



照射済み高密度MoO₃ペレットを用いた Mo吸着剤の性能試験

(共同研究)

Performance Test of Mo Absorbents with Irradiated High-density MoO₃ Pellets
(Joint Research)

木村 明博 西方 香緒里 Andrey Nikolayevich Tatyna Vladimirovna
Yelena Chakrova 土谷 邦彦

Akihiro KIMURA, Kaori NISHIKATA, Andrey NIKOLAYEVICH, Tatyna VLADIMIROVNA
Yelena CHAKROVA and Kunihiko TSUCHIYA

大洗研究開発センター
照射試験炉センター

Neutron Irradiation and Testing Reactor Center
Oarai Research and Development Center

March 2014

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, 2014

照射済み高密度 MoO₃ ペレットを用いた Mo 吸着剤の性能試験 (共同研究)

日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター
照射試験炉センター

木村 明博、西方 香緒里、Andrey Nikolayevich^{*1}、Tatyna Vladimirovna^{*1}、
Yelena Chakrova^{*1}、土谷 邦彦

(2013 年 12 月 27 日受理)

原子力機構とカザフスタン共和国核物理研究所(以下、INP と呼ぶ)との国際協力の一環として、試験研究炉を用いた放射化法(以下、(n、γ)法と呼ぶ)による⁹⁹Mo 製造技術開発を行っており、照射ターゲットの開発、Mo 吸着剤の開発及び^{99m}Tc 抽出技術の開発が行われている。本研究では、(n、γ)法により製造した⁹⁹Mo からの^{99m}Tc 製造プロセスの現実性を確認するため、高密度 MoO₃ ペレットの照射試験及び照射済み高密度 MoO₃ ペレットを用いた照射後特性試験を WWR-K を用いて実施した。

高密度 MoO₃ ペレットを熱中性子束 $4.9 \times 10^{13} \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ でそれぞれ 24 時間及び 48 時間の照射を行った。照射後、照射後試験として、まず、ペレットの外観検査、重量測定及び溶解特性試験を行った。その結果、照射済み MoO₃ ペレットは、本照射量の範囲において、外観上、割れや欠け等の著しい変形もなく、健全であった。照射済み MoO₃ ペレットを約 100°C の 6M-NaOH 溶液で溶解した結果、溶解時間は日本で実施した 50°C での溶解時間よりも短いことが分かり、溶解温度が溶解特性に与える重要な因子であることが分かった。次に、Mo 吸着剤を用いた⁹⁹Mo 吸着/^{99m}Tc 溶離試験を行い、これらの Mo 吸着剤の⁹⁹Mo 吸着/^{99m}Tc 溶離特性はこれまでの試験結果と同等であった。これら結果から、本法により製造した⁹⁹Mo からの^{99m}Tc 製造プロセスの現実性に明るい見通しを得た。

本報告書は、日本原子力研究開発機構とカザフスタン共和国核物理研究所間の特定協力課題「RI 製造に関する照射技術 (STC No. 2-II)」に基づき実施した研究成果に関するものである。

大洗研究開発センター：〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002

*1：カザフスタン共和国 核物理研究所

**Performance Test of Mo Adsorbents with Irradiated High-density MoO₃ Pellets
(Joint Research)**

Akihiro KIMURA, Kaori NISHIKATA, Andrey NIKOLAYEVICH^{*1},
Tatyana VLADIMIROVNA^{*1}, Yelena CHAKROVA^{*1} and Kunihiko TSUCHIYA

Neutron Irradiation and Testing Reactor Center
Oarai Research and Development Center
Japan Atomic Energy Agency
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received December 27, 2013)

Research and development (R&D) on ⁹⁹Mo production with the activation method ((n, γ) method) have been performed in the research/testing reactors under the international cooperation between JAEA and INP (Institute of Nuclear Physics) in the Republic of Kazakhstan. The R&D items are the fabrication development of irradiation target, development and characterization of Mo adsorbents, and ^{99m}Tc extraction development in this cooperation. In this study, the irradiation tests of the high-density MoO₃ pellets and PIEs were carried out with WWR-K for the realization of ⁹⁹Mo/^{99m}Tc production procedure by the (n, γ) method.

High-density MoO₃ pellets were irradiated at the thermal neutron flux of $4.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ for 24 and 48 h, respectively. After neutron irradiation, the irradiated MoO₃ pellets were carried out the visual and weighing as PIEs and the pellets were sound from the results. The irradiated MoO₃ pellets were also dissolved with 6M-NaOH solution at 100°C. The solution speed of the pellets at 100°C was faster than that at 50°C and it was clear that dissolved temperature of MoO₃ pellet was important factor for the solution speed. ⁹⁹Mo adsorption/^{99m}Tc elution tests were carried out with Mo adsorbents such as the PZC (Polyzirconium compound) and PTC (polytitanium compound). It was obtained that the properties of ⁹⁹Mo adsorption/^{99m}Tc elution of these Mo adsorbents was equivalent in previous results. As these results, the prospects are bright for the realization of ⁹⁹Mo production procedure by the (n, γ) method.

Keywords: ⁹⁹Mo Production, (n, γ) Method, High-density MoO₃ Pellet, Mo Adsorbent, WWR-K

This report is based on the results of “STC No. II-2 : Irradiation Technology of RI production” under the Implementing Arrangement between JAEA and INP for Cooperation in Research and Development in Nuclear Energy and Technology.

*1: Institute of Nuclear Physics RK

目 次

1. 序 論	1
2. 試験方法	1
2.1 高密度 MoO ₃ ペレットの製作及び特性評価	1
2.2 高密度 MoO ₃ ペレットの照射試験	2
2.3 照射後特性試験方法	2
2.3.1 照射済 MoO ₃ ペレットの照射後試験方法	2
2.3.2 Mo 吸着剤の ⁹⁹ Mo 吸着・ ^{99m} Tc 溶離試験方法	3
3. 結果及び考察	4
3.1 高密度 MoO ₃ ペレットの未照射特性	4
3.2 WWR-K での照射履歴	4
3.3 照射後特性評価	5
3.3.1 照射済 MoO ₃ ペレットの照射後特性	5
3.3.2 Mo 吸着剤の ⁹⁹ Mo 吸着・ ^{99m} Tc 溶離特性	6
4. 結 論	7
謝辞	7
参考文献	8
付録 WWR-K における照射試験のための MoO ₃ ペレットの特性	22

Contents

1. Introduction	1
2. Test method	1
2.1 Manufacturing and characteristic evaluation of high-density MoO ₃ pellet	1
2.2 Irradiation test of high-density MoO ₃ pellet	2
2.3 Characteristic test method of post irradiation	2
2.3.1 Test method of post irradiation of irradiated MoO ₃ pellet	2
2.3.2 ⁹⁹ Mo adsorption/ ^{99m} Tc elution test method with Mo adsorbent	3
3. Results and discussion	4
3.1 Characterization of high-density MoO ₃ pellet	4
3.2 Irradiation history in WWR-K	4
3.3 Characteristic evaluation of post irradiation	5
3.3.1 Characterization of post irradiation of irradiated MoO ₃ pellet	5
3.3.2 Characterization of ⁹⁹ Mo adsorption/ ^{99m} Tc elution with Mo adsorbent	6
4. Conclusion	7
Acknowledgment	7
References	8
Appendix Specification of MoO ₃ Pellets for Irradiation Tests in WWR-K	22

1. 序 論

^{99m}Tc は医療用 RI として代表的なものであり、最も多く用いられる核種である。 ^{99m}Tc は親核種である ^{99}Mo を唯一の原料として生成される。この ^{99}Mo は、 ^{235}U の核分裂を利用した核分裂法（以下、(n, f) 法と呼ぶ）、 ^{98}Mo の中性子捕獲反応を利用した放射化法（以下、(n, γ) 法と呼ぶ）等により製造される。日本で使用している ^{99}Mo は (n, f) 法により製造されたものであり、すべて海外から輸入されている。一方、2009 年頃には、 ^{99}Mo 製造用原子炉のトラブル及びアイスランドの火山噴火による空路輸送障害等による ^{99}Mo の供給不安が発生したこともあった^{1, 2)}。このような背景から、「モリブデン-99/テクネチウム-99m の安定供給のための官民検討会」が設立され、我が国の安定供給に向けた検討が開始されるとともに、現在では「モリブデン-99 製造の事業化に向けた検討会」により具体的な事業化に向けた議論が行われている^{3, 4)}。

独立行政法人日本原子力研究開発機構（以下、JAEA と呼ぶ）大洗研究開発センターの照射試験炉センターでは、材料試験炉（Japan Materials Testing Reactor：以下、JMTR と呼ぶ）再稼働に伴う利用拡大の一環として、JMTR を用いた (n, γ) 法による ^{99}Mo 国産化に関する技術開発を行っている^{5, 6)}。(n, γ) 法による ^{99}Mo 製造は、(n, f) 法による製造と比較して、簡便な工程であること、放射性廃棄物発生量を低減できることなどの利点があるとともに、 ^{239}Pu が生成されず核セキュリティの観点からも有望とされている。しかしながら、 ^{99}Mo の生成量は少なく、そこから抽出される ^{99m}Tc 製品の放射能濃度も低いという欠点がある。そのため、 ^{99}Mo 生成量を多くするための照射ターゲットの開発、 ^{99}Mo を効率良く吸着できる吸着剤の開発及び抽出される ^{99m}Tc 製品の放射能濃度を高めるための濃縮方法の開発などの要素技術開発を行っている。照射ターゲットの開発としては、高密度の MoO_3 ペレット^{7, 8, 9, 10, 11)}、吸着剤の開発としては、無機高分子ジルコニウム化合物（Polyzirconium Compound：以下、PZC と呼ぶ）^{12, 13, 14, 15, 16)}及び無機高分子チタニウム化合物（Polytitanium Compound：以下、PTC と呼ぶ）^{17, 18, 19, 20)}、濃縮方法の開発としては、メチルエチルケトンを用いた溶媒抽出^{21, 22, 23)}に関する検討等が行われている。

