

気体状四酸化ルテニウムの化学形変化挙動に与える 窒素酸化物の影響

Effect of Nitrogen Oxides on Decomposition Behavior
of Gaseous Ruthenium Tetroxide

吉田 尚生 天野 祐希 大野 卓也 吉田 涼一朗
阿部 仁

Naoki YOSHIDA, Yuki AMANO, Takuya ONO, Ryoichiro YOSHIDA
and Hitoshi ABE

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ディビジョン

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

December 2020

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Research

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 (<https://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, 2020

気体状四酸化ルテニウムの化学形変化挙動に与える窒素酸化物の影響

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ディビジョン

吉田 尚生、天野 祐希、大野 卓也、吉田 涼一朗、阿部 仁⁺

(2020年9月24日受理)

使用済核燃料の再処理施設における高レベル濃縮廃液の蒸発乾固事故を考慮した場合、ルテニウムは揮発性の化合物を形成し、廃液中の放射性元素の中で比較的高い放出割合となりうる重要な元素である。本研究では、蒸発乾固事故に対する安全性評価に資することを目的として、気体状四酸化ルテニウム ($\text{RuO}_4(\text{g})$) の化学形変化挙動に与える窒素酸化物 (NO_x) の影響を実験的に評価した。その結果、 $\text{RuO}_4(\text{g})$ の分解速度は一酸化窒素や二酸化窒素を添加しない場合よりも添加した場合の方が遅く、これらの NO_x は $\text{RuO}_4(\text{g})$ を安定化する事が明らかになった。また、安定化効果は二酸化窒素の方が高かった。

本報告書は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受託事業「平成 30 年度原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等）事業」における研究成果の一部を含む。

原子力科学研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2-4

+安全研究センター

Effect of Nitrogen Oxides on Decomposition Behavior of Gaseous Ruthenium Tetroxide

Naoki YOSHIDA, Yuki AMANO, Takuya ONO, Ryoichiro YOSHIDA and Hitoshi ABE⁺

Fuel Cycle Safety Research Division, Nuclear Safety Research Center

Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness

Japan Atomic Energy Agency

Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 24, 2020)

Considering the boiling and drying accident of high-level liquid waste in fuel reprocessing plant, Ruthenium (Ru) is an important element. It is because Ru would form volatile compounds such as ruthenium tetroxide (RuO_4) and could be released into the environment with other coexisting gasses such as nitric oxides (NO_x) such as nitric oxide (NO) and nitrogen dioxide (NO_2). To contribute to the safety evaluation of this accident, we experimentally evaluated the effect of NO_x on the decomposition and chemical change behavior of the gaseous RuO_4 ($\text{RuO}_4(\text{g})$). As a result, the $\text{RuO}_4(\text{g})$ decomposed over time under the atmospheric gasses with NO or NO_2 , however, the decomposition rate was slower than the results of experiments without NO_x . These results showed that the NO_x stabilized $\text{RuO}_4(\text{g})$.

Keywords : Nuclear Fuel Cycle Facility, Boiling and Drying, Ruthenium, Ruthenium Tetroxide, Severe Accident

This work includes the experimental results under the auspices of the Nuclear Regulation Authority.

+ Nuclear Safety Research Center

目次

1. 緒言	1
2. 試験	2
2.1. 試験装置	2
2.2. 試験条件	4
2.3. 試験方法	9
2.4. 試験データの解析手法	9
3. 結果	10
3.1. NO の影響	10
3.2. NO ₂ の影響	13
3.3. 水蒸気を含む条件下での NO の影響	15
3.4. 水蒸気を含む条件下での NO ₂ の影響	17
3.5. NO ₂ 及び硝酸含有水蒸気を含む気相中での RuO ₄ (g) の挙動	19
3.6. NO・NO ₂ 及び硝酸含有水蒸気を含む気相中での RuO ₄ (g) の挙動	23
4. 考察	27
4.1. NO _x 及び水蒸気を含む気相中での RuO ₄ (g) の分解挙動	27
4.2. NO _x の化学当量と RuO ₄ (g) の安定化効果の関係	29
5. 結言	31
謝辞	31
参考文献	31

Contents

1. Introduction	1
2. Materials and methods	2
2.1. Experimental apparatus	2
2.2. Experimental conditions	4
2.3. Experimental procedure	9
2.4. Analytical method for spectrum of obtained UV/Vis measurement	9
3. Results.....	10
3.1. Decomposition behavior of RuO ₄ (g) in NO containing air	10
3.2. Decomposition behavior of RuO ₄ (g) in NO ₂ containing air	13
3.3. Decomposition behavior of RuO ₄ (g) in NO and H ₂ O vapor containing air	15
3.4. Decomposition behavior of RuO ₄ (g) in NO ₂ and H ₂ O vapor containing air.....	17
3.5. Decomposition behavior of RuO ₄ (g) in NO ₂ and H ₂ O+HNO ₃ vapor containing air.....	19
3.6. Decomposition behavior of RuO ₄ (g) in NO, NO ₂ and H ₂ O+HNO ₃ vapor containing air	23
4. Discussion.....	27
4.1. Effect of NO _x on decomposition behavior of RuO ₄ (g)	27
4.2. Relationship between decomposition behavior of RuO ₄ (g) and chemical equivalent of NO _x	29
5. Conclusion.....	31
Acknowledgment	31
References.....	31

1. 緒言

再処理施設内には、使用済核燃料に由来する様々な放射性物質が存在する。特に溶液状の放射性物質は、高レベル濃縮廃液貯槽内の廃液（High Level Liquid Waste : HLLW）中に集中して存在している¹⁾。HLLW中に含まれる放射性物質から崩壊熱が生じるため、再処理施設では昇温防止のために貯槽内のHLLWを常に冷却しているが、何らかの原因によってこの冷却機能が長期間に渡って喪失した場合には、HLLWの蒸発・乾固が生じ、廃液中の放射性物質の放出が引き起こされる可能性がある^{2,3)}。

この事象は、「使用済燃料の再処理の事業に関する規則⁴⁾」において、「使用済燃料から分離された物であって液体状のもの又は液体状の放射性廃棄物を冷却する機能が喪失した場合にセル内において発生する蒸発乾固」（以下、「蒸発乾固事故」と表記）として重大事故の1つに定義されていることから、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整備が必要である。

蒸発乾固事故研究としては、Philippeらの研究⁵⁾の他、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」と表記）においても本事象を模擬したHLLWの加熱試験を行い、HLLWの蒸発と乾固に伴う放射性物質の気相への移行割合を評価している⁶⁾。これらの試験結果において、ルテニウム（Ru）は他の元素よりも高い割合で放出されているが、この原因はHLLW中のRuが揮発性の化合物を形成するためであると考察されている。比較的安定なRuの放射性同位体としては、¹⁰⁶Ru（半減期 373.59 日）及び¹⁰³Ru（半減期 39.26 日）があり、蒸発乾固事故時において施設外に放出された場合、公衆に対する被ばく線量を評価する上で重要な元素である。

既知の揮発性Ru化合物としては、四酸化ルテニウム（RuO₄）が知られている。金属Ruが空気中で加熱されて生じる主な揮発性Ru化合物はRuO₄(g)であるとの報告⁷⁾がある他、硝酸ニトロシルRuを加熱した際に、RuO₄に相当する質量数のイオンが観測されたとの報告がある⁸⁾。一方で、RuO₄は反応性に富む物質⁹⁾であることから、HLLWのガラス固化における煅焼プロセスに関する研究^{10,11)}や、既往の蒸発乾固事故に関する研究¹²⁾では、RuO₄の他に気体状ニトロシルルテニウム化合物（RuNO(g)）が生じているとの考察がある^{6,13)}。このことから、①蒸発乾固事故時の気体状Ruの化学形は何か、②気体状Ruが分解し気相から除かれる速度はどの程度か、の2点について、未だ情報が不足した状態にある。このような状況を踏まえ、蒸発乾固事故で生じる放射性物質の移行挙動を評価する上では、気体状Ruの化学形変化の挙動を明らかにすることが重要であると考えられる。

原子力機構では、蒸発乾固事故における揮発性 Ru 化合物の移行挙動に関する試験として、「Ru 気相反応試験」を行ってきた^{12),14),15)}。これらの報告では、気体状 RuO₄ (RuO₄(g)) は、乾燥空气中や水蒸気中では温度に応じて分解するものの、硝酸蒸気が含まれる気相中ではその化学形を保持し、大部分が気相中に留まるとの結果が得られている。

一方、蒸発乾固事故において RuO₄(g)との反応を考慮すべき気相成分には、水、硝酸の他に窒素酸化物 (NO_x) がある。NO_xは主に HLLW 中に含まれる硝酸塩の熱分解産物として生じるものであるが¹⁶⁾、RuO₄(g)の化学形変化挙動に与える影響を直接評価した報告は無い。NO_x が RuNO(g)へ至る化学反応に関与する可能性の他、還元剤として RuO₄(g)の分解を促進する可能性も考えられる。そこで本研究では RuO₄(g)の化学形変化挙動に与える NO_xの影響を実験的に評価した。具体的には、石英窓を有する回分式の反応容器内に RuO₄(g)及び共存ガス (NO_x 及び硝酸含有水蒸気) を封入し、UV/Vis 分光器を用いて吸光スペクトルの経時変化を観察することで、RuO₄(g)の化学形変化挙動を評価した。

2. 試験

2.1. 試験装置

NO_x を含む気相条件における RuO₄(g)の化学形変化挙動を観察するため、「Ru 気相反応試験装置」を用いた (Fig. 1)。本装置は、RuO₄(g)発生器、蒸気発生器、ガス混合器、フローセル、UV 分光器、恒温槽、Ru 回収部の 7 部から構成される、回分式の反応装置である。基本的な構成は文献¹⁵⁾と同様のものである。

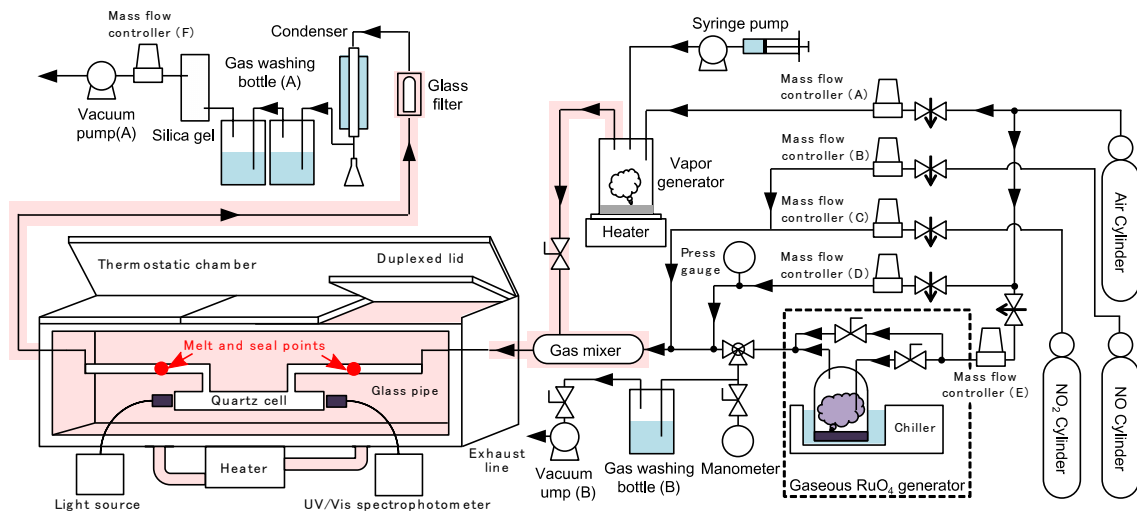


Fig. 1 Ru 気相反応試験装置の概略図

RuO₄(g)発生器から供給された RuO₄(g)、蒸気発生器から供給された水/硝酸蒸気、各々のガスボンベから供給された NO_x ガス・空気・窒素は、ガス混合器で混合された後、検体ガスとして恒温槽内のフローセルへ供給される。その後ガラス配管を溶断・密封し、検体ガスをフローセル内に閉じ込めた後、UV 分光器による分析を行う。各部位の詳細な仕様を下記に示す。

(1) RuO₄(g)発生器

本研究では気体状 Ru として RuO₄(g)を用い、RuO₄(g)発生器を用いて RuO₄(g)を発生させた。本部位は冷却器、マスフローコントローラー、圧縮空気ボンベ、ガラス製容器から構成される。固体 RuO₄ (RARE METALLIC 社製) を-10℃で保温し、昇華させることで RuO₄(g)を発生させた。RuO₄(g)は圧縮空気ボンベから供給された掃気ガス (乾燥空気) によってガス混合器へ供給される。RuO₄(g)の発生速度は装置内圧の影響を受けるため、吸引ポンプを用いてゲージ圧がゼロとなるように装置内圧を制御した。

(2) 蒸気発生器

任意の組成の水/硝酸蒸気を試験装置へ供給するため、シリンジポンプと蒸発缶からなる蒸気発生器を製作し試験に用いた。シリンジに水あるいは硝酸水溶液を入れ、シリンジポンプを用いて 250℃ に加熱された蒸発缶へ一定速度で供給した。硝酸水溶液が瞬時に蒸発するに十分な固液接触面積を得るため、蒸発缶の内部には充填剤としてステンレス粉末が収められている。供給された水・硝酸水溶液は、蒸発缶へ供給された時点で瞬時に蒸発することから、液相中と同じ組成の水蒸気・水蒸気が、溶液と同じ供給質量速度でガス混合器へ供給される仕様である。

(3) ガス混合器

(1) で生成した RuO₄(g)と (2) で得られた水蒸気は、ガラス製のガス混合器で混合されフローセルへ供給される。また、RuO₄(g)発生器からガス混合器に至る経路中に、RuO₄(g)をサンプリングするための分岐配管を設けており、ここから RuO₄(g)をガス吸収液 (1.0 mol/L 水酸化ナトリウム水溶液) 中に供給することで、RuO₄(g)の発生速度を評価した。

(4) フローセル

石英窓を有する光路長 25 cm のフローセルを用いて試験を行った。UV 分光器による測定時には、フローセルの前後のガラス配管を溶断し、セル内の検体ガスを封入した。フローセルを固定する治具は THORLABS 社製の光学レール及びアクセサリ類を用いた。樹脂製の部品については金属製のものに交換し、耐熱性を担保した。

