JAEA-Research
2014-022

JAEA-Research

# 硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解に伴う揮発性ルテニウム化学種の放出挙動の検討

Investigation of Release Behavior of Volatile Ruthenium Species from Thermal Decomposition of Ruthenium Nitrosylnitrate

阿部 仁　真崎 智郎　天野 祐希　内山 軍藏

Hitoshi ABE, Tomoo MASAKI, Yuki AMANO and Gunzo UCHIYAMA

安全研究・防災支援部門
安全研究センター
燃料サイクル安全研究ユニット

Fuel Cycle Safety Research Unit
Nuclear Safety Research Center
Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness

November 2014

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（http://www.jaea.go.jp）
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 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
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2014

JAEA-Research 2014-022

# 硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解に伴う揮発性ルテニウム化学種の放出挙動の検討

日本原子力研究開発機構　安全研究・防災支援部門　安全研究センター
燃料サイクル安全研究ユニット
阿部　仁、真崎 智郎※1、天野 祐希、内山 軍藏

(2014 年 9 月 11 日受理)

再処理施設における高レベル濃縮廃液の蒸発乾固事故時の安全性評価に資するため、廃液中に存在する放射性元素のなかで比較的揮発性が高い化学形をとる可能性がある Ru の放出挙動を検討した。Ru は、主に廃液の乾固の進行に伴って気相中へ放出されることが報告されている。本研究では、廃液の乾固段階における Ru の放出挙動を把握するため、乾固物中に存在すると予想される Ru 硝酸塩の熱分解に伴う Ru の放出割合を測定するとともに Ru の放出速度定数を導出した。この放出速度定数を用いて Ru 硝酸塩の昇温に伴う Ru の放出速度を計算したところ、模擬廃液を用いたビーカー規模の蒸発乾固実験で得られた Ru の放出挙動を矛盾なく再現できることを確認した。

原子力科学研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4
※1：技術開発協力員

JAEA- Research 2014-022

# Investigation of Release Behavior of Volatile Ruthenium Species from Thermal Decomposition of Ruthenium Nitrosylnitrate

Hitoshi ABE, Tomoo MASAKI※1, Yuki AMANO and Gunzo UCHIYAMA

Fuel Cycle Safety Research Unit
Nuclear Safety Research Center
Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 11, 2014)

To contribute safety evaluation of boiling and drying accident of high active liquid waste (HALW) in fuel reprocessing plant, release behavior of Ru, which would take relatively high volatile chemical form, as radioactive element in HALW has been investigated. It has been reported that release of Ru becomes conspicuous after HALW is dried up. In this work, to evaluate the release behavior of Ru, release ratio and release rate constant of Ru from thermal decomposition of Ru nitrate, which would be in the dried HALW, were measured and estimated. By applying the estimated constant, release rate of Ru from thermal decomposition of the nitrate was calculated. The calculation result could well agree with the result which was acquired from the beaker-scale boiling and drying experiment with simulated HALW.

Keywords : Nuclear Fuel Cycle Facility, Safety, HALW, Boiling and Drying, Ruthenium, Release, Thermal Decomposition, Ruthenium Nitrosylnitrate

---

※1 : Collaborating Engineer

# 目　次

1. 緒言 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1
2. 試験 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2
2.1 試験装置 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2
2.2 試験方法 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
3. 試験結果及び考察 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
3.1 Ru の気相への放出割合 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
3.2 放出された Ru 化学種の推定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 6
3.3 Ru 放出速度定数の適用性の検討 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 7
4. 結言 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 10
謝辞 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 11
参考文献 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 11

# Contents

1. Introduction ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1
2. Experimental ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2
2.1 Apparatus ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2
2.2 Experimental method ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
3. Results and discussion ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
3.1 Release ratio of Ru ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
3.2 Estimation of released Ru compound ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 6
3.3 Investigation of applicability of release rate constant of Ru ・・・・・・・・・・ 7
4. Conclusion ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 10
Acknowledgment ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 11
References ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 11

This is a blank page.

# 1．緒　言

再処理施設では、様々な化学形態及び物理形態の放射性物質を取扱う。溶液状の放射性物質の大半は、高レベル濃縮廃液（以下、廃液という。）として高レベル濃縮廃液貯槽に集中して存在している[1)]。再処理施設においては、外部電源が喪失した場合でも施設・設備は停止することから、基本的には事故事象への進展の可能性は低いと考えられる。しかしながら、廃液中には多量の放射性物質が溶存しており、それらの崩壊熱によって廃液の温度上昇と、さらに、何らかの理由により有効な対策を講ずることができなかった場合には、蒸発及び乾固が引き起こされ、放射性物質が放出される恐れがある。この蒸発乾固事故は、再処理施設に対する新規制基準において、新たに重大事故として定義された。規制基準適合性を判断する観点からも、重大事故時の放射性物質の放出・移行挙動評価に係る定量的なデータの必要性はますます高まっている。

