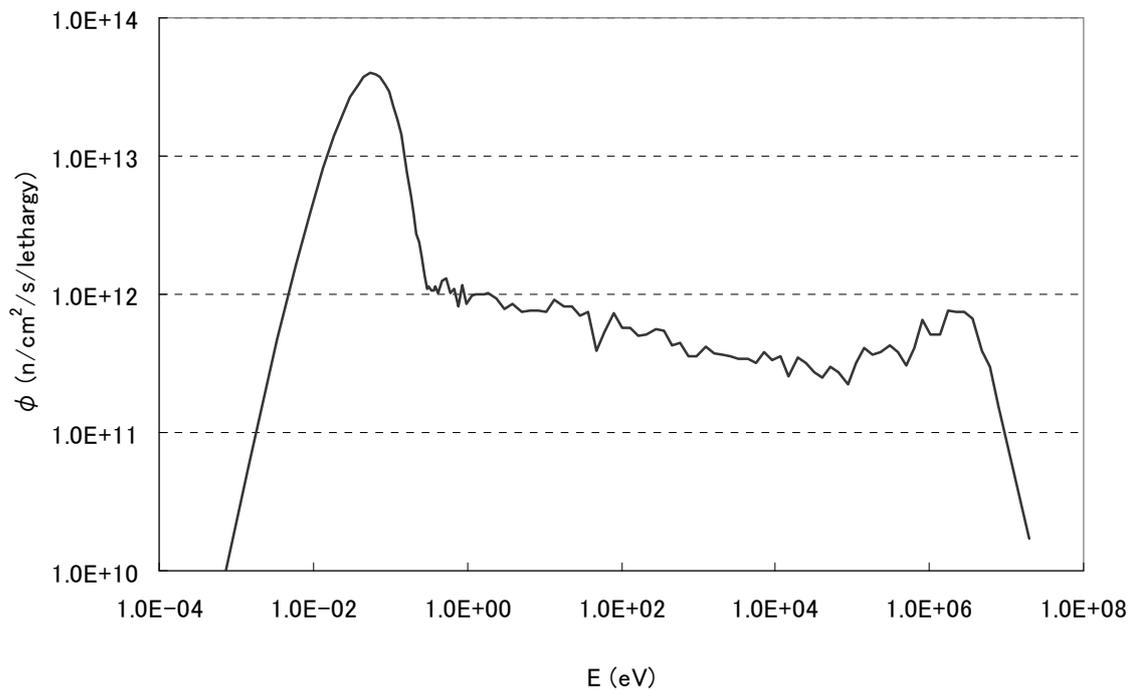


Fig.5.6-1 HR-1 における中性子エネルギースペクトル

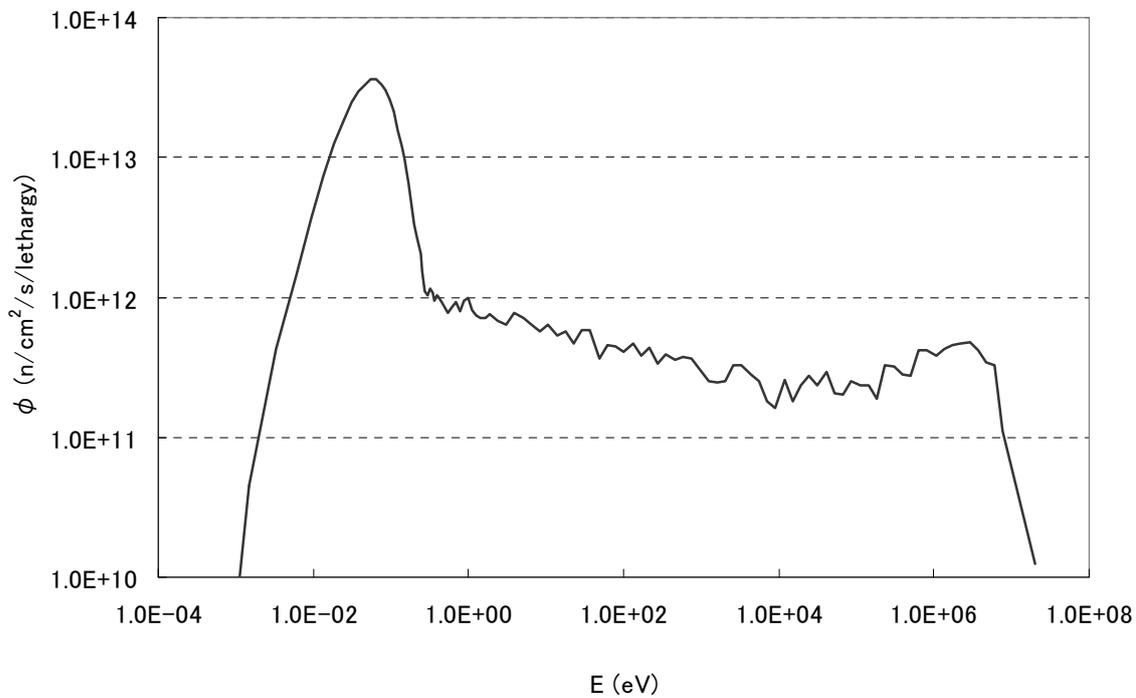


Fig.5.6-2 HR-2 における中性子エネルギースペクトル

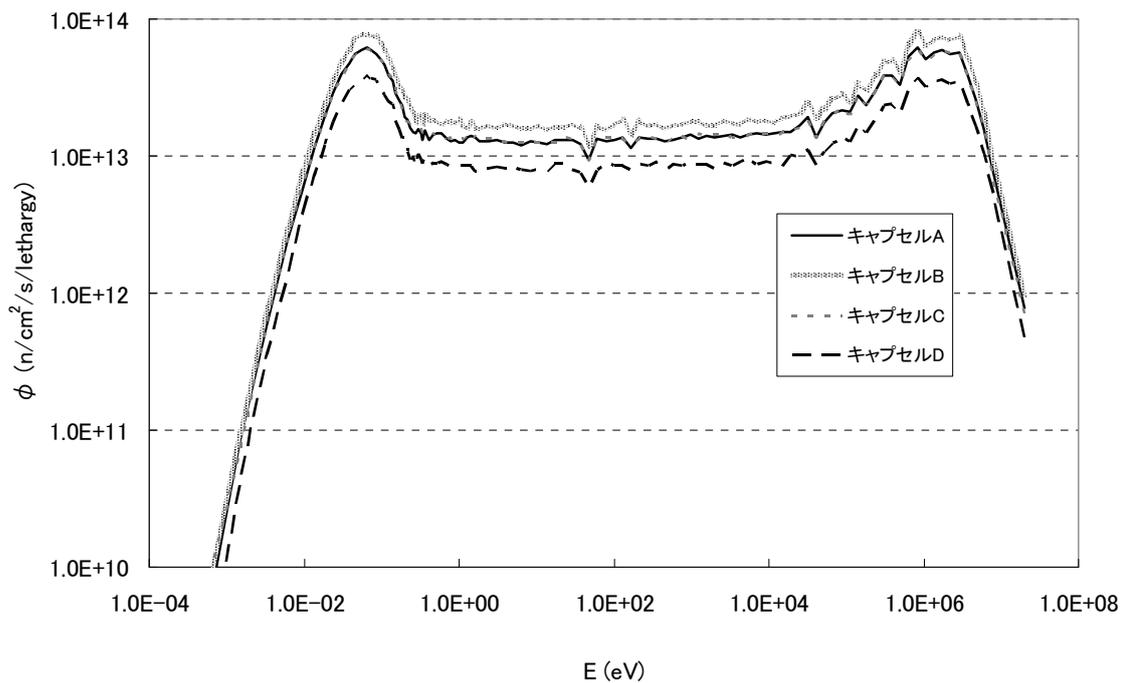


Fig.5.6-3 VT-1 における中性子エネルギースペクトル

