技術

71. Mo-99 の (n, γ) 法による生成量の評価

黒沢正義*, 清水堅一*

(1978年 3月31日 受理)

Estimation for Production of Molybdenum-99 Using (n, γ) Reaction

By Masayoshi KUROSAWA and Kenichi SHIMIZU

In the already published references the values of ^{99}Mo effective cross section (resonance integral) are very scattered, they are not available for the estimation of ^{99}Mo actual production. Then the experimental evaluation of the effective activation cross sections was carried out at JRR-2.

This report essentially presents the evaluation of the effective activation cross section (effective epi-thermal cross section) towards the neutrons above the effective Cd cut-off energy.

From the experimental results the value of the epi-thermal cross section was obtained as 11.6 barns, and using this value the ^{99}Mo activity was evaluated to be 2 Ci/g (natural molybdenum) in the main irradiation holes of JRR-2.

KEYWORDS: molybdenum 99, isotope production, irradiation devices, effective activation cross section, effective cadmium cut-off energy, epithermal neutrons, molybdenum

I. はじめに

最近、医療用ラジオアイソトープとして、モリブデン-99 (^{99}Mo) の需要が増加し⁽¹⁾、多少比放射能が低くても大量生産が要望されている。

日本原子力研究所では、 ^{99}Mo の回収施設が完成し、JRR-2, JRR-3, JMTR で UO_2 ターゲットから、(n, γ) 法によって、高比放射能のものを 10 Ci/week 以上出荷できるようになり、現在、この施設で試験的生産を行なっている。

一方、日本原子力研究所の RI 製造部および研究炉管理部を中心に、(n, γ) 法で 100~200 Ci/week の出荷が可能かどうか検討を始めた。従来、(n, γ) 法の場合、比放射能が数 Ci/g 以上でなければ利用できないとされていたが、最近の利用技術の進歩によって、0.5~2 Ci/g⁽²⁾ 程度でも使用できることが報告されている。

このような状況から、JRR-2 において、(n, γ) 法による ^{99}Mo がどの程度生産できるか検討することになった。しかし、 ^{99}Mo の放射化断面積は、熱中性子に対しては 0.13~0.14 b⁽³⁾⁽⁴⁾ とバラツキの少ないデータが報告されているが、熱外中性子(実効カドミウム、カットオフ・エネルギー (E_c) 以上)に対しては、文献⁽⁴⁾によ

ると 6.9~21.0 b とデータにバラツキが見られた。このため、JRR-2 の代表的実験孔を使用する場合の放射化断面積は、どのような値を採用すべきか、疑問の多いところであった。

このような現状をふまえ、JRR-2 の実験孔を使い、 ^{99}Mo の放射化断面積測定実験を行なった。その結果、 ^{99}Mo の放射化断面積は、熱中性子に対して 0.15 ± 0.03 b、熱外中性子 ($E_c < E$) に対して 11.6 ± 0.18 b の値を得た。

この放射化断面積を基に、JRR-2 のインコア照射孔 (6A)、中央垂直実験孔 (VT-1) において、7 日間 (168 h) 照射で、最大 3 Ci/g (天然の Mo) の生成量となることが予想される。実際のターゲットを、 MoO_3 焼結ペレット (形状約 $18.1 \phi \times 400^{\circ}$ 、密度 2.75 g/cm^3) を縦方向に 6 本継ぎにして照射した場合、約 2 Ci/g の生成量と推定できる。

II. 実験方法

実験は、インコア照射孔 (6A)、中央垂直実験孔 (VT-1)、炉心近接垂直実験孔 (VT-11) について行なった。

* 日本原子力研究所 (Japan At. Energy Res. Inst.)

各実験孔の寸法および位置関係はFig. 1に示す。

A, B, C, D: Fuel, C: Control rod
VT: Vertical beam tube

Fig. 1 Plane of JRR-2 core

試料(モニタ)は、Fig. 2に示すように、試料取付具の軸方向中心を炉中心に合わせ、金箔および天然Mo箔を一定間隔で取り付け、原子炉出力50 kWの定常状態で1hの照射を行なった。次に、Cd比を求めるため、Cdカバーした試料を前の方法と同じ条件で照射した(Fig. 3)。(Fig. 4に実際のターゲットの取付け状態の1例を示す。)

