JAEA-Research 2008-057



水銀中生成トリチウム及びヨウ素の 気相への移行挙動に関する研究

Research on Release of Tritium and Iodine Formed in Mercury to Gas-Phase

横山 須美 真辺 健太郎 Sumi YOKOYAMA and Kentaro MANABE

> 原子力基礎工学研究部門 放射線防護研究グループ

Research Group of Radiation Protection Nuclear Science and Engineering Directorate

r 死 尚 F J 「 ル ー プ Protection irectorate K PSC

R

June 2008

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

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(<u>http://www.jaea.go.jp</u>) 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, 2008

JAEA-Research 2008-057

水銀中生成トリチウム及びヨウ素の気相への移行挙動に関する研究

日本原子力研究開発機構原子力基礎工学研究部門

環境・放射線工学ユニット

横山 須美, 真辺 健太郎

(2008年3月31日受理)

J-PARC の物質・生命科学実験施設では、核破砕中性子源として、水銀ターゲットが使用される。水 銀中には高エネルギー陽子と水銀の核破砕反応により、トリチウムやヨウ素といった気相に放出され やすい放射性核種が生成される。これらが機器類から施設内空気中に漏えいした場合、空気中の放射 能濃度を高め、内部被ばくを引き起こす可能性がある。しかし、これらが水銀中から気相へ放出され る挙動については、十分な知見が得られていない。そこで、本研究では、水銀中に生成されるトリチ ウムの化学形、水銀中トリチウム及びヨウ素が気相への移行するときの挙動を実験的に明らかにし、 内部被ばく防護の観点から考察を行った。 JAEA-Research 2008-057

Research on Release of Tritium and Iodine Formed in Mercury to Gas-Phase

Sumi YOKOYAMA and Kentaro MANABE

Division of Environment and Radiation Science Nuclear Science and Engineering Directorate Japan Atomic Energy Agency Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 31, 2008)

In the Material and Life Science facility of J-PARC, a mercury target is used as a spallation neutron source. In the mercury target, airborne radionuclides such as tritium and iodine are formed by spallation reaction with high energy and intensity proton beam. There is possibility that the airborne radionuclides leaked from the target vessel to the air of the facilities may cause internal exposure. However, there is insufficient information about these chemical forms and behavior in mercury to estimate internal doses. We clarified chemical forms of tritium formed in mercury and release rates of tritium and iodine from mercury by experiments. In this report, we have discussed from the viewpoint of internal radiation protection.

Keywords: J-PARC, High-Energy Accelerator Facilities, Mercury Target, Internal Exposure, Tritium, Iodine, Chemical Form, Release Rate

目 次

| 1 はじめに | | 1 |
|--------------------|---------------------------------|----|
| 2 水銀中ト | リチウムの性状 | 3 |
| 2.1 実験力 | 方法 | 3 |
| 2.1.1 照 | 発射試料の調製 | 3 |
| 2.1.2 Li | i-Hgへの熱中性子照射 | 3 |
| 2.1.3 Н | T及びHTOの回収方法 | 4 |
| 2.1.4 ト | 、リチウム回収率算出方法 | 4 |
| 2.2 結果及 | とび考察 | 5 |
| 3 水銀中ト | リチウムガス及びトリチウム水の気相移行 | 6 |
| 3.1 トリヲ | チウムガス (T2) の気相移行 | 6 |
| 3.1.1 実 | ミ験方法 | 6 |
| 3.1.2 | 、リチウムの拡散係数算出方法 | 7 |
| 3.1.3 緯 | 告果 | 8 |
| 3.2 水銀中 | トリチウム水 (HTO) のばく露及び気相移行 (静的条件下) | 8 |
| 3.2.1 実 | ミ験方法 | 8 |
| 3.2.2 緯 | 告果 | 9 |
| 3.3 水銀中 | トトリチウム水 (HTO) のばく露及び気相移行 (撹拌時) | 9 |
| 3.3.1 実 | ミ験方法 | 9 |
| 3.3.2 Н | TO の気相への放出速度の算出方法 | 9 |
| 3.3.3 緯 | 告果 | 10 |
| 3.4 水銀歺 | マーゲット中トリチウムの気相移行割合の推定 | 10 |
| 3.5 まとめ | · | 11 |
| 4 水銀中ヨ | ウ素の気相移行 | 12 |
| 4.1 実験力 | 5法 | 12 |
| 4.1.1 討 | 代料調製方法 | 12 |
| 4.1.2 _ㅋ | 9.ウ素ガスの調製 | 12 |
| 4.1.3 ∃ | 9 ウ化水銀の気相移行割合測定 | 13 |
| 4.2 結果及 | 及び考察 | 13 |
| 5 まとめ | | 15 |
| 謝辞 | | 16 |
| 参考文献 | | 17 |

Contents

| 1 | Introdu | action | - 1 |
|----|-----------|---|-----|
| 2 | Chemi | cal form of tritium in mercury | -3 |
| | 2.1 Exp | erimental method | - 3 |
| | 2.1.1 | Production of irradiation samples | - 3 |
| | 2.1.2 | Thermal neutron irradiation of Li-Hg | - 3 |
| | 2.1.3 | Recovery method of HT and HTO | -4 |
| | 2.1.4 | Calculation of recovery rate of HT and HTO | - 4 |
| | 2.2 Res | ults and discussion | -5 |
| 3 | Release | e of T ₂ and HTO from mercury to gas-phase | -6 |
| | 3.1 Rele | ease rate of T ₂ | • 6 |
| | 3.1.1 | Experimental method | - 6 |
| | 3.1.2 | Calculation of diffusion coefficient of tritium | . 7 |
| | 3.1.3 | Results | - 8 |
| | 3.2 Rele | ease of HTO (Static condition) | - 8 |
| | 3.2.1 | Experimental methods | 8 |
| | 3.2.2 | Results | - 9 |
| | 3.3 Rele | ease of HTO (Stirring condition) | . 9 |
| | 3.3.1 | Experimental method | 9 |
| | 3.3.2 | Calculation of release velocity of HTO | - 9 |
| | 3.3.3 | Results | 10 |
| | 3.4 Esti | mation of release rate of tritium from the mercury target | 10 |
| | 3.5 Con | clusion | 11 |
| 4 | Release | of Iodine from mercury to gas-phase | 12 |
| | 4.1 Exp | erimental method | 12 |
| | 4.1.1 | Production of mercury iodide samples | 12 |
| | 4.1.2 | Source of gaseous iodine | 12 |
| | 4.1.3 | Measurement of release rate of mercury iodide | 13 |
| | 4.2 Res | ults and discussion | 13 |
| 5 | Conclu | sion | 15 |
| A | cknowled | gement | 16 |
| Re | eferences | | 17 |

1. はじめに

J-PARC の物質・生命科学実験施設では、中性子を利用した物質構造解明を行うために、核破砕 中性子発生源として、約2tの水銀がターゲットとして使用される^{1,2)}。この水銀ターゲット中に は、高エネルギー陽子ビームの入射によって、Hg の放射性同位体のほか、水銀と質量数の近い Au, Pt, Lu 等の重い核種からトリチウム(³H)のような軽い核種まで多種多様な放射性核種が生 成される¹⁾。生成された放射性核種のうち、ガス状の放射性核種となるのは、³H, Be (⁷Be, ¹⁰Be), Hg (¹⁹⁵Hg, ¹⁹⁷Hg, ²⁰³Hg), Ar (³⁷Ar 及び⁴²Ar), Kr (⁸¹Kr, ^{83m}Kr 及び⁸⁵Kr), Xe (¹²²Xe 及び¹²⁵Xe), I (¹²²I, ¹²³I, ¹²⁴I, ¹²⁵I 及び¹³¹I) である^{1,2)}。

ターゲットにビームが照射されている時は、生成されたガス状放射性核種は、ターゲット循環 系のサージタンク内(Heガス充填)に蓄積される^{1,2)}。蓄積されたこれらの放射性核種は、水銀 ターゲット容器交換時に、気体廃棄処理システムへ移され、短半減期核種の減衰を待って、スタ ックから排気されることとなっている。また、容器内の水銀と水銀中に残留している放射性核種 は、ターゲットが設置された台車の下部に設置されたドレンタンク内に移され、施設稼動中は繰 り返し使用される。このようなターゲット容器の交換作業は、ホットセル内において遠隔操作に よって実施されることとなっている²⁾。このため、直接、人がこれらの放射性核種を吸収するこ とはない。しかし、容器の破損や交換時に水銀が漏えいする等によって、ガス状の放射性核種が 容器から施設内空気中に放出された場合、これらの放射性核種を吸入することにより、内部被ば くが発生する。このような施設での内部被ばく線量の評価や作業に適した防護対策を講じるため には、放射性核種の種類や濃度の他、体内での移行挙動を決定する放射性核種の性状(粒径,化 学形)に関する情報も必要不可欠である。