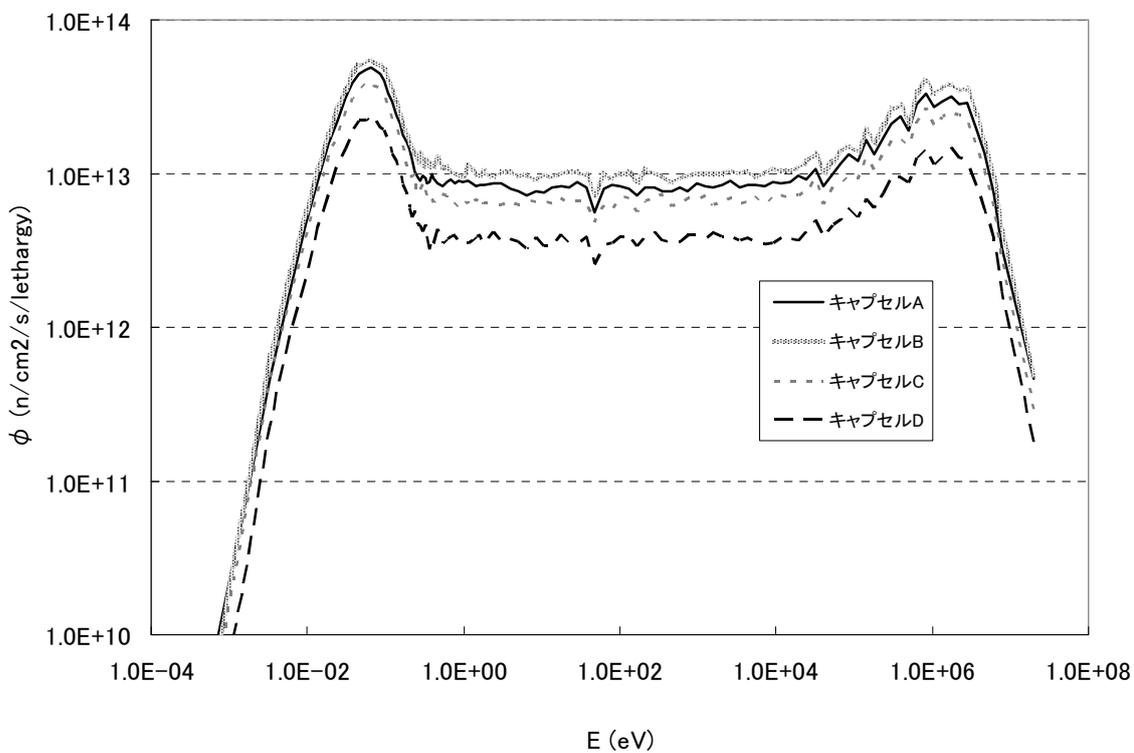


Fig.5.6-4 RG-1 における中性子エネルギースペクトル

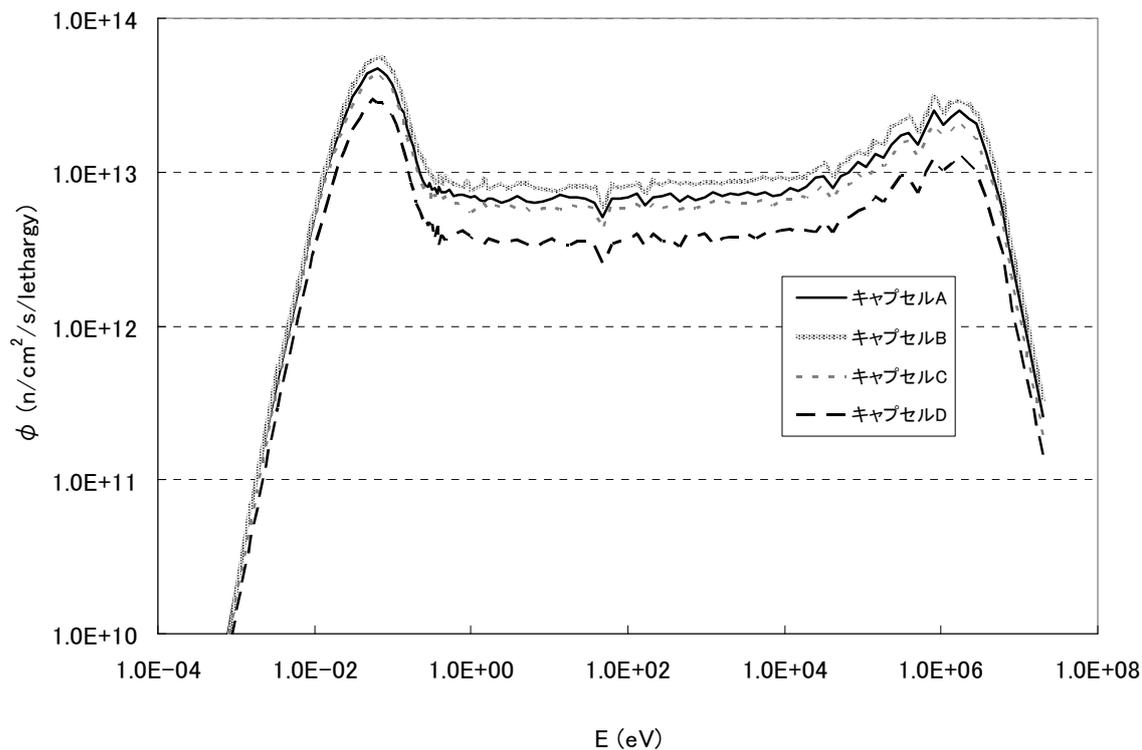


Fig.5.6-5 BR-1における中性子エネルギースペクトル

メモ:VT, RG, BRにおいて約48eVに谷が見られるが、これはMo-95の共鳴吸収の影響だと考えられる(参:下図)。なお、HRではこのエネルギー以下の中性子が多いため、この谷は見られない。

