JAEA-Technology
2015-030
DOI:10.11484/jaea-technology-2015-030

中性子放射化法による^{99}Mo/^{99m}Tc製造に関する試験体系の確立

Establishment of Experimental System for ^{99}Mo/^{99m}Tc Production by Neutron Activation Method

石田 卓也　椎名 孝行　太田 朗生　木村 明博
西方 香緒里　柴田 晃　棚瀬 正和　小林 正明
佐野 忠史　藤原 靖幸　土谷 邦彦

Takuya ISHIDA, Takayuki SHIINA, Akio OHTA, Akihiro KIMURA
Kaori NISHIKATA, Akira SHIBATA, Masakazu TANASE, Masaaki KOBAYASHI
Tadafumi SANO, Yasuyuki FUJIHARA and Kunihiko TSUCHIYA

原子力科学研究部門
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
Sector of Nuclear Science Research

November 2015
Japan Atomic Energy Agency
日本原子力研究開発機構

JAEA-Technology

本レポートは国立研究開発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。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 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
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, 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, 2015

JAEA-Technology 2015-030

中性子放射化法による ^{99}Mo/^{99m}Tc 製造に関する試験体系の確立

日本原子力研究開発機構　原子力科学研究部門
大洗研究開発センター　照射試験炉センター

石田　卓也※1、椎名　孝行※2、太田　朗生※2、木村　明博、
西方　香緒里、柴田　晃、棚瀬　正和*1、小林　正明*2、
佐野　忠史*3、藤原　靖幸*3、土谷　邦彦

(2015 年 9 月 2 日　受理)

照射試験炉センターでは、材料試験炉(JMTR)を用いた中性子放射化法((n, γ)法)によるモリブデン-99(^{99}Mo)製造に関する技術開発を行っている。(n, γ)法による ^{99}Mo は、核分裂法((n,f)法)と比べると比放射能が低く、得られるテクネチウム-99m(^{99m}Tc)溶液の放射能濃度も低くなる。この課題を解決するため、(n, γ)法で製造した ^{99}Mo から ^{99m}Tc を回収する手法として、メチルエチルケトン(MEK)を用いた溶媒抽出法に着目し、開発した ^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験装置による性能試験を行っている。

本報告書は、^{99}Mo/^{99m}Tc 製造の試験体系を確立するため、高い ^{99m}Tc 回収率を得ることができるよう装置の改良を行い、京都大学研究用原子炉(KUR)で照射した高密度三酸化モリブデン(MoO_3)ペレットを用いて、MoO_3ペレット溶解及び ^{99m}Tc の抽出を行い、得られた ^{99m}Tc 溶液の品質試験を行った結果をまとめたものである。

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：技術開発協力員
※2：外来研究員（株式会社 千代田テクノル）
＊1：株式会社 千代田テクノル
＊2：富士フイルム RI ファーマ株式会社
＊3：京都大学原子炉実験所

JAEA-Technology 2015-030

Establishment of Experimental System for ^{99}Mo/^{99m}Tc Production by Neutron Activation Method

Takuya ISHIDA※1, Takayuki SHIINA※2, Akio OHTA※2, Akihiro KIMURA,
Kaori NISHIKATA, Akira SHIBATA, Masakazu TANASE*1, Masaaki KOBAYASHI*2,
Tadafumi SANO*3, Yasuyuki FUJIHARA*3 and Kunihiko TSUCHIYA

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

(Received September 2, 2015)

The research and development (R&D) on the production of ^{99}Mo/^{99m}Tc by neutron activation method ((n, γ) method) using JMTR has been carried out in the Neutron Irradiation and Testing Reactor Center. The specific radioactivity of ^{99}Mo by (n, γ) method is extremely low compared with that by fission method ((n,f) method), and as a result, the radioactive concentration of the obtained ^{99m}Tc solution is also low. Focusing on the solvent extraction method with methyl ethyl ketone (MEK) as the recovery method of ^{99m}Tc from ^{99}Mo produced by (n, γ) method to solve the problem, we have developed the ^{99}Mo/^{99m}Tc separation/extraction/concentration devices, and we have carried out the performance tests with the devices.

In this report, in order to establish an experimental system for ^{99}Mo/^{99m}Tc production, the R&D results of the system are summarized on the improvement of the devices for high-recovery rate of ^{99m}Tc, on the dissolution of the pellets, which is the high-density molybdenum trioxide (MoO_3) pellets irradiated in Kyoto University Research Reactor (KUR), on the production of ^{99m}Tc, and on the inspection of the recovered ^{99m}Tc solutions.

Keywords: (n, γ) Method, ^{99}Mo/^{99m}Tc Production, ^{99m}Tc Solutions, JMTR, KUR

※1：Collaborating Engineer
※2：Visiting Researcher (Chiyoda Technol Co., Ltd.)
＊1：Chiyoda Technol Co., Ltd.
＊2：FUJIFILM RI Pharma Co., Ltd.
＊3：Kyoto University Research Reactor Institute

目　次

1. はじめに 1
2. MoO_3ペレットの照射試験 1
2.1 試験方法 1
2.1.1 照射試料の準備 1
2.1.2 照射試験 2
2.1.3 照射済 MoO_3ペレットの輸送及び取出 3
2.2 試験結果及び考察 4
2.2.1 検査結果 4
2.2.2 照射場評価と ^{99}Mo 生成量 4
2.2.3 照射済 MoO_3ペレットの輸送評価 5
3. $^{99}Mo/^{99m}Tc$ 分離・抽出・濃縮試験 5
3.1 試験方法 6
3.1.1 $^{99}Mo/^{99m}Tc$ 分離・抽出・濃縮試験装置の改良 6
3.1.2 照射済 MoO_3ペレットの溶解試験 6
3.1.3 $^{99}Mo/^{99m}Tc$ 分離・抽出・濃縮試験 6
3.1.4 ^{99m}Tc 溶液の品質試験 8
3.2 試験結果及び考察 8
3.2.1 $^{99}Mo/^{99m}Tc$ 分離・抽出・濃縮試験装置の性能 8
3.2.2 照射済 MoO_3ペレットの溶解特性 9
3.2.3 $^{99}Mo/^{99m}Tc$ 分離・抽出・濃縮特性 10
3.2.4 ^{99m}Tc 溶液の品質評価 12
4. まとめ 12
謝　辞 13
参考文献 14
付録Ａ　^{99m}Tc と Re の関係 36
付録Ｂ　逐次壊変の解法について 38

Contents

1. Introduction 1
2. Irradiation test of MoO_3 pellets 1
2.1 Procedures for irradiation test 1
2.1.1 Preparation of irradiation samples 1
2.1.2 Irradiation test of samples 2
2.1.3 Transportation and decapsulation of irradiated samples 3
2.2 Results and Discussion 4
2.2.1 Fabrication of irradiation samples 4
2.2.2 Evaluation of irradiation holes and amount of produced ^{99}Mo 4
2.2.3 Transportation evaluation of irradiated samples 5
3. $^{99}Mo/^{99m}Tc$ separation/extraction/concentration tests 5
3.1 Experiments 6
3.1.1 Modification of $^{99}Mo/^{99m}Tc$ separation/extraction/concentration devices 6
3.1.2 Dissolution of irradiated MoO_3 pellets 6
3.1.3 $^{99}Mo/^{99m}Tc$ separation/extraction/concentration tests 6
3.1.4 Inspection of ^{99m}Tc solution 8
3.2 Results and Discussion 8
3.2.1 Evaluation of $^{99}Mo/^{99m}Tc$ separation/extraction/concentration devices 8
3.2.2 Dissolution of irradiated MoO_3 pellets 9
3.2.3 $^{99}Mo/^{99m}Tc$ separation/extraction/concentration properties 10
3.2.4 Evaluation of ^{99m}Tc solution 12
4. Conclusion 12
Acknowledgment 13
References 14
Appendix A Relation between ^{99m}Tc and Re 36
Appendix B For the solution of successive decay 38

1．はじめに

核医学の分野において、^{99m}Tc は放射性診断薬として最も多く用いられる放射性同位元素の一つである。^{99m}Tc は、親核種である ^{99}Mo を原料として生成される。日本で使用している ^{99}Mo はすべて輸入に依存しており、^{99}Mo 製造用原子炉のトラブル、火山噴火のような自然現象による空路輸送障害などによる ^{99}Mo の供給不安が起きている。そのため、^{99}Mo の国産化が喫緊の課題となっている[1,2]。

^{99}Mo の製造方法は、ウラン-235(^{235}U)を原料にして原子炉内で核分裂を起こさせ、生成された多くの核分裂生成物中から ^{99}Mo を抽出して製造する核分裂法((n,f)法)と、天然に存在している安定元素 ^{98}Mo(存在比約 24.13%)に中性子を照射し、^{98}Mo(n,γ)^{99}Mo 核反応により ^{99}Mo を製造する中性子放射化法((n,γ)法)がある。しかし、ほとんどの ^{99}Mo は(n,f)法により製造されている[3]。

(n,f)法は、高濃縮ウランの核分裂反応によって製造するため、比放射能の高い ^{99}Mo が得られる利点があるが、核不拡散上の懸念のある高濃縮ウランの使用、放射性廃棄物の発生量が多いなどの欠点がある。一方、(n,γ)法は、高濃縮ウランの代わりに天然モリブデンを使用するため、放射性廃棄物の発生量が少ないなどの大きな利点があるが、比放射能が低く、そこから得られる ^{99m}Tc 溶液の放射能濃度も低い欠点がある。そのため、(n,γ)法を利用する場合、低い ^{99}Mo 放射能濃度から ^{99m}Tc を高効率で回収し、高い放射能濃度かつ高純度の ^{99m}Tc 溶液を製造するための技術開発が必要不可欠となる。これまで、文部科学省原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ(以下、「原子力イニシアティブ」と呼ぶ)の要素技術として、^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験装置を改良し、^{99m}Tc 回収率の向上に見通しが得られた[4]。

本開発では、これらの知見に基づき、京都大学研究用原子炉(KUR)で高密度 MoO_3 ペレットを照射し、6M-NaOH 溶液を用いて照射済 MoO_3 ペレットの溶解及び溶媒抽出による ^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験を行った。さらに、得られた ^{99m}Tc 溶液の品質試験を行い、JMTR の再稼働に向けた実証試験体系の確立を図った。本報告書における試験フローを図 1-1 に示す。

2．MoO_3 ペレットの照射試験

これまでに KUR の水圧輸送管(HYD)及び傾斜照射孔(SLANT)を用いて、開発した高密度 MoO_3 ペレットの照射試験を行った。本章では、①照射試料の準備、②照射試験、③照射済 MoO_3 ペレットの輸送及び取出について述べる。

2.1 試験方法

2.1.1 照射試料の準備

(1) 高密度 MoO_3 ペレットの製作及び加工

粉体の焼結体製作法では、パルス通電を用いた焼結プロセスとしてプラズマ焼結法が注目されている[5,6]。プラズマ焼結法には、放電プラズマ焼結法(SPS：Spark Plasma Sintering)、

パルス通電加圧焼結法（PECS：Pulse Electric Current Sintering）及びプラズマ活性化焼結(Ed-PAS:Plasma Activated Sintering)法がある。

本試験で用いた高密度 MoO_3 ペレットは、プラズマ焼結法の一つである Ed-PAS 法により製作した。KUR 照射用 MoO_3 ペレットの仕様を表 2.1-1 に、製作に使用した MoO_3 始発粉末中の不純物元素の分析値を表 2.1-2 に示す。太陽鉱工製 MoO_3 粉末(純度：99.99%、天然同位体比)を黒鉛製焼結型に充填し、Ed-PAS 装置に焼結型を取付た後、焼結温度 530℃、焼結圧力 66.8MPa、焼結時間 10 分間、大気雰囲気で焼結した。

なお、KUR 照射用アルミニウム製密封容器(以下、「密封容器」と呼ぶ)の大きさに合わせて高密度 MoO_3 ペレットを装荷するため、焼結後の MoO_3 ペレット形状をφ18×10 mm とした。

(2) 密封容器の組立

KUR の HYD 及び SLANT を用いた照射試験で使用する密封容器の設計・製作を行った[7]。本密封容器は、外径φ21mm、全長 53mm に MoO_3 ペレット(φ18×10mm)を 3 個と緩衝材であるアルミニウム箔を配置し、内部に高純度ヘリウムガスを大気圧封入した。密封容器の製作図を図 2.1-1 に示す。また、密封容器への MoO_3 ペレット照射試料の組立は、以下の手順で行った。

① 照射試料等の組込み前作業
部品の写真撮影後、洗浄等。

② 照射試料等の組込み
ビニール製クリーンボックス内にて、密封容器内に MoO_3 ペレット(3 個)を装荷。

③ 電子ビーム溶接(EBW：Electron Beam Welding)作業
製作図に示す溶接個所(W1)について、電子ビーム溶接機により溶接。

④ ヘリウムガス溶封作業
可変雰囲気溶接装置を使用し、ヘリウム封入孔(W2)より 3 回以上の高純度ヘリウムガス置換を実施し、ヘリウムガス置換時の圧力は、1.33×10^{-3} Pa 以下とした。
高純度ヘリウムガスを大気圧充填後、専用治具を使用してテーパピンを装荷。ヘリウム漏れ検査を実施し、漏洩が無いことを確認した後、溶封ピンを挿入し、電子ビーム溶接を行った。

⑤ 刻字
外筒端面部に容器番号をヴァイブロツールにて刻字(文字の大きさ:5mm□、線巾 1mm、深さ 0.05mm 以下)。

組立後の密封容器の外観写真を図 2.1-2 に示す。

2.1.2 照射試験

製作した高密度 MoO_3 ペレットを密封容器に封入し、アルミニウム製の HYD 用照射カプセル(図 2.1-3 参照)に入れて、KUR の HYD 及び SLANT で照射試験を行った。高密度 MoO_3 ペレット中の ^{99}Mo 生成量は、KUR 照射設備における熱中性子束の公称値(HYD:約 1.6×10^{13} n/cm^2・s、SLANT:約 7.8×10^{11} n/cm^2・s)を用いて評価した。なお、照射時間は、KUR ホットラボ施設にお

ける ^{99}Mo 及び ^{99m}Tc 取扱量の制限値、KUR での冷却時間及び KUR から JMTR ホットラボまでの輸送時間を考慮し、HYD では 3 時間 12 分、SLANT では 24 時間とした。

また、より正確な ^{99}Mo 生成量を評価するため、中性子モニタと呼ばれるドシメータの質量を測定後に照射試験を行い、KUR の HYD 及び SLANT における中性子束の測定を行った。ドシメータには、インジウム(In)箔、カドミウム(Cd)被覆付き In 箔及びニッケル(Ni)箔を用いた。この内、In 箔は熱中性子束、Ni 箔は高速中性子束の測定に用いた。なお、Cd 被覆には、厚さ 1mm、直径 10mmφの板を用いた。各ドシメータの特性を表 2.1-3 に示す。これらのドシメータは、MoO_3ペレットと同様に HYD 用照射カプセルに入れて KUR の熱出力 1MW 時に HYD で 15 分間、または SLANT で 10 分間照射された(図 2.1-4 参照)。

2.1.3 照射済 MoO_3ペレットの輸送及び取出

本試験は、KUR、JMTR ホットラボ及び富士フイルム RI ファーマ(FRI)の 3 事業所に渡って行われるため、予め照射試験計画を策定した(図 2.1-5 参照)。照射済 MoO_3ペレットは一定期間冷却した後、A 型輸送物として KUR から JMTR ホットラボに輸送する。照射済 MoO_3ペレットは事業所外運搬となるため、JMTR ホットラボ課が所有している輸送容器(TYC-501A)を選定した(図 2.1-6 参照)。事前にガンマ線遮へい計算システム「γShielder」を用いて、輸送容器表面及びその表面から 1m 離れた位置における線量当量率を評価した。

HYD で照射した試料は、約 114 時間の冷却保管後、KUR ホットラボ棟のセル内に移動し照射カプセルの蓋を開封して密封容器を取出し、線源収納容器に収納した。セル背面から取出した線源収納容器を輸送容器に収納し、サーベイメータで輸送容器表面及び表面から 1m 離れた位置における線量当量率を測定した。また、輸送容器表面を拭き取り法により表面密度を測定した。

輸送容器表面の 2 箇所に第二類黄標識を貼り、封印鉛を施し、KUR ホットラボ棟管理区域から輸送容器を搬出した。車両に輸送容器を固縛、車両の線量当量率を測定後、KUR を出発し翌朝に JMTR ホットラボに到着した(図 2.1-7 参照)。JMTR ホットラボ放射線管理員により輸送容器及び車両の線量当量率及び表面密度を測定、異常がないことを確認後、JMTR ホットラボ管理区域に搬入した。

輸送容器から線源収納容器を取出し、天井クレーンで鉛セル No.3 に搬入した。マニプレータで線源収納容器の蓋を取外し、線源収納容器の中から密封容器を取出した。同セル内に設置した内筒切断用パイプカッタを用いて密封容器を切断し、照射済 MoO_3ペレット 3 個を取出した。このパイプカッタは、①密封容器を素早く切断できる、②切断時に切り粉が発生しない、③バリが極力発生しない、などの特徴を有する高速パイプカッタである(図 2.1-8 参照)。取出した照射済 MoO_3ペレット 3 個について、外観検査及び写真撮影を行った。