廃液中に溶存するルテニウム化学種（硝酸ニトロシルルテニウムとして溶存していると考えられる。以下、ルテニウムを「Ru」という。）は、蒸発乾固の過程で、揮発性を有する四酸化ルテニウム（以下、「$RuO_4$」という。）に酸化され、廃液から気相中へ放出される。Ruは廃液が沸騰している段階から放出され始めるが、特に、廃液の沸騰が終了し乾固する段階（田代らが行った高レベル濃縮模擬廃液を用いた加熱試験では、模擬廃液温度が約140℃に到達した段階で乾固に至ったとしている[2)]。）においてその放出が顕著となる[2)3)4)]。例えば、後者の温度領域でのRuの放出割合は、他の難揮発性物質の値と比べて、3桁程大きいと報告されている[2)3)]。このためRuは、公衆への影響評価上、重要な元素であると考えられる。

廃液が沸騰し乾固に至る前の段階、特に沸騰の晩期では、Ruは、廃液中で濃縮され高い濃度となった硝酸水溶液中に溶存するため、その硝酸の酸化力によって$RuO_4$に酸化され、硝酸蒸気に同伴して放出されるとの報告がある[5)]。一方、廃液が乾固した段階では、乾固物中に自由に存在する硝酸は既に蒸発しているため、この段階でのRuの顕著な放出に対しては、硝酸による酸化以外の機構が作用している可能性があるものと考えられる。Amanoらは、高レベル濃縮廃液中に溶存する各元素硝酸塩の昇温に伴う熱分解挙動を観察しており、単独の固体状の硝酸ニトロシルルテニウムは、150℃以上の温度領域で熱分解すると報告している[3)]。この熱分解開始温度では廃液は乾固していると考えられるため、乾固段階でのRuの顕著な放出は、硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解の過程において$RuO_4$が生成されるこ

とに起因する可能性があるとも考えられる。しかしながら、Ruの放出挙動を硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解反応と直接関連付けて検討した報告はない。

(独)日本原子力研究開発機構では、平成21年度から平成25年度まで、旧(独)原子力安全基盤機構（現原子力規制庁）と日本原燃（株）との共同研究として、高レベル濃縮廃液の蒸発乾固に伴う放射性物質の放出・移行挙動データの取得及び整理を行ってきた。この研究の一部として、硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解に伴ってRuの放出が引き起こされる可能性を検討した。本報では、乾固した廃液状態を模擬するため、固体状の硝酸ニトロシルルテニウムを一定温度で加熱して熱分解反応を生じせしめ、その過程でのRuの放出挙動を観察した結果について報告する。

## 2．試　験

### 2.1 試験装置

図 1 に試験装置の概要を示す。雰囲気ガスの温度・流量コントローラー、雰囲気ガスを加熱し石英製反応容器に供給する加熱ヒーター、試料を設置する石英製反応容器（内径 15 mm、高さ 10 mm）、試料から放出された Ru を回収するためのガス吸収瓶等からなる。