Fig. 2 Experimental instruments

Fig. 3 Sealing of each monitor

Fig. 4 Capsule for ⁹⁹Mo production

照射後の試料は、所定の時間冷却し、Ge(Li)検出器、400チャンネル波高分析器で放射能を測定した。Table 1に、実験に使用した材料の仕様を示す。

Table 1 Specifications of materials

Material	Size	Note
Au foil	19.3 mg/cm ² × 5 mm ²	99.99% (Au)
Natural Mo	102 mg/cm ² × 7 mm ² × 12 mm ²	99.9% (Natural Mo)
Al plate	135 mg/cm ²	2S Al
Cd plate	303 mg/cm ²	99.99% (Cd)

Ⅱ. 測定結果

1. 熱中性子束, Cd比

各照射孔での熱中性子(ϕ_{th}), Cd比($R_{Cd}^{(A)}$)は、いずれも金箔照射試料から(1)~(3)式によって求めた。

$$R_{Cd}^{(A)} = A_{bare}/A_{Cd} \quad (1)$$

$$A_{th} = A_{bare} \left(1 - \frac{1}{R_{Cd}^{(A)}} \right) \quad (2)$$

$$\phi_{th} = \frac{A_{th} W^{(A)}}{M^{(A)} N_0 \sigma_{th}^{(A)} (1 - e^{-\lambda^{(A)} t})} \quad (3)$$

2. 熱外中性子束

ここで、熱外中性子束(ϕ_{epi})は、実効Cdカットオフエネルギー以上の中性子束を意味し、 ϕ_{epi} は $\int_{E_0}^{\infty} \phi(E) dE$ と表わす。

¹⁹⁹Auの熱中性子および熱外中性子の放射化断面積を、文献⁶⁾から引用して熱外中性子束を(5)式によって求めた。

Table 2 Characteristic values of each irradiation hole

N. flux n/cm ² ·s M. position cm	6A(in core)			VT-1			VT-11		
	$\frac{\phi_{th}}{\phi_{epi}}$	$R_{Cd}^{(A)}$	$\frac{C_{th}^{\dagger}}{C_{epi}^{\dagger}}$	$\frac{\phi_{th}}{\phi_{epi}}$	$R_{Cd}^{(A)}$	$\frac{C_{th}^{\dagger}}{C_{epi}^{\dagger}}$	$\frac{\phi_{th}}{\phi_{epi}}$	$R_{Cd}^{(A)}$	$\frac{C_{th}^{\dagger}}{C_{epi}^{\dagger}}$
+22.5	$\frac{6.48 \times 10^{13}}{0.39 \times 10^{13}}$	2.06	0.25	$\frac{10.80 \times 10^{13}}{0.48 \times 10^{13}}$	2.42	0.33	$\frac{6.70 \times 10^{13}}{0.64 \times 10^{13}}$	2.96	0.46
+15.0	$\frac{8.07 \times 10^{13}}{0.57 \times 10^{13}}$	1.90	0.21						
+ 7.5	$\frac{10.00 \times 10^{13}}{0.70 \times 10^{13}}$	1.91	0.21	$\frac{18.00 \times 10^{13}}{0.78 \times 10^{13}}$	2.46	0.34	$\frac{7.80 \times 10^{13}}{0.31 \times 10^{13}}$	2.60	0.37
0	$\frac{12.50 \times 10^{13}}{0.78 \times 10^{13}}$	2.02	0.24						
- 7.5	$\frac{12.80 \times 10^{13}}{0.81 \times 10^{13}}$	2.00	0.24	$\frac{18.90 \times 10^{13}}{0.92 \times 10^{13}}$	2.30	0.30	$\frac{7.70 \times 10^{13}}{0.26 \times 10^{13}}$	2.62	0.38
-15.0	$\frac{13.00 \times 10^{13}}{0.77 \times 10^{13}}$	2.07	0.25						
-22.5	$\frac{10.20 \times 10^{13}}{0.70 \times 10^{13}}$	1.93	0.22	$\frac{19.05 \times 10^{13}}{0.76 \times 10^{13}}$	2.59	0.37	$\frac{7.80 \times 10^{13}}{0.22 \times 10^{13}}$	3.23	0.52

† Activity ratio of ⁹⁹Mo: $C_{th}/C_{epi} = \sigma_{th}^{(M)} \phi_{th} / \sigma_{epi}^{(M)} \phi_{epi}$

$$R_{Cd}^{(A)} = \frac{\sigma_{th}^{(A)} \phi_{th} + \sigma_{epi}^{(A)*} \phi_{epi}}{\sigma_{epi}^{(A)} \phi_{epi}} \quad (4)$$

$$\phi_{epi} = \frac{\sigma_{th}^{(A)} \phi_{th}}{\sigma_{epi}^{(A)} (R_{Cd}^{(A)} - 1)} \quad (5)$$

以上の方法で計算した ϕ_{th} , ϕ_{epi} , $R_{Cd}^{(A)}$ の値を Table 2 に, また, 6A 孔の分布状態を Fig. 5 に示す。

3. Mo の Cd 比

Mo の Cd 比 ($R_{Cd}^{(M)}$) は (6) 式によって求めた。

$$R_{Cd}^{(M)} = \frac{M_{baro}}{M_{Cd}} \quad (6)$$

4. ⁹⁹Mo の熱外中性子断面積

各照射孔の ⁹⁹Mo の生成量から, ⁹⁹Mo の熱外中性子放射化断面積を (9) 式によって算出した。

(6) 式から

$$R_{Cd}^{(M)} = \frac{\sigma_{th}^{(M)} \phi_{th} + \sigma_{epi}^{(M)} \phi_{epi}}{\sigma_{epi}^{(M)} \phi_{epi}} \quad (7)$$

(4), (7) 式から

$$\frac{R_{Cd}^{(A)} - 1}{R_{Cd}^{(M)} - 1} = \frac{\sigma_{epi}^{(M)} \sigma_{th}^{(A)}}{\sigma_{th}^{(M)} \sigma_{epi}^{(A)}} \quad (8)$$

(8) 式から, $\sigma_{epi}^{(M)}$ は (9) 式で求めることができる。

$$\sigma_{epi}^{(M)} = \frac{\sigma_{th}^{(M)} \sigma_{epi}^{(A)}}{\sigma_{th}^{(A)}} \cdot \frac{R_{Cd}^{(A)} - 1}{R_{Cd}^{(M)} - 1} \quad (9)$$

Fig. 5 Distributions of neutron flux and Cd ratio in 6A

$$* \sigma_{epi}^{(A)} = \int_{E_c}^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE / \int_{E_c}^{\infty} \phi(E) dE$$

$$** \frac{R_{Cd}^{(A)} - 1}{R_{Cd}^{(M)} - 1} = \frac{1}{0.204} \quad (\text{Table 3 参照})$$

$$\sigma_{th}^{(M)} \quad (\text{Table 4 参照})$$

Table 3 Function of $R_{Cd}^{(A)}$ and $R_{Cd}^{(M)}$

Irradiation hole	$(R_{Cd}^{(M)} - 1) / (R_{Cd}^{(A)} - 1)$				
VT-1	0.177				
VT-11	0.236				
6A(in core)	0.235	0.211	0.193	0.156	0.223
Average	0.204				

Value of each measurement point

Table 4 $\sigma_{th}^{(M)}$ of ^{99}Mo

Irradiation hole	$^{99}\text{Mo}(n_{th}, \gamma)^{99}\text{Mo}$ cross section				
VT-1	0.121				
VT-11	0.158				
6A(in core)	0.170	0.149	0.140	0.170	0.150
Average	$0.15 \pm 0.03 \text{ b } (v=2,200 \text{ m/s})$				

Value of each measurement point

5. ^{99}Mo の生成量

前節で求めた ^{99}Mo の放射化断面積($\sigma_{th}^{(M)}$, $\sigma_{ept}^{(M)}$)から, JRR-2 における ^{99}Mo の生成量は(10)式で求めることができる。

$$C_M = \frac{W \eta N_0 (\sigma_{th}^{(M)} \phi_{th} + \sigma_{ept}^{(M)} \phi_{ept})}{M \times 3.7 \times 10^{10}} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (10)$$

ここで, $W=1(\text{g})$, $\eta=0.241$
 $N_0=6.02 \times 10^{23}(\text{mol}^{-1})$
 $M=97.905(\text{g})$, $\lambda=0.693/65.28(\text{h}^{-1})$
 $\sigma_{th}^{(M)}=0.15(\text{cm}^2)$ [$v=2,200 \text{ m/s}$]
 $\sigma_{ept}^{(M)}=11.6(\text{cm}^2)$ [$E_c < E$]
 $t=168(\text{h})$
 ϕ_{th} , ϕ_{ept} は Table 2 の値を使用。

Fig. 6 に, (10)式によって求めた計算値と実際の生成量とを比較図示する。この結果から, 今回の実験で求めた ^{99}Mo の熱外中性子に対する放射化断面積は, おおむね妥当な範囲に入る値であると推論した。

Ⅳ. あとがき

今回の実験で求めた ^{99}Mo の熱中性子および熱外中性子に対する放射化断面積を, 実用規模($18.1\phi \times 400'$)の試料に適用するには, 形状および構成材質等による中性子束減少効果を考慮しなければならない。今後, このような生成量の減少効果を配慮した実験を行う予定である。

Fig. 6 Activity of ^{99}Mo in 6A

〔記号〕

- $R_{Cd}^{(A)}$: Au 箔による Cd 比
 A_{bare} : 裸の Au 箔の壊変率
 A_{Cd} : Cd カバーした Au 箔の壊変率
 A_{th} : 熱中性子による Au 箔の壊変率
 ϕ_{th} : 熱中性子束
 ϕ_{ept} : 熱外中性子束 ($E_c < E$)
 $\sigma_{th}^{(A)}$: Au 箔の熱中性子放射化断面積⁽⁴⁾
 98.8 b
 $\sigma_{ept}^{(A)}$: Au 箔の熱外中性子放射化断面積⁽⁴⁾
 $1,558 \text{ b}$
 $R_{Cd}^{(M)}$: Mo 箔による Cd 比
 M_{bare} : 裸の Mo 箔の壊変率
 M_{Cd} : Cd カバーした ^{99}Mo の壊変率
 $\sigma_{th}^{(M)}$: ^{99}Mo の熱中性子放射化断面積
 $\sigma_{ept}^{(M)}$: ^{99}Mo の熱外中性子放射化断面積(^{99}Mo の裸の壊変率-Cd カバーした ^{99}Mo の壊変率)
 C_M : 天然 Mo 1g 当りの ^{99}Mo 生成量
 W : 天然 Mo の重量, $W^{(A)}$: Au 箔の重量

η : ^{99}Mo の天然 Mo 中の存在比
 N_0 : アボガドロ数
 M : ^{99}Mo の質量数, $M^{(A)}$: ^{197}Au の質量数
 λ : ^{99}Mo の崩壊定数, $\lambda^{(A)}$: ^{197}Au の崩壊定数
 t : 照射時間(h)

最後に、本実験を実施するにあたって、日本原子力研究所研究炉管理部 宮坂靖彦氏、青柳長紀氏のご指導とご協力に感謝します。また、実験にあたって JRR-2

管理課長 角田準作氏初め課員諸氏の多大なご協力に感謝します。

—参考文献—

- (1) 四方英治: 原子力誌, 8(16), 435 (1978).
- (2) General Electric USA: *GE/Mo-99 Catalog*, (1971).
- (3) Neutron cross sections, Vol. 1, (3rd Ed.), BNL-325, (1973).
- (4) "Handbook on Nuclear Activation Cross-Sections", Tech. Rep. Ser., No. 156, (1974), IAEA.
- (5) "Neutron Dosimetry", 238 (1963), IAEA.

「起こり得ぬ」原発事故がなぜ起こるのか！
 事故想定・確率など最新情報を盛り込む

憂慮する科学者同盟(UCS)編
 日本科学者会議原子力問題研究委員会訳

原発の安全性への 疑問——ラスムッセン報告批判

本書は五万ページに及ぶアメリカ政府の内部資料の検討をもとに「ラスムッセン報告」を全面的、科学的に再検討したものであり、政府・産業界関係者の発言記録なども豊富に引用しながら、原子力発電所の安全性にかかわる問題点を生き生きと浮き彫りにしている。

A5判 二八五頁 ¥3500

三宅泰雄科学論集

全4巻・完結！
 定価各巻二八〇〇円

② 原子力を考える

核実験や原潜による放射能汚染、原発の安全性をめぐる問題などを、人類的な視野から解明する。 解説・服部 学

③ 海洋開発と水資源

原子力産業と沿岸水産業など、原子力にかかわる諸問題をも含む論文を収録する。 解説・川崎 健

① 科学について

解説・川崎昭一郎

④ 随筆 思索と旅と

解説・岩垂 弘

東京都文京区後楽2-1-18 第三土屋ビル
 ☎〇三—八—三—七九六〇 振替東京一八三九五—

水曜社