

JAERI- M

放射性同位体製造資料-1232

8 0 7 4

^{99}Mo 製造用 UO_2 ペレットの中性子
自己しゃへい

1979年2月

山林 尚道

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

^{99}Mo 製造用 UO_2 ペレットの中性子自己しゃへい

日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部

山 林 尚 道

(1979年1月9日受理)

^{235}U (n, f) 反応を用いる ^{99}Mo 製造用の UO_2 ペレット (濃縮度 2.56%) を JRR-2 および JRR-3 で照射した時の中性子自己しゃへい係数を求めた。

中性子自己しゃへい係数は ^{99}Mo 生成量から得られた実効中性子束と、フラックスモニターにより別に測定した熱中性子束との比から求めた。

中性子自己しゃへい係数は UO_2 ペレット 1.2 g, 1.2 g, 1.20 g と増加するにともなって, 0.76, 0.65, 0.58 と減少した, これらの実測値は, Gilat らの計算式を用いて計算した値に比して, 約 3 割方低い値を示した。

Neutron self-shielding factor of UO_2 pellets for ^{99}Mo production

Hisamichi YAMABAYASHI

Division of Radioisotope Production

(Received January 9, 1979)

Neutron self-shielding factors of UO_2 pellets (2.56% enrichment) were measured by irradiation with JRR-2 and JRR-3, in connection with the ^{99}Mo production by neutron-induced fission of ^{235}U .

The neutron self-shielding factor was obtained as the ratio of the effective neutron flux derived from the measured ^{99}Mo activity to the thermal neutron flux measured by a flux monitor in the absence of the UO_2 target.

The neutron self-shielding factors of UO_2 pellets of 1.2, 12 and 120g are 0.76, 0.65 and 0.58, respectively. These values are 30% smaller than those calculated by Gilat's formula.

Keywords: Molybdenum 99, Neutron Self-shielding Factor,
Uranium Dioxide Pellets, 2.56% Enriched Target,
Uranium 235 Fission, Effective Neutron Flux.

目 次

1. 緒 言	1
2. 実 験	2
2.1 ステンレス鋼製被覆管の中性子しゃへい	2
2.2 熱中性子束測定	2
2.3 ^{99}Mo の核分裂収率の検討	2
2.4 化学分離収率の測定	3
2.5 UO_2 照射	3
3. 結 果	3
謝 辞	5
参考文献	5

Contents

1. Introduction.....	1
2. Experimental.....	2
2.1 Neutron self-shielding of stainless steel cladding tubes	2
2.2 Measurement of thermal neutron flux.....	2
2.3 Estimation of ⁹⁹ Mo fission yield.....	2
2.4 Measurement of chemical separation yield.....	3
2.5 Irradiation of UO ₂	3
3. Results.....	3
Acknowledgment.....	5
References.....	5

1. 緒 言

^{99}Mo ($T_{1/2}=67\text{ hr}$)は核医学の分野で $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ($T_{1/2}=6.05\text{ hr}$)の親核種として広い用途が見いだされ、現在毎週約150 Ciが輸入され使用されている。日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部では、 ^{235}U の核分裂生成物から比放射能の高い ^{99}Mo を回収し製品とする ^{235}U (n, f) 法による製造法を確立¹⁾した。

^{99}Mo の製造を目的とした照射では、核分裂生成物中の ^{99}Mo の生成比率が高い時点で照射を中止することが得策で、4～7日間の照射が最も良い。

ターゲットの形態としては、熱的安定性、取扱量、化学処理、入手の難易などの面から、2.56%の濃縮 ^{235}U を含む UO_2 ペレットが採用された。毎週10～20 Ciの ^{99}Mo を出荷するためには、化学処理の損失および出荷までの減衰を考慮すると照射直後120 Ciの ^{99}Mo が必要である。熱中性子束 $3 \times 10^{13}\text{ n/cm}^2\cdot\text{sec}$ で4～7日間照射すると ^{235}U 2.7 g、2.56%濃縮では UO_2 量は120 gとなり、化学処理時の全放射能は1,000 Ciである。

UO_2 ターゲットアッセンブリーは発熱と除熱、気密性、取扱い、輸送、解体等々を考慮してFig. 1の形状になっている。

^{99}Mo 製造用 UO_2 ターゲット (UO_2 120 g、濃縮度2.56%、 $14.50\phi \times 14.0\ell\text{ mm}$ 5ペレット)はJRR-2あるいはJRR-3の垂直孔の重水中で照射される。照射中に核分裂を起し中性子を発生するが、全体として考えた場合は、周囲の熱中性子源に対する負の中性子源であり、熱中性子束は UO_2 ペレット内で降下している。熱中性子束が平均何割降下し、 ^{99}Mo 生成量がいくらになるかを予測することは困難である。そこで ^{99}Mo の製造を通して、 ^{99}Mo 生成量から中性子自己しゃへい係数を求めることを試みた。

照射時間が短いことから ^{235}U の燃焼率は1%以下となり、バーンアップによる補正は無視できるので、 ^{99}Mo 生成量は次式で計算できる。

$$A(t_1, t_2) = \frac{w \cdot 6.023 \times 10^{23}}{M} \cdot F \cdot \phi \cdot F_y \cdot S_{\text{sus}} \cdot S_{\text{uo}_2} \cdot (1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda t_2} \cdot Y \quad (1)$$

ここで $A(t_1, t_2)$: t_1 時間照射し、化学処理を行って照射後 t_2 時間後に得られた ^{99}Mo の放射能 (dps)

M : ^{235}U の原子量

w : ターゲット中の ^{235}U の重量 (g)

F : ^{235}U の実効熱中性子吸収断面積

ϕ : 炉内の熱中性子束

F_y : ^{99}Mo の核分裂収率

S_{sus} : ステンレス鋼製被覆管による中性子しゃへい係数

S_{uo_2} : UO_2 ペレット全体での平均中性子自己しゃへい係数

λ : ^{99}Mo の崩壊定数

Y : 化学分離収率

F は原子炉内の中性子スペクトルおよび温度で定まる。 F_y は微量の ^{235}U を照射することで

実験的に確認できる。 ϕ 、 S_{sus} は実験で求め、さらに Y は ^{99}Mo トレーサーを使用して求めておくことができる。したがって ^{99}Mo 製品量を測定することで、 UO_2 ペレット中の S_{uo_2} を求めることができる。勿論 S_{uo_2} は濃縮度、形状寸法、炉内の減速材などによって異ってくるが、ここでは ^{99}Mo 製造用ターゲットをJRR-2,3の重水中で照射した場合の UO_2 ペレット全体での平均中性子自己しゃへい係数を求めることとした。

2. 実 験

2.1 ステンレス鋼製被覆管の中性子しゃへい

照射中の UO_2 ペレットによる発熱は約3 Kwに達し、被覆管内面温度は500℃を越すため被覆管としてSUS-304が用いられる。被覆管による熱中性子しゃへい係数は次の方法により求めた。