(5) UV 分光器

UV 分光器に USB2000+ (Ocean Optics 社製)、光源に DH-2000 (Ocean Optics 社製) を用いた。投光部/受光部のプローブとセルの距離が変化しないよう、コリメートレンズ部を光学レールに固定する仕様とした。

(6) 恒温槽

本試験ではフローセル内を同一の温度に保持することが求められる。そこで強制循環式のヒーターを有する恒温槽を用い一連の試験を実施した。槽内に設けられた 5 つの熱電対により内部の温度分布を測定し、所定の温度で安定するようヒーター出力を調整する仕様である。

(7) Ru 回収部

本試験では、Ru が試験装置外へ放出されないよう、Ru 回収部を用いて Ru を回収している。恒温槽内のフローセルを経た検体ガスは、コンデンサで冷却され、凝縮液として水・硝酸、一部の Ru が除去された後、300 mL の 1.0 mol/L 水酸化ナトリウム水溶液が入ったガス吸収瓶で処理される。Ru 回収部で供給 Ru の全量を回収することが可能である。

2.2. 試験条件

先ず、 $\text{RuO}_4(\text{g})$ の熱分解挙動に対する NO_x の効果を調べることにした。試験条件を Table 1 に示す。 H_2O 、 NO 、 NO_2 の Ru に対するモル比は、既報の模擬廃液加熱試験におけるオフガスの組成^{17),18)}を参考に設定した。試験 NO-120 は乾燥空気中に NO が含まれる気相条件、試験 NO_2 -120 は乾燥空気中に NO_2 が含まれる気相条件、試験 $\text{NO}+\text{H}_2\text{O}$ は水蒸気および NO を含む空気、試験 $\text{NO}_2+\text{H}_2\text{O}$ は水蒸気および NO_2 を含む空気をそれぞれ気相条件としたものである。試験 $\text{NO}+\text{H}_2\text{O}$ および試験 $\text{NO}_2+\text{H}_2\text{O}$ は、 NO_x と水蒸気が反応することで僅かに硝酸が生じ、それが $\text{RuO}_4(\text{g})$ を安定化させることを考慮した試験である。試験温度の 120 °C は、硝酸含有水蒸気を添加した場合を想定し凝縮が発生しない温度として採用した。なお、試験開始時の $\text{RuO}_4(\text{g})$ を同一濃度とするため、検体ガス用キャリアガスの流速を合計流量が同じ値になるよう調整した。Fig. 1 中の Mass flow controller (A)~(E) が表中の MFC-A~MFC-E に対応する。

Table 1 試験条件一覧 (基礎試験)

試験名	NO-120	NO ₂ -120	NO+H ₂ O	NO ₂ +H ₂ O
雰囲気ガス	Air+NO	Air+NO ₂	Air+NO+H ₂ O	Air+NO ₂ +H ₂ O
温度 [°C]	120	120	120	120
検体ガス用キャリアガス (MFC-D) [NL/min] ^{*1}	0.38	0.38	0.08	0.08
RuO ₄ (g) キャリアガス (MFC-E) [NL/min]	0.1	0.1	0.1	0.1
蒸気キャリアガス (MFC-A) [NL/min]	0	0	0.1	0.1
NO キャリアガス (MFC-B) [NL/min]	0.08	0	0.08	0
NO ₂ キャリアガス (MFC-C) [NL/min]	0	0.08	0	0.08
RuO ₄ (g) 供給速度 [μmol/min] ^{*2}	1.7	1.7	1.7	1.7
NO : Ru モル比 [-] ^{*3}	105	0	105	0
NO ₂ : Ru モル比 [-] ^{*3}	0	105	0	105
H ₂ O : Ru モル比 [-]	0	0	5000	5000
H ₂ O 供給速度 [μL/min]	0	0	153	153
合計流量 [L/min] ^{*4}	0.806	0.806	0.792	0.792
測定時間 [min]	90	90	90	90

*1 検体ガス用キャリアガス量を調整することで、各試験の合計流量を調節。

*2 目標値。

*3 ガスボンベからの供給量。反応中に生成されるNO_x量を無視した値。

*4 合計流量はH₂OやHNO₃蒸気を含む全成分を理想気体として算出。

実際の蒸発乾固事故では、HLLW から放出された $\text{RuO}_4(\text{g})$ 等の放射性物質と NO_x や硝酸含有水蒸気等の同伴ガスは、建屋の換気系や工程室内を移行していく。このような移行経路中では、壁面への蒸気凝縮や凝縮液への溶解などにより、同伴ガス中の NO_x や硝酸含有水蒸気の濃度が、HLLW から放出されたものより希薄になることが予想される。そこで、 $\text{RuO}_4(\text{g})$ に対する NO_x および硝酸含有水蒸気の濃度を低くしていき、 $\text{RuO}_4(\text{g})$ の熱分解に対するこれら同伴ガスの効果を調べる試験を行った。試験条件を Table 2、Table 3 に示す。水の Ru に対する化学当量 (500 当量) は過去に実施された模擬廃液加熱試験において、最も Ru の放出速度が大であった際の気相条件の値を参考に設定した¹⁸⁾。硝酸の化学当量については、硝酸は $\text{RuO}_4(\text{g})$ を強く安定化するため¹⁵⁾、硝酸を添加しつつ $\text{RuO}_4(\text{g})$ の分解が観測される条件として 0.1 当量を設定し、 NO_x の影響を評価できるようにした。Table 3 中の NO_2 当量は、Table 2 で実施した試験結果と装置の性能の制限を勘案の上、 RuO_4 の分解挙動を評価するに適切な値を 7.5 当量と設定した。

Table 2 試験条件一覧 (NO₂ 及び硝酸含有水蒸気添加試験)

試験名	HNO ₃ +NO ₂ - 0eq	HNO ₃ +NO ₂ - 7.5eq	HNO ₃ +NO ₂ - 10eq	HNO ₃ +NO ₂ - 100eq
雰囲気ガス	H ₂ O+HNO ₃	H ₂ O+HNO ₃ + NO ₂	H ₂ O+HNO ₃ + NO ₂	H ₂ O+HNO ₃ + NO ₂
温度 [°C]	120	120	120	120
検体ガス用キャリアガス (MFC-D) [NL/min] ^{*1}	0.08	0.07	0	0
RuO ₄ (g) キャリアガス (MFC-E) [NL/min]	0.1	0.1	0.1	0.1
蒸気キャリアガス (MFC-A) [NL/min]	0.1	0.1	0.14 ^{*5}	0.1
NO キャリアガス (MFC-B) [NL/min]	0	0	0	0
NO ₂ キャリアガス (MFC-C) [NL/min]	0	0.03 (1% ^{*6})	0.04 (1% ^{*6})	0.08 (5% ^{*6})
RuO ₄ (g) 供給速度 [μmol/min] ^{*2}	1.7	1.7	1.7	1.7
NO : Ru モル比 [-] ^{*3}	0	0	0	0
NO ₂ : Ru モル比 [-] ^{*3}	0	7.5 ^{*7}	10	100
HNO ₃ : Ru モル比 [-]	0.1	0.1	0.1	0.1
H ₂ O : Ru モル比 [-]	500	500	500	500
HNO ₃ aq. 供給速度 [μL/min]	15.3	15.3	15.3	15.3
合計流量 [L/min] ^{*4}	0.431	0.431	0.431	0.445
測定時間 [min]	90	90	90	90

*1 検体ガス用キャリアガス量を調整することで、各試験の合計流量を調節。

*2 目標値。

*3 ガスボンベからの供給量。反応中に生成される NO_x 量を無視した値。

*4 合計流量は H₂O や HNO₃ 蒸気を含む全成分を理想気体として算出。

*5 MFC-D の下限値が 0.07 NL/min のため、MFC-A のキャリアガスを増やして流量を調節した。

*6 ボンベ中 NO₂ 濃度。

*7 マスフローコントローラーの制御能力に由来した下限値。

Table 3 試験条件一覧 (NO_x 及び硝酸含有水蒸気添加試験)

試験名	HNO ₃ +NO ₂ +NO- 1eq	HNO ₃ +NO ₂ +NO- 10eq	HNO ₃ +NO ₂ +NO- 100eq
雰囲気ガス	H ₂ O+HNO ₃ +NO+ NO ₂	H ₂ O+HNO ₃ +NO+ NO ₂	H ₂ O+HNO ₃ +NO+ NO ₂
温度 [°C]	120	120	120
検体ガス用キャリアガス (MFC-D) [NL/min] ^{*1}	0	0	0
RuO ₄ (g) キャリアガス (MFC-E) [NL/min]	0.1	0.1	0.1
蒸気キャリアガス (MFC-A) [NL/min]	0.08	0.11	0.14
NO キャリアガス (MFC-B) [NL/min]	0.01 (1% ^{*6})	0.04 (1% ^{*6})	0.08 (1% ^{*6})
NO ₂ キャリアガス (MFC-C) [NL/min]	0.03 (1% ^{*6})	0.03 (1% ^{*6})	0.03 (1% ^{*6})
RuO ₄ (g) 供給速度 [μmol/min] ^{*2}	1.7	1.7	1.7
NO : Ru モル比 [-] ^{*3}	1	10	100
NO ₂ : Ru モル比 [-] ^{*3}	7.5	7.5	7.5
HNO ₃ : Ru モル比 [-]	0.1	0.1	0.1
H ₂ O : Ru モル比 [-]	500	500	500
HNO ₃ aq. 供給速度 [μL/min]	15.3	15.3	15.3
合計流量 [L/min] ^{*4}	0.459	0.431	0.431
測定時間 [min]	90	90	90

*1 検体ガス用キャリアガス量を調整することで、各試験の合計流量を調節。

*2 目標値。

*3 ガスボンベからの供給量。反応中に生成される NO_x 量を見逃した値。

*4 合計流量は H₂O や HNO₃ 蒸気を含む全成分を理想気体として算出。

*5 MFC-D の下限値が 0.07 NL/min のため、MFC-A のキャリアガスを増やして流量を調節した。

*6 ボンベ中 NO、NO₂ 濃度。

*7 マスフローコントローラーの制御能力に由来した下限値。

2.3. 試験方法

恒温槽内部の温度が設定温度になったことを熱電対の読み値から確認し、UV 分光器の吸光度の指示値が一定値を示していることを確認した。その後フローセルの乾燥のため、0.3 NL/min で乾燥空気を供給し、10 分以上のエイジングを行った。その後 Ru を含まない検体ガスを所定の合計流量で 10 分以上フローセルへ供給し、セル内の置換を行った。NO₂ を含む試験では、得られた UV スペクトルから諸々のガス供給が安定した事を確認し、スペクトルのゼロ合わせを行った。これは、吸収スペクトルのデータから NO₂ バックグラウンド分の吸収を差し引き、RuO₄ のスペクトル経時変化の視認を容易にすることを目的とした操作である。その後ガス状 RuO₄ を追加で供給し、NO₂ の場合と同様に UV スペクトルから装置内が定常状態になったことを確認した。この際、排気ポンプの体積流量を手動で制御することで、装置内外の圧力差が 0 kPa となるように調整した。バルブ操作により検体ガスのフローセルへの供給を止め、ガスバーナーを用いて経路の溶断を行うことでセル内を閉鎖系とした。この状態で、所定時間 UV スペクトルの変化を記録した。

2.4. 試験データの解析手法

本研究では UV スペクトルの経時変化から RuO₄ の化学形変化の評価を試みているが、試験中に RuO₄ 以外の UV 吸収を持つ物質が生じた場合には測定妨害物質となりうる。そのため、試験で得られたスペクトルから RuO₄ の成分を計算処理により抽出するための手法を開発し、そのデータ解析手法のプログラムを作成した。RuO₄ の UV 吸収スペクトルは、306 nm と 400 nm 付近に極大吸収波長を有しており、NO₂ の UV 吸収スペクトルもまた、400 nm 付近に極大吸収波長を有している。本研究では、RuO₄ の極大吸収波長である 306 nm の吸光度の経時変化を計測することで、検体ガス中の RuO₄ 量の経時的な減衰を観測している。しかしながら、NO₂ の吸収スペクトルは 250 nm ~ 600 nm 付近まで分布しており、一部の領域が RuO₄ の吸収スペクトルと重複することから、NO₂ の増減が RuO₄ の吸光度評価に影響を与えることになる。それ故 RuO₄ の分解速度を評価するためには、試験で得られた、RuO₄ と NO₂ が共存する吸収スペクトルから NO₂ の成分を除去し、RuO₄ 単独が示すスペクトルを求める操作が必要となる。本研究では、以下に示す方法で RuO₄ と NO₂ の吸収スペクトルの分離を行った。本プログラムの詳細は文献¹⁵⁾に記載している。以下に処理の概要を示す。

- ① 系中の RuO_4 の濃度と吸光スペクトルの吸光度には加成則が成り立つと仮定し、試験結果スペクトル (A) の 306 nm の吸光度と同じ吸光度を示す RuO_4 のスペクトル (B) を求める。
- ② B に対し NO_2 のスペクトル (C) を加算し、合成スペクトル (D) を得る。
- ③ D と A の差分を取り、その標準偏差を計算する。標準偏差が収束判定値未満となるか、標準偏差が極小値（標準偏差が減少から増加に転じた点）となれば計算を終了し D（及び B と C）を計算結果とする。
- ④ ③の条件を満たさない場合には、C の吸光度スペクトル強度を上げて再度②及び③を行う。なお、C についても、 RuO_4 と同様に、濃度と吸光度に加成則が成り立つと仮定した。C の 400 nm における吸光度が A の値にまで増加させても収束判定条件を満たさない場合には、B のスペクトル強度を下げ、②以降の計算を繰り返した。

3. 結果

3.1. NO の影響

NO を含む空気中での $\text{RuO}_4(\text{g})$ の UV/Vis スペクトル経時変化を Fig. 2 に示す。400 nm 付近にブロードな UV/Vis 吸収を持つ成分が増加していることが観測された。この成分は、標準ガスの吸収スペクトルとの比較及び 400 nm 付近に極大吸収スペクトルを有する等の特徴から、 NO_2 であると考えられる。この NO_2 による測定妨害の影響により、 $\text{RuO}_4(\text{g})$ の現象挙動を直接評価することはできなかった。