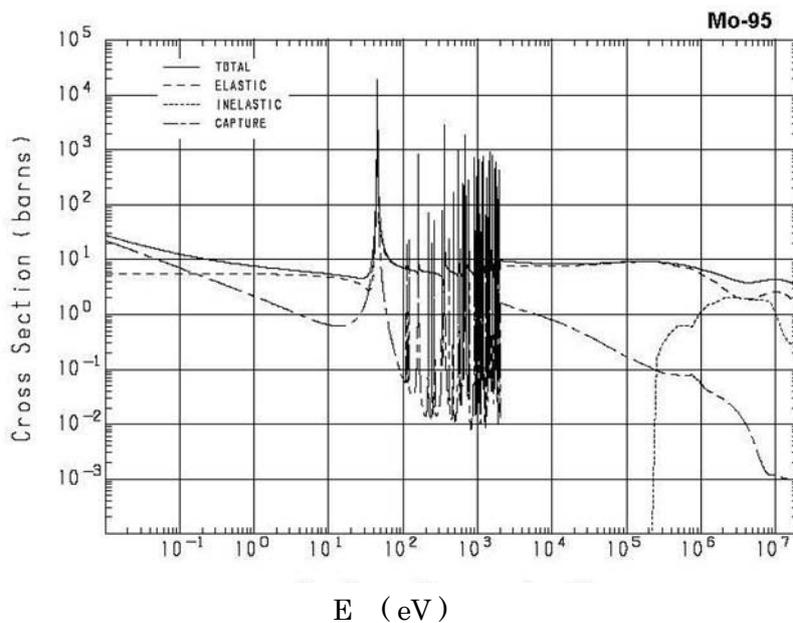


Fig.5.6-6 <sup>95</sup>Mo 共鳴吸収反応断面積

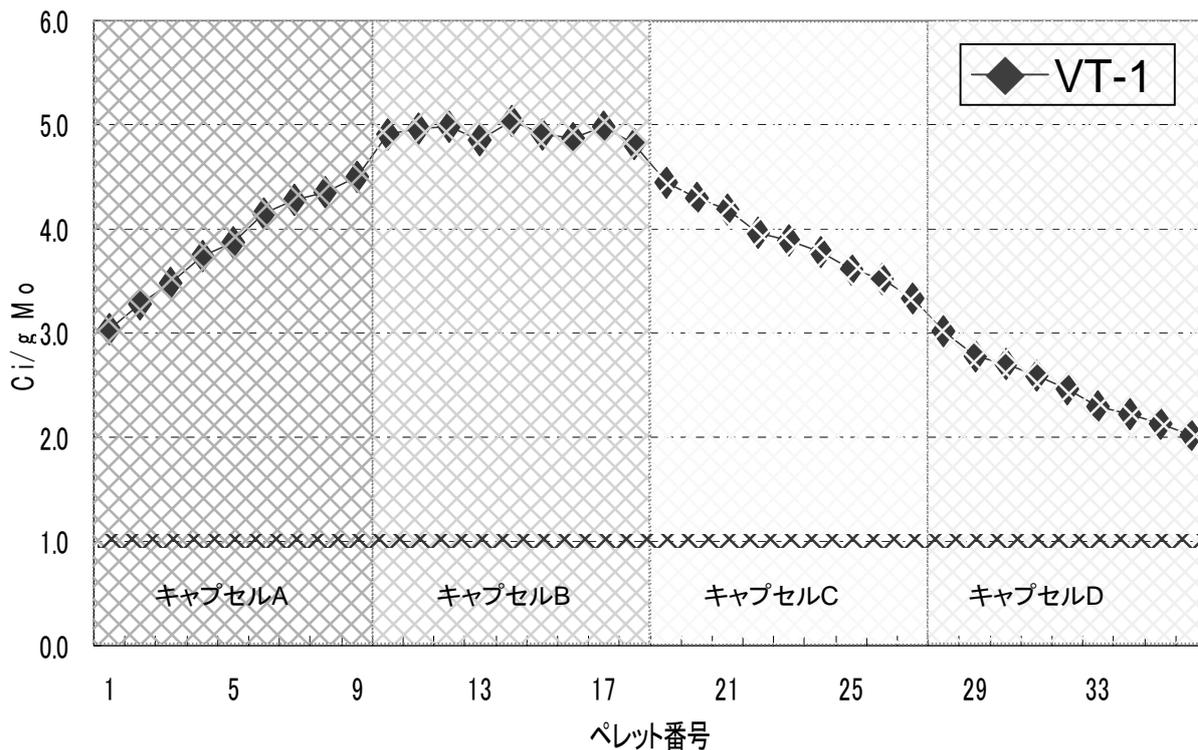


Fig.5.6-7 9日間照射(照射直後)におけるキャプセルに対する $^{99}\text{Mo}$ の比放射能 (VT-1)

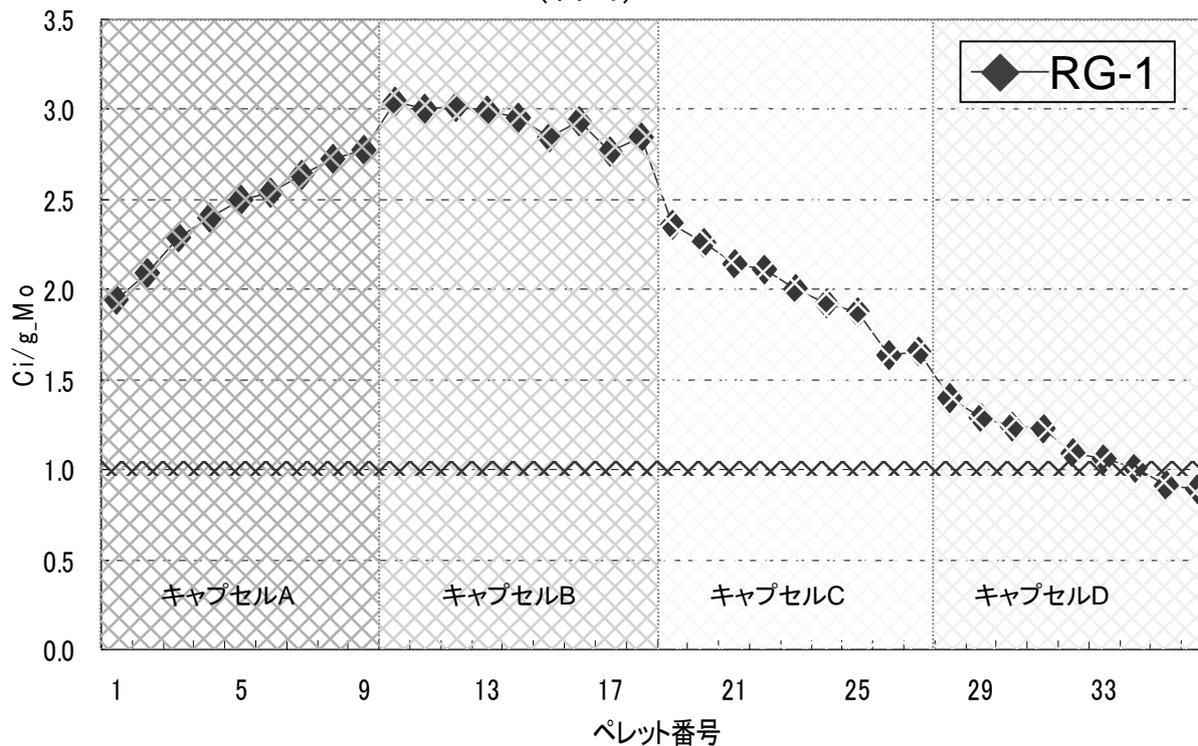


Fig.5.6-8 9日間照射(照射直後)におけるキャプセルに対する $^{99}\text{Mo}$ の比放射能 (RG-1)