Fig. 2に示すようにSUS-304被覆管および端栓内外に銅線(0.5mm ϕ)を通し、JRR-3気送管で10分間照射した。照射後1日放置して銅線をめき取り、洗浄後1~2mm間隔に切断し各々の ^{64}Cu 放射能を測定した。放射能が減衰後重量を秤量して、各銅線片の比放射能を計算し被覆管内外の熱中性子束降下の割合を求めた。

2.2 熱中性子束測定

JRR-2 VT-2およびJRR-3 VC-2照射孔の熱中性子束は、両炉のチェック運転時に100KWで15~25分間照射により求めた。熱中性子束モニターとして金箔(2mg/cm²)、1.0mg、コバルト箔(4mg/cm²)、2.0mgを使用し、主要な照射位置を10cm間隔で測定した。結果を10MWに換算し、Fig. 3に示した。金箔によるカドミウム比はJRR-2で2.05、JRR-3で1.0である。

^{99}Mo 製造用 UO_2 ターゲットはFig. 3に示した両炉の最も熱中性子束の高い位置で照射することとし、計算に用いる熱中性子束にはエピサーマル中性子の影響を受けないコバルトでの測定値を採用した。

2.3 ^{99}Mo の核分裂収率の検討

少量の2.56%濃縮 UO_2 (1.870mg)を原子炉照射し、 ^{99}Mo の生成量を測定し、 ^{99}Mo の核分裂収率の確認実験を行った。照射にはJMTRハイドロラビット1号機を使用し、Fig. 4に示すターゲットアッセンブリーで24時間の照射を実施した。照射後石英アンブルごとGe(Li)(60cc)半導体検出器と4096 channel pulse height analyserを使用して γ 線スペクトルを測定した。スペクトルデータの解析にはBOB73計算コード³⁾を使用した。一方核分裂生成物の生成量計算にはFP- γ コード⁴⁾を使用し、 ^{235}U が $4.22 \times 10^{-5}g$ と微量で

実験的に確認できる。 ϕ , S_{sus} は実験で求め、さらに Y は ^{99}Mo トレーサーを使用して求めておくことができる。したがって ^{99}Mo 製品量を測定することで、 UO_2 ペレット中の S_{uo_2} を求めることができる。勿論 S_{uo_2} は濃縮度、形状寸法、炉内の減速材などによって異ってくるが、ここでは ^{99}Mo 製造用ターゲットを JRR-2, 3 の重水中で照射した場合の UO_2 ペレット全体での平均中性子自己しゃへい係数を求めることとした。

2. 実 験

2.1 ステンレス鋼製被覆管の中性子しゃへい

照射中の UO_2 ペレットによる発熱は約 3 Kw に達し、被覆管内面温度は 500°C を越すため被覆管として SUS-304 が用いられる。被覆管による熱中性子しゃへい係数は次の方法により求めた。

Fig. 2 に示すように SUS-304 被覆管および端栓内外に銅線 (0.5mm ϕ) を通し、JRR-3 気送管で 10 分間照射した。照射後 1 日放置して銅線をぬき取り、洗浄後 1~2 mm 間隔に切断し各々の ^{64}Cu 放射能を測定した。放射能が減衰後重量を秤量して、各銅線片の比放射能を計算し被覆管内外の熱中性子束降下の割合を求めた。

2.2 熱中性子束測定

JRR-2 VT-2 および JRR-3 VC-2 照射孔の熱中性子束は、両炉のチェック運転時に 100 KW で 15~25 分間照射により求めた。熱中性子束モニターとして金箔 (2 mg/cm²) 1.0 mg, コバルト箔 (4 mg/cm²) 2.0 mg を使用し、主要な照射位置を 10 cm 間隔で測定した。結果を 10 MW に換算し、Fig. 3 に示した。金箔によるカドミウム比は JRR-2 で 2.05, JRR-3 で 1.00 である。

^{99}Mo 製造用 UO_2 ターゲットは Fig. 3 に示した両炉の最も熱中性子束の高い位置で照射することとし、計算に用いる熱中性子束にはエピサーマル中性子の影響を受けないコバルトでの測定値を採用した。

2.3 ^{99}Mo の核分裂収率の検討

少量の 2.56% 濃縮 UO_2 (1.870 mg) を原子炉照射し、 ^{99}Mo の生成量を測定し、 ^{99}Mo の核分裂収率の確認実験を行った。照射には JMTR ハイドロラビット 1 号機を使用し、Fig. 4 に示すターゲットアッセンブリーで 24 時間の照射を実施した。照射後石英アンプルごと Ge (Li) (60 cc) 半導体検出器と 4096 channel pulse height analyser を使用して γ 線スペクトルを測定した。スペクトルデータの解析には BOB73 計算コード³⁾を使用した。一方核分裂生成物の生成量計算には FP- γ コード⁴⁾を使用し、 ^{235}U が $4.22 \times 10^{-5} \text{g}$ と微量で

あることから中性子自己しゃへいを生じないとして計算した。熱中性子束は同時に照射したコバルト箔 (0.931 mg) より求めた値 ($1.90 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) を採用した。 ^{99}Mo の核分裂収率を 6.14% として ^{99}Mo の生成量を計算し、 γ 線測定より得られた実測生成量と比較することで核分裂収率の評価を行った。また ^{99}Mo 生成量の計算には(1)式を使用し手計算も併用したが、FP- γ コードとの差は 1% 以下であった。

2.4 化学分離収率の測定

^{99}Mo 製造は Fig. 5 に示す工程に従って化学分離され、放射化学的純度 99.9% 以上の製品が得られる。本格製造に先だって、 ^{99}Mo 1 mCi 前後をトレーサーとして全工程での化学収率を測定した。トレーサーランでは ^{99}Mo 単独の場合および未照射 UO_2 に ^{131}I , ^{133}Xe と併せて加えた場合について収率を測定した。

2.5 UO_2 照射

^{99}Mo 試験製造は本格規模の $1/1000$ スケールから $1/100$, $1/10$, 本格規模へとスケールアップして実施した。照射は Fig. 1 に示したターゲットアッセンブリーで行い、少量の場合には、ステンレスウール部分にインコネル 600 スプリングを使用した。

3. 結 果

2.56% 濃縮 UO_2 , 1.2 g ; 12 g ; 120 g を JRR-2 および JRR-3 で $4 \sim 7$ 日照射し、 $1 \sim 3$ 日冷却後化学処理をし、 ^{99}Mo を製造回収した。 ^{99}Mo 製品量から逆算して、 UO_2 ターゲットの熱中性子自己しゃへい係数の評価を行った。

^{235}U の熱中性子吸収断面積は $2,200 \text{ m}^2/\text{sec}$ に対して 582 バーンであるが、炉内の重水温度を 60°C とし、JRR-2 VT-2 照射孔の Cd 比が 2.05 であることから、“Westcott convention⁵⁾” により計算し、実効断面積として 562 バーンを採用した。

