

緩衝材間隙水中溶解度計算への適用における  
放射性元素の熱力学データベースの比較調査

Comparison of the Thermodynamic Databases for Radioactive Elements in  
Application to the Calculation of the Solubilities in the Porewater

土井 玲祐 柴田 雅博  
Reisuke DOI and Masahiro SHIBATA

地層処分研究開発部門  
核種移行研究グループ  
Radionuclide Migration Research Group  
Geological Isolation Research and Development Directorate

July 2006

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは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/index.shtml>)  
より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター\*では実費による複写頒布を行っ  
ております。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4

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

電話029-282-6387, Fax 029-282-5920

\* 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4 日本原子力研究開発機構内

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 +81-29-282-5901

緩衝材間隙水中溶解度計算への適用における放射性元素の熱力学データベースの比較調査

日本原子力研究開発機構  
地層処分研究開発部門  
地層処分基盤研究開発ユニット  
土井 玲祐、柴田 雅博

(2006年5月23日受理)

地層処分の性能評価において重要なパラメーターである放射性元素の溶解度を計算するため、熱力学データには最新の知見に基づいた最も確からしいデータを整備することが求められる。本報告では、第2次取りまとめにおいて設定された緩衝材間隙水の条件に基づき、代表的な放射性元素の溶解度計算を JNC、OECD/NEA、Nagra/PSI のそれぞれの熱力学データベースを用いて計算を行うことで、データベースによる差異を確認し、その原因を検討した。

Comparison of the Thermodynamic Databases for Radioactive Elements  
in Application to the Calculation of the Solubilities in the Porewater

Reisuke DOI and Masahiro SHIBATA

Geological Isolation Base Research and Development Unit  
Geological Isolation Research and Development Directorate  
Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

( Received May 23, 2006 )

To calculate the solubility of radioactive elements which is the important parameter for performance assessment of geological disposal system, the thermodynamic database must be reliable and based on the latest information. In this research, it has been compared in the calculation of the solubilities of the representative radioactive elements in the porewater compositions of the compacted bentonite which were set up in the second progress report (H12) that the thermodynamic database of JNC, OECD/NEA, Nagra/PSI. And the causes of the differences among the results from application of different databases were investigated and discussed.

Keywords: Solubility, Thermodynamic Database

目 次

1. 緒言 .....	1
2. 評価方法 .....	2
2.1 データベース.....	2
2.2 計算コード .....	3
2.3 対象核種および間隙水 .....	3
2.4 溶解度制限固相の仮定 .....	3
2.5 溶解度の評価手順 .....	4
3. 対象元素の評価結果 .....	5
3.1 セレン(Se).....	5
3.1.1 Se の FRHP 間隙水中溶解度評価.....	5
3.1.2 Se の SRHP 間隙水中溶解度評価.....	6
3.1.3 Se の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価.....	7
3.2 トリウム(Th).....	7
3.2.1 Th の FRHP 間隙水中溶解度評価 .....	7
3.2.2 Th の SRHP 間隙水中溶解度評価 .....	8
3.2.3 Th の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価.....	9
3.3 ネプツニウム(Np) .....	9
3.3.1 Np の FRHP 間隙水中溶解度評価.....	9
3.3.2 Np の SRHP 間隙水中溶解度評価.....	10
3.3.3 Np の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価.....	11
3.4 プルトニウム(Pu).....	11
3.4.1 Pu の FRHP 間隙水中溶解度評価 .....	11
3.4.2 Pu の SRHP 間隙水中溶解度評価 .....	12
3.4.3 Pu の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価.....	13
3.5 アメリシウム(Am) .....	14
3.5.1 Am の FRHP 間隙水中溶解度評価 .....	14
3.5.2 Am の SRHP 間隙水中溶解度評価 .....	16
3.5.3 Am の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価.....	17
3.6 ウラン(U).....	18
3.6.1 U の FRHP 間隙水中溶解度評価.....	18
3.6.2 U の SRHP 間隙水中溶解度評価.....	19
3.6.3 U の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価.....	20
4. 溶解度評価結果および今後の課題.....	21
謝辞 .....	26
参考文献 .....	27

Contents

1. Introduction.....	1
2. Methods of evaluation.....	2
2.1 Database .....	2
2.2 Calculation code .....	3
2.3 Selected elements and porewater .....	3
2.4 Assumption of solubility limmitting solid phase.....	3
2.5 Procedure of evaluation for solubility.....	4
3. Results of evaluation for selected elements.....	5
3.1 Selenium(Se).....	5
3.1.1 Evaluation of the solubility for Se in FRHP porewater .....	5
3.1.2 Evaluation of the solubility for Se in SRHP porewater.....	6
3.1.3 Evaluation of the solubility for Se and comparison of the thermodynamic databases influencing the solubility .....	7
3.2 Thorium(Th).....	7
3.2.1 Evaluation of the solubility for Th in FRHP porewater .....	7
3.2.2 Evaluation of the solubility for Th in SRHP porewater .....	8
3.2.3 Evaluation of the solubility for Th and comparison of the thermodynamic databases influencing the solubility .....	9
3.3 Neptunium(Np).....	9
3.3.1 Evaluation of the solubility for Np in FRHP porewater.....	9
3.3.2 Evaluation of the solubility for Np in SRHP porewater.....	10
3.3.3 Evaluation of the solubility for Np and comparison of the thermodynamic databases influencing the solubility .....	11
3.4 Plutonium(Pu) .....	11
3.4.1 Evaluation of the solubility for Pu in FRHP porewater .....	11
3.4.2 Evaluation of the solubility for Pu in SRHP porewater .....	12
3.4.3 Evaluation of the solubility for Pu and comparison of the thermodynamic databases influencing the solubility .....	13
3.5 Americium(Am).....	14
3.5.1 Evaluation of the solubility for Am in FRHP porewater .....	14
3.5.2 Evaluation of the solubility for Am in SRHP porewater .....	16
3.5.3 Evaluation of the solubility for Am and comparison of the thermodynamic databases influencing the solubility .....	17

3.6 Uranium(U) .....	18
3.6.1 Evaluation of the solubility for U in FRHP porewater.....	18
3.6.2 Evaluation of the solubility for U in SRHP porewater.....	19
3.6.3 Evaluation of the solubility for U and comparison of the thermodynamic databases influencing the solubility .....	20
4. Result of evaluation for the solubility and assignment from now on .....	21
Acknowledgement .....	26
References .....	27

表 目 次

表 2.1	本研究における評価対象間隙水組成.....	4
表 3.1.1	FRHP 間隙水に対する Se の溶解度 (溶解度制限固相 $\text{FeSe}_2(\text{cr})$ ) .....	6
表 3.1.2	FRHP 間隙水に対する Se の溶解度 (溶解度制限固相 $\text{Se}(\text{cr})$ ) .....	6
表 3.1.3	SRHP 間隙水に対する Se の溶解度 (溶解度制限固相 $\text{FeSe}_2(\text{cr})$ ) .....	7
表 3.1.4	SRHP 間隙水に対する Se の溶解度 (溶解度制限固相 $\text{Se}(\text{cr})$ ) .....	7
表 3.2.1	FRHP 間隙水に対する Th の溶解度.....	8
表 3.2.2	SRHP 間隙水に対する Th の溶解度.....	9
表 3.3.1	FRHP 間隙水に対する Np の溶解度.....	10
表 3.3.2	SRHP 間隙水に対する Np の溶解度.....	10
表 3.4.1	FRHP 間隙水に対する Pu の溶解度.....	12
表 3.4.2	SRHP 間隙水に対する Pu の溶解度.....	13
表 3.5.1	FRHP 間隙水に対する Am の溶解度.....	16
表 3.5.2	SRHP 間隙水に対する Am の溶解度.....	17
表 3.6.1	FRHP 間隙水に対する U の溶解度.....	19
表 3.6.2	FRHP 間隙水に対する U( )の溶解度.....	19
表 3.6.3	SRHP 間隙水に対する U の溶解度.....	20
表 3.6.4	SRHP 間隙水に対する U( )の溶解度.....	20
表 4.1	溶解度評価結果 .....	22



## 1. 緒言

地層処分システムの性能評価では、地下水による放射性元素の移行を、地下水シナリオとして評価する。地下水シナリオによると、地層処分後、かなり長い数百～数千年単位の間時間をかけて、地下水が緩衝材、オーバーパックを通り、最終的にガラス固化体に到達する。その後、ガラス固化体に含まれる放射性元素は地下水とともにガラス固化体から溶出し、緩衝材へと移行する。緩衝材中の地下水（間隙水）では、評価対象となる放射性元素のほとんどは難溶性であるため、ガラス固化体表面において新たな固相として沈殿すると考えられる。すなわち、間隙水における放射性元素の濃度は、この生成される固相の間隙水中での溶解度により制限される。したがって、放射性廃棄物の地層処分の安全評価における核種移行評価では、この溶解度が重要なパラメーターのひとつとなる。この溶解度の評価には、処分環境において想定される溶解度制限固相の溶解度積や、処分環境で想定される溶液中の化学種分配を推定するための平衡定数（ $K$ ）が必要となる。さらに、溶液中の化学種分配の把握は、核種の人工バリアや母岩中での拡散挙動や収着挙動の推定にも必要な基礎情報である。このため、これらの評価に必要な熱力学データは不可欠なものである。