得られた試験結果スペクトルのスペクトル分離を試みた (Fig. 3)。その結果、合成スペクトル (Fig. 中では Synthetic spectrum と表記する) と試験結果スペクトル (Fig. 中では Experimental result spectrum と表記する) はほぼ一致した。試験結果スペクトルは全ての観測時間で NO_2 と $\text{RuO}_4(\text{g})$ から構成され、 $\text{RuO}_4(\text{g})$ と NO_2 以外の成分、例えば $\text{RuNO}(\text{g})$ は観察されなかった。Fig. 4 に分離後の $\text{RuO}_4(\text{g})$ の吸光度 (306 nm) 及び分離後の NO_2 の吸光度 (400 nm) の経時変化を示す。 $\text{RuO}_4(\text{g})$ の吸光度が徐々に減少していることから、NO-120 の試験系では $\text{RuO}_4(\text{g})$ は経時的に分解することが分かる。しかしながら、既報の試験結果¹⁵⁾における乾燥空気や水蒸気共存条件における $\text{RuO}_4(\text{g})$ の分解速度よりも遅く、NO の添加が $\text{RuO}_4(\text{g})$ の分解を阻害することが示唆される結果となった。また、 NO_2 が徐々に増加しているが、この現象は NO が空気中の酸素と反応するか、あるいは $\text{RuO}_4(\text{g})$ を還元して NO_2 を形成したものと考えられる。

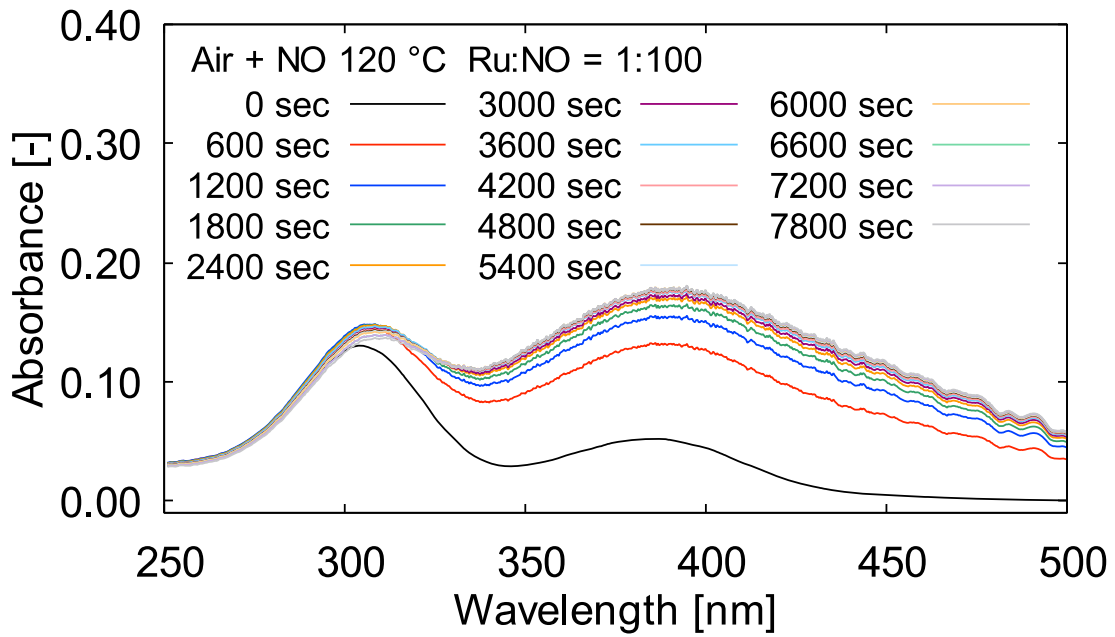


Fig. 2 UV/Vis スペクトル経時変化 (NO-120)

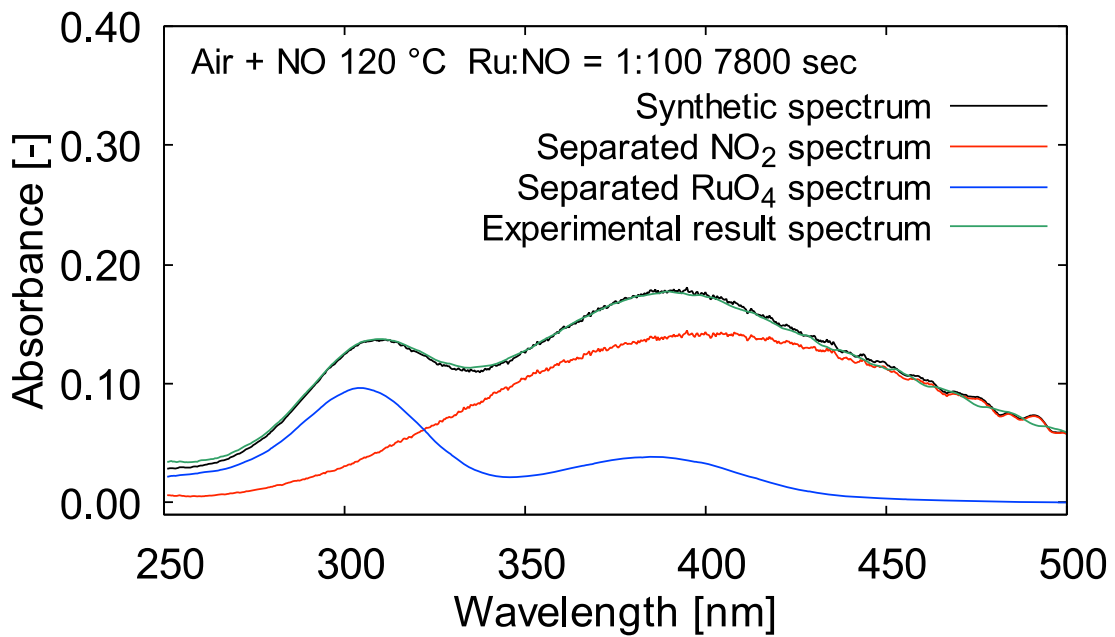


Fig. 3 スペクトル分離の結果の一例 (NO-120, 7800 秒)

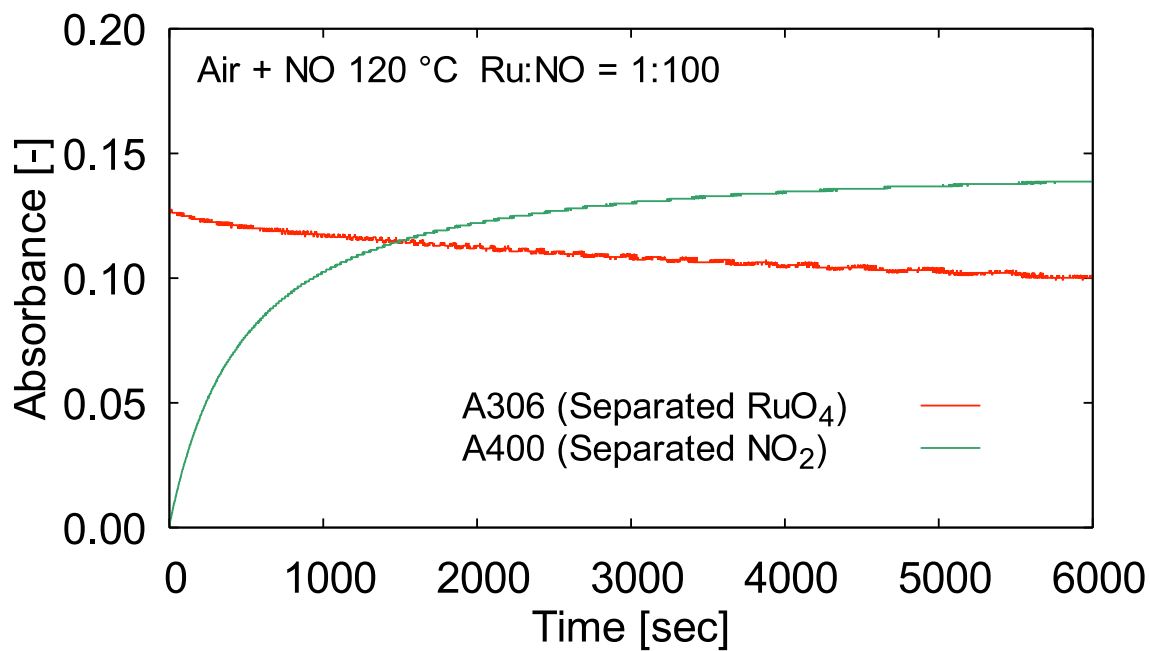


Fig. 4 スペクトル分離後の RuO₄ 及び NO₂ の吸光度変化

3.2. NO₂の影響

NO₂を含む空気中での RuO₄(g)の UV/Vis スペクトル経時変化を Fig. 5 に示す。添加した NO₂の吸収が大きく、RuO₄(g)の変化を直接評価することは難しかった。Fig. 6 は、各測定時間で得られた試験結果スペクトルから、RuO₄(g)を供給する前の検体ガスのスペクトル（添加した NO₂ のスペクトル）を差し引いたスペクトルである。この処理を施した後も NO₂ の干渉が大きく、RuO₄(g)の分解挙動を直接観察することは困難であった。

そこで、本試験でもスペクトル分離を試みた。一例を Fig. 7 に示す。RuO₄(g)の吸収スペクトルの一部は NO₂ の 400 nm の吸収と重なっており、かつ NO₂ の吸光度が大きいため、スペクトル分離の品質は NO-120 よりも低かった。しかしながら、RuO₄(g)に特徴的な 300 nm 付近の吸収スペクトルについては合成スペクトルと試験結果スペクトルではほぼ一致する結果が得られた。

スペクトル分離の結果、RuO₄(g)の分解が観測されたものの、その速度は NO-120 よりも遅いことが分かった (Fig. 8)。このことから、硝酸ほど強くはないものの、NO_x にも RuO₄(g)の分解を阻害し安定化する効果があることが示唆される結果となった。また本試験においても、3.1 で述べた NO を添加した場合と同様に、試験結果スペクトルは RuO₄(g)及び NO₂ から構成されており、RuNO(g)に相当するスペクトルは観測されなかった。

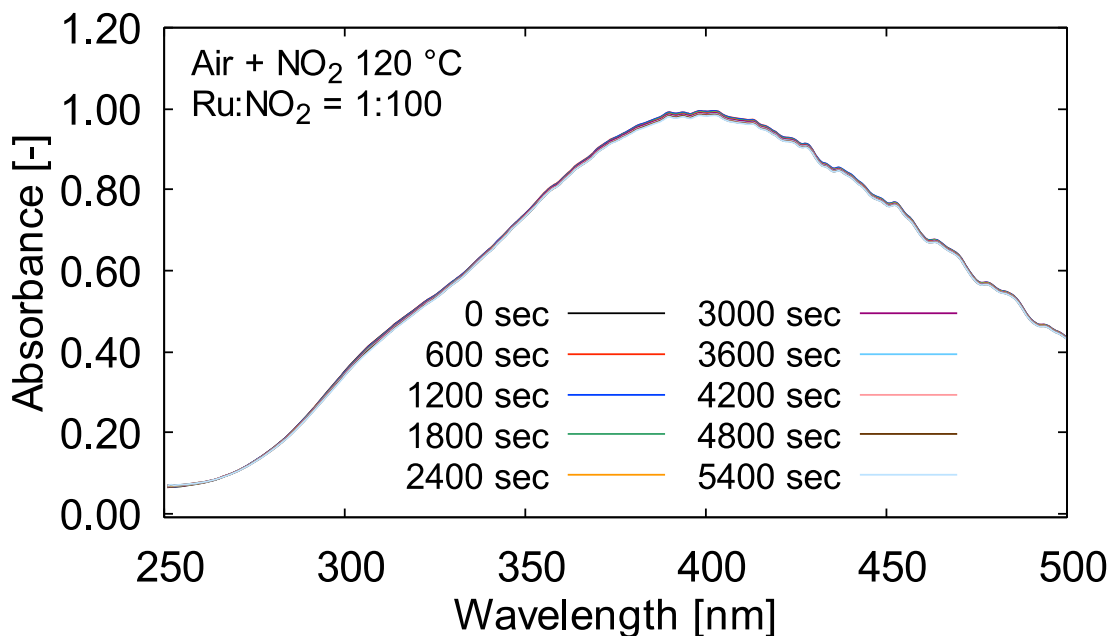


Fig. 5 UV/Vis スペクトル経時変化 (NO₂-120)

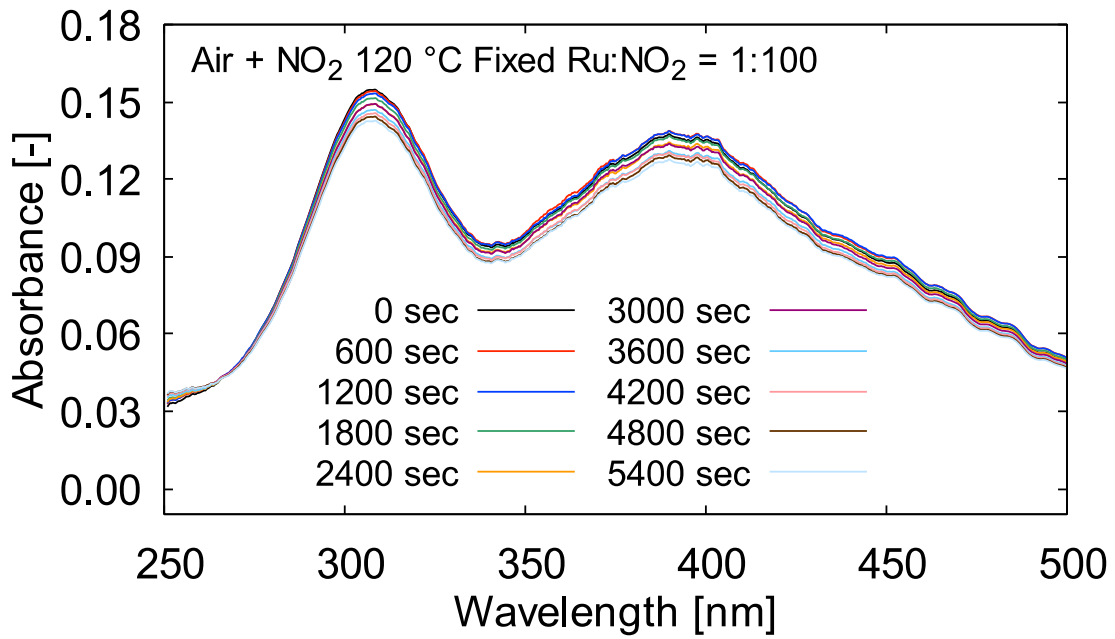


Fig. 6 初期 NO₂ 補正後 UV/Vis スペクトル経時変化 (NO₂-120)