JMTR による微量の UO_2 照射により ^{99}Mo の核分裂収率を確認した結果を比較のために他の FP のそれと共に Table 1 に示した。非破壊による γ 線測定の結果から照射直後の ^{99}Mo 生成量を求めると 0.47 mCi (140 Kev γ 線より定量) または 0.51 mCi (180 Kev γ 線より定量) となった。 ^{99}Mo の核分裂収率を文献値 6.14% ⁶⁾ とし、同時に照射したコバルト箔から熱中性子束を求め、 ^{99}Mo の生成量を計算すると 0.47 mCi であり、実測値と良く一致した。比較のために求めた ^{141}Ce , ^{140}Ba , ^{131}I , ^{103}Ru , ^{95}Zr についての値も Table 1 に併記したように良い一致を示している。計算値と実測値が比較的良い一致を示すことから、 ^{235}U の実効断面積、熱中性子束などの評価に大きな誤りはないと云える。したがって ^{99}Mo の核分裂収率に 6.14% を採用することとした。

ステンレス鋼製被覆管による熱中性子束のしゃへい係数は、Fig. 2 に示した被覆管内部の

あることから中性子自己しゃへいを生じないとして計算した。熱中性子束は同時に照射したコバルト箔 (0.931 mg) より求めた値 ($1.90 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) を採用した。 ^{99}Mo の核分裂収率を 6.14% として ^{99}Mo の生成量を計算し、 γ 線測定より得られた実測生成量と比較することで核分裂収率の評価を行った。また ^{99}Mo 生成量の計算には(1)式を使用し手計算も併用したが、FP- γ コードとの差は 1% 以下であった。

2.4 化学分離収率の測定

^{99}Mo 製造は Fig. 5 に示す工程に従って化学分離され、放射化学的純度 99.9% 以上の製品が得られる。本格製造に先だって、 ^{99}Mo 1 mCi 前後をトレーサーとして全工程での化学収率を測定した。トレーサーランでは ^{99}Mo 単独の場合および未照射 UO_2 に ^{131}I , ^{133}Xe と併せて加えた場合について収率を測定した。

2.5 UO_2 照射

^{99}Mo 試験製造は本格規模の $1/1000$ スケールから $1/100$, $1/10$, 本格規模へとスケールアップして実施した。照射は Fig. 1 に示したターゲットアッセンブリーで行い、少量の場合には、ステンレスウール部分にインコネル 600 スプリングを使用した。

3. 結 果

2.56 濃縮 UO_2 , 1.2 g ; 12 g ; 120 g を JRR-2 および JRR-3 で $4 \sim 7$ 日照射し、 $1 \sim 3$ 日冷却後化学処理をし、 ^{99}Mo を製造回収した。 ^{99}Mo 製品量から逆算して、 UO_2 ターゲットの熱中性子自己しゃへい係数の評価を行った。

^{235}U の熱中性子吸収断面積は $2,200 \text{ m}^2/\text{sec}$ に対して 582 バーンであるが、炉内の重水温度を 60°C とし、JRR-2 VT-2 照射孔の Cd 比が 2.05 であることから、“Westcott convention⁵⁾” により計算し、実効断面積として 562 バーンを採用した。

JMTR による微量の UO_2 照射により ^{99}Mo の核分裂収率を確認した結果を比較のために他の FP のそれと共に Table 1 に示した。非破壊による γ 線測定の結果から照射直後の ^{99}Mo 生成量を求めると 0.47 mCi (140 Kev γ 線より定量) または 0.51 mCi (180 Kev γ 線より定量) となった。 ^{99}Mo の核分裂収率を文献値 6.14% ⁶⁾ とし、同時に照射したコバルト箔から熱中性子束を求め、 ^{99}Mo の生成量を計算すると 0.47 mCi であり、実測値と良く一致した。比較のために求めた ^{141}Ce , ^{140}Ba , ^{131}I , ^{103}Ru , ^{95}Zr についての値も Table 1 に併記したように良い一致を示している。計算値と実測値が比較的良い一致を示すことから、 ^{235}U の実効断面積、熱中性子束などの評価に大きな誤りはないと云える。したがって ^{99}Mo の核分裂収率に 6.14% を採用することとした。

ステンレス鋼製被覆管による熱中性子束のしゃへい係数は、Fig. 2 に示した被覆管内部の

鋼線の比放射能降下比率から0.95の値を得た。被覆管内の熱中性子降下比は計算で評価しにくい、SUS-304(密度7.9 g/cm³)の熱中性子吸収断面積 Σ_a は0.230 cm⁻¹であり、1.5 mm角で0.5 mm厚の板による熱中性子降下比は、Zweifel⁷⁾等の計算式 $f_1 = \frac{1}{2\xi}(1 - e^{-2\xi})$; $\xi = (2V/S)\Sigma_a$ (V:体積, S:表面積)で、 $f_1 = 0.989$ となる。一方外径12.0 mm, 内厚0.5 mmの中空球による熱中性子降下比は、Bartel's^{8,9)}等の $\tau = \frac{2}{3}V\Sigma_{tot}$ の関数としてプロットしたグラフから求めると、 $f_2 = 0.86$ となる。実験値 $f = 0.95$ は両者の中間に入り、妥当な値と考えられる。ジルカロイ製とした場合には上記の値は $f_1 = 0.99$, $f_2 = 0.99$ となる。実験値は⁶⁴Cuの生成量から評価した値であり、²³⁵Uの核分裂に対して、そのまま適用し得るか否かは問題であるが、一般に軽水炉の分野でジルカロイ製被覆管を使用した場合と比較して、ステンレス鋼製被覆管ではやはり、5%前後の中性子降下を生ずることから、大きな差はないと考えられる。

コバルトのフラックスモニターにより測定した熱中性子束は、JRR-2に対し $\phi_{th} = 4.3 \times 10^{13n}/cm^2 \cdot sec$, またJRR-3に対しては $\phi_{th} = 2.0 \times 10^{13n}/cm^2 \cdot sec$ であった。

化学分離工程での化学収率は、⁹⁹Moを使用した4回のトレーサーランで実測し、下に示すように平均53 ± 7%という結果を得た。

回数	トレーサー核種(量)	化学収率
1	⁹⁹ Mo (7.2 mCi)	49%
2	⁹⁹ Mo (0.2 mCi), ¹³¹ I (2.8 mCi)	64%
3	⁹⁹ Mo (5.4 mCi), ¹³¹ I (7.2 mCi)	53%
4	⁹⁹ Mo (1.1 mCi), ¹³¹ I (1.8 mCi), ¹³³ Xe (3.3 mCi), UO ₂ (120 g)	47%
平均		53 ± 7%