2.2 試験結果及び考察

2.2.1 検査結果

(1) 高密度 MoO_3 ペレットの製作及び加工

高密度 MoO_3 ペレットを密封容器の大きさに合わせて装荷するため、焼結後の MoO_3 ペレット形状(φ20×10 mm からφ18×10 mm)に加工した。製作した高密度 MoO_3 ペレットの測定結果を表 2.2-1 に示す。

Ed-PAS 法により製作した高密度 MoO_3 ペレットは、焼結時の黒鉛材料による浸炭あるいは還元によって MoO_3(白色)から Mo_nO_{3n-m}(黒色)の状態になっているため、80℃×2 時間の条件でオゾンガスによる表面酸化処理を行い、ペレット表面を MoO_3 状態に戻した。

(2) 密封容器の組立

組立完了後の密封容器について、表 2.2-2 に示す試験検査を行い、全ての検査項目に合格した。

2.2.2 照射場評価と ^{99}Mo 生成量

KUR の HYD 及び SLANT で照射する前に、ドシメータの質量を測定した(表 2.2-3～4 参照)。照射した各ドシメータは、KUR にある HPGe 検出器(型式：CANBERA GC4020)を用いてガンマ線を測定し、中性子束を評価した。ここで、熱中性子束の評価については、カドミ差し引き法を用いた。中性子束の評価に必要な HYD 及び SLANT における各放射化箔の実効断面積は、連続エネルギーモンテカルロ計算コード MVP2.0[8] と JENDL-4.0 及び JENDL/D99[9] により求めた。本照射試験にあたっては、KUR の SLANT での中性子束の評価(KUR 熱出力 1MW 時で 10 分間照射)も行ったので、その結果についても記述する。

KUR の HYD 及び SLANT における中性子束の評価結果を表 2.2-5 に示す。HYD の中性子束は、これまでの KUR 公称値に対して、熱中性子束が 1.14 倍、熱外中性子束が 5.90 倍及び高速中性子が 0.91 倍であった。一方、SLANT では、公称値に対して熱中性子束が 1.03 倍、熱外中性子束が 2.65 倍及び高速中性子が 0.90 倍であった。これまで、これらの照射孔の公称値は高濃縮ウラン燃料を使用していた時の値であった。このため、燃料組成や燃料配置が現在の炉心とは異なり、中性子束測定用ドシメータも金(Au)を用いて測定した結果であった。今回の測定により、これらの照射孔における中性子束がより正確に評価できたと考える。

各照射領域における中性子スペクトルについて、核計算コード MVP2.0、断面積ライブラリ JENDL-4.0 を使用し、数値計算を行った。なお、数値計算にあたっては、各燃料要素の燃焼度分布(縦方向 30 ノード、追跡核種：219 核種)、炉心温度、ドシメータ照射時の制御棒位置を考慮した。エネルギー107 群表示の中性子スペクトルを図 2.2-1 に示す。なお、得られた中性子スペクトルは、実験で求めた熱中性子束で規格化している。これによって、熱領域のマクスウェル分布だけではなく、核分裂中性子によるピークも認められた。次に、HYD 及び SLANT 照射領域における ^{98}Mo 中性子捕獲率を図 2.2-2 に示す。本図は、各エネルギーに対する全 ^{98}Mo 中性子捕獲率が 1 となるよう規格化している。したがって、^{98}Mo 中性子捕獲率は熱中性子領域だけではなく、12.2eV に存在する第一共鳴(63.7b)や共鳴領域及び非分離共鳴領

域でも大きいことが分かった。特に、共鳴領域においては中性子捕獲断面積に対する共鳴積分が 6.907b と熱中性子断面積(0.132b)よりも大きい[10]ことから、^{98}Mo 生成量評価には熱中性子だけではなく全エネルギーの中性子束評価が必要なことが明らかになった。

図 2.2-2 に示したエネルギー依存の ^{98}Mo 中性子捕獲率を使用し、中性子スペクトルを考慮した ^{99}Mo 生成量を評価した。表 2.2-6 に照射直後の ^{99}Mo 生成量を示す。全中性子エネルギーを考慮した ^{98}Mo 生成量は、HYD では熱中性子束のみを考慮した場合と比較して約 3.5 倍であった。なお、SLANT では約 2.0 倍であった。

天然モリブデンを原子炉で中性子照射する場合、(n, γ)反応による ^{99}Mo 生成以外に、^{92}Mo の(n,p)反応により ^{92m}Nb(半減期：10.15d)が生成される。^{92}Mo の(n,p)断面積はしきい値が約 2.0MeV であり、核分裂スペクトル平均断面積は 10.75mb であるため無視できない。そこで、図 2.2-1 で得られた中性子束スペクトルを用いて評価した結果、単位質量当たり MoO_3 中の ^{92m}Nb 生成量は、HYD で 4.7×10^5Bq/g、 SLANT で 3.0×10^4Bq/g であった。

2.2.3 照射済 MoO_3 ペレットの輸送評価

事前にガンマ線遮へい計算システム「γShielder」を用いて、輸送容器表面及びその表面から 1m 離れた位置における線量当量率を評価した結果を表 2.2-7 に示す。選定した輸送容器(TYC-501A)で運搬の基準値(表面における線量当量率＜2mSv/h、表面から 1m 離れた位置における線量当量率＜100μSv/h)を満足することが確認できた。

照射済 MoO_3 ペレットを収納した輸送容器表面及び表面から 1m 離れた位置における線量当量率をサーベイメータにより測定した結果を表 2.2-8 に示す。測定した線量当量率は、ガンマ線遮へい計算システムによる評価値より、輸送容器表面で約 4 倍高かったが、輸送可能な数値であった。また、輸送容器表面の表面密度はβ(γ)＜4.0Bq/cm^2 であり、輸送に問題ないことを確認した。

JMTR ホットラボ管理区域の鉛セル No.3 に密封容器を搬入後、内筒切断用パイプカッタを用いて密封容器を切断し、照射済 MoO_3 ペレット 3 個が取出せることを確認した。取出した照射済 MoO_3 ペレットを外観検査した結果、照射及び輸送時の振動・衝撃による割れや欠けは無かったが、ペレット表面は照射前に比べて濃灰色になっていた。照射済 MoO_3 ペレットの外観写真を図 2.2-3 に示す。

３．^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験

これまでの試験において、^{99m}Tc 回収率の目標値(80±5%)が安定して得られなかったので、^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験装置を改良する必要があった。装置改良後に KUR の HYD で照射した MoO_3 ペレットを用いて、①照射済 MoO_3 ペレットの溶解試験、②^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験、③^{99m}Tc 溶液の品質試験を行った。

3.1 試験方法

3.1.1 ^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験装置の改良

平成 23～25 年度にかけて、原子力イニシアティブの研究課題として、「JMTR を用いた放射化法による ^{99}Mo/^{99m}Tc の国産化技術開発」を行った[11]。この研究開発では、Mo 溶解液に ^{99m}Tc と同様な挙動を示す模擬元素であるレニウム(Re)を添加し、メチルエチルケトン(MEK)を用いた溶媒抽出法による ^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験装置を開発した。本装置の系統図を図 3.1-1 に示す。

JMTR の再稼動が遅れたので、開発した高密度 MoO_3 ペレットを KUR で照射し、照射済 MoO_3 ペレットを JMTR ホットラボに輸送し、ホットラボにある鉛セルにおいて、照射済 MoO_3 ペレットの溶解、^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験を行った。得られた ^{99m}Tc 溶液は、品質確認として、pH、放射性核種純度試験、放射化学的純度試験、化学的純度試験(アルミニウム(Al)及び MEK)、浸透圧試験及びエンドトキシン試験を行った(図 3.1-2 参照)。

これまでに原子力イニシアティブで実施した ^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験における ^{99m}Tc 回収率及び濃縮係数の結果を表 3.1-1 に示す[4]。初期の分離・抽出・濃縮試験では、^{99m}Tc 回収率は目標値である 80±5%を安定して得られなかった。また、濃縮係数についても、各試験で大きなばらつきがあった。このため、^{99m}Tc を Re で模擬した炉外試験として、①溶媒抽出後における MEK(有機相)の分離回収精度の向上、②アルミナカラム内径の最適化の 2 項目に着目し、^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験装置の改良を行った。

3.1.2 照射済 MoO_3 ペレットの溶解試験

密封容器から取出した照射済 MoO_3 ペレットの外観検査及び写真撮影終了後、鉛セル No.2 に本ペレットを移動した。同セル内に設置した MoO_3 ペレット溶解装置を用いて溶解試験を行った。本装置の概略図を図 3.1-3 に示す。なお、これまでの試験と同様に MoO_3 溶解量を 200g にするために、照射済 MoO_3 ペレット 3 個(33.13g)と予め準備しておいた一軸加圧成型・焼結法によって製作した未照射 MoO_3 ペレット 18 個(171.38g)を一緒に溶解試験に供した(図 3.1-4 参照)。

溶解槽に 21 個の MoO_3 ペレットを投入後、セル外から溶解槽に 6M-NaOH 溶液 500mL を注入した。溶解時には、超音波洗浄器にて溶解槽全体を振動させるとともに、溶解槽の撹拌機を毎分 300 回転に設定した。全ての MoO_3 ペレットが溶解した後、セル外から溶解槽に超純水 50mL を注入し、撹拌機を毎分 250 回転で約 3 分間撹拌して Mo 溶解液を均一にした。この状態で一昼夜、Mo 溶解液を溶解槽内で保管した。

3.1.3 ^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験

鉛セル No.2 に設置した ^{99m}Tc 分離装置及び ^{99m}Tc 精製濃縮装置を用いて、^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験を行った。まず、MoO_3 ペレット溶解装置から ^{99m}Tc 分離装置の ^{99}Mo 受槽に Mo 溶解液を移送し、Mo 溶解液の状態を確認した。次に、^{99}Mo 受槽から Mo 溶解液を撹拌・抽出槽に移送した後、鉛セル外から MEK を撹拌・抽出槽に注入し、Mo 溶解液と MEK を約 5 分間撹拌した。この操作は、照射及び冷却中に生じた ^{99}Tc を除去する目的で行う。撹拌後、Mo 溶解液と

MEK の混合液を分離槽に移送し、Mo 溶解液と MEK を分離回収した。Mo 溶解液は 24 時間後のミルキングに備えて三角フラスコに保管し、MEK は 20L ポリエチレン製タンクに保管廃棄した。本処理を行った Mo 溶解液をバイアル瓶に数 mL 分取し、その中からマイクロピペットで 100μL を採取、放射能測定試料を作製後に放射能測定を行った(第①回溶媒抽出)。
翌日、三角フラスコに保管した Mo 溶解液は、^{99m}Tc 分離装置の ^{99}Mo 受槽を通して、攪拌・抽出槽に移送した。Mo 溶解液に ^{99m}Tc と同様な挙動を示す模擬元素である Re(^{99m}Tc 換算で 13.1TBq 相当する Re_2O_3 水溶液(Re:450μg/mL)1mL(付録Ａ参照))を添加し、MEK90mL を注入後、5 分間攪拌した。攪拌後、Mo 溶解液と MEK の混合液を分離槽に移送し、Mo 溶解液側に混入している MEK と MEK 側に混入している Mo 溶解液を比重の違いによって分離するため、20 分間静置した。その後、Mo 溶解液と MEK を分離回収した。Mo 溶解液は 24 時間後のミルキングに備えて、三角フラスコに移送し、上皿天秤で質量を測定後、遮へい容器内で保管した。この際、放射能測定試料として 100μL を採取した。

^{99m}Tc(Re を含む)を抽出した MEK は、分離回収後直ちに、塩基性アルミナカラム(前段)、酸性アルミナカラム(後段)の順に通液し、前段のカラムで放射性核種純度に影響を及ぼす ^{99}Mo の除去を、後段のカラムで ^{99m}Tc の吸着処理を行った。なお、塩基性アルミナカラムに残存する ^{99m}Tc をできるだけ酸性アルミナカラムに吸着させる目的で、MEK 30mL を塩基性アルミナカラム、酸性アルミナカラムの順に通液した。次に、^{99m}Tc が吸着した酸性アルミナカラムは、MEK、エンドトキシンなどを除去するために、超純水(180mL)で洗浄した。最後に、酸性アルミナカラムに生理食塩水を 4mL 通液し MEK・洗浄用水受槽に回収後、生理食塩水を 20mL 通液し、製品受槽を経由して ^{99m}Tc 溶液を回収した。この ^{99m}Tc 溶液から 2mL を分取し、マイクロピペットで 100μL を採取、放射能測定試料を作製後に放射能測定を行った（第 1～4 回ミルキング)。

Mo 溶解液及び ^{99m}Tc 溶液の放射能測定は、Ge 半導体検出器を用いた測定装置によって行った。測定装置は、Ge 半導体検出器(AMETEK 社製 型式：GMX25P4-70)、遮へい体、多重波高分析装置、パーソナルコンピュータなどから構成され、γ線スペクトルの測定及び解析は、環境用γ線分析プログラム「SEIKO EG&G」を用いた。

放射能測定試料(Mo 溶解液及び ^{99m}Tc 溶液)は、予め超純水 20mL を入れたポリエチレン製容器に、マイクロピペットで採取した測定対象溶液 100μL を混合して作製した。放射能測定試料は、Ge 半導体検出器表面から約 15cm 離れたアクリル板の上に置いた。遮へい体扉を開放した状態の位置関係を図 3.1-5 に示す。なお、放射能測定に際しては、遮へい体内部の汚染を防止するため、放射能測定試料をポリエチレン袋で二重に包んだ(図 3.1-6 参照)。

γ線スペクトルから核種ごとの放射能を算出するため、放射能測定試料と同一形状・材質の容器に ^{241}Am、^{109}Cd、^{57}Co、^{139}Ce、^{51}Cr、^{85}Sr、^{137}Cs、^{54}Mn、^{88}Y 及び ^{60}Co の 10 核種を混合させた標準試料を用いて、エネルギー校正曲線及びピーク効率曲線を求めた。

また、第 2 回ミルキングから 70 時間以上が経過し、Mo 溶解液から不要の ^{99}Tc を除去する目的で第②回溶媒抽出を行った。溶媒抽出した Mo 溶解液から 100μL を採取、放射能測定試料を作製後、^{99}Mo と ^{99m}Tc の過渡平衡を調べるため、Ge 半導体検出器を用いて約 24 時間ごとに 4 回測定した。

3.1.4 ^{99m}Tc 溶液の品質試験

第1回ミルキングで得られた ^{99m}Tc 溶液(約18mL)は、バイアル瓶にアルミキャップ栓を施し、表面汚染がないことを確認後、A 型輸送用鉛容器に収納した。鉛セル外において、A 型輸送用鉛容器の表面汚染がないことを確認した後、A 型輸送容器(段ボール製)に収納し、ホットラボ管理区域から輸送物を搬出した。車両に輸送物を固縛、車両の線量当量率を測定後、JMTR ホットラボから FRI に輸送した。

FRI に到着した ^{99m}Tc 溶液は、品質試験として、^{99m}Tc 放射能、pH、放射性核種純度、MEK、放射化学的異物、浸透圧及びエンドトキシンを測定した。品質試験に供した ^{99m}Tc 溶液は、4 回実施したミルキングの内、第1回だけである。

4 回のミルキングで得られた ^{99m}Tc 溶液は、JMTR ホットラボにおいて放射能測定を行った。ただし、第2回ミルキングの ^{99m}Tc 溶液については、前述の放射能測定試料の調製方法で作製すると、^{99m}Tc 放射能が高く当日の測定は困難であり、約 20,000 倍に希釈して測定した。

第 2～4 回ミルキングの ^{99m}Tc 溶液は、バイアル瓶に保管し放射能が減衰後、鉛セルからフードに搬出した。フード内でバイアル瓶からマイクロピペットで ^{99m}Tc 溶液を 100μL 採取し、微量浸透圧計(VOGEL 社：OM-815)により浸透圧を測定した(図 3.1-7 参照)。さらに、品質確認試験項目である pH は pH 試験紙、Al はイオン試験紙により測定した。

3.2 試験結果及び考察

3.2.1 ^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験装置の性能

^{99m}Tc を Re で模擬した試験を行い、本試験装置の2項目について改良した結果を示す。まず、溶媒抽出後における有機相の分離回収の工程に関し、分離槽で 20 分間静置した後、Mo 溶解液(水相)と MEK(有機相)を分離した。この時、バルブ開閉を繰り返し、水相と有機相の境界面が分離槽の下部に取付けたバルブを通過した時点を分離の完了としたが、Re(^{99m}Tc)回収率は 30～75%と低く、かつ回収率のばらつきが大きかった。この原因は、強塩基性である Mo 溶解液が酸性アルミナへの ^{99m}Tc 吸着特性に影響を与えたためと考えられる。このため、分離槽の下部に取付けている 2 個のバルブの間に透明チューブを取付け、水相と有機相の境界面を目視できるよう改良し、有機相に混入する水相を減少させた。さらに、分離後に少量の有機相を排出することにより、有機相中の水相を無くし、酸性アルミナへの ^{99m}Tc 吸着量を安定させた。