本研究では、JAEA とカザフスタン共和国・核物理研究所（Institute of Nuclear Physics RK：以下、INP と呼ぶ）との国際協力の一環として、(n, γ) 法により製造した ^{99}Mo からの ^{99m}Tc 製造プロセスの現実性を確認するため、高密度 MoO_3 ペレットの照射試験及び照射済 MoO_3 ペレットを用いた照射後特性試験を行った。

2. 試験方法

2.1 高密度 MoO_3 ペレットの製作及び特性評価

本試験で使用する高密度 MoO_3 ペレットは、プラズマ焼結法のうちプラズマ高速放電焼結法（以下、Ed-PAS 法という）により製造した。高密度 MoO_3 ペレット製造装置（エレニクス製 Ed-PAS）の概略図を Fig. 1 に、高密度 MoO_3 ペレットの製作仕様を Table 1 に示す。 MoO_3 ペレットの製作に用いる MoO_3 始発粉末は、太陽鋳工製の天然同位体比を持つ MoO_3 粉末（純度：4N）を用いた。 MoO_3 粉

末中の不純物量を Table 2 に示す。なお、不純物分析は ICP 発光分光分析装置（エスアイアイ・ナノテクノロジー製 SPS3000）、原子吸光分析装置（日立ハイテクノロジーズ Z-5310）、イオンクロマトグラフ（ダイオネクス DX-120）、炭素・硫黄分析装置（堀場製作所 EMIA-920V）及び紫外可視分光光度計（島津製作所 UV-1200）を用いて行った。

準備した MoO_3 粉末を、焼結型に充填した後、その焼結型を製造装置にセットした。なお、焼結型は、グラファイトダイス及びグラファイトパンチから構成されている。焼結型をセット後、大気雰囲気において 20kN で圧縮すると共に、パルス電流を印加し、530°C まで約 6 分間かけて昇温した。昇温後、10 分間保持し焼結した。焼結操作後、焼結型を装置から取り外し、焼結型から MoO_3 ペレットを取り出した。焼結した MoO_3 ペレットは MoO_3 の一部が還元されることから、オゾンによる酸化処理を行った。照射試験用のペレットは表面加工により $\phi 18 \times 10\text{mm}$ の形状にした。準備した高密度 MoO_3 ペレットの特性試験項目を Table 3 に示す。

また、中性子照射試験後に実施する高密度 MoO_3 ペレットの溶解条件を決定するための溶解試験を行った。溶解試験は、高密度 MoO_3 ペレット（ $\phi 20 \times 10\text{mm}$ ）2 個を準備し、Table 4 に示す試験条件にて実施した。溶解で使用する 6M-NaOH 溶液はペレット重量の 2.5 (cm^3/g) 倍量を準備した。溶解は、ホットスターラー（アズワン製 HS-5BHSD）を用い、攪拌状態で、常温及び 50°C の溶解温度で行った。溶解時間の進行に伴う溶解液色の変化及び不溶性残渣の有無により溶解状態を確認し、完全に溶解する条件を決定した。

2.2 高密度 MoO_3 ペレットの照射試験

準備した高密度 MoO_3 ペレットは、JAEA 国際部にて輸出のための該非判定を行った後、INP に輸送し、INP にある WWR-K を用いた中性子照射試験に供した。

照射試験に用いる高密度 MoO_3 ペレット 4 個について、2 個ずつ石英製アンプル瓶に封入（以下それぞれを、照射試料 1 及び照射試料 2 と呼ぶ）し、Table 5 に示す照射条件で照射した。照射試料は、ペリフェリー・チャンネルと呼ばれる照射孔にて $4.9 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ の熱中性子束で照射された。照射試料 1 は 24 時間、照射試料 2 は 48 時間照射した後、それぞれ 16 日間、17 日間の冷却を行った。冷却後、照射試料を化学実験室に持ち込み、特性試験（照射後試験及び $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離試験）を行った。

2.3 照射後特性試験方法

2.3.1 照射済 MoO_3 ペレットの照射後試験方法

照射試料 1 及び照射試料 2 を、ホットセル内に設置されている切断機により開封し、照射済み高密度 MoO_3 ペレットを取り出した。なお、照射試料 1 から取り出した MoO_3 ペレットを試料 1-1 及び試料 1-2、照射試料 2 から取り出した MoO_3 ペレットを試料 2-1 及び試料 2-2 とした。

照射後試験として、目視による外観観察、電子天秤を用いた重量測定を行った。また、試料 1-1 及び試料 2-1 については、「2.1 高密度 MoO_3 ペレットの製作及び特性評価」で設定した溶解条件を参考にして、溶解試験を行った。溶解試験条件を Table 6 に示す。溶解で使用する 6M-NaOH 溶液はペレット重量の 2.5 (cm^3/g) 倍量を準備した。溶解は、ホットスターラーを用い、攪拌状態で、約 100°C の溶解温度で行った。溶解状態の観察として、溶解時間の進行に伴う溶解液色の変

化及び不溶解性残渣の有無を調べた。溶解液については、 ^{99}Mo 生成量を評価するため、その一部をサンプリングし、Ge 半導体検出器 (Euris measures 製 EGPC30-185-R) を用いて放射能濃度を測定した。

2.3.2 ^{99}Mo 吸着剤の ^{99}Mo 吸着・ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離試験方法

^{99}Mo 吸着・ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離試験に使用する ^{99}Mo 溶液を調製した。試料 1-1 及び試料 2-1 を溶解した $^{99}\text{MoO}_3$ 溶解液をそれぞれ 100 cm^3 メスフラスコに 10 cm^3 分取し、蒸留水にて希釈した。これらを ^{99}Mo 溶液 1 及び ^{99}Mo 溶液 2 とし、これらの溶液を用いて ^{99}Mo 吸着・ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離試験を行った。試験条件を Table 7 に示す。

(1) PZC

^{99}Mo 溶液 1 及び ^{99}Mo 溶液 2 を用いて PZC の ^{99}Mo 吸着・ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離試験を行った。

調製した ^{99}Mo 溶液 15 cm^3 及び 1M-HCl 0.7 cm^3 をガラス製三角フラスコへ分取し、その中へ PZC 1g を添加し、攪拌した。この三角フラスコを 90°C に設定した恒温乾燥器中 (Fisher Scientific 製 Isotemp) で 3 時間保温した。その際、 ^{99}Mo 溶液と PZC が十分接触するように 30 分毎に攪拌した。3 時間後、恒温乾燥器から三角フラスコを取出し、5 分間放冷した。放冷後、PZC に未吸着の ^{99}Mo (Mo) を除去するために、デカンテーションを行い、上澄み液を除去した。さらに、蒸留水を 5 cm^3 程度加え PZC を洗浄し、その上澄み液をデカンテーションにより除去した。この操作を除去した全液量が約 50 cm^3 になるまで繰返し行った。なお、本操作で回収した液を洗浄液と呼ぶ。洗浄後、 ^{99}Mo (Mo) を吸着させた PZC を、蒸留水を使用して、ポリプロピレン製カラムに充填した (以下、PZC カラム 1 又は 2 と呼ぶ)。充填は、カラムを通過し回収された液量が約 41 cm^3 になるよう調整しながら行った。なお、本操作で回収された液を充填液と呼ぶ。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の溶離の前準備として、カラムに溶離液と同じ生理食塩水を約 9 cm^3 通液した。これは、カラム充填までに生成した $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 及び未吸着の ^{99}Mo (Mo) を除去しコンディションを整えるための操作である。PZC に吸着した ^{99}Mo (Mo) 吸着量を算出するため、洗浄液、充填液及び生理食塩水を合わせたもの約 100 cm^3 から一部をサンプリングし、放射能濃度を Ge 半導体検出器により測定した。

カラム作製から一昼夜経過した後、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の溶離を行った。溶離操作は、PZC カラムに対して、溶離液を 3 $\text{cm}^3 \times 3$ 回通液し、生成した $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を溶離した。この溶離操作をさらに 1 回、24 時間後に行った。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離率を求めるため、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶出液の一部をサンプリングし放射能濃度を Ge 半導体検出器により測定した。また、不純物となる Mo 量を ICP 発光分光分析装置 (AMETEK 製 GENESIS) により測定した。

(2) PTC

^{99}Mo 溶液 1 及び ^{99}Mo 溶液 2 を用いて PTC の ^{99}Mo 吸着・ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離試験を行った。

調製した ^{99}Mo (Mo) 溶液 15 cm^3 及び 1M-HCl 5.7 cm^3 をガラス製三角フラスコへ分取し、その中へ PTC 1g を添加し攪拌した。この三角フラスコを 90°C に設定した恒温乾燥器中で 3 時間保温した。その際、 ^{99}Mo (Mo) 溶液と PTC がなじむように 30 分おきに攪拌した。3 時間後、恒温乾燥器から三角フラスコを取出し、5 分間放冷した。放冷後、PTC に未吸着の ^{99}Mo (Mo) を除去するために、デカンテーションを行い、上澄み液を除去した。さらに、蒸留水を 5 cm^3 程度加え PTC を洗浄し、