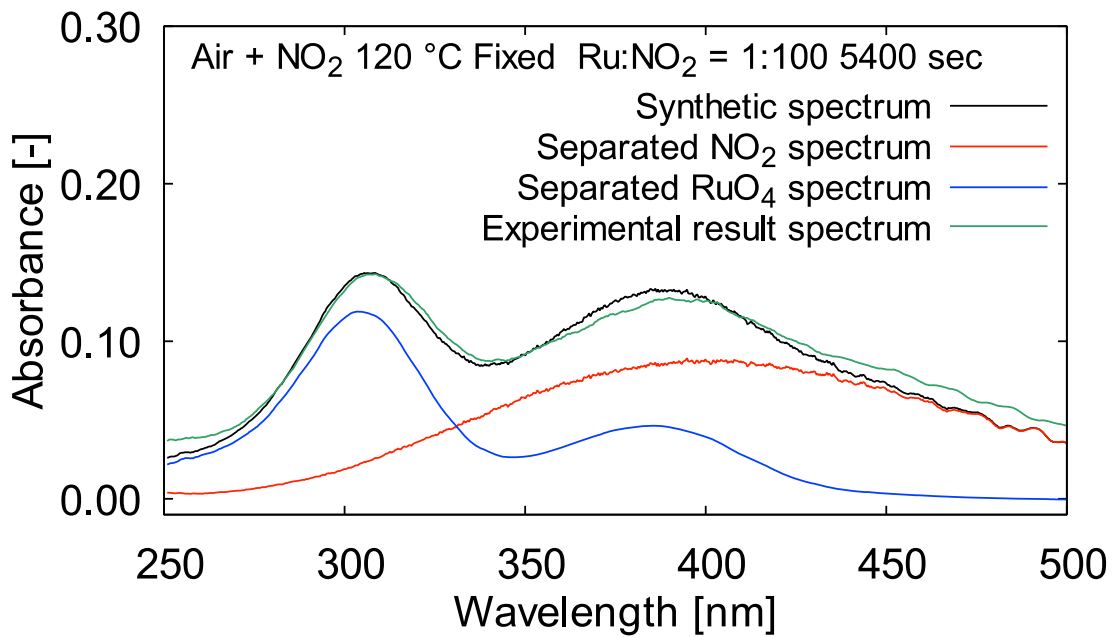


Fig. 7 スペクトル分離の結果の一例 (NO₂-120, 5400 秒)

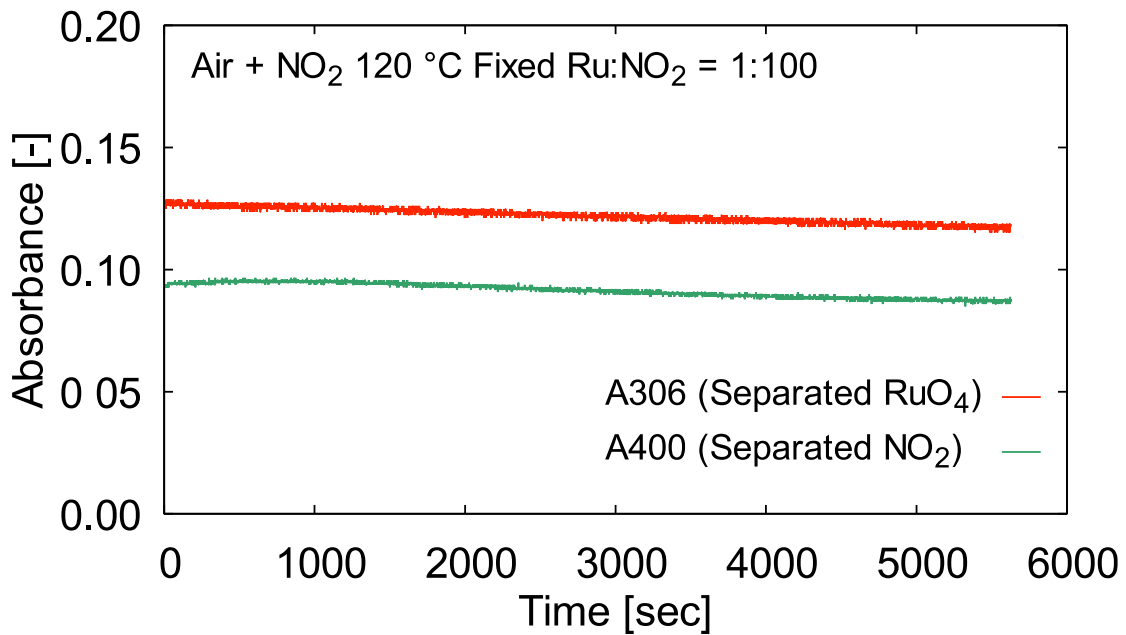


Fig. 8 スペクトル分離後の RuO₄ 及び NO₂ の吸光度変化 (NO₂-120)

3.3. 水蒸気を含む条件下での NO の影響

水蒸気及び NO を含む気相中での RuO₄(g) の UV/Vis スペクトル経時変化を Fig. 9 に示す。本試験においても、NO₂ の経時的な増加が観測された。Fig. 10 にスペクトル分離後の RuO₄(g) の吸光度 (306 nm) 及び分離後の NO₂ の吸光度 (400 nm) の経時変化を示す。RuO₄(g) の分解速度は NO-120 試験よりも大きかったが、同一の試験装置を用いて水蒸気のみを RuO₄(g) の共存ガスとした試験の結果よりも小さかった¹⁵⁾。この違いは、水蒸気による RuO₄(g) の分解促進効果と、NO による分解阻害効果が競争したことに因ると考えられる。

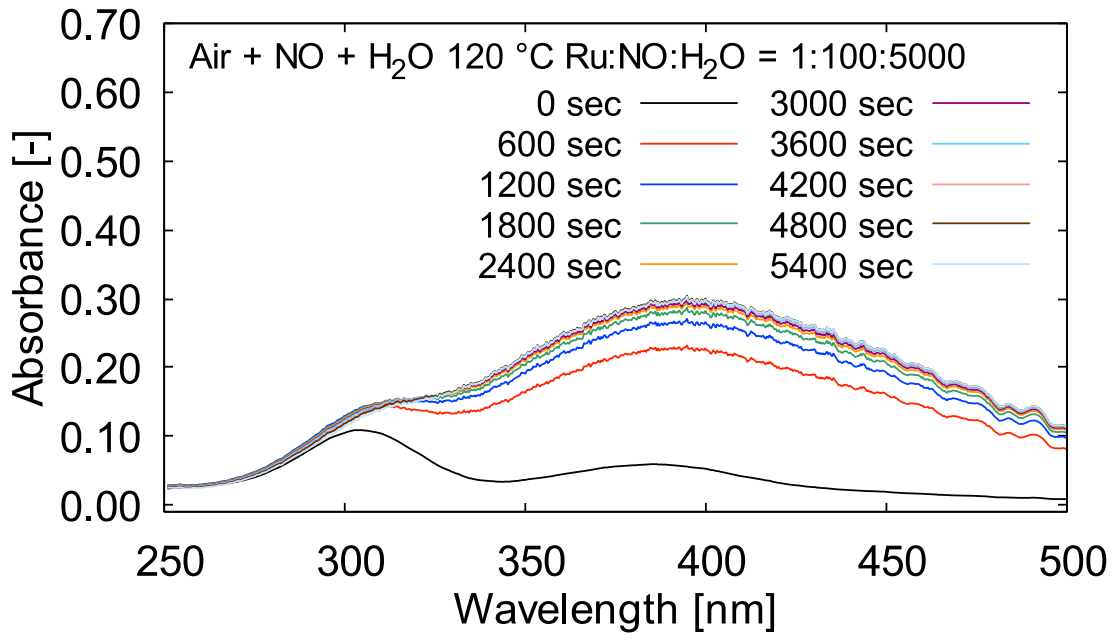


Fig. 9 UV/Vis スペクトル経時変化 (NO+H₂O)

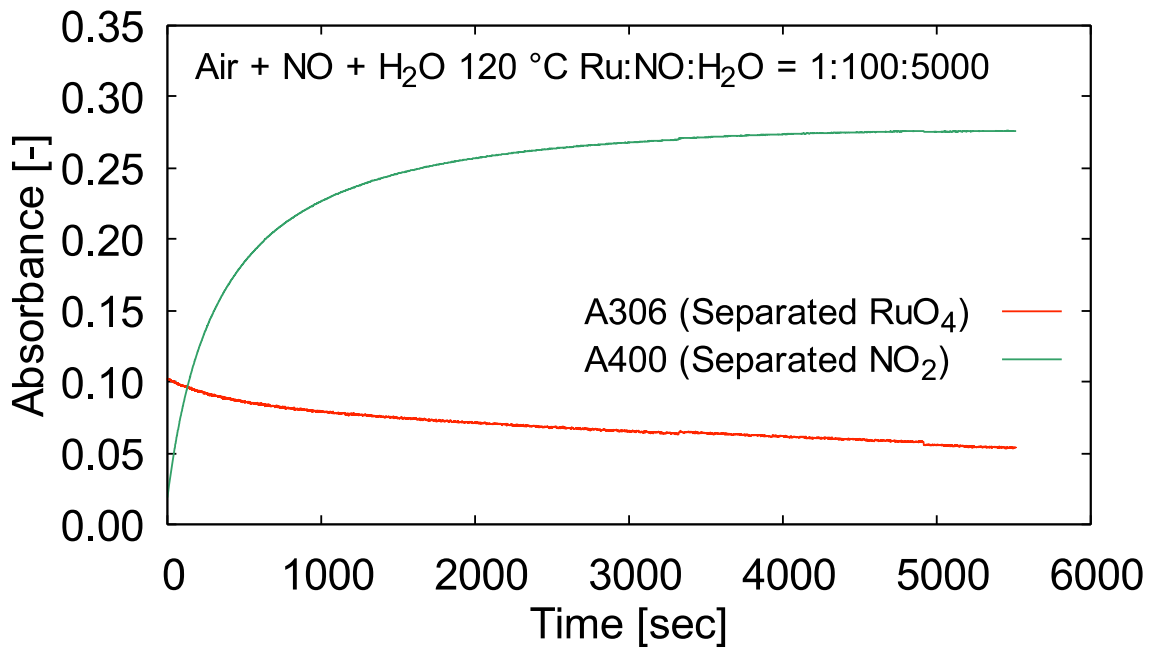


Fig. 10 スペクトル分離後の RuO₄ 及び NO₂ の吸光度変化 (NO+H₂O)

3.4. 水蒸気を含む条件下での NO₂ の影響

NO₂+H₂O 試験で得られた UV/Vis スペクトルの経時変化を Fig. 11 に示す。NO₂-120 試験の結果と同様に、NO₂ の吸収は RuO₄(g) に比べて非常に大きく、RuO₄(g) の分解挙動を直接評価することは困難であった。Fig. 12 は、各測定時間で得られた試験結果スペクトルから、RuO₄(g) を供給する前の検体ガスのスペクトルを差し引いたものである。この処理を施した後も NO₂ の干渉が大きく、RuO₄(g) の分解挙動を直接観察することは困難であった。また、本試験でも試験結果スペクトルのスペクトル分離を試みたが、NO₂ の吸収が大きく、測定器の飽和によるノイズの影響から、定量的な評価が可能な品質の結果は得られなかった。NO₂ の吸収を減算した後の試験結果スペクトルにおける、306 nm と 400 nm の吸光度の経時変化を Fig. 13 に示す。Fig. 12 と Fig. 13 の結果から、RuO₄(g) が経時的に減少しており、分解速度は NO₂-120 試験よりも大きい。これは、NO-120 と NO+H₂O 試験結果の比較と同様に、水蒸気存在により RuO₄(g) の分解が促進されたためであると考えられる。

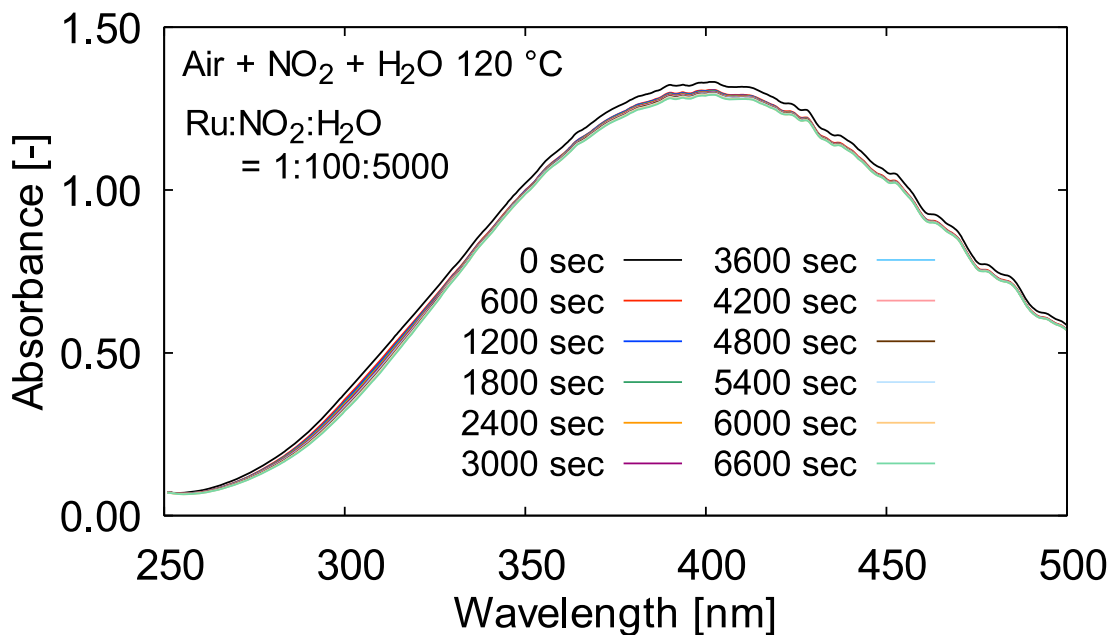


Fig. 11 UV/Vis スペクトル経時変化 (NO₂+H₂O)