次に、これまでに得られた試験データ(アルミナ質量、アルミナ体積、カラム径、流量)から空間速度(SV 値＝流量/体積)を算出し、SV 値が 2.3～2.5 の時に高い回収率を得ることが分かった。このため、内径φ14mm とφ16mm のガラス製容器にアルミナ 7g を充填したアルミナカラムを準備し、SV 値をほぼ一定にして吸着・脱離特性を調べた。この結果、φ16mm のカラムよりもφ14mm カラムは吸着・脱離特性が良好で、ほぼ 100%の Re(^{99m}Tc)回収率が得られた。

この 2 つの改良により、^{99m}Tc 回収率が目標値 80±5%を達成する見通しが得られ、本条件にて、KUR で照射した高密度 MoO_3 ペレットを用いた試験を行った。^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験装置の改良箇所を図 3.2-1 に示す。

3.2.2 照射済 MoO_3 ペレットの溶解特性

MoO_3 ペレットの溶解試験は、溶解開始から 1 時間後、フレキシブルデジタルスコープで溶解槽内部を観察すると、未照射 MoO_3 ペレットは完全に溶解していた。しかし、照射済 MoO_3 ペレット 3 個は、小さくなったが底部に残っていた。溶解開始から 2 時間後、これらの照射済 MoO_3 ペレットは完全に溶解したことを確認した。これにより、2 時間以内で高密度 MoO_3 ペレットが溶解でき、目標値の 3 時間以内を達成できた。

本試験では、Mo 溶解液を溶解槽に入れた状態で一昼夜保管した。翌朝、溶解槽から ^{99m}Tc 分離装置の ^{99}Mo 受槽に Mo 溶解液を移送し、Mo 溶解液が無色透明であることを確認したが、溶解槽蓋部の周囲に白色粉末が析出していた(図 3.2-2 参照)。溶解日から 16 日後、析出した白色粉末の一部を採取し Ge 半導体検出器を用いて測定すると、Mo 溶解液と同成分の ^{99}Mo、^{99m}Tc 及び ^{92m}Nb が検出された。これは、MoO_3 ペレット溶解装置の攪拌機の羽根を誤って急に回転させたため、Mo 溶解液が飛散したのが原因であると考えられる。このため、攪拌機の羽根は、ゆっくりと回転させる必要がある。さらに、MoO_3 ペレット溶解装置の溶解槽と溶解槽蓋の接続箇所からの飛散・漏れなどを防止するため、耐アルカリ性及び耐放射線材料(エチレンプロピレンゴム、ニトリルゴムなど)の O-リングを使用する必要がある。

本試験では、Mo 溶解液から 4 回ミルキングを行い、^{99m}Tc 溶液を回収した。なお、溶解直後と日曜日明けに Mo 溶解液から不要の ^{99}Tc を除去する目的で、溶媒抽出をそれぞれ行った。溶媒抽出及びミルキング後の Mo 溶解液中の ^{99}Mo 放射能測定結果を表 3.2-1 に示す。なお、Mo 溶解液の体積は、上皿天秤で Mo 溶解液の質量を測定後、炉外試験で得られた密度から計算で求めた値である。また、第①回溶媒抽出後に採取した Mo 溶解液のガンマ線スペクトルを図 3.2-3 に示す。Mo 溶解液中の ^{99}Mo 放射能測定値は、照射終了時において $2.3\times10^{8}\pm3.2\times10^{5}$Bq/g であり、熱中性子束のみで行った簡易計算による ^{99}Mo 生成量と比較すると、約 3.4 倍と大きい値であった。2.2.2 項の KUR 照射孔の照射場評価で示した通り、中性子スペクトル及び ^{98}Mo 中性子捕獲率で評価した ^{99}Mo 生成量は 2.5×10^{8}Bq/g であり、^{99}Mo 生成量の計算値と測定値はほぼ一致し、熱外中性子束及び高速中性子束による ^{99}Mo 生成量の寄与も大きいことが確認できた。

図 3.2-3 に示す通り、Mo 溶解液中には ^{92m}Nb も検出された。^{92m}Nb 放射能の測定結果から、照射終了時において $1.0\times10^{5}\pm3.3\times10^{3}$Bq/g であった。中性子スペクトル及び ^{92}Mo 中性子捕獲率で評価した計算値が約 4.7×10^{5}Bq/g であり、測定値と約 4.7 倍の違いがあった。この結果については、今後さらに照射試験を実施し、その原因を追及する。なお、天然同位体比を有する Mo には ^{92}Mo が約 14.84%含まれるため、(n,p)反応による ^{92m}Nb 生成は避けられないが、溶媒抽出において水相側から有機相に ^{92m}Nb が移行しないことを確認したので、抽出した ^{99m}Tc 溶液の品質には影響がないと考える。

第①回溶媒抽出した Mo 溶解液について、溶解から 51 及び 82 日後に Ge 半導体検出器を用いて放射能測定を行うと、^{99}Mo 及び ^{99m}Tc の主要核種が減衰し、主に ^{92m}Nb、セシウム-134(^{134}Cs)が検出された。冷却中の Mo 溶解液の放射能を表 3.2-2 に、82 日後のガンマ線スペクトルを図 3.2-4 に示す。始発粉末の MoO_3 分析表には Cs の含有量は記載されていなかったが、不純物元素として始発粉末中に Cs が僅かながら含まれていることが分かった。本結果により、JMTR

で 3.7×10^{13}Bq/週(1000Ci)の ^{99}Mo 製造を行った場合、使用済みの Mo 溶解液を 100 日間冷却すると ^{99}Mo 放射能は約 4.1×10^{2}Bq(11.1nCi)まで減衰する。しかし、^{134}Cs(半減期：2.0648y)は冷却による放射能減衰はほとんどなく、使用済みの Mo 溶解液の廃棄処理を考えた場合、不純物核種による放射線被ばくの低減化対策も今後検討する必要がある。

また、本試験では Mo 溶解液中に ^{92m}Nb、^{134}Cs 以外の核種は検出されなかったが、KUR での低い中性子照射量に比べ、JMTR ではより高い中性子照射量で MoO_3 ペレットを照射するため、上記の核種以外の生成も懸念される。これまでに MoO_3 粉末の不純物を測定する目的で、同メーカが製造した別ロット番号について、K_0 法標準法を用いた放射化分析を行うと、ナトリウム(Na)、マンガン(Mn)及びタングステン(W)が検出された[12]。不純物元素として W が含有されている場合、中性子照射により ^{186}W(n, γ)^{187}W 及び ^{186}W(n, γ)^{187}W(n, γ)^{188}W 反応が起こり、^{187}W 及び ^{188}W は β^-崩壊により、^{187}Re(半減期：4.12×10^{10}y)及び ^{188}Re(半減期：17.004h)が生成する。Re は Tc と同族元素であるため、溶媒抽出において水相側から有機相に Re が移行するので、始発 MoO_3 粉末に含まれる W 含有量を可能な限り低くする[13]。

3.2.3 ^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮特性

本項では、^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験によって得られた ^{99m}Tc 溶液及び Mo 溶解液について、(1) ^{99m}Tc 放射能測定、(2) ^{99m}Tc 回収率、(3) ^{99}Mo/^{99m}Tc 過渡平衡の結果及び考察を述べる。

(1) ^{99m}Tc 放射能測定結果

第 1～4 回ミルキングで得られた ^{99m}Tc 溶液を Ge 半導体検出器によって測定した。さらに、FRI に輸送した第 1 回の ^{99m}Tc 溶液(約 18mL)に関して、井戸型電離箱によって ^{99m}Tc 放射能を測定した(表 3.2-3 参照)。異なる測定器による測定値は、ほぼ同じ(≒1.04) であった。それと同時に、^{99m}Tc 溶液中に親核種である ^{99}Mo 及び ^{99m}Tc 以外の不純物核種が検出されていないことを確認し、そのガンマ線スペクトルを図 3.2-5 に示す。さらに、同試料中の ^{99m}Tc 放射能が減衰してから測定しても、不純物核種は検出されなかった。52 日冷却後のガンマ線スペクトルを図 3.2-6 に示す。

(2) ^{99m}Tc 回収率結果

ある時刻において ^{99m}Tc 放射能がゼロのときの ^{99}Mo 放射能が既知で、時間 t だけ経過したとき ^{99m}Tc 放射能は、次式で表せる(付録Ｂ参照)。

$$A_2=0.877\times A_{10}\times\{\lambda_2/(\lambda_2-\lambda_1)\}\times\{\exp(-\lambda_1 t)-\exp(-\lambda_2 t)\} \quad \cdots \quad 3\text{-}1$$

A_{10} ： ^{99m}Tc 放射能がゼロのときの ^{99}Mo 放射能(Bq)
A_2 ： ^{99m}Tc 放射能(Bq)
λ_1 ： ^{99}Mo 崩壊定数(s^{-1})
λ_2 ： ^{99m}Tc 崩壊定数(s^{-1})
t ： 経過時間(s)
0.877 ： ^{99m}Tc に転移する割合

溶媒抽出開始時刻及びミルキング操作終了時刻における ^{99m}Tc 回収率の相違を調べた。前者は、^{99m}Tc 放射能測定結果を溶媒抽出開始時刻の ^{99m}Tc 放射能に減衰補正する。後者は、^{99m}Tc 放射能測定結果をミルキング操作終了時刻の ^{99m}Tc 放射能に減衰補正する。

溶媒抽出開始時刻の ^{99}Mo 放射能を基準として、翌日の溶媒抽出までの時間に生成された ^{99m}Tc 放射能を式 3-1 から求めた。次に ^{99m}Tc 回収率(溶媒抽出開始時刻)は、^{99m}Tc 放射能測定結果に基づき、溶媒抽出開始時刻の ^{99m}Tc 放射能を式 3-1 で得られた ^{99m}Tc 放射能で除して求めた(表 3.2-4 参照)。本試験において、ミルキング(溶媒抽出、精製濃縮など)操作時間は、平均 1 時間 30 分を要することが分かった。^{99m}Tc 回収率(ミルキング操作終了時刻)は、ミルキング操作終了時刻の ^{99m}Tc 放射能を同式で得られた ^{99m}Tc 放射能で除して求めた。ここで、^{99m}Tc 回収率(ミルキング操作終了時刻)に体積比(Mo 溶解液量/^{99m}Tc 回収液量)を乗じた値を濃縮係数と定義し、その結果を表 3.2-5 に示す。

今回使用した容量可変式マイクロピペットの系統誤差は、100μL に対して±0.8%である。セル内においてマイクロピペットによる溶液サンプリング操作は、採取誤差を最小にするため 1 回限りとした。しかし、第 2 回ミルキングでは、試験計画にあたり ^{99m}Tc 放射能を当日に測定しなければならず、^{99m}Tc 溶液を希釈する必要があったので、サンプリング操作を 2 回行った。このため、^{99m}Tc 回収率が 100%を超えた原因は、マイクロピペットの系統誤差より採取誤差が大きかったことから、マニプレータによるマイクロピペットの操作ミスが考えられる。

第 3～4 回ミルキングでは、^{99m}Tc 回収率は 60%程度に低下した。この回収率の差異は、第 1～2 回ミルキング(前半)と第 3～4 回ミルキング(後半)に使用した MEK の製造ロット番号が異なっていることに起因していたと考えられる。そこで、使用した MEK を調べると、前半の MEK は「平成 25 年 7 月」に製造された製品で無色透明、後半の MEK は「平成 23 年 2 月」製造で多少の着色があった。さらに、この製造ロット番号の異なった MEK を用いて、Re の回収率への影響を調査した。溶媒抽出における Re の溶媒抽出率は影響が観測されなかったが、精製・濃縮工程における Re の回収率は、それぞれ 87.6%(前半使用 MEK)及び 33.1%(後半使用 MEK)と異なっていた。今後、溶媒抽出に使用する MEK の管理が重要になると考える。

(3) ^{99}Mo/^{99m}Tc の過渡平衡

^{99}Mo(半減期：65.94h)、^{99m}Tc(半減期：6.015h)、^{99m}Tc に転移する割合(0.877)、初期の ^{99}Mo 放射能、経過時間を用いて ^{99m}Tc 放射能を計算(式 3-1)すると、25 時間後の ^{99m}Tc 放射能は ^{99}Mo 放射能の約 0.878 倍となり、72 時間を経過すると約 0.946 倍で一定になる。

第②回溶媒抽出後、Mo 溶解液中の ^{99}Mo 及び ^{99m}Tc 放射能の変化を Ge 半導体検出器により測定した。溶媒抽出から 25 時間経過すると ^{99m}Tc 放射能が ^{99}Mo 放射能を超え、48、72 及び 96 時間後でも同様の事象が発生した。Mo 溶解液中の ^{99}Mo 及び ^{99m}Tc 放射能測定結果を表 3.2-6、図 3.2-7 に示す。

^{99}Mo は ^{99m}Tc を経由し ^{99}Tc へ崩壊する際、141KeV のγ線を放出するが、^{99m}Tc を経由しない直接の ^{99}Mo 崩壊によっても ^{99m}Tc と同じエネルギーのγ線を放出する。^{99m}Tc 放射能を測定する場合、141KeV のγ線ピークを測定しても、その中に ^{99}Mo からのγ線が含まれることが、^{99m}Tc 放

射能が ^{99}Mo 放射能を超える原因であると考える[14]。本試験における ^{99}Mo からの寄与率を試算すると約 12%であった。したがって、141KeV のγ線ピークに対する計数効率から単純に ^{99m}Tc 放射能を求められないと分かった。しかし、^{99m}Tc 放射能を正確に測定できなくても、溶媒抽出した時刻の ^{99}Mo 放射能を正確に測定できれば、^{99m}Tc 放射能は計算によって求めるので、^{99m}Tc 回収率の算出には支障がないと考える。

3.2.4 ^{99m}Tc 溶液の品質評価

核医学製剤の原料である ^{99}Mo 製造においては、無菌操作法による無菌医薬品の製造に関する指針(平成 23 年 4 月 20 日厚生労働省)[15] に基づいた医薬品原料の要件を満足することが必要不可欠である。特に、エンドトキシン[16]は、グラム陰性菌の外膜の構成成分の一つであるリポ多糖(LPS)で、血液中への混入により多臓器障害や発熱などの疾患を引き起こす原因物質である。エンドトキシンは、グラム陰性菌が生息する環境中のあらゆる場所(水、空気)に存在し、菌が死んでも LPS は残る。この LPS を失活させる方法は、250℃以上で 30 分以上の乾熱滅菌が必要[17]である。

エンドトキシン低減化の改善として、^{99m}Tc 溶液回収に使用する 30mL バイアル瓶には、乾熱滅菌器を用い 250℃以上にて 30 分間以上の加熱処理を施し、さらに使用前には 5%過酸化水素水及び生理食塩水による洗浄処理を行った。MoO_3ペレット溶解装置、^{99m}Tc 分離装置及び ^{99m}Tc 精製濃縮装置に関しては、装置内の清浄度を保持するため、ミルキング終了ごとに超純水により装置内のガラス器具及び配管などを洗浄した。

^{99m}Tc 溶液は、^{99m}Tc 精製濃縮装置の使用回数に応じて、得られる ^{99m}Tc 溶液の浸透圧が低下する傾向にあると分かった。これは、試験後に実施する装置の洗浄に用いた超純水が装置内に残留し、生理食塩水を希釈していると考えた。このため、装置へ生理食塩水を供給する系統(薬液注入ライン及びその受槽)については、超純水を供給する系統と分けた。また、操作手順として、^{99m}Tc の溶離液を受ける受槽を生理食塩水で予め共洗いするとともに、酸性アルミナカラムを超純水で洗浄後、カラム内に残っている超純水をできるだけ排出させる改善も行った。さらに、^{99m}Tc 溶離液の初期流出液 4mL 分については、比較的塩分濃度が低いため廃棄した。

FRI において、第 1 回ミルキングの ^{99m}Tc 溶液について、6 項目の品質確認試験を行い、すべて基準値以内であった。一方、第 2～4 回ミルキングの ^{99m}Tc 溶液を用いて、^{99m}Tc 放射能の減衰後、pH、化学的純度(Al)、放射性核種純度及び浸透圧の 4 項目について品質確認試験を行い、浸透圧の測定結果にばらつきがあったが、すべて基準値の範囲内であった。第 1～4 回ミルキングによって得られた ^{99m}Tc 溶液の品質確認試験結果を表 3.2-7 に示す。

4．まとめ

文部科学省の原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ「JMTR を用いた放射化法による ^{99}Mo/^{99m}Tc の国産化技術開発」で確立した ^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮技術について、KUR で照

射した高密度 MoO_3ペレットを JMTR ホットラボに輸送し、$^{99}Mo/^{99m}Tc$ 製造試験の最終確認試験を行い、以下の知見を得た。

(1) $^{99}Mo/^{99m}Tc$ 分離・抽出・濃縮試験装置の改良により、MoO_3ペレットを溶解した Mo 溶解液からの Re(^{99m}Tc)回収率をほぼ 100%にでき、^{99m}Tc 回収率は目標値(80±5%)を達成する見通しを得た。

(2) KUR で照射した高密度MoO_3ペレットは、当該照射量において健全性が担保できた。また、MoO_3ペレット中に生成する ^{99}Mo 放射能は、中性子エネルギー及び ^{98}Mo 中性子捕獲率を考慮した計算値と実験値がほぼ一致したことから、熱外中性子束及び高速中性子束による寄与が大きいことが分かった。