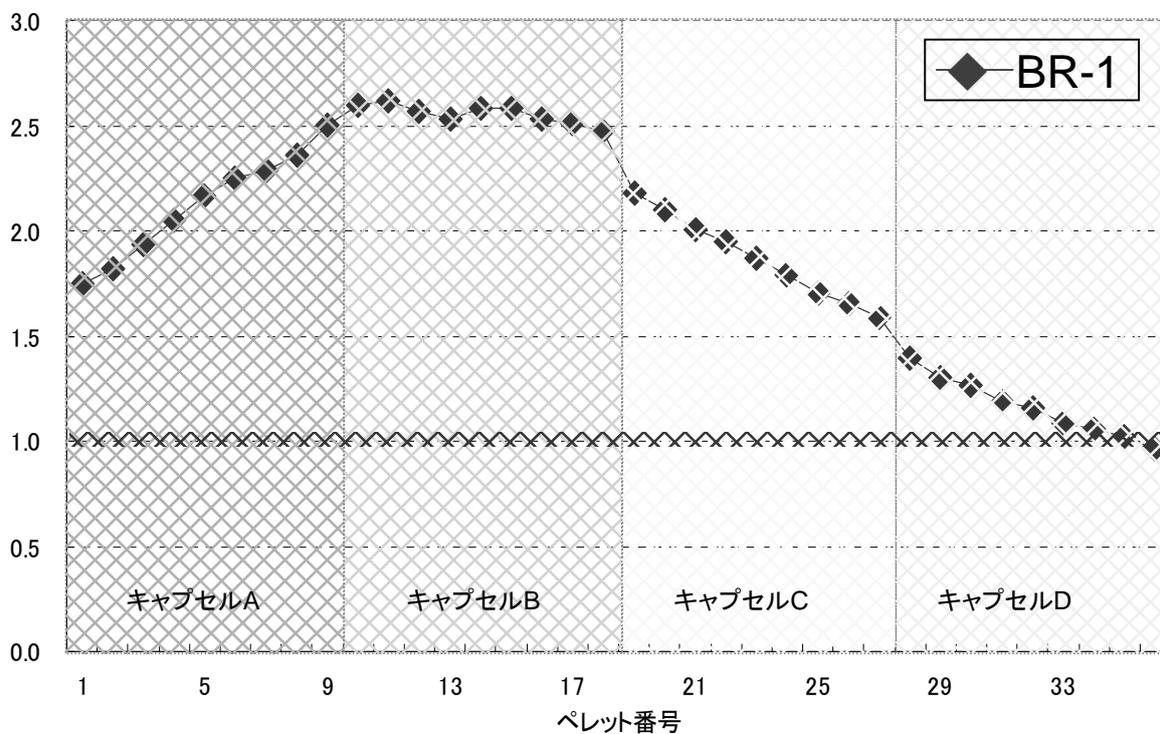
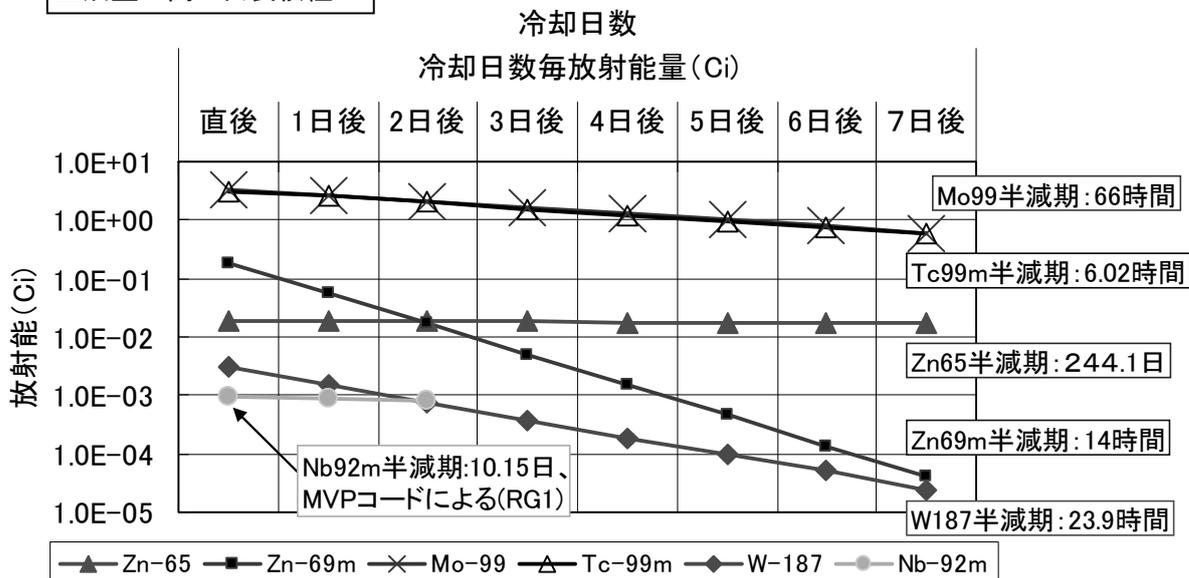


Fig.5.6-9 9日間照射(照射直後)におけるキャプセルに対する<sup>99</sup>Moの比放射能 (BR-1)

VT-1孔

JRR-3で26日間照射したMoO<sub>3</sub>ペレット不純物  
(ORIGEN-JR)

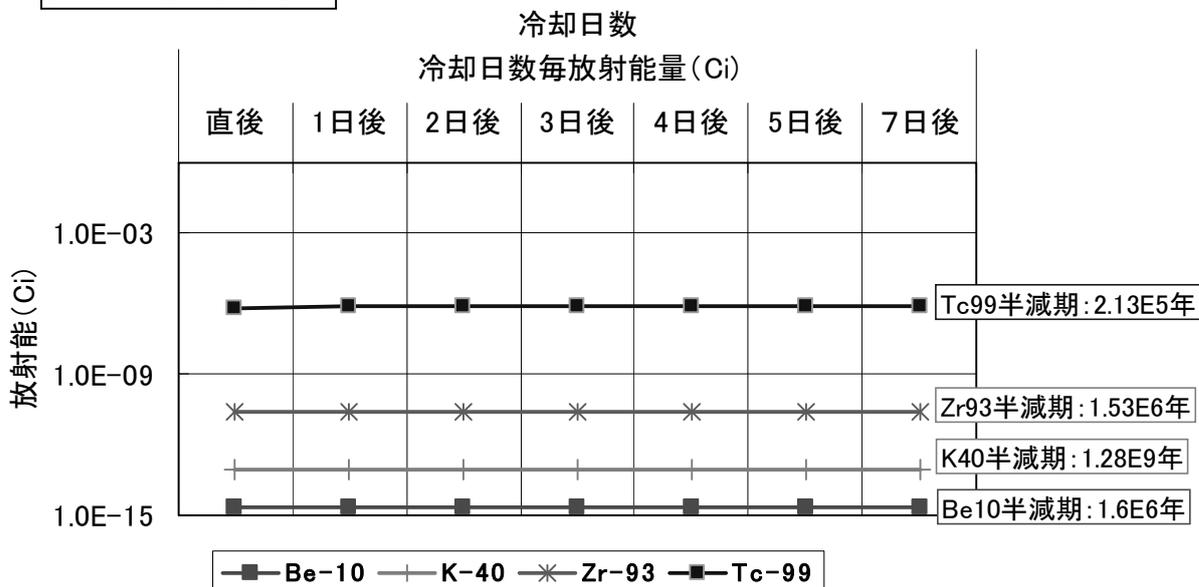
生成量の高い代表核種



VT-1孔

JRR-3で26日間照射したMoO<sub>3</sub>ペレット不純物  
(ORIGEN-JR)

長半減期代表核種



ORIGEN-JR: ORNLで開発された多機能の0次元燃焼計算コード。  
MVP: 高速・高精度モンテカルロコードMVP(連続エネルギー法)

Fig.5.6-10 MoO<sub>3</sub>ペレット中の不純物により生成される不純物核種のグラフ

## 1. 事業所内輸送容器の検討

水力照射設備以外の照射設備により  $^{99}\text{Mo}$  を製造して、JRR-3 炉室から RI 製造棟まで  $^{99}\text{Mo}$  を輸送する手段としては、事業所内輸送容器が必要となる。事業所内輸送容器は、既存の垂直照射孔で照射物を輸送する時に使用している垂直キャスク 1 基を使用する。垂直キャスク概念図は、5 項で示した Fig. 5.1-8 垂直キャスク概念図を参照。

## 2. RI 製造棟整備の検討

照射後工程に使用する RI 製造棟（昭和 38 年度竣工）では、昭和 31 年のアイソトープ関連組織の発足以来、独自の技術開発を積み重ねて、多くの精製 RI、線源 RI 及び有機標識化合物の製造技術を引き継ぎ、RI 製造に貢献してきた。

現在、 $^{192}\text{Ir}$  や金グレインなどの医療用 RI などを扱っている。現在の RI 使用能力は、使用数量が少ないこともあり、許可量を減らしている。モリブデン製造には、モリブデン溶解やテクネチウムを抽出する一つの方法である PZC 設備用等のセルを用意する必要がある。このセル設置予定の 309 号室は、過去に試験的にモリブデンを製造した時に使用したセルが設置されていた部屋で、重量物に対する床耐荷重構造となっている。これらのセル設置に伴う整備を行うことにより、モリブデンの溶液化やテクネチウム抽出が可能となる。