ガス状放射性核種のうち、Ar、Kr 及び Xe は希ガスであり、他の元素と化合物を形成しない。 しかし、トリチウムはこれまでにも加速器施設において、 トリチウムガス (HT) 及びトリチウム 水(HTO)の生成が確認されており^{3,4)},水銀ターゲット中に生成されるガス状の放射性核種の 中でも気相中に放出される量が多いと推定されている²⁾。1 MW, 3 GeV の陽子ビームが水銀ター ゲットに入射され,年間 5000 時間運転したと仮定して評価したトリチウムの放射能量は 9.3×10¹³ Bq yr⁻¹である。トリチウムは、この他に陽子ビームライン周辺の空気、冷却水、ミュオンターゲ ットの真空排気内からも気相に放出され、その量は 10^7 から 10^{10} Bg yr⁻¹である。ミュオンターゲ ット, セーフティハル, 反射体ヘリウムベッセル等の冷却水中に生成されたものは, 5.4×10¹¹ Bg yr⁻¹となる。すなわち,水銀ターゲットから気相へ放出されるトリチウムの放射能は、冷却水等 のトリチウムの放射能に比べて、2-3 桁高い値となる。空気中の放射性核種を吸入した場合に発 生する内部被ばくの線量は、線量係数(単位摂取量当たりの線量)を用いて評価するが、特にト リチウムの場合,化学形によって線量係数は大きな違いがある。線量係数が与えられているのは, 元素状ガス (T₂, HT), メタンガス (CH₃T), 水 (T₂O, HTO) 及び有機物 (OBT) に対してであ り⁵⁾,この中で最も小さな値を示すトリチウムガスの線量係数は、1.8×10⁻¹² mSv Bq⁻¹,一方,冷 却水や加速器トンネル内空気中に生成が確認されているトリチウム水の線量係数は 1.8 × 10⁻⁸ mSv Bg⁻¹である。このように、トリチウム水の線量係数トリチウムガスよりも4桁も高い。

水銀ターゲット中に生成される放射性ヨウ素の場合, ¹²⁵I が最も気相中に多く放出されると推定されている。この放出量は 1.5×10^{10} Bq yr⁻¹ である ²⁾。これは, ³H , ³⁷Ar, ¹⁹⁵Hg, ¹⁹⁷Hg, ²⁰³Hg,

¹²⁷Xeに次いで多い。放射性ヨウ素を吸入した場合の線量係数は、蒸気、ヨウ化メチル、ヨウ化メ チル以外の化合物の3種類に対して与えられている^{5)。125}Iの線量係数は、蒸気の場合は1.4×10⁻⁵ mSv Bq⁻¹、ヨウ化メチルの場合は1.1×10⁻⁵ mSv Bq⁻¹、ヨウ化メチル以外の化合物の場合は7.3× 10⁻⁶ mSv Bq⁻¹ である。ヨウ素の場合、ヨウ化メチル以外の化合物と蒸気を同量摂取した場合では、 約2倍線量が異なることとなる。しかし、水銀中で生成されたトリチウムの化学形、トリチウム 及び放射性ヨウ素に対する水銀から気相への移行挙動に関する十分な情報がない。

そこで、本報告書では、水銀中に生成されたトリチウムの性状(化学形)、トリチウム及びヨ ウ素の気相移行挙動に着目し、実験によってこれらを明らかにするとともに、内部被ばく防護の 観点から、得られた実験結果の適用について考察した。

2. 水銀中トリチウムの性状

すでに述べたように、トリチウムを吸入した場合の内部被ばくを評価する上では、特にその化 学形が重要となる。そこで、水銀ターゲット中で生成されるトリチウムの化学形として、トリチ ウムガス(HT または T₂)及びトリチウム水(HTO)に着目し、水銀ターゲット中でのこれらの 生成を模擬した実験を実施し、生成割合を明らかにした⁶。

2.1 実験方法

水銀ターゲット中でのトリチウムの生成を模擬するために、水銀(Hg)に微量のリチウム(Li) を添加した液体 Li アマルガム(Li-Hg) 試料を生成し、これに熱中性子を照射することにより水 銀中にホットなトリチウムを生成させ、これらの化学形を明らかにした。本節では、Li-Hg 試料 の調製、熱中性子照射及びこれによって試料中に生成されるトリチウムの回収方法を述べる。

2.1.1 照射試料の調製

Hg 10 gとLi数 mgを数日間接触させて静置しておくことで,Li-Hgを生成した。生成された Li-Hgの中から約1gを分取して,ブレイカブルシールの付いた約2.5 cm³の石英ガラス容器の中 に室内空気またはArガスとともに封入して照射試料とした。照射試料中のLi含有量は,1gの Li-Hgに水を添加し,その上澄み液を中和滴定することにより調べた。この結果,照射試料中の Li含有量は1-2 mol%であった。Table1にLi-Hgを室内空気1Paとともに容器に封入した照射試 料の重量及びLi含有量を示す。この他,容器内圧力と生成トリチウムの化学形との関係を明らか にするため,容器内圧力の異なる試料を調整した。これらの試料条件をTable2に示す。

2.1.2 Li-Hg への熱中性子照射

試料への熱中性子の照射は、日本原子力研究開発機構のJRR-4 において実施した。Fig. 1 に、 照射時の試料の配置を示す。試料は、中性子フラックス測定用のコバルトモニタとともに、照射 窓の前に 1 列に並べて配置し、6 時間照射した。コバルトモニタは、1 cm 角のろ紙に Co(NO₃)₂ 水溶液を浸して、蒸発乾固したものである。このコバルトモニタの測定結果より得られた照射場 の中性子フラックスは 1.7×10^9 n cm⁻² ± 4%であった。

本実験で利用した熱中性子の運動エネルギーは 0.025 eV であり、⁶Li (n, α)³H 反応によって生成 するトリチウムの運動エネルギーは 2.73 MeV である。一方, J-PARC の水銀ターゲットに入射す る陽子は GeV オーダーのエネルギーを持っており、生成直後のトリチウムの運動エネルギーは 6-10 MeV となり,熱中性子を照射した場合とは異なる。しかし,いずれのトリチウムも、周囲の 水銀原子との衝突を繰り返し、十分に運動エネルギーを失ってからでないと化学形を形成するこ とはできない。したがって,高エネルギー陽子誘導トリチウムも熱中性子誘導トリチウムも同じ 条件で水銀中において化学形を形成すると言える。このため,水銀ターゲット中でのトリチウム の生成を本実験方法によって十分に模擬することができると考えられる。

2.1.3 HT 及び HTO の回収方法

HT 及び HTO の回収方法を Fig. 2 に示す。80 °C に加熱した照射試料に、約 10 vol%の H₂ ガス を添加した He ガスを流量率 100 ml min⁻¹ で約 5 時間流し、後部に設置した水バブラ(各 10 ml, 氷水で冷却)で HT 及び HTO を回収した。前段の 2 段の水バブラでは HTO を捕集し、後段の水 バブラでは、HT を捕集するため、後段の水バブラの前に 600°C に加熱した酸化剤(CuO)を設置 し、HT を酸化して HTO として回収した。

回収後は、Li-Hgを別の容器に移して水を添加して水銀中に残留している HTO を全て回収した。 また、Li-Hg を封入していた容器内壁も水で洗浄した。水バブラ及び洗浄液から 8 ml を分取し、 12 ml の液体シンチレータ(パーキンエルマー社製,アクアゾル 2) と混合した後,液体シンチレ ーションカウンタ(パッカード社製,TRICARB2000)によってトリチウムの放射能を測定した。

2.1.4 トリチウム回収率算出方法

Li-Hg 試料中に生成されたトリチウムの放射能は,計算によって評価した。Li-Hg 試料中のトリ チウムの生成量の評価においては,水銀内での中性子フラックスの減衰(自己遮しゃへい)を考 慮した。このときの試料中の放射能 *A*_{eff} (Bq) は以下の式によって表される⁷⁾。

$$A_{0} = \phi_{0} \sigma N_{t} (1 - e^{-\lambda t})$$
(2-1)

$$f = \frac{\phi_{eff}}{\phi_0} \tag{2-2}$$

$$A_{eff} = f \cdot A_0 \tag{2-3}$$

ここで、 A_0 は自己遮へいを考慮せずに算出した場合の Li-Hg 試料中に生成したトリチウムの放射 能 (Bq)、 ϕ は試料入射時の中性子フラックス (n m⁻² s⁻¹)、 N_t はターゲットの原子数、 λ は崩壊 定数、tは照射時間 (s)、fは自己遮へい率 (-)、 ϕ_{eff} は Li-Hg 試料を通過する際の減衰を考慮した 実効中性子フラックス (n m⁻² s⁻¹) である。このうち、 ϕ_{eff} は、試料の形状(長方形、球、円柱)、 中性子入射方向の試料の幅、中性子入射方向に直行した試料長さを考慮した Fleming の方法によ って算出した⁸。

Table 3 に、Table 1 に示した 4 試料の試料中のトリチウムの放射能、上記の方法を用いて算出し た水銀の自己遮へい率、計算によって得られたトリチウムの放射能及び回収率を示す。なお、回 収率は、計算値に対する実測値の値として表した。これらの試料に対する自己遮へい率は、20-32% であった。回収率はいずれもほぼ 100%となった。これらの 4 試料の容器及び水銀中に残留した HTO の放射能は、1 試料を除き、全トリチウム回収量の約 3%であった。1 試料のみトリチウムの 試料中残留割合が高かった原因としては、この試料は他のものと比較して重量が重かったことか ら、試料内部に生成された HTO が水銀表面まで拡散するのに時間がかかったためと考えられる。 Table 2 に示した試料についても自己遮へい率及び回収率を求めた結果、自己遮へい率は 20-30%、 回収率は 82-102%となった。本実験においても Li-Hg 中に生成されたトリチウムのほぼ全量が回 収できたことが確認できたことから、試料中に生成した HT 及び HTO は、この方法により全て回 収することができ,この方法が妥当であることが確認できた。

2.2 結果及び考察

Fig. 3 に, Li-Hg 試料を封入した容器内の圧力を 1 Pa とした場合の HT 及び HTO の生成割合を 示す。これらはいずれも HTO の生成量は, HT より少なく, HTO の平均の生成割合は 40% となる ことが明らかとなった。