その上澄み液をデカンテーションにより除去した。この操作を除去した全液量が約 50 cm³ になるまで繰返し行った。なお、本操作で回収した液を洗浄液と呼ぶ。洗浄後、⁹⁹Mo (Mo) を吸着させた PTC を、蒸留水を使用して、ポリプロピレン製カラムに充填した (以下、PTC カラム 1 又は 2 と呼ぶ)。充填は、カラムを通過し回収された液量が約 41 cm³ になるよう調整しながら行った。なお、本操作で回収された液を充填液と呼ぶ。^{99m}Tc の溶離の前準備として、カラムに溶離液と同じ生理食塩水を約 9cm³ 通液した。これは、カラム充填までに生成した ^{99m}Tc 及び未吸着の ⁹⁹Mo (Mo) を除去しコンディションを整えるための操作である。PTC に吸着した ⁹⁹Mo (Mo) 吸着量を算出するため、洗浄液、充填液及び生理食塩水を合わせたもの約 100 cm³ から一部をサンプリングし、放射能濃度を Ge 半導体検出器により測定した。

カラム作製から一昼夜経過した後、^{99m}Tc の溶離を行った。溶離操作は、PTC カラムに対して、溶離液を 3cm³×3 回通液し、生成した ^{99m}Tc を溶離した。この溶離操作をさらに 1 回、24 時間後に行った。^{99m}Tc 溶離率を求めるため、^{99m}Tc 溶出液の一部をサンプリングし放射能濃度を Ge 半導体検出器により測定した。また、不純物となる Mo 量を ICP 発光分光分析装置により測定した。

3. 結果及び考察

3.1 高密度 MoO₃ ペレットの未照射特性

Ed-PAS 法により製造した高密度 MoO₃ ペレットの不純物測定結果を Table 8 に、外観写真を Fig. 2 に、測定した寸法及び質量、並びに計算により求めた密度を Table 9 に示す。不純物量は、製造原料である MoO₃ 粉末と比較すると、PO₄ 及び S で極微量の増加がみられた。これら不純物は、性質が Mo とは異なり PZC 及び PTC への吸着することはないため、^{99m}Tc 分離回収プロセスに与える影響はないと考えられる。製造したペレットの外観に有害な欠陥や割れ等は無かった。また、オゾン処理が施されているため、ペレット表面は白灰色を呈していた。

外径は全て仕様である φ20 mm×10 mm 又は φ18 mm×10 mm を満たしており、密度も 90% 以上であり、全て高密度ペレットとなった。

ペレットの溶解過程の写真を Fig. 3 及び Fig. 4 に示す。50°C で試験したペレットは、ペレット表面のうち特に熱源接触部である底部から溶解し、70 分で全量が溶解した。溶解液の色は無色透明で不溶性残渣も見られなかった。一方、室温 (20°C) において試験したペレットは、140 分経過時点では表面の一部のみの溶解にとどまり、全量が溶解することは無かった。そのため、H₂O₂ を 5cm³ 添加し溶解速度の促進を図ったが、大きな効果は得られず、さらに 140 分経過時点では半分以上は溶解したが、全量溶解することは無かった。結局、室温での溶解は H₂O₂ 未添加で 140 分及び H₂O₂ 添加後 140 分の計 280 分費やしたが、ペレットが全量溶解することは無かった。なお、一晩静置したところペレットは全量溶解していた。

3.2 WWR-K での照射履歴

WWR-K のペリフェリー・チャンネルの熱中性子束は 4.9×10^{13} n/cm²・s であり、照射試料 1 は 24 時間、照射試料 2 は 48 時間、そこで照射された。Table 10 に JAEA 及び INP それぞれが事前に

行った ^{99}Mo の生成量の評価結果を示す。JAEA では、一般的に使用されている熱中性子を用いた放射化の式²⁴⁾を用いて行った。式を以下に示す。

$$A = f \sigma N (1 - e^{-\lambda t}) = f \sigma N [1 - (1/2)^{t/T}]$$

$$\left(\begin{array}{l} f : \text{照射粒子束密度 (n/cm}^2 \cdot \text{s)} \\ \sigma : \text{放射化断面積 (cm}^2\text{)} \\ N : \text{試料元素の原子数} \\ \lambda : \text{生成核種の崩壊定数} \\ t : \text{中性子の照射時間} \\ T : \text{生成核の半減期} \end{array} \right)$$

計算結果は、照射試料 1 で 1.4 GBq/g-MoO₃、照射試料 2 で 2.4 GBq/g-MoO₃ であった。

INP でも、同様に一般的な式を用いて計算した後、係数 2.5 を乗じて評価を行った。通常時の WWR-K における ^{99}Mo 製造時に係る、 ^{99}Mo 生成の際の熱中性子の寄与は最大で 40% である。そのため、係数 2.5 を乗じている。計算結果は、照射試料 1 で 3.7 GBq/g-MoO₃、照射試料 2 で 6.5 GBq/g-MoO₃ であった。

3.3 照射後特性評価

3.3.1 照射済 MoO₃ ペレットの照射後特性

WWR-K で照射した高密度 MoO₃ ペレットの写真を Fig. 5 に示す。作業は、セル内で行っており、目視による外観観察は、鉛ガラス越しで行った。ペレットは、照射前と比べて若干黒灰色のムラを呈しているように見えた。また、アンプル瓶から取り出す際、若干表面が削れたようで、粉末がみられた。しかしながら、割れや欠け、著しい変形等もなく、本照射条件に対しペレットは健全であることを確認した。

ペレットの溶解過程の写真を Fig. 6 及び Fig. 7 に示す。試料 1-1 では 30 分、2-1 では 36 分と、どちらのペレットも 40 分以内で溶解した。溶解液の色は無色透明で不溶性残渣も見られなかった。コールド試験では 50°C で溶解を行ったのに対し、ホット試験では約 100°C で溶解を行った。そのため、溶解時間が約半分となった。本試験結果から、溶解時における温度ファクタが重要であることを確認した。

^{99}Mo 溶液の放射能濃度は、試料 1-1 において 13.7 MBq/cm³、試料 2-1 において 18.7 MBq/cm³ であり、今回の照射のうち、24 時間照射では 2.2 GBq/g-MoO₃ が、48 時間照射では 3.8 GBq/g-MoO₃ の ^{99}Mo が生成した。これら実測値は、JAEA 及び INP が評価した結果の間となった。JAEA 評価値の 1.6 倍が実測値となり、INP の評価値は、実測の 1.7 倍となった。JAEA の評価結果が測定値よりも低くなった原因として、熱外中性子の影響が考えられる。 ^{99}Mo 生成時における (n, γ) 反応では、熱中性子だけでなく熱外中性子も寄与するものと考えられる。INP の評価結果が測定値よりも大きくなったのは、照射試料の形状等が通常使用している試料とは異なり、JAEA が持ち込んだ高密度の MoO₃ であり、評価条件が異なっていたためと考えられる。

試料 1-1 溶解液の γ 線スペクトル図を Fig. 8 に、試料 2-1 溶解液の γ 線スペクトル図を Fig. 9 に示す。スペクトル図から分かるように ^{99}Mo 及び $^{99\text{m}}\text{Tc}$ のピークが大きく表れている。また、 $^{92\text{m}}\text{Nb}$ のピークが出現していた。これは ^{92}Mo の (n, p) 反応により生成したものと考えられる。

3.3.2 Mo 吸着剤の ^{99}Mo 吸着・ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離特性

(1) PZC の ^{99}Mo 吸着・ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離特性

^{99}Mo 吸着試験結果を Table 11 に示す。 ^{99}Mo 溶液中の ^{99}Mo (Mo) 量がそれぞれ、356.0mg 及び 359.1 mg 並びに放射能がそれぞれ 15.76MBq 及び 21.39MBq であり、洗浄液及び充填液を合わせた液中の放射能が 5.51MBq 及び 8.02MBq であった。このことから、PZC への ^{99}Mo (Mo) 吸着量は 231.5mg 及び 224.4 mg であった。

PZC を用いた $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離率を Table 12 に、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶出液中の ^{99}Mo を Table 13 に、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離プロファイルを図 10 及び 11 に示す。本試験における PZC カラム 1 の溶離率は 74.5 及び 78.3% を示し、PZC カラム 2 の溶離率は 84.6 及び 82.6% を示した。溶離特性としては、溶離プロファイルから分かるように第 1 フラクシオンに極大ピークがあり、第 2 フラクシオン以降でのピークは低くなった。各フラクシオンには Mo が不純物として混入しており、PZC カラム 1 では 0.35~0.91mg、PZC カラム 2 では、0.34~0.92mg を示した。混入の傾向としては、フラクシオン及びミルキングが進むにつれ不純物量が減少していった。

なお、カラム 1 及びカラム 2 の結果は、従来の研究結果¹⁶⁾と同様の値であり、明確な差が無かったと考える。このことから、照射時間が ^{99}Mo 吸着・ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離に与える影響がないことを確認した。

(2) PTC の ^{99}Mo 吸着・ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離特性

^{99}Mo 吸着試験結果を Table 14 に示す。 ^{99}Mo 溶液中の ^{99}Mo (Mo) 量がそれぞれ、356.0mg 及び 359.1 mg 並びに放射能がそれぞれ 15.76MBq 及び 21.39MBq であり、洗浄液及び充填液を合わせた液中の放射能が 5.87MBq 及び 8.96MBq であった。このことから、PTC への ^{99}Mo (Mo) 吸着量は 223.5mg 及び 208.7 mg であった。