RI 製造棟の概要及び整備に係る検討概念図を付録 Fig. 2-1 に、 $^{99}\text{Mo}$  製造フローシートを付録 Fig. 2-2 に、RI 製造棟内での  $^{99}\text{Mo}$  製造の流れを付録 Fig. 2-3 に、RI 製造棟 309 号室 Mo セル室内での  $^{99}\text{Mo}$  製造の流れを付録 Fig. 2-4 に示す。

これらのセルを整備するためには、多額の予算と工期を要することから、JRR-3 で照射後に、RI 製造棟でバスケットの解体を行い、Mo ペレット入りのキャプセルを JMTR の HL まで輸送して、モリブデン溶解やテクネチウムを抽出する方法も選択肢のひとつと考えた。

JRR-3 における Mo 製造と JMTR による Tc 抽出の検討工程図を付録 Fig. 2-5 に、JRR-3 における Mo 製造と JMTR による Tc 抽出の検討を付録 Fig. 2-6 に示す。

## 3. PZC の実証試験の検討

### 3.1 PZC の概要

中性子放射化法による  $^{99}\text{Mo}$  製造に係る技術的検討を行う前提として、まず中性子放射化法によって製造する  $^{99}\text{Mo}$  が、国内のニーズに質と量の両面でどの程度応えられる可能性があるか、すなわち成立性あるいは現実的に意味があるかということを検討する必要がある。

$^{99\text{m}}\text{Tc}$  を製剤として使用するためには、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  製剤時の放射能濃度「1Ci/ml」以上が要求されている。従って、これより低い濃度では、現在使用されている製薬と同等の性能を発揮できない。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  製剤時の放射能濃度「1Ci/ml」以上を確保するには、できるだけ比放射能の高い原料を出

荷することが必要であり、そのためには経済的かつ高性能（高抽出効率、高分離率など）な  $^{99}\text{Mo}$  吸着剤の実用化が必要である。

我が国では、昭和 50 年代に原研の JRR-2 を用いて中性子放射化法による  $^{99}\text{Mo}$  製造を行い、30Ci/週程度を生産した実績がある。当時の  $^{99}\text{Mo}$  出荷時の比放射能は 0.6Ci/g.Mo であり、採用された抽出剤は「メチルエチルケトン（以下「MEK」という。）」であった。

中性子放射化法で製造された  $^{99}\text{Mo}$  から  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を分離・精製する方法としては、この他に「アルミナカラム」を用いる方法などがあるが、経済性や効率性の面で大量製造には向かず、過去に開発・実用化された技術では現在の我が国の要求\*を満足することは困難である。

\*：製薬会社からの要求

$^{99}\text{Mo}$  放射能量：1,000Ci/週

$^{99}\text{Mo}$  検定時比放射能：6Ci/g.Mo 程度

$^{99\text{m}}\text{Tc}$  製剤時の放射能濃度：1Ci/ml

現在、経済的かつ効率的に  $^{99}\text{Mo}$  を吸着することができる吸着剤として検討しているのが「Poly Zirconium Compound (PZC)」である。PZC は、原子力機構（開発当事は原研）と株式会社化研（以下「化研」という。）で共同開発された（平成 6 年 1995 年）放射性医薬品用ポリマーである。PZC は、実験室レベルでは、(n, f) 法により製造される  $^{99}\text{Mo}$  と同等の品質の  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  を確保できるだけの性能を有することが実証されている。

今後は、JRR-3 等を利用した PZC の大量製造に対する性能確証実験を実施していく必要がある。

### 3.2 PZC 実証試験の検討

PZC 実証試験は、JRR-3 により、生成放射能量約 100Ci の  $^{99}\text{Mo}$  を製造して、RI 製造棟で  $^{99}\text{Mo}$  の溶解処理、PZC 吸着試験等を行うための検討である。

$^{99}\text{Mo}$  の製造は、水力照射設備（HR-1 及び HR-2）を使用する。照射条件は、以下のとおりである。

- (1)  $\text{MoO}_3$  ペレット密度：4.60g/cm<sup>3</sup>（焼結密度：90～95%TD）
- (2)  $\text{MoO}_3$  ペレット寸法：直径 19.8 mm、高さ 12.5 mm
- (3)  $\text{MoO}_3$  ペレット数量：8 個/キャプセル
- (4)  $\text{MoO}_3$  ペレット重量：145g/キャプセル（非標準試料）
- (5) キャプセル数：4 個/HR-1, HR-2
- (6) 照射設備：HR-1（中段、下段）及び HR-2（中段、下段）
- (7) 照射時間：7 日間（168h）/キャプセル
- (8) 冷却時間：51 時間

中性子輸送計算モンテカルロコード MVP を用いて計算した結果は、以下のとおり。

比放射能、生成量は照射直後で 32.1 GBq/g.Mo（0.87 Ci/g.Mo）、6.2 TBq（167 Ci）、照射 51 時間後で 18.8 GBq/g.Mo（0.51 Ci/g.Mo）、3.6 TBq（98 Ci）となる。

計算の結果、照射後 51 時間後でも生成放射能量は、3.6 TBq（98 Ci）あり、 $^{99}\text{Mo}$  を溶解処理後に PZC 吸着試験を実施する時間まで十分な生成放射能量が確保できる。

次に、RI 製造棟での作業内容を説明する。ここで、現 RI 製造棟は、RI 取扱い使用量が少ないことから RI 使用許可量を減らしている。従って、100Ci の  $^{99}\text{Mo}$  を取扱うためには、RI 使用許可を増量変更する事が必要であるとともに、キャプセル開封、 $\text{MoO}_3$  ペレットの溶解、PZC 吸着分離及び  $^{99}\text{Mo}$  製品検査までの設備新設が必要となる。JRR-3 から水力により転送されたキャプセル 6 本は、602 号室詰替セル経由で 309 号室に新設するセルに移動後、キャプセルの開封からペレット溶解処理を経て、PZC 吸着分離及び  $^{99}\text{Mo}$  製品検査まで行う。PZC 実証試験の検討概略図を付録 Fig. 3.2-1 に、PZC 実証に向けてのスケジュール案を付録 Table 3.2-1 に、RI 製造棟整備に係る検討のまとめ表を付録 Table 3.2-2 に示す。

## 4. 課題提言

### 4.1 安定供給に係る検討

中性子放射化法による  $^{99}\text{Mo}$  の製造は、JRR-3 においても約 1,000Ci/週の  $^{99}\text{Mo}$  を製造できる見通しを得たことから、JRR-3 が JMTR の補完的役割を果たすことによって、安定供給が可能である。従って、JMTR の運転サイクルと JRR-3 の運転サイクルを調整し、互いに補完しあう運転計画を構築し、 $^{99}\text{Mo}$  を安定的に製造・出荷できるようにすることが重要である。

### 4.2 技術継承

技術継承について、「提言 我が国における放射性同位元素の安定供給体制について」4) では以下の様に記述されている。「原研 RI 製造頒布事業の合理化は、平成 7 年 2 月の閣議決定（「特殊法人の整理合理化について」）を踏まえ、平成 8 年 1 月に科学技術庁が示した「海外からの輸入可能な中長寿命 RI は製造中止」、「安定、大量需要の工業用 RI は民間移転」などの基本的考え方に基づいた結果、製造・頒布の終了という形となった。それに伴い、RI 製造を行っていた設備の大半は撤去された。また、研究者や技術者も組織の縮小に伴い減少し、その後の新人の配属もないため、RI 製造技術の伝承の点では大きな問題が生じている。技術継承については、RI 検定技術についても同様であるが、種々の形状や性質をもった高線量放射性物質を遠隔操作で取り扱いながら、安全かつ正確に測定し分析する技術は、文献や報告書類では伝えにくい面がある。50 年近い年月の間に蓄積された技術・ノウハウを単に原子力機構内の技術継承の問題としてではなく、国内の関連業界の技術者等にどのように伝えていくかが今後の課題となっている。」。