Fig. 4 に Table 1 及び Table 2 に示した試料の封入容器内の水及び酸素分圧と HTO の生成割合との関係を示す。丸印は, Table 2 に示した試料,三角印は, Table 1 及び Fig. 3 に示した試料の結果である。また,黒印は水分圧との関係,白印は酸素分圧との関係を示す。水及び酸素分圧が低い雰囲気条件下(水蒸気分圧<1 Pa,酸素分圧<10 Pa)では,HTO の生成割合は,全トリチウム量(HT + HTO)の20-75%となった。一方,大気圧条件下(水蒸気分圧:1×10³ Pa,酸素分圧:1×

10⁴ Pa) では、回収したトリチウムの 90%以上が HTO となり、容器内の水及び酸素の分圧が高くなるにつれて、Li-Hg 中に生成される HTO の割合が増大する傾向を示すことが明らかとなった。

これまでに、試料中に生成されるトリチウムの化学形と酸素との関係については、工藤らが Li に対して調べている⁹⁾。工藤らは、Li に中性子を照射し、試料中に生成されたトリチウムを真空 中で回収した結果、酸素結合を持たない Li 化合物の場合、回収されたトリチウムは、そのほとん どが HT であり、Li 酸化物の場合、98%が HTO であることを明らかにしている。また、三浦らは、 陽子加速器トンネル内空気中のトリチウム濃度の測定を行い、一般環境中では、空気中 HTO 濃 度は、HT 濃度の2倍程度であるのに対して、加速器トンネル内の空気中 HTO 濃度は HT 濃度よ りも 50 倍高いことを明らかにしている⁴⁾。これらの研究結果は、トリチウムの生成場において、 水や酸素の存在量が高いと HTO の生成割合が高まることを意味している。Li-Hg 試料中でも上記 の研究の結果と同様な傾向を示したことから、J-PARC の水銀ターゲット内に生成されるトリチウ ムの化学形についても、ターゲット容器内の気相中に存在する水や酸素の影響を受けると考えら れる。

そこで、本実験結果から J-PARC の水銀ターゲット中に生成される HT 及び HTO の生成割合を 推定した。水銀ターゲット容器内の気相部分には、He ガスが充填されることとなっており、容器 内の圧力は 0.5 × 10⁶ Pa である²⁾。ターゲット容器に充填される He ガスは、露点温度-65°C で処 理されたものを使用するとし、ターゲット容器への He ガスの充填は、温度 25°C 及び相対湿度 60% の室内で行うこととした。He ガスによるターゲット容器内の置換率を 90%、99%及び 100%とし た場合の水蒸気分圧及び全生成トリチウム量に対する HTO の生成割合を Table 4 に示す。容器内 の He 置換率が 90%のとき、水蒸気分圧は 950 Pa となり、HTO の生成割合は 90%となった。また、 たとえ、ターゲット容器内の気相部分を全て He ガスで置換したとしても、He ガスに不純物とし ての水分が 2.5 Pa 含まれているため、HTO の生成割合は 66%となった。また、He ガス置換率が 99%の場合、80%が HTO として存在する。

これらのことから、水銀ターゲット中に生成されるトリチウムは、HT 及び HTO の両方の成分 が生成されるが、気相に存在する水や酸素量が極めて低い場合を除き、HTO の生成割合が非常に 高い。したがって、水銀ターゲット中に生成されるトリチウムを吸入した場合の内部被ばく線量 評価を行う場合、全てを HTO として評価しても、過大評価しすぎることはない。

3. 水銀中トリチウムガス及びトリチウム水の気相移行

水銀ターゲットへ陽子ビームを照射している間,ターゲット内に生成された放射性ガスは,サ ージタンクに蓄積され,その後,放射性排気処理設備で処理されることとなっている。J-PARC の物質・生命科学実験施設の気体排気システムでは,水銀ターゲット中に生成されたトリチウム は,全てが気相中に移行して排気されるとして設計されている。しかし,水銀中トリチウムが気 相へ放出される割合は分かっていない。そこで,本研究では,T₂またはHTOを水銀にばく露し, 水銀に取り込まれた T₂またはHTO の気相への移行割合を実験的に明らかにすることとした。ま た,陽子ビーム照射期間中,水銀ターゲット内の水銀は,局所的な温度上昇を避けるため,循環 される。このため,ターゲット容器内の水銀は常に撹拌されるとともに,循環系における水銀温 度は 50℃ となる²⁾。そこで,HTO の気相移行挙動に関しては,循環系の温度よりも高い条件で 水銀を撹拌した場合の水銀中 HTO の気相への移行を明らかにした。

3.1 トリチウムガス(T₂)の気相移行

3.1.1 実験方法

(1) トリチウムガスの発生方法

 T_2 ガスの発生は、野口らが T_2 ガスの転換率測定において開発した方法を用いて行った¹⁰。本 装置は、 T_2 ガスを吸蔵用の天然ウランゲッター、定量サンプリングバルブ、ターボ分子ポンプ、 ロータリーポンプ、圧力計、不純物除去用のモレキュラーシーブカラムを接続したラインに、ガ ス分取用の約 80 ml のパイレックスガラス容器を接続したものである。実験では、系内及び分取 用ガラス容器を 10^{-5} Pa まで減圧し、不純物を除去してから、 T_2 の分取を行った。また、分取用 のガラス容器は、減圧する際に 300° C に加熱して、容器表面に付着したガスを脱離した。系内の 気圧が十分に低くなったことを確認して、ウランゲッターを 160° C に加熱し、 T_2 ガスを系内に発 生させ、分取容器に封入した。分取容器内の圧力は、ほぼ大気圧となるように N_2 ガスを封入して 調整した。このようにして分取した容器内の T_2 ガス濃度は 2000 Bq cm⁻³ であった。

(2) トリチウムガスのばく露方法

水銀への T₂ ガスのばく露は, Fig. 5 に示した実験系において実施した。実験系は,系内の T₂ ガスを循環するためのダイヤフラム式ポンプ, T₂ガスを封入した容器,気相中 T₂濃度を測定する ための電離箱 (100 ml),約 150 gの水銀を封入したバブラ (直径 2.3 cm,水銀深さ 3.5 cm)及び 蒸発した水銀を系内から除去するための活性炭カラムから構成されている。T₂ガスは,流量率約 30 または 50 ml min⁻¹で水銀に流して約 40 時間バブリングした。ばく露期間中の系内の気相中 T₂ 濃度は 180 及び 330 Bq cm⁻³であった。

(3) 水銀から気相へのトリチウムガス移行割合の測定方法

水銀から気相へのT₂ガス移行割合の測定は, Fig. 6に示す実験系において実施した。ばく露後,

水銀バブラをばく露系から取り外し、 T_2 ガスを水銀にバブリングした時には使用しなかったバブ ラ側面の別の口から水銀上部表面に 100 ml min⁻¹ N₂ガスを 10 分間流し、水銀封入容器の気相部 分に残留した T_2 ガスを除去した。その後、水銀バブラの後部に、水分除去用のモレキュラーシー ブ 4A カラム (1 段) 及び T_2 ガス捕集用の Pd-Al₂O₃触媒カラム (モレキュラーシーブ 4A に 5% PdAlO₃触媒を添加したもの、2 段) を設置し、系内に 9 vol%の H₂ガスを添加した N₂ガスを流量 率 110 ml min⁻¹で流すことにより、水銀表面から気相に移行した T_2 ガスを回収した。気相移行割 合の測定は最大 30 時間とし、所定の時間ごとに捕集剤カラムを交換し、時間変化を調べた。実験 終了後は、水銀中に残留している T_2 ガスを全量回収するため、水銀バブラを 80°C に加熱し、N₂ ガスを流量率 40 ml min⁻¹で流して、約 9 時間バブリングを行った。水銀バブラの後部には、上記 に示した HTO 及び T_2 ガス捕集剤を設置した。

実験終了後, 捕集剤に回収した T₂ガスは, 電気炉で 400°C に加熱して, N₂ガスを流量率 100 ml min⁻¹ で流すことにより, 水 (HTO) として後部に設置した水バブラ (10 ml, 2 段) により回収 した。この水バブラから 8 ml を分取し, シンチレータ (12 ml) と混合し, 液体シンレーション カウンタでトリチウム濃度を測定した。

3.1.2 トリチウムの拡散係数算出方法

T₂ガスの水銀から気相への移行挙動に関する研究では、実験結果から気相移行割合(気相に放出された量/水銀中の全T₂量)を求め、この実測値から、気相移行挙動を表すパラメータとして、 水銀中でのT₂の拡散係数を求めた。水銀中T₂ガス濃度の深さ方向の濃度変化を以下の1次拡散 方程式によって表す。

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = -D \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2}$$

$$t = 0, C(x,0) = \text{Cont.},$$

$$x > x_s, C(x,t) = 0$$
(3-1)

ここで、*C*は水銀中の HT または HTO 濃度 (Bq cm⁻³)、*t* は時間 (s)、*D* は拡散係数 (cm² s⁻¹)、*x* は深さ方向の距離 (cm) である。 x_s は、容器底面から水銀が気相に接している表面までの距離 (cm) である。 t = 0 のとき、水銀中 T₂ 濃度は深さに関係なく一定とする。水銀表面から気相に放出さ れた T₂ ガスは直ちに気相中に拡散し、回収されるとし、気相中 T₂ 濃度は 0 とする。

一方,溶媒中のガスの拡散は、Wilke らの溶媒及び溶質の分子量等を用いた理論式によって表 すことができる¹¹⁾。

$$D_{12} = 7.4 \times 10^{-8} \, \frac{(\alpha M)_2^{1/2} T}{\mu_2 V_1^{0.6}} \tag{3-2}$$