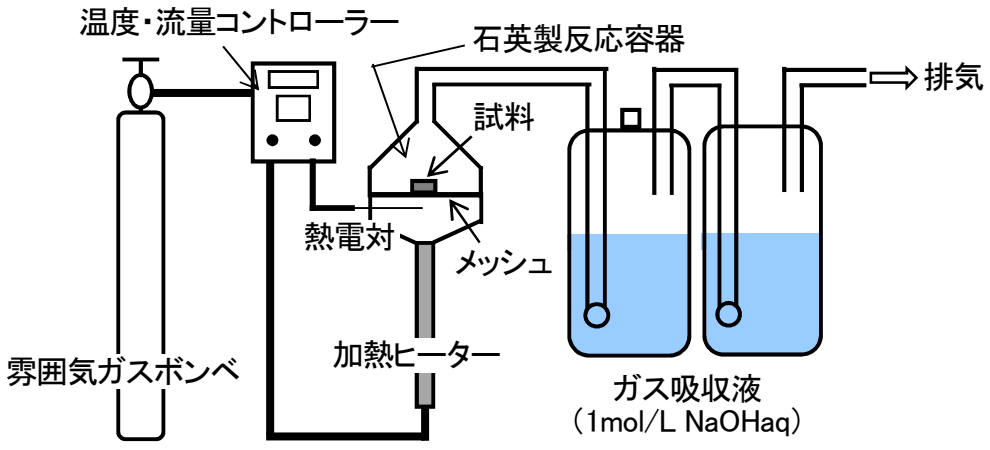


図 1　試験装置の概要

2.2 試験方法

約 0.1 g の固体状の硝酸ニトロシルルテニウム（レアメタリック製　特級試薬）を試料としてアルミ試料皿（13 mmϕ×3.5mmH）に分取し反応容器に設置した。反応容器内の試料の直下に設置された熱電対で雰囲気ガスの温度を測定するとともに、その情報を温度・流量コントローラーにフィードバックすることによって加熱ヒーター温度を制御し、雰囲気ガスの温度を一定値で制御した。加熱ヒーターによって加熱した雰囲気ガスを、試料を内部に設置した石英製反応容器の底面から上向きに供給し、試料を加熱した。硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解反応への酸素の影響を防止するため、雰囲気ガスとして窒素（以下、「$N_2$」という。）ガスを用いた。雰囲気ガス流量は、試料の舞い上がり等がないことを確認した上で 5　L/min とした。反応容器の容積に比して大きな流量としたのは、試料中に生成した揮発性 Ru 化学種を可能な限り速やかにガス吸収液にて回収するためである。試料から放出された Ru を雰囲気ガスと共に反応容器の後段に設置したガス吸収液（1 mol/L NaOHaq）中に導入して吸収させた。任意の時間毎にガス吸収液を一定量サンプリングし、それぞれのサンプル溶液中の Ru 存在量を ICP-MS を用いて定量した。

## 3．試験結果及び考察

3.1 Ru の気相への放出割合

Ru の気相への放出割合の経時変化を図 2 に示す。ここで放出割合とは、試料中の初期 Ru 量に対する各サンプル溶液中の Ru 存在量の比を意味する。Ru の放出割合は、各加熱温度ともに、加熱開始後から直線的に増加し、一定値に漸近する傾向を示した。放出割合が直線的に増加する領域に着目すると、その放出割合の増加率（すなわち直線近似した傾き）は、加熱温度が高くなるにしたがって大きくなることがわかる。このことは、Ru の放出挙動は、雰囲気ガスによって及ぼされる鉛直上方向への物理的な作用ではなく、硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解反応のような化学反応と関係づけられることを示唆している。

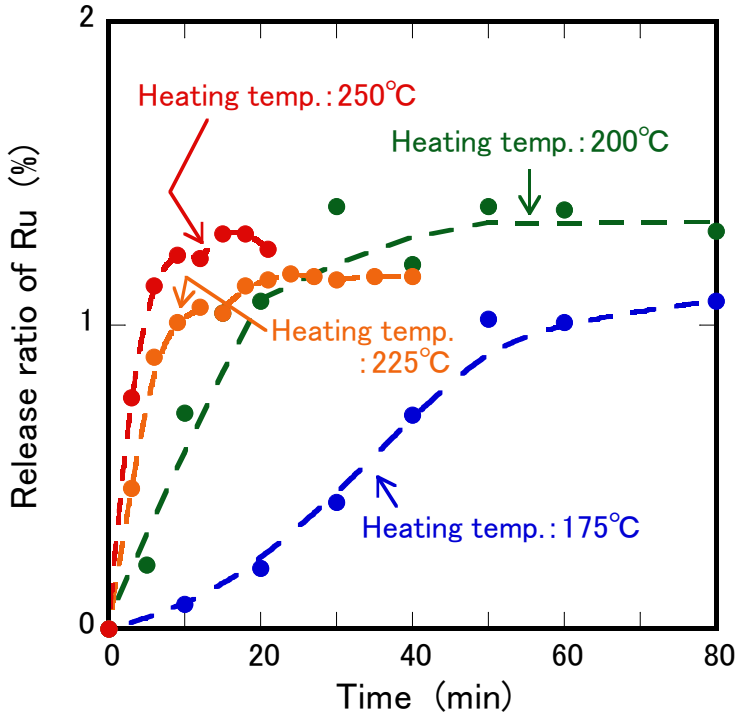


図 2　Ru の放出割合に対する加熱温度の影響

図 2 において、放出割合が増加する領域では、各加熱温度条件ともに放出割合はほぼ直線的に増加している。そこで、試料から気相部への Ru の放出挙動が以下に示すような一次反応に従うと仮定し、図 2 に示した測定結果を用いて、Ru の放出速度定数を導出した。

$$X = \frac{M_{Ru,0} - M_{Ru,i}}{M_{Ru,0}} = \exp\left(-kt_i\right) \quad (1)$$

$$k = A\exp\left(\frac{-Ea}{RT}\right) \quad (2)$$

ここで、$M_{Ru,}$ (mol)は反応系内の全反応量（全 Ru 放出量と仮定）、$M_{Ru,i}$ (mol)は $t_i$ 時間までの Ru 放出量、k (1/s)は Ru 放出速度定数 、Ea (J/mol)及び A (1/s)は活性化エネルギー及び頻度因子、R (J/K・mol)は気体定数、T (K)は温度である。また、X で表記したコンバージョンファクタは、反応の進行度合いを示すファクタである。(1)式を用いて各加熱温度条件の X を計算し時間に対してプロットした。結果を図 3 に示す。各加熱温度条件ともに、図 2 中の放出割合がほぼ直線的に増加する時間帯では、X は指数関数的に減少した。この時間帯での X の減少割合から k を導出し lnk を 1/T に対してプロットした。結果を図 4 に示す。両者間にほぼ直線的な関係を見出すことができた。(2)式より Ru の放出に係る Ea と A は、76.9　(kJ/mol)及び $2.99\times10^5$ (1/s)と導出することができた。