PTC を用いた $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離率を Table 15 に、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶出液中の ^{99}Mo を Table 16 に、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離プロファイルを図 12 及び 13 に示す。本試験における PTC カラム 1 の溶離率は 89.7 及び 81.4% を示し、PTC カラム 2 の溶離率は 87.2 及び 83.2% を示した。溶離特性としては、溶離プロファイルから分かるように第 1 フラクシオンに極大ピークがあり、第 2 フラクシオン以降でのピークは低くなった。各フラクシオンには Mo が不純物として混入しており、PTC カラム 1 では 0.15~3.72、PTC カラム 2 では、0.19~3.78 を示した。混入の傾向としては、フラクシオンが進むにつれ、また、ミルキングが進むにつれ不純物量が減少していった。

なお、カラム 1 及びカラム 2 の結果は、従来の研究結果²⁰⁾と同様の値であり、明確な差が無かったと考える。このことから、照射時間が ^{99}Mo 吸着・ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶離に与える影響がないことを確認した。

4. 結 論

製造した高密度 MoO₃ ペレットの焼結密度は約 92%T.D であり一軸加圧法で製造したペレット (約 70%T.D) と比較し約 1.3 倍の焼結密度となった。これにより生成量も約 1.3 倍となる。このペレットの溶解における重要なファクタとして温度があげられる。今回の試験範囲 (100℃まで) においては、できる限り高温で行うことにより溶解時間を短縮できることを確認した。一方、H₂O₂ の添加は、大きく溶解速度を促進する効果がないことを確認した。

照射済 ⁹⁹MoO₃ ペレットを用いた ⁹⁹Mo 吸着・^{99m}Tc 溶離試験については、PZC 及び PTC への ⁹⁹Mo (Mo) 吸着量及び ^{99m}Tc 溶離率はこれまでの研究結果と同等の値であり、今後の予測精度の向上に繋がる成果である。照射試料の照射時間の違いにより ⁹⁹Mo 吸着・^{99m}Tc 溶離に関しても明確な差異は見られなかった。

これらのことから高密度 MoO₃ ペレットを使用することによる ^{99m}Tc 製造プロセス上の問題は無いと考えられる。^{99m}Tc 溶出液中にはブレイクスルーした Mo が混入していた。特に PTC では多量の混入がみられた。各カラム下部に Mo 除去用のアルミナカラム等を装着し、^{99m}Tc 溶出液への Mo 混入を防止する必要がある。

本試験により、高密度 MoO₃ ペレット並びに PZC 及び PZC を用いた、(n, γ) 法により製造した ⁹⁹Mo からの ^{99m}Tc 分離回収プロセスの成立に関する基礎的なデータを取得することができ、現実性について明るい見通しを得た。今後は、データの蓄積と共に、実用化に向けた実証試験を行っていく予定である。

謝 辞

本報告は、「日本原子力研究開発機構とカザフスタン原子力センター (NNC) との間の原子力科学分野における研究開発協力のための実施取決め」に係る特定協力課題「STC No. 2-II : RI 製造に関する照射技術」の一環として、カザフスタン共和国の核物理研究所 (INP) との共同実験の成果である。

本研究開発の実施にあたり、アート科学株式会社 新関 智丈氏、太陽鋳工株式会社 掛井 貞紀氏、大洗研究開発センター 照射試験炉センター 荒木 政則センター長及び材料試験炉部 石原 正博部長に有意義なご指導及びご助言を頂きました。また、本報告をまとめるにあたり、福島技術開発試験部 分析技術課 梅田 幹課長、照射試験炉センター 照射試験開発課 石田 卓也氏には多大なご協力を頂きました。さらに、照射試験炉センター及び材料試験炉部諸氏には多大なご協力を頂きましたことを深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 朝日新聞 2010年4月19日.
- 2) 中村 吉秀, 「テクネチウム-99m 放射性医薬品の安定供給の現状と課題」,
<http://www.com-info.org/ima/ima_20100721_nakamurayoshihide.html>.
- 3) 会議報告 第2回シンポジウム「RI 国内製造に向けての開発研究」日本原子力学会誌
アトモス Vol.52, No.12, 2010, p.61.
- 4) 第28回原子力委員会 試料第2-1号「我が国のテクネチウム製剤の安定供給」に向けての
アクションプラン,
<<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/iinkai/teirei/siryu2011/siryu28/siryu2-1.pdf>>.
- 5) 照射試験炉センター, 「照射試験炉センターの活動報告 2007年度」JAEA-Review 2008-081,
2009, 30p.
- 6) Inaba, Y. et al., 「Status of development on ⁹⁹Mo production technologies in JMTR」
IEEE Transactions on Nuclear Science 58-3, 2011, pp.1151-1158.
- 7) Kimura, A. et al., 「Development of High Density MoO₃ Pellets for Production of ⁹⁹Mo
Medical Isotope」 Materials Science and Engineering 18, 2011, 042001.
- 8) 西方 香緒里ほか, 「放射性モリブデン溶液の作製方法」, 特願2011-248993.
- 9) Nishikata, K. et al., 「Fabrication and characterization of high-density MoO₃ pellets」
Proceedings of 2012 Powder Metallurgy World Congress & Exhibition (PM2012) , Yokohama
Japan, 2012, in CD-ROM.
- 10) Nishikata, K. et al., 「Fabrication Development of High-Density MoO₃ Pellets for (n,
γ) ⁹⁹Mo Production」, 5th International Symposium on Material Testing Reactor (5th ISMTR) ,
Columbia, USA, 2011, <<http://www.murr.missouri.edu/ismtr/index.shtml>>.
- 11) Tsuchiya, K. et al., 「DEVELOPMENT OF ⁹⁹Mo-^{99m}Tc DOMESTIC PRODUCTION WITH HIGH-DENSITY
MoO₃ PELLETS BY (n, γ) REACTION」, 5th International Symposium on Material Testing Reactor
(5th ISMTR), Columbia, USA, 2011, <<http://www.murr.missouri.edu/ismtr/index.shtml>>.
- 12) 長谷川 良雄ほか, 「⁹⁹Mo-^{99m}Tcジェネレータ用Mo吸着剤およびその製造方法」,
特許第2857394号.
- 13) Tanase, M. et al., 「A ^{99m}Tc Generator using a New Inorganic Polymer Adsorbent for (n,
γ) ⁹⁹Mo」, Appl. Radiat. Isot., 48, 1997 pp.607-611.
- 14) FNCA : FNCA 2006 研究炉利用ワークショップ,
<http://www.fnca.mext.go.jp/rru/ws_2006.htm>.
- 15) 木村 明博ほか, 「(n, γ)法用モリブデン吸着材の ⁹⁹Mo 吸着及び ^{99m}Tc 溶離特性」
JAEA-Technology 2009-075, 2010, 23p.
- 16) 木村 明博ほか, 「(n, γ)法用モリブデン吸着材の ⁹⁹Mo 吸着及び ^{99m}Tc 溶離特性の再確認試験」
JAEA-Testing 2010-002, 2010, 20p.
- 17) 長谷川 良雄ほか, 「無機高分子系モリブデン吸着剤及びその製造方法」, 特願 2010-263801.

- 18) 木村 明博ほか, 「塩素フリー無機高分子系 Mo 吸着剤の開発」 JAEA-Technology 2011-012, 2011, 17p.
- 19) 木村 明博ほか, 「JMTR を用いた ^{99}Mo 国産化への挑戦— ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ジェネレータ用新型 Mo 吸着剤の開発—」, 未来を拓く原子力, 2011, p.116.
- 20) 木村 明博ほか, 「 ^{99}Mo 製造における Mo リサイクル技術の予備試験 (1)」, JAEA-Technology 2013-025, 2013, 40p.
- 21) 木村 明博ほか, 「高濃度かつ高放射能をもつテクネチウム- $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 溶液の製造方法」, 特願 2011-173280.
- 22) Kimura, A. et al., 「DEVELOPMENT OF $^{99\text{m}}\text{Tc}$ EXTRACTION-RECOVERY BY SOLVENT EXTRACTION METHOD」, 4th International Symposium on Material Testing Reactors (4th ISMTR), Oarai, Japan, 2011, pp.147-150, in CD-ROM, JAEA-Conf 2011-003.
- 23) Tanase, M. et al., 「DEVELOPMENT OF $^{99\text{m}}\text{Tc}$ PRODUCTION FROM (n, γ) ^{99}Mo 」, 5th International Symposium on Material Testing Reactor (5th ISMTR), Columbia, USA, 2011, <<http://www.murr.missouri.edu/ismtr/index.shtml>>.
- 24) 柴田 徳思 (編著者), 「放射線概論」, (株)通商産業研究社, 2011, 846p.