ここで、 D_{12} は溶質成分1の溶媒成分2中における拡散係数 (cm² s⁻¹)、*M*は分子量、 α は会合係数 ($\alpha = 1$)、*T*は温度 (K)、*V*は沸点における液体の分子体積 (cm³ mol⁻¹)、 μ は粘度 (cP) である。 溶質がT₂ガスの場合のV₁の値は、与えられていない。このため、H₂に対する値を求めることとし た。H₂のV₁は14.3、溶媒が水銀の μ_2 は、1.49となる¹²⁾。 また、気相移行を表すパラメータとして拡散係数とともに、水銀に対するトリチウムの溶解度 も重要である。水銀に対する他の物質の溶解度は、Mg, Ag, Al, Fe, Niなどの金属については 得られているが、水素ガス(HT, H₂)や水(H₂OまたはHTO), I, N, O, Ar等についてはデー タがない¹⁾。そこで、水銀中のT₂ガスの溶解度については、水銀から回収されたT₂ガスの放射能 (Bq)から体積を算出し、1気圧(10⁵ Pa)のT₂ガスが、気相中に存在するときに、水銀1 cm³当 たりに溶解するT₂の量(cm_{T2}⁻³ cm_{Hg}⁻³ Pa⁻¹)として表した。

3.1.3 結果

Fig. 7 に水銀中 T₂ガスの気相移行割合を測定した結果を示す。気相への移行割合は、水銀から 回収した全 T₂ガスの放射能に対する、所定の時間における水銀から気相へ移行した量によって表 した。30 時間測定を行った結果、水銀バブラから気相に放出された T₂の割合は、0.3 以下であっ た。この時間変化から、拡散係数を算出した結果、常温おける、水銀中 T₂ガスの拡散係数は 8 × 10⁻⁶ $cm^2 s^{-1} となった。Table 5 に、(3-2) 式によって計算した温度 25°C、45°C 及び 80°C における水銀$ に対する H₂の拡散係数を示す。25°C における拡散係数は、実測値の 5 倍となった。Table 5 に示した常温から 80°C の拡散係数は、温度による差が小さい。このことから、この温度条件下では、拡散係数を一定として計算してもほとんど気相移行割合に影響はしないと言える。

気相移行割合を測定後,水銀を加熱して N₂ガスを流してバブリングした結果,1.5 時間で残留 した T₂の 98%を回収することができた。

また、3.1.2 項に示した方法により、水銀に対する T₂ガスの溶解度を求めた。この結果を Table 6 に示す。常温(25°C)の条件下で、ばく露した N₂ガス(1×10⁵ Pa)中の T₂ガスの分圧が 9.2×10⁻³ Pa の場合、1 cm³の水銀中に 3.5×10^{-9} cm³の T₂ガスが溶解することが明らかとなった。これ を T₂ガス 10⁵ Pa に換算すると、3.8 cm_{T2}³ cm_{Hg}⁻³ Pa⁻¹ となった。

3.2 水銀中トリチウム水(HTO)のばく露及び気相移行(静的条件下)

3.2.1 実験方法

水銀への HTO のばく露は、以下の手順で行った。約 0.18 GBq ml⁻¹の HTO 約 0.1 ml を、面積 13 cm²のろ紙に含浸させ、約 84 g または 161 g の水銀とともに封入して、数日から 1 か月密閉し て静置した。ばく露期間中は、容器内の水銀を数回攪拌した。ばく露後は、水銀を別の容器(4.2 cm $\phi \times 5$ cm または 10 cm)に移して水銀表面に N₂ ガスを流量率 100 ml min⁻¹で流し、水銀から気 相へ移行した HTO をエチレングリコールバブラ(10-20 ml、2 段)で連続的に捕集した。水銀試 料の深さは、0.45 cm または 0.86 cm であった。水銀の温度は 45°C または 80°C とした。実験系を Fig. 8 に示す。エチレングリコールバブラから、所定の時間ごとに約 1 ml を分取して、1 ml のエ タノール及び 18 ml のシンチレータ(アクアゾル 2)と混合し、液体シンチレーションカウンタ で試料内のトリチウム濃度を測定し、バブラ内のトリチウム濃度の時間変化を求めた。

3.2.2 結果

静的条件下で水銀中から気相へ放出される場合の気相への移行割合を Fig. 9 に示す。45°C の場合の気相移行割合は、7.8 時間後には 0.72、80°C の場合、4.4 時間後に 0.74 となった。この気相移行割合の時間変化から、(3-1) 式の拡散係数 D を求めた結果を Table 7 に示す。両者の結果とも、2 時間または 2.5 時間以降は、拡散係数が低下した。Table 8 に、温度 25、45 及び 80°C に対する (3-2) 式から求めた水銀中の H_2O の拡散係数を示す。実験結果から得られた拡散係数と (3-2) 式から得られた拡散係数を比較すると、 T_2 (H_2) ガスの場合と同様に、実験から得られた結果は、

(3-2) 式から得られた結果より低い値となった。

溶解度を算出した結果を Table 9 に示す。温度 25°C, HTO ばく露容器内の相対湿度が 100%と した場合,気相中 HTO の分圧は 2.1 Pa となり、この条件下で、水銀に溶解した HTO は、 1.5×10^{-5} cm³_{HTO} cm⁻³_{Hg} であった。この結果より、溶解度は 7.2 × 10⁻⁶ cm³_{HTO} cm_{Hg}⁻³ (10⁵ Pa)⁻¹ となった。こ の値は、水銀中 T₂の溶解度よりも一桁高い値となった。

3.3 水銀中トリチウム水(HTO)のばく露及び気相移行(撹拌時)

3.3.1 実験方法

水銀への HTO のばく露及び気相移行割合の測定は,3.2 節に示した静的条件下での実験と同じ 実験系を用いて実施した。実験は,45°C 及び 80°C の温度条件下で行った。撹拌時の気相移行割 合の測定は,水銀を入れた容器内に撹拌子(直径 0.8 cm,長さ 3 cm)を入れ,容器下部に設置し たマグネットスターラーにより,撹拌子を回転させ,水銀中の濃度を一定にした。実験系を Fig. 10 に示す。

3.3.2 HTO の気相への放出速度の算定方法

水銀を撹拌した場合は、静的条件とは異なり、深さ方向に HTO 濃度の分布はなく、常に水銀 中 HTO 濃度が一定になると考える。この場合の水銀中 HTO 濃度の時間変化は、水銀表面から HTO が放出される速度(放出速度)、*V*_{HTO} (cm s⁻¹)を用いて以下の式によって表される。

$$L\frac{\partial C(t)}{\partial t} = V_{HTO}(C_a(t) - C(t))$$
(3-3)

*L*は試料の厚さ (cm), *C*(*t*) は時間 *t* の水銀中 HTO 濃度 (Bq cm⁻³), *C_a*(*t*) は空気中 HTO 濃度 (Bq cm⁻³) である。ここで、 $C_a(t) = 0$ として (3-3) 式を解くと以下のようになる。

$$\frac{C(t)}{C_0} = \exp(-\frac{V_{HTO}}{L}t)$$
(3-4)

ここで、 C_0 は初期水銀中 HTO 濃度 (Bq cm⁻³) である。

3.3.3 結果

温度 45°C 及び 80°C の温度条件下において, HTO をばく露した水銀を撹拌した場合の,水銀中 HTO の気相移行割合を測定した結果を Fig. 11 に示す。45°C の温度条件下で実験した水銀試料の 深さは,0.8 cm,80°C の条件下で実験した試料は,0.45 cm である。水銀を撹拌した場合,この実 験条件下では、いずれも30時間後には、水銀にばく露した HTO のほぼ全量が気相中に放出され た。この実験結果から (3-4) 式に示した $V_{\rm HTO}$ を算出した結果を Table 10 に示す。45°C 及び 80°C の温度条件下では、放出速度 $V_{\rm HTO}$ は温度による有意な差はなく、平均すると、2.3 × 10⁻⁵ cm s⁻¹ となった。これは、水銀の温度が HTO の気相への移行に与える影響よりも、撹拌が気相移行に 与える影響の方が大きいことを意味している。

3.4 水銀ターゲット中トリチウムの気相移行割合の推定

実験及び理論式から得られた拡散係数を用いて,静的条件下における J-PARC 水銀ターゲット 中に生成されるトリチウムの気相移行割合を計算した。この計算では、ターゲット内の水銀の深 さを 40 cm、水銀中トリチウム濃度は深さ方向に均一であるとした。計算結果を Fig. 12 に示す。 気相移行割合の計算に用いる拡散係数は、 5×10^{-5} 、 1×10^{-5} 、 5×10^{-6} 及び 1×10^{-6} cm² s⁻¹ とした。 拡散係数として、 5×10^{-5} cm² s⁻¹ を用いて計算した場合、水銀中に生成された全トリチウム量に 対する気相に移行したトリチウムの割合は 30 日後において 0.31 であり、 1×10^{-6} cm² s⁻¹ を用いた 場合、0.036 であった。このような計算条件では、ターゲットへのビームの照射及び水銀の循環 が停止した場合、1ヶ月経過しても 70%またはそれ以上が水銀中に残留することになる。

一方,水銀ターゲットの温度の上昇及び流動を考慮し,3.3節で求めた気相放出速度 V_{HTO}を用いると,水銀中 HTO 濃度の時間変化は下記の式で表される。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{V_{HTO}}{L} (C_a(t) - C(t)) + S$$
(3-5)