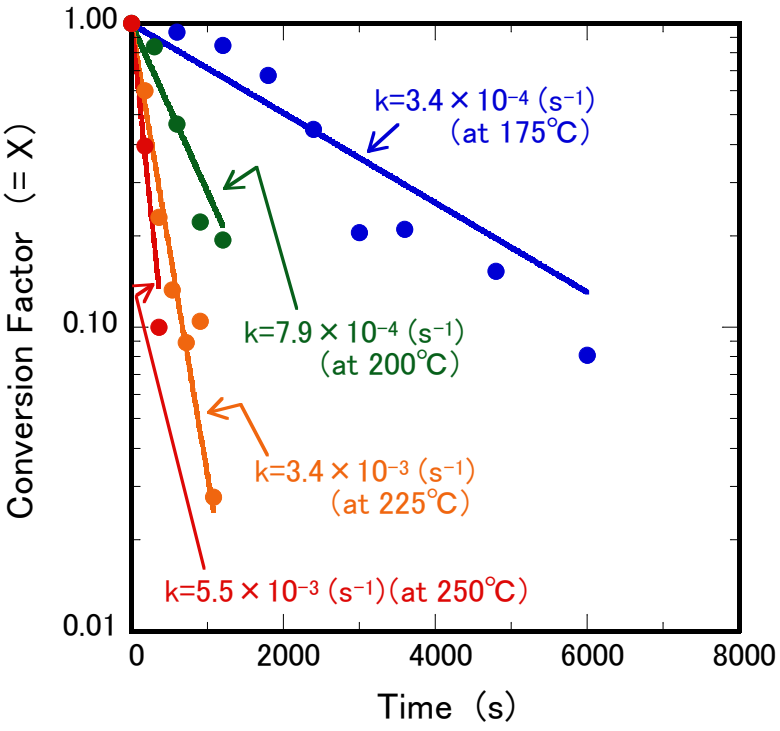


図 3　Ru 放出速度定数（k）の評価結果

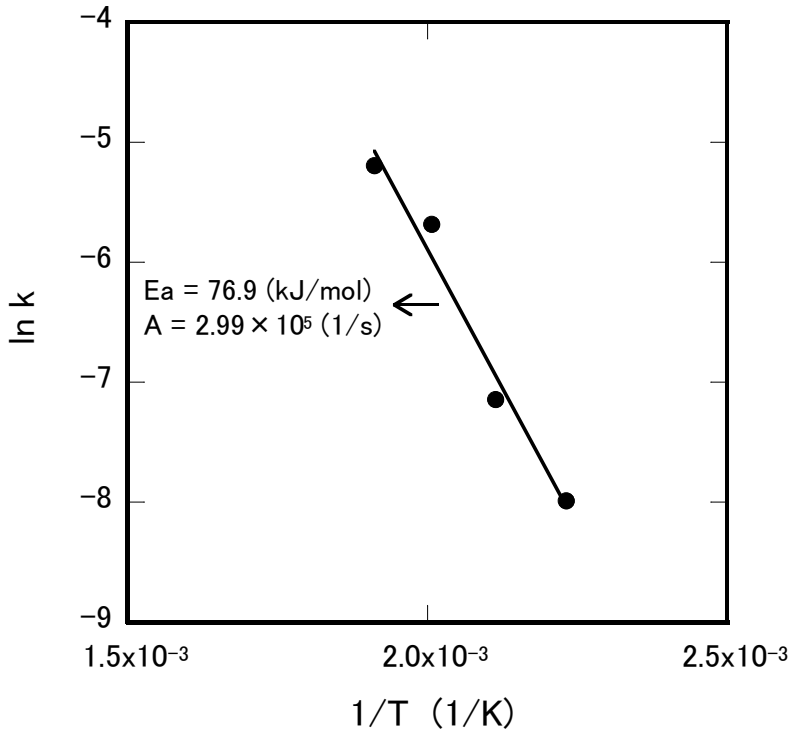


図 4　Ru 放出に係る活性化エネルギー（Ea）及び頻度因子（A）の評価結果

3.2 放出されたRu化学種の推定

上述のようにAmanoら[3]によると、硝酸ニトロシルルテニウムは150℃以上の温度で熱分解し、最終的には非揮発性の$RuO_2$となる。図2の結果は、熱分解の過程で、$RuO_2$の生成と並行して揮発性のRu化学種も生成することを示唆している。$RuO_2$は安定な化合物であるため、$RuO_2$の酸化あるいは還元反応による揮発性Ru化学種の生成は考えられない。そのため揮発性Ru化学種は、硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解によって直接生成したものと考えられる。Ru化学種のうち、高い揮発性を有する$RuO_4$は、$(RuO_4)^{2-}$のイオン形に還元されアルカリ溶液に吸収される[6]。本報でも、硝酸ニトロシルルテニウムから放出された揮発性Ru化学種を水酸化ナトリウム水溶液に吸収させることでRuの放出割合の経時変化を評価している。石英製反応容器内壁及び同容器からガス吸収液間の配管内壁へのRu沈着、また、ガス吸収液中での不溶解性黒色粒子（$RuO_2$）が認められず、放出されたRuのすべてがガス吸収液中に溶解していたことを考慮すると、硝酸ニトロシルルテニウムから放出した揮発性Ru化学種は$RuO_4$であったと考えることができる。

$RuO_4$は非常に強い酸化剤であるため、雰囲気に還元性の物質が存在する場合には、$RuO_4$は速やかに非揮発性の$RuO_2$に還元され、放出割合は低下するものと予想される。そこで、硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解によって$RuO_4$が生成することを確認するため、還元性ガスである一酸化窒素（以下、「NO」という。）ガスを$N_2$ガスに含有させた雰囲気ガスを用いることでRuの放出挙動を観察した。

図5にRuの放出割合に対する雰囲気中のNO濃度の影響を示す。これは、硝酸ニトロシルルテニウムを200℃一定温度で加熱した結果である。Ruの放出割合はNO濃度の増大に従って低下した。この結果は、NOの存在によって、硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解の過程での$RuO_4$の生成が抑えられたことを意味している。なお、$RuO_4$は還元あるいは熱分解すると$RuO_2$に変化するが、$RuO_2$は本報で用いたガス吸収液には溶解しないため、NOの存在によってRuの放出が抑えられた原因としては、NOが$RuO_4$の生成に直接影響したためではなく、放出された$RuO_4$が気相中でNOにより$RuO_2$に還元されたためである可能性もある。しかしながら、石英製反応容器内壁、同容器からガス吸収液間の配管内壁及びガス吸収液中には、$RuO_2$と考えられる黒色粒子が認められなかったことから、後者の可能性は低いと考えている。このようにRuの放出割合がNOの存在に依存して低下することは、硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解に伴って$RuO_4$が生成することを間接的に裏付けていると解釈できる。

図 2 では、温度によって多少ばらつきは見られるが、Ru の放出割合はほぼ 1～1.2%程度に漸近（以下、「最大放出割合」という。）していくことがわかった。上述のように本報では、試料中に生成した $RuO_4$ を可能な限り速やかにガス吸収液にて回収するために雰囲気ガス流量を比較的大きな値とした。仮に、目的の通り生成した $RuO_4$ をガス吸収液で回収できたと仮定すれば、硝酸ニトロシルルテニウム中の Ru 量に対する $RuO_4$ の生成割合が 1～1.2%程度であったと考えることもできるが、この点については、雰囲気ガス流量をパラメータとした試験を実施するなどして詳細に確認するべき課題であると考えている。

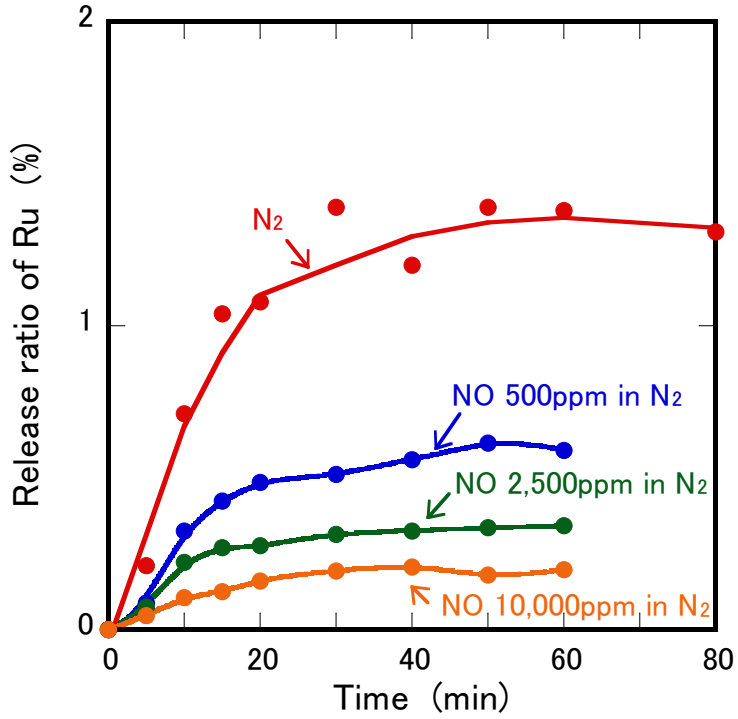


図 5　Ru の放出割合に対する共存 NO 濃度の影響

3.3 Ru 放出速度定数の適用性の検討

3.1 節にて Ru の放出速度定数を導出した。この放出速度定数は、様々な仮定やフィッティング等を経て導出された値ではあるが、この値を適用することで廃液乾固物の熱分解に伴う Ru の放出挙動を見積もることができれば、施設の安全性の確認に対して有効な知見であると考えられる。そこで本節では、導出した Ru 放出速度定数を用いて廃液乾固物の昇温に伴う Ru 放出速度を計算し、得られた計算結果を文献値と比較することで、Ru の放出挙動評価に対する導出した放出速度定数の適用性を検討した。