以上の数値を用いて求めた⁹⁹Mo製造用UO₂ターゲット(UO₂ 120 g, 濃縮度2.56%, 14.50φ × 14.0ℓ mm × 5ペレット)のJRR-2,3(重水炉)照射での熱中性子自己しゃへい係数はTable 2およびFig. 6に示すように2回の実験で0.58および0.62であった。一方熱電対を取りつけて照射した⁹⁹Mo製造用計装カプセルの発熱データを解析し、その発熱量から熱中性子自己しゃへい係数を求めた結果は $f = 0.55$ ¹⁰⁾であり、比較的良い一致を示している。しかしJ. GILAT¹¹⁾らが報告している計算式を使って予想していた値0.78より約3割低い値を示している。この差は計算では温度・囲りの減速材などを考慮せず、ターゲットの形状・寸法と熱中性子吸収断面積のみで評価したためと考えられる。また、⁹⁹Mo製造用UO₂ペレットは寸法・形状・濃縮度共にATR燃料ペレットと同一であるがATR燃料ペレットについては中性子束降下の割合がJMTRCの実験の結果として0.86という報告¹²⁾がある。この値との差は、軽水炉と重水炉の差と考えられる。重水炉の方が中性子の減速効果が高く、²³⁵Uの実効断面積が大きくなっているためと思われる。

UO₂ターゲットによる熱中性子自己しゃへい係数は、炉型(燃料・減速材・反射材など)、温度、中性子スペクトル、濃縮度、形状、燃焼率などにより異なり、一概に規格化できないので、⁹⁹Mo生成量を予測する際この点が一番問題であった。本実験の結果⁹⁹Mo製造用ターゲットの場合、中性子自己しゃへい係数が0.58, 0.62であり、約4割の中性子降下をとるようこ

とが判った。現在は逆にこの値を用いて ^{99}Mo 製造における化学収率を求めているが、その結果は製造工程の改善に伴い最近では化学収率が60ないし70%に高められたことが確かめられている。

以上の結果は今後ターゲットの増量，濃縮度の変更，中空円筒ペレットの製作などを行う上で，生成量の予測，発熱量の検討，ターゲット製作の寸法，形状などに大いに有用なる知見となり得るものである。

謝 辞

照射面で協力をいただいた研究炉管理部炉利用課の佐藤久男氏を始めとする同課の方々， ^{99}Mo 製造面での製造部製造課の ^{99}Mo 製造グループの方々，測定面で協力をいただいた製造部検査課石川勇氏に深く感謝致します。またまとめに関して指導下さいました馬場宏主任研究員に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 川上泰 ^{99}Mo 大量製造技術 Isotope news Vol.10 No280 (1997)
- 2) JRR-2 管理課「JRR-2 第3次特性試験」JAERI-memo 4141 (公開)(1970. 7)
- 3) 馬場宏，関根俊明，馬場澄子，岡下宏，「 γ 線スペクトルの解析法：Ge (Li) 検出器用のコード“BOB73”とNa (Ti) 検出器用のコード“NAISAP”」JAERI 1227 (1973)
- 4) 笹本宣雄，田坂完二，小山謹二「核分裂生成物による γ 線スペクトル計算コード“FP- γ ”」JAERI-memo 3776 (公開) (1969)
- 5) C. H. Westcott, W. H. Walker, T. K. Alexander, “Effective Cross-sections and Cadmium Ratios for the Neutron Spectra of Thermal Reactors,” Proc. 1958 Geneva conference, 16: Paper No. 202, P. 70
- 6) S. Katcoff, Nucleonics, 16, No. 4, 78 (1958)
- 7) P. F. Zweifel, “Neutron Self-shielding” Nucleonics, Vol. 18, No. 11 (1960)
- 8) W. J. C. Bartels, KAPL-336 (1950)
- 9) J. Dworh, et al., KAPL-1262 (1955)
- 10) 佐藤久男，三村謙，小池忠雄，笹島文雄，山林尚道「(n, f) 法による ^{99}Mo の製造 (I) (原子炉施設の製作と照射) 日本原子力学会53年々会, F30 (1978)
- 11) J. Gilat, Y. Gurfinkel, “Self-shielding in Activation Analysis,” Nucleonics, Vol. 21, No. 8 (1963)
- 12) 機料試験炉部「JMTR 照射ハンドブック」P129 (1976)

とが判った。現在は逆にこの値を用いて ^{99}Mo 製造における化学収率を求めているが、その結果は製造工程の改善に伴い最近では化学収率が60ないし70%に高められたことが確かめられている。

以上の結果は今後ターゲットの増量，濃縮度の変更，中空円筒ペレットの製作などを行う上で，生成量の予測，発熱量の検討，ターゲット製作の寸法，形状などに大いに有用なる知見となり得るものである。

謝 辞

照射面で協力をいただいた研究炉管理部炉利用課の佐藤久男氏を始めとする同課の方々， ^{99}Mo 製造面での製造部製造課の ^{99}Mo 製造グループの方々，測定面で協力をいただいた製造部検査課石川勇氏に深く感謝致します。またまとめに関して指導下さいました馬場宏主任研究員に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 川上泰 ^{99}Mo 大量製造技術 Isotope news Vol.10 No280 (1997)
- 2) JRR-2 管理課「JRR-2 第3次特性試験」JAERI-memo 4141 (公開)(1970. 7)
- 3) 馬場宏，関根俊明，馬場澄子，岡下宏，「 γ 線スペクトルの解析法：Ge (Li) 検出器用のコード“BOB73”とNa (Ti) 検出器用のコード“NAISAP”」JAERI 1227 (1973)
- 4) 笹本宣雄，田坂完二，小山謹二「核分裂生成物による γ 線スペクトル計算コード“FP- γ ”」JAERI-memo 3776 (公開) (1969)
- 5) C. H. Westcott, W. H. Walker, T. K. Alexander, “Effective Cross-sections and Cadmium Ratios for the Neutron Spectra of Thermal Reactors,” Proc. 1958 Geneva conference, 16: Paper No. 202, P. 70
- 6) S. Katcoff, Nucleonics, 16, No. 4, 78 (1958)
- 7) P. F. Zweifel, “Neutron Self-shielding” Nucleonics, Vol. 18, No. 11 (1960)
- 8) W. J. C. Bartels, KAPL-336 (1950)
- 9) J. Dworh, et al., KAPL-1262 (1955)
- 10) 佐藤久男，三村謙，小池忠雄，笹島文雄，山林尚道「(n, f) 法による ^{99}Mo の製造 (I) (原子炉施設の製作と照射) 日本原子力学会53年々会, F30 (1978)
- 11) J. Gilat, Y. Gurfinkel, “Self-shielding in Activation Analysis.” Nucleonics, Vol. 21, No. 8 (1963)
- 12) 機料試験炉部「JMTR 照射ハンドブック」P129 (1976)

とが判った。現在は逆にこの値を用いて ^{99}Mo 製造における化学収率を求めているが、その結果は製造工程の改善に伴い最近では化学収率が60ないし70%に高められたことが確かめられている。