ここで、 $V_{\rm HTO}$ は、Table 10 に示した値の平均値 2.3×10^{-5} cm s⁻¹を用いることとした。L は水銀の 深さを表し、計算では 40 cm とする。 C_a は空気中濃度で、計算では 0 とする。S は、水銀ターゲット中におけるトリチウム生成率 (Bq cm⁻³ s⁻¹) である。これは、1 年間に水銀ターゲット中に生 成されるトリチウム量から算出することとし、20 Bq cm⁻³ s⁻¹ とした。これらの値を用いて計算し た結果を Fig. 13 に示す。破線は、気相への放出がなかった場合の水銀中 HTO 濃度、実線は、放 出速度 $V_{\rm HTO}$ で水銀から気相へ HTO が放出されるとして計算した結果である。気相への放出を考慮した場合、50 日で水銀中 HTO 濃度は、ほぼ一定となった。気相放出の有無を考慮した場合の 1 年後 (365 日後) の水銀中 HTO 濃度を比較すると、気相放出を考慮した場合、全生成量の 5.6% が水銀中に残留することとなった。すなわち、水銀中に生成された HTO の 94%が気相に放出されることを意味している。したがって、サージタンク内の放射性ガスが気体廃棄処理システムへ移された後にターゲット容器から水銀が漏えいした場合、ターゲットから気相中に放出されるト リチウムの量は少ない。また、ターゲット容器内に封入されている水銀の 0.1%が床等に放出され るとした場合、この中に含まれているトリチウムの放射能としては、10⁸ Bq となる。一方、サー

ジタンク内に放射性ガスが蓄積されている状態で、ターゲット容器が破損した場合、水銀中に生 成されたトリチウムのほとんどがサージタンク内の気相部分に移行していることから、そのほと んどが空気中に放出されることとなる。

3.5 まとめ

水銀ターゲット中に生成される T₂及び HTO の気相への移行挙動を明らかにするため,静的条件下及び攪拌条件下において,水銀中 T₂及び HTO の気相への移行割合を測定し,水銀中での T₂及び HTO の拡散や水銀表面から HTO の放出速度を明らかにした。

静的条件下において,水銀に T₂ガス及び HTO をばく露し,その後,水銀から気相への T₂ガス 及び HTO の移行割合を測定し,拡散係数及び溶解度を求めた。理論式から求めた T₂及び HTO の 拡散係数は,T₂及び HTO に差はなかった。また,拡散係数は温度の上昇にともない大きくなる が,25°C から 80°C の温度条件下においては,T₂及び HTO ともに,大きな違いはなく,同じ拡散 係数を用いて評価しても,気相への放出割合には大きな差がないものと考えられる。また,実験 値と計算結果に違いがあるものの,これらを基に,静的条件下における水銀中トリチウムの気相 移行割合を計算により求めた結果,30日が経過した後でも全生成量の70%が水銀に残留すること が明らかとなった。

一方,水銀ターゲットにおいて,水銀が撹拌され,水銀中のトリチウム濃度が深さ方向に一定 となる場合を想定して気相移行割合を計算した結果,1 年経過後,水銀中に残留するトリチウム の量は,全トリチウム生成量の 6%未満で,水銀中に生成されたトリチウムのほとんどが気相中 に放出されることが明らかとなった。

4. 水銀中ヨウ素の気相移行

水銀ターゲット内では、生成された放射性ヨウ素は、ヨウ素ガス(I₂)やヨウ化水銀(Hg₂I₂または HgI₂)として存在すると考えられている²⁾。このうち、I₂は水銀と反応して HgI₂を生成し¹³⁾、 HgI₂は、水銀と反応して Hg₂I₂となる¹⁴⁾。したがって、水銀中に生成されたヨウ素は、主に Hg₂I₂であると考えられる。そこで、水銀に I₂をばく露して HgI₂を生成し、その後、水銀中で Hg₂I₂に変化したものが水銀から気相に放出される割合を明らかにした。

4.1 実験方法

4.1.1 試料調製方法

ヨウ化水銀 (Hg₂I₂ または HgI₂) の生成方法については, いくつかの調製方法が存在する¹⁵⁾が, 不純物を生成することなく, 水銀中に微量な HgI₂及び Hg₂I₂を生成するため, 水銀に I*₂ガス (¹³¹I でラベル)をばく露する方法で, HgI*₂を生成した。I*₂ガスを水銀にばく露する系を Fig. 14 に示 す。ヨウ素ガス発生源には, あらかじめ調製した I*₂ (結晶)を U字管に封入したものを用いた。 I*₂ガスの発生は, 室温条件下において実施した。U字管に水分を除去した He ガスを流量率 50 ml min⁻¹で流し,発生した I*₂ガスを後部に設置した水銀バブラ (約 110 g)内に導き, I*₂ガスを水 銀にばく露した。実験は 3 回実施し, I*₂ガスのばくろ露時間は, 1 回目を 10 分, 2 回目を 60 分, 3 回目を 100 分とした。

ばく露終了から 0.5 時間程度経過すると、水銀中に生成された HgI_2^* が赤色から黄色に変化するのを確認した。これは、 HgI_2^* が Hgと反応して $Hg_2I_2^*$ に変化したためと考えられる ¹⁴⁾。

水銀バブラ後部には、バブラを通過したヨウ素を捕集するため、各種フィルタを設置して化学 形ごとに弁別捕集を行った。ヨウ素の弁別捕集は、野口らが以前に行った空気中ヨウ素の測定・ 実験で用いた手法により行った¹⁶⁾。粒子状ヨウ素捕集用フィルタとしてメンブランフィルタ(1 段)を、I*2ガス捕集用として銀フィルタ(銅メッシュに銀を蒸着したもの、5枚を1組にして3 段)、有機形ヨウ素捕集用として活性炭素繊維(ACF)フィルタ(3段)を用いた。さらに、フィ ルタの最後段には、通過したガスを回収するため、活性炭カートリッジを設置した。水銀へ I*2 ガスをばく露した後、各フィルタの¹³¹Iの放射能は、Ge 半導体検出器を用いたγ線スペクトロメ トリにより求めた。

4.1.2 ヨウ素ガスの調製

 I_2 のガスの調製方法は、野口らが以前に行った空気中ヨウ素の測定・実験で用いた手法¹⁶⁾を用いた。放射性ヨウ化ナトリウム水溶液(74 MBq, Nal^{*}/0.1 M NaOH 4 µl)に担体として 1 ml の 0.6 M ヨウ化カリウム水溶液(KI)を添加した。これを 200°C で蒸発乾固した後、小過剰の重クロム酸 カリウム(K₂Cr₂O₇)を添加して 400°C に加熱し、He ガスを流して、発生した I*₂をドライアイス エタノールで冷却した U 字管(-70°C)に I*₂(結晶)として捕集した。I*₂(結晶)生成過程は下 記のとおりである。実験系を Fig. 14 に示す。 NaI* (aq)+ KI (aq) \leftrightarrow KI* (aq) + NaI (aq) 200°C

$$\begin{array}{rl} 2 \ KI^{*} \ (s) + K_{2} Cr_{2} O_{7} \ (s) \ \rightarrow \ I^{*}_{2} + K_{2} O + K_{2} Cr O_{4} + Cr O_{2} \\ & 400^{\circ} C \end{array}$$

4.1.3 ヨウ化水銀の気相移行割合測定

水銀から Hg_2I_2 の気相移行割合の測定は、 I_2 ガスをばく露した系と同じ Fig. 14 に示す実験系 において実施した。ばく露後、U 字のコックを閉じて、 I_2 発生部から系内への I_2 の混入を防ぎ、 分岐した別の経路から微量な Hg_2I_2 を含有した Hg (Hg_2I_2 -Hg) に流量率 10 ml min⁻¹ で He ガス を約 3 時間流し、 Hg_2I_2 -Hg 試料から気相へのヨウ素の移行割合を測定した。 Hg_2I_2 -Hg の温度は、 水銀ターゲットでの温度上昇を考慮して 80°C とした。

Hg₂I*₂-Hg 試料の後部には、I*₂ガスばく露時と同様に、メンブランフィルタ(1段)、銀フィルタ(3 段)、ACF フィルタ(3 段)及び活性炭(1 段)を設置した。また、水銀中に生成した Hg₂I*₂の全量を求めるため、実験終了後には、Hg₂I*₂-Hg 試料に 0.6 M KI 水溶液を 2 ml 添加して、よく振とうして Hg₂I*₂を溶解し、上澄み液を 0.1 ml 分取して、ろ紙に含浸させ、測定試料を作成した。 各フィルタに捕集された¹³¹I 及びろ紙の¹³¹I の放射能は、Ge 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリにより求めた。

4.2 結果及び考察

水銀にばく露した全I*₂ガスの¹³¹Iの放射能及びばく露中に水銀バブラの後部に設置したフィル タから検出された¹³¹Iの放射能を Table 11 に示す。3 回目の実験では、粒子捕集用フィルタ、銀 フィルタ及び ACF フィルタから微量な¹³¹I が検出された。その量は、水銀へばく露した全 I₂*の 0.02, 0.02 及び 0.07%であった。Table 12 に水銀への I₂*ガスのばく露率(Bq cm⁻² s⁻¹), I₂の比放 射能(Bq g⁻¹) 及び HgI₂生成率(cm³ cm⁻² s⁻¹)を示す。本実験条件下では、水銀にばく露した I*₂ は、ほぼ全て HgI*₂となったことから、水銀中での HgI*₂の生成率を算出すると、1 回目の実験に おける生成率が最大となり、1.4×10⁻⁶ cm³ cm⁻² s⁻¹であった。

水銀へ I*2 ガスをばく露後,水銀に He ガスを流して,フィルタの放射能を測定した結果,各フィルタから¹³¹Iの放射能は検出されなかった。そこで,Table 13 に示したフィルタの¹³¹I の検出下限値及び Table 11 に示した水銀にばく露した I*2 ガスの放射能を用いて,I*の気相移行率を算出した。この結果を Table 14 に示す。水銀中の I*の気相移行率は,1回目及び 3回目が 1.8×10^{-8} s⁻¹, 2回目の値が最も低く, 4.2×10^{-9} s⁻¹以下となった。