図 6 に示した計算フローによって、Ru の放出速度の温度変化を計算した。

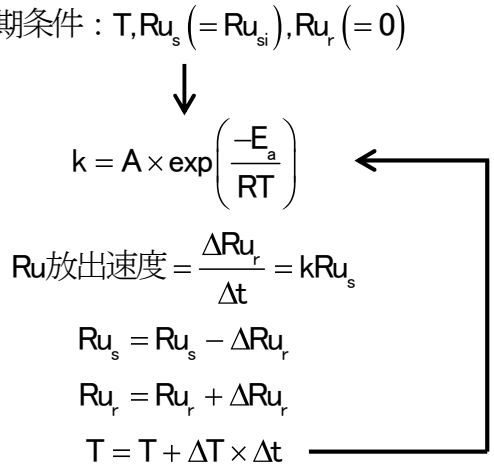


図 6　硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解に伴う Ru 放出速度の試計算フロー

図 6 において、$Ru_s$ (mol)は固体状 Ru モル数（添字 i：初期値の意味）、$Ru_r$ (mol)は気相への Ru の放出モル数、$\Delta Ru_r$ (mol)は$\Delta t$ 間の Ru 移行モル数、$\Delta t$ (s)は計算タイムステップ、$\Delta T$ (K/s)は昇温速度（ここでは 1 K/min と仮定し換算した）、T (K)は乾固物（硝酸ニトロシルルテニウム）温度である。この計算フローでは、試料中に含有する Ru 初期量に Ru の最大放出割合を乗ずることで、あらかじめ放出に寄与する Ru 量（= $Ru_{si}$）を計算開始時に設定している。なお、図 2 に示したそれぞれの放出割合が直線的に増加する領域での放出割合の増加率（すなわち直線近似した傾き）から導出した Ea 及び A を適用しており、放出速度定数の導出には最大放出割合の情報は反映されていない。そのため、Ru の最大放出割合を計算することはできない。また、各タイムステップにおける Ru の放出速度は、そのステップにおける Ru 存在量（=$Ru_s$）に k を乗じて計算するため、各タイムステップにおける Ru の放出速度の計算値は最大放出割合の設定値に依存する。たとえば計算で想定した Ru の最大放出割合が実際の事故時の値よりも大きかった（すなわち Ru の放出割合を過大に評価した）場合には Ru の放出速度は大きく計算される。この計算フローを事故解析に適用する場合にはこれらの点に注意する必要がある。ただし、Ea と A から計算される k は T のみに依存するため、Ru の放出が開始する温度は、Ru の最大放出割合設定値に依存せず計算される。

廃液乾固物の昇温に伴う Ru の放出挙動を試計算した結果を図 7 に示す。田代ら [2]は、ビーカー規模の試験装置を用いて、高レベル濃縮廃液の組成を参考にして調整した模擬廃液 100 mL

を 300℃まで加熱し、沸騰・乾固段階からの Ru 等の放出挙動を観察している。そこで、ここでは、この模擬廃液組成から推定した、模擬廃液 100 mL 中に存在する Ru 量（$9.1\times10^{-3}$ mol）に最大放出割合として 1.16%（図 2 における各加熱温度条件における Ru 最大放出割合平均値）を乗じた値を $Ru_{si}$ とすることとした。図 7 では、Ru の放出速度は 100℃過ぎから増大し始めるとともに 150℃付近から顕著となり、200℃付近で最大を示した後低下していき、250℃付近でほぼゼロとなるという結果となった。田代らの報告では、模擬廃液試料は約 140℃で乾固し、Ru の積算放出割合は約 200℃まで増大し（田代らは加熱から約 50 分後と述べている。田代らが示した模擬廃液試料の温度履歴の図からは、この時間における温度は約 200℃と読み取れる。）、その後低下すると述べている。Ru の放出は廃液の乾固段階から顕著となることを考慮すると、図 7 に示した Ru の放出速度計算結果は、田代らの試験結果と矛盾しない。

このように、本報で得られた Ea 及び A を適用することで、定性的ではあるが、模擬廃液の熱分解に伴う Ru の放出挙動を推定することができることがわかった。一方でこれらの値は、硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解反応機構に踏み込んで求めた値ではなくいわば見かけ上の値であると言える。硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解反応と Ru の放出挙動を定量的に関連付けて解釈するためには、量論的考察に踏み込んださらなる検討が必要と考える。また、高レベル濃縮廃液中には、様々な元素の硝酸塩が溶存しているため、廃液中の硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解挙動自身も、他元素硝酸塩の挙動に影響を受けることも予想される。したがって、廃液乾固物の昇温に伴う Ru の放出挙動を検討するためには、廃液乾固物を用いた試験を行い、データを取得する必要があるものと考えられる。ここで求めた Ea 及び A を適用して Ru 放出挙動を評価する場合には、これらの点を十分考慮する必要がある。

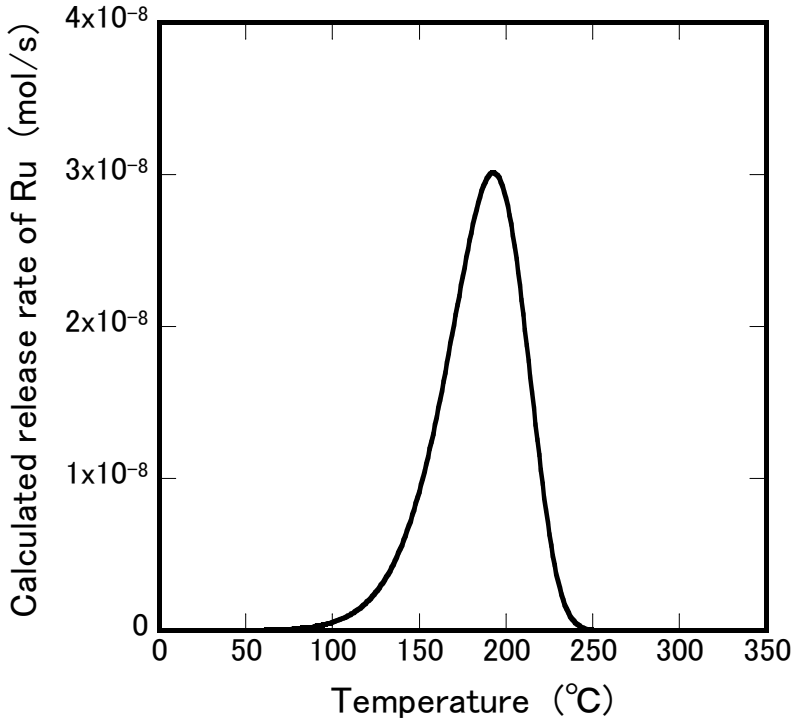


図 7　導出した Ru 放出速度定数を適用した模擬廃液の蒸発乾固試験結果解析

## 4. 結　言

再処理施設における高レベル濃縮廃液の蒸発乾固事故時の安全性評価に資するため、廃液中に存在する放射性元素のなかで比較的揮発性が高い化学形をとる可能性がある Ru の放出挙動を検討した。

Ru は、廃液が乾固した状態において放出が顕著となることが報告されている。本報では、廃液乾固物中に存在する Ru 硝酸塩を模擬した固体状の硝酸ニトロシルルテニウムを一定温度の雰囲気ガスで加熱し Ru の放出挙動を観察した。その結果、硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解に伴って Ru の放出が引き起こされる可能性を示すことができた。また、見かけ上の Ru の放出速度定数を導出し、これを適用することで、高レベル濃縮廃液の模擬廃液を用いた加熱試験で得られた Ru の放出挙動を大きな矛盾なく計算できることを示した。

本報で導出した Ru の放出速度定数は、硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解反応機構に踏み込んで求めた値ではなくいわば見かけ上の値であると言える。硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解反応と Ru の放出挙動を定量的に関連付けて解釈するためには、量論的考察に踏

み込んださらなる検討が必要と考える。また、高レベル濃縮廃液中には、様々な元素の硝酸塩が溶存しているため、廃液中の硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解挙動自身も、他元素硝酸塩の挙動に影響を受けることも予想される。廃液乾固物を用いた試験を行い、データを取得する必要があるものと考えられる。

## 謝　辞

本研究の実施に際し、ご協力及びご助言を頂いた「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」関係者の皆様、(有)ジェステクノシステム 渡邊 浩二様に感謝いたします。

## 参考文献

1) 日本原燃株式会社、”東京電力株式会社福島第一原子力発電所における事故を踏まえた六ヶ所再処理施設の安全性に関する総合的評価に係る報告書（使用前検査期間中の状態を対象とした評価）（http://www.jnfl.co.jp/press/pressj2012/pr120427-1.html）”、(2012 年 4 月 27 日).

2) 田代信介、松本哲也、片岡 修他、” 再処理施設における放射性物質の移行挙動に関する研究 (4)コールド基礎試験 (その 1) 模擬廃液を用いた ARF 測定試験”、日本原子力学会 2012 年秋の大会、E34 (2012.9).

3) Y.Amano, S.Tashiro, G.Uchiyama, H.Abe, Y.Yamane, K.Yoshida And T. Kodama, “Study on Release and Transport of Aerial Radioactive Materials in Reprocessing Plant”, Proceeding of GLOBAL 2013 (2013.9).

4) M. Philippe, J.P. Mercier, J.P. Gue, "Behavior of Ruthenium in the Case of Shutdown of the Cooling System of HLLW Storage Tanks," Proc. of 21th DOE/NRC Nucl. Air Cleaning Conf., San Diego, CA, Aug., 1990, NUREG/CP-0116, Vol 2, pp.831-843, (1990).

5) A. Sasahira, T. Hoshikawa, M. Kamoshida et al., "Transfer of Ruthenium from a Simulated Reprocessing Solution to Gas Phase during a Continuous Distillation," J.

Nucl. Sci. Technol., 33[10], pp.753-757 (1996).

6) Robert E. Connick and C. Robert Hurley, “Chemistry of Ru(VI), -(VII) and –(VIII). Reactions, Oxidation Potentials and Spectra”, J.Am.Chem.Soc., 74, pp.5012-5015 (1952).

# 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 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 | キログラム毎立法メートル | $kg/m^3$ |
| 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/$m^3$ | $m^{-3}$ sA |
| 表面電荷 | クーロン毎平方メートル | C/$m^2$ | $m^{-2}$ sA |
| 電束密度，電気変位 | クーロン毎平方メートル | C/$m^2$ | $m^{-2}$ sA |
| 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 | $kg^{-1}$ sA |
| 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 | 接頭語 | 記号 | 乗数 | 接頭語 | 記号 |
|---|---|---|---|---|---|
| $10^{24}$ | ヨタ | Y | $10^{-1}$ | デシ | d |
| $10^{21}$ | ゼタ | Z | $10^{-2}$ | センチ | c |
| $10^{18}$ | エクサ | E | $10^{-3}$ | ミリ | m |
| $10^{15}$ | ペタ | P | $10^{-6}$ | マイクロ | μ |
| $10^{12}$ | テラ | T | $10^{-9}$ | ナノ | n |
| $10^{9}$ | ギガ | G | $10^{-12}$ | ピコ | p |
| $10^{6}$ | メガ | M | $10^{-15}$ | フェムト | f |
| $10^{3}$ | キロ | k | $10^{-18}$ | アト | a |
| $10^{2}$ | ヘクト | h | $10^{-21}$ | ゼプト | z |
| $10^{1}$ | デカ | da | $10^{-24}$ | ヨクト | y |

表６．SIに属さないが、SIと併用される単位

| 名称 | 記号 | SI 単位による値 |
|---|---|---|
| 分 | min | 1 min=60s |
| 時 | h | 1h =60 min=3600 s |
| 日 | d | 1 d=24 h=86 400 s |
| 度 | ° | 1°=(π/180) rad |
| 分 | ’ | 1’=(1/60)°=(π/10800) rad |
| 秒 | ” | 1”=(1/60)’=(π/648000) rad |
| ヘクタール | ha | 1ha=1$hm^2$=$10^4m^2$ |
| リットル | L, l | 1L=1l=1$dm^3$=$10^3cm^3$=$10^{-3}m^3$ |
| トン | t | 1t=$10^3$ 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 | 1eV=1.602 176 53(14)×$10^{-19}$J |
| ダルトン | Da | 1Da=1.660 538 86(28)×$10^{-27}$kg |
| 統一原子質量単位 | u | 1u=1 Da |
| 天文単位 | ua | 1ua=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=100kPa=$10^5$Pa |
| 水銀柱ミリメートル | mmHg | 1mmHg=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=100$fm^2$=($10^{-12}$cm)2=$10^{-28}m^2$ |
| ノット | kn | 1 kn=(1852/3600)m/s |
| ネーパ | Np | SI単位との数値的な関係は、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 =1$cm^2$ $s^{-1}$=$10^{-4}m^2$ $s^{-1}$ |
| スチルブ | sb | 1 sb =1cd $cm^{-2}$=$10^4$cd $m^{-2}$ |
| フォト | ph | 1 ph=1cd sr $cm^{-2}$ $10^4$lx |
| ガル | Gal | 1 Gal =1cm $s^{-2}$=$10^{-2}ms^{-2}$ |
| マクスウェル | 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(c) | Oe | 1 Oe≙ ($10^3$/4π)A $m^{-1}$ |

(c) ３元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≙ 」は対応関係を示すものである。

表10．SIに属さないその他の単位の例

| 名称 | 記号 | SI 単位で表される数値 |
|---|---|---|
| キュリー | Ci | 1 Ci=3.7×$10^{10}$Bq |
| レントゲン | R | 1 R = 2.58×$10^{-4}$C/kg |
| ラド | rad | 1 rad=1cGy=$10^{-2}$Gy |
| レム | rem | 1 rem=1 cSv=$10^{-2}$Sv |
| ガンマ | γ | 1 γ =1 nT=10-9T |
| フェルミ | | 1フェルミ=1 fm=10-15m |
| メートル系カラット | | 1メートル系カラット = 200 mg = 2×10-4kg |
| 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 | 1cal=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年改訂）