原子力機構の RI 製造技術継承は、 $^{99}\text{Mo}$  を製造するためには、重要な課題となる。

### 4.3 原子炉停止翌日の上部遮へい体の開操作について

JRR-3 を 10 日間運転した場合、 $^{99}\text{Mo}$  試料取出に係る時間が問題となる。炉内にある各照射キャプセルは、炉頂にある上部遮へい体を開けないと取り出すことができない。1 次冷却水中の Na-24 の放射化量が多く、エリアモニターの警報が発報するようである。どの程度の線量か詳細は不明であり、RI 製造の意義を考え、その設定ポイントの妥当性などを調査する必要がある。

原子炉停止の翌日の上部遮へい体の開操作を実施に関する問題について検討を行った結果は、以下のとおり。

- 燃料のみを線源として原子炉停止時の線量率を評価した場合、停止後 24 時間以上経過すると、上部遮へい体内側（燃料から 600cm 程度）では  $10^{-5}$  mSv/h 以下となり、その後はほとんど変化しない。
- 炉プール水中に存在する  $^{41}\text{Ar}$ （炉プール水の中の空気中に存在する  $^{40}\text{Ar}$  の中性子照射によって生成される）及び  $^{24}\text{Na}$ （炉プール水中に存在する  $^{23}\text{Na}$  の中性子照射によって生成される）について考察する。 $^{41}\text{Ar}$  の半減期は 1.82h であり、原子炉停止翌日午前 9 時に開操作すると仮定すると、原子炉停止後 16 時間後の放射能は 1/400 程度に減衰している。よってこの影響は小さいと考えられる。しかしながら  $^{24}\text{Na}$  の半減期は 15.02h で、16 時間後の放射能は停止直後の 1/2 である。

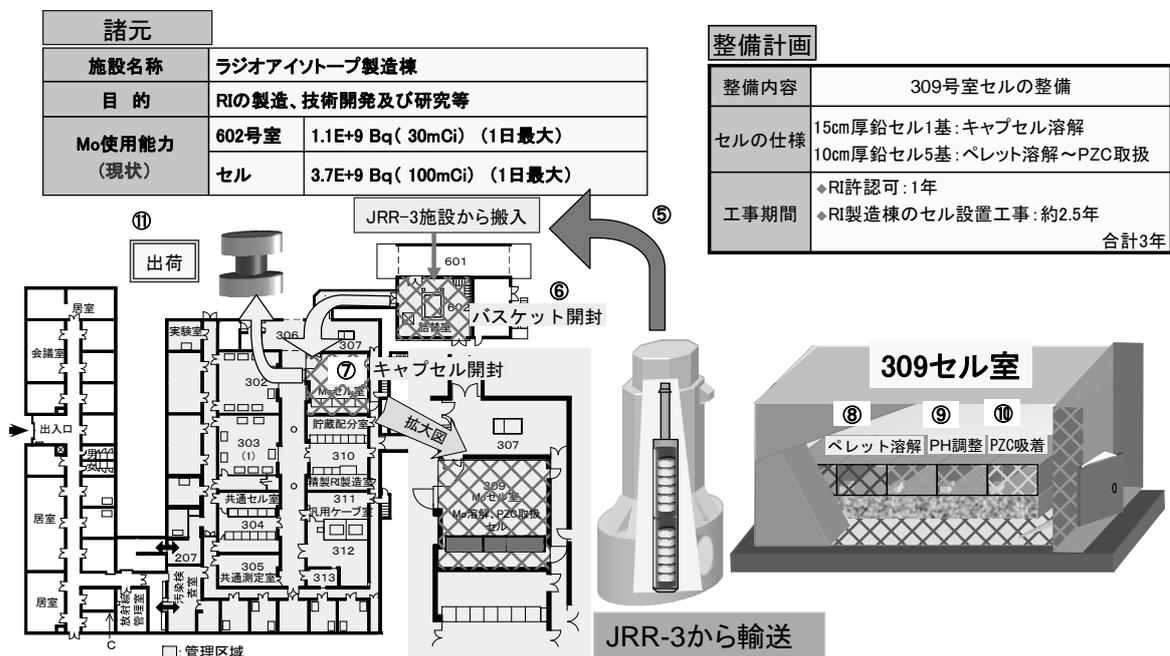
上記の評価のみで原子炉停止後の上部遮へい体開操作の可否について判断するのは困難である。操作時の線量率の評価及び測定を行い、その結果を踏まえた上で、開操作の可否、作業方法の検討、計画の立案等の検討を行う必要がある。

付録 Table 3.2-1 PZC 実証に向けてのスケジュール案

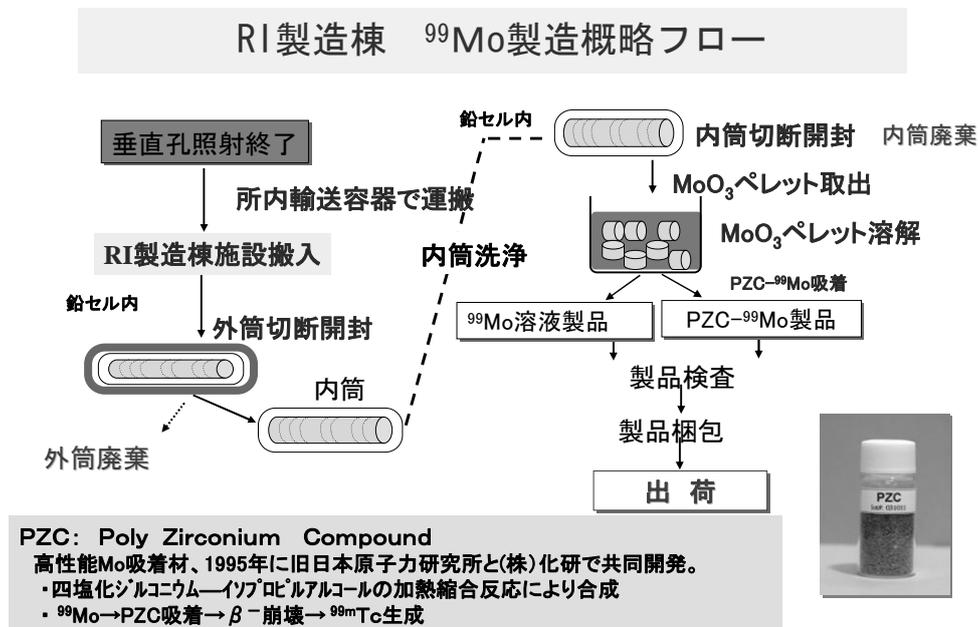
セルを新規整備			2009年度 (平成21年度)	2010年度 (平成22年度)	2011年度 (平成23年度)	2012年度 (平成24年度)	2013年度 (平成25年度)
	RI使用許可変更			→			
309号セル設計、製作、据付	予算措置		→				
付属設備	キャプセル運搬コンテナ製作			→			
	キャプセル開封装置製作、据付			→			
	ペレット溶解装置製作、据付			→			
	PZC- <sup>99</sup> Mo吸着装置製作、据付			→			
	<sup>99</sup> Mo製品検査機器他製作			→			
JRR-3 照射開始						→	