J-PARC の水銀ターゲット中に生成されるヨウ素の量(安定同位体を含む)は、30年間運転した場合、2.84gであると推定されている¹⁾。この量がすでに水銀中に存在しているとして、Table 14 に示した気相移行率から、I の気相放出量を計算すると 5×10^{-8} gs⁻¹となる。もし、これがサージタンク内の気相中で全て I₂として存在している場合、Hg₂I₂を生成するのに必要な水銀量は 8×10^{-8} gs⁻¹となる。一方、サージタンク内の温度が 25° Cで、水銀蒸気が飽和状態に達しているとす

ると、サージタンク内気相中水銀濃度は、 $1.3 \times 10^{-8} \text{ g cm}^{-3}$ となる。サージタンクは、気相部分の体積が 0.3 m³である²⁾。このため、上記で求めた I の気相放出量に比べて、サージタンク内気相中には十分な量の水銀が存在していることとなる。このため、たとえ、サージタンク内の気相中で Hg₂I₂ が放射線分解等により I₂ ガスとなっても、直ちに水銀と反応して、再び HgI₂ または Hg₂I₂ が生成されると考えられる。したがって、ターゲット容器内に存在するヨウ素の吸入による被ばく線量を評価する上では、そのほとんどがヨウ化水銀(メチル化合物以外)であるとして評価すればよい。

5. まとめ

J-PARCの核破砕中性子源として使用される水銀ターゲット中に生成され、水銀から気相中に放 出される放射性核種のうち、トリチウム及びヨウ素に着目し、実験により気相移行挙動を明らか にした。

トリチウムに関する研究では、水銀ターゲット中でのトリチウムの生成を模擬するため、Li-Hg 試料に熱中性子を照射して、HT 及び HTO の生成割合を測定する方法を構築し、実験を実施した。 この結果、照射容器内の水蒸気分圧が低い場合には、全トリチウム生成量に対する HTO の割合 は 20-70%となるが、水蒸気分圧が 10³ Pa 以上では 90%以上が HTO として存在することを明らか にした。また、この結果をもとに、水銀ターゲットで生成される HT と HTO の生成割合を評価し たところ、He ガスでターゲット循環系内の気相部分を十分に置換したとしても、残留する水分の ため、水銀中に生成されるトリチウムのほとんどが HTO として存在するという結果が得られた。

トリチウムの気相移行割合に関する研究では、T₂または HTO をばく露した水銀試料から、気相に放出される T₂及び HTO の時間変化を測定した。常温かつ静的条件下において、水銀中 T₂ガスの気相移行割合を測定し、拡散係数を求めた結果、 8×10^{-6} cm⁻² s⁻¹となった。また、温度 45°C及び 80°C、静的条件下において得られた HTO の気相移行割合から水銀中での HTO の拡散係数を求めた結果、 1×10^{-6} - 4×10^{-5} cm² s⁻¹となった。水銀に対する T₂及び HTO の溶解度は、T₂の値の方が、HTO の値よりも 1 桁小さかった。

水銀を撹拌した状態で、水銀表面から気相への HTO の移行(水銀からの放出速度)を調べた 結果,45℃及び80℃の条件下では値に有意な違いがなく、平均すると、(2.3±0.6)×10⁻⁵ cm⁻² s⁻¹ であった。

これらの実験結果を基に、J-PARCの水銀ターゲット中で生成されるトリチウムの気相移行割合 を算出した結果、水銀温度が 80°C 以下の静的条件下では、放出が開始されてから1ヶ月で水銀か ら気相へ移行する HTO 量は初期水銀中 HTO 量に対して 30%以下となった。一方、水銀を撹拌し た場合、運転開始から1年後には、水銀中に生成されるトリチウム量のほぼ全量が気相に移行す ることが明らかとなった。したがって、気相に移行したトリチウムを全て回収した後、ターゲッ トから水銀が漏えいした場合、生成されたトリチウムのほとんどが気相に移行して回収されるこ ととなるため、気相中に放出される量は非常に少ない。また、サージタンク内のガスが施設内に 放出した場合には、ほぼ全量が施設内に放出されることとなる。

ョウ素の気相移行挙動に関する実験では、水銀に放射性ヨウ素ガス(¹³¹I でラベルしたガス, I*2) をばく露して、Hg₂I*2 を生成し、これらの気相への移行挙動を明らかにした。水銀にばく露した I*2 ガスのほぼ全量が水銀と反応し、Hg₂I*2 となり、その後、水銀内で Hg₂I*2 が生成された。また、 静的条件下で 80°C まで水銀を加熱し、水銀中に生成された全 I*量に対する水銀から気相へ移行 する Hg₂I*2 の割合を求めた結果、 $1.8 \times 10^{-8} \text{ s}^{-1}$ 以下となることを明らかにした。また、この気相 移行率を用いて、水銀ターゲットサージタンク内に放出されるヨウ素について評価を行った結果、 水銀ターゲット内気相中に放出された HgI*や Hg₂I*2 の一部が放射線分解等により、I*2 になった としても、気相中に存在する水銀蒸気と反応して直ちにヨウ化水銀が生成されることが示唆され た。これの結果から、水銀中に生成された放射性ヨウ素は、気相中にはほとんど放出されないか、 極微量のヨウ化水銀が気相中に放出されると考えられる。このため、ヨウ素に対する内部被ばく 線量評価を行う場合、ヨウ化水銀として評価すれば良いと考えられる。

謝辞

中性子源セクションの春日井好己氏には,物質・生命科学実験施設に関する情報を提供して頂 くとともに,実験及び解析に関して有益な助言を頂きました。トリチウム工学研究グループ中村 博文氏には,トリチウム移行挙動実験方法及び解析にともなう技術的助言を頂きました。ここに 感謝の意を表します。

参考文献

- 小林薫,神永雅紀,羽賀勝洋: "水銀ターゲットにおける核破砕生成物の熱化学的挙動の推定", JAERI-Tech 2002-005 (2002).
- 2) 物質・生命科学実験施設建設チーム: "大強度陽子加速器プロジェクト物質・生命科学実験施設機器技術設計書", JAERI-Tech 2004-001 (2004).
- T. Miura, Y. Oki, T. Suzuki, M. Numajiri, ,K. Kondo, and Y. Kanda.: "Relative abundance of HT and HTO in the accelerator tunnel air and atmospheric air", Applied Radiation and Isotopes, 44 (3), pp. 499-504 (1993).
- 三浦太一: "OHO '05 高エネルギー加速器セミナー (テキスト), 10. 高エネルギー陽子加 速器における放射化と環境への影響", 高エネルギー加速器科学研究奨励会 (2005).
- 5) 日本アイソトープ協会: "アイソトープ法令集 I",日本アイソトープ協会,東京 (2005).
- 6) K. Manabe and S. Yokoyama: "Ratio of tritiated water and hydrogen generated in mercury through a nuclear reaction.", Applied radiation Isotopes, **66**, pp. 122-125 (2008).
- M. Enke, C. M. Herbach D. Hilscher, U. Jahnke, O. Schapiro et. al: "Evaluation of a spallation reaction: experiment and monte calro simulation.", Nucl. Phys. A. 657, pp. 317-339 (1999).
- R. F. Fleming: "Neutron self-shielding factors for simple geometry.", J. Appl. Radiat. Isot., 33, pp. 1236-1268 (1982).
- 9) H. Kudo: "Production of fusion reactor fuel tritium and its chemistry.", Radioisotopes, **34**, pp. 432-441 (1985).
- 10) H. Noguchi, C. E. Easterly, M. R. Bennett: "Conversion of low-concentration tritium gas to tritiated water.", Fusion Technology, **16** (2), pp. 137-142 (1989).
- 11) 化学工学協会: "化学工学便覧", 丸善株式会社, 東京 (1999).
- 12) 日本化学会:"化学便覧基礎編Ⅱ", 丸善株式会社, 東京 (2004).
- 13) 長倉三郎, 井口洋夫: "岩波理化学辞典", 岩波書店, 東京 (1998).
- N. B. Singh, R. H. Hopkins, R. Mazelsky and M. Gottlieb: "Phase relations and crystal growth of mercurous iodide.", J. Crystal Growth, 85, pp. 240–247 (1987).
- 15) 野崎弘,藤代光雄: "ヨウ素とその工業",東京電機大学出版部,東京 (1963).
- 16) 野口宏,松井浩,大内富男,吉田芳和:私信 (1980).

| Run | Weight of | Li content |
|-----|------------|------------|
| No. | sample (g) | (mol%) |
| 1 | 1.6 | 1.9 |
| 2 | 0.9 | 1.9 |
| 3 | 1.0 | 0.95 |
| 4 | 1.0 | 0.95 |
| | | |

Table 1 The weights and Li contents of the samples⁶⁾.

| Pressure | in | the | sample | container: | 1 | Ра |
|----------|----|-----|--------|------------|---|----|
|----------|----|-----|--------|------------|---|----|

Table 2 Li-Hg sample conditions.