(3) 第 1 回ミルキングの ^{99m}Tc 溶液について、6 項目の品質確認試験を行い、すべて基準値を満足した。さらに、第 2～4 回ミルキングの ^{99m}Tc 溶液について、4 項目の品質確認試験により基準値を満足したことから、安定した ^{99m}Tc 溶液を抽出できることが確認できた。

以上の成果により、$^{99}Mo/^{99m}Tc$ 製造のための高密度 MoO_3ペレットの製造、中性子照射、照射後試験、品質確認試験及び輸送の各工程の確認ができ、JMTR での実証試験体系を確立することができた。本成果は、平成 25 年 10 月に採択された「つくば国際戦略総合特区(核医学検査薬の国産化)」のための基本的データとして活用し、JMTR ホットラボ内に新たに整備する $^{99}Mo/^{99m}Tc$ 分離・抽出・濃縮試験装置の設計製作に反映させた。

謝　辞

本試験は、原子力イニシアティブ「JMTR を用いた放射化法による $^{99}Mo/^{99m}Tc$ の国産化技術開発」及び「平成 25 年度及び平成 26 年度京都大学原子炉実験所共同利用研究」で得られた成果に基づき、今後、JMTR で行う実証試験のための最終確認試験として行ったものである。

本報告書をまとめるにあたり、大洗研究開発センター 荒木　政則 副所長(兼 原子力科学研究部門 照射試験炉センター長)に有意義なご指導を頂くとともに、福島研究開発部門 福島研究基盤創生センター 河村　弘 所長、福島技術開発試験部 BECKY 技術課 梅田　幹 課長及び原子力水素・熱利用研究センター 小型高温ガス炉研究開発ディビジョン 国際共同試験グループ 稲葉　良知 研究副主幹に有意義なご助言を頂きました。さらに、大洗研究開発センター 材料試験炉部 ホットラボ課の職員、安全管理部 放射線管理第 2 課の職員に多大なご協力を頂きました。

京都大学原子炉実験所 中島　健 教授には、MoO_3 ペレット照射に関するご助言を頂き、張 倹氏には、中性子評価担当者として多大なご協力を頂きました。以上の方々に、深甚なる謝意を表します。

参考文献

1) 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、p.829(2010).
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(accessed　2014年8月4日).
3) 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、「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、第28回原子力委員会、資料第2-1号、平成23年7月7日.
4) 河村　弘他、「JMTRを用いた放射化法による^{99}Mo/^{99m}Tcの国産化技術開発」、原子力システム研究開発及び原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ平成26年度成果報告会、pp.9-12、平成27年1月16日(CD-ROM).
5) 杉山重彰、泰松　斉、「(1)材料創生への放電プラズマ焼結の適用」、溶接学会誌、71(2002)pp.91-94.
6) 潘　文霞、吉田豊信、明石和夫、「プラズマ焼結法に関する研究」、日本セラミック協会学術論文誌、96(1988)pp.317-322.
7) 文部科学省 原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ委託事業 「JMTRを用いた放射化法による^{99}Mo/^{99m}Tcの国産化技術開発」成果報告書　平成24年度、pp.58-60.
8) Y. Nagaya et.al, "MVP/GMVP II: General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods", JAERI 1348, (2005).
9) 小林捷平他、「JENDL Dosimetry File99 (JENDL/D-99)」、JAERI 1344、(2002).
10) K. Shibata, et.al, "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering", J. Nucl. Sci. Technol. ,48(1), pp.1-30 (2011).
11) K. Tsuchiya, K. Nishikata et. al."^{99}Mo-^{99m}Tc Production Process by (n, γ) Reaction with Irradiated High-density MoO_3 pellets", Proceedings of the 6th International Symposium on Material Testing Reactors, 2013,http://www.invap.com.ar/ismtr (accessed 2015年1月6日).
12) Truc Phuong Huynh et al.,Study on ^{99}Mo Production by Mo-Solution Irradiation Method(3) -Activation Analysis of Irradiation Target-, JAEA-Technology 2009-039, 2009, p.15.
13) 岡根章五、山林尚道、黒沢清行、反田孝美、私信.
14) 「アイソトープ手帳11版 机上版」、丸善、平成23年5月13日.
15) 平成22年度厚生労働科学研究(医薬品・医療機器等レギュラトリーサイエンス総合研究事業)医薬品の微生物学的品質確保のための新規試験法導入に関する研究、平成23年4月20日.
16) 棚元憲一、「エンドトキシンと医薬品の品質管理」、Bull. Natl. Inst. Health Sci., 126,(2008)pp.19-33.
17) 細渕和成、棚元憲一、各滅菌法による乾燥エンドトキシンの不活化、東京都立産業技術研究所研究報告第2号、(1999)pp.126-129.

表 2.1-1　KUR 照射用 MoO_3 ペレットの仕様

理論密度 ρ(%T.D.)	加工前 外径 D(mm)	加工後 外径 D(mm)	高さ t(mm)	平行度 H(-)	数量 (個)
90～95	20 ± 0.5	18 ± 0.5	10 ± 0.5	＜0.2	3

表 2.1-2　MoO_3 始発粉末中の不純物元素の分析値

Ig-loss	Na	K	MgO	CaO	W	Fe
0.10	<0.0005	<0.0005	<0.0001	<0.0001	0.002	<0.0001
Cu	Al_2O_3	Si	Pb	PO_4	S	Cl
<0.0001	<0.001	<0.001	<0.001	0.0005	<0.001	<0.002

(単位：wt%)

表 2.1-3　ドシメータの特性

ドシメータ	^{115}In	^{58}Ni
存在割合(%)	95.7	68.08
反応	$^{115}In(n,\gamma)^{116m}In$	$^{59}Ni(n,p)^{58}Co$
有効断面積(barn)	166	0.149
閾エネルギー(MeV)	―	0.9
半減期	54.29m	70.82d
ガンマ線エネルギー(keV) 放出割合 (%)	416.86 (27.7) 818.72 (11.5) 1097.33 (56.2) 1293.56 (84.4) 2112.31 (15.5)	810.8 (99.4)

表 2.2-1　製作した高密度 MoO_3 ペレットの測定結果

No.	外　径 (mm)			高　さ (mm)					平行度	質量 (g)	密度 (%T.D.)
	X	Y	平均値	A	B	C	D	平均値	計算値	－	計算値
58	18.05	17.98	18.02	9.98	9.99	9.99	9.99	9.99	0.0006	11.03	92.4
59	18.02	17.98	18.00	9.98	9.93	9.94	9.97	9.96	0.0028	11.06	93.1
60	18.10	18.04	18.07	10.02	10.03	10.03	10.03	10.03	0.0006	11.04	91.5

表 2.2-2　アルミニウム製密封容器の試験検査項目

検査項目		判定基準
①	外観検査	目視により有害な欠陥（割れ、キズ）及び汚れがないこと。
②	寸法検査	ノギス等の計測器により、寸法測定を行い、承認図による指示寸法を満足していること。
③	質量検査	天秤等を用いて行い、測定は 1×10^{-1} g までとする。
④	ヘリウム漏れ検査	ベルジャー法により、1×10^{-7} Pa・m^3/s 以下であること。
⑤	放射線透過検査	溶接部に有害な欠陥がないこと。

表 2.2-3　ドシメータの質量(HYD 用)

ドシメータの種類	位置	1	2	3	平均	標準偏差
In 箔	上-1	5.93	5.91	5.75	5.86	0.10
	上-2	4.51	4.23	4.44	4.39	0.15
	上-3	4.12	4.14	4.31	4.19	0.10
	中-1	4.48	4.32	4.43	4.41	0.08
	中-2	3.81	3.68	3.71	3.73	0.07
	中-3	4.51	4.53	4.48	4.51	0.03
	下-1	4.14	4.08	4.16	4.13	0.04
	下-2	4.51	4.43	4.32	4.42	0.10
	下-3	3.73	3.88	3.79	3.80	0.08
Cd 被覆付き In 箔	上	4.21	4.18	4.04	4.14	0.09
	下	4.72	4.76	4.79	4.76	0.04
Ni 箔	上-1	0.91	0.94	0.93	0.93	0.02
	上-2	0.96	0.95	0.97	0.96	0.01
	上-3	0.98	1.00	0.99	0.99	0.01
	中-1	0.92	0.89	0.90	0.90	0.02
	中-2	0.97	0.95	0.95	0.96	0.01
	中-3	0.89	0.91	0.90	0.90	0.01
	下-1	0.87	0.90	0.88	0.88	0.02
	下-2	0.82	0.90	0.86	0.86	0.04
	下-3	0.93	0.90	0.91	0.91	0.02

(単位：mg)

表 2.2-4　ドシメータの質量(SLANT 用)

ドシメータの種類	位置	1	2	3	平均	標準偏差
In 箔	上-1	4.02	3.96	4.00	3.99	0.03
	上-2	3.77	3.90	3.79	3.82	0.07
	上-3	3.84	3.96	3.94	3.91	0.06
	中-1	4.13	4.15	4.04	4.11	0.06
	中-2	4.07	4.13	3.96	4.05	0.07
	中-3	3.82	3.77	3.71	3.77	0.06
	下-1	3.62	3.50	3.58	3.57	0.06
	下-2	4.08	4.10	4.08	4.09	0.01
	下-3	4.16	4.24	4.21	4.20	0.04
Cd 被覆付き In 箔	上	4.84	5.07	4.91	4.94	0.12
	下	3.87	3.83	3.75	3.82	0.06
Ni 箔	上-1	0.86	0.84	0.82	0.84	0.02
	上-2	0.86	0.86	0.81	0.84	0.03
	上-3	0.80	0.79	0.80	0.80	0.01
	中-1	0.73	0.72	0.70	0.72	0.02
	中-2	0.72	0.79	0.75	0.75	0.04
	中-3	0.83	0.79	0.80	0.81	0.02
	下-1	0.83	0.71	0.77	0.77	0.06
	下-2	0.90	0.83	0.81	0.85	0.05
	下-3	0.73	0.73	0.82	0.76	0.05

(単位：mg)

表 2.2-5　HYD 及び SLANT における中性子束の評価結果

照射孔	区　分	測定値(n/cm^2・s)	公称値(n/cm^2・s)
HYD	熱中性子束	1.82×10^{13} ± 4.18×10^{11}	1.6×10^{13}
	熱外中性子束	7.08×10^{12} ± 2.29×10^{11}	1.2×10^{12}
	高速中性子束	7.13×10^{12} ± 1.85×10^{11}	7.8×10^{12}
SLANT	熱中性子束	8.06×10^{11} ± 3.66×10^{10}	7.8×10^{11}
	熱外中性子束	4.24×10^{10} ± 2.09×10^{9}	1.6×10^{10}
	高速中性子束	7.92×10^{10} ± 1.30×10^{10}	8.8×10^{10}

表 2.2-6　HYD 及び SLANT における照射直後の ^{99}Mo 生成量

照射孔	照射時間(h)	熱中性子のみを考慮(Bq)	全エネルギーを考慮(Bq)
HYD	3.2	2.3×10^{9}	8.2×10^{9}
SLANT	24.0	7.4×10^{8}	1.5×10^{9}

表 2.2-7　ガンマ線遮へい計算システムによる輸送容器(TYC-501A)の線量当量率評価結果

核　種	放射能(Bq)	輸送容器表面 (μSv/h)	輸送容器表面から 1m (μSv/h)
^{99}Mo	6.3×10^{8}	8.0×10^{0}	1.1×10^{-1}
^{99m}Tc	5.6×10^{8}		

表 2.2-8　照射済 MoO_3 ペレット収納後における輸送容器の線量当量率測定結果

輸　送　日	放射能(Bq)		輸送容器の線量当量率 (μSv/h)	
	^{99}Mo	^{99m}Tc	表　面	表面から 1m
平成 26 年 5 月 19 日	6.3×10^{8}	5.6×10^{8}	3.5×10^{1}	8.0×10^{-1}

表 3.1-1　^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験における ^{99m}Tc 回収率及び濃縮係数の結果 [4)]

試験 No.		^{99m}Tc 回収率(%)*1	濃縮係数*2
第1回試験	1-1-1	65	19.4
	1-1-2	29	8.9
	1-2-1	48	14.7
	1-2-2	33	10.0
	1-3-1	28	7.5
	1-3-2	22	6.2
第2回試験	2-1-1	42	13.7
	2-1-2	80	26.4
	2-2-1	62	19.6
	2-2-2	43	13.1
	2-2-3	67	20.9
	2-3-1	72	21.7
	2-3-2	74	22.4

＊1：^{99m}Tc 回収率＝^{99m}Tc 回収量／全 ^{99m}Tc 生成量

＊2：濃縮係数＝^{99m}Tc 回収率×体積比(Mo 溶解液量／^{99m}Tc 回収液量)

表 3.2-1　溶媒抽出及びミルキング後の Mo 溶解液中の ^{99}Mo 放射能測定結果

試験名		溶媒抽出開始時刻	^{99}Mo 放射能 (Bq)*1	Mo 溶解液量 (mL)*2
溶媒抽出	ミルキング			
第①回	―	2014/5/21　9:55	$1.41\times10^{9}\pm1.92\times10^{6}$	618
―	第 1 回	2014/5/22　10:18	$1.08\times10^{9}\pm1.42\times10^{6}$	618
―	第 2 回	2014/5/23　9:44	$8.46\times10^{8}\pm3.22\times10^{6}$	613
第②回	―	2014/5/26　9:43	$3.89\times10^{8}\pm1.27\times10^{6}$	609
―	第 3 回	2014/5/27　10:13	$3.09\times10^{8}\pm1.74\times10^{6}$	604
―	第 4 回	2014/5/28　9:50	$2.19\times10^{8}\pm4.68\times10^{5}$	600

＊1：溶媒抽出開始時刻に補正

＊2：Mo 溶解液の密度(1.38g/cm^3)から体積を求めた。

表 3.2-2　第①回溶媒抽出後の Mo 溶解液中の不純物測定結果

核種	半減期	放射能(Bq)*1	
		51 日後	82 日後
^{99}Mo	65.94h	－	－
^{92m}Tc	6.015h	－	－
^{92m}Nb	10.15d	$6.03\times10^{4}\pm6.67\times10^{3}$	－
^{134}Cs	2.0648y	$2.72\times10^{4}\pm5.58\times10^{3}$	$2.35\times10^{4}\pm5.04\times10^{3}$

＊1：測定開始時刻における放射能

表 3.2-3　^{99m}Tc 溶液の放射能測定結果

ミルキング	^{99m}Tc の生成放射能(Bq)*1		回収液量(g)
	Ge 半導体検出器	井戸型電離箱*2	
第 1 回	$9.50\times10^{8}\pm2.64\times10^{6}$	9.08×10^{8}	20.05
第 2 回	$8.57\times10^{8}\pm1.72\times10^{6}$	－	20.32
第 3 回	$1.85\times10^{8}\pm5.34\times10^{5}$	－	20.00
第 4 回	$1.39\times10^{8}\pm3.46\times10^{5}$	－	20.35

＊1：溶媒抽出開始時刻に補正

＊2：20mL に補正

表 3.2-4　^{99m}Tc 回収率(溶媒抽出開始時刻)

ミルキング	^{99}Mo 放射能(Bq)*1	^{99m}Tc 生成放射能(Bq)*2	回収率(%)
第 1 回	1.09×10^{9}	9.71×10^{8}	97.8
第 2 回	8.53×10^{8}	7.53×10^{8}	113.8
第 3 回	3.09×10^{8}	2.76×10^{8}	67.2
第 4 回	2.41×10^{8}	2.13×10^{8}	65.5

＊1：2014/5/21 9:55 時点の ^{99}Mo 放射能 1.41×10^{9}(Bq)が基準値

＊2：式 3-1 による計算値

表 3.2-5　^{99m}Tc 回収率(ミルキング操作終了時刻)及び濃縮係数

ミルキング	ミルキング操作終了時刻の ^{99m}Tc(Bq)＊1	^{99m}Tc 回収率(%)	体積比	濃縮係数
第 1 回	7.99×10^{8}	82.3	30.8	25.4
第 2 回	7.21×10^{8}	95.7	30.2	28.9
第 3 回	1.56×10^{8}	56.5	30.2	17.1
第 4 回	1.17×10^{8}	55.1	29.5	16.2

＊1：溶媒抽出開始時刻にミルキング操作時間を加算した時刻における ^{99m}Tc 放射能

表 3.2-6　第②回溶媒抽出後の Mo 溶解液の放射能測定結果

No.	測定開始時刻	経過時間(h)＊1	^{99}Mo 放射能(Bq)＊2	^{99m}Tc 放射能(Bq)＊2
1	2014/5/26 10:41	0.97	$3.85\times10^{8}\pm1.25\times10^{6}$	$7.94\times10^{7}\pm2.23\times10^{5}$
2	2014/5/27 10:51	25.13	$3.02\times10^{8}\pm7.70\times10^{5}$	$3.06\times10^{8}\pm1.01\times10^{6}$
3	2014/5/28 10:09	48.43	$2.32\times10^{8}\pm9.96\times10^{5}$	$2.55\times10^{8}\pm5.81\times10^{5}$
4	2014/5/29 10:01	72.30	$1.81\times10^{8}\pm1.26\times10^{6}$	$2.00\times10^{8}\pm5.04\times10^{5}$
5	2014/5/30 9:25	95.70	$1.41\times10^{8}\pm2.28\times10^{6}$	$1.54\times10^{8}\pm3.43\times10^{5}$