付録 Table 3.2-2 RI 製造棟整備に係る検討のまとめ表

施設名称		ラジオアイソトープ製造棟		
既存施設の活用	整備内容	310号室セル及び602号室セルのRI使用許可変更		
	Mo使用能力	セル室	現状(1日最大)	RI使用許可変更(1日最大)
		602号室セル	1.1 GBq (30mCi)	10TBq(270Ci)
		310号室14セル	3.7 GBq (100mCi)	4.0TBq(110Ci)
	新規設備	◇キャプセル運搬コンテナ、310号室14セル内遮へい強化、キャプセル開封装置、ペレット溶解装置、		
	工事期間	◇RI許認可:1年/◇新規設備製作:約1年 合計1.5年		
コスト(千円)税込	◇セル整備(鉛厚10cm;4基):355,000(千円) *(100 Ci 遮へいの見積額) ◇キャプセル運搬コンテナ、キャプセル開封装置、PZC- <sup>99</sup> Mo吸着装置、ペレット開封装置、 <sup>99</sup> Mo製品検査機器等:105,000(千円)/◇310号室14セル内遮へい強化:5,000(千円)◇作業員役務費用 <b>合計465,000(千円)</b>			
施設の新設	整備内容	309号室セルの新規整備及び602号室セルのRI使用許可変更		
	Mo使用能力	セル室	現状(1日最大)	RI使用許可変更(1日最大)
		602号室セル	1.1 GBq (30mCi)	10TBq(270Ci)
		309号室	なし	4.0TBq(110Ci)
	セルの仕様	◇15cm厚鉛セル 1基:キャプセル開封/◇10cm厚鉛セル 4基:ペレット溶解~PZC取り扱い		
	新規設備	◇キャプセル運搬コンテナ、キャプセル開封装置、ペレット溶解装置、PZC- <sup>99</sup> Mo吸着装置、 <sup>99</sup> Mo製品検査機器他		
工事期間	◇RI許認可:1年/◇RI製造棟のセル設置工事:約2.5年 合計3年			
コスト(千円)税込	◇セル整備(鉛厚15cm;1基、鉛厚10cm;4基):468,000(千円) *(100 Ci 遮へいの見積額) ◇キャプセル運搬コンテナ、キャプセル開封装置、PZC- <sup>99</sup> Mo吸着装置、ペレット開封装置、 <sup>99</sup> Mo製品検査機器等:105,000(千円)/◇作業員役務費用 <b>合計573,000(千円)</b>			



付録 Fig.2-1 RI 製造棟の概要及び整備に係る検討概念図

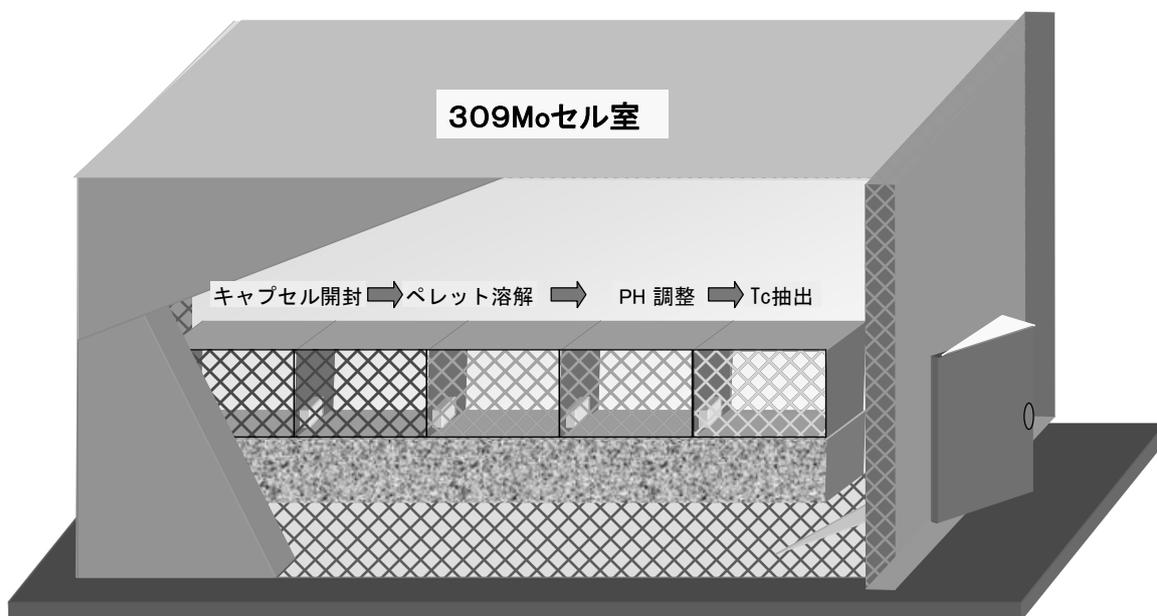


付録 Fig.2-2 <sup>99</sup>Mo 製造フローシート

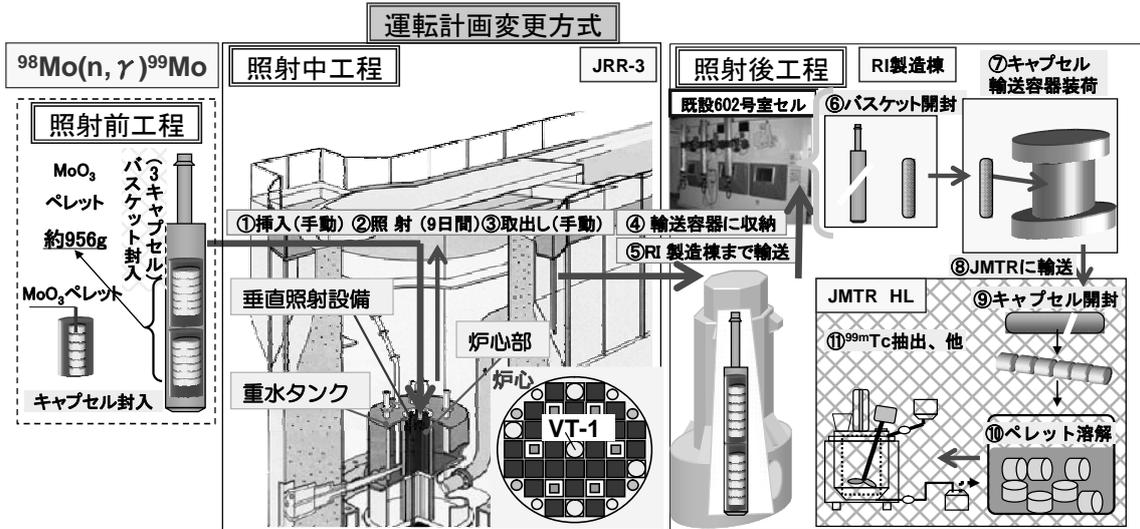


ラジオアイソトープ製造棟での<sup>99</sup>Mo製造の流れ

付録 Fig.2-3 RI 製造棟内での<sup>99</sup>Mo 製造の流れ



付録 Fig.2-4 RI 製造棟 309 号室 Mo セル室内での<sup>99</sup>Mo 製造の流れ



付録 Fig.2-5 JRR-3 における Mo 製造と JMTR による Tc 抽出の検討工程図

**<sup>98</sup>Mo製造方法** : <sup>98</sup>Mo(n, γ)<sup>99</sup>Mo により、10日間連続運転後に原子炉を停止し、Moを取り出し5週間に2回供給する方法に変更。  
**<sup>99</sup>Moの溶液化** : 照射後Moは、輸送容器でJMTRホットラボ施設まで輸送し、Mo溶液化等を行う。  
**<sup>99</sup>Mo生産量** : 2.5週間に1回、比放射能が2Ci/g<sub>Mo</sub>以上で<sup>99</sup>Moが約1,300Ci供給が可能である。  
**今後の課題** : ①<sup>99m</sup>Tc抽出技術の確立 (PZC等) ⇒ JMTRでの製造と共通技術  
 ②年間運転時間が42日間減る ⇒ JMTRに補完して安定供給に貢献  
 ③照射後Moペレットの事業所外輸送 ⇒ 利用者が事業所外輸送容器の設計、製作