| Sample | Weight | Li content | Air | Ar | Pressure | Temperature | Humidity |
|--------|--------|------------|-----|-----|---------------------|-------------|----------|
| No. | (g) | (mol%) | (%) | (%) | (Pa) | (°C) | (%) |
| 1 | 1.38 | 1.32 | 1 | 99 | 7.3 | 26 | 60 |
| 2 | 1.23 | 1.47 | 1 | 99 | 7.3 | 21 | 55 |
| 3 | 1.07 | 1.32 | 10 | 90 | 7.3 | 26 | 60 |
| 4 | 1.20 | 1.47 | 10 | 90 | 0.69 | 21 | 55 |
| 5 | 1.11 | 1.32 | 100 | 0 | 6.9 | 26 | 60 |
| 6 | 1.15 | 1.47 | 100 | 0 | 6.9 | 21 | 55 |
| 7 | 1.10 | 2.09 | 100 | 0 | 67 | 18 | 50 |
| 8 | 1.09 | 2.09 | 100 | 0 | 67 | 18 | 50 |
| 9 | 1.07 | 2.09 | 100 | 0 | 67 | 18 | 50 |
| 10 | 0.90 | 2.19 | 100 | 0 | 1.0×10^{5} | 26 | 55 |
| 11 | 1.07 | 0.95 | 100 | 0 | 1.0×10^{5} | 17 | 50 |

Table 3 Yields of tritium taken in consideration of self-shielding factors⁶⁾.

| Run No. | Measured total activity (Bq) | Self-shielding factor (%) | Calculated total activity (Bq) | Recovery rate (%) |
|------------|------------------------------|------------------------------|--------------------------------|----------------------|
| 1 | 91.5 ± 1.2 | 20 | 89 ± 3 | 103 ± 4 |
| 2 | 75.6 ± 1.8 | 32 | 75 ± 2 | 100 ± 4 |
| 3 | 39.6 ± 0.7 | 28 | 38 ± 2 | 103 ± 4 |
| 4 | 36.8 ± 0.6 | 28 | 36 ± 1 | 101 ± 4 |

| He gas (%) | Pressure of water vapor (Pa) | HTO/(HT+HTO) (%) |
|------------|---------------------------------|------------------|
| 90 | 950 | 90 |
| 99 | 98 | 81 |
| 100 | 2.5 | 66 |

Table 4 Ratio of HTO in the mercury target.

Surge tank: $5.0\times 10^5\,\text{Pa}$, temperature: 25°C

Table 5 Diffusion coefficient of H₂ in mercury calculated by calculated from Equation (3-2).

| Diffusion (cm ² s ⁻¹) | | | | |
|--|--------------------|---------------------|--|--|
| 25°C | 45°C | 80°C | | |
| 4.2×10^{-5} | 4.5×10^{-5} | $5.0 	imes 10^{-5}$ | | |

Table 6 Solubility of T_2 in mercury at room temperature (25°C).

| Pressure | T ₂ in mercury | Solubility |
|----------------------|------------------------------|--|
| (Pa) | $(cm^{3}_{T2} cm^{-3}_{Hg})$ | $(\text{cm}^3_{\text{T2}} \text{ cm}^{-3}_{\text{Hg}} 10^5 \text{ Pa}^{-1})$ |
| 9.2×10^{-3} | $3.5 	imes 10^{-9}$ | 3.8×10^{-2} |

Table 7 Diffusion coefficient of HTO in mercury at static condition.

| D_{HTO} (cm ² s ⁻¹) | | | | |
|--|--------------------------------|--|--|--|
| 45°C | 80°C | | | |
| $4.2 \times 10^{-6} (0-2.0 \text{ h})$ | 4.0×10^{-5} (0-2.5 h) | | | |
| 1.0×10^{-6} (2.0-48 h) | $5.0 	imes 10^{-6}$ (2.5-46 h) | | | |

| Diffusion (cm ² s ⁻¹) | | | | |
|--|--------------------|---------------------|--|--|
| 25°C 45°C 80°C | | | | |
| 4.3×10^{-5} | 4.8×10^{-5} | $6.0 	imes 10^{-5}$ | | |

Table 8 Diffusion coefficient of H₂O calculated by Equation (3-2).

Table 9 Solubility of tritiated water vapor in mercury at room temperature (25°C).

| Pressure | HTO in mercury | Solubility |
|----------|--|---|
| (Pa) | $(\text{cm}^3_{\text{HTO}} \text{cm}^{-3}_{\text{Hg}})$ | $(\text{cm}^{3}_{\text{HTO}} \text{ cm}^{-3}_{\text{Hg}} (10^{5} \text{ Pa}^{-1}))$ |
| 2.1 | $1.5 	imes 10^{-5}$ | 7.2×10^{-1} |

| Table 10 | Velocity of HTO from mercury to gas-phase. | |
|----------|--|--|
|----------|--|--|

| V _{HTO} (| cm s ^{−1}) |
|---------------------------|------------------------------|
| 45°C | 80°C |
| $(2.7\pm0.5)	imes10^{-5}$ | $(1.9\pm 0.4)\times 10^{-5}$ |

| | Exposure to I*2 | Activity of ¹³¹ I (Bq) | | | | |
|------|-----------------|-----------------------------------|-------------------|-----------------|--|--|
| INU. | (Bq) | Membrane | Ag | ACF | | |
| 1 | 2770 ± 20 | nd | nd | nd | | |
| 2 | 593 ± 6 | nd | nd | nd | | |
| 3 | 308 ± 3 | 0.064 ± 0.015 | 0.060 ± 0.004 | 0.22 ± 0.02 | | |

Table 11 Activity of ¹³¹I during exposure of mercury to I_2^* gas.

nd: Not detectable

Table 12 Exposure rate of I^{*}₂ gas to Hg, specific activity of I^{*}₂ gas and production rate of HgI₂.

| No. | Exposure rate of I_2^* to Hg (Bq cm ⁻² s ⁻¹) | Specific activity of I_2^* (Bq g ⁻¹) | Production rate of Hgl ₂ (cm ³ cm ⁻² s ⁻¹) |
|-----|---|--|---|
| 1 | 0.94 | 2.0 × 10 ⁵ | 1.4 × 10 ⁻⁶ |
| 2 | 0.034 | 8.9 × 10 ⁴ | 9.7 × 10 ⁻⁸ |
| 3 | 0.010 | 5.9×10^4 | 5.1×10^{-8} |

Table 13Detection limit of ¹³¹I collected on filters.

| | Det | ection limits (E | 3q) |
|-------|----------|------------------|-------|
| No. · | membrane | Ag | ACF |
| 1 | 0.055 | 0.055 | 0.055 |
| 2 | 0.027 | 0.027 | 0.027 |
| 3 | 0.059 | 0.059 | 0.058 |

Table 14 Release rates of I* from mercury to gas phase.

| No. | Release rate of I* (s ⁻¹) |
|-----|---------------------------------------|
| 1 | < 1.8 × 10 ⁻⁸ |
| 2 | < 4.2 × 10 ⁻⁹ |
| 3 | < 1.8 × 10 ⁻⁸ |



Fig. 1 Irradiation field of Li-Hg samples (JRR-4).



Fig. 2 Recovery system of HT and HTO⁶⁾.



Fig. 3 Ratio of HT and HTO formed in Li-Hg (Partial pressure: 1 Pa)⁶⁾.



Fig. 4 Ratio of HTO in Lithium mercury and partial pressure of oxygen and water vapor.



Fig. 5 Exposure of mercury to T_2 gas.



MS: Molecular sieves

Fig. 6 Experimental equipment for measurement of T_2 gas from mercury.



Fig. 7 Release rate of T_2 gas from mercury to gas-phase.



Fig. 8 Experimental equipment for measurement of release rate of HTO (Static condition).



Fig. 9 Release rate of HTO in mercury to gas-phase at temperature of 45°C and 80°C in a stable state.



Fig. 10 Experimental equipment for measurement of release rate of HTO (Stirring condition).



Fig. 11 Release rate of HTO in mercury to gas-phase (String of mercury).



Fig.12 Release rate of tritium from mercury to gas phase.



Fig. 13 Difference between the presence and absence of release of tritium form surface of mercury.



Fig. 14 Experimental arrangement to measure the release rate from mercury to gas-hase.



Fig. 15 Generator of I_2 gas.

This is a blank page.

| 表1. SI 基本単位 | | | | | | |
|-------------|----|---|----------------------------|--------|---------------|-----|
| 甘木 | ţ. | | SI | 基 | 本ì | 単位 |
| 本 平 5 | E. | | 名 | 称 | | 記号 |
| 長 | Лt | メ | ĺ | Γ | イ | m |
| 質 | 量 | キ | ロク | ブラ | \mathcal{L} | kg |
| 時 | 間 | | 形 | l) | | s |
| 電 | 流 | 7 | $\boldsymbol{\mathcal{V}}$ | \sim | 7 | А |
| 熱力学》 | 且度 | ケ | \mathcal{N} | ビ | ン | Κ |
| 物質 | 量 | モ | | | ル | mol |
| 光 | 度 | 力 | $\boldsymbol{\mathcal{V}}$ | デ | ラ | cd |
| | | | | | | |

| 表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位 | の例 |
|------------------------|--------------------|
| an 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)キログラム毎立法メートル | kg/m ³ |
| 質量体積(比体積) 立法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 |
| (物質量の)濃度 モル毎立方メートル | $mo1/m^3$ |
| 輝 度カンデラ毎平方メートル | cd/m^2 |
| 屈折率(数の)1 | 1 |

÷ c oT 埣丽垚

| | 衣 5. 51 接與證 | | | | | | |
|-----------------|-------------|----|------------------|------|----|--|--|
| 乗数 | 接頭語 | 記号 | 乗数 | 接頭語 | 記号 | | |
| 10^{24} | э 9 | Y | 10 ⁻¹ | デシ | d | | |
| 10^{21} | ゼタ | Z | 10^{-2} | センチ | с | | |
| 10^{18} | エクサ | Е | 10^{-3} | ミリ | m | | |
| 10^{15} | ペタ | Р | 10^{-6} | マイクロ | μ | | |
| 10^{12} | テラ | Т | 10^{-9} | ナノ | n | | |
| 10^{9} | ギガ | G | 10^{-12} | ピコ | р | | |
| 10^{6} | メガ | M | 10^{-15} | フェムト | f | | |
| 10^{3} | キロ | k | 10^{-18} | アト | а | | |
| 10^{2} | ヘクト | h | 10^{-21} | ゼプト | Z | | |
| 10 ¹ | デ カ | da | 10^{-24} | ヨクト | у | | |