以上の結果は今後ターゲットの増量，濃縮度の変更，中空円筒ペレットの製作などを行う上で，生成量の予測，発熱量の検討，ターゲット製作の寸法，形状などに大いに有用なる知見となり得るものである。

謝 辞

照射面で協力をいただいた研究炉管理部炉利用課の佐藤久男氏を始めとする同課の方々， ^{99}Mo 製造面での製造部製造課の ^{99}Mo 製造グループの方々，測定面で協力をいただいた製造部検査課石川勇氏に深く感謝致します。またまとめに関して指導下さいました馬場宏主任研究員に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 川上泰 ^{99}Mo 大量製造技術 Isotope news Vol.10 No280 (1997)
- 2) JRR-2 管理課「JRR-2 第3次特性試験」JAERI-memo 4141 (公開)(1970. 7)
- 3) 馬場宏，関根俊明，馬場澄子，岡下宏，「 γ 線スペクトルの解析法：Ge (Li) 検出器用のコード“BOB73”とNa (Tl) 検出器用のコード“NAISAP”」JAERI 1227 (1973)
- 4) 笹本宣雄，田坂完二，小山謹二「核分裂生成物による γ 線スペクトル計算コード“FP- γ ”」JAERI-memo 3776 (公開) (1969)
- 5) C. H. Westcott, W. H. Walker, T. K. Alexander, "Effective Cross-sections and Cadmium Ratios for the Neutron Spectra of Thermal Reactors," Proc. 1958 Geneva conference, 16: Paper No. 202, P. 70
- 6) S. Katcoff, Nucleonics, 16, No. 4, 78 (1958)
- 7) P. F. Zweifel, "Neutron Self-shielding" Nucleonics, Vol. 18, No. 11 (1960)
- 8) W. J. C. Bartels, KAPL-336 (1950)
- 9) J. Dworh, et al., KAPL-1262 (1955)
- 10) 佐藤久男，三村謙，小池忠雄，笹島文雄，山林尚道「(n, f) 法による ^{99}Mo の製造 (I) (原子炉施設の製作と照射) 日本原子力学会53年々会, F30 (1978)
- 11) J. Gilat, Y. Gurfinkel, "Self-shielding in Activation Analysis." Nucleonics, Vol. 21, No. 8 (1963)
- 12) 機料試験炉部「JMTR 照射ハンドブック」P129 (1976)

Table 1 Values of fission yields of various nuclides in the neutron fission of ²³⁵U

Nuclide	γ -ray energy for quantity (Kev)	Observed Activity (mCi)	Calculated Activity (mCi)	Fission yield* (%)
⁹⁹ Mo	140	0.47 ± 0.07	0.47	6.14
⁹⁹ Mo	180	0.51 ± 0.07	0.47	6.14
¹⁴¹ Ce	145	0.039 ± 0.006	0.042	6.0
¹⁴⁰ Ba	160	0.12 ± 0.02	0.11	6.44
¹³¹ I	364	0.84 ± 0.13	0.86	3.1
¹⁰³ Ru	497	0.019 ± 0.003	0.017	3.0
⁹⁵ Zr	756	0.021 ± 0.003	0.022	6.2

*) S. Katcuff, Nucleonics, 16, No. 4, 78 (1958)

Table 2 Neutron self-shielding factor of UO₂

UO ₂ target weight (g)	Reactor irradiation	Irradiation time (d)	⁹⁹ Mo Activity calc. (Ci)	⁹⁹ Mo Activity products (Ci)	UO ₂ Self-shielding factor
1.370	JRR-3, VC-2	6.895	0.600	0.466 ± 0.046	0.76 ± 0.13
1.177	JRR-3, VC-2	6.793	5.26	3.42 ± 0.34	0.65 ± 0.11
1.208	JRR-2, VT-2	4.243	9.19	5.33 ± 5.3	0.58 ± 0.10
1.208	JRR-3, VC-2	6.190	5.37	3.33 ± 3.3	0.62 ± 0.10

*) FP- γ Code, ²³⁵UF=562 barn, $\phi_{R-2}=4.3 \times 10^{13}$ n/cm².sec, $\phi_{R-3}=2.0 \times 10^{13}$ n/cm².sec, ²³⁵U Enrichment 2.6%, SUS cladding self-shielding factor F_{SUS}=0.95, Chemical yield Y=0.53

