JAEA-Testing
2014-001

放射性核種含有溶液の床材・壁材に対する浸透挙動

Penetration Behavior of Solution Containing Radioactive Nuclides into Floor and Wall Materials

臼杵 俊之　佐藤 勇　須藤 光雄　前田 宏治
逢坂 正彦　小山 真一　所 大志郎　関岡 健
石ヶ森 俊夫

Toshiyuki USUKI, Isamu SATO, Mitsuo SUTO, Koji MAEDA
Masahiko OSAKA, Shinichi KOYAMA, Daishiro TOKORO, Ken SEKIOKA
and Toshio ISHIGAMORI

大洗研究開発センター
福島燃料材料試験部

Fukushima Fuels and Materials Department
Oarai Research and Development Center

May 2014

Japan Atomic Energy Agency　日本原子力研究開発機構

JAEA-Testing

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, 2014

JAEA-Testing 2014-001

放射性核種含有溶液の床材・壁材に対する浸透挙動

日本原子力研究開発機構　大洗研究開発センター
福島燃料材料試験部

臼杵　俊之、佐藤　勇、須藤　光雄※1、前田　宏治、逢坂　正彦+1、小山　真一、
所　大志郎*1、関岡　健*1、石ヶ森　俊夫*1

(2014 年 1 月 20 日受理)

福島第一原子力発電所の原子炉建屋内における床材・壁材の汚染性状把握に関する基礎データを得るため、放射性核種を含む溶液を用いた浸透試験を実施した。照射済燃料から調製した放射性核種含有溶液を、エポキシ系塗料試料、乾燥しているコンクリート試料およびモルタル試料に塗布し、研磨および放射線測定を繰り返し、深さ方向の線量率プロファイルを取得した。

エポキシ系塗料試料に関しては、放射性核種は浸透せず、深さ 0.4 mm 以内にとどまっていることが確認された。コンクリート試料に関しては、放射性核種の浸透が確認され、本試験条件においては、約 2 mm の研磨で線量率がバックグラウンドまで低減することが確認された。また、γ線スペクトロメトリより、表面付近での核種の違いによる浸透挙動の違いが確認され、乾燥状態のコンクリートまたはモルタルに対する溶液を介した放射性物質の浸透挙動は、表面近傍においては定量的に膨潤状態の同媒体に対するイオンの移行挙動と大きく変わらないことを示した。

大洗研究開発センター：　〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002
+1 大洗研究開発センター　大洗研福島技術開発特別チーム
※1 技術開発協力員
＊1 検査開発株式会社

JAEA-Testing 2014-001

Penetration Behavior of Solution Containing Radioactive Nuclides into Floor and Wall Materials

Toshiyuki USUKI, Isamu SATO, Mitsuo SUTO※1, Koji MAEDA, Masahiko OSAKA+1,
Shinichi KOYAMA,
Daishiro TOKORO*1, Ken SEKIOKA*1 and Toshio ISHIGAMORI*1

Fukushima Fuels and Materials Department, Oarai Research and Development Center,
Japan Atomic Energy Agency
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received January 20, 2014)

The penetration tests with solution containing radioactive nuclides were experimented to understand basic data for floor and wall materials of Fukushima Daiichi reactor buildings. The solution prepared from irradiated fuels was used as solution containing radioactive nuclides. The solution was applied to surface of epoxy paint, dried concrete and mortar used as specimens. Dose-rate profiles of direction of depth were given by radiation measurement and grinding of the specimens.

The penetrations of radioactive nuclides for epoxy paint specimens were not clearly observed and the penetration depths would be within 0.4 mm. The penetrations of radioactive nuclides for dried concrete specimens proceeded. The penetration rates were substantially decreased when 16 days have elapsed from start. The dose rates of penetrated dried concrete specimens were reduced to background by grinding-2.0 mm. γ-ray spectrometry measurement showed that penetration behavior of near surface concrete is different among nuclides and the penetration behavior of radioactive nuclides into dried concrete and mortar materials through solution is similar to migration behavior of ions into those water-saturated materials.

Keyword: Penetration Test, Dose-rate Measurement, Concrete, Epoxy Paint, Mortar

---

+1 Fukushima Project Teams, Oarai Research and Development Center
※1 Collaborating Engineer
＊1 Inspection Development Company Ltd.

目次

1. 背景・目的 1
2. 試験方法 1
2.1 放射性核種含有溶液の調製 2
2.2 浸透試料の作製 2
2.3 放射性核種含有溶液の試料への浸透 3
2.4 線量率の深さ方向分布 3
3. 試験結果 4
3.1 深さ方向の線量率プロファイル(Type A) 4
3.2 深さ方向の線量率プロファイル(Type B) 4
3.3 コンクリート試料(Type A)の IP 測定 5
3.4 コンクリート試料(Type A)のγ線スペクトロメトリ 5
4. まとめ 7
謝辞 7
参考文献 8

Contents

1. Introduction 1
2. Experiment 1
2.1 Preparation of solution containing radioactive nuclides 2
2.2 Fabrication of penetration specimen 2
2.3 Penetration of solution containing radioactive nuclides into specimen 3
2.4 Dose rate measurement 3
3. Result 4
3.1 Dose rate measurement (Type A) 4
3.2 Dose rate measurement (Type B) 4
3.3 Imaging plate measurement for concrete specimens (Type A) 5
3.4 Gamma spectrometry for concrete specimens (Type A) 5
4. Summary 7
Acknowledgement 7
References 8

表リスト

Table 1 主な機器の仕様 9
Table 2 放射性核種含有溶液γ線計測結果 10
Table 3 モルタル試料の主な仕様 10
Table 4 エポキシ系塗料試料の深さ方向の線量率 11
Table 5 コンクリート試料(Type A)の深さ方向の線量率 11
Table 6 モルタル試料の深さ方向の線量率 12
Table 7 コンクリート試料(Type B)の深さ方向の線量率 12
Table 8 γ放射核種の深さ方向の存在量 (3 日間浸透) 13
Table 9 γ放射核種の深さ方向の存在量 (16 日間浸透) 13
Table 10 γ放射核種の深さ方向の存在量 (58 日間浸透) 14

図リスト

Fig. 1 放射性核種含有溶液の調製 15
Fig. 2 Type A と Type B の試料体系 16
Fig. 3 放射性核種含溶液の試料への浸透試験手順 17
Fig. 4 研磨及び各測定の手順 18
Fig. 5 線量率測定及び IP 測定の様子 19
Fig. 6 回転研磨機の概略図 19
Fig. 7 エポキシ系塗料試料の深さ方向の線量率 20
Fig. 8 コンクリート試料(Type A)の深さ方向の線量率 20
Fig. 9 モルタル試料及びコンクリート試料(Type B)の深さ方向の線量率 21
Fig. 10 コンクリート試料(Type A)及びコンクリート試料(Type B)の深さ方向の線量率 22
Fig. 11 モルタル試料及びコンクリート試料(Type B)の画像解析 23
Fig. 12 モルタル試料及びコンクリート試料(Type B)の深さ方向の線量率
(セメント部面積割合 1%当り) 24
Fig. 13 IP 測定により取得したコンクリート試料(Type A)の線量率分布(16 日間浸透) 25
Fig. 14 IP 測定により取得したコンクリート試料(Type A)の線量率分布(58 日間浸透) 26
Fig. 15 γ放射核種の深さ方向の存在量プロファイル(3 日間浸透) 27
Fig. 16 γ放射核種の深さ方向の存在量プロファイル(16 日間浸透) 28
Fig. 17 γ放射核種の深さ方向の存在量プロファイル(58 日間浸透) 29

1. 背景・目的

福島第一原子力発電所(以下、1F とする)の原子炉建屋内は、放射性セシウム(以下、Cs とする)をはじめとする放射性物質により高線量になっている[1]。今後の 1F 各事故号機の廃炉に向けては、使用済燃料プールからの燃料取出し、原子炉圧力容器内や格納容器内に溶融落下した燃料デブリの取出しなどの作業が行われることになるが、そのためには原子炉圧力容器内や格納容器内の汚染状況の調査を行う必要がある。調査を行うためには、1F 建屋内に立入る作業員の被ばく低減の観点から、1F 建屋内の調査を行う場所まで作業員がアクセスするルートを除染し、放射線量の低減化を図ることが必要不可欠である。このため、1F 建屋内を作業員が立入ることなく遠隔作業にて作業員がアクセスするルートを除染する技術の開発が喫緊の課題になっており、課題解決には、汚染部位に応じた適切な除染技術を選定するための汚染性状の把握が重要となる[1]。汚染性状把握のため、1F 建屋内の床材・壁材の一部をサンプルとして入手し、それを評価するという試験が行われている [2]。しかし、汚染水内の各放射性核種の床材・壁材に対する浸透挙動についての基礎的な知見は得られていないのが現状である。

そこで本試験では、放射性核種の浸透挙動の基礎試験として、数種類の放射性核種(Cs-137、Eu-154、Am-241 等)を含む溶液(以下、放射性核種含有溶液とする)を短期間(最大 58 日間)浸透させた試料(以下、放射性核種浸透試料とする)の深さ方向の線量率プロファイルを測定し、溶液の浸透深さに対する溶液曝露時間や材質による依存性及び核種の違いによる浸透挙動の違い等を評価する。

2. 試験方法

本試験では、放射性核種含有溶液を床材・壁材を模擬した試料に接触させて放射性核種浸透試料を作製した。放射性核種浸透試料を用いて、試料表面の線量率測定及び研磨による線量率プロファイルの測定、研磨粉を用いたγ線スペクトロメトリ測定及び試料表面のイメージングプレート測定(以下、IP 測定とする)等による放射性核種浸透挙動試験を行った。

浸透させる溶液として、照射済み燃料から U、Pu を分離した核種の核分裂生成物（以下、FP とする）を含む放射性核種含有溶液を用いた。試料として、1F 建屋内の床材・壁材と同様の仕様を有するエポキシ系塗料(大日本塗料 エポニックス 下地:#3100AP NS プライマー、上地:エポニックス#3100APNSS)を用いた。また、1F の壁材の一部はコンクリートにエポキシ系塗料を塗装していない部分があり、コンクリート表面の乾燥が予想されることから、通常の湿潤しているコンクリートではなく、長期間コンクリート(原科研、旧再処理特別研究棟(昭和 42 年建設)で使用されていた壁材から平成 11 年度に採取)を用いた。

2.1 放射性核種含有溶液の調製

試験に用いる放射性核種含有溶液は、新型転換炉「ふげん」の照射済燃料(燃焼度 43.0 GWd/t、Pu 富化度 3.43 at%、主な仕様は[3]参照)を用いて調製した。一連の作業をフローシートにしたものを Fig. 1 に示す。

照射済燃料を 8 mol/l の硝酸で溶解したものから約 500 μl を分取した。核種の価数調整のため、分取した試料に過酸化水素(和光純薬、特級、濃度 30%)を 600 μl 添加し、ホットプレートを用いて蒸発乾固した。蒸発乾固した試料を 8 mol/l の硝酸 1 ml で溶解し、陰イオン交換樹脂(Bio-rad AG 1-x4 200-400 mesh)に着点した。これに対し 8 mol/l の硝酸(和光純薬、特級、1.38g/cm^3)3 ml を通液することで FP 等を溶離した。