Table 1 Specification of high density MoO₃ pellets

Outer diameter (mm)	Thickness (mm)	Density (%T.D.)
20	10	>90
18	10	>90

Table 2 Impurities in MoO₃ powder

Ig-loss	Na	K	MgO	CaO	W	Fe
0.10	<0.0005	<0.0005	<0.0001	<0.0001	0.002	<0.0001
Cu	Al ₂ O ₃	Si	Pb	PO ₄	S	Cl
<0.0001	<0.001	<0.001	<0.001	0.0005	<0.001	<0.002

(%)

Table 3 Characterization tests item

Test item	Method	Criterion
Material inspection	Confirm the impurities of MoO ₃ pellets	Do not contain impurities with the pellets remarkably
Visual inspection	Visual check under natural light or white light	Externals should include neither injurious defects nor damage.
Dimension inspection	Dimensions of each part are measured with the micrometer or calipers.	Measured values should not exceed dimension tolerance
Mass inspection	Sample is weighed with an electronic balance with precision of 0.01g	Confirm measured values

Table 4 Dissolution test condition with high density MoO₃ pellets

	Weight of pellet (g)	Volume of 6M-NaOH (cm ³)	Temperature of dissolution (°C)
Sample 1	13.8	34.5	R.T
Sample 2	13.8	34.5	50

Table 5 Irradiation condition

		Irradiation time (h)	Irradiation hole	Thermal flux (n/cm ² · s)
Sample 1	Sample 1-1	24	periphery channel	4.9x10 ¹³
	Sample 1-2			
Sample 2	Sample 2-1	48		
	Sample 2-2			

Table 6 Dissolution test condition with high density MoO₃ pellets

	Weight of pellet (g)	Volume of 6M-NaOH (cm ³)	Temperature of dissolution (°C)
Sample 1-1	11	27.5	100
Sample 2-1	11	27.5	100

Table 7 ⁹⁹Mo adsorption/^{99m}Tc elution test condition with PZC and PTC

Adsorbent	PZC		PTC	
	1	2	1	2
⁹⁹ Mo solution				
Adsorbent weight (g)	1			
Volume of ⁹⁹ Mo(Mo) solution (cm ³)	15			
Activity (MBq)	15.76	21.39	15.76	21.39
Mo weight (mg)	356.0	359.1	356.0	359.1
pH of ⁹⁹ Mo(Mo) solution	7		4	
Adsorption time (h)	3			
Adsorption temperature (°C)	90			
Eluate	Saline			
Fraction of eluate	3 (cm ³) x 3			
Milking repetition	2			

Table 8 Impurities in high density MoO₃ pellet

Ig-loss	Na	K	MgO	CaO	W	Fe
0.08	<0.0005	<0.0005	0.0002	0.0001	0.002	<0.0001
Cu	Al ₂ O ₃	Si	Pb	PO ₄	S	Cl
0.0001	<0.001	<0.001	<0.001	0.0020	0.003	<0.002

(%)

Table 9 Manufactured MoO₃ pellets

No.	Outer diameter (mm)	Weight (g)	Density (%T.D.)
1	φ20.01 x 10.06	13.92	93.8
2	φ20.00 x 10.08	13.68	92.3
3	φ17.99 x 10.02	10.91	91.4
4	φ18.03 x 9.99	11.03	92.2
5	φ17.99 x 9.99	11.08	93.0
6	φ18.01 x 9.93	11.02	92.9
7	φ18.02 x 10.00	11.14	93.2

Table 10 Evaluation of generated ⁹⁹Mo

	Sample 1 (Sample1-1, 1-2)	Sample 2 (Sample2-1, 2-2)
JAEA calculation	1.4 x 10 ⁹	2.4 x 10 ⁹
INP calculation	3.7 x 10 ⁹	6.5 x 10 ⁹

(Bq/g-MoO₃)

Table 11 Result of Mo adsorption tests (PZC)

	Added Mo (mg)	Activity in ⁹⁹ Mo sol. (Bq)	Activity in Washing sol. (Bq)	Activity in PZC column (Bq)	Adsorped Mo (mg/g·PZC)
PZC-column 1	356.0	15.76E+06 ±3.97E+03	5.51E+06 ±2.34E+03	10.25E+06	231.5
PZC-column 2	359.1	21.39E+06 ±4.62E+03	8.02E+06 ±2.83E+03	13.37E+06	224.4

Table 12 ^{99m}Tc elution rate with adsorbent (PZC)

Milking	cm ³	PZC 1	PZC 2
1 st	0-3	66.0	75.2
	3-6	7.3	7.7
	6-9	1.2	1.7
	SUM	74.5	84.6
2 nd	0-3	72.8	73.9
	3-6	4.9	7.2
	6-9	0.6	1.5
	SUM	78.3	82.6

(%)

Table 13 Impurity in ^{99m}Tc solution (PZC)

Milking	cm ³	Impurity	PZC 1	PZC 2
1 st	0-3	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	0.74	0.83
		Mo (mg)	0.91	0.92
	3-6	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	5.26	4.55
		Mo (mg)	0.56	0.54
	6-9	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	19.02	19.65
		Mo (mg)	0.43	0.44
2 nd	0-3	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	0.63	0.50
		Mo(mg)	0.69	0.74
	3-6	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	N.D	N.D
		Mo (mg)	0.47	0.44
	6-9	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	N.D	29.19
		Mo (mg)	0.35	0.34

Table 14 Result of Mo adsorption tests (PTC)

	Added Mo (mg)	Activity in ⁹⁹ Mo sol. (Bq)	Activity in Washing sol. (Bq)	Activity in PTC column (Bq)	Adsorped Mo (mg/g·PTC)
PTC-column 1	356.0	15.76E+06 ±3.97E+03	5.87E+06 ±2.42E+03	9.89E+06	223.5
PTC-column 2	359.1	21.39E+06 ±4.62E+03	8.96E+06 ±2.99E+03	12.43E+06	208.7

Table 15 ^{99m}Tc elution rate with adsorbent (PTC)

Milking	cm ³	PTC 1	PTC 2
1st	0-3	85.7	84.1
	3-6	2.7	2.7
	6-9	1.3	0.4
	SUM	89.7	87.2
2nd	0-3	80.1	81.7
	3-6	0.9	1.2
	6-9	0.4	0.3
	SUM	81.4	83.2

(%)

Table 16 Impurity in ^{99m}Tc solution (PTC)

Milking	cm ³	Impurity	PTC 1	PTC 2
1st	0-3	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	2.96	3.48
		Mo (mg)	3.72	3.78
	3-6	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	12.74	N.D
		Mo (mg)	0.24	0.29
	6-9	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	12.25	45.43
		Mo (mg)	0.19	0.21
2nd	0-3	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	2.00	0.18
		Mo (mg)	2.14	2.23
	3-6	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	N.D	N.D
		Mo (mg)	0.22	0.25
	6-9	Bq- ⁹⁹ Mo /Bq- ^{99m} Tc (%)	N.D	N.D
		Mo (mg)	0.15	0.19

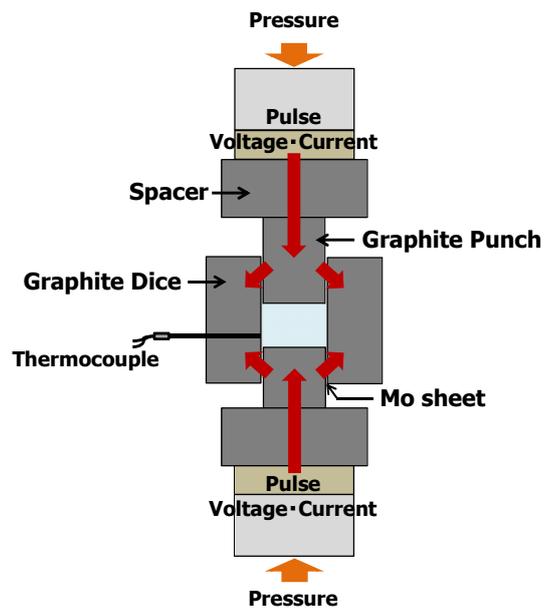


Fig.1 Schematic diagram of equipment for fabrication of high-density MoO₃ pellets

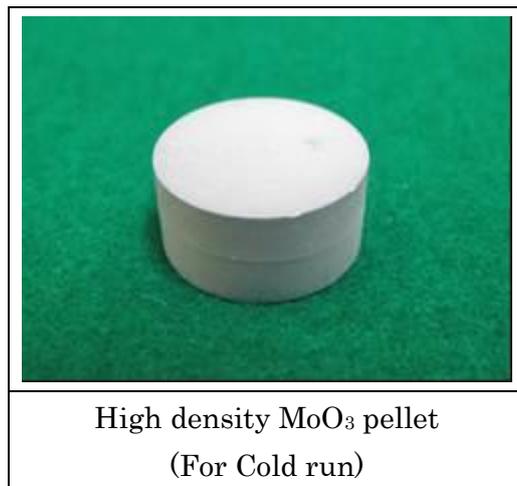


Fig.2 Photograph of high-density MoO₃ pellet

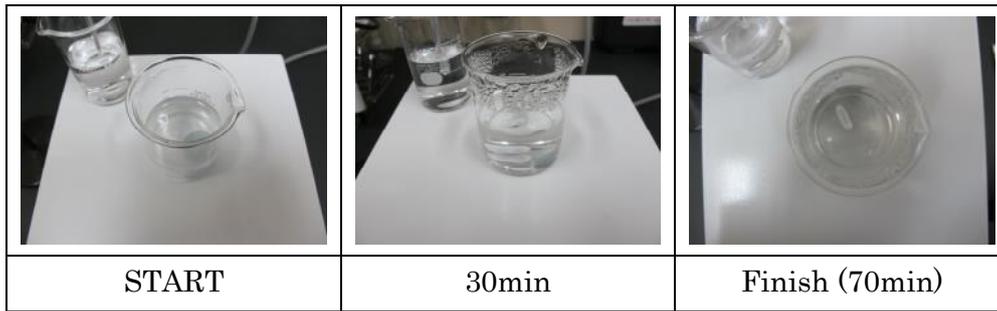


Fig.3 Photograph of dissolution test of high-density MoO₃ pellet
(Dissolution temp. : 50°C)