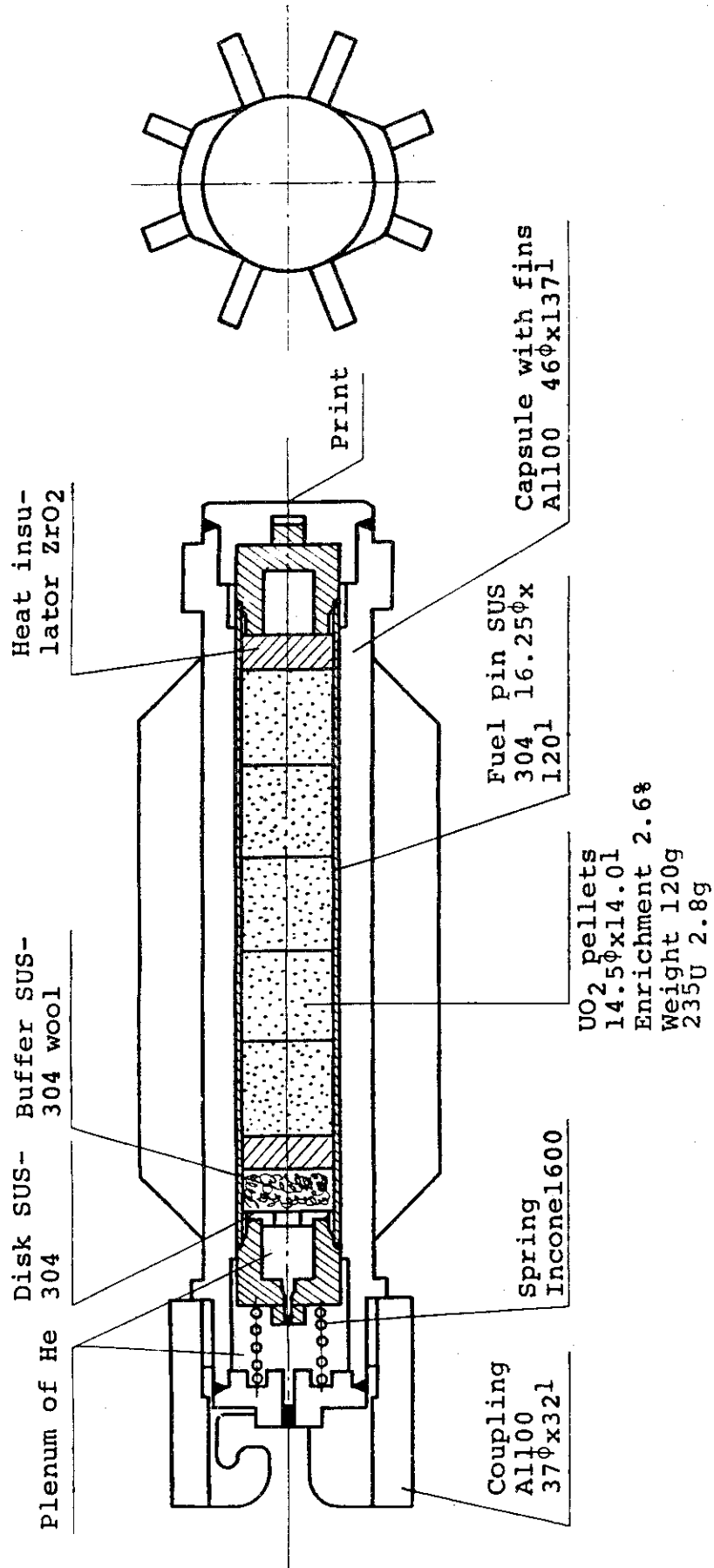


Fig. 1 UO₂ target assembly for JRR-2, 3 irradiation

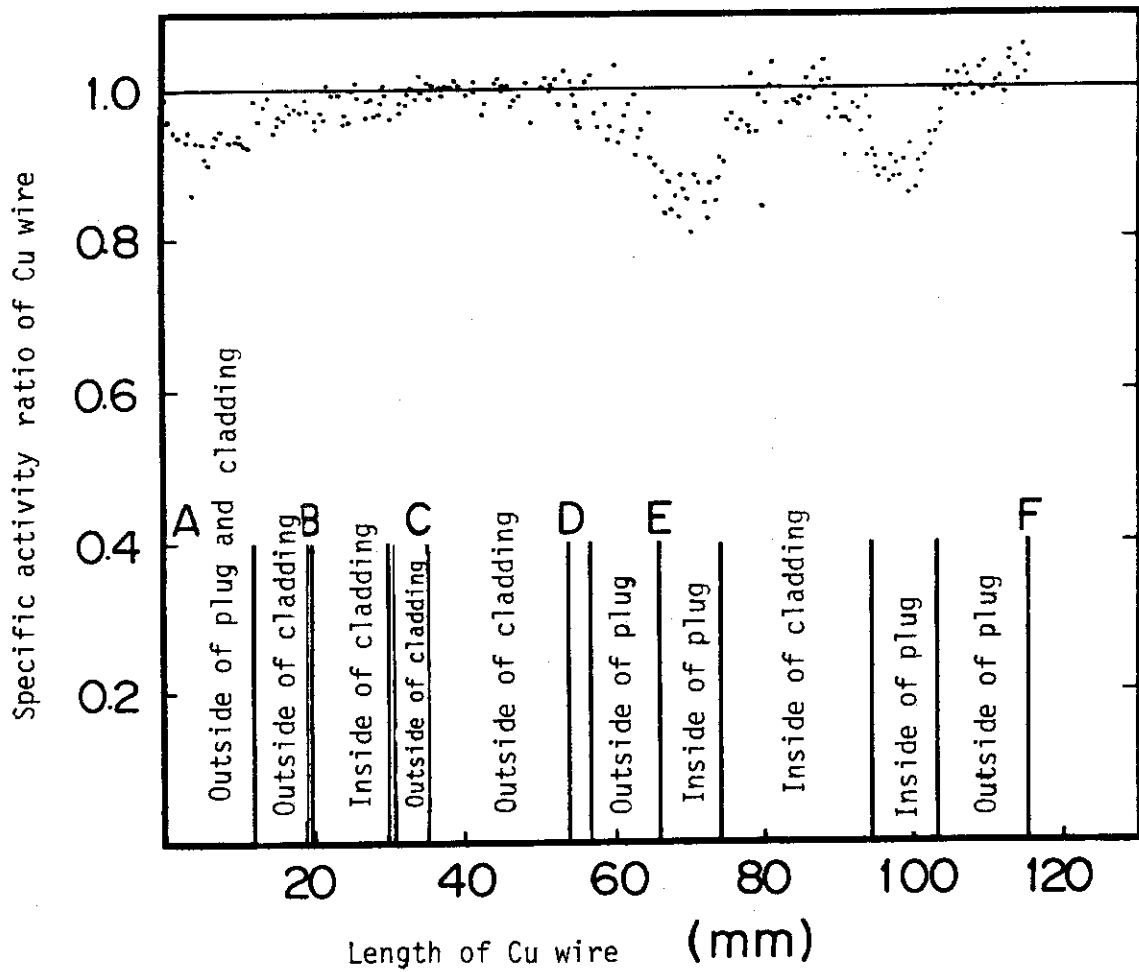
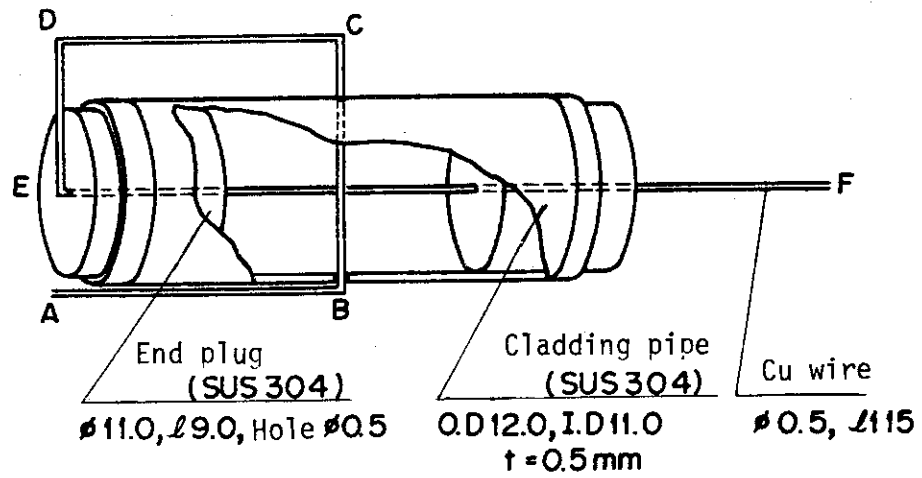