溶離した FP 等を含む溶液を蒸発乾固した後、塩酸(和光純薬、特級、濃度 35～37%)に溶解及び蒸発乾固を繰り返し、塩化物とした。pH 値調整のため、塩化物となった試料に蒸留水と水酸化ナトリウム(和光純薬、特級、濃度 96%)を加え、pH 値 8.0 の水溶液とした。これは、1F 建屋内の溜まり水分析結果より、溜まり水の pH 値が 7～8 であること[4]及び一般的にセメント部に接触する水はアルカリ性であること[5]等を参考にした。pH 値は pH 値測定器(HORIBA B-212)を用いて求めた。また、γ線スペクトロメトリ分析装置（仕様は Table 1 参照）を用いて放射性核種含有溶液における各核種の放射能を測定した。測定結果を濃度とともに Table 2 に示す。検出された核種は Am-241、Cs-134、Cs-137、Eu-154、Eu-155 であり、アクチニド元素である Am-241 も含まれる。これは、Am イオンの性質上、樹脂に対して FP 元素と同様の溶離挙動を有するためである。

2.2 浸透試料の作製

放射性核種浸透試料として、エポキシ系塗料試料とコンクリート試料を用いた。これらの試料をそれぞれ 15 mm×15 mm×3 mm^t 及び 15 mm×15 mm×15 mm^t 程度の形状に成形した。これらをアクリル管(28 mmφ×22 mm)の中に、エポキシ系固定用樹脂を用いて Fig. 2 の Type A の試料のように、底面を塞いで固定した。この際、樹脂中の気泡を除去するため、固化中にデシケータを用いて真空により気泡抜きを行った。

また、以下の 2 点を確認するため、上述した試料とは異なる試料体系の試料を作製した。この試料体系では、試料底面を塞ぐことによる浸透挙動への影響を確認するため、試料底面を塞がずに固定した。また、セメントと骨材の割合の違いによる浸透挙動の影響を確認するため、供試料として、コンクリート試料とモルタル試料(Table 3 に主な仕様を示す)を用い、12.5 mm×10.5 mm×21 mm^t 程度の形状に成形した。Fig. 2 の Type B の試料のように、固定には内治具(20 mmφ×22 mm)とシリコンコーキングを用いた。また、モルタル試料及びコンクリート試料の上面と底面には、シリコンコーキング付着によって浸透に影響を与えないようにするために、試料固定前にメンディングテープを養生した。試料を固定する際には、水の移流によって生じる試料の膨張を妨げないために、柔らかいシリコンコーキングによる固定を行った。

2.3 放射性核種含有溶液の試料への浸透

Type A の供試料の作成から浸透試験までのフローシートを Fig. 3 に示す (Type B についても同様の手順で実施した)。

2.2 で作製した試料に、液だれ防止のため、シリコンコーキングを用いて同サイズのアクリル管を浸透面の上に接着した。その後、2.1 で調整した放射性核種含有溶液を試料に 2 ml 接触させた。さらに蒸発を防ぐため、フィルムでアクリル管をカバーした。この状態で Type A については、それぞれの試料を 3、16 及び 58 日間室温で放置した。また、Type B については、コンクリート試料は 3 及び 16 日間、モルタル試料は 16 日間室温で放置した。浸透期間終了後、マイクロピペットを用いて放射性核種含有溶液を除去し、室温で 1 日乾燥させた。その後、スパチュラでシリコンコーキングを除去し、アクリル管を取り外した。

Type B については、研磨に供する前に、研磨機の試料挿入穴のサイズと合わせるため、ねじを用いて治具(31.2 mmφ×22 mm)に装着し、研磨時に治具から外れることを防ぐために、試料の裏側をエポキシ樹脂で固定した。

2.4 線量率の深さ方向分布

研磨及び測定作業をフローシートで示したものを Fig. 4 に示す。研磨する前に、ポリ袋に封入後、浸透面に対してグローブポートについた PVC バッグ越しに放射線測定及びイメージングプレート測定 (仕様は Table 1 参照)により線量率分布を取得した(Fig. 5)。イメージングプレートは、放射線の強さに応じて蛍光を発する微粒子が塗布されており、その発光を計測することにより線量率分布を確認することができる[6]。感光時間は 3 分とした。本試験で用いる放射性核種含有溶液は、多くの核種を含んでいるため、多種類の放射線が放出されていると思われる。そのため、放射線計測にはエネルギー依存性が低く[7]、エネルギーの違いによる計測への影響を受けにくいため、多種類の放射線の測定に適している電離箱(仕様は Table 1 参照)を用いた。

Fig. 6 のように、回転研磨機(トビタ精機　T-BM01)にて、エポキシ系塗料試料に対しては #180 の耐水研磨紙を用いて 1 サイクルで 0.3~0.4 mm 程度を研磨した。また、コンクリート試料に対しては、#120 の耐水研磨紙を用いて 1 サイクルで 0.1~0.3 mm 程度を研磨した。

研磨した試料の厚さをノギスにより測定したのち、試料の浸透面に対して放射線測定及び IP 測定を行った。また、試料を PVC バッグから抜き取った後、PVC バッグのみによるバックグラウンド測定(以下、BG 測定とする)を行い、PVC バッグが汚染されていないことを確認した。その後、研磨、厚さ測定、放射線測定、IP 測定及び BG 測定を繰り返し、試料の深さ方向への線量率測定を行った。また、研磨した際に発生した研磨粉は、その都度バイアルに採取し、また、汚染を避けるため、ただちにポリ袋に収納した。採取後、重量測定及びγ線スペクトロメトリ分析を行った。

3. 試験結果

3.1 深さ方向の線量率プロファイル(Type A)

Table 4 及び 5 にエポキシ系塗料試料及びコンクリート試料における 3、16 及び 58 日間浸透試料の深さ方向の線量率測定結果を示す。また、Fig. 7 及び Fig. 8 にエポキシ系塗料試料及びコンクリート試料における深さ方向の線量率プロファイルを示す。

エポキシ系塗料試料については、1 サイクルの研磨で 1000 分の 1 以下まで線量率が低下し、バックグラウンドと同様の値となった。1 サイクルの研磨量が 0.3~0.4 mm であったことから、放射性核種の浸透はないか、深さ 0.4 mm 以内に限られると考えられる。

コンクリート試料については、放射性核種の浸透が確認されたが、線量率は深さとともに減少した。バックグラウンドまで線量率を低下させるには、約 2 mm の研磨が必要であった。浸透深さ 0.5 mm 以降においては、3 日間に比べて 16 及び 58 日間浸透させた試料は若干線量率が高く、放射性核種がより深く浸透したと考えられる。

3.2 深さ方向の線量率プロファイル(Type B)

Table 6、7 及び Fig. 9 にモルタル試料及びコンクリート試料(Type B)の深さ方向の線量率及び線量率プロファイルを示す。コンクリート試料については、Type A と同様に 16 日間浸透試料のほうが 3 日間浸透試料よりも深く浸透することが確認された。また、モルタル試料とコンクリート試料の 16 日間浸透試料の線量率プロファイルの結果から、モルタル試料は、コンクリート試料より浸透しやすいことが確認された。また、Fig. 10 にコンクリート試料(Type A)及びコンクリート試料(Type B)の深さ方向の線量率プロファイルを示す。コンクリート試料(Type B)については、コンクリート試料(Type A)とほぼ同様の線量率プロファイルが得られ、試料体系の違いによるプロファイルの違いは確認されなかった。これは、Type A の試料で懸念されていた浸透面の反対側の面を閉じることにより試料の内圧によって浸透速度が低下するという現象がないことを示している。したがって、本試験で作製した Type A 及び Type B の試料で同様の放射性核種の浸透挙動が観察することができ、これらの試験体系には浸透条件に差異がなく、コンクリート等に対する浸透挙動を評価する上で適切であることが確認された。

コンクリート試料及びモルタル試料の骨材及びセメントの存在割合が浸透挙動に及ぼす影響を調べるため、コンクリート試料(Type B)及びモルタル試料のそれぞれの写真データと画像解析ソフト(NIH image J)を用いてコンクリート試料とモルタル試料のそれぞれに占める骨材及びセメントの面積割合を算出した。結果を Fig. 11 に示す。コンクリート試料(Type B)のセメント部の面積割合は 48%(骨材部 52%)、モルタル試料のセメント部の面積割合は 70%(骨材部 30%)であった。研磨を行ってもこれらの面積割合が変化せず、また、放射性核種がセメント部へのみ浸透していると仮定すると、コンクリート試料(Type B)及びモルタル

試料のセメント部面積割合 1%当りの深さ方向の線量率プロファイルは Fig. 12 のようになる。この結果を見ると、モルタル試料の深さ方向の線量率の値は、コンクリート試料(Type B)の線量率の値に近く、線量率プロファイルも近い傾向を示した。このことから、モルタル試料とコンクリート試料の浸透挙動の違い(核種浸透量の差異)は、セメント部の面積割合の違いに依るところが大きく、コンクリート試料の浸透挙動は、骨材及びセメントの存在割合が影響することが推察される。ところで、本試験で使用したコンクリート試料とモルタル試料は、原料からの製造条件を整えて用意されたものではないが、この製造条件を整え、用意した同様の試験例がある[8]。この報告では、セメントと砂(骨材と等価)の割合をパラメータに絶乾状態のコンクリートに対する水の浸透挙動を評価しているが、セメント割合が高い方が遅い浸透速度を示す傾向にある(同時に、セメント割合と反比例して、含水割合が低くなるという複雑な性状も示されている)。これらの事実を踏まえると、本試験でのコンクリート試料とモルタル試料における浸透速度の定量的な比較は、困難であることが予想され、コンクリート試料とモルタル試料の製造条件の差から生じる気泡やひび割れの状態の差から生じる浸透挙動の差異であることが考えられる。

3.3 コンクリート試料(Type A)の IP 測定

Fig. 13 及び Fig. 14 に IP 測定によって取得された浸透期間 16 及び 58 日間のコンクリート試料(Type A)に対する線量率分布を示す。赤が最も線量率が高く、黄、緑、青の順に線量率が下がっていく。骨材の部分は、線量率が低く、セメント部より放射性核種の浸透が少ない。このことから、放射性核種の浸透はコンクリート試料の骨材割合に依存していることがわかる。また、Fig. 14 の画像の右上部分のように、一部分にセメント部位にもかかわらず、感光が乏しい部分がみられるが、これは、試料固定用エポキシ樹脂がセメントのオープンポアに入りこんで放射性核種含有溶液の浸透を阻害していることなどが考えられる。

3.4 コンクリート試料(Type A)のγ線スペクトロメトリ

Table 8～10 に浸透期間 3、16 及び 58 日間のコンクリート試料(Type A)の研磨粉について、γ線スペクトロメトリより求めた単位重量あたりの研磨粉に含まれる核種重量を浸透期間ごとに示す。また、Fig. 15～17 に単位重量あたりの研磨粉に含まれる核種重量に対して規格化した値を、浸透深さでプロットしたグラフを Type A の試料に関して示す。どの浸透期間においても、表面付近における Cs のプロファイルは、Eu 及び Am に比べて緩やかに減少していった。深さ 0.5～1.0 mm においては、同様のプロファイルであった。乾燥したコンクリートやモルタルに放射性核種が水を介して浸透する場合、2 つのメカニズムが競合することが知られている。一つは溶液中のイオンの拡散であり、もう一つは溶液の移流である。一般にこれらをまとめて、移流拡散方程式で扱われる[9]。コンクリートに水があらかじめ存在している場合は拡散過程が律速する。この場合、拡散プロファイルはフィックの法則