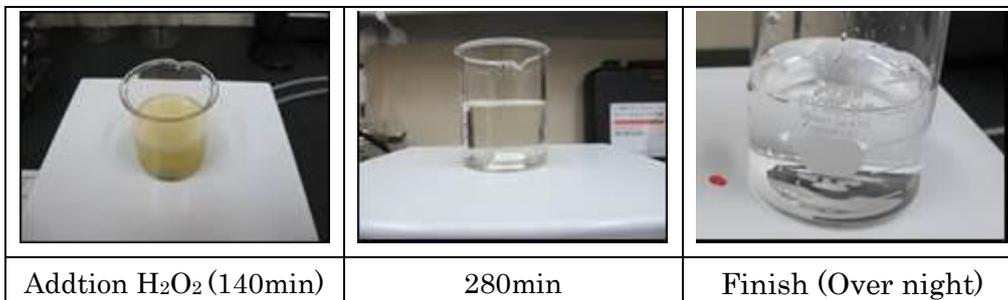
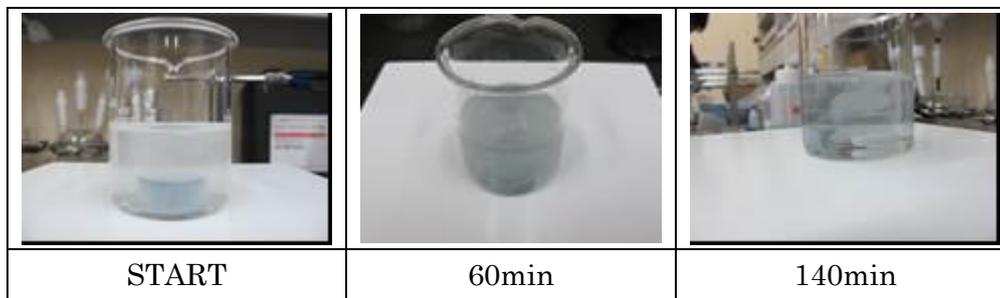


Fig.4 Photograph of dissolution test of high-density MoO₃ pellet
(Dissolution temp. : R.T)

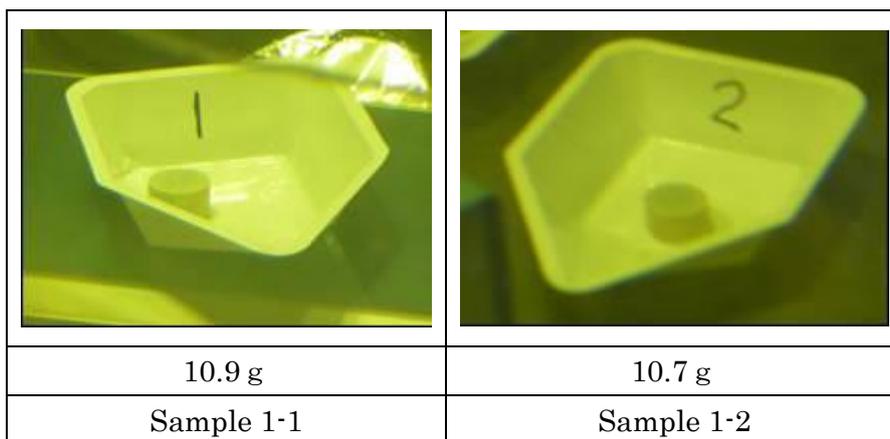


Fig.5 Photograph of irradiated high-density MoO₃ pellet

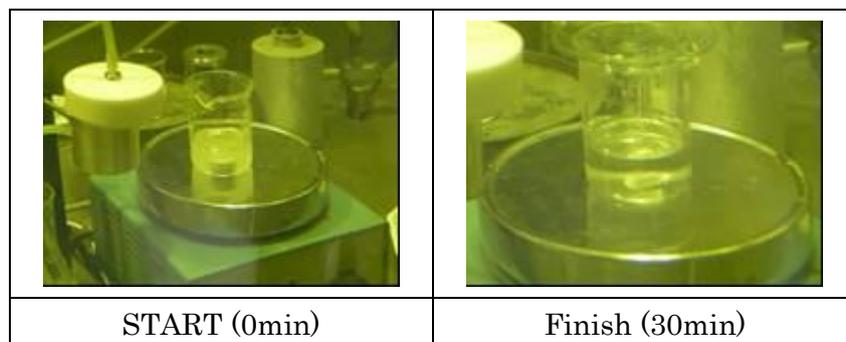


Fig.6 Photograph of dissolution test of irradiated high-density MoO₃ pellet in Hot cell
(Sample1-1)

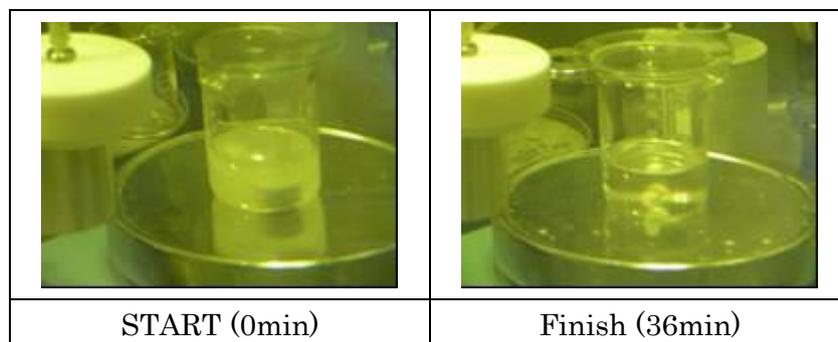


Fig.7 Photograph of dissolution test of irradiated high-density MoO₃ pellet in Hot cell
(Sample2-1)

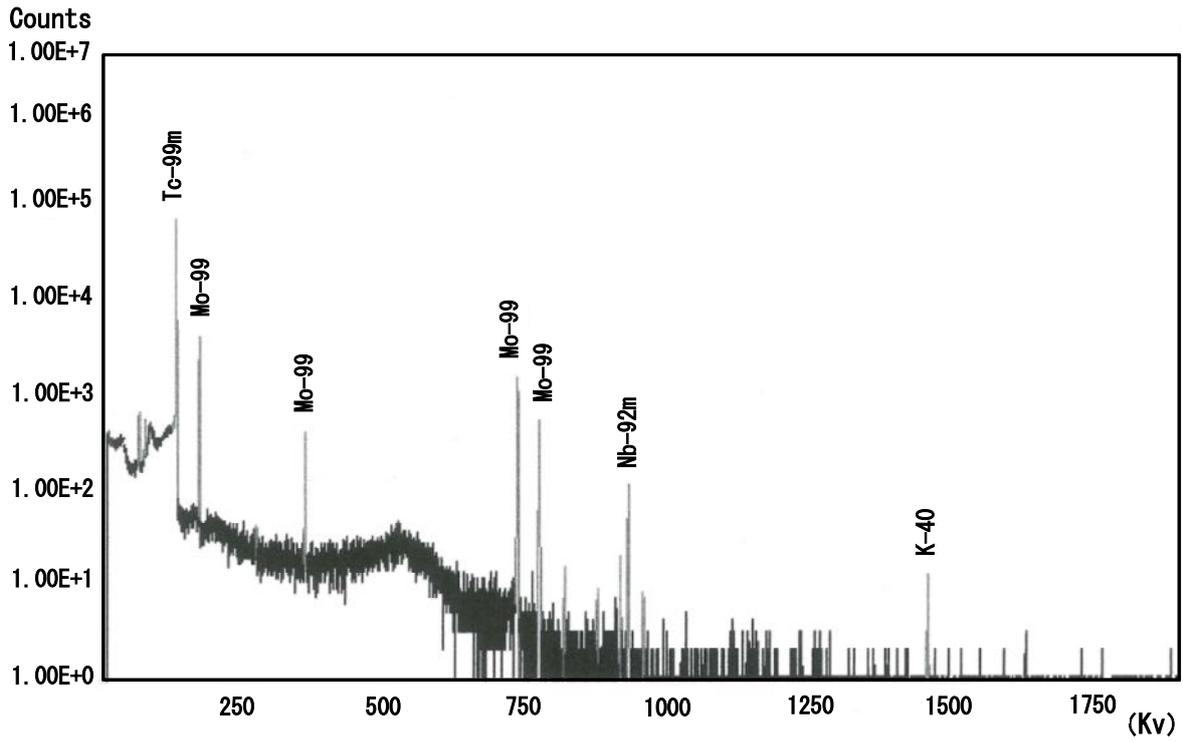


Fig.8 γ -ray spectrogram (Sample1-1)