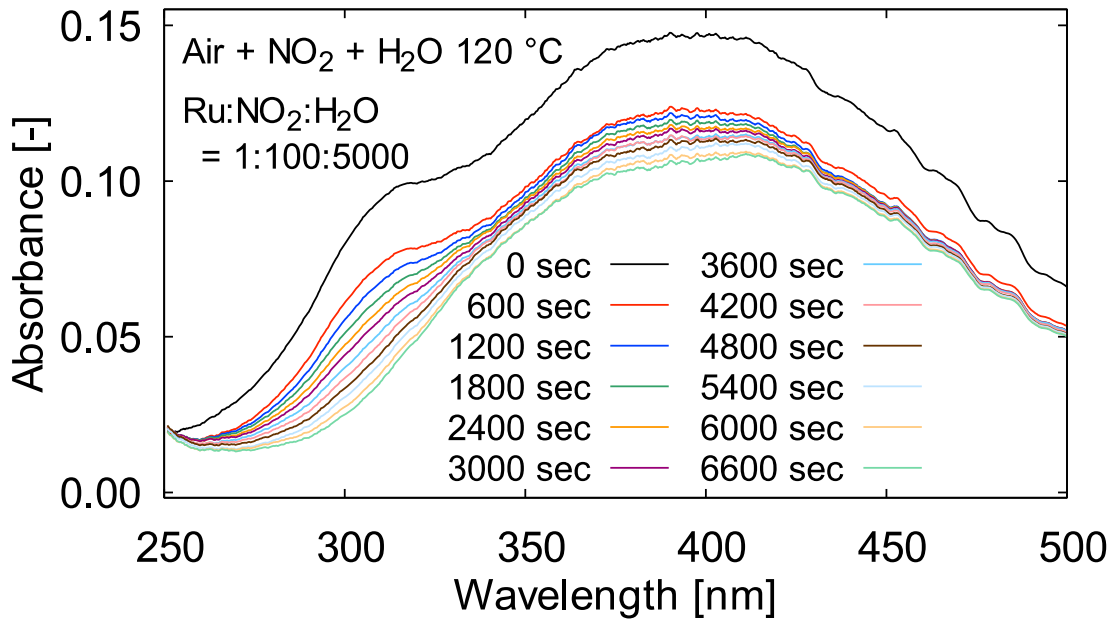


Fig. 12 初期 NO₂ 補正後 UV/Vis スペクトル経時変化 (NO₂+H₂O)

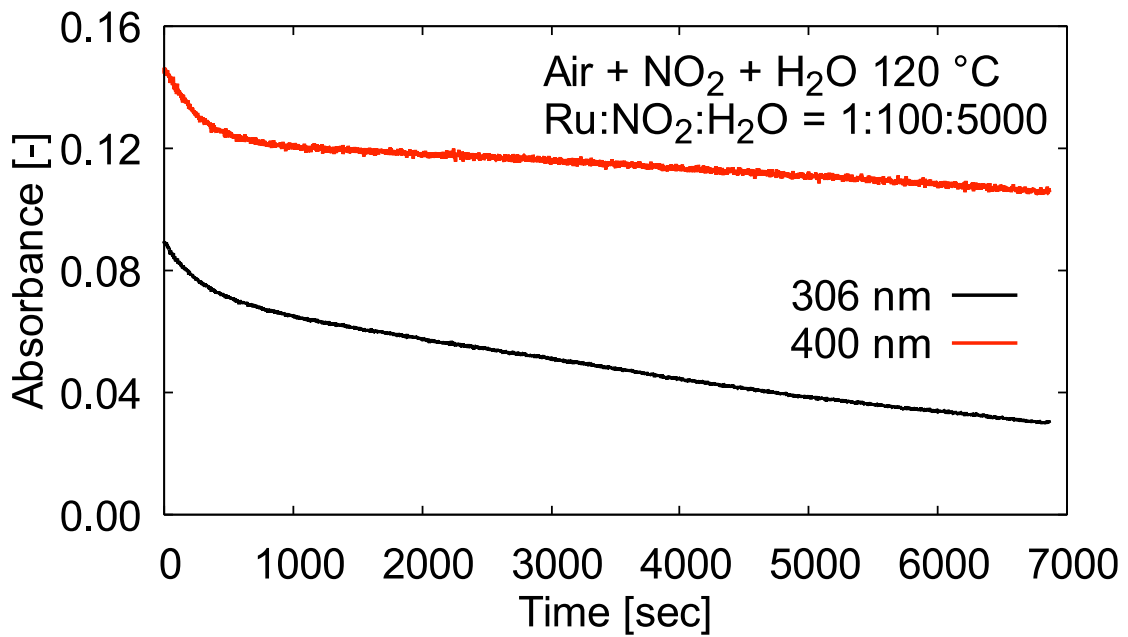


Fig. 13 補正後 UV/Vis スペクトルの吸光度経時変化 (NO₂+H₂O)

3.5. NO₂及び硝酸含有水蒸気を含む気相中での RuO₄(g)の挙動

硝酸含有水蒸気と NO₂ が含まれる気相中での RuO₄(g)の分解挙動について、各試験で得られた UV スペクトルの経時変化を Fig. 14～Fig. 17 に示す。NO₂の添加量を増やすに伴って、吸収スペクトル中の NO₂の吸収は増大した。特に HNO₃+NO₂-100eq 試験では、NO₂と RuO₄(g)のスペクトルとの重複により、RuO₄(g)の減少速度を定量的に評価することは困難であった。その他の試験 (HNO₃+NO₂-0eq、HNO₃+NO₂-7.5eq、HNO₃+NO₂-10eq) については、NO₂による測定妨害はあったものの、概ねスペクトル分離による RuO₄(g)の分解挙動の評価は可能であった。

Fig. 18～Fig. 20 に、HNO₃+NO₂-100eq 試験を除く各試験におけるスペクトル分離後の RuO₄ (g)の吸光度 (306 nm) 及び分離後の NO₂の吸光度 (400 nm) の経時変化を示す。NO₂を添加していない試験 (HNO₃+NO₂-0eq) では、RuO₄(g)の減少が有意に観測されるが (Fig. 18)、NO₂を添加した試験 (HNO₃+NO₂-7.5eq、HNO₃+NO₂-10eq) では、その速度が低下していることが分かる (Fig. 19、Fig. 20)。

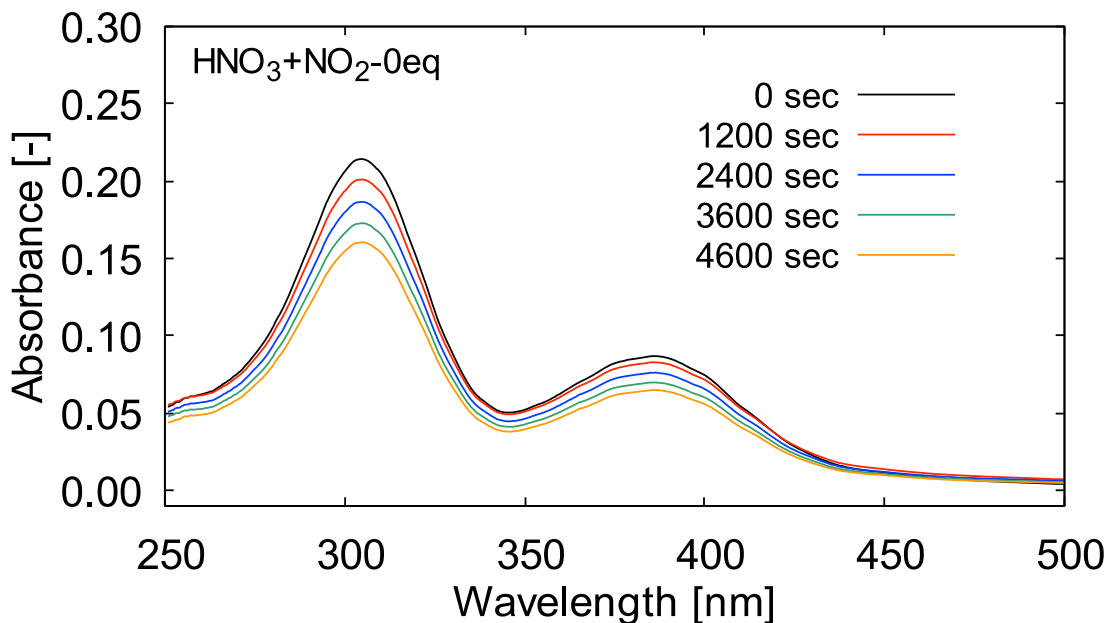


Fig. 14 UV/Vis スペクトル経時変化 (HNO₃+NO₂-0eq)

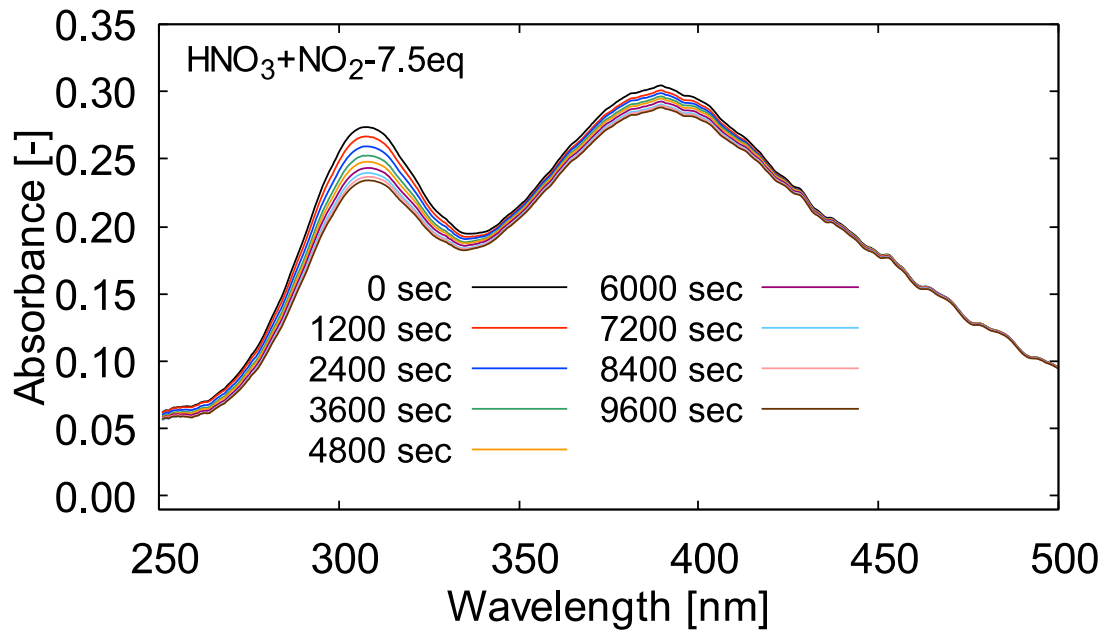


Fig. 15 UV/Vis スペクトル経時変化 (HNO₃+NO₂-7.5eq)

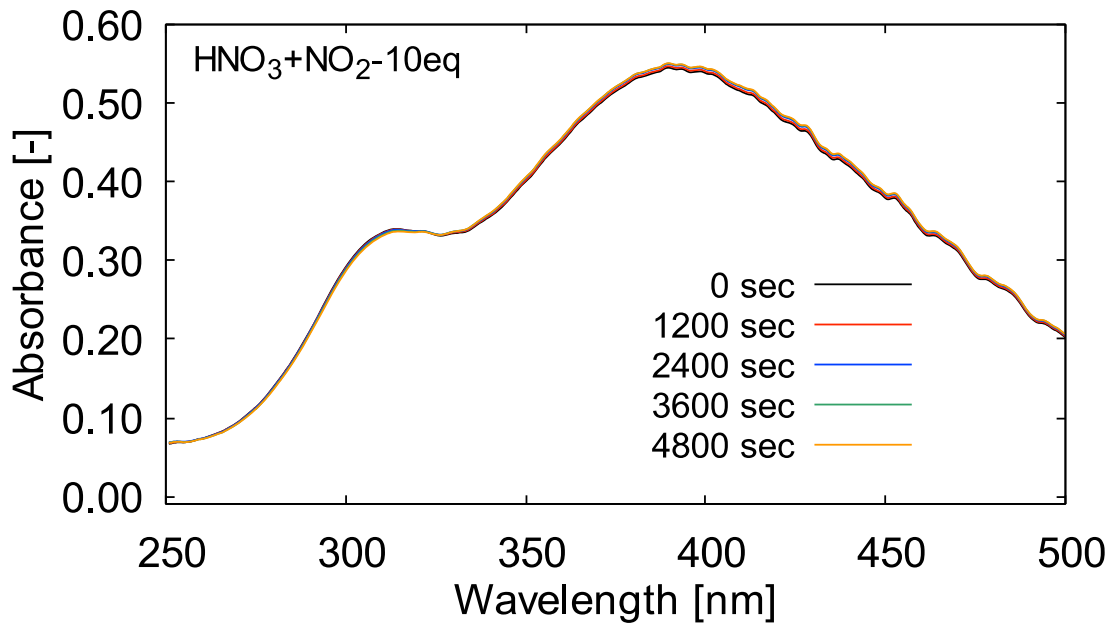


Fig. 16 UV/Vis スペクトル経時変化 (HNO₃+NO₂-10eq)