核燃料サイクル開発機構（以下、JNC）は、第2次取りまとめ<sup>1)</sup>に向けて、評価対象候補であった21元素について、1998年時点においてOECD/NEA TDBプロジェクトにおいてレビューが終了していたU, Am およびドラフトが完成していたTcについては、それらの値を参照した。同時に、原則として元素ごとに個別実験データのレビューを行いデータの選定作業を実施し、JNCとしてのデータベース（JNC-TDB）開発を実施した（Yui et al.1999）<sup>2)</sup>。このデータベースが我が国において、放射性廃棄物処分の安全評価を対象として、評価対象元素に対し広くデータの検討を行い、評価計算に利用可能な形で整備された初めてのものであるといえる。同データベースは、既往の地球化学計算コードで利用可能な電子ファイル形式として配布が行われているなど、利便性の観点でも優れている。しかしながら、データ整備の過程に用いた活量係数モデルが統一されていないことや、還元条件での利用を念頭におき優先させたため、Np( )等については、十分なデータレビューが行われていない。また、Sm, Cm, および Pu( ) に対しては、全ての値について Am と同一の値を与えている他、アクチニド、 $\text{Pu}^{IV}$ 、 $\text{Pu}^{III}$  の錯生成定数の一部に他の同じ酸化数のアクチニド元素の値を適用するという、元素間の化学的類似性（化学アナログ）に基づいたデータの適用がためされている。

一方、OECD/NEA において国際共同プロジェクトとして1980年代後半から継続的に個別元素ごとに熱力学データに関する情報の評価と値の選定作業が実施されている。このプロジェクトでのPhase I（～2005年）までに8元素（U, Am, Tc, Np, Pu, Se, Ni, Zr）のレビュー、データの選定を終了している。OECD/NEA におけるデータレビューは、既往のデータ編集や推定に基づく値は利用せず、もとなる実験データに立ち戻ってレビューを行い、値の推奨を行うという方針に基づきデータ整備を行っている。化学的類似元素間での値の

整合については、アクチニド( )酸化物の溶解度積やアクチニド( )炭酸錯体について相互比較は行っているものの、一定の順序の傾向性に基づく値の補正や、データが欠如している際の化学アナログを用いたデータの推定などは行っていない(ただし、イオン強度補正におけるイオン相互作用パラメータについては、類似元素の値を用いることを可としている。)。また、同一の化学種に対して、複数の実験値が報告されており、それらの結果が整合しない場合には、化学種の存在は認めつつも、値の選定は行わないという判断を行っている。

また、性能評価を目的とした熱力学データベースとして、スイス Nagra およびポールシェラ研究所 (PSI) が整備したデータベース(Hummel et al.2002<sup>3)</sup>)がある。同データベースにおいては 2001 年までに刊行されている OECD/NEA による TDB を原則として参照しており、いくつかの化学種に対しては、OECD/NEA による値の選定後に報告されているデータの取り込みにより値の修正を行っている。また、処分の観点から存在が重要である化学種については、値の確からしさが他の推奨値よりも劣る場合であっても、化学種の重要性を喚起する意味で値の選定を行っている。実験値が限られている元素については、既往の文献による推定値の採用も行っている。ただし、化学アナログによる他の元素の値の直接的な適用は行っておらず、核種移行評価のための計算時において、アナログ元素の値の利用が可能であることの言及に留めている。また、OECD/NEA により選定されている一部の固相や気体に対するデータは、放射性廃棄物処分の環境条件に直接対応しないとして、評価対象外とし導入を行っていない。

熱力学データには、常に最新の知見に基づいた最も確からしいデータを整備しておくことが求められ、我が国における着実な研究開発に基づく恒常的なデータベース開発および更新を実施しなければならない。特に、安全評価における評価対象元素の溶解度および溶存化学種に影響するデータについて、データベース間の差異を明確にすることは重要である。本報告書では、第 2 次取りまとめ以降に報告された、NEA および PSI のデータベースを用いて、安全評価上重要であるいくつかの代表的な元素について第 2 次取りまとめで設定された緩衝材間隙水中での溶解度および溶存化学種の計算を行うことで、これらの元素の溶解度および溶存化学種に影響するデータベース間の差異を確認した。溶解度および溶存化学種がデータベース間で異なったものについては、溶存化学種に関する化学反応式の平衡定数およびそれらのもとになった文献を比較し、今後のデータベース開発において再検討すべき文献を抽出した。新たな JAEA-TDB を整備する段階で、99 年以降の新しい知見だけでなく、本報告書で抽出した文献により最も確からしいデータを選定する。

## 2. 評価方法

### 2.1 データベース

計算に用いたデータベースの電子ファイルは JNC-TDB についてはサイクル機構熱力学・収着データベース(<http://migrationdb.jnc.go.jp>)よりファイル 011213c2 をダウンロードして用

いた。なお、第2次取りまとめにおける溶解度計算では991231c2<sup>2)</sup>を用いて計算しているの  
で今回の計算結果と第2次取りまとめでの結果が一部(Pu,Am)一致しない結果となってい  
る。ただし、011213c2の方が991231c2よりも正しいと判断されているので本研究では  
JNC-TDBとして011213c2を用いた。

NEAのデータベースについてはup-date版データベース(Guillaumout 2003<sup>4)</sup>、以下  
NEA-TDB)を、PSIのデータベースについてはNagra/PSI 01/01データベース<sup>3)</sup>(以下PSI-TDB)  
を用いた。NEA-TDBについては吉田・柴田 2005<sup>5)</sup>よりファイル030000c0を、PSI-TDBに  
ついてはPSI Waste management laboratoryのwebサイト(<http://les.web.psi.ch/TDBbook>)よりフ  
ァイルNAPSI 290502(260802)をダウンロードしてそれぞれ用いた。なお、auxiliary dataはそ  
れぞれのデータベースのものをそのまま用いた。

## 2.2 計算コード

対象元素の間隙水における溶解度評価は、2.1項に記した3つのデータベースおよび地球  
化学計算コードPHREEQC<sup>6)</sup>を用いて行う。

## 2.3 対象核種および間隙水

本研究においては第2次取りまとめ以降にNEAあるいはPSIによりデータの更新が行わ  
れたSe, U, Np, Pu, Th, Amについて溶解度及び溶存化学種の評価を行った。ただし、Seおよ  
びThについてはNEA-TDB(030000c0)にデータがないため、ThについてはJNC-TDBと  
PSI-TDBの間での比較とし、SeについてはNEAによる選定値(Olin et al.2005<sup>7)</sup>)から溶解  
度計算に影響する化学種と溶解度制限固相のデータを030000c0に追加して計算に用いた。  
SeについてはPSI-TDBおよびNEA-TDBでは、固相としてSeしか選定されていないため、  
第2次取りまとめにおける溶解度制限固相FeSe<sub>2</sub>ではなく不確実性の検討の中で参考として  
計算されたSe(cr)<sup>8)</sup>を溶解度制限固相として比較を行った。

緩衝材間隙水としては降水系還元性高pH地下水(FRHP地下水)および海水系還元性高  
pH地下水(SRHP地下水)を設定し計算した<sup>8)</sup>。それらの組成を表2.1に示す。

## 2.4 溶解度制限固相の仮定

間隙水に対する溶解度評価を行う場合、間隙水と平衡状態となる放射性元素を含む固相、  
すなわち溶解度制限固相を仮定する必要がある。この溶解度制限固相の仮定については、  
個々の元素で差異はあるものの、熱力学的安定性や溶解度実験結果などにに基づき、主に非  
晶質の水酸化物を仮定している。しかし、現状の知見から間隙水において水和酸化物を形  
成しにくいと考えられる元素については、間隙水に含まれる他の配位子や化学的類似性を  
考慮して、水和酸化物以外の固相を仮定している。

表 2.1 本研究における評価対象間隙水組成 組成 (mol/l)