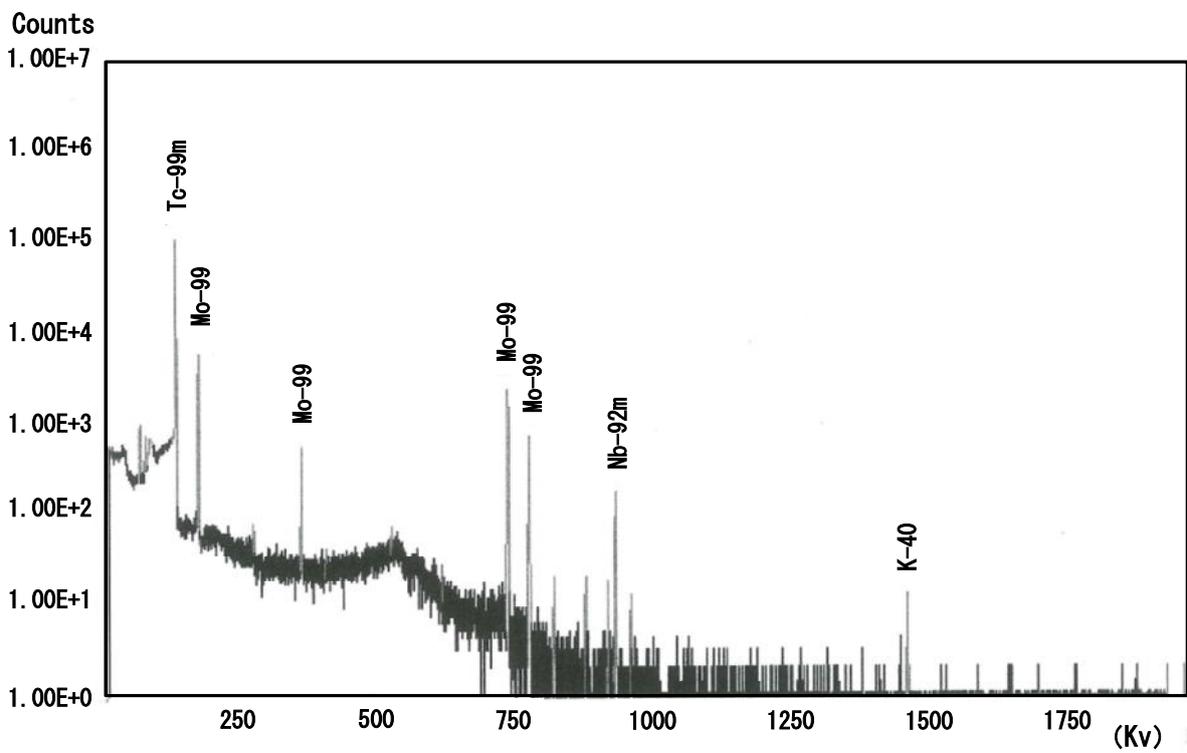


Fig.9 γ -ray spectrogram (Sample2-1)

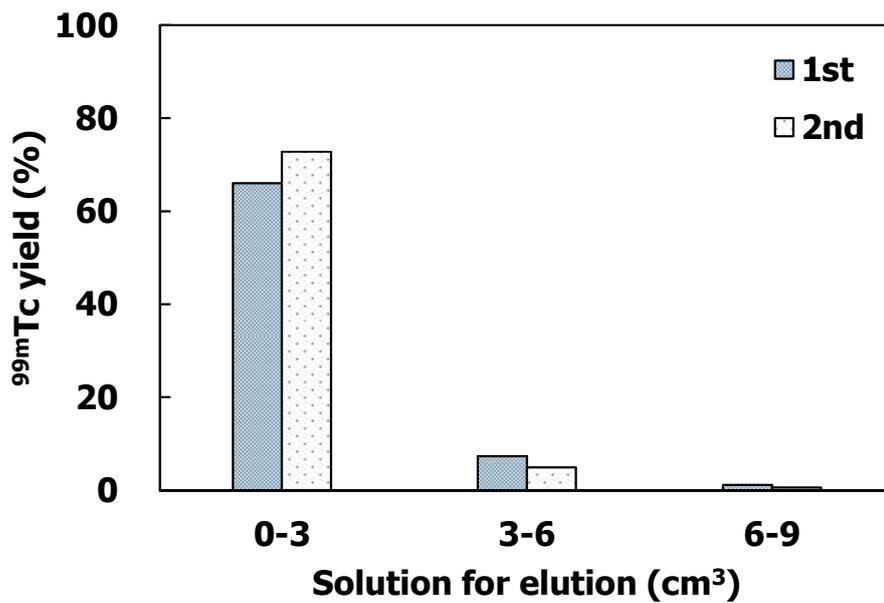


Fig.10 ^{99m}Tc elution profile (PZC 1)

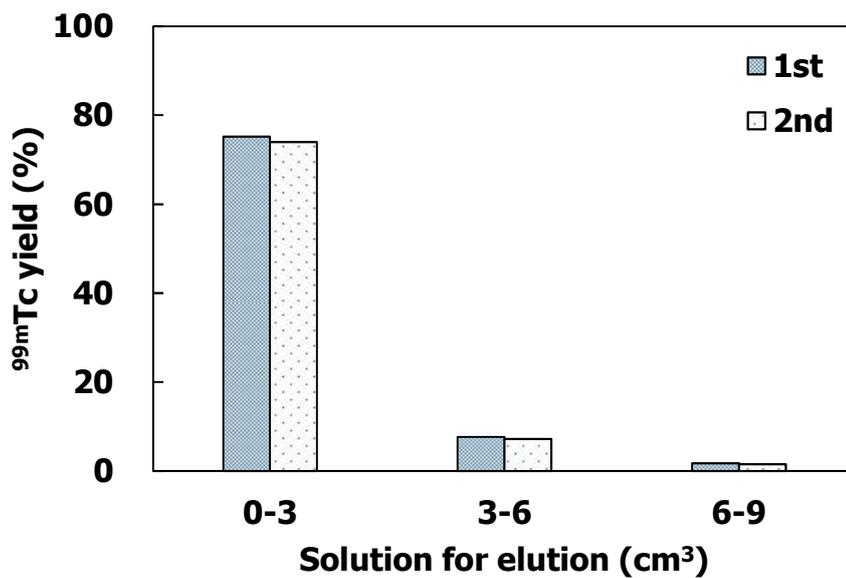


Fig.11 ^{99m}Tc elution profile (PZC 2)

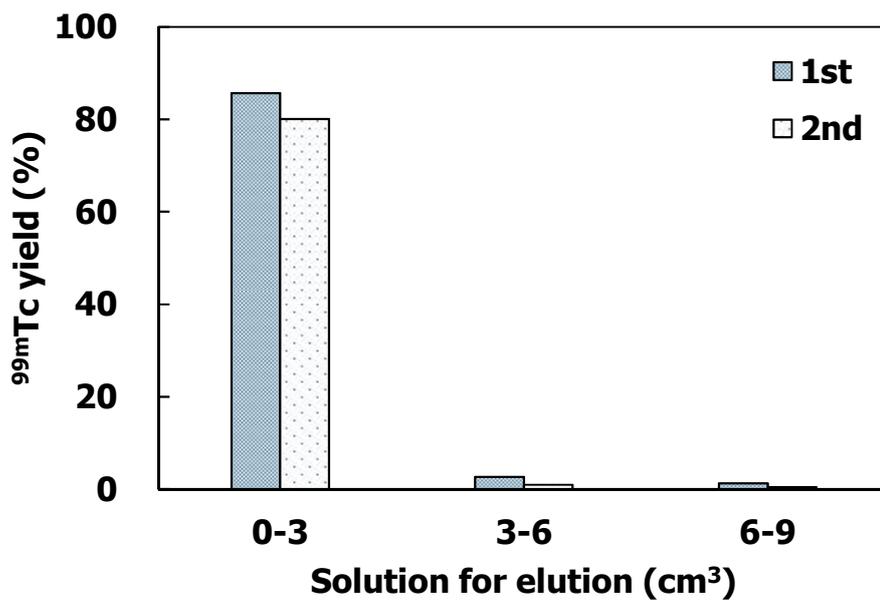


Fig.12 ^{99m}Tc elution profile (PTC 1)

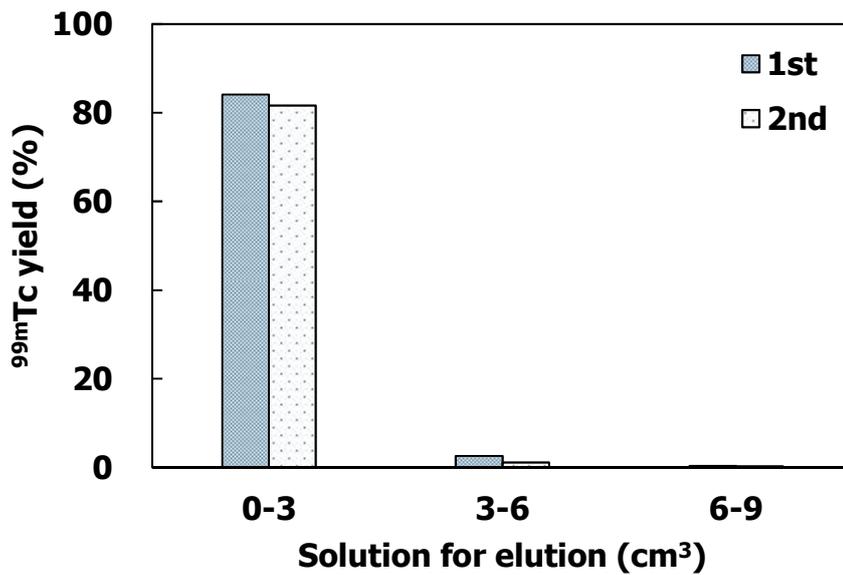


Fig.13 ^{99m}Tc elution profile (PTC 2)

Appendix

Specification of MoO₃ Pellets for Irradiation Tests in WWR-K

December 2012

Irradiation Engineering Section,
Neutron Irradiation and Testing Reactor Center,
Oarai Research and Development Center,
Japan Atomic Energy Agency

Contents

1. Outline	24
2. Applied standards	24
3. Targets	24
4. Place of inspection	24
5. Inspection items	24
6. Results of inspection	25
(1) Material inspection	26
1) Results of X-ray diffraction	26
2) Impurity contents (Mill sheet)	27
(2) Visual inspection	28
(3) Dimension inspection	29
(4) Number inspection	29
(5) Mass inspection	29
Appendix 1	30

1 . Outline

This document is the specification of ry-oxide molybdenum pellet (MoO₃ Pellets) for the irradiation tests in WWR-K under the international cooperation.

2 . Applied standards

- (1) Japanese Industrial Standards (JIS)
- (2) Japanese Society of Mechanical Engineers (JSME)

3 . Targets

The following table shows targets of this experiment inspection certification.