＊1：経過時間＝測定開始時刻－溶媒抽出時刻(2014/5/26 9:43)

＊2：測定開始時刻における放射能

表 3.2-7　^{99m}Tc 溶液の品質確認試験結果

ミルキング	pH	Al (ppm)	放射性核種純度	MEK (ppm)	放射化学的異物	浸透圧 (mosm)	エンドトキシン
基準値	4.5-7.0	≦10	≦0.015%	≦5000	≦5	270-300	陰性
第 1 回	5.51	－	^{99m}Tc 以外のピーク認めず	404	2.0% (ECD キット)	286	陰性
第 2 回	試験紙 5-6	試験紙 ≦5	^{99m}Tc 以外のピーク認めず	－	－	297	－
第 3 回	試験紙 5-6	試験紙 ≦5	^{99m}Tc 以外のピーク認めず	－	－	294	－
第 4 回	試験紙 5-6	試験紙 ≦5	^{99m}Tc 以外のピーク認めず	－	－	288	－

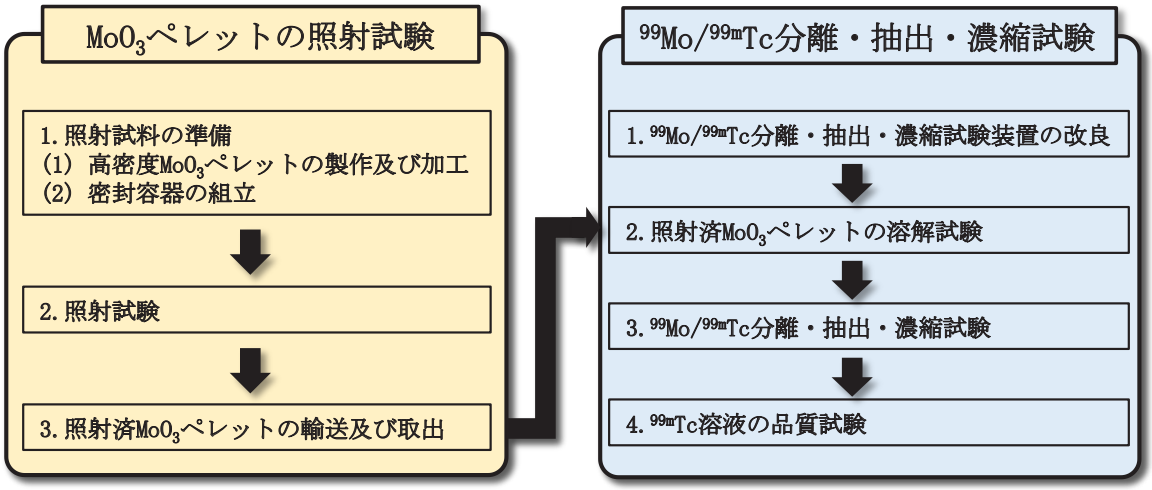
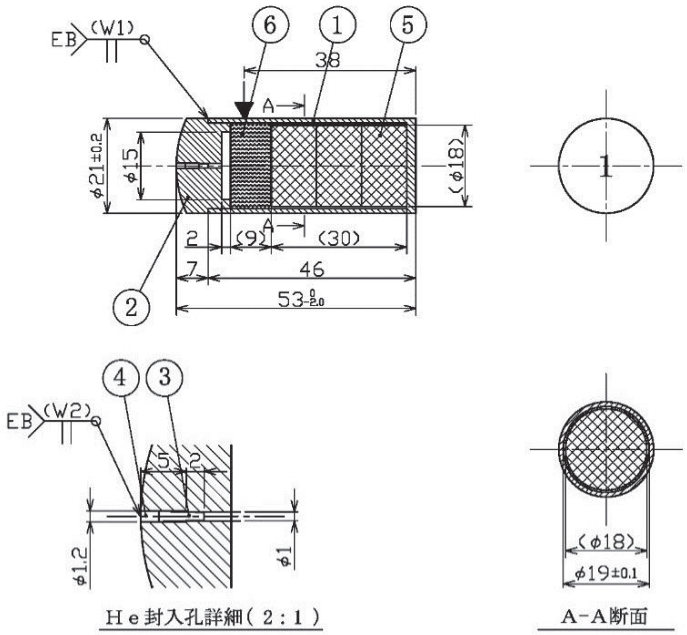


図 1-1　試験フロー図



(単位：mm)

6	緩衝材(高純度アルミ箔)	1 式	―
5	照射試料	3	MoO_3
4	溶封ピン	1	A1050 相当
3	テーパピン	1	A2024-T4
2	端　栓	1	A1050 相当
1	外　筒	1	A1050 相当
品番	部　品　名	個数	材　質

図 2.1-1　KUR 照射用アルミニウム製密封容器の製作図

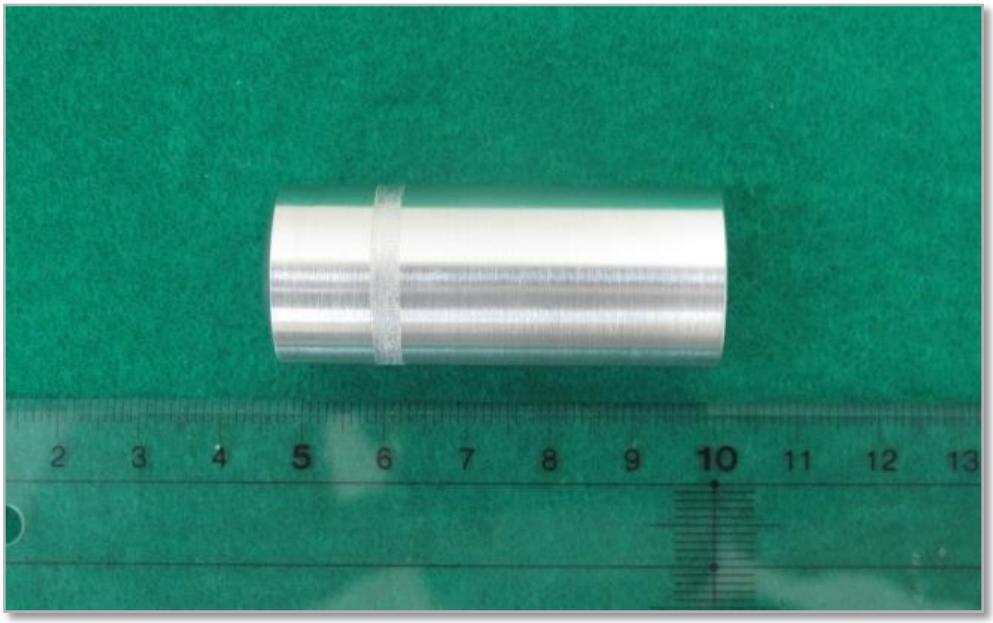


図 2.1-2　KUR 照射用アルミニウム製密封容器の外観写真

図 2.1-3　HYD 用照射カプセルの外観写真

図 2.1-4　照射試料(ドシメータ)の外観写真

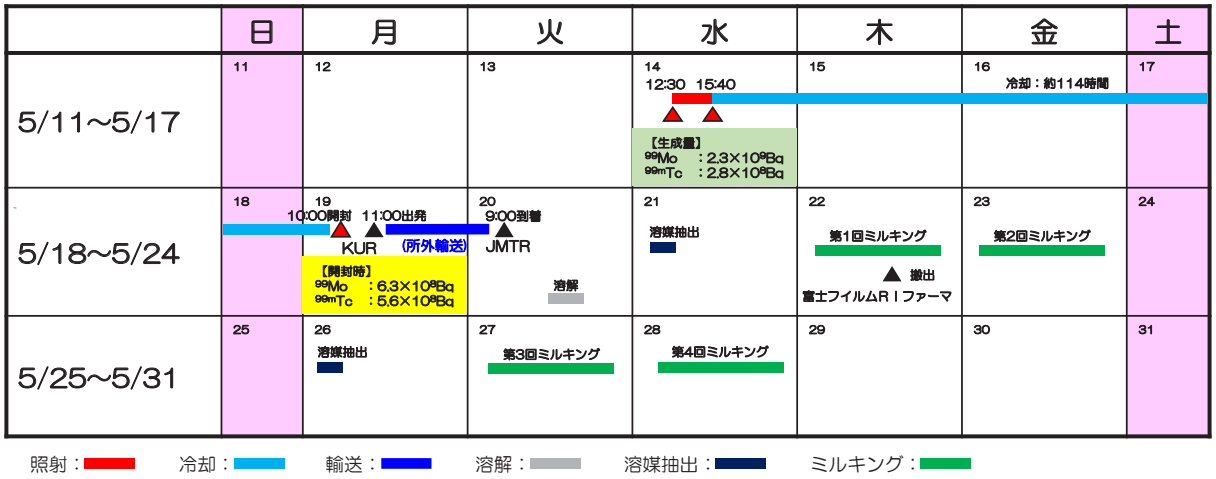


図 2.1-5　照射試験計画

輸送容器　　蓋開放時　　線源収納容器

図 2.1-6　輸送容器(TYC-501A)の外観写真

セル内に線源収納容器を搬入　　輸送容器に収納後、線量率測定　　車両に輸送容器を固縛

図 2.1-7　輸送容器の搬出及び車両への固縛

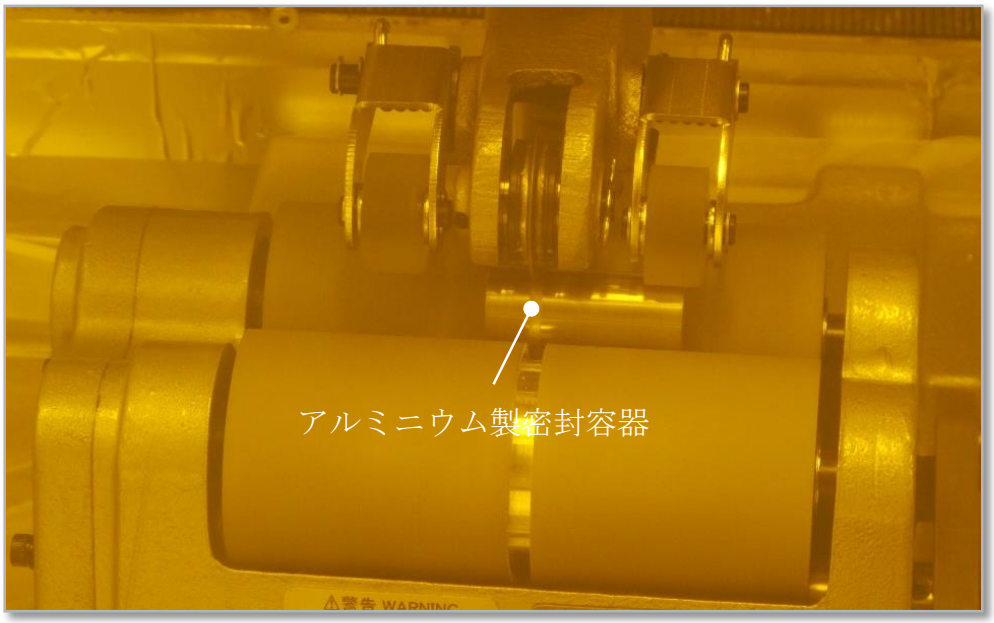


図 2.1-8　内筒切断用パイプカッタの外観写真

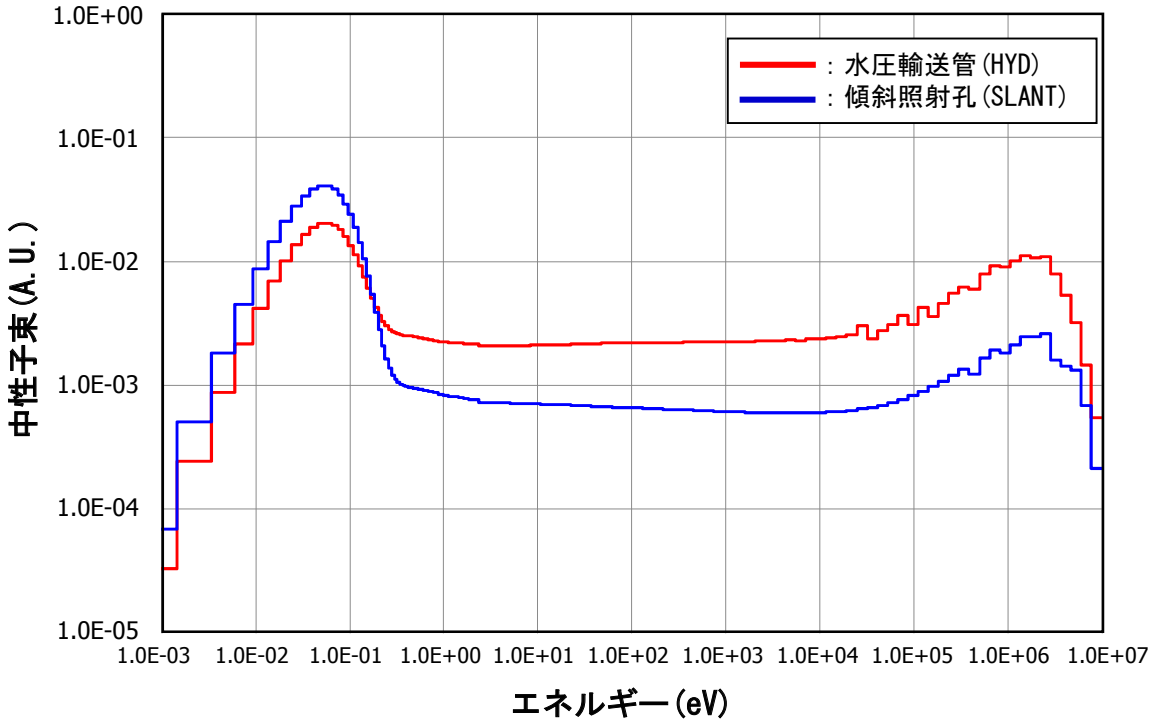


図 2.2-1　HYD 及び SLANT における中性子スペクトル

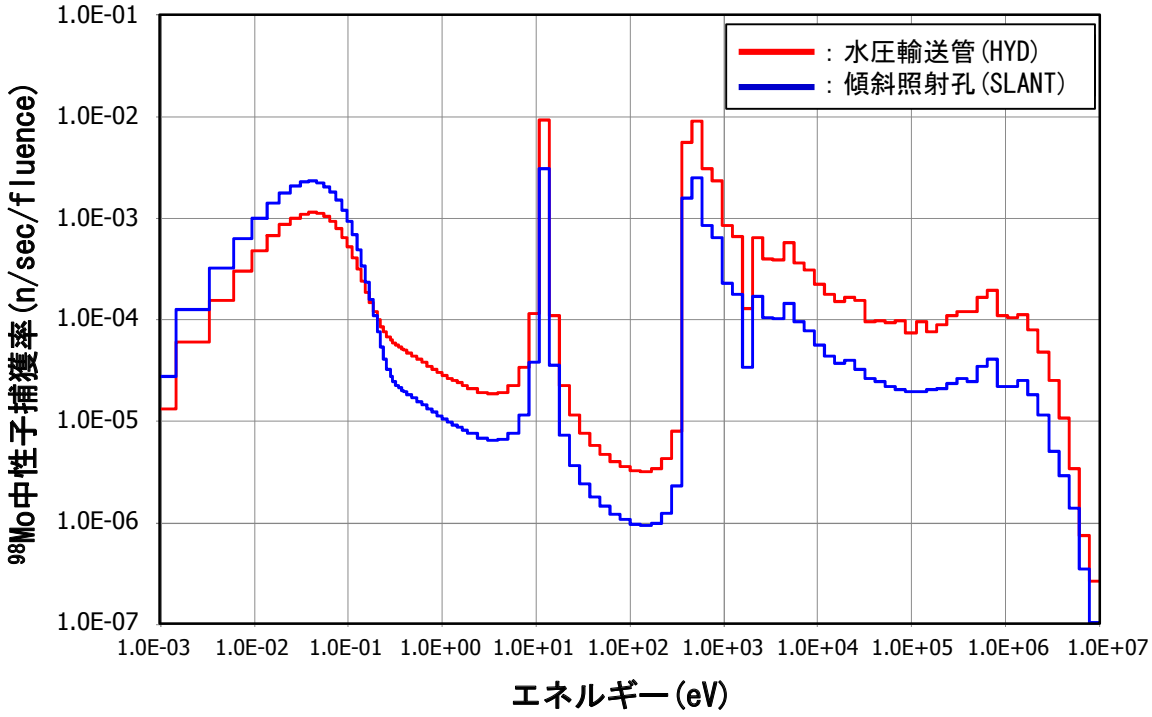


図 2.2-2　各照射領域における中性子照射量あたりの ^{98}Mo 中性子捕獲率

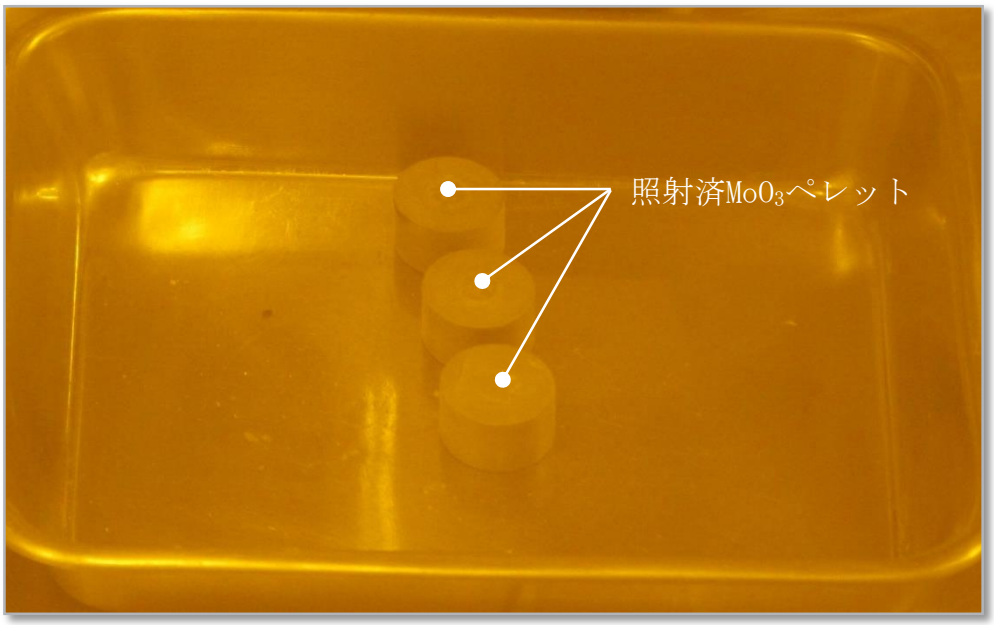
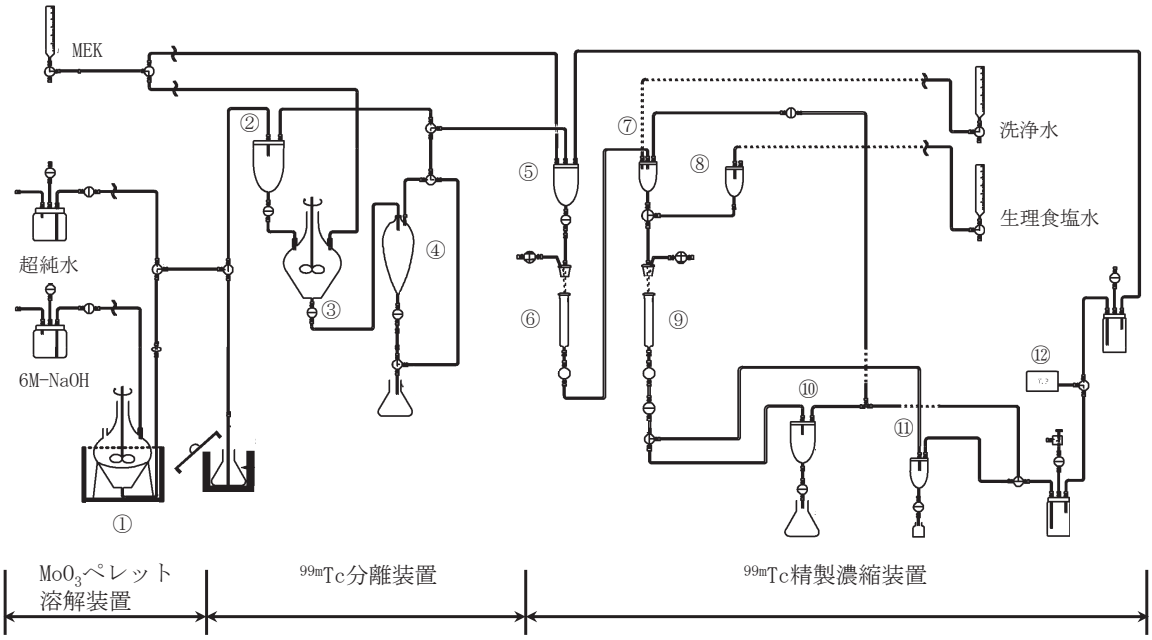


図 2.2-3　照射済 MoO_3 ペレットの外観写真



①	^{99}Mo溶解槽	④	分離槽	⑦	中間受槽	⑩	MEK･洗浄用水受槽
②	^{99}Mo受槽	⑤	MEK受槽	⑧	生理食塩水受槽	⑪	製品受槽
③	攪拌・抽出槽	⑥	塩基性アルミナカラム	⑨	酸性アルミナカラム	⑫	真空ポンプ