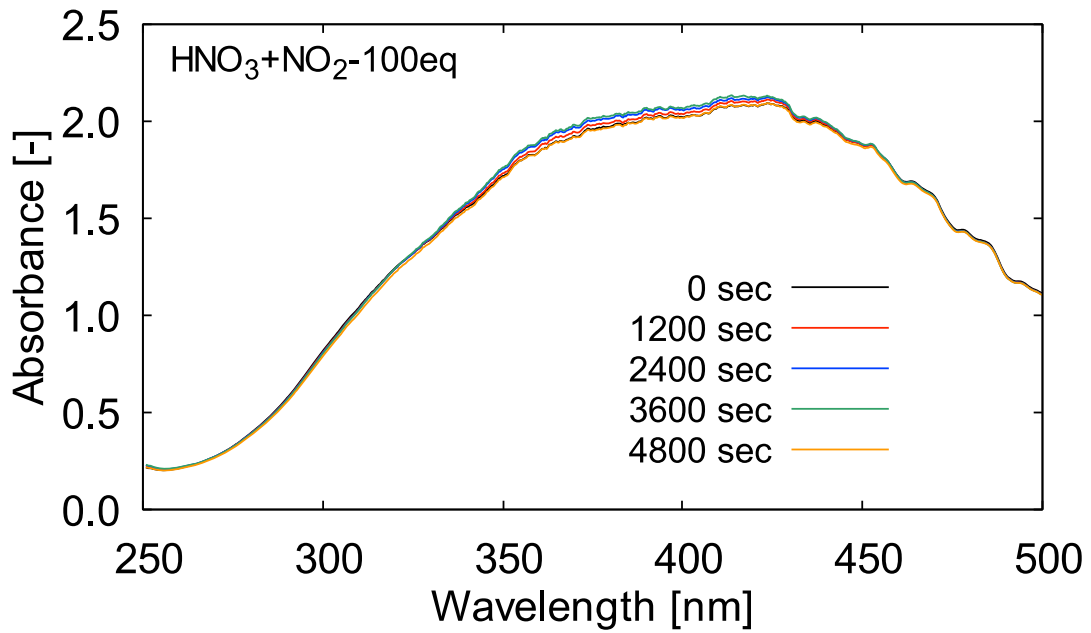


Fig. 17 UV/Vis スペクトル経時変化 (HNO₃+NO₂-100eq)

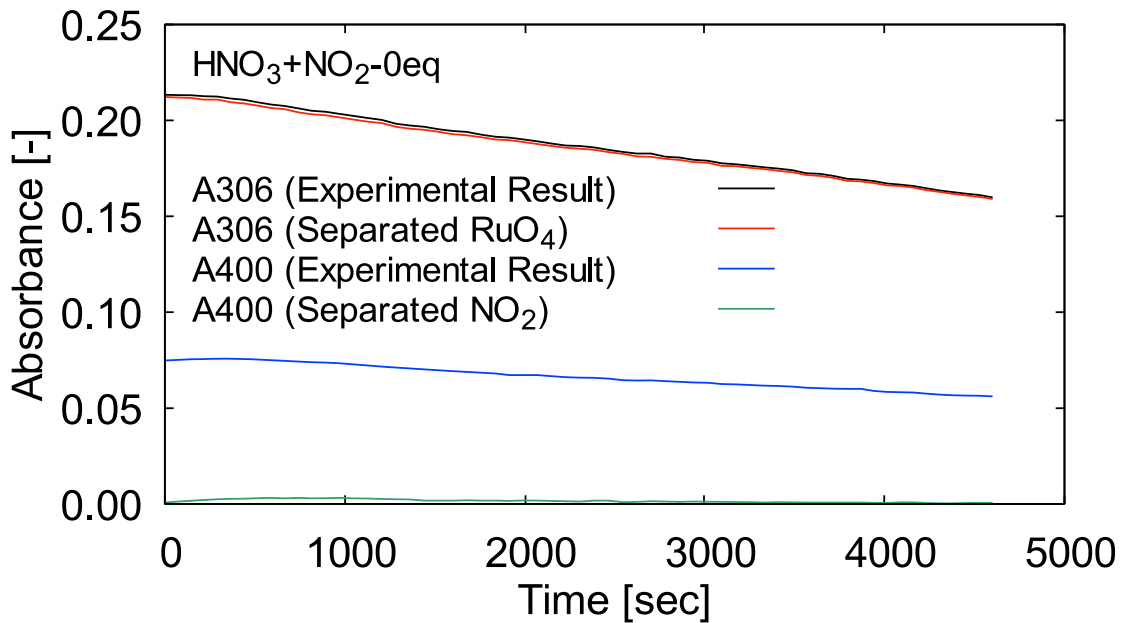


Fig. 18 スペクトル分離後の RuO₄ 及び NO₂ の吸光度変化 (HNO₃+NO₂-0eq)

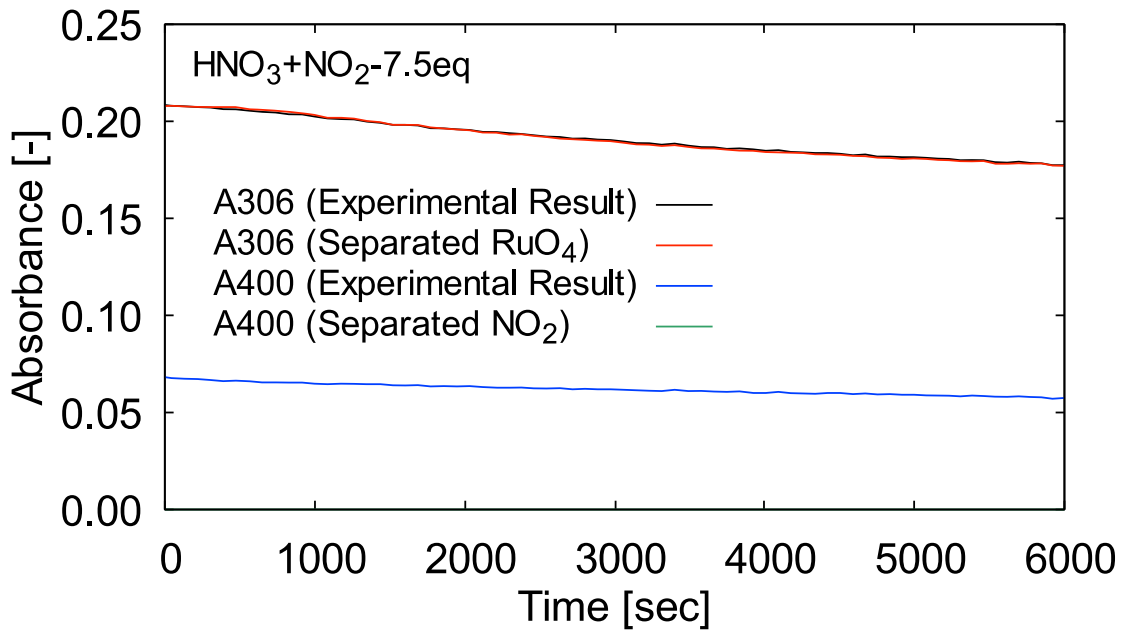


Fig. 19 スペクトル分離後の RuO₄ 及び NO₂ の吸光度変化 (HNO₃+NO₂-7.5eq)

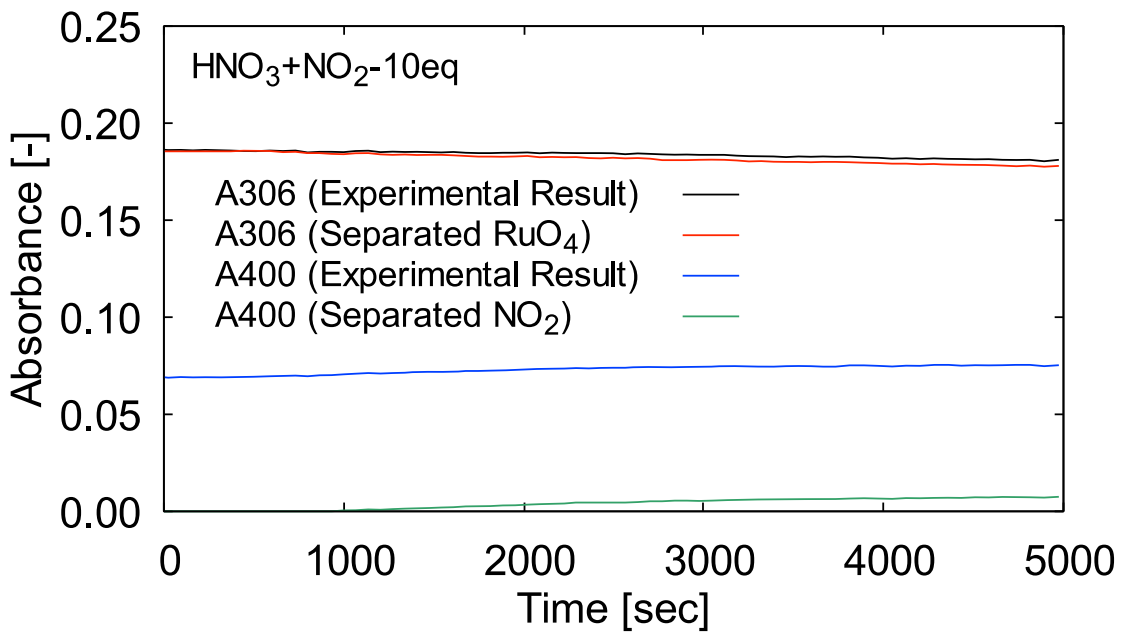


Fig. 20 スペクトル分離後の RuO₄ 及び NO₂ の吸光度変化 (HNO₃+NO₂-10eq)

3.6. NO・NO₂及び硝酸含有水蒸気を含む気相中での RuO₄(g)の挙動

硝酸含有水蒸気、NO₂、NO が含まれる気相中での RuO₄(g)の分解挙動について、各試験で得られた UV スペクトルの経時変化を Fig. 21～Fig. 23 に示す。NO と空気中の酸素が反応して生成したと考えられる、NO₂ の吸収が経時的に増加していた。NO の添加量を増やすに伴って、NO₂ の吸収も大きくなった。NO₂ による測定妨害はあったものの、100 当量を添加した試験であっても、概ねスペクトル分離による RuO₄(g)の分解挙動の評価は可能な程度であった。

Fig. 24～Fig. 26 に、各試験におけるスペクトル分離後の RuO₄(g)の吸光度 (306 nm) 及び分離後の NO₂ の吸光度 (400 nm) の経時変化を示す。本項で扱う 3 試験の結果に大きな差は観測されなかった一方で、NO 添加以外の条件が同じ試験である HNO₃+NO₂-7.5eq 試験の結果 (Fig. 19) と比較すると、RuO₄(g)の減少速度は遅かった。

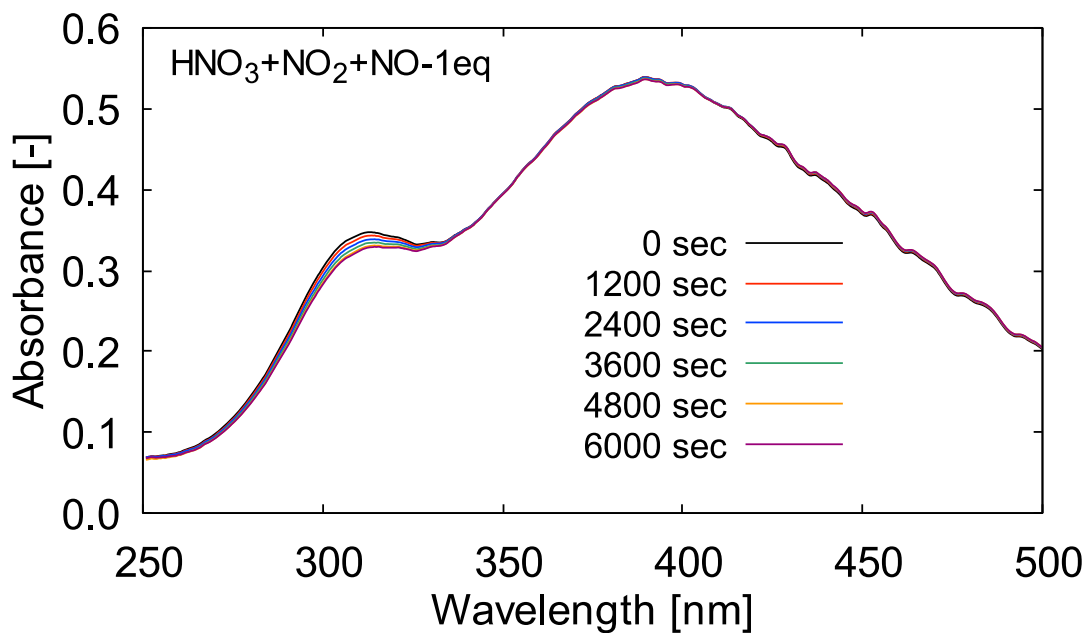


Fig. 21 UV/Vis スペクトル経時変化 (HNO₃+NO₂+NO-1eq)

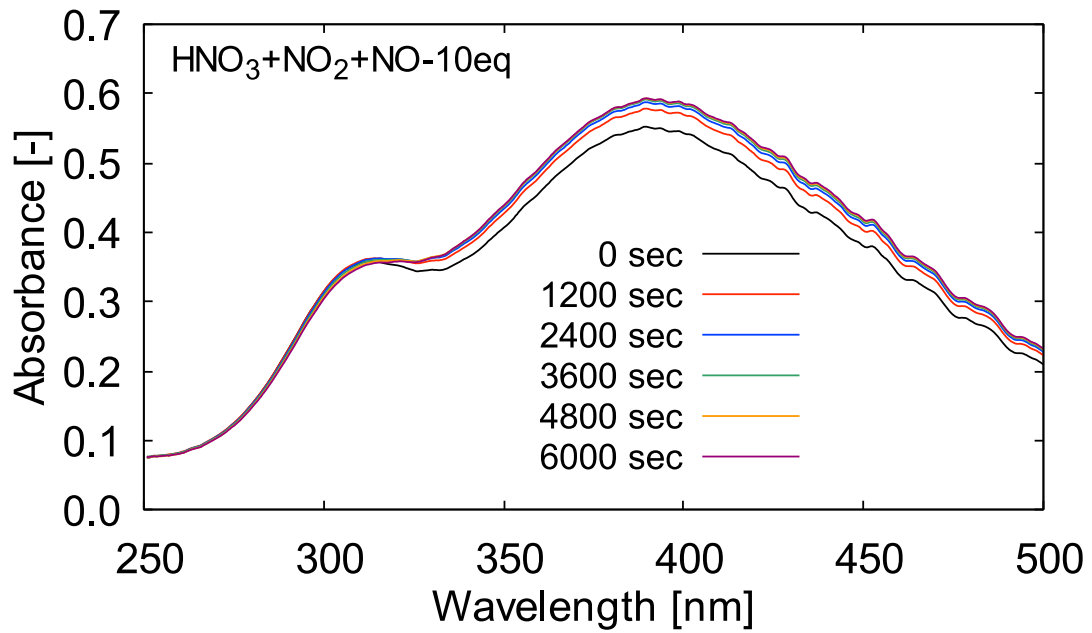


Fig. 22 UV/Vis スペクトル経時変化 ($\text{HNO}_3 + \text{NO}_2 + \text{NO}$ -10eq)