表1 <sup>99</sup>Moの指定検定日における生産量及び比放射能

照射時間	冷却時間	比放射能	生産量 / 照射時間	生産量 / 5週間
9日 (217hr)	約68hr	77 GBq / g <sub>Mo</sub> (2.09 Ci / g <sub>Mo</sub> )	49 TBq (1,324 Ci)	98 TBq (2,648 Ci)

生産量は、製薬メーカー納入時（土曜正午）を基準。

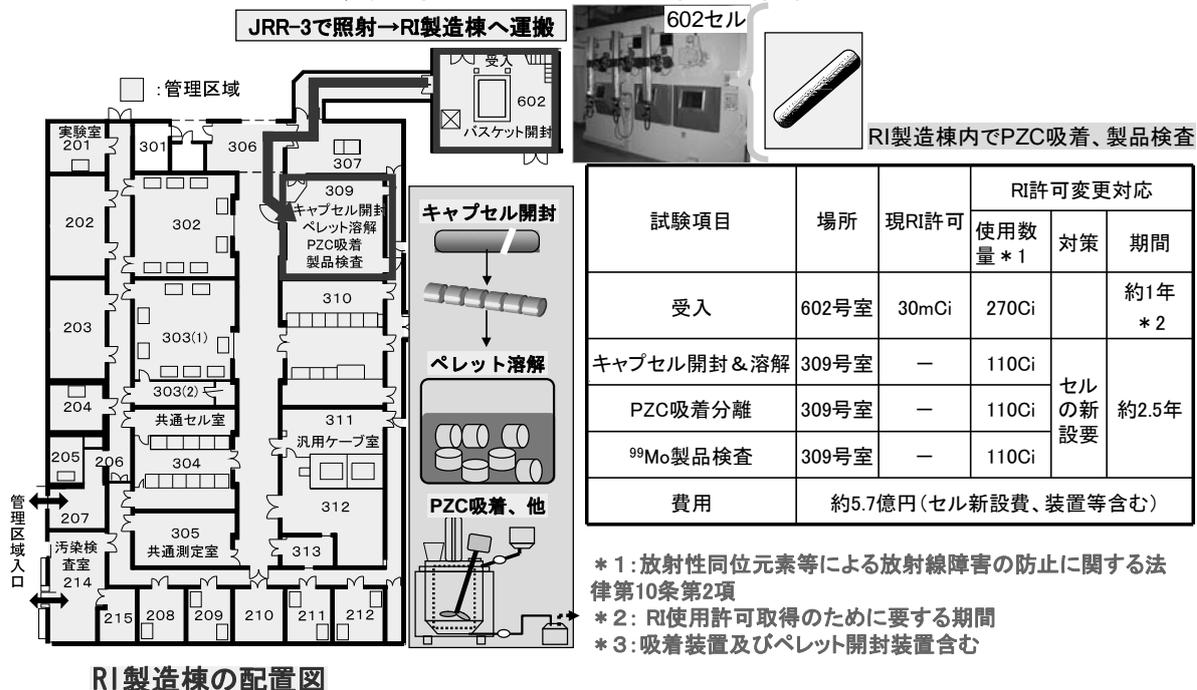
メリット	1. 炉側の工事がなく、最小限予算と工期 2. 複数照射孔でMo製造可能で、2,000Ci以上製造も可能
デメリット	1. 年間稼働時間が減る(42日減) 2. 量子ビーム利用者のマシタイム減 3. 2.5週間に1回の供給で、毎週供給出来ない

表2 スケジュール、費用及び製造までの期間

項目	初年度	2年目	3年目	4年目	備考
輸送容器の設計・製作 (利用者実施)	予算措置 ※1	契約	設計	製作	※1: 約2.5~3億円
輸送容器の許認可 (利用者実施)			設計承認	容器承認	
<sup>99</sup> Mo 製造開始				※2 製造	※2: JMTR HL施設完成が条件 約3.5年後

付録 Fig.2-6 JRR-3 における Mo 製造と JMTR による Tc 抽出の検討

### PZC実証試験の検討 (RI製造棟内において施設の新設)



付録 Fig.3.2-1 PZC 実証試験の検討概略図

# 国際単位系 (SI)

表1. SI基本単位

基本量	SI基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質の量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
波数	毎メートル	m <sup>-1</sup>
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m <sup>2</sup>
比体積	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 <sup>(a)</sup> , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>
屈折率 <sup>(b)</sup>	(数字の)	1
比透磁率 <sup>(b)</sup>	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。  
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	1 <sup>(b)</sup>	m/m
立体角	ステラジアン <sup>(b)</sup>	sr <sup>(c)</sup>	1 <sup>(b)</sup>	m <sup>2</sup> /m <sup>2</sup>
周波数	ヘルツ <sup>(d)</sup>	Hz		s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N		m kg s <sup>-2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
電荷, 電流量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
静電容量	ファラド	F	C/V	m <sup>-2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-2</sup>
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m <sup>-2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>3</sup> A <sup>2</sup>
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(e)</sup>	°C		K
光照度	ルーメン	lm	cd sr <sup>(c)</sup>	cd
放射線量	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> cd
放射線種の放射能 <sup>(f)</sup>	ベクレル <sup>(d)</sup>	Bq		s <sup>-1</sup>
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト <sup>(g)</sup>	Sv	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
酸素活性	カタール	kat		s <sup>-1</sup> mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。  
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。  
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。  
 (d) ヘルツは周期現象についての、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。  
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。  
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。  
 (g) 単位シーベルト (PV,2002,70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI組立単位		
	名称	記号	SI基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-1</sup>
表面張力	ニュートンメートル	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s <sup>-2</sup>
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> = s <sup>-1</sup>
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s <sup>2</sup>	m m <sup>-1</sup> s <sup>-2</sup> = s <sup>-2</sup>
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-3</sup>
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>3</sup> kg s <sup>-2</sup>
電荷密度	ボルト毎メートル	V/m	m kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>3</sup> s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m <sup>3</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> mol <sup>-1</sup>
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> mol <sup>-1</sup>
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>2</sup> s <sup>-3</sup>
放射線輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> = m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> sr)	m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> = kg s <sup>-3</sup>
	カタール毎立方メートル	kat/m <sup>3</sup>	m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> mol

表5. SI接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 <sup>24</sup>	ヨタ	Y	10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>21</sup>	ゼタ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>18</sup>	エクサ	E	10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>15</sup>	ペタ	P	10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>12</sup>	テラ	T	10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>9</sup>	ギガ	G	10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>6</sup>	メガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>3</sup>	キロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト	a
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h	10 <sup>-21</sup>	ゼプト	z
10 <sup>1</sup>	デカ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値	
		名称	SI単位による値
分	min	1 min=60s	
時	h	1h=60 min=3600 s	
日	d	1 d=24 h=86 400 s	
度	°	1°=(π/180) rad	
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad	
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad	
ヘクタール	ha	1ha=1hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>	
リットル	L, l	1L=1l=1dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>	
トン	t	1t=10 <sup>3</sup> kg	

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>-19</sup> J
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>-27</sup> kg
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	1ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10 <sup>5</sup> Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 <sup>-10</sup> m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =(10 <sup>-12</sup> cm) <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
ベベル	B	
デジベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> =10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> cd m <sup>-2</sup>
ファ	ph	1 ph=1cd sr cm <sup>-2</sup> 10 <sup>4</sup> lx
ガル	Gal	1 Gal=1cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm <sup>2</sup> =10 <sup>-8</sup> Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> T
エルステッド <sup>(c)</sup>	Oe	1 Oe ≐ (10 <sup>3</sup> /4π)A m <sup>-1</sup>

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「≐」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R = 2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
フェルミ	f	1フェルミ=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10 <sup>-4</sup> kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	1cal=4.1858J (「15°C」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m