に従い、核種ごとの見かけの拡散係数に依存したものとなる。Eu と Am の見かけの拡散係数には大きな差はないが、これらのイオンと Cs の見かけの拡散係数には 2 桁ほどの開きがあることが報告されており[10]、表面付近における本試験結果は同様の傾向を示している。これは本試験では、乾燥したコンクリート試料を用いているが、表面付近は比較的短時間で水を含んだ状態となり、浸透メカニズムが拡散に依存したためと考えられる。深い部分については、表面付近とは異なり、コンクリートが乾燥していることによって溶液の移流による影響を大きく受けていることが考えられるが、その詳細を理解するには、コンクリートやモルタルの特性を分析する必要がある。

4. まとめ

新型転換炉「ふげん」の照射済燃料から調製した放射性核種含有溶液を、エポキシ系塗料試料、乾燥しているコンクリート試料およびモルタル試料に塗布し、研磨および放射線測定を繰り返し、深さ方向の線量率プロファイルを取得した。

その結果、本試験では放射性核種のコンクリート等への浸透挙動を適切な方法で観察することができた。具体的にはエポキシ系塗料試料について、本試験条件においては、放射性核種は浸透せず、深さ 0.4 mm 以内にとどまっていることが確認された。また、コンクリート試料について、深さ方向への放射性核種の浸透が確認されたが、線量率は深さとともに減少した。本試験条件においては、バックグラウンドまで線量率を下げるには約 2 mm 削ればよいという知見が得られた。また、研磨粉を用いたγ線スペクトロメトリ測定より、コンクリート試料表面付近では、核種によって浸透挙動が異なることが確認された。乾燥状態のコンクリートまたはモルタルに対する溶液を介した放射性物質の浸透挙動は、表面近傍においては定量的に膨潤状態の同媒体に対するイオンの移行挙動と大きく変わらないことを示した。これは、1F 建屋内におけるコンクリート等の床材への水溶液を介した核種移行が拡散律速となる可能性を示すもので、除染作業の際ハツリ深さ見積等に有用な情報となると考えられる。

本試験ではコンクリート等への放射性物質の浸透挙動を定量的に評価する試験方法と分析方法が実証され、代表的な床材または壁材の放射性物質の汚染状況を示す基礎的な情報を得ることができた。

謝辞

本報告書を作成するにあたって、種々の助言をいただきました大洗研究開発センター・福島燃料材料試験部の浅賀健男氏、大森雄氏、田中康介氏及び核燃料サイクル工学研究所・福島技術開発特別チームの金山文彦氏に対して深く感謝の意を表します。

参考文献

[1] 経済産業省発表資料, 東京電力（株）福島第一原子力発電所 1～4 号機の廃止措置等に向けた研究開発計画について, http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/120730/120730_02h.pdf

[2] 熊井美咲 他, 「建屋内の遠隔除染技術の開発」基礎データ取得結果 4 サンプル詳細分析結果 日本原子力学会, 2013 年春の年会予稿集 D35(2013).

[3] 生澤佳久 他, 「ふげん」照射用ガドリニア燃料集合体の照射後試験報告書(Ⅲ)最終報告書, JNC TN8410 2005-012, (2005).

[4] 東京電力発表資料, タービン建屋溜まり水分析結果(JAEA), http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_110522_04-j.pdf

[5] 槇谷栄次著, よくわかるコンクリートの劣化と補修, 森北出版, 2004, p.33.

[6] 飯田博美編, 放射線概論, 通商産業研究社, 1989, p.311.

[7] 日本アイソトープ協会編, 放射線安全管理の実際, 丸善, 2006, p.65.

[8] 小池賢太郎 他, 「モルタル中の水分移動が塩分浸透に及ぼす影響」, コンクリート中の鋼材の腐食性評価と防食技術研究小委員会(338 委員会)成果報告書(その 2)およびシンポジウム論文集, Vol.コンクリート技術シリーズ No.99, pp.333-338, (2012).

[9] 齋藤大作、星清、「移流拡散方程式の解析解(1)」開発土木研究所月報第 533 号、寒地土木研究所 (1997).

[10] 柴田雅博 他, 地層処分研究開発第 2 次取りまとめにおける緩衝材への放射性元素の分配係数の設定, JNC TN8400 99-072,(1999).

Table 1 主な機器の仕様

	メーカー	検出器	分解能	相対効率	測定可能 エネルギー範囲	備考
γ線スペクトロメトリ 分析装置	ORTEC	GMX20 P2	at 5.9keV ≦650eV at 1.33MeV ≦1.90keV	20%	3keV～10MeV	エネルギー範囲は3keV～2MeVに設定し測定に供した
	メーカー	型式	読み取り装置	読み取りソフト	読み取り条件	
イメージングプレート	General Electric Company	BAS IP SR-2040	フルオロ・イメージアナライザー FLA-5100	Image Reader FLA-5000	Gradation：16 bit Resolution：50 μm Laser：635 nm	
検出器等	メーカー	型式	効率	校正定数 又は換算計数	校正日	
電離箱線量計	応用技研	AE-133	-	1.0	2011.11.4	

Table 2 放射性核種含有溶液γ線計測結果

	放射能*1 (Bq)	放射能濃度 (Bq/ml)	重量 (μg)	濃度 (μg/ml)
Am-241	3.52E+05	1.76E+04	2.77E+00	1.39E-01
Cs-134	7.58E+04	3.79E+03	1.58E-03	7.91E-05
Cs-137	1.03E+07	5.13E+05	3.19E+00	1.59E-01
Eu-154	2.60E+05	1.30E+04	1.03E-01	5.17E-03
Eu-155	6.88E+04	3.44E+03	3.99E-03	2.00E-04

*1：放射性核種等含有溶液20 ml当たりの放射能

Table 3 モルタル試料の主な仕様

メーカー			手塚セメント製品工業所
製造時期			平成24年2月
寸法			50×50×20 mm
重量比			セメント：砕砂：水 2：4：1
骨材	砕砂密度		2.63 g/cm^3
	砕砂吸水率		1.32%
セメント	種類		普通ポルトランド
	密度		3.15 g/cm^3
	化学成分	酸化マグネシウム	1.14%
		三酸化硫黄	2.13%
		強熱減量成分	0.87%
		全アルカリ	0.61%
		塩化物イオン	0.016%

Table 4 エポキシ系塗料試料の深さ方向の線量率

3日間浸透		16日間浸透		58日間浸透	
浸透深さ (mm)	線量率 (μSv/h)	浸透深さ (mm)	線量率 (μSv/h)	浸透深さ (mm)	線量率 (μSv/h)
0.00	109.7	0.00	99.7	0.00	69.6
0.35	0.1	0.35	0.0	0.35	0.1
0.85	0.0	0.70	0.0	0.70	0.0
1.20	0.0				

Table 5 コンクリート試料(Type A)の深さ方向の線量率

3日間浸透		16日間浸透		58日間浸透	
浸透深さ (mm)	線量率 (μSv/h)	浸透深さ (mm)	線量率 (μSv/h)	浸透深さ (mm)	線量率 (μSv/h)
0.00	209.7	0.00	199.7	0.00	169.8
0.25	74.7	0.15	84.7	0.10	84.7
0.35	39.8	0.30	49.6	0.25	44.6
0.50	16.9	0.40	27.6	0.40	19.7
0.60	7.1	0.60	14.7	0.60	11.7
0.75	3.8	0.70	7.6	0.75	6.1
0.85	1.7	0.95	5.1	1.00	3.8
0.95	0.7	1.15	3.0	1.15	2.3
		1.25	1.7	1.40	1.4
		1.45	1.1	1.55	0.7
		1.75	0.5	1.70	0.0
		2.05	0.0		

Table 6 モルタル試料の深さ方向の線量率

16日間浸透	
浸透深さ (mm)	線量率 (μSv/h)
0.00	67.0
0.55	17.0
0.80	8.5
1.05	3.8
1.40	1.4
1.70	0.5
2.05	0.7

Table 7 コンクリート試料(Type B)の深さ方向の線量率

3日間浸透		16日間浸透	
浸透深さ (mm)	線量率 (μSv/h)	浸透深さ (mm)	線量率 (μSv/h)
0.00	80.0	0.00	78.0
0.30	5.5	0.25	18.0
0.35	2.9	0.60	7.5
0.50	1.4	0.70	3.5
0.75	0.9	1.00	1.1
0.85	0.7	1.10	1.0
1.05	0.5	1.40	0.7
		1.60	0.5

Table 8 γ放射核種の深さ方向の存在量 (3 日間浸透)

浸透深さ (mm)	研磨粉単位重量当りの核種重量(mg)					
	Cs-134	Cs-137	Eu-154	Eu-155	Am-241	Am-243
0.25	3.87E-11	1.13E-07	2.07E-09	3.41E-10	1.50E-07	2.30E-08
0.35	1.31E-11	3.45E-08	2.36E-10	4.16E-11	1.72E-08	
0.50	9.28E-12	2.33E-08	1.10E-10	1.85E-11	5.77E-08	6.75E-09
0.60	2.20E-12	4.76E-09	6.55E-11	1.24E-11	1.23E-08	
0.75	1.60E-12	2.22E-09	1.22E-11	2.33E-12	2.68E-09	
0.85	9.09E-13	1.35E-09	9.53E-12	1.99E-12	1.88E-09	
0.95	7.27E-13	6.89E-10	6.72E-12	1.02E-12	1.65E-09	

Table 9 γ放射核種の深さ方向の存在量 (16 日間浸透)

浸透深さ (mm)	研磨粉単位重量当りの核種重量(mg)					
	Cs-134	Cs-137	Eu-154	Eu-155	Am-241	Am-243
0.15	9.49E-11	2.77E-07	3.96E-09	7.07E-10	3.04E-07	7.07E-08
0.30	5.59E-11	1.38E-07	3.69E-10	6.57E-11	5.10E-08	1.58E-08
0.40	2.50E-11	6.31E-08	1.72E-10	2.44E-11	1.54E-08	1.51E-08
0.60	1.37E-11	3.73E-08	5.91E-11	1.22E-11	2.50E-08	
0.70	7.47E-12	1.87E-08	5.48E-11	1.01E-11	6.15E-09	
0.95	3.31E-12	8.81E-09	4.12E-11	8.31E-12	5.49E-08	
1.15	1.45E-12	4.01E-09	2.00E-11	3.17E-12	6.94E-08	6.34E-10
1.25	1.52E-12	4.28E-09	2.34E-11	3.69E-12	2.07E-09	6.48E-10
1.45	7.50E-13	1.05E-09	7.13E-12	1.18E-12	2.60E-09	
1.75	7.12E-13	1.34E-09	1.09E-11	2.10E-12	2.31E-09	
2.05	4.40E-13	8.49E-10	6.97E-12	1.39E-12	1.21E-09	2.19E-10

Table 10 γ放射核種の深さ方向の存在量 (58 日間浸透)