Production method	Irradiation samples	Number	Remarks
Plasma sintering method (Ed-PAS)	High density MoO ₃ pellets (Natural isotope ratio)	5 pcs.	

4 . Place of inspection

Chemical laboratory of Irradiation Engineering building of Irradiation and Testing reactor center in Oarai Research and Development center

5 . Inspection items

Inspection Items	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	Remarks
	Material inspection	Visual inspection	Dimension inspection	Number inspection	Mass inspection	
Targets of inspection High density MoO ₃ Pellets (Natural isotope ratio)	●	◎	●	◎	●	

Remarks : ◎ : eyesight, ● : Confirmations of documents

Criterion			
Name		MoO ₃ Pellets	
No.	Inspection Items	Inspection method	Criterion
(1)	Material inspection	Confirm crystal structure is that of MoO ₃ using X ray diffraction. Confirm the impurity contents of MoO ₃ pellets.	(1) The target materials should have the crystal structure of MoO ₃ according to the X-ray diffraction chart. (2) The impurity contents of MoO ₃ pellets should be measured.
(2)	Visual inspection	Perform visual check under natural light or white light.	Externals should include neither injurious defects nor damage.
(3)	Dimension inspection	Dimensions of each part are measured with the micrometer or calipers.	Measured values should not exceed the dimension tolerance written in Table 4.
(4)	Number inspection	Confirm a number of samples.	The number should agree with prescribed number.
(5)	Mass inspection	Sample is weighed with an electronic balance with precision of 0.01g.	Confirm the measured values written in Table 4.
【Remarks】			

6 . Results of inspection

Results of inspection based on the inspection items is shown as follows,

(1) Material inspection <X-ray diffraction & Contents of impurities>

1) Results of X-ray diffraction

Irradiation samples	X ray diffraction chart (Crystal structure)
High density MoO ₃ pellets (Natural isotope ratio)	Fig. 1

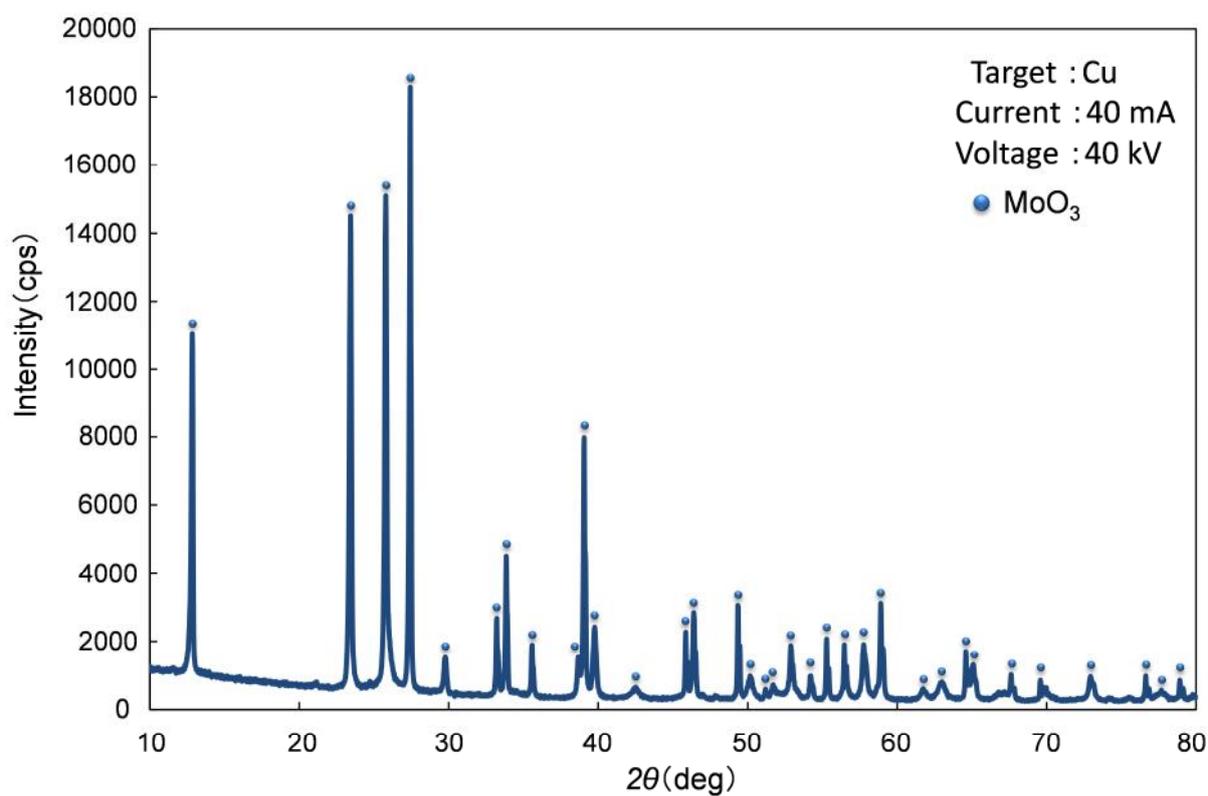


Fig. 1 X-ray diffraction chart of high density a MoO₃ Pellet.

2) Impurity Contents

Irradiation samples	Impurity Contents
High density MoO ₃ pellets (Natural isotope ratio)	Table 2

Table2 Contents of impurities in high density MoO₃ pellet (Natural isotope ratio)

(Unit : %)

Sample name	Ig-loss	Na	K	MgO	CaO	W	Fe
Value of standard	<0.20	<0.005	<0.003	—	<0.001	<0.020	<0.003
Sintered pellet	0.08	<0.0005	<0.0005	0.0002	0.0001	0.002	<0.0001
Sample name	Cu	Al ₂ O ₃	Si	Pb	PO ₄	S	Cl
Value of standard	<0.001	—	<0.005	<0.001	—	<0.002	<0.010
Sintered pellet	0.0001	<0.001	<0.001	<0.001	0.0020	0.003	<0.002

(2) Visual inspection

Irradiation samples	Photos of externals	Number
High density MoO ₃ pellets (Natural isotope ratio)	Fig. 3	5

Lot No. 1

Pellet No.	Fig	Sintered density (Unit : %T.D.)
1		91.4
2		92.2
3		93.0
4		92.9
5		93.2

Fig. 3 High density MoO₃ Pellet (Lot No.1)

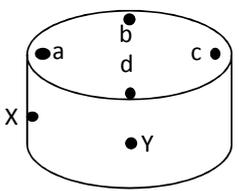
(3) Dimension inspection

(4) Number inspection

(5) Mass inspection

Irradiation samples	Dimension inspection	Number inspection	Mass inspection
High density MoO ₃ pellets (Natural isotope ratio)	Table4		

Table4 Inspection certification in dimensions and weight of the high density MoO₃ Pellets

Data sheet of MoO ₃ pellets (size and density)												
Sample name		MoO ₃ pellet										
Dimensional inspection								Math formula of balancing				
 <ul style="list-style-type: none"> • Measure point <p>Equipment used</p> <ul style="list-style-type: none"> ▪ Micrometer ▪ Vernier caliper 								$H = \frac{t_{max} - t_{min}}{D_{av}}$ <p>t_{max} Maximum of thick t_{min} Minimum of thick D_{av} Average of outside diameter</p>				
Sample No.		Outside diameter (mm)			Thick (mm)					Balancing	Weight	Density
		φ 18 ± 0.5 mm			10 ± 0.5 mm					<0.2	(g)	%T.D.
		X	Y	Average	a	b	c	d	Average	calculation value	—	calculation value
Lot No. 1	1	17.99	17.98	17.99	10.02	10.05	10.02	9.99	10.02	0.0033	10.91	91.4
	2	18.02	18.04	18.03	10.02	9.98	9.98	9.97	9.99	0.0028	11.03	92.2
	3	17.99	17.99	17.99	9.98	10.00	10.00	9.97	9.99	0.0017	11.08	93.0
	4	18.00	18.01	18.01	9.92	9.94	9.99	9.88	9.93	0.0061	11.02	92.9
	5	18.02	18.02	18.02	9.99	10.00	10.00	9.99	10.00	0.0006	11.14	93.2

Appendix 1



Photograph of pellets case

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 ²
体積	立法メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(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
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b)
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s
電荷, 電気量	クーロン	C	s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C	K
光照射度	ルーメン	lm	cd sr ^(c)
放射線量	グレイ	Gy	J/kg
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq	s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg
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 ^(g)	Sv	J/kg
酸素活性化	カタール	kat	s ⁻¹ 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み、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
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s
表面張力	ニュートンメートル	N m
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²
熱流密度, 放射照度	ワット毎平方メートル	W/m ²
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m ³
電表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m ²
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²
誘電率	ファラド毎メートル	F/m
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s
放射線強度	ワット毎ステラジアン	W/sr
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³

表5. SI接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ²⁴	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
分	min	1 min=60s
時	h	1 h=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	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ 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	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ 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=0.1 MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322 Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1 nm=100 pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852 m
バイン	b	1 b=100 fm ² =(10 ¹² cm) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600) m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	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	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1 Pa s
ストークス	St	1 St=1 cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1 cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオト	ph	1 ph=1 cd sr cm ⁻² 10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1 cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1 Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(c)	Oe	1 Oe _e =(10 ³ /4π) A m ⁻¹

(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 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1 cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1メートル系カラット=200 mg=2×10 ⁻⁴ 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	1 cal=4.1858 J (「15°C」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1 μm=10 ⁻⁶ m