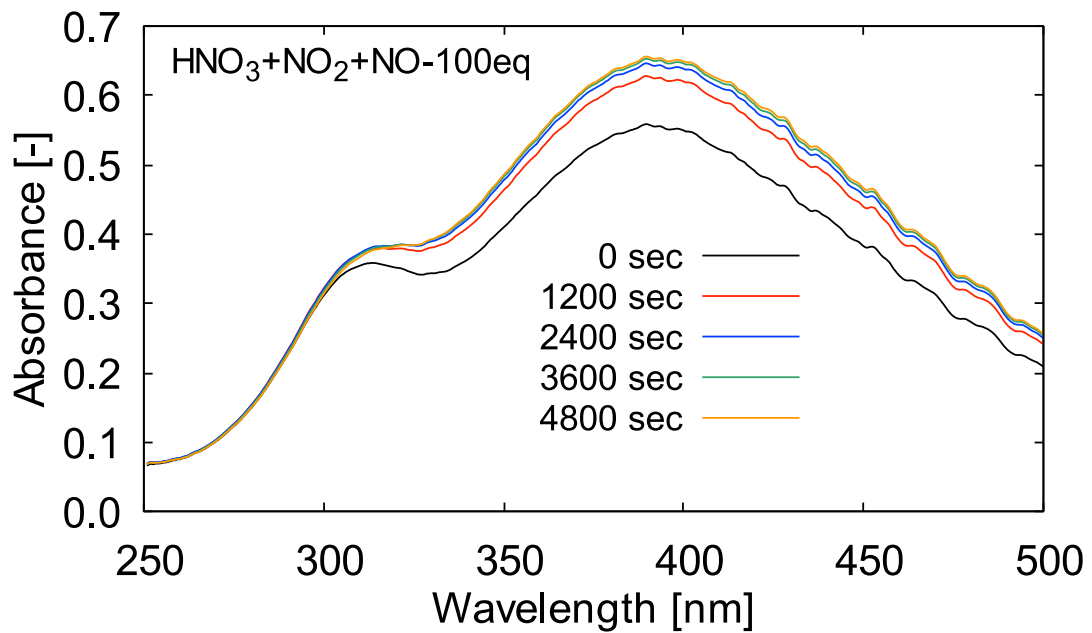


Fig. 23 UV/Vis スペクトル経時変化 ($\text{HNO}_3 + \text{NO}_2 + \text{NO}$ -100eq)

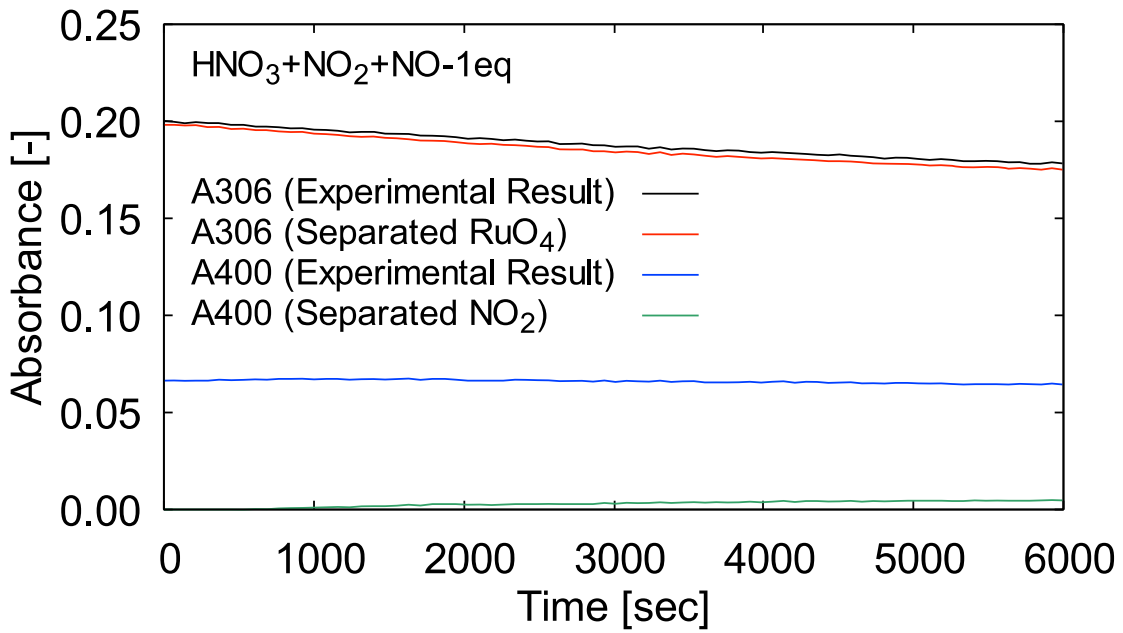


Fig. 24 スペクトル分離後の RuO₄ 及び NO₂ の吸光度変化 (HNO₃+ NO₂+NO-1eq)

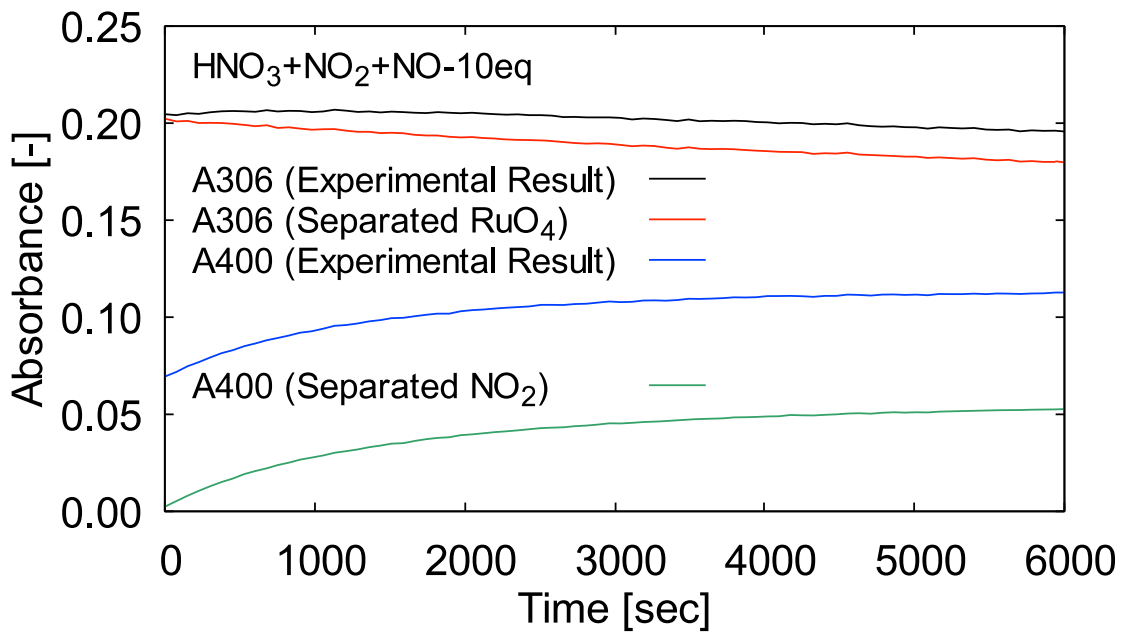


Fig. 25 スペクトル分離後の RuO₄ 及び NO₂ の吸光度変化 (HNO₃+ NO₂+NO-10eq)

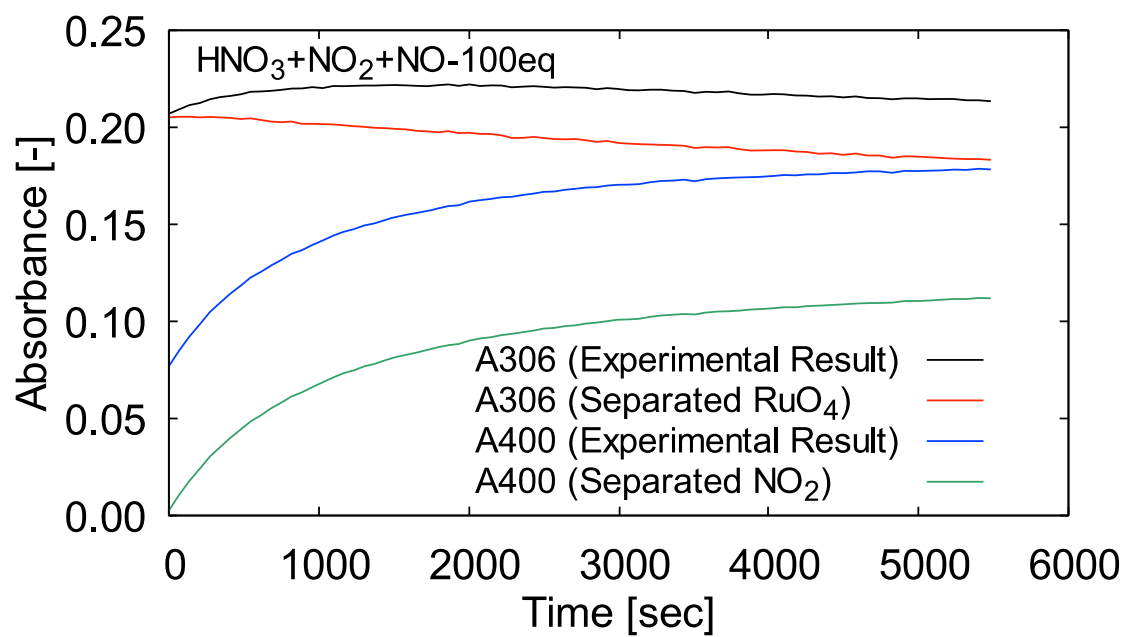


Fig. 26 スペクトル分離後の RuO_4 及び NO_2 の吸光度変化 ($\text{HNO}_3 + \text{NO}_2 + \text{NO}$ -100eq)

4. 考察

4.1. NO_x 及び水蒸気を含む気相中での $\text{RuO}_4(\text{g})$ の分解挙動

各試験における $\text{RuO}_4(\text{g})$ の残存率の経時変化を Fig. 27 に示す。ここで $\text{RuO}_4(\text{g})$ の残存率とは、ある測定時間で計測された吸光度を、ゼロ秒における吸光度で除したものである。Fig. 27 では、比較のため既往の研究¹⁵⁾で得られた乾燥空気及び水蒸気中での試験結果も併記した。図中の Air-120 は文献¹⁵⁾の乾燥空気 120 °C 条件での試験結果、 H_2O -120 は水蒸気 120 °C 条件での試験結果にそれぞれ対応している。結果を比較すると、 $\text{RuO}_4(\text{g})$ の分解速度は、 NO_2 -120 < NO-120 < NO+ H_2O < Air-120 < H_2O -120 の順であった。3.3 及び 3.4 で述べたように、 NO_x ガスを用いた試験における $\text{RuO}_4(\text{g})$ の分解速度は、乾燥空気及び水蒸気を用いた試験よりも遅く、 NO_x が $\text{RuO}_4(\text{g})$ の安定化に寄与していることを示す結果となった。

また、乾燥空気や水蒸気を共存ガスとした試験では、徐々に分解速度が大きくなるような、自己触媒的な $\text{RuO}_4(\text{g})$ の分解が観測されている¹⁵⁾ が、 NO_x を添加した本試験系では観測されなかった。

NO+ H_2O 及び NO_2 + H_2O 試験では NO-120 や NO_2 -120 試験よりも $\text{RuO}_4(\text{g})$ の分解速度がやや早い。これは NO_x による分解反応の抑制と、水蒸気による分解反応の促進が競合した結果であると考えられる。一方で、 NO_x と水蒸気が反応することで微量の硝酸が形成され、 $\text{RuO}_4(\text{g})$ を安定化するような現象は観測されなかった。

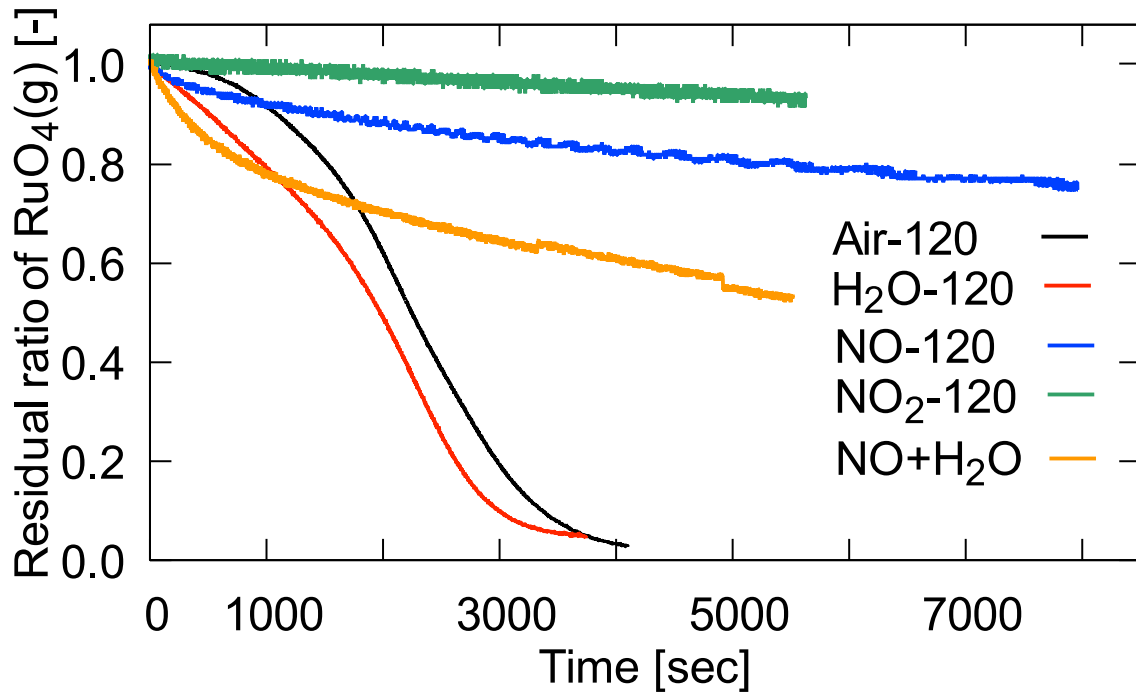


Fig. 27 各試験^{*}における RuO₄(g)の残存率経時変化の比較

^{*}Air-120 及び H₂O-120 試験は文献¹⁵⁾の試験結果を抜粋したもの。

4.2. NO_xの化学当量と RuO₄(g)の安定化効果の関係

硝酸含有水蒸気と NO₂が含まれる気相条件とし、NO₂の化学当量をパラメータとした試験である HNO₃+NO₂-0eq、HNO₃+NO₂-7.5eq、HNO₃+NO₂-10eq の試験結果を Fig. 28 に示す。NO₂の化学当量が多いほど RuO₄(g) の減少速度が遅い傾向が見られた。このことから、NO₂には RuO₄の分解を阻害する効果があり、NO₂の化学当量と RuO₄の分解速度には相関があることが分かる。

10 当量程度の NO₂を添加した系でも RuO₄(g)の安定化効果が観測された。一方で、文献¹⁵⁾において、硝酸を 1 当量程度添加した系では RuO₄(g)の分解はほぼ観測されていないことから、RuO₄(g)に対する NO₂の安定化効果は、モル比で考えた場合 HNO₃よりも一桁以上弱いものであると考察される。

硝酸含有水蒸気と NO₂、NO が含まれる気相条件とし、NO の化学当量をパラメータとした試験である、HNO₃+NO₂-7.5eq、HNO₃+NO₂+NO-1eq、HNO₃+NO₂+NO-10eq、HNO₃+NO₂+NO-100eq について、結果を Fig. 29 に示す。RuO₄(g)の減少速度を比較すると、NO を添加していない HNO₃+NO₂-7.5eq よりも、NO を添加した HNO₃+NO₂+NO-1eq ~ HNO₃+NO₂+NO-100eq の速度が僅かながら遅く、NO にも微弱ながら RuO₄(g)の安定化効果が存在することが示唆された。NO と空気中の酸素が反応することで NO₂が生成し、それが RuO₄を安定化していることも考えられるが、HNO₃+NO₂+NO-1eq ~ HNO₃+NO₂+NO-100eq における NO₂の生成量は HNO₃+NO₂+NO-1eq < HNO₃+NO₂+NO-10eq < HNO₃+NO₂+NO-100eq である一方で (Fig. 21~Fig. 26)、RuO₄(g)の分解挙動には殆ど差が見られない。このことから、NO を添加した試験系の中では HNO₃や NO₂とは異なる機構の RuO₄(g)の安定化効果がある可能性がある。しかしながら、蒸発乾固事故事象の中で生じると考えられる NO の量は HNO₃や NO₂と比べれば少量であり、本試験で観測された程度の効果であれば実事象での影響は支配的なものではなく、微弱なものであると考察される。

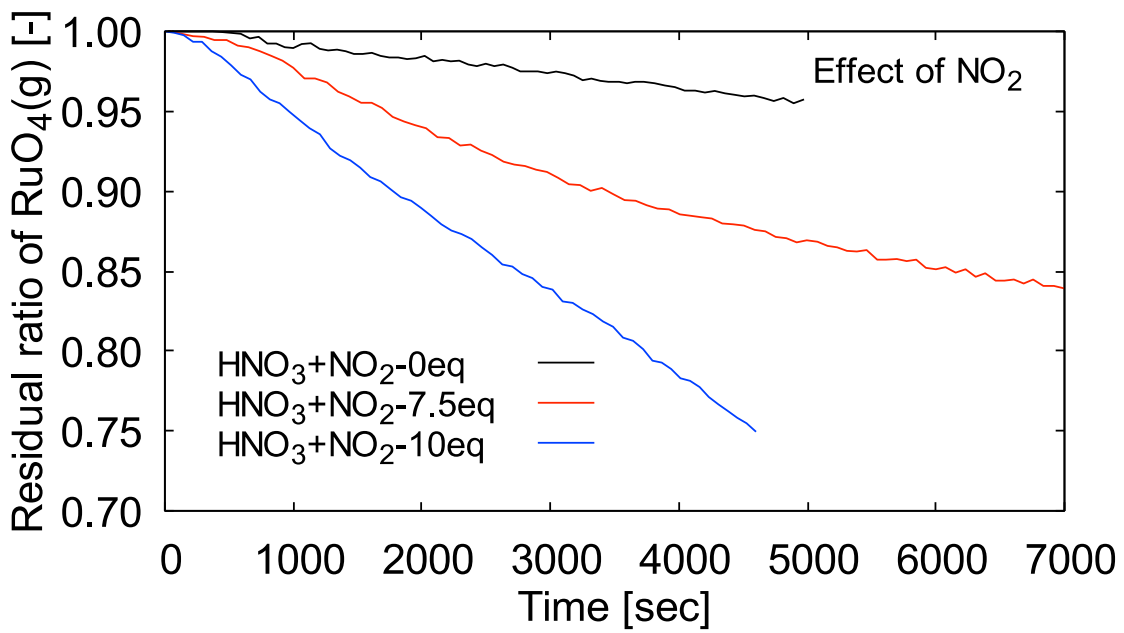


Fig. 28 NO₂の化学当量と RuO₄(g)の分解挙動の関係

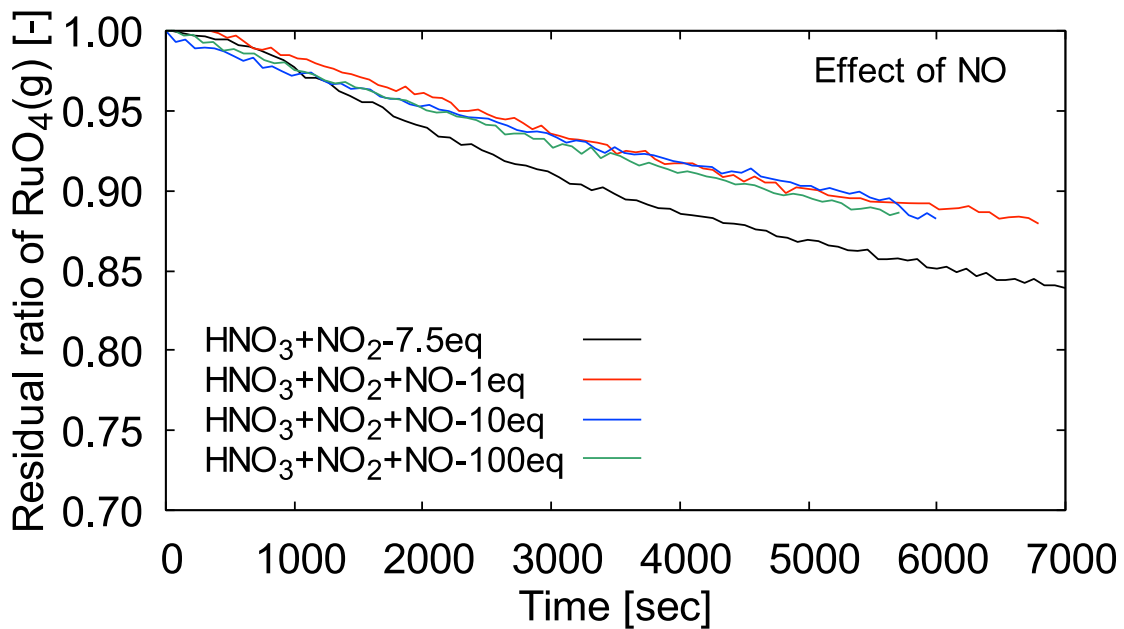


Fig. 29 NOの化学当量と RuO₄(g)の分解挙動の関係

5. 結言

本研究では、蒸発乾固事故を想定した $\text{RuO}_4(\text{g})$ の化学形変化挙動において、 NO 及び NO_2 が与える影響を実験的に評価した。結果として、以下の知見が得られた。

- ・ NO_x を添加した試験では、 NO_x を添加しなかった試験と比較して $\text{RuO}_4(\text{g})$ の分解速度は遅く、 NO_x による $\text{RuO}_4(\text{g})$ の安定化効果が観測された。
- ・ $\text{RuO}_4(\text{g})$ の安定化効果は、 $\text{HNO}_3 > \text{NO}_2 > \text{NO}$ であった。 NO_2 は添加量と $\text{RuO}_4(\text{g})$ の安定化の程度に相関が見られたが、 NO については観測されなかった。
- ・ 本研究で実施した一連の試験では、 $\text{RuO}_4(\text{g})$ の自己触媒的な分解は観測されなかった。 NO_x が本反応を阻害するためであると考察される。

これらの知見は、蒸発乾固事故時の放射性物質の詳細な閉じ込め評価のみならず、事故対策の立案や、その有効性評価への活用が期待される。

謝辞

本研究にご協力及びご助言を頂いたサイクル安全研究グループの各位、及び試験の実施において大きな貢献を頂いた真崎智郎氏、斉藤隆一氏に感謝申し上げます。

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) 【公開版】 , 2012.
- 2) 宮田 敬士, 武部 和巳, 玉内 義一, 中野 正直, 林 芳昭, 関根 啓二, 松岡 伸吾, 田中 太, 黒岩 克也, 黒須 勝也, 林 和也, 六ヶ所再処理工場の確率論的安全評価, (II)高レベル濃縮廃液沸とう事故の発生頻度評価(内的事象), 日本原子力学会和文論文誌, Vol.7, No.2, 2008, pp.85-98.
- 3) Mercier, J.P., Bonneval, F., Weber, M., Use of Probabilistic Safety Assessment for Nuclear Installations with Large Inventory of Radioactive Material, International Atomic Energy Agency, 1993, pp.95-107, IAEA-TECDOC-711.
- 4) 使用済燃料の再処理の事業に関する規則 (令和 2 年 3 月 17 日公布) , 第一条の三, 昭和

46 年総理府令第 10 号.

- 5) Philippe, M., Mercier, J. P., Gue, J. P., Behavior of ruthenium in the case of shutdown of the cooling system of HLLW storage tanks, Proc. 21st DOE/NRC Nuclear Air Cleaning Conference, 1991, pp.831-843.
- 6) Yamane, Y., Amano, Y., Tashiro, S., Abe, H., Uchiyama, G., Yoshida, K., Ishikawa, J., Release of radioactive materials from high active liquid waste in small-scale hot test for boiling accident in reprocessing plant., J. Nucl. Sci. Technol., Vol.53, 2019, pp.783-789.
- 7) Mun, C., Cantrel, L., Madic, C., Review of literature on ruthenium behavior in nuclear power plant severe accidents., Nucl. Technol., Vol.156, 2006, pp.332-346.
- 8) Kato, T., Usami, T., Tsukada, T., Shibata, Y., Kodama, T., Study on volatilization mechanism of ruthenium tetroxide from nitrosyl ruthenium nitrate by using mass spectrometer, J. Nucl. Mater., Vol.479, 2016, pp.123-129.
- 9) Griffith, W. P., The Chemistry of ruthenium oxidation complexes, Catalysis by Metal Complexes, Vol. 34, Springer Netherlands, 2010.
- 10) International Atomic Energy Agency, Design and operation of off-gas cleaning systems Technical Reports at high level liquid waste conditioning facilities, Technical Reports Series No. 291, STI/DOC/010/291, 1989.
- 11) Igarashi, H., Kato, K. & Takahashi, T., Effect of calcining temperature on volatilization of ruthenium in batch calcination of simulated high-level liquid waste, Radiochimica Acta, Vol.60, 1992, pp.143-148.
- 12) 「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」運営管理グループ, 再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究報告書, 2014.
- 13) 田代 信介, 天野 祐希, 吉田 一雄, 山根 祐一, 内山 軍蔵, 阿部 仁, 高レベル濃縮廃液の乾固過程におけるルテニウムの放出特性, 日本原子力学会和文論文誌, Vol.14, No.4, 2015, pp.227-234.
- 14) Yoshida, N., Ohno, T., Amano, Y., Abe, H., Migration behavior of gaseous ruthenium tetroxide under boiling and drying accident condition in reprocessing plant, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.55, 2018, pp.599-604.
- 15) Yoshida, N., Ono, T., Yoshida, R., Amano, Y., Abe, H., Decomposition behavior of gaseous ruthenium tetroxide under atmospheric conditions assuming evaporation to dryness accident of high-level liquid waste, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.57, 2020, pp.1256-1264.

- 16) 天野 祐希, 渡邊 浩二, 田代 信介, 山根 祐一, 石川 淳, 吉田 一雄, 内山 軍蔵, 阿部 仁, 高レベル濃縮廃液中硝酸塩の熱分解に伴う窒素酸化物発生挙動, 日本原子力学会和文論文誌, Vol.14, No.2, 2015, pp.86-94.
- 17) 日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度原子力施設等防災対策等委託費 (再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等) 事業, 事業報告書, 2018.
- 18) Tashiro, S., Uchiyama, G., Amano, Y., Abe, H., Yamane, Y., Yoshida, K., Release of radioactive materials from simulated high-level liquid waste at boiling accident in reprocessing plant., Nucl. Technol., Vol.190, No.2, 2015, pp.207-213.

This is a blank page.

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량	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
比透磁率 ^(b)	(数字の)	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 ^(e)	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	S	A/V	m ² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	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)	°C		K
光照射度	ルーメン	lm	cd sr ^(e)	cd
放射線量	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
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
酸素活性化	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間には1:1の関係がある。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
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ = s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² = s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ 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	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	ジュール毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ = m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	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
	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 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm 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 ⁵ Pa
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
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ¹² cm ²) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的關係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	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 ⁴ cd m ⁻²
フォトル	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G 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 _e =(10 ³ /4π)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「△」は対応關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	f	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	cal	1 cal=4.1858J (「15°C」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
マイクロ	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