浸透深さ (mm)	研磨粉単位重量当りの核種重量(mg)					
	Cs-134	Cs-137	Eu-154	Eu-155	Am-241	Am-243
0.10	2.10E-11	4.94E-08	1.30E-09	2.28E-10	1.12E-07	2.74E-08
0.25	3.96E-11	1.05E-07	2.29E-10	3.46E-11	2.49E-08	
0.40	2.56E-11	6.77E-08	7.45E-11	1.28E-11	3.79E-08	
0.60	8.82E-12	2.30E-08	4.60E-11	5.66E-12	6.12E-09	2.42E-09
0.75	5.42E-12	1.32E-08	4.40E-11	7.73E-12	6.36E-09	1.28E-09
1.00	1.15E-11	2.90E-08	7.64E-11	1.29E-11	5.48E-08	
1.15	1.58E-12	3.52E-09	1.66E-11	3.18E-12	1.41E-08	
1.40	7.12E-13	1.57E-09	8.56E-12	1.57E-12	1.66E-09	
1.55	6.90E-13	1.34E-09	1.12E-11	1.60E-12	1.94E-09	6.11E-10
1.70	6.23E-13	9.51E-10	7.79E-12	1.18E-12	1.12E-08	3.54E-10

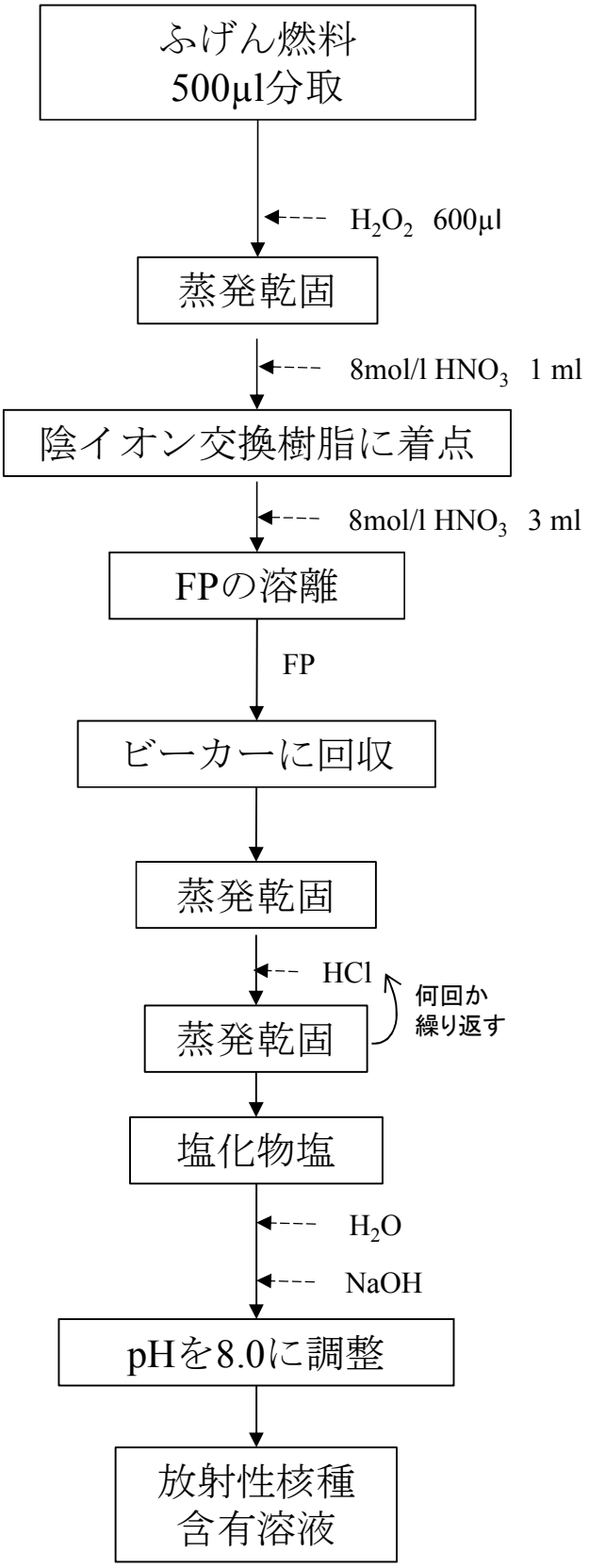


Fig. 1 放射性核種含有溶液の調製

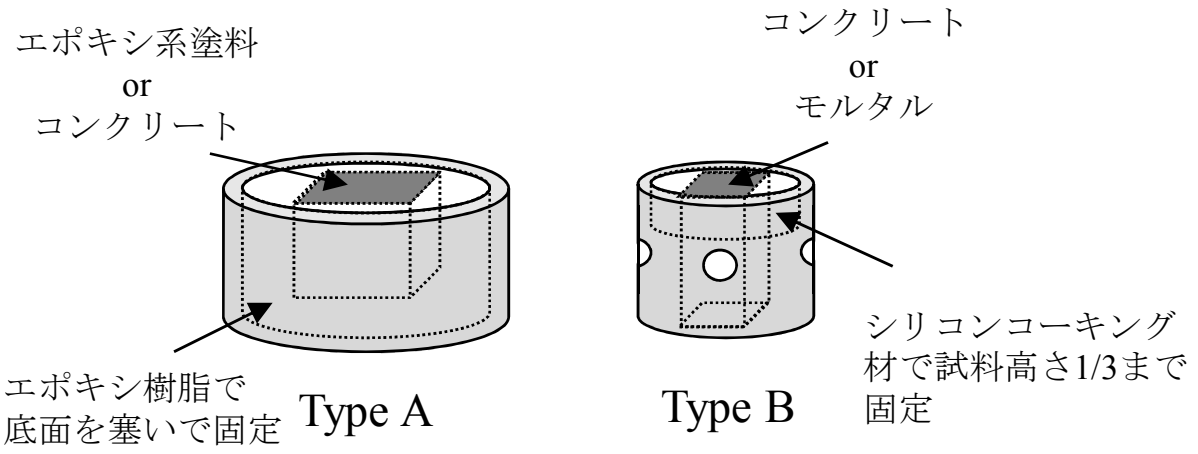


Fig. 2 Type A と Type B の試料体系

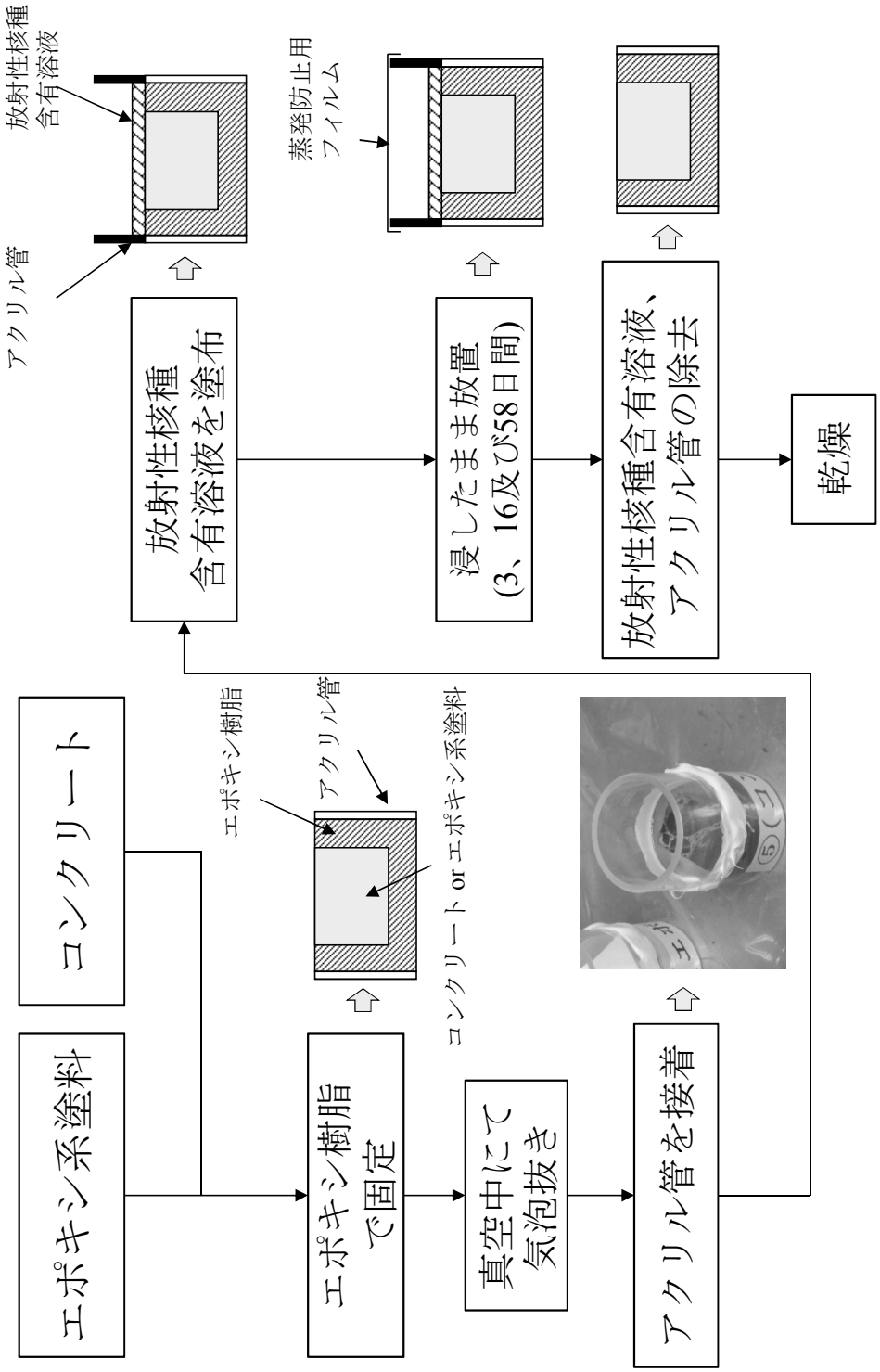


Fig. 3 放射性核種含有溶液の試料への浸透試験手順

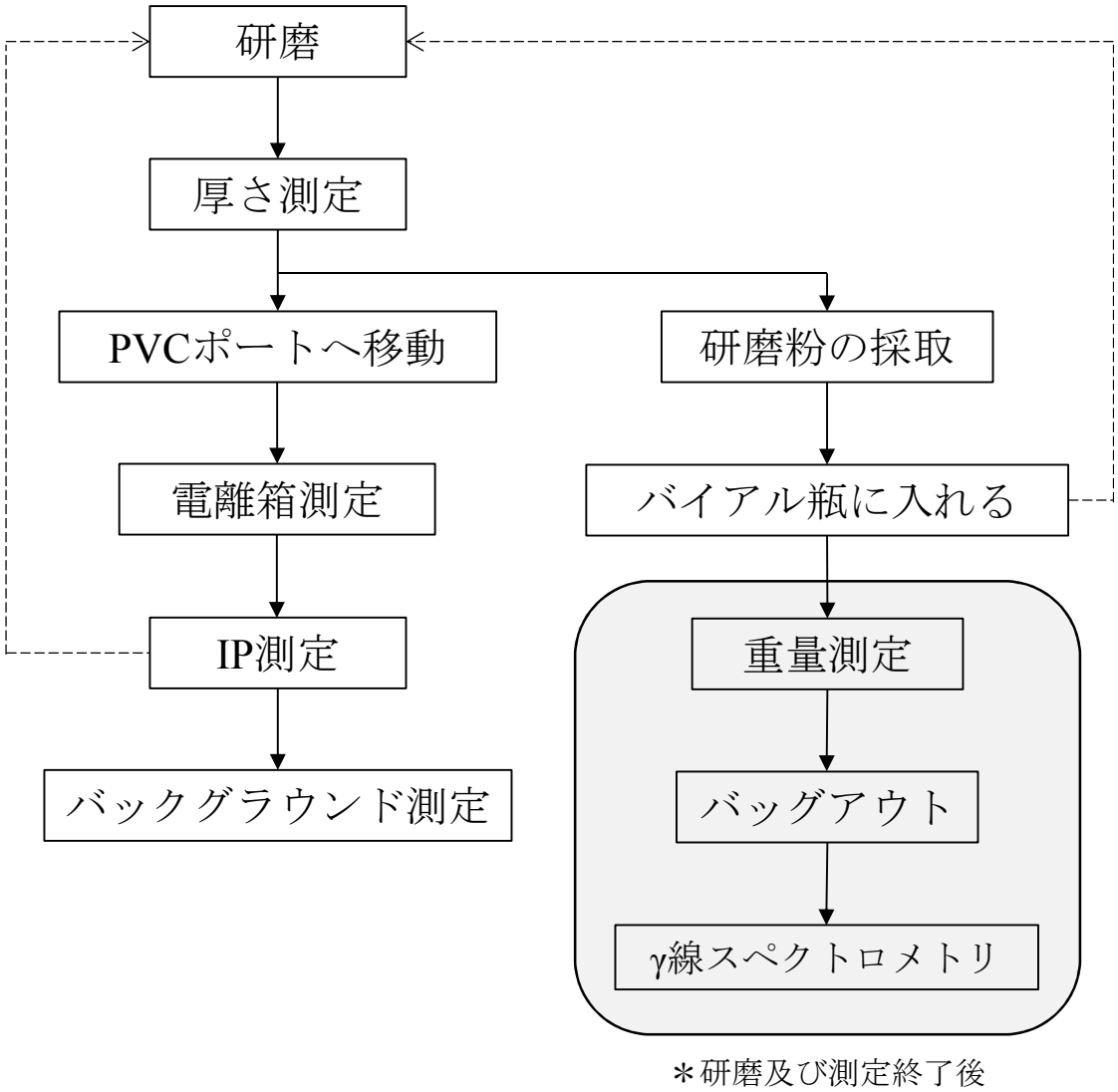


Fig. 4 研磨及び各測定の手順

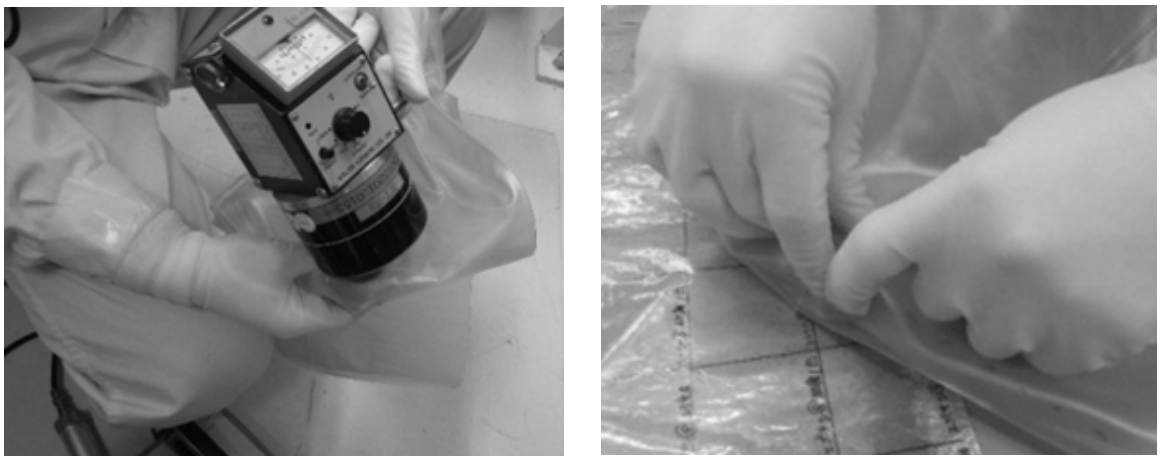


Fig. 5 線量率測定及び IP 測定の様子

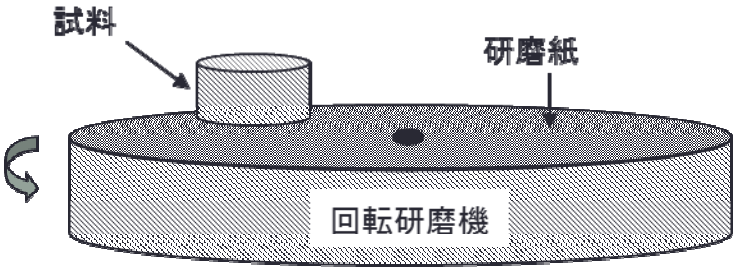


Fig. 6 回転研磨機の概略図

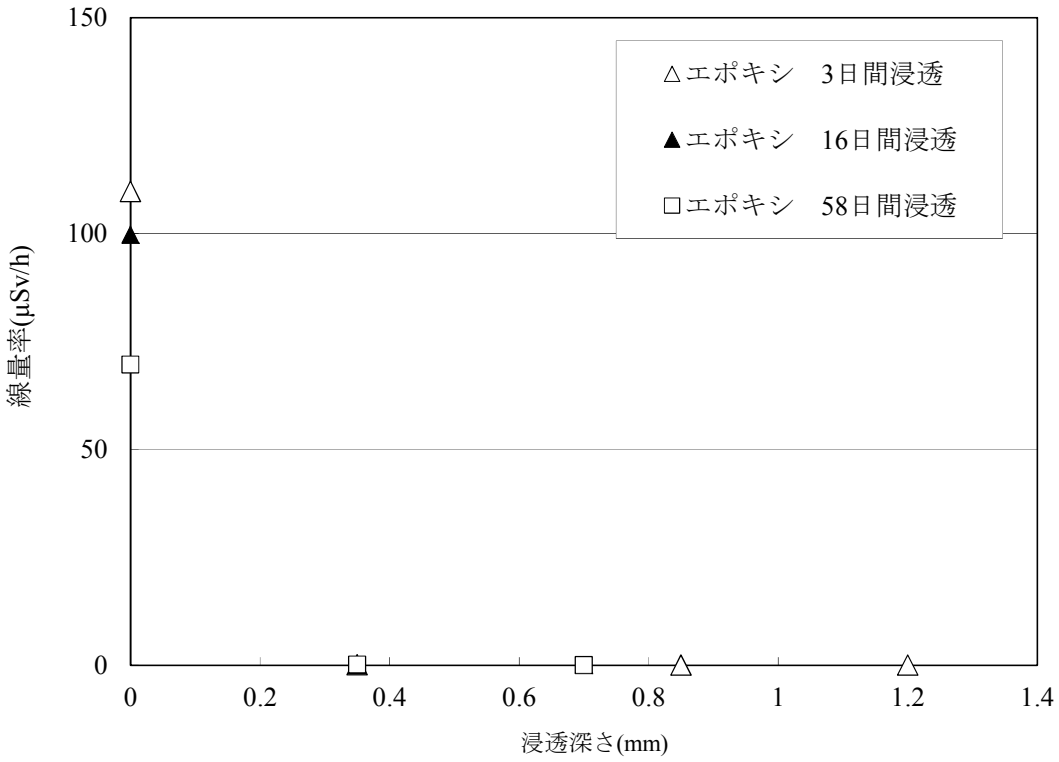


Fig. 7 エポキシ系塗料試料の深さ方向の線量率

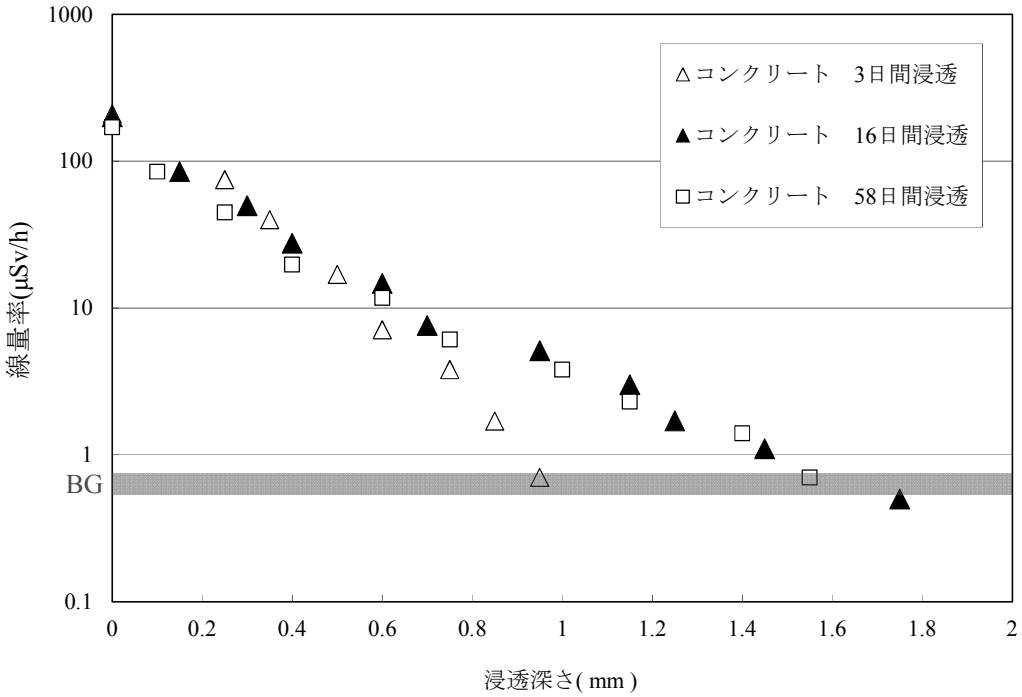


Fig. 8 コンクリート試料(Type A)の深さ方向の線量率

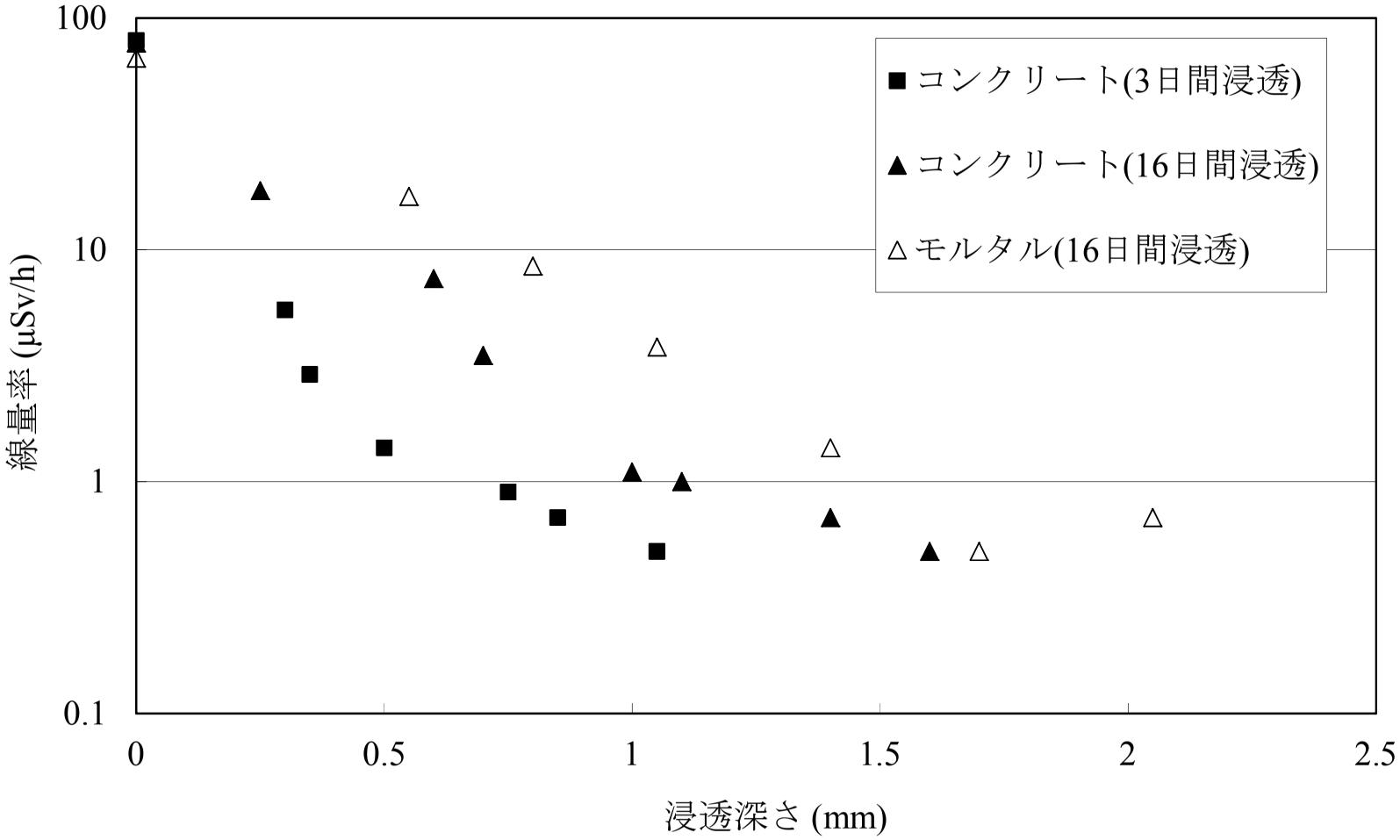


Fig. 9 モルタル試料及びコンクリート試料(Type B)の深さ方向の線量率

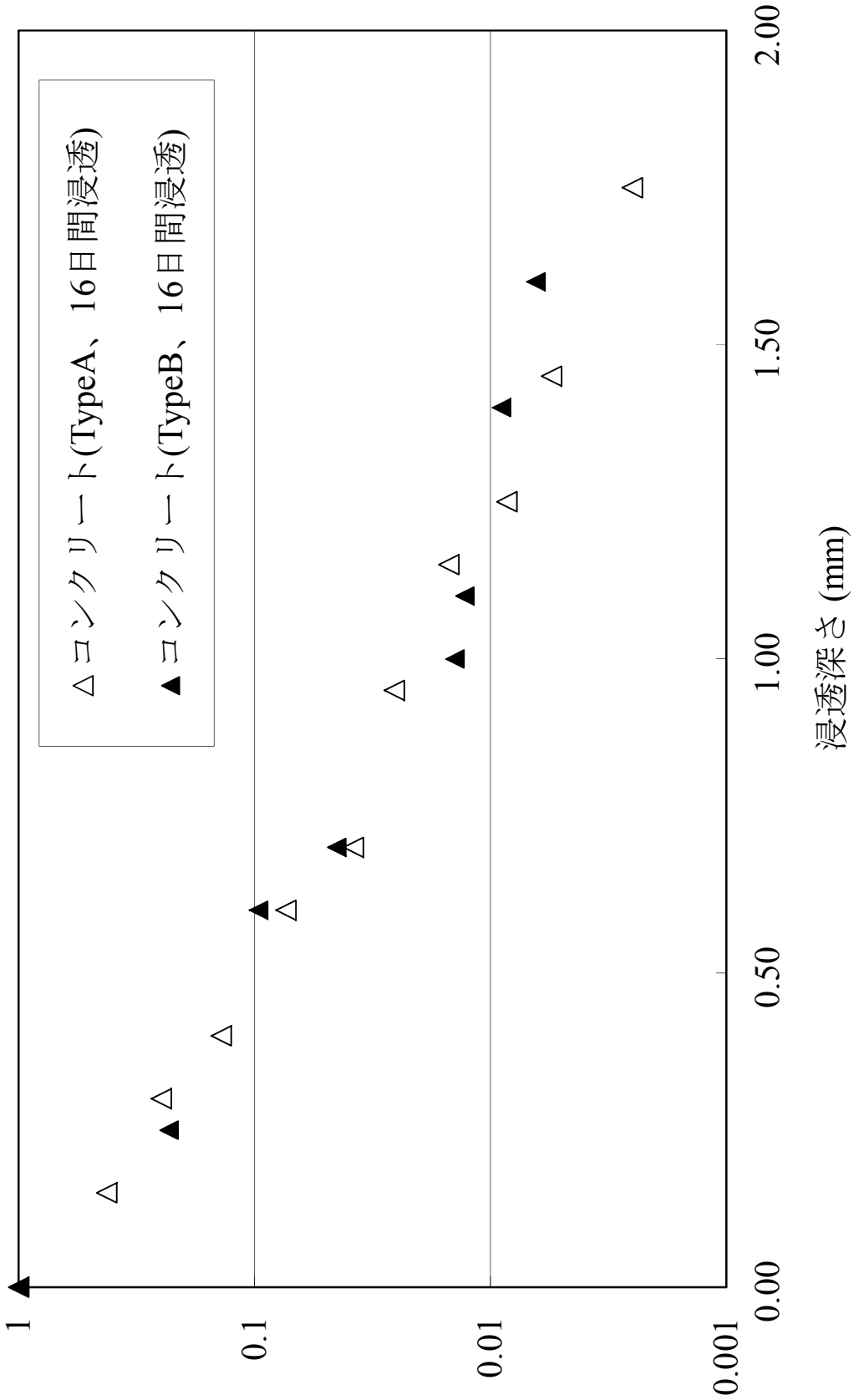
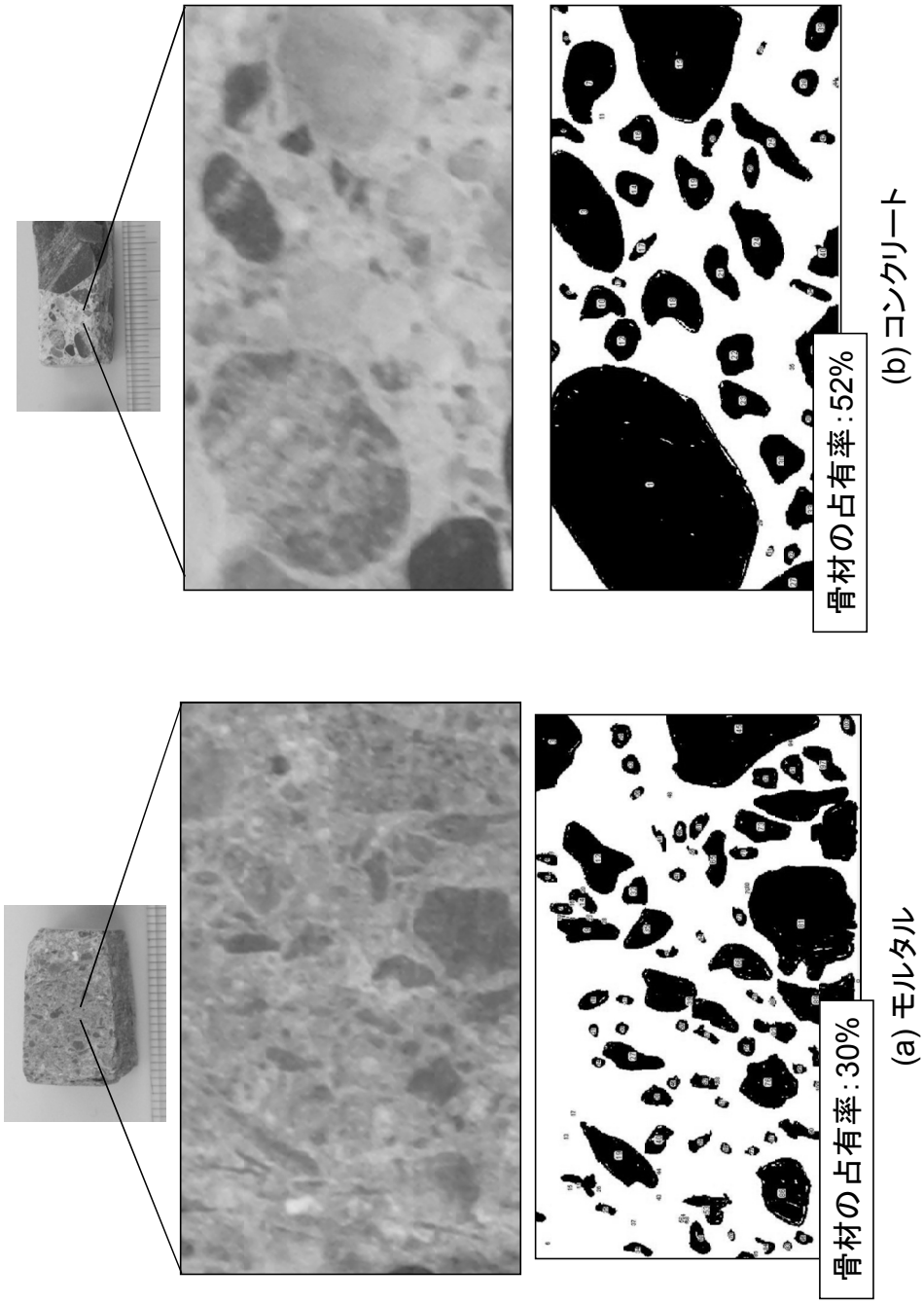


Fig. 10 コンクリート試料(Type A)及びコンクリート試料(Type B)の深さ方向の線量率



(a) モルタル　(b) コンクリート

Fig. 11 モルタル試料及びコンクリート試料(Type B)の画像解析

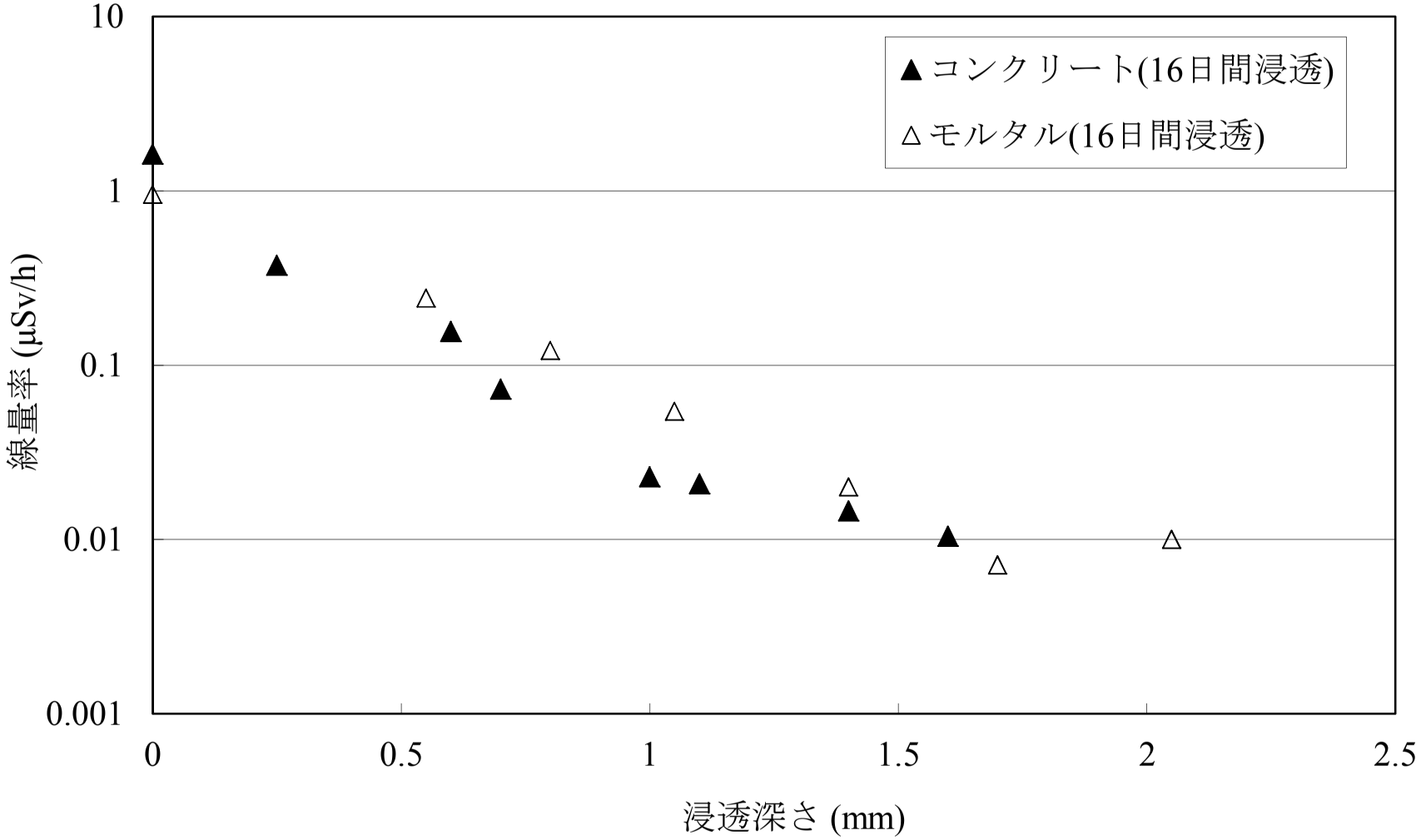
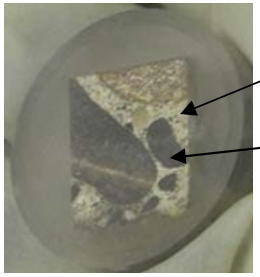
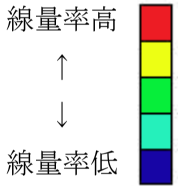


Fig. 12 モルタル試料及びコンクリート試料(Type B)の深さ方向の線量率(セメント部面積割合 1%当り)



浸透面の様相



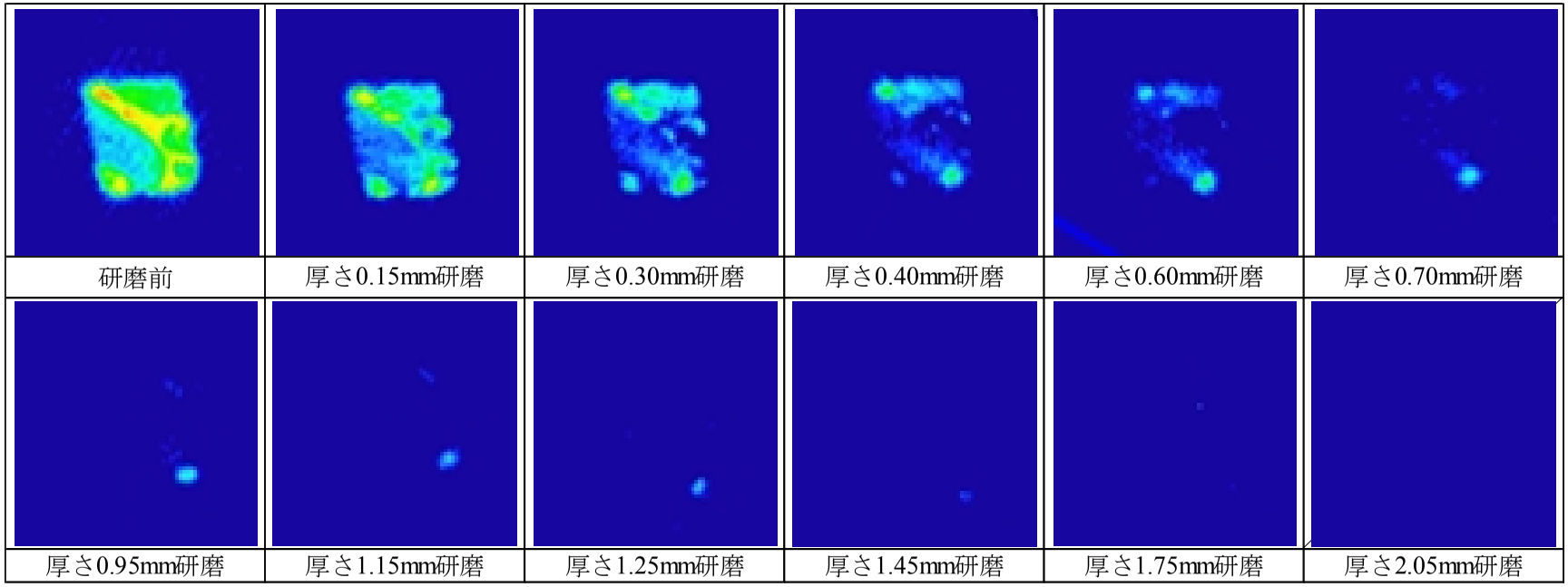
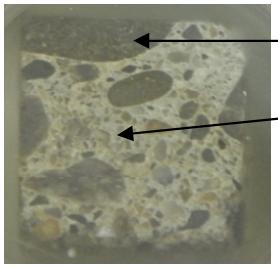
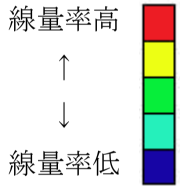


Fig. 13 IP 測定により取得したコンクリート試料(Type A)の線量率分布(16 日間浸透)



浸透面の様相



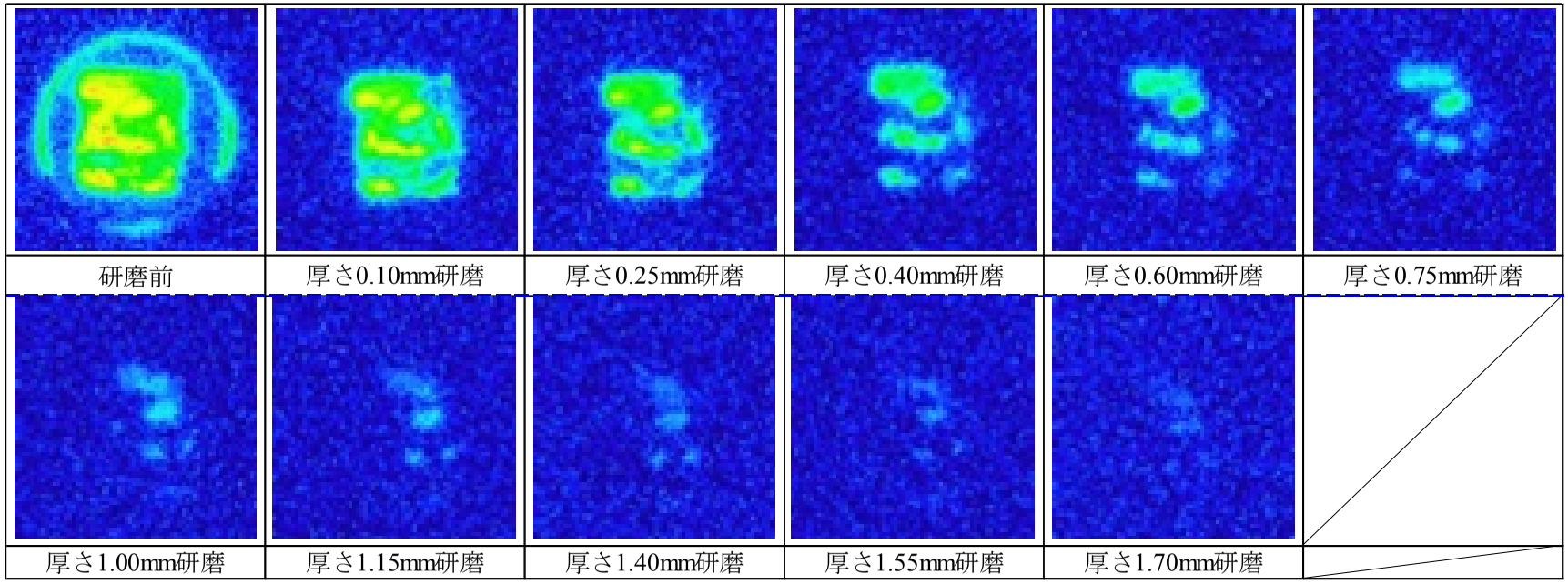


Fig. 14 IP 測定により取得したコンクリート試料(Type A)の線量率分布(58 日間浸透)

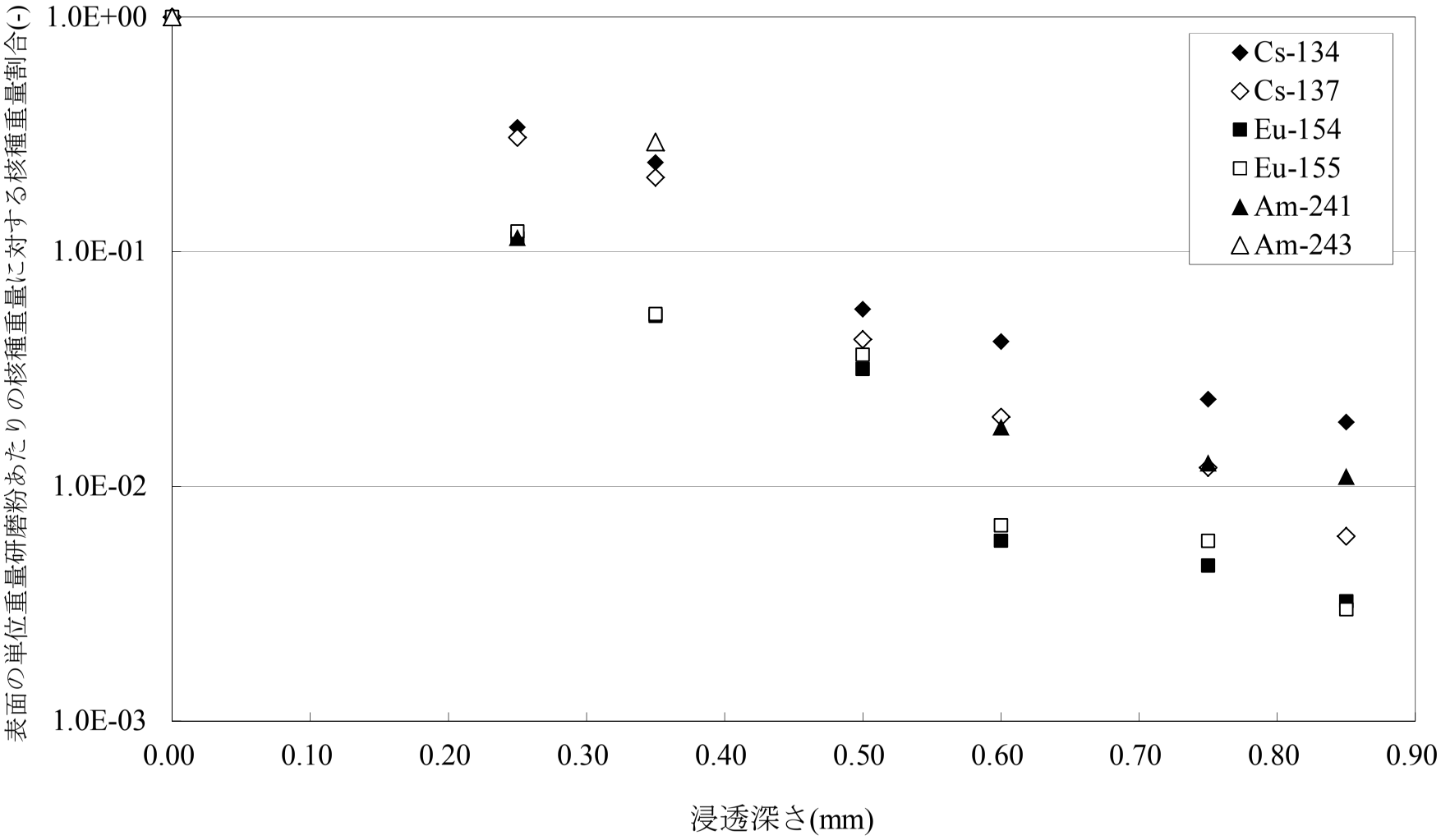


Fig. 15 γ放射核種の深さ方向の存在量プロファイル(3 日間浸透)

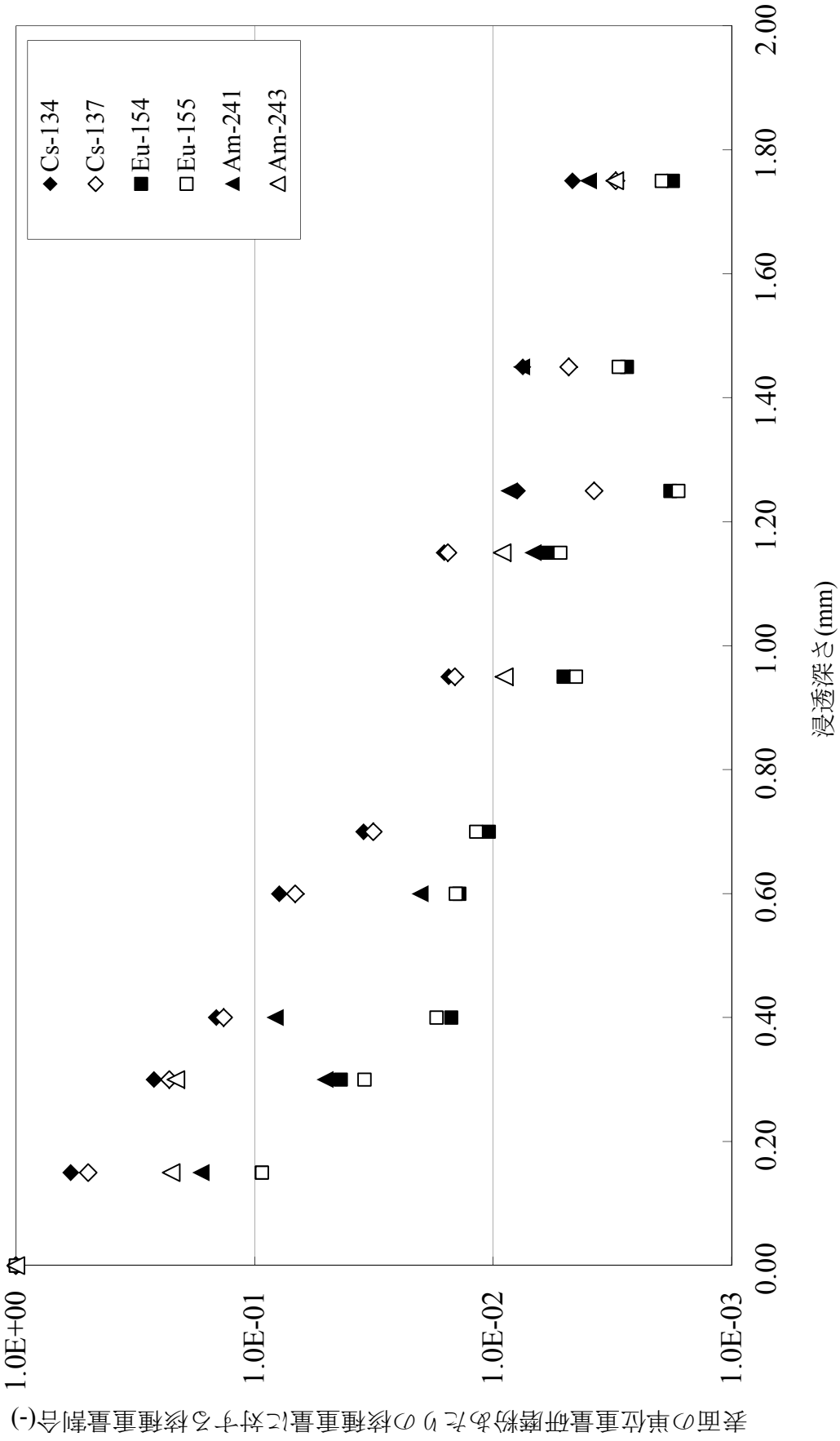


Fig. 16 γ放射核種の深さ方向の存在量プロファイル(16 日間浸透)

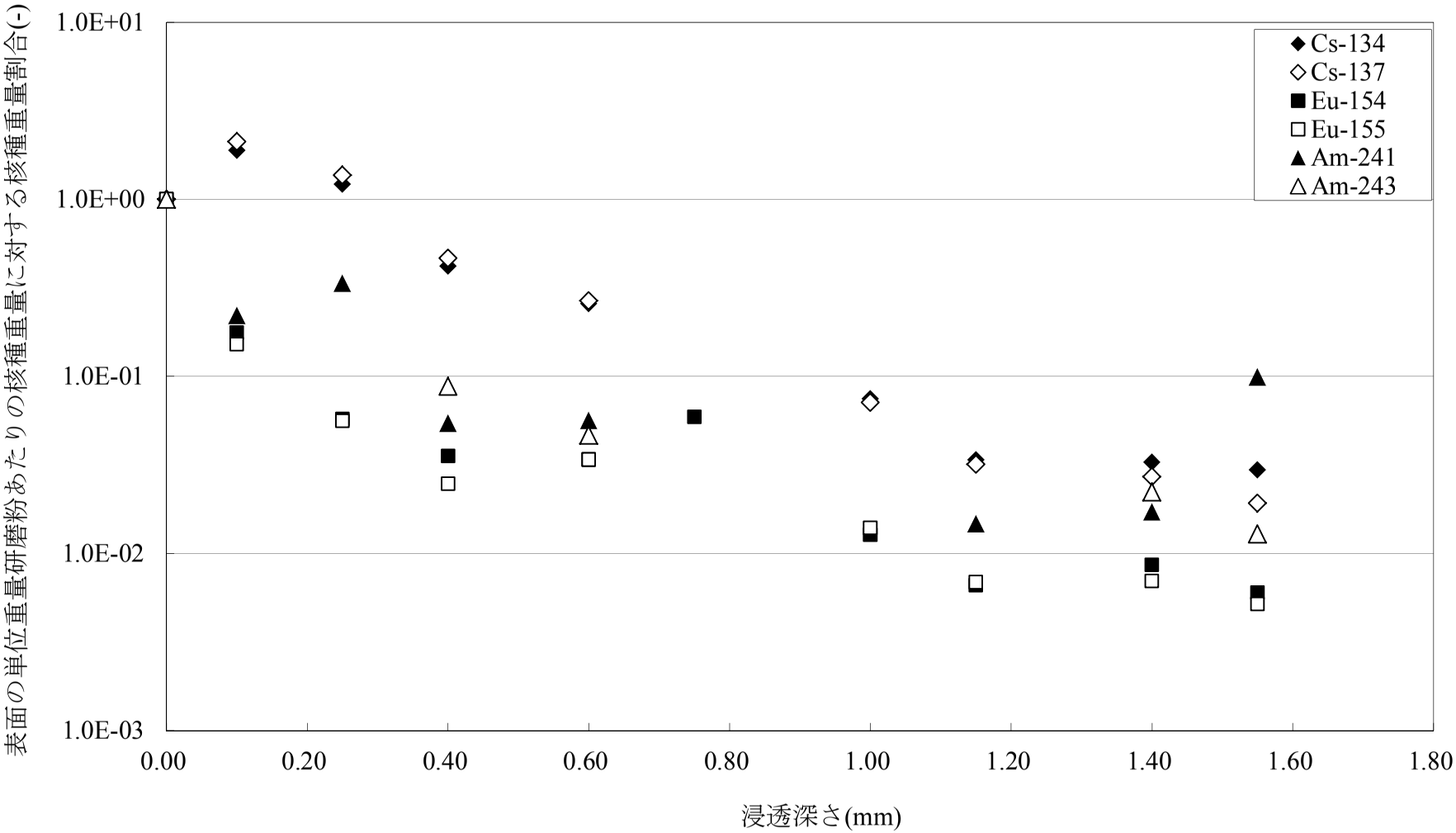


Fig. 17 γ放射核種の深さ方向の存在量プロファイル(58 日間浸透)

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	$1ha=1hm^2=10^4m^2$
リットル	L, l	$1L=11=1dm^3=10^3cm^3=10^{-3}m^3$
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	$1eV=1.602\ 176\ 53(14)\times10^{-19}J$
ダルトン	Da	$1Da=1.660\ 538\ 86(28)\times10^{-27}kg$
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	$1ua=1.495\ 978\ 706\ 91(6)\times10^{11}m$

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	$1\ bar=0.1MPa=100kPa=10^5Pa$
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	$1\ b=100fm^2=(10^{-12}cm)2=10^{-28}m^2$
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	
デジベル	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	$1\ sb\ =1cd\ cm^{-2}=10^4cd\ m^{-2}$
フォト	ph	$1\ ph=1cd\ sr\ cm^{-2}\ 10^4lx$
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	$1\ Oe \triangleq (10^3/4\pi)A\ m^{-1}$

(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	$1\ Ci=3.7\times10^{10}Bq$
レントゲン	R	$1\ R = 2.58\times10^{-4}C/kg$
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	$1\ \mu\ =1\mu m=10^{-6}m$

（第8版，2006年改訂）