図 3.1-1　^{99}Mo/^{99m}Tc 分離・抽出・濃縮試験装置の系統図

図 3.1-2　KUR で照射した高密度 MoO_3 ペレットからの $^{99}Mo/^{99m}Tc$ 分離・抽出・濃縮試験の手順

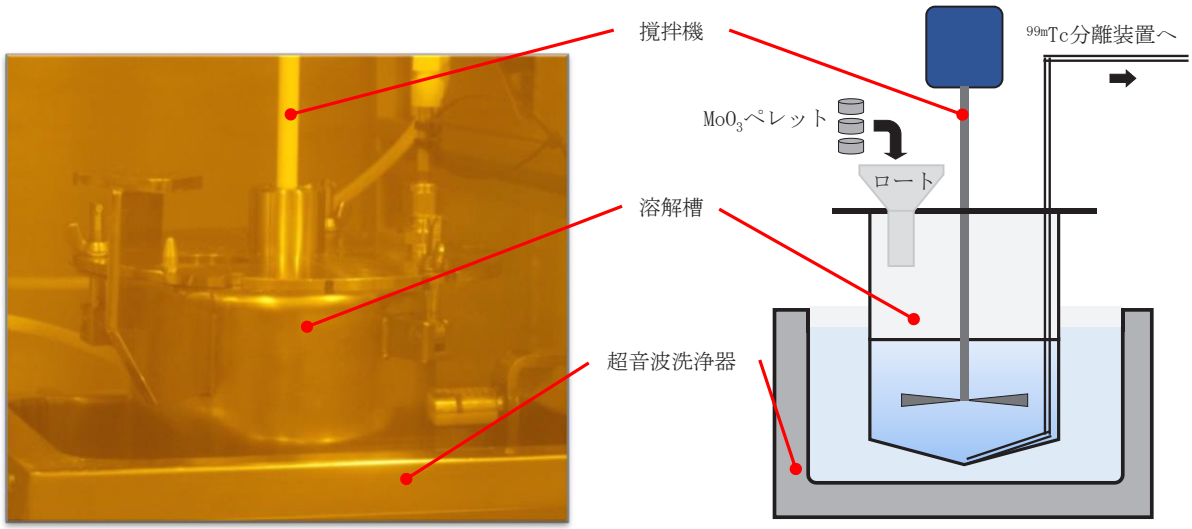


図 3.1-3　MoO_3 ペレット溶解装置の概略図

図 3.1-4　未照射 MoO_3 ペレット(一軸加圧成型・焼結法)の外観写真

図 3.1-5　遮へい体内部の放射能測定試料位置関係

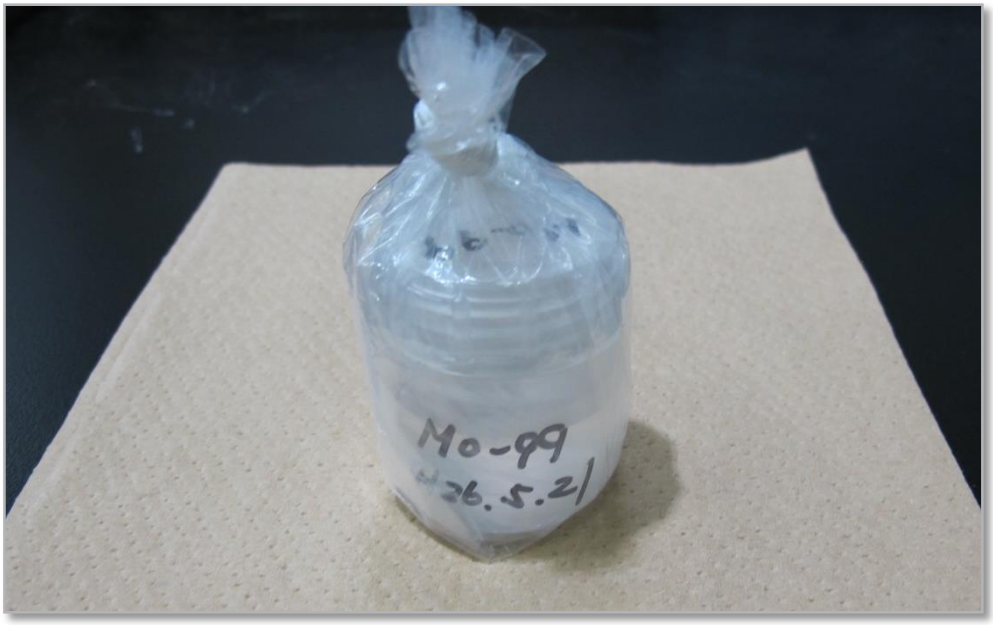


図 3.1-6　放射能測定試料の外観写真

図 3.1-7　微量浸透圧計の外観写真

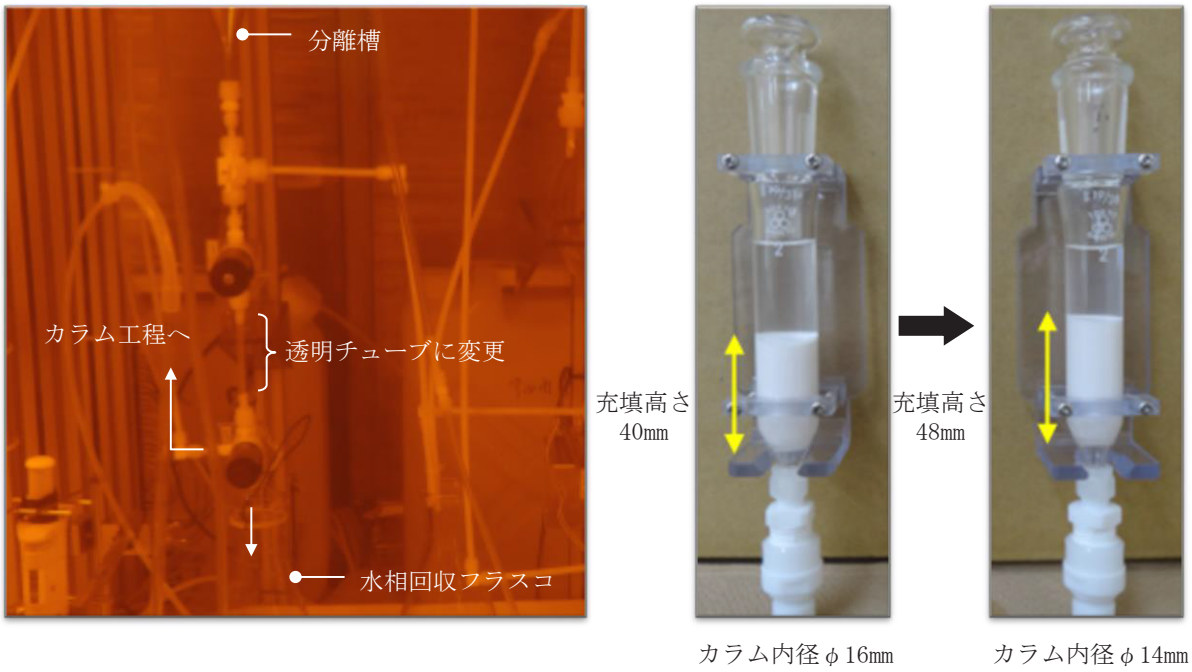


図 3.2-1　^{99}Mo/^{99m}Tc の分離・抽出・濃縮試験装置の改良箇所

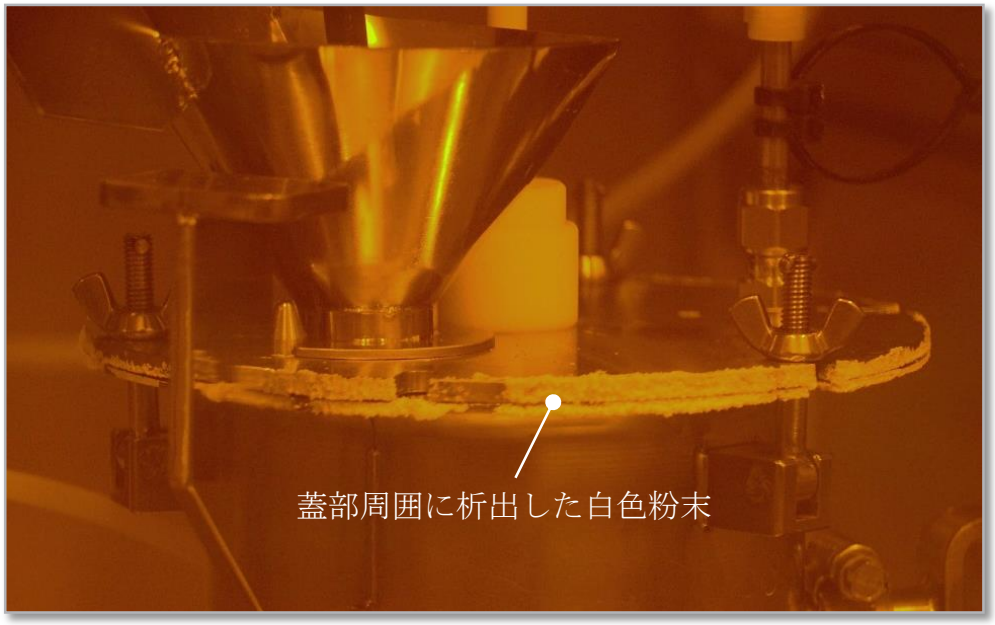


図 3.2-2　溶解槽蓋部の周囲に析出した白色粉末の様子

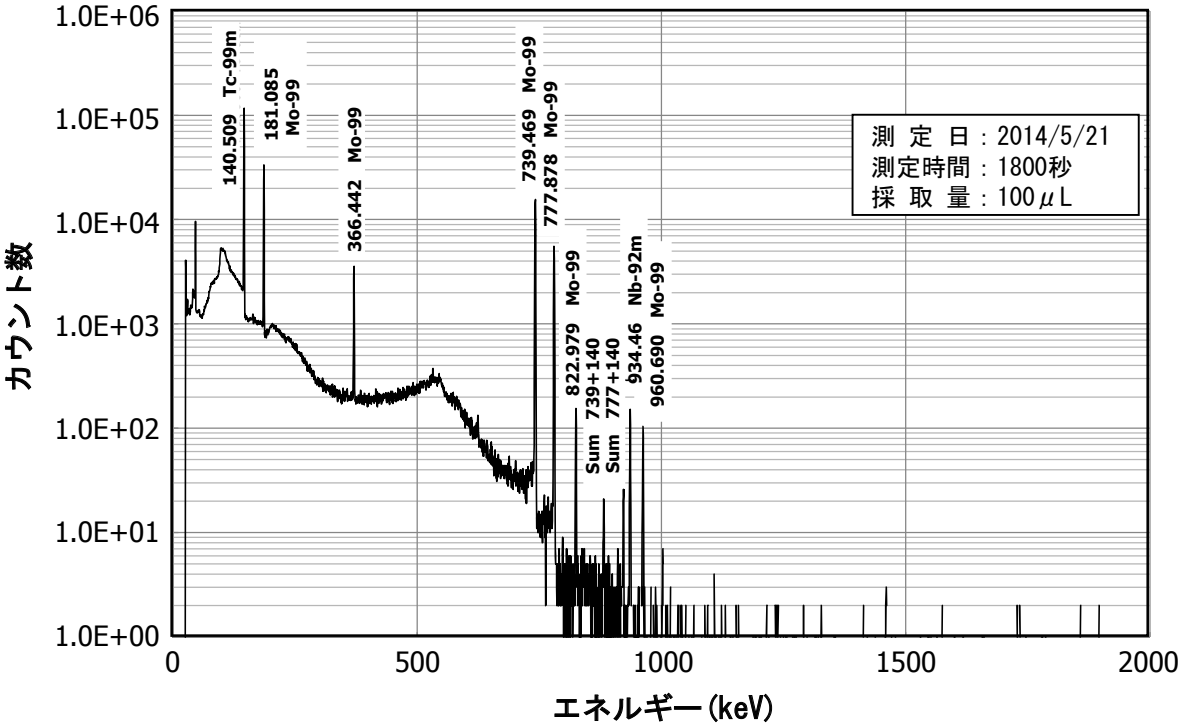


図 3.2-3　第①回溶媒抽出後に採取した Mo 溶解液のガンマ線スペクトル

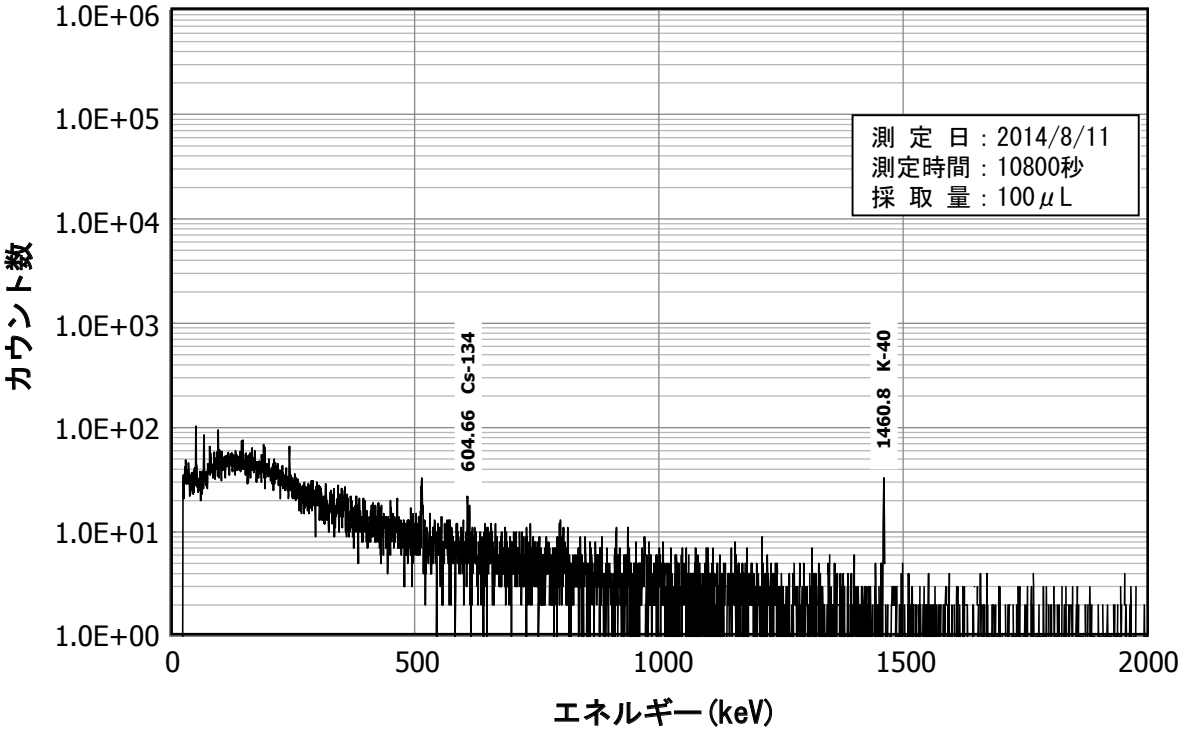


図 3.2-4　82 日冷却後における Mo 溶解液のガンマ線スペクトル

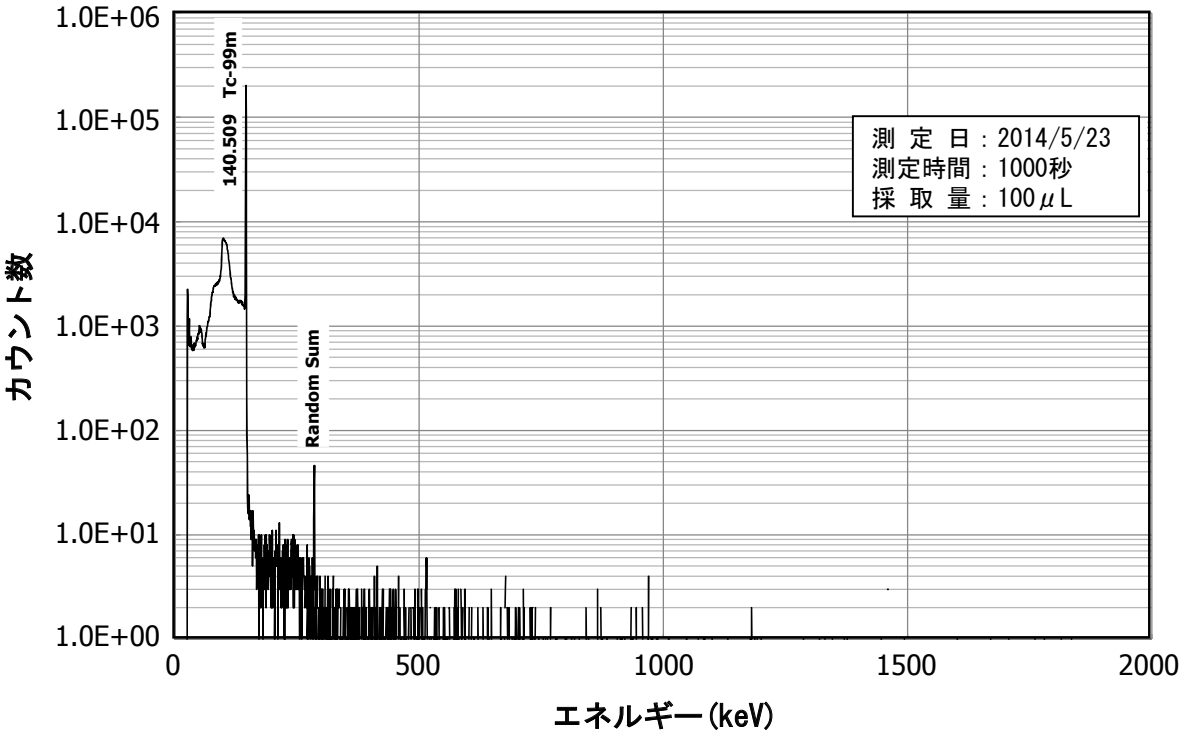


図 3.2-5　第 1 回ミルキングで得た ^{99m}Tc 溶液のガンマ線スペクトル

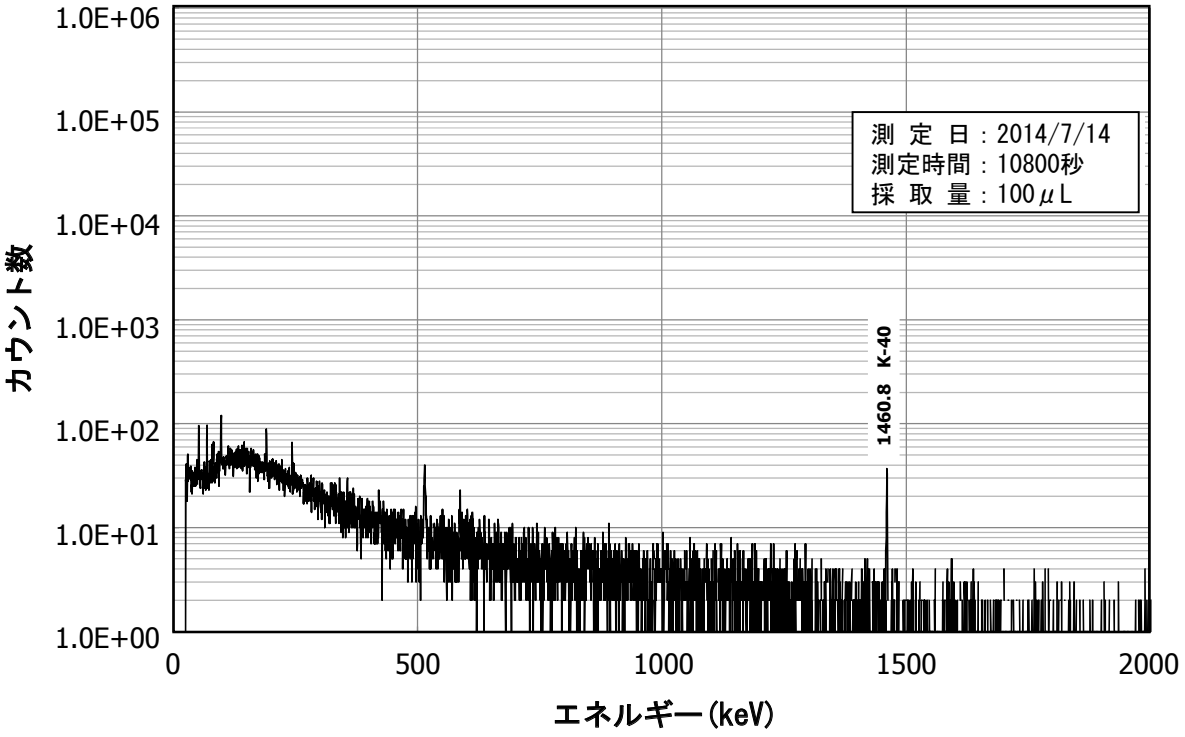


図 3.2-6　52 日冷却後における ^{99m}Tc 溶液のガンマ線スペクトル

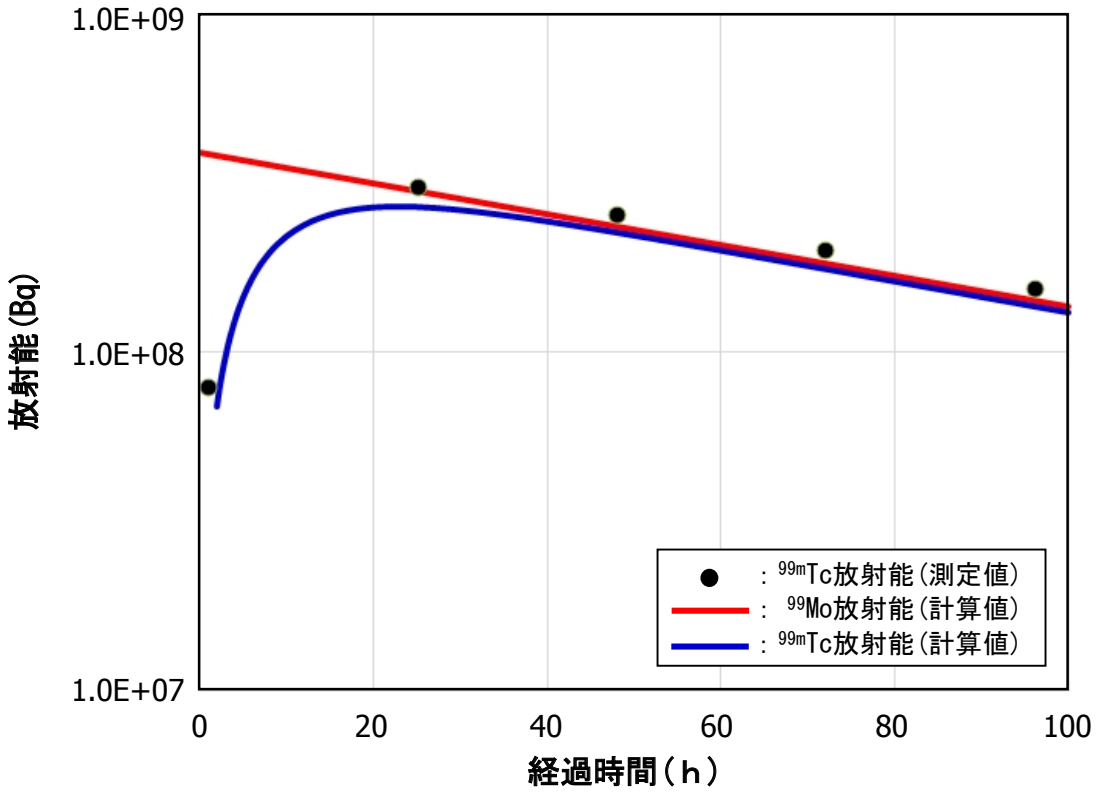


図 3.2-7　第②回溶媒抽出後の Mo 溶解液の放射能測定結果

付録Ａ　^{99m}Tc と Re の関係

付録Ａでは、本報告書で記述された ^{99m}Tc と Re の関係について述べる。

^{99m}Tc は 24 時間ごとに溶媒抽出するため、24 時間で 3.7×10^{12}Bq(100Ci)の ^{99}Mo が何個壊変するかを検討する。^{99m}Tc は 6.015h の半減期で ^{99}Tc となり、^{99}Tc は 2.111×10^{5}y の半減期で安定な ^{99}Ru となるが、^{99}Tc の壊変は極めて少なく無視することした。^{99}Mo の壊変図を図-A に示す。壊変した ^{99}Mo はすべて ^{99m}Tc と ^{99}Tc のどちらかの状態にあると考える。崩壊した ^{99}Mo は、最初に存在した ^{99}Mo の原子個数から 24 時間後の ^{99}Mo 原子個数を引いて求められる。その関係について表-A に示す。

100Ci の ^{99}Mo の原子個数は、$(65.94\times3600/\ln2)\times3.7\times10^{12}=1.27\times10^{18}$ であり、24 時間後は、9.85×10^{17} となる。よって、$1.27\times10^{18}-9.85\times10^{17}=2.83\times10^{17}$ 個の Tc（^{99m}Tc＋^{99}Tc）が存在する。2.83×10^{17} 個に相当する Re(原子量：186.2)は、87.4μg となる。この時の ^{99m}Tc 放射能は 68.9Ci であり、100Ci では 127μg の Re に相当する。

24 時間後の ^{99m}Tc 原子個数は、7.97×10^{16} であり、^{99m}Tc の壊変及び ^{99}Mo から直接生成される ^{99}Tc の原子個数は、2.03×10^{17} となる。この結果、^{99}Tc は ^{99m}Tc の約 2.6 倍多く存在することが分かる。

ここで、各原子個数を求めるための式を下記に示す。

A: ^{99}Mo 原子個数

$$n_1=n_{10}\times\exp(-\lambda_1 t)$$

B: ^{99m}Tc 原子個数

$$n_2=0.877\times n_{10}\times\{\lambda_1/(\lambda_2-\lambda_1)\}\times\{\exp(-\lambda_1 t)-\exp(-\lambda_2 t)\}$$

C: ^{99}Tc 原子個数

$$n_3=0.877\times n_{10}\times[1-\{\lambda_2\times\exp(-\lambda_1 t)/(\lambda_2-\lambda_1)\}-\{\lambda_1\times\exp(-\lambda_2 t)/(\lambda_1-\lambda_2)\}]$$

D: ^{99}Tc 原子個数

$$n_4=0.123\times n_{10}\times\{\lambda_1/(\lambda_3-\lambda_1)\}\times\{\exp(-\lambda_1 t)-\exp(-\lambda_3 t)\}$$

n_{10}	:	^{99}Mo 原子個数
λ_1	:	^{99}Mo の ^{99m}Tc への崩壊定数(s^{-1})
λ_2	:	^{99m}Tc の ^{99}Tc への崩壊定数(s^{-1})
λ_3	:	^{99}Mo の ^{99}Tc への崩壊定数(s^{-1})
t	:	経過時間(s)
0.877	:	^{99}Mo が ^{99m}Tc に転移する割合
0.123	:	^{99}Mo が ^{99}Tc に転移する割合

表-A　^{99}Mo と ^{99m}Tc 及び ^{99}Tc の原子個数の関係

経過時間 (h)	A	B	C	D	B+C+D	^{99}Mo 崩壊個数	^{99}Mo 放射能(Bq)	^{99m}Tc 放射能(Bq)
		^{99}Mo→^{99m}Tc	^{99m}Tc→^{99}Tc	^{99}Mo→^{99}Tc				
	^{99}Mo 原子個数	^{99m}Tc 原子個数	^{99}Tc 原子個数	^{99}Tc 原子個数	^{99m}Tc＋^{99}Tc 原子個数			
0	1.27E+18	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	3.70E+12	0.00E+00
3	1.23E+18	2.91E+16	5.36E+15	4.84E+15	3.93E+16	3.93E+16	3.59E+12	9.33E+11
6	1.19E+18	4.89E+16	1.91E+16	9.53E+15	7.75E+16	7.75E+16	3.47E+12	1.56E+12
9	1.15E+18	6.19E+16	3.84E+16	1.41E+16	1.14E+17	1.14E+17	3.37E+12	1.98E+12
12	1.12E+18	7.03E+16	6.14E+16	1.85E+16	1.50E+17	1.50E+17	3.26E+12	2.25E+12
15	1.08E+18	7.55E+16	8.66E+16	2.27E+16	1.85E+17	1.85E+17	3.16E+12	2.42E+12
18	1.05E+18	7.83E+16	1.13E+17	2.69E+16	2.18E+17	2.18E+17	3.06E+12	2.51E+12
21	1.02E+18	7.95E+16	1.41E+17	3.09E+16	2.51E+17	2.51E+17	2.97E+12	2.55E+12
24	9.85E+17	7.97E+16	1.68E+17	3.48E+16	2.83E+17	2.83E+17	2.87E+12	2.55E+12