Fig. 2 Thermal neutron flux depression in cladding

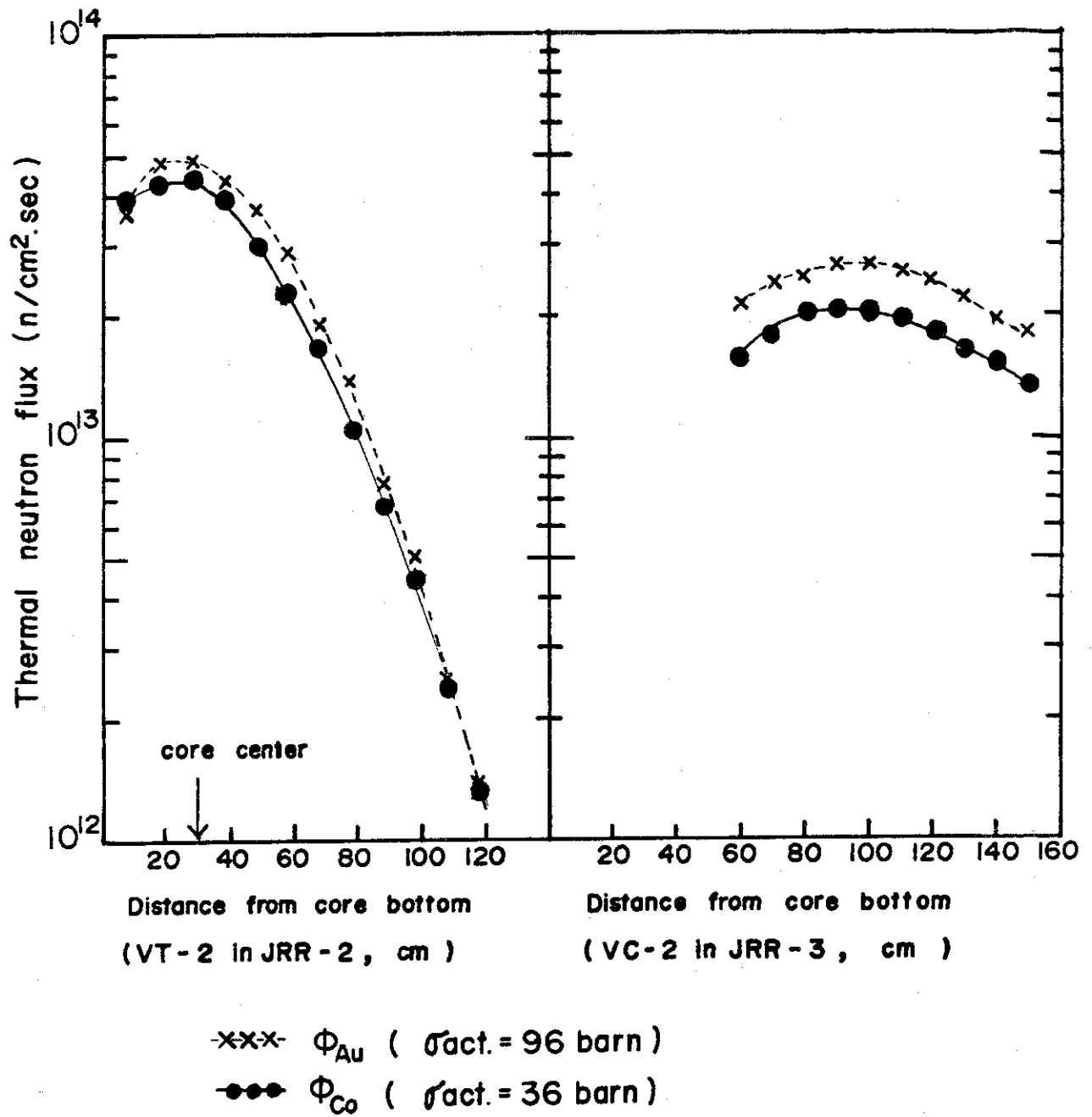


Fig. 3 Thermal neutron flux (10MW)