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

| | 51 租立单位 | | | | |
|---------------|-----------------------|------------|---------------------|---|--|
| 組立量 | 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 | |
| = - / | | 1 | | -1 (h) | |
| 半 面 角 | フジアン ニ | rad | | m • m *=1 (5) | |
| 立 体 角 | ステラジアン ^(a) | $sr^{(c)}$ | | $m^2 \cdot m^{-2} = 1^{(b)}$ | |
| 周 波 券 | ヘルツ | Hz | | s ⁻¹ | |
| 力 | ニュートン | Ν | | m•kg•s ⁻² | |
| 圧力,応力 | パスカル | Pa | N/m^2 | $m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$ | |
| エネルギー, 仕事, 熱量 | ジュール | J | N•m | $m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$ | |
| 工 率 , 放射 束 | ワット | W | J/s | $m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$ | |
| 電荷, 電気量 | クーロン | С | | s•A | |
| 電位差(電圧),起電力 | ボルト | V | W/A | $m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-1}$ | |
| 静電容量 | ファラド | F | C/V | $m^{-2} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$ | |
| 電気抵抗 | オーム | Ω | V/A | $m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-2}$ | |
| コンダクタンス | ジーメンス | S | A/V | $m^{-2} \cdot kg^{-1} \cdot s^3 \cdot A^2$ | |
| 磁東 | ウェーバ | Wb | V•s | $m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-1}$ | |
| 磁束密度 | テスラ | Т | Wb/m^2 | $kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-1}$ | |
| インダクタンス | ヘンリー | Н | Wb/A | $m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-2}$ | |
| セルシウス温度 | セルシウス度 ^(d) | °C | | K | |
| 光 束 | ルーメン | 1m | $cd \cdot sr^{(c)}$ | $m^2 \cdot m^{-2} \cdot cd = cd$ | |
| 照度 | ルクス | 1 x | 1m/m^2 | $m^2 \cdot m^{-4} \cdot cd = m^{-2} \cdot cd$ | |
| (放射性核種の)放射能 | ベクレル | Bq | | s ⁻¹ | |
| 吸収線量, 質量エネル | H L I | Cu | T/lea | 22 | |
| ギー分与, カーマ | | чy | J/ Kg | m•s | |
| 線量当量,周辺線量当 | | | | | |
| 量,方向性線量当量,個 | シーベルト | Sv | J/kg | $m^2 \cdot s^{-2}$ | |
| 人線重当重,組織線量当 | | | | | |

(a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもった量を区 別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作るときのいくつかの 用例は表4に示されている。

(b)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"1"は明示されない。
 (c)測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。

(d)この単位は、例としてミリセルシウス度m℃のようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

| 和立量 | SI 組立単位 | | | |
|--------------------------|-----------------------|-------------------------|--|--|
| 和工工里 | 名称 | 記号 | SI 基本単位による表し方 | |
| 粘度 | パスカル秒 | Pa•s | $m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-1}$ | |
| 力のモーメント | ニュートンメートル | N•m | $m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$ | |
| 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 | $m \cdot m^{-1} \cdot s^{-1} = s^{-1}$ | |
| 角 加 速 度 | ラジアン毎平方秒 | rad/s ² | $m \cdot m^{-1} \cdot s^{-2} = s^{-2}$ | |
| 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 | $m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$ | |
| 質量熱容量(比熱容量), 質量エントロピー | ジュール毎キログラム 毎ケルビン | J/(kg \cdot K) | $m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$ | |
| 質量エネルギー(比エネルギー) | ジュール毎キログラム | J/kg | $m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$ | |
| 熱 伝 導 率 | ワット毎メートル毎ケ ルビン | W/(m•K) | $\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} \cdot \mathbf{K}^{-1}$ | |
| 体積エネルギー | ジュール毎立方メート ル | J/m^3 | $m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$ | |
| 電界の強さ | ボルト毎メートル | V/m | $\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} \cdot \mathbf{A}^{-1}$ | |
| 体 積 電 荷 | クーロン毎立方メート ル | C/m^3 | m ⁻³ • s • A | |
| 電 気 変 位 | クーロン毎平方メート ル | C/m^2 | $m^{-2} \cdot s \cdot A$ | |
| 誘 電 率 | ファラド毎メートル | F/m | $m^{-3} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$ | |
| 透 磁 率 | ヘンリー毎メートル | H/m | $\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-2} \cdot \mathbf{A}^{-2}$ | |
| モルエネルギー | ジュール毎モル | J/mo1 | $m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot mo1^{-1}$ | |
| 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∕(mo1 ⋅ K) | $\mathbf{m}^2 \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-2} \cdot \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{mo1}^{-1}$ | |
| 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 | $m^2 \cdot s^{-3}$ | |
| 放 射 強 度 | ワット毎ステラジアン | W/sr | $m^4 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3} = m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$ | |
| 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 | |

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

_

| 名称 | 記号 | SI 単位による値 |
|------|------|---|
| 分 | min | 1 min=60s |
| 時 | h | 1h =60 min=3600 s |
| 日 | d | 1 d=24 h=86400 s |
| 度 | 0 | $1^{\circ} = (\pi / 180)$ rad |
| 分 | , | 1' = $(1/60)^{\circ}$ = $(\pi/10800)$ rad |
| 秒 | " | 1" = $(1/60)$ ' = $(\pi/648000)$ rad |
| リットル | 1, L | $11=1 \text{ dm}^3=10^{-3}\text{m}^3$ |
| トン | t | 1t=10 ³ kg |
| ネーパ | Np | 1Np=1 |
| ベル | В | 1B=(1/2)ln10(Np) |

| 表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位で 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 単位であらわされる数値 | | | | | |
| 電子ボルト | eV | $1eV=1.60217733(49) \times 10^{-19}J$ | | | | | |
| 統一原子質量単位 | u | 1u=1.6605402(10)×10 ⁻²⁷ kg | | | | | |
| 天 文 単 位 | ua | 1ua=1.49597870691(30)×10 ¹¹ m | | | | | |

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と

| 併用されるその他の単位 | | | | | | |
|-------------|------|-----|--|--|--|--|
| 名利 | F. | 記号 | SI 単位であらわされる数値 | | | |
| 海 | 里 | | 1 海里=1852m | | | |
| ノッ | F | | 1 ノット=1海里毎時=(1852/3600)m/s | | | |
| 7 – | ル | а | $1 \text{ a=} 1 \text{ dam}^2 = 10^2 \text{m}^2$ | | | |
| ヘクタ | - 1V | ha | $1 \text{ ha}=1 \text{ hm}^2=10^4 \text{m}^2$ | | | |
| バー | ル | bar | 1 bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 ⁵ Pa | | | |
| オングスト | ローム | Å | 1 Å=0. 1nm=10 ⁻¹⁰ m | | | |
| バー | ン | b | $1 \text{ b}=100 \text{ fm}^2=10^{-28} \text{m}^2$ | | | |

固有の名称を含むCGS組立単位 表 9 記号 SI 単位であらわされる数値 名称 I 1 erg=10⁻⁷ J 1 dyn=10⁻⁵N N ト erg ダ 1 ン dyn メポ 7 ズ Р 1 P=1 dyn • s/cm²=0.1Pa • s ス ス ŀ _ ク St 1 St $=1 \text{ cm}^2/\text{s}=10^{-4} \text{m}^2/\text{s}$ ガ ウ ス G 1 G ≙10⁻⁴T ステ ド エ ル ッ 0e1 Oe ≙(1000/4π)A/m ウ $\overrightarrow{}$ ク ス ル Mx 1 Mx ≙10⁻⁸Wb I ス チ ル ブ sb $1 \text{ sb} = 1 \text{ cd/cm}^2 = 10^4 \text{ cd/m}^2$ 朩 ŀ ph 1 ph=10⁴1x <u>Gal =1cm/s²=10⁻²m/s²</u> ガ ル Ga]

| 表10. 国際単位に属さないその他の単位の例 | | | | | | |
|------------------------|----|----|--------|------|---|--|
| 名称 | | | | 記号 | SI 単位であらわされる数値 | |
| キ | ユ | IJ | ĺ | Ci | 1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq | |
| $\scriptstyle u$ | ンコ | 、ゲ | \sim | R | $1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$ | |
| ラ | | | ド | rad | 1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy | |
| $\scriptstyle u$ | | | ム | rem | 1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv | |
| Х | 線 | 単 | 位 | | 1X unit=1.002×10 ⁻⁴ nm | |
| ガ | 2 | / | 7 | γ | $1 \gamma = 1 nT = 10^{-9}T$ | |
| ジ | ャン | スキ | 1 | Jу | $1 \text{ Jy}=10^{-26} \text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{Hz}^{-1}$ | |
| フ | 工 | ル | 111 | | 1 fermi=1 fm=10 ⁻¹⁵ m | |
| メートル系カラット | | | ット | | 1 metric carat = 200 mg = 2×10^{-4} kg | |
| ŀ | | | ル | Torr | 1 Torr = (101 325/760) Pa | |
| 標 | 進す | く気 | 圧 | atm | 1 atm = 101 325 Pa | |
| 力 | П | IJ | 1 | cal | | |
| 3 | カ | 17 | ~ | | $1 \dots -1 \dots -1 \dots -1 0^{-6} \dots$ | |