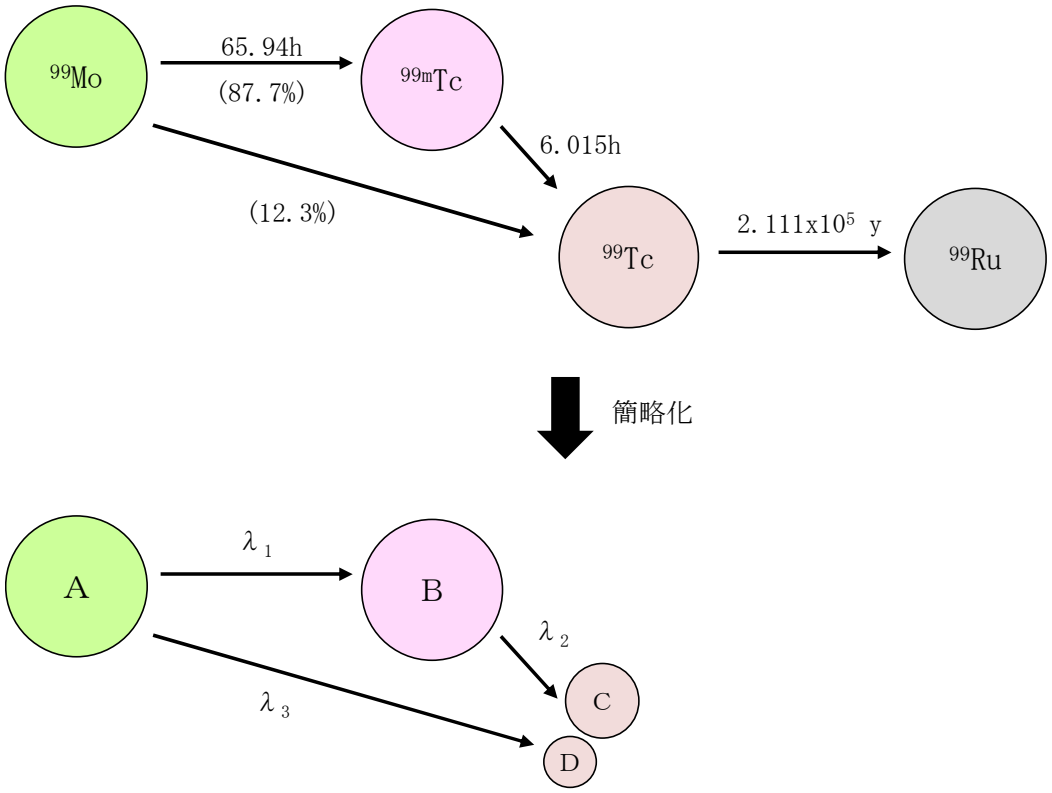
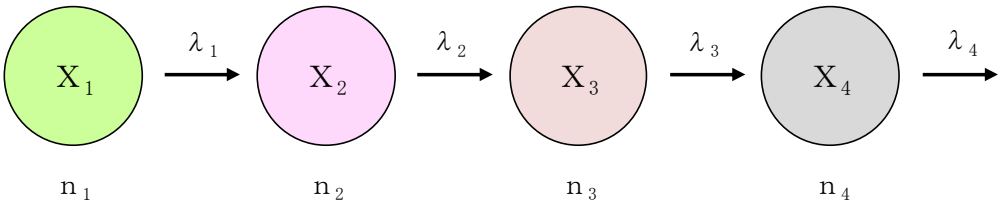


図-A　^{99}Mo の壊変図

付録Ｂ　逐次壊変の解法について

付録Ｂでは、親核種X_1から曾孫娘核種X_4まで壊変する場合、どのような関係式が成立するか解き方を述べる。

放射性核種の系列が図-Bに示す崩壊定数と原子個数を持ち、原子個数$n_{1\sim4}(t)$は時間と共に変化していく。初期条件t＝0で、$n_1(0)=n_0$、$n_2(0)=n_3(0)=n_4(0)=0$として$n_{1\sim4}(t)$を求め、その結果を式(1)～(4)に示す。ただし、 $n_1(t)$は既知とする。



核　　種	X_1	→	X_2	→	X_3	→	X_4	→
崩壊定数		λ_1		λ_2		λ_3		λ_4
原子個数	n_1		n_2		n_3		n_4	

図-B　壊変系列

$$n_1(t) = n_0 \exp(-\lambda_1 t) \qquad \cdots\cdots\cdots(1)$$

$$n_2(t) = \frac{\lambda_1 n_0}{(\lambda_2 - \lambda_1)}\{\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)\} \qquad \cdots\cdots\cdots(2)$$

$$n_3(t) = \lambda_1 \lambda_2 n_0 \left\{ \frac{\exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{\exp(-\lambda_2 t)}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{\exp(-\lambda_3 t)}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right\} \qquad \cdots\cdots\cdots(3)$$

$$n_4(t) = \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 n_0 \left\{ \frac{\exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1)} + \frac{\exp(-\lambda_2 t)}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2)} + \frac{\exp(-\lambda_3 t)}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3)} + \frac{\exp(-\lambda_4 t)}{(\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4)} \right\} \cdots\cdots(4)$$

逐次壊変の解法は、最初に $n_{2\sim4}(t)$について微分方程式を立てる。

$$\frac{\mathrm{d}n_2(t)}{\mathrm{d}t} = \lambda_1 n_1(t) - \lambda_2 n_2(t) \qquad \cdots\cdots\cdots(5)$$

$$\frac{\mathrm{d}n_3(t)}{\mathrm{d}t} = \lambda_2 n_2(t) - \lambda_3 n_3(t) \qquad \cdots\cdots\cdots(6)$$

$$\frac{\mathrm{d}n_4(t)}{\mathrm{d}t} = \lambda_3 n_3(t) - \lambda_4 n_4(t) \qquad \cdots\cdots\cdots(7)$$

これらの微分方程式は上から順に、ラプラス変換を用いて解くと以下のようになる。
まず式(5)に式(1)を代入する。

$$\frac{\mathrm{d}n_2(t)}{\mathrm{d}t} = \lambda_1 n_0 \exp(-\lambda_1 t) - \lambda_2 n_2(t)$$

上式をラプラス変換すると、

$$sN_2(s) - n_2(0) = \lambda_1 N_0 \frac{1}{(s+\lambda_1)} - \lambda_2 N_2(s)$$

t=0 の時、n_2=0 であるから、

$$sN_2(s) + \lambda_2 N_2(s) = \lambda_1 N_0 \frac{1}{(s+\lambda_1)}$$

$$N_2(s) = \lambda_1 N_0 \frac{1}{(s+\lambda_1)(s+\lambda_2)}$$

ここで、

$$\frac{1}{(s+\lambda_1)(s+\lambda_2)}$$

を部分分数に展開する。

$$\frac{1}{(s+\lambda_1)(s+\lambda_2)} = \frac{A}{(s+\lambda_1)} + \frac{B}{(s+\lambda_2)}$$

$$A = \left.\frac{1}{(s+\lambda_2)}\right|_{s=-\lambda_1} = \frac{1}{(\lambda_2-\lambda_1)}$$

$$B = \left.\frac{1}{(s+\lambda_1)}\right|_{s=-\lambda_2} = \frac{1}{(\lambda_1-\lambda_2)}$$

$$N_2(s) = \lambda_1 N_0 \left\{ \frac{1}{(\lambda_2-\lambda_1)} \frac{1}{(s+\lambda_1)} + \frac{1}{(\lambda_1-\lambda_2)} \frac{1}{(s+\lambda_2)} \right\}$$

上式を逆ラプラス変換すると、

$$\mathcal{L}^{-1}(N_2(s)) = n_2(t) = \lambda_1 n_0 \left\{ \frac{1}{(\lambda_2-\lambda_1)} \exp(-\lambda_1 t) + \frac{1}{(\lambda_1-\lambda_2)} \exp(-\lambda_2 t) \right\}$$

$$n_2(t) = \frac{\lambda_1 n_0}{(\lambda_2-\lambda_1)} \{\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)\} \qquad \cdots\cdots\cdots(2)$$

次に式(6)に式(2)を代入する。

$$\frac{\mathrm{d}n_3(t)}{\mathrm{d}t} = \lambda_2 n_2(t) - \lambda_3 n_3(t) = \frac{\lambda_1 \lambda_2 n_0}{(\lambda_2-\lambda_1)} \{\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)\} - \lambda_3 n_3(t)$$

上式をラプラス変換すると、

$$sN_3(s) - n_3(0) + \lambda_3 N_3(s) = \frac{\lambda_1\lambda_2 N_0}{(\lambda_2 - \lambda_1)}\left\{\frac{1}{(s+\lambda_1)} - \frac{1}{(s+\lambda_2)}\right\}$$

t=0 の時、n_3=0 であるから、

$$sN_3(s) + \lambda_3 N_3(s) = \frac{\lambda_1\lambda_2 N_0}{(\lambda_2 - \lambda_1)}\left\{\frac{1}{(s+\lambda_1)} - \frac{1}{(s+\lambda_2)}\right\}$$

$$N_3(s) = \frac{\lambda_1\lambda_2 N_0}{(\lambda_2 - \lambda_1)}\left\{\frac{1}{(s+\lambda_1)(s+\lambda_3)} - \frac{1}{(s+\lambda_2)(s+\lambda_3)}\right\}$$

ここで、

$$\frac{1}{(s+\lambda_1)(s+\lambda_3)}$$

を部分分数に展開する。

$$\frac{1}{(s+\lambda_1)(s+\lambda_3)} = \frac{A}{(s+\lambda_1)} + \frac{B}{(s+\lambda_3)}$$

$$A = \left.\frac{1}{(s+\lambda_3)}\right|_{s=-\lambda_1} = \frac{1}{(\lambda_3 - \lambda_1)}$$

$$B = \left.\frac{1}{(s+\lambda_1)}\right|_{s=-\lambda_3} = \frac{1}{(\lambda_1 - \lambda_3)}$$

さらに、

$$\frac{1}{(s+\lambda_2)(s+\lambda_3)}$$

を部分分数に展開する。

$$\frac{1}{(s+\lambda_2)(s+\lambda_3)} = \frac{C}{(s+\lambda_2)} + \frac{D}{(s+\lambda_3)}$$

$$C = \left.\frac{1}{(s+\lambda_3)}\right|_{s=-\lambda_2} = \frac{1}{(\lambda_3 - \lambda_2)}$$

$$D = \left.\frac{1}{(s+\lambda_2)}\right|_{s=-\lambda_3} = \frac{1}{(\lambda_2 - \lambda_3)}$$

$$N_3(s) = \frac{\lambda_1\lambda_2 N_0}{(\lambda_2 - \lambda_1)}\left\{\frac{1}{(\lambda_3 - \lambda_1)}\frac{1}{(s+\lambda_1)} + \frac{1}{(\lambda_1 - \lambda_3)}\frac{1}{(s+\lambda_3)}\right.$$
$$\left. - \frac{1}{(\lambda_3 - \lambda_2)}\frac{1}{(s+\lambda_2)} - \frac{1}{(\lambda_2 - \lambda_3)}\frac{1}{(s+\lambda_3)}\right\}$$

上式を逆ラプラス変換すると、

$$\mathcal{L}^{-1}(N_3(s)) = n_3(t) = \lambda_1\lambda_2 n_0 \left\{ \frac{\exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_1)} + \frac{\exp(-\lambda_2 t)}{(\lambda_1-\lambda_2)(\lambda_3-\lambda_2)} + \frac{\exp(-\lambda_3 t)}{(\lambda_1-\lambda_3)(\lambda_2-\lambda_3)} \right\} \quad \cdots\cdots\cdots(3)$$

X_3 が安定核種(λ_3=0)の場合は、

$$n_3(t) = n_0 \left\{ 1 - \frac{\lambda_2 \exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2-\lambda_1)} - \frac{\lambda_1 \exp(-\lambda_2 t)}{(\lambda_1-\lambda_2)} \right\}$$

となる。

同様にラプラス変換を用いて(7)式を解くと以下のようになる。ただし、途中経過は省略し、解のみとする。

$$n_4(t) = \lambda_1\lambda_2\lambda_3 n_0 \left\{ \frac{\exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_1)(\lambda_4-\lambda_1)} + \frac{\exp(-\lambda_2 t)}{(\lambda_1-\lambda_2)(\lambda_3-\lambda_2)(\lambda_4-\lambda_2)} + \frac{\exp(-\lambda_3 t)}{(\lambda_1-\lambda_3)(\lambda_2-\lambda_3)(\lambda_4-\lambda_3)} + \frac{\exp(-\lambda_4 t)}{(\lambda_1-\lambda_4)(\lambda_2-\lambda_4)(\lambda_3-\lambda_4)} \right\}$$

X_4 が安定核種(λ_4=0)の場合は、

$$n_4(t) = n_0 \left\{ 1 - \frac{\lambda_2\lambda_3 \exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2-\lambda_1)(\lambda_3-\lambda_1)} - \frac{\lambda_1\lambda_3 \exp(-\lambda_2 t)}{(\lambda_1-\lambda_2)(\lambda_3-\lambda_2)} - \frac{\lambda_1\lambda_2 \exp(-\lambda_3 t)}{(\lambda_1-\lambda_3)(\lambda_2-\lambda_3)} \right\}$$

となる。

式 3-1 の説明

式(2)の両辺に λ_2 を掛け、右辺に ^{99m}Tc に転移する割合 0.877 を掛けると得られる。

$$n_2(t)\lambda_2 = 0.877 \times \frac{\lambda_1 n_0 \lambda_2}{(\lambda_2-\lambda_1)} \{\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)\} \quad \cdots\cdots\cdots(2)$$

ここで、$n_2(t)\,\lambda_2 = A_2$、$\lambda_1 n_0 = A_{10}$ と置くと、

$$A_2 = 0.877 \times A_{10} \times \frac{\lambda_2}{(\lambda_2-\lambda_1)} \{\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)\} \quad \cdots\cdots\cdots 3-1$$

となる。

付録 A の「C:^{99}Tc 原子個数」N_3 の説明

式(3)において核種 X_3 が安定(λ_3=0)とし、ここで、$n_3(t)=N_3$、$n_0=N_{10}$ と置くと、

$$N_3 = N_{10}\left\{1-\frac{\lambda_2 \exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2-\lambda_1)}-\frac{\lambda_1 \exp(-\lambda_2 t)}{(\lambda_1-\lambda_2)}\right\} \qquad \cdots\cdots\cdots(C)$$

となる。

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 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m^2
体積	立方メートル	m^3
速さ，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	1
比透磁率[b]	（数字の）　1	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[b]	rad	1 [b]	m/m
立体角	ステラジアン[b]	sr[c]	1 [b]	m^2/m^2
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	$m^{-1}\ kg\ s^{-2}$
エネルギー，仕事，熱量	ジュール	J	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
仕事率，工率，放射束	ワット	W	J/s	$m^2\ kg\ s^{-3}$
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	$m^2\ kg\ s^{-3}\ A^{-1}$
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^{-2}\ kg^{-1}\ s^4\ A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	$m^2\ kg\ s^{-3}\ A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2}\ kg^{-1}\ s^3\ A^2$
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	$m^2\ kg\ s^{-2}\ A^{-1}$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2	$kg\ s^{-2}\ A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	$m^2\ kg\ s^{-2}\ A^{-2}$
セルシウス温度	セルシウス度[e]	℃		K
光束	ルーメン	lm	cd sr[c]	cd
照度	ルクス	lx	lm/m^2	$m^{-2}\ cd$
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	$m^2\ s^{-2}$
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	$m^2\ s^{-2}$
酸素活性	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	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	$m^{-1}\ kg\ s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	$kg\ s^{-2}$
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	$m\ m^{-1}\ s^{-1}=s^{-1}$
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	$m\ m^{-1}\ s^{-2}=s^{-2}$
熱流密度，放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^2	$kg\ s^{-3}$
熱容量，エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}$
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)	$m^2\ s^{-2}\ K^{-1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	$m\ kg\ s^{-3}\ K^{-1}$
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m^3	$m^{-1}\ kg\ s^{-2}$
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	$m\ kg\ s^{-3}\ A^{-1}$
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m^3	$m^{-3}\ s\ A$
表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2}\ s\ A$
電束密度，電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2}\ s\ A$
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3}\ kg^{-1}\ s^4\ A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	$m\ kg\ s^{-2}\ A^{-2}$
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2\ kg\ s^{-2}\ mol^{-1}$
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)	$m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}\ mol^{-1}$
照射線量（X線及びγ線）	クーロン毎キログラム	C/kg	$kg^{-1}\ s\ A$
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^2\ s^{-3}$
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4\ m^{-2}\ kg\ s^{-3}=m^2\ kg\ s^{-3}$
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2\ sr)$	$m^2\ m^{-2}\ kg\ s^{-3}=kg\ s^{-3}$
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m^3	$m^{-3}\ s^{-1}\ mol$

表５．SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	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=60 s
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/10 800) rad
秒	”	1”=(1/60)’=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 $hm^2=10^4m^2$
リットル	L，l	1 L=1 l=1 $dm^3=10^3cm^3=10^{-3}m^3$
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=0.1MPa=100 kPa=10^5Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg≈133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10^{-10}m
海里	M	1 M=1852m
バーン	b	1 b=100fm^2=$(10^{-12}cm)^2$=$10^{-28}m^2$
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
ベル	B	
デシベル	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^{-7} J
ダイン	dyn	1 dyn=10^{-5}N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm^{-2}=0.1Pa s
ストークス	St	1 St =$1cm^2\ s^{-1}$=$10^{-4}m^2\ s^{-1}$
スチルブ	sb	1 sb =1cd cm^{-2}=10^4cd m^{-2}
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm^{-2} =10^4lx
ガル	Gal	1 Gal =1cm s^{-2}=$10^{-2}ms^{-2}$
マクスウエル	Mx	1 Mx = 1G cm^2=10^{-8}Wb
ガウス	G	1 G =1Mx cm^{-2} =10^{-4}T
エルステッド[a]	Oe	1 Oe ≙ $(10^3/4\pi)$A m^{-1}

(a) 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=1cGy=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		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= 0.2 g = 2×10^{-4}kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリー	cal	1 cal=4.1858J（「15℃」カロリー），4.1868J（「IT」カロリー），4.184J（「熱化学」カロリー）
ミクロン	μ	1 μ =1μm=10^{-6}m

（第8版，2006年）