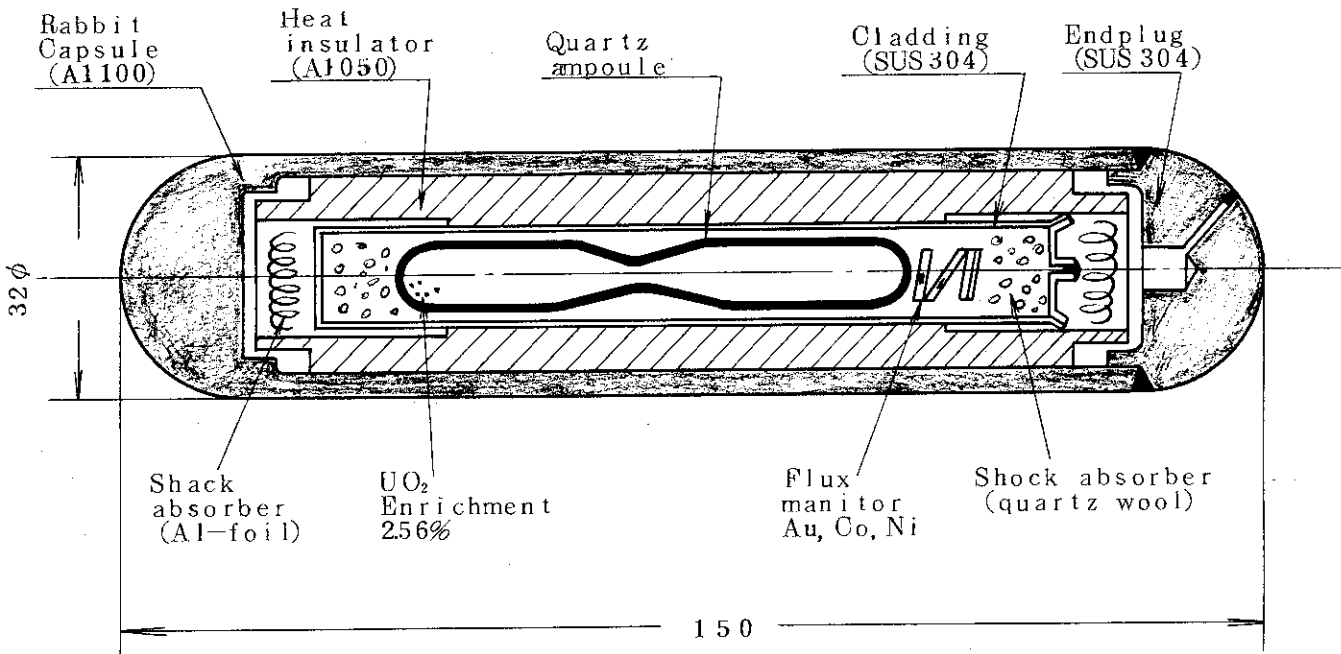


Fig. 4 Rabbit capsule for fission yield measurement

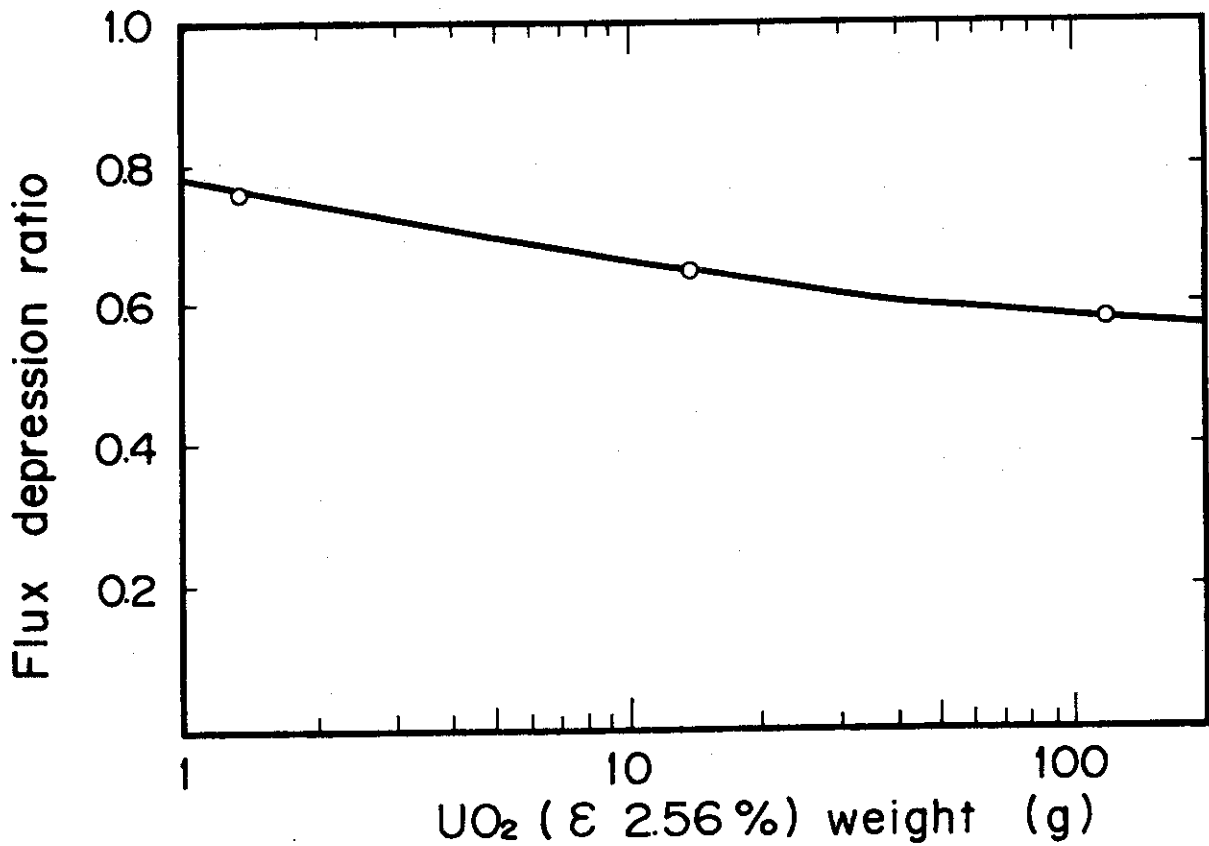


Fig. 6 Relationship between UO₂ weight and flux depression ratio

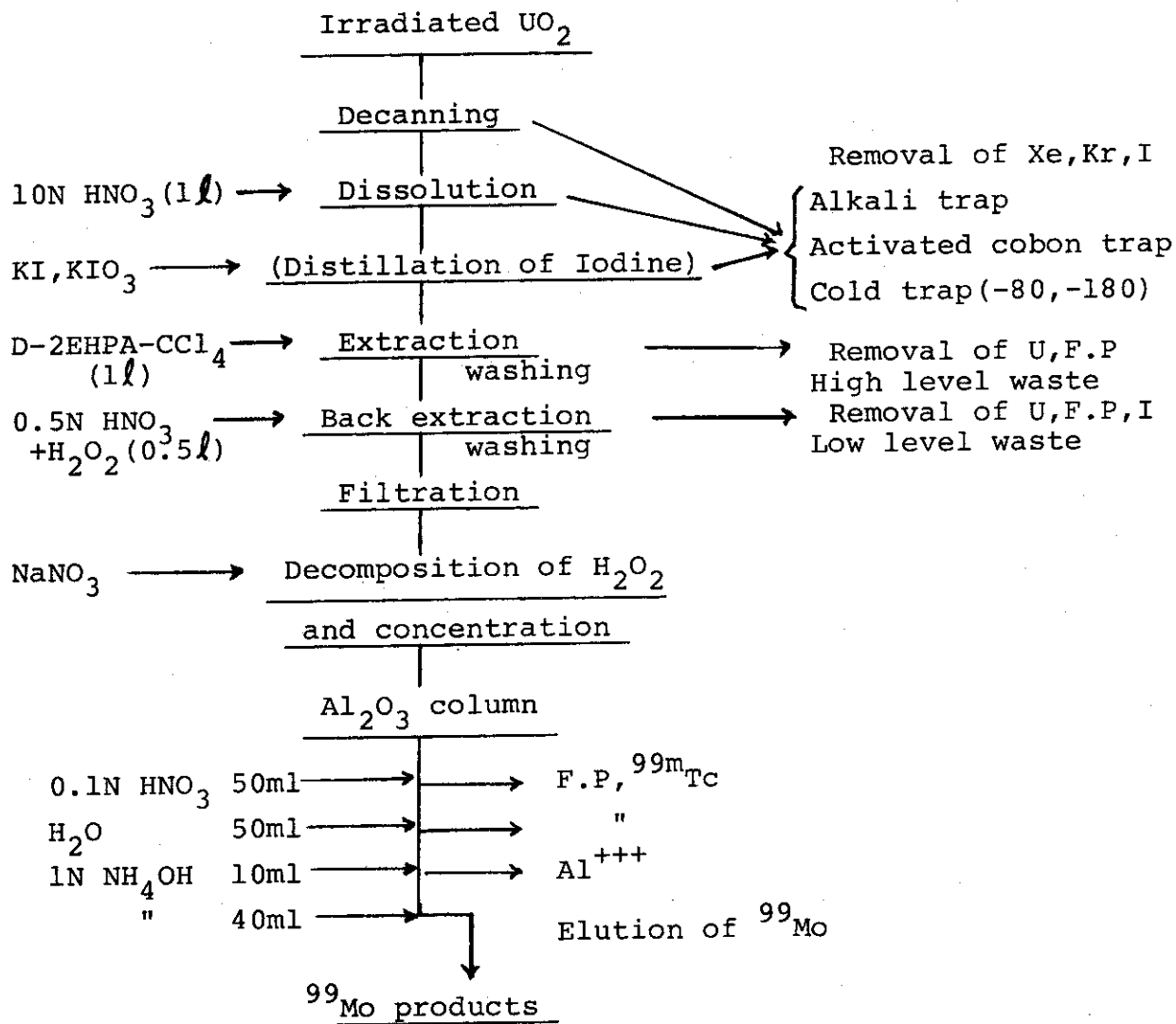


Fig. 5 ^{99}Mo production scheme by $^{235}\text{U}(n, f)$ reaction