	FRHP	SRHP
pH	8.4	7.8
Eh ( mV ) (pe)	-276 (-4.7)	-309 (-5.2)
Ionic strength	0.026	0.615
Na(total)	$2.8 \times 10^{-2}$	$5.7 \times 10^{-1}$
Ca(total)	$5.3 \times 10^{-5}$	$1.4 \times 10^{-2}$
K(total)	$1.2 \times 10^{-4}$	$3.4 \times 10^{-3}$
Mg(total)	$4.2 \times 10^{-6}$	$1.5 \times 10^{-3}$
Fe(total)	$2.0 \times 10^{-9}$	$2.2 \times 10^{-7}$
Al(total)	$3.4 \times 10^{-7}$	$3.2 \times 10^{-9}$
C(total)	$1.6 \times 10^{-2}$ HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> : $1.5 \times 10^{-2}$ CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> : $2.8 \times 10^{-4}$ NaHCO <sub>3</sub> : $1.8 \times 10^{-4}$ CO <sub>2</sub> (aq): $1.2 \times 10^{-4}$	$2.2 \times 10^{-2}$ CH <sub>4</sub> : $2.2 \times 10^{-2}$ HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> : $3.3 \times 10^{-4}$ NaHCO <sub>3</sub> : $5.0 \times 10^{-5}$ CaHCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : $1.7 \times 10^{-5}$ NaCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> : $8.1 \times 10^{-6}$
S(total)	$1.1 \times 10^{-4}$ SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> : $1.0 \times 10^{-4}$ HS <sup>-</sup> : $3.3 \times 10^{-9}$ H <sub>2</sub> S: $1.1 \times 10^{-10}$	$7.2 \times 10^{-9}$ SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> : $1.7 \times 10^{-13}$ HS <sup>-</sup> : $6.6 \times 10^{-9}$ H <sub>2</sub> S: $6.1 \times 10^{-10}$
B(total)	$2.9 \times 10^{-4}$	$1.7 \times 10^{-3}$
P(total)	$2.9 \times 10^{-6}$	$2.6 \times 10^{-7}$
F(total)	$5.4 \times 10^{-5}$	$1.0 \times 10^{-4}$
Br(total)	-	$5.3 \times 10^{-4}$
I(total)	-	$2.0 \times 10^{-4}$
N(total)	$2.3 \times 10^{-5}$ NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> : $4.9 \times 10^{-7}$ NH <sub>3</sub> (aq): $6.1 \times 10^{-8}$	$5.1 \times 10^{-3}$ NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> : $5.0 \times 10^{-3}$ NH <sub>3</sub> (aq): $1.3 \times 10^{-4}$
Cl(total)	$1.5 \times 10^{-5}$	$5.9 \times 10^{-1}$
Si(total)	$3.4 \times 10^{-4}$	$2.7 \times 10^{-4}$

## 2.5 溶解度の評価手順

対象元素の間隙水における溶解度評価は、2.1 項に記した3つのデータベースそれぞれに基づき、地球化学計算コード PHREEQC<sup>5)</sup>を用いて行った。各データベースにより算出され

た溶解度および支配的な溶存化学種を比較し、データベース間での差を明確にした。溶解度の差の原因を調査する場合、溶解度制限固相および支配的な溶存化学種に関する化学反応式の平衡定数をデータベース間で比較し、溶解度の差に直接影響する化学反応式の平衡定数を明確にした。さらに、溶解度の差に効いてくる化学反応式の平衡定数について JNC、NEA および PSI が引用した文献を抽出し、差異の原因について調査した。なお、平衡定数を各データベースから抽出するのに、その有効数字は各データベースのままとした。

### 3. 対象元素の評価結果

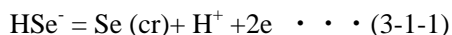
この節では、2.3 項に示される 2 つの間隙水に対して、6 つの対象元素の溶解度および溶存化学種の評価を行った結果について以下に述べる。溶解度は計算値の 3 桁目を切り上げて表記した。支配化学種については溶解度の 1% 以上を占めるものを記した。なお、本研究における JNC-TDB に基づく PHREEQC による溶解度計算結果が地層処分研究開発第 2 次取りまとめ<sup>3)</sup>における溶解度計算結果と若干異なる場合がある。これは、2.1 項で述べたデータベースの違いに加え、第 2 次取りまとめでは、間隙水の pH を小数点第 2 位まで考慮していたこと、PHREEQC を用いていたこと、イオン強度 0.3 mol/kg 以上での Davies の活量補正式ではイオン強度を 0.3mol/kg と固定する近似を行っていたことによるものである。

#### 3.1 セレン(Se)

SRHP 間隙水および FRHP 間隙水中で熱力学的に安定な固相は  $\text{FeSe}_2(\text{cr})$  なので、これを溶解度制限固相とした。NEA-TDB 及び PSI-TDB には  $\text{FeSe}_2(\text{cr})$  についてのデータがないので、ここでは JNC-TDB と PHREEQC による溶解度及び溶存化学種の評価を行い、第 2 次取りまとめとの比較を行った。また、固相として  $\text{Se}(\text{cr})$  を選定し、溶解度及び溶存化学種の評価も行った。なお、2.3 項で前述したように NEA-TDB により Se の溶解度計算を行う際は [Olin et al.2005<sup>6\)</sup>](#) のデータを引用してある。

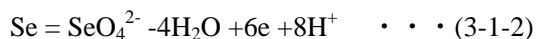
##### 3.1.1 Se の FRHP 間隙水中溶解度評価

溶解度制限固相を  $\text{FeSe}_2(\text{cr})$  にした場合の結果を表 3.1.1 に、溶解度制限固相を  $\text{Se}(\text{cr})$  にした場合の結果を表 3.1.2 に示す。表 3.1.1 の結果は第 2 次取りまとめと一致している。表 3.1.2 から、JNC-TDB と PSI-TDB は溶解度はほとんど同じで(溶解度: JNC-TDB  $1.869 \times 10^{-7}$  mol/L, PSI-TDB  $1.877 \times 10^{-7}$  mol/l) NEA-TDB では溶解度が小さい。この時、関与する反応は

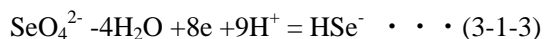


$$\log K = 7.720(\text{JNC-TDB}), 7.770(\text{NEA-TDB}(\text{Olin et al.2005}^6)), 7.700(\text{PSI-TDB})$$

であり、K 値が小さいほど溶解度が大きくなっている。JNC-TDB では(3-1-1)式を得るのに JNC-TDB 中にある次の(3-1-2)式と(3-1-3)式を用いた。

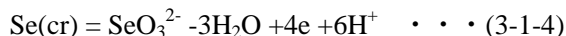


$$\log K = -88.920(\text{JNC-TDB})$$

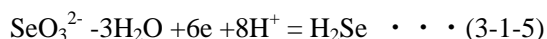


$$\log K = 81.200(\text{JNC-TDB}), 81.548(\text{NEA-TDB}(\text{Olin et al.2005}^{(6)}))$$

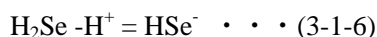
一方、PSI-TDB では次の(3-1-4)式、(3-1-5)式、(3-1-6)式より(3-1-1)式を得た。



$$\log K = -61.286(\text{NEA-TDB}(\text{Olin et al.2005}^{(6)})), -61.2900(\text{PSI-TDB})$$

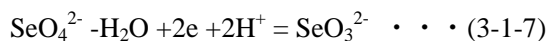


$$\log K = 57.3900(\text{PSI-TDB})$$



$$\log K = -3.8000(\text{PSI-TDB})$$

NEA-TDB(Olin et al.2005<sup>(6)</sup>)では(3-1-3)式、(3-1-4)式および次の(3-1-7)式から(3-1-1)式を得た。



$$\log K = 27.578(\text{JNC-TDB}), 28.032(\text{NEA-TDB}(\text{Olin et al.2005}^{(6)}))$$

このようにデータベースごとに(3-1-1)式のもとになる反応式が異なり、その平衡定数もデータベースごとで差があるので(3-1-1)式の平衡定数が異なる。

表 3.1.1 FRHP 間隙水に対する Se の溶解度 (溶解度制限固相 FeSe<sub>2</sub>(cr))

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	FeSe <sub>2</sub> (cr)	2.5 × 10 <sup>-9</sup>	HSe <sup>-</sup> : 100%

表 3.1.2 FRHP 間隙水に対する Se の溶解度 (溶解度制限固相 Se(cr))

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	Se(cr)	1.9 × 10 <sup>-7</sup>	HSe <sup>-</sup> : 100%
NEA-TDB	Se(cr)	1.5 × 10 <sup>-8</sup>	HSe <sup>-</sup> : 100%
PSI-TDB	Se(cr)	1.9 × 10 <sup>-7</sup>	HSe <sup>-</sup> : 100%

### 3.1.2 Se の SRHP 間隙水中溶解度評価

溶解度制限固相を FeSe<sub>2</sub>(cr)にした場合の結果を表 3.1.3 に、溶解度制限固相を Se(cr)にした場合の結果を表 3.1.4 に示す。表 3.1.3 の結果は第 2 次取りまとめでの結果 (5.9 × 10<sup>-9</sup>mol/l) と異なる。これは 3.項で前述したことによると考えられる。溶解度制限固相を



Se(cr) にした時、関与する反応は FRHP の場合と同じように (3-1-1) 式で、K 値が小さいほど溶解度が大きくなっている。しかしながら、溶解度差は FRHP の場合より大きい。

表 3.1.3 SRHP 間隙水に対する Se の溶解度 (溶解度制限固相 FeSe<sub>2</sub>(cr))

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	FeSe <sub>2</sub> (cr)	6.6 × 10 <sup>-9</sup>	HSe <sup>-</sup> : 100%

表 3.1.4 SRHP 間隙水に対する Se の溶解度 (溶解度制限固相 Se(cr))

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	Se(cr)	9.5 × 10 <sup>-6</sup>	HSe <sup>-</sup> : 100%
NEA-TDB	Se(cr)	3.3 × 10 <sup>-8</sup>	HSe <sup>-</sup> : 100%
PSI-TDB	Se(cr)	1.3 × 10 <sup>-5</sup>	HSe <sup>-</sup> : 100%

### 3.1.3 Se の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価

データベース間での溶解度差は SRHP 間隙水中で大きくなった。(3-1-1)式の平衡定数が溶解度に関与し、この(3-1-1)式のもとになる反応式はデータベースごとで異なる。しかしながら、(3-1-1)式の平衡定数はデータベース間で大差がない。引用文献については JNC-TDB では Cross et al.1987<sup>9)</sup>を引用している。(3-1-6)式については、PSI-TDB では(3-1-6)式の K 値のレビューを行った Perrin 1982<sup>10)</sup>を引用している。PSI がこの文献を選んだのは、Se の熱力学データに対するレビューを行った Séby et al.,2001<sup>11)</sup>によると、Perrin 1982<sup>10)</sup>以降に新たな実験研究は行われていないからである。NEA による Se についての最新のレビューである Olin et al.2005<sup>6)</sup>では、(3-1-6)式について、電気伝導度研究を行った Bruner et al.,1913<sup>12)</sup>、Hlasko et al.,1923<sup>13)</sup>および電位差法による Hagiwara,1941<sup>14)</sup>が求めた K 値の平均値を選定している。Olin et al.2005<sup>6)</sup>では Perrin 1982<sup>10)</sup>を引用していないが、JAEA-TDB の整備の段階においては Olin et al.2005<sup>6)</sup>および Perrin 1982<sup>10)</sup>を考慮した上で値を選定する必要がある。

## 3.2 トリウム(Th)

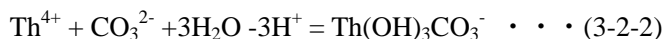
Th について、Rai et al.,1995<sup>15)</sup>の溶解度測定実験から溶解度制限固相を ThO<sub>2</sub>(am)と仮定してある。NEA-TDB には Th についてのデータがないので、ここでは JNC-TDB 及び PSI-TDB に基いた PHREEQC による溶解度及び溶存化学種の評価を行った。

### 3.2.1 Th の FRHP 間隙水中溶解度評価

FRHP 間隙水中での溶解度評価結果を表 3.2.1 に示す。JNC-TDB と PSI-TDB との溶解度を比較すると PSI-TDB の方が大きい。この理由について、熱力学データの違いを検討する。



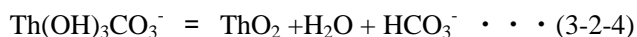
$$\log K = 10.500(\text{JNC-TDB}), 9.9000(\text{PSI-TDB})$$



$$\log K = -3.720(\text{JNC-TDB}), -3.1000(\text{PSI-TDB})$$



$$\log K = 10.327(\text{JNC-TDB}), 10.329(\text{PSI-TDB})$$



$$\log K = 3.547(\text{JNC-TDB}), 3.5290(\text{PSI-TDB})$$

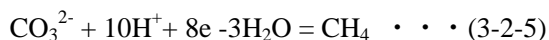
(3-2-4)式は(3-2-1)式, (3-2-2)式 及び(3-2-3)式から得られる。溶解度に影響する(3-2-4)式の K 値が PSI-TDB のほうがわずかに小さいことが原因と考えられる。

表 3.2.1 FRHP 間隙水に対する Th の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	ThO <sub>2</sub> (am)	4.4 × 10 <sup>-6</sup>	Th(OH) <sub>3</sub> CO <sub>3</sub> <sup>-</sup> : 100%
PSI-TDB	ThO <sub>2</sub> (s)	4.6 × 10 <sup>-6</sup>	Th(OH) <sub>3</sub> CO <sub>3</sub> <sup>-</sup> : 100%

### 3.2.2 Th の SRHP 間隙水中溶解度評価

JNC-TDB と PSI-TDB で溶解度は大きく異なる。この理由について、熱力学データの違いを検討する。溶解度に影響する(3-2-4)式の K 値は JNC-TDB および PSI-TDB でそれほど変わらないが溶解度は大きく異なる。これは(3-2-4)式にもあらわれる HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度の計算値が JNC-TDB で 2.264 × 10<sup>-4</sup>(mol/l), PSI-TDB では 1.574 × 10<sup>-2</sup>(mol/l)というように約二桁も異なるからである。この原因は



$$\log K = 41.071(\text{JNC-TDB}), 37.1782(\text{PSI-TDB})$$

と C の酸化還元反応の logK が異なっており、ここでの pH, Eh 条件では両者で CH<sub>4</sub> に還元される C の量に差がでている。なお、それぞれのデータの出典は [JNC:PHREEQE Original<sup>16\)</sup>](#), [PSI:NIST\(=以前の NBS\)\(Wagan et al.1982<sup>17\)</sup>\)](#)である。

また、PSI-TDB では支配化学種の Th(CO<sub>3</sub>)<sub>5</sub><sup>6-</sup>の濃度の計算値が 1.5 × 10<sup>-7</sup>(mol/l)で溶解度の 3%を占めているものの、JNC-TDB では 3.9 × 10<sup>-21</sup>(mol/l)とかなり小さい。

これは次の(3-2-6)式において



$$\log K = 27.100(\text{JNC-TDB}), 29.800(\text{PSI-TDB})$$

K 値が異なることと、(3-2-5)式の K 値の違いにより CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>濃度も異なることが原因と考えられる。



表 3.2.2 SRHP 間隙水に対する Th の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	ThO <sub>2</sub> (am)	6.4 × 10 <sup>-8</sup>	Th(OH) <sub>3</sub> CO <sub>3</sub> <sup>-</sup> : 99%
PSI-TDB	ThO <sub>2</sub> (s)	5.2 × 10 <sup>-6</sup>	Th(OH) <sub>3</sub> CO <sub>3</sub> <sup>-</sup> : 97% Th(CO <sub>3</sub> ) <sub>5</sub> <sup>6-</sup> : 3%

### 3.2.3 Th の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価

主な支配化学種である Th(OH)<sub>3</sub>CO<sub>3</sub><sup>-</sup> についての(3-2-4)式の K 値は JNC-TDB と PSI-TDB で大きな差がない。しかしながら、SRHP 間隙水中で溶解度に差があるのは HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> の濃度差によるものである。また、Th(CO<sub>3</sub>)<sub>5</sub><sup>6-</sup> の濃度が JNC-TDB と PSI-TDB で異なったのは活量補正の方法が違っていたことによるものである。

## 3.3 ネプツニウム(Np)

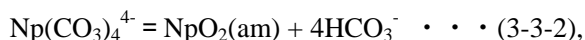
Rai and Ryan(1985)<sup>18)</sup> の高炭酸濃度での NpO<sub>2</sub>(am) (もしくは NpO<sub>2</sub> · xH<sub>2</sub>O) の溶解度実験結果から間隙水に対する溶解度制限固相として NpO<sub>2</sub>(am) を仮定してある。この仮定に基づき、ここでも NpO<sub>2</sub>(am) を溶解度制限固相とした。

### 3.3.1 Np の FRHP 間隙水中溶解度評価

溶解度は JNC-TDB に基づくものが最も高い。これは JNC-TDB に基づいて計算すると溶解化学種として Np(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>2-</sup> が支配的となるからである。JNC-TDB では



という式が得られる。しかしながら、NEA-TDB 及び PSI-TDB では Np(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>2-</sup> に関するデータがない。JNC-TDB には Np(CO<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>4-</sup> についてのデータがなく、この Np(CO<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>4-</sup> について



$$\log K = 5.318(\text{NEA-TDB}), 3.126(\text{PSI-TDB})$$

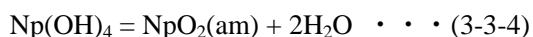
となり、NEA-TDB の K 値は大きくなり Np(CO<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>4-</sup> の濃度は小さい。NEA-TDB による計算では Np(CO<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>4-</sup> は溶解度の 0.16% しか支配しないので表 3.3.1 には表記していない。(3-3-2) 式の K 値が異なるのは(3-3-2)式のもとになる以下の(3-3-3)式において



$$\log K = 1.510(\text{JNC-TDB}), -0.695(\text{NEA-TDB}), 1.5000(\text{PSI-TDB})$$

のように K 値が NEA-TDB では小さいことが原因である。

また、どのデータベースで計算しても Np(OH)<sub>4</sub> があらわれる。しかしながら、その濃度の計算値は JNC-TDB では 3.2 × 10<sup>-9</sup>(mol/l)、NEA-TDB では 9.9 × 10<sup>-10</sup>(mol/l)、PSI-TDB では 5.0 × 10<sup>-9</sup>(mol/l) となり、特に NEA-TDB によると計算値は小さい。



$$\log K = 8.49(\text{JNC-TDB}), 9.000(\text{NEA-TDB}), 8.3000(\text{PSI-TDB})$$

(3-3-4)式の K 値が異なるので  $\text{Np(OH)}_4$  の濃度に差があると考えられる。(3-3-4)式の K 値が異なるのも(3-3-4)式を与える(3-3-3)式と以下の(3-3-5)式の K 値が異なり、特に NEA-TDB が他と差が大きいことが原因である。



$$\log K = -10.00(\text{JNC-TDB}), -8.305(\text{NEA-TDB}), -9.800(\text{PSI-TDB})$$

表 3.3.1 FRHP 間隙水に対する Np の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	$\text{NpO}_2(\text{am})$	$1.6 \times 10^{-8}$	$\text{Np(OH)}_2\text{CO}_3^{2-}$ : 80% $\text{Np(OH)}_4$ : 20%
NEA-TDB	$\text{NpO}_2(\text{am})$	$9.9 \times 10^{-10}$	$\text{Np(OH)}_4$ : 100%
PSI-TDB	$\text{NpO}_2(\text{am, hyd})$	$5.2 \times 10^{-9}$	$\text{Np(OH)}_4$ : 96% $\text{Np(CO}_3)_4^{4-}$ : 4%

### 3.3.2 Np の SRHP 間隙水中溶解度評価

FRHP 間隙水中での計算と同様に、どのデータベースで計算しても  $\text{Np(OH)}_4$  が主な支配化学種としてあらわれる。 $\text{Np(OH)}_4$  のそれぞれの濃度は JNC-TDB では  $2.7 \times 10^{-9}(\text{mol/l})$ 、NEA-TDB では  $8.3 \times 10^{-10}(\text{mol/l})$ 、PSI-TDB では  $4.2 \times 10^{-9}(\text{mol/l})$  となり、差が生じる。これは 3.3.1 で述べたように(3-3-4)式を与える(3-3-3)式と (3-3-5)式の K 値が異なり、特に NEA-TDB が他と差が大きいことが原因である。 $\text{Np(CO}_3)_4^{4-}$  の濃度の差についても 3.3.1 で述べたように (3-3-3) 式の K 値のデータベース間の差が原因である。

表 3.3.2 SRHP 間隙水に対する Np の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	$\text{NpO}_2(\text{am})$	$2.7 \times 10^{-9}$	$\text{Np(OH)}_4$ : 100%
NEA-TDB	$\text{NpO}_2(\text{am, hyd})$	$8.7 \times 10^{-10}$	$\text{Np(OH)}_4$ : 96% $\text{Np(CO}_3)_4^{4-}$ : 4%
PSI-TDB	$\text{NpO}_2(\text{am, hyd})$	$8.0 \times 10^{-9}$	$\text{Np(OH)}_4$ : 52% $\text{Np(CO}_3)_4^{4-}$ : 48%

### 3.3.3 Np の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価

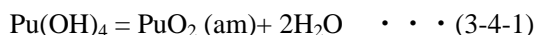
(3-3-3)式の K 値を JNC-TDB では Rai et al.,1987<sup>19)</sup>から、NEA-TDB では Neck and Kim,2001<sup>20)</sup>から、PSI-TDB では Lemire et al.,2001<sup>21)</sup>から選んでいる。(3-3-5)式の K 値については JNC-TDB では Rai and Ryan,1985<sup>18)</sup>から、NEA-TDB では Neck and Kim,2001<sup>20)</sup>から、PSI-TDB では Lemire et al.,2001<sup>21)</sup>から選んでいる。PSI は up-data 以前に NEA が出版した Lemire et al.,2001<sup>21)</sup>からデータを選定し、NEA は Guillaumont,2003<sup>4)</sup>において、Np 濃度の測定に分光法を用いた Neck and Kim,2001<sup>20)</sup>のデータに更新しているため JAEA-TDB を整備する上で Neck and Kim,2001<sup>20)</sup>が重要である。

### 3.4 プルトニウム(Pu)

第 2 次取りまとめでの溶解度評価に用いられた熱力学データベース(991231c2)により計算される Pu 固相の飽和指数から、間隙水について溶解度制限固相を PuO<sub>2</sub>(am)と仮定してある。この仮定に基づき、ここでも溶解度制限固相を PuO<sub>2</sub>(am)とした。

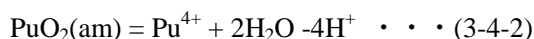
#### 3.4.1 Pu の FRHP 間隙水中溶解度評価

JNC-TDB に基づいて計算すると溶解度は NEA-TDB および PSI-TDB より高い。これは JNC-TDB での支配化学種になっている Pu( )の炭酸錯体 PuCO<sub>3</sub><sup>+</sup>, Pu(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>-</sup>, Pu(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>3-</sup>および Pu( )の Pu(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>2-</sup>が NEA-TDB および PSI-TDB にはデータがないからである。NEA-TDB 及び PSI-TDB にデータがある炭酸錯体は Pu( )の Pu(CO<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>4-</sup>, Pu(CO<sub>3</sub>)<sub>5</sub><sup>6-</sup>であり、その濃度の計算値は低い [Pu(CO<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>4-</sup>の濃度 = 7.94 × 10<sup>-14</sup>(mol/l)(NEA-TDB), 1.28 × 10<sup>-14</sup>(mol/l)(PSI-TDB)、Pu(CO<sub>3</sub>)<sub>5</sub><sup>6-</sup>の濃度 = 1.05 × 10<sup>-17</sup>(mol/l)(NEA-TDB), 1.02 × 10<sup>-18</sup>(mol/l)(PSI-TDB)]。また、NEA-TDB および PSI-TDB での支配化学種である Pu(OH)<sub>4</sub>は次の反応式に従う。

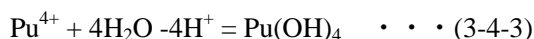


$$\log K = 10.000(\text{JNC-TDB}), 10.825(\text{NEA-TDB}), 10.400(\text{PSI-TDB})$$

そして、Pu(OH)<sub>4</sub>の濃度は 9.93 × 10<sup>-11</sup>(mol/l)(JNC-TDB), 1.49 × 10<sup>-11</sup>(mol/l)(NEA-TDB), 3.95 × 10<sup>-11</sup>(mol/l)(PSI-TDB)である。この差は(3-4-1)式の K 値の差が原因と考えられる。(3-4-1)式の K 値に差があるのは以下の(3-4-2)式と(3-4-3)式の K 値が異なったからである。



$$\log K = -0.850(\text{JNC-TDB}), -2.325(\text{NEA-TDB}), -2.0000(\text{PSI-TDB})$$



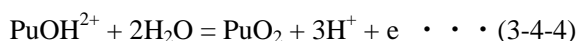
$$\log K = -9.150(\text{JNC-TDB}), -8.500(\text{NEA-TDB}), -8.400(\text{PSI-TDB})$$

表 3.4.1 FRHP 間隙水に対する Pu の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	PuO <sub>2</sub> (am)	2.1 × 10 <sup>-8</sup>	Pu(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>-</sup> : 47% Pu(CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>3-</sup> : 19% PuCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : 6% Pu(OH) <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>2-</sup> : 27%
NEA-TDB	PuO <sub>2</sub> (am,hyd)	1.7 × 10 <sup>-11</sup>	Pu(OH) <sub>4</sub> : 88% PuOH <sup>2+</sup> : 10%
PSI-TDB	PuO <sub>2</sub> (hyd,ag)	4.3 × 10 <sup>-11</sup>	Pu(OH) <sub>4</sub> : 91% PuOH <sup>2+</sup> : 8%

3.4.2 Pu の SRHP 間隙水中溶解度評価

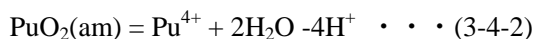
どのデータベースで計算しても占める割合が大きい支配化学種である PuOH<sup>2+</sup>は次の(3-4-4)式に従う。



$$\log K = -9.650(\text{JNC-TDB}), -8.469(\text{NEA-TDB}), -7.7900(\text{PSI-TDB})$$

このように K 値が JNC-TDB, NEA-TDB, PSI-TDB の間で異なる。この結果、PuOH<sup>2+</sup>の濃度の計算値が NEA-TDB 及び PSI-TDB で小さく、溶解度も小さいと考えられる。

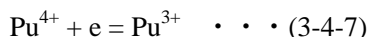
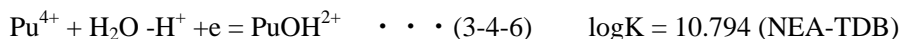
(3-4-4)式のもとになる反応式を以下に示す。



$$\log K = -0.850(\text{JNC-TDB}), -2.325(\text{NEA-TDB}), -2.0000(\text{PSI-TDB})$$



$$\log K = -6.400(\text{JNC-TDB}), -6.900\{\text{NEA-TDB (3-4-6)-(3-4-7)より}\}, -6.9000(\text{PSI-TDB})$$

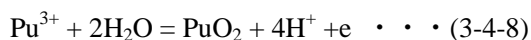


$$\log K = 16.900(\text{JNC-TDB}), 17.694(\text{NEA-TDB}), 16.6900(\text{PSI-TDB})$$

NEA-TDB では(3-4-5)式がないので(3-4-6)式 - (3-4-7)式から(3-4-5)式の logK 値を求めた。(3-4-2)式、(3-4-5)式、(3-4-7)式の K 値がデータベースごとに異なるので(3-4-4)式の K 値も異なる。

また JNC-TDB で溶解度の 20%程を占める Pu(OH)<sub>2</sub><sup>+</sup>についてのデータが NEA-TDB および PSI-TDB には欠如していることも NEA-TDB および PSI-TDB の溶解度が小さいことの原因と考えられる。

また、Pu<sup>3+</sup>はどのデータベースで計算しても、その割合は1%以上になる。このPu<sup>3+</sup>は次の(3-4-9)式に従う。



$$\log K = -16.050(\text{JNC-TDB}), -15.369(\text{NEA-TDB}), -14.6900(\text{PSI-TDB})$$

ここでも K 値が JNC-TDB、NEA-TDB、PSI-TDB の間で異なり、NEA-TDB 及び PSI-TDB による Pu<sup>3+</sup>の濃度の計算値は JNC-TDB より小さい。(3-4-8)式の K 値が異なるのは(3-4-4)式と(3-4-7)式で K 値が異なるからである。

表 3.4.2 SRHP 間隙水に対する Pu の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	PuO <sub>2</sub> (am)	2.4 × 10 <sup>-8</sup>	PuOH <sup>2+</sup> : 49% Pu(OH) <sub>2</sub> <sup>+</sup> : 25% PuCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : 16% Pu <sup>3+</sup> : 9%
NEA-TDB	PuO <sub>2</sub> (am,hyd)	1.4 × 10 <sup>-9</sup>	PuOH <sup>2+</sup> : 40% PuCl <sup>2+</sup> : 36% Pu <sup>3+</sup> : 23%
PSI-TDB	PuO <sub>2</sub> (hyd,ag)	5.0 × 10 <sup>-9</sup>	PuOH <sup>2+</sup> : 49% PuCl <sup>2+</sup> : 37% Pu <sup>3+</sup> : 13%

### 3.4.3 Pu の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価

溶解度がデータベース間で異なり、その原因は PSI-TDB および NEA-TDB には Pu( )の炭酸錯体のデータが不足していることや、データベース間で引用している文献が異なることである。(3-4-3)式については JNC-TDB では Yamaguchi et al.,1994<sup>22)</sup>を引用しているのに対して、PSI-TDB では Lierse & Kim,1986<sup>23)</sup>(I=1M, HClO<sub>4</sub>/NaClO<sub>4</sub>)および Rai et al.,1999<sup>24)</sup> (I 0.1M, KOH)の実験値に基づいた Neck and Kim,2001<sup>20)</sup>を引用している。Neck and Kim,2001<sup>20)</sup>では pH > 7 における PuO<sub>2</sub>(hyd,aged)と平衡時の Pu( )濃度を決定している。NEA-TDB では、Pu( )の加水分解について再検討した Knopp et al.,1999<sup>25)</sup>, Neck & Kim,1999<sup>26)</sup>, Neck and Kim,2001<sup>20)</sup>に基づいて K 値を選定している。NEA が選んだこれらの文献では、コロイドの形成を考慮に入れて値を選定しているため NEA は引用している。JAEA-TDB の整備の段階で、PSIが選んだ Neck and Kim,2001<sup>20)</sup>や NEA が選んだ Knopp et al.,1999<sup>25)</sup>, Neck & Kim,1999<sup>26)</sup>, Neck and Kim,2001<sup>20)</sup>の内容も考慮に入れなければならない。

また、JNC-TDB では Pu( )の炭酸錯体をアクチニド 価同士のアナログで Am( )の値を入れている。これに対して NEA-TDB および PSI-TDB はこのようなことは行っていない。ただし、PSI-TDB では値の選定は行っていないけれども、Hummel et al.2002<sup>3)</sup>の中で計算に

において Am( )の値を用いることは可能であろうとの記述を行っている。Pu( )の加水分解についても JNC-TDB は Am の値を使っているのに対して、NEA は値を選定していない。PSI-TDB はとりあえず使えるデータの平均を使っている。このようにデータベースごとに値の選定方法に差がある。

### 3.5 アメリシウム(Am)

第2次取りまとめでの溶解度評価に用いられた熱力学データベース(991231c2)を用いて間隙水に対する安定固相を調べると AmOHCO<sub>3</sub>(cr)が最も安定な固相と計算されているので、ここでも AmOHCO<sub>3</sub>(cr)を溶解度制限固相とした。ただし、NEA-TDB 中に AmOHCO<sub>3</sub>・0.5H<sub>2</sub>O(cr)及び AmOHCO<sub>3</sub>(am,hyd)のデータがあるので、その両者についてのデータを載せた。AmOHCO<sub>3</sub>(am,hyd)を溶解度制限固相に設定すると溶解度が大きくなるし、以下で示す反応式(3-5-1)~(3-5-3)の K 値も他のデータベースのものとずれる。第2次取りまとめ<sup>1)</sup>でも溶解度制限固相は結晶性の AmOHCO<sub>3</sub>(cr)にしている。データベース間の比較の目的からは NEA-TDB に基いて計算する場合、AmOHCO<sub>3</sub>・0.5H<sub>2</sub>O(cr)を溶解度制限固相にするのが妥当であると思われる。

#### 3.5.1 Am の FRHP 間隙水中溶解度評価

溶存化学種については炭酸錯体の Am(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>2-</sup>, Am(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>3-</sup>, AmCO<sub>3</sub><sup>+</sup>が支配化学種であり、NEA-TDB および PSI-TDB よればこれらに AmSiO(OH)<sub>3</sub><sup>2+</sup>が加わる。JNC-TDB にはこの AmSiO(OH)<sub>3</sub><sup>2+</sup>に関するデータはない。炭酸錯体についての支配的な反応は



logK=0.900(JNC-TDB),

0.399(NEA-TDB AmOHCO<sub>3</sub>・0.5H<sub>2</sub>O(cr)の場合),

-1.801(NEA-TDB AmOHCO<sub>3</sub>(am,hyd)の場合),

-0.600(PSI-TDB)



logK=6.527(JNC-TDB 011213c2),

5.826(NEA-TDB AmOHCO<sub>3</sub>・0.5H<sub>2</sub>O(cr)の場合),

3.626(NEA-TDB AmOHCO<sub>3</sub>(am,hyd)の場合),

5.229(PSI-TDB)



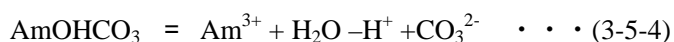
$\log K = 13.954$ (JNC-TDB),

14.053(NEA-TDB  $\text{AmOHCO}_3 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}(\text{cr})$ の場合),

11.853(NEA-TDB  $\text{AmOHCO}_3(\text{am,hyd})$ の場合)

12.658(PSI-TDB)

となる。溶解度は JNC-TDB のものは他より小さい。これは支配化学種を占める割合が大きい  $\text{Am}(\text{CO}_3)_2^-$  を与える(3-5-2)式の K 値が他より大きいことが原因と考えられる。(3-5-2)式の K 値が JNC-TDB のものは大きいのは

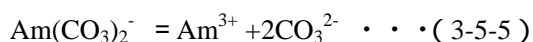


$\log K = -8.500$ (JNC-TDB),

-8.399(NEA-TDB  $\text{AmOHCO}_3 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}(\text{cr})$ の場合),

-6.199(NEA-TDB  $\text{AmOHCO}_3(\text{am,hyd})$ の場合)

-7.200(PSI-TDB)



$\log K = -12.300$ (JNC-TDB),  $-12.300$ (NEA-TDB),  $-12.300$ (PSI-TDB)

のように(3-5-2)式を与える(3-5-4)式および(3-5-5)式のうち、(3-5-4)式の K 値が JNC-TDB のものが小さいからである。ちなみに、(3-5-1)式の K 値が異なるのは次の(3-5-6)式の K 値が異なるからである。



$\log K = -7.600$ (JNC-TDB),  $-8.000$ (NEA-TDB),  $-7.800$ (PSI-TDB)

(3-5-3)式の K 値が異なるのは次の(3-5-7)式の K 値が異なるからである。



$\log K = -15.200$ (JNC-TDB),  $-15.000$ (NEA-TDB),  $-15.200$ (PSI-TDB)

表 3.5.1 FRHP 間隙水に対する Am の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	AmOHCO <sub>3</sub>	7.1 × 10 <sup>-9</sup>	Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>-</sup> : 65% Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>3-</sup> : 26% AmCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : 8%
NEA-TDB	AmOHCO <sub>3</sub> · 0.5H <sub>2</sub> O(cr)	2.7 × 10 <sup>-8</sup>	Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>-</sup> : 86% Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>3-</sup> : 7% AmCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : 6% AmSiO(OH) <sub>3</sub> <sup>2+</sup> : 1%
NEA-TDB	AmOHCO <sub>3</sub> (am,hyd)	4.3 × 10 <sup>-6</sup>	Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>-</sup> : 86% Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>3-</sup> : 7% AmCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : 6% AmSiO(OH) <sub>3</sub> <sup>2+</sup> : 1%
PSI-TDB	AmOHCO <sub>3</sub> (cr)	1.5 × 10 <sup>-7</sup>	Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>-</sup> : 60% Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>3-</sup> : 24% AmCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : 12% AmSiO(OH) <sub>3</sub> <sup>2+</sup> : 3%

3.5.2 Am の SRHP 間隙水中溶解度評価

NEA-TDB(AmOHCO<sub>3</sub> · 0.5H<sub>2</sub>O(cr) の場合) および PSI-TDB では Am(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>-</sup> の濃度は JNC-TDB より大きい [Am(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>-</sup> の濃度 = 6.90 × 10<sup>-11</sup>(mol/l)(JNC-TDB)、3.25 × 10<sup>-8</sup>(mol/l)(NEA-TDB AmOHCO<sub>3</sub> · 0.5H<sub>2</sub>O(cr) の場合)、1.05 × 10<sup>-7</sup>(mol/l)(PSI-TDB)]。この Am(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>-</sup> の濃度差は 3.5.1 で記述したように(3-5-4)式の K 値がデータベース間で異なることと HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度がデータベース間で異なることが原因である。HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は 2.477 × 10<sup>-4</sup>(mol/l)(JNC-TDB)、2.134 × 10<sup>-2</sup>(mol/l)(NEA-TDB)、1.622 × 10<sup>-2</sup>(mol/l)(PSI-TDB)である。他の炭酸錯体である AmCO<sub>3</sub><sup>+</sup>および Am(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>3-</sup>も、(3-5-4)式の K 値がデータごとに異なることが原因で(3-5-1)式および(3-5-3)式の K 値が異なり、データ間で濃度が異なる。どの炭酸錯体についても PSI-TDB が最も高濃度になる。

水酸化錯体の AmOH<sup>2+</sup>、Am(OH)<sub>2</sub><sup>+</sup>の濃度は JNC-TDB で大きく、NEA-TDB および PSI-TDB では小さくて支配化学種の 1%未満である。AmOH<sup>2+</sup>の濃度は 8.31 × 10<sup>-9</sup>(mol/l)(JNC-TDB)、1.759 × 10<sup>-11</sup>(mol/l)(NEA-TDB)、5.956 × 10<sup>-10</sup>(mol/l)(PSI-TDB)である。AmOH<sup>2+</sup>は次の(3-5-8)式に従う。



$$\log K = 4.573(\text{JNC-TDB}), 5.272(\text{NEA-TDB}), 4.171(\text{PSI-TDB})$$

(3-5-8)式の K 値が異なるのは(3-5-4)式と次の(3-5-9)式の K 値が異なるからである。





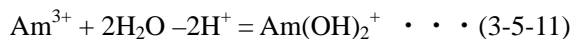
logK = -6.400(JNC-TDB), -7.200(NEA-TDB), -7.3000(PSI-TDB)

Am(OH)<sub>2</sub><sup>+</sup>は次の(3-5-10)式に従う。



logK = 12.273(JNC-TDB), 13.172(NEA-TDB), 12.071(PSI-TDB)

(3-5-10)式 K 値が異なるのは(3-5-4)式と次の(3-5-11)式の K 値が異なるからである。



logK = -14.100(JNC-TDB), -15.100(NEA-TDB), -15.200(PSI-TDB)

表 3.5.2 SRHP 間隙水に対する Am の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	AmOHCO <sub>3</sub>	1.7 × 10 <sup>-8</sup>	AmOH <sup>2+</sup> : 49% Am(OH) <sub>2</sub> <sup>+</sup> : 25% AmCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : 16% Am <sup>3+</sup> : 9%
NEA-TDB	AmCO <sub>3</sub> OH(am,hyd)	7.1 × 10 <sup>-6</sup>	Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>-</sup> : 72% AmCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : 19% Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>3-</sup> : 5% AmSiO(OH) <sub>3</sub> <sup>2+</sup> : 4%
NEA-TDB	AmCO <sub>3</sub> OH · 0.5H <sub>2</sub> O(cr)	4.5 × 10 <sup>-8</sup>	Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>-</sup> : 72% AmCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : 19% Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>3-</sup> : 5% AmSiO(OH) <sub>3</sub> <sup>2+</sup> : 4%
PSI-TDB	AmCO <sub>3</sub> OH (cr)	3.8 × 10 <sup>-7</sup>	Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>-</sup> : 27% Am(CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>3-</sup> : 27% AmCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> : 26% AmSiO(OH) <sub>3</sub> <sup>2+</sup> : 19%

### 3.5.3 Am の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価

Am の溶解度計算についてはデータベース間の差が顕著である。この原因として、(3-5-4)式の K 値を JNC-TDB では Felmy et al.(1990)<sup>27)</sup>のものを引用しているのに対し、PSI-TDB では NEA が Am の熱力学データについてレビューした Silva et al.(1995)<sup>28)</sup>のものを引用している。NEA-TDB については Silva et al.1984<sup>29)</sup>と Meril,L. & Fuger,L.,1996<sup>30)</sup>の平均値としている。水酸化錯体については JNC-TDB では Silva et al.(1995)<sup>28)</sup>を、PSI-TDB では更に新しい知見であり、分光法を用いて Am( )の加水分解を研究した Neck et al.(1998)<sup>31)</sup>を、NEA-TDB については複数の文献 ( Stadler & Kim,1988<sup>32)</sup>, Runde & Kim,1994<sup>33)</sup>, Edelstein et al.,1983<sup>34)</sup>, Caceci

& Choppin,1983<sup>35)</sup>, Wimmer et al.,1992<sup>36)</sup>,Fanghänel et al.,1994<sup>37)</sup>)に基づき、SIT model を適用することでK 値を決めている。JAEA-TDB の整備において、Neck et al.(1998)<sup>31)</sup>およびNEAでの値の選定方法を考慮する必要がある。

### 3.6 ウラン(U)

Rai et al.(1995)<sup>15)</sup>により脱酸素 ( $O_2$  分圧  $< 10^{-75}$  atm)・還元条件下の 0.01mol/l NaOH 溶液中での  $Na_2SO_3$  濃度を変えた  $U(O_2(am))$ の溶解度実験が行われ、この実験から溶解度制限固相を  $UO_2(am)$ と仮定してある。ここでも、この仮定に基づき溶解度制限固相を  $UO_2(am)$ と仮定した。

#### 3.6.1 U の FRHP 間隙水中溶解度評価

ウランは地下水中で主に  $U(IV)$  および  $U(VI)$  の酸化状態をとる元素で、 $U(IV)$   $U(VI)$  の酸化還元反応が間隙水中でおこり、 $U(VI)$  の炭酸錯体が間隙水中で支配的化学種となっている。どのデータベースに基いて計算しても支配化学種のほとんどを占める  $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ は(3-6-1)式に基づき、その濃度はPSI-TDBによるものは低い。これは(3-6-1)式のK 値がPSI-TDBのものでは大きいからであると考えられる。(3-6-1)式のK 値がデータベースにより異なっただけで、(3-6-1)式のもとになる(3-6-5)式、(3-6-6)式、(3-6-7)式のK 値が異なるからである。PSI-TDBでは $UO_2(am)$ のデータがなく、 $UO_2(s)$ を溶解度制限固相として計算した。

(3-6-2)式に従って反応する  $UO_2(CO_3)_2^{2-}$ は(3-6-2)式のK 値が異なることにより、データベース間でその濃度は異なる。K 値が小さいほど  $UO_2(CO_3)_2^{2-}$ の濃度は大きい [ $1.5 \times 10^{-7}$ (mol/l)(JNC-TDB)、 $7.3 \times 10^{-9}$ (mol/l) (NEA-TDB)、 $1.3 \times 10^{-9}$ (mol/l)(PSI-TDB)]。(3-5-2)式のK 値がデータベースにより異なっただけで、(3-6-2)式のもとになる(3-6-5)式、(3-6-6)式、(3-6-7)式のK 値が異なるからである。

なお、第2次取りまとめでの溶解度設定では、U の溶解度計算において前述の Rai et al.(1995)<sup>15)</sup>の実験値との比較により  $U(IV)$  のみの熱力学データで溶解度計算を行ったほうが適切であるとの判断を行っている<sup>8)</sup>。そのためここでも  $U(IV)$  のみで計算した結果を表3.6.2に示す。溶解度はJNC-TDBが大きいのは、JNC-TDBだけ(3-6-4)式による  $U(OH)_2(CO_3)_2^{2-}$ が溶存化学種に含まれるからである。NEA-TDBとPSI-TDBには  $U(OH)_2(CO_3)_2^{2-}$ のデータがない。一方、(3-6-3)式に従う  $U(OH)_4$ については(3-6-3)式のK 値にもそれほど大差がなく、その濃度もデータベース間で大差がない。



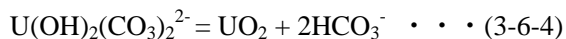
$$\log K = 15.859(\text{JNC-TDB}), 16.674(\text{NEA-TDB}), 18.419(\text{PSI-TDB})$$



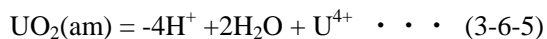
$$\log K = 10.192(\text{JNC-TDB}), 11.577(\text{NEA-TDB}), 12.752(\text{PSI-TDB})$$



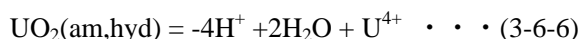
logK = 8.690(JNC-TDB), 8.500(NEA-TDB), 9.0000(PSI-TDB)



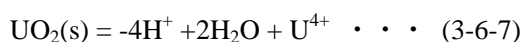
logK = 4.764(JNC-TDB)



logK = 2.560(JNC-TDB)



logK = 1.505(NEA-TDB)



logK = -0.000(PSI-TDB)

表 3.6.1 FRHP 間隙水に対する U の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	UO <sub>2</sub> (am)	6.3 × 10 <sup>-6</sup>	UO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>4-</sup> : 98% UO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>2-</sup> : 2%
NEA-TDB	UO <sub>2</sub> (am, hyd)	1.1 × 10 <sup>-6</sup>	UO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>4-</sup> : 99%
PSI-TDB	UO <sub>2</sub> (s)	5.9 × 10 <sup>-8</sup>	UO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>4-</sup> : 96% UO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>2-</sup> : 2% U(OH) <sub>4</sub> : 2%

表 3.6.2 FRHP 間隙水に対する U( ) の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	UO <sub>2</sub> (am)	7.5 × 10 <sup>-9</sup>	U(OH) <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>2-</sup> : 73% U(OH) <sub>4</sub> : 27%
NEA-TDB	UO <sub>2</sub> (am, hyd)	3.2 × 10 <sup>-9</sup>	U(OH) <sub>4</sub> : 100%
PSI-TDB	UO <sub>2</sub> (s)	9.9 × 10 <sup>-10</sup>	U(OH) <sub>4</sub> : 100%

### 3.6.2 U の SRHP 間隙水中溶解度評価

NEA-TDB および PSI-TDB では支配化学種の大半が UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>4-</sup>である。しかしながら、JNC-TDB では UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>4-</sup>は溶解度の 0.04%しか存在しない。これは HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が 2.477 × 10<sup>-4</sup>(mol/l)(JNC-TDB)、2.134 × 10<sup>-2</sup>(mol/l) (NEA-TDB)、1.622 × 10<sup>-2</sup>(mol/l) (PSI-TDB)というように JNC-TDB で低い。これは 3.2.2 項で述べたように CH<sub>4</sub> との平衡の違いが効いている。このため、JNC-TDB では UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>4-</sup>濃度が小さいと考えられる。(3-6-1)式の K 値の差よりもこの HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の影響が大きい。

一方、 $U(OH)_4$  は(3-6-3)式に基づき、その濃度はデータベース間で  $UO_2(CO_3)_3^{4-}$  ほど大差がない。つまり、溶解度は  $UO_2(CO_3)_3^{4-}$  濃度に左右される。

$U( )$  のみで計算した結果を表 3.6.4 に示す。どのデータベースで計算しても  $U(OH)_4$  が支配的である。したがって  $U( )$  のみの溶解度の大小はこの  $U(OH)_4$  濃度によって決まる [ $U(OH)_4$  の濃度 =  $1.70 \times 10^{-9}$  (mol/l)(JNC-TDB)、 $2.63 \times 10^{-9}$  (mol/l)(NEA-TDB)、 $9.59 \times 10^{-10}$  (mol/l)(PSI-TDB)]。  $U(OH)_4$  に関する(3-6-3)式は(3-6-5)～(3-6-7)式および(3-6-8)式に基づき、この(3-6-5)～(3-6-7)式および(3-6-8)式の K 値の差が  $U(OH)_4$  濃度のデータベース間の差に効いている。



$$\log K = -11.250(\text{JNC-TDB}), -10.005(\text{NEA-TDB}), -9.0000(\text{PSI-TDB})$$

表 3.6.3 SRHP 間隙水に対する U の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	$UO_2(\text{am})$	$1.8 \times 10^{-9}$	$U(OH)_4$ : 95% $UO_2^{+}$ : 5%
NEA-TDB	$UO_2(\text{am, hyd})$	$2.1 \times 10^{-8}$	$UO_2(CO_3)_3^{4-}$ : 86% $U(OH)_4$ : 13%
PSI-TDB	$UO_2(\text{s})$	$8.1 \times 10^{-9}$	$UO_2(CO_3)_3^{4-}$ : 89% $U(OH)_4$ : 10%

表 3.6.4 SRHP 間隙水に対する  $U( )$  の溶解度

データベース	溶解度制限固相	溶解度(mol/l at 25 )	支配化学種
JNC-TDB	$UO_2(\text{am})$	$1.7 \times 10^{-9}$	$U(OH)_4$ : 100%
NEA-TDB	$UO_2(\text{am, hyd})$	$2.8 \times 10^{-9}$	$U(OH)_4$ : 94% $U(CO_3)_4^{4-}$ : 6%
PSI-TDB	$UO_2(\text{s})$	$9.6 \times 10^{-10}$	$U(OH)_4$ : 100%

### 3.6.3 U の溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価

(3-6-5)～(3-6-7)式の K 値がデータベースごとで違うことが溶解度差の主たる原因である。この K 値について、JNC-TDB では Rai et al.,1997<sup>38)</sup> を引用しているのに対し、NEA-TDB では、最近の  $UO_2(\text{am})$  や  $UO_2(\text{cr})$  の溶解度試験から K 値を選定した Neck & Kim,2001<sup>39)</sup> を引用している。PSI-TDB では一つの文献から引用するのではなく、複数の文献を考慮した上で K 値を決めている。Neck & Kim,2001<sup>39)</sup> を考慮したうえで K 値を選定する必要がある。また、NEA-TDB および PSI-TDB では  $U(OH)_2(CO_3)_2^{2-}$  のデータがない。しかしながら、この化学種は FRHP 間隙水中で  $U( )$  を支配するので JAEA-TDB を整備する段階でもこれをデータに入

れる必要がある。

#### 4. 溶解度評価結果および今後の課題

Se, U, Np, Pu, Th, Am について、JNC-TDB、NEA-TDB および PSI-TDB に基づき PHREEQC により溶解度及び溶存化学種の評価を行った。表 4.1 に元素ごとの溶解度評価結果をまとめた。データベース間で溶解度や支配化学種に差があるのは主に次のことが原因である。一つはデータベース中にある溶解度制限固相及び支配化学種についての反応式の K 値がデータベース間で差があること、二つめは一部の炭酸錯体およびヒドロキソ炭酸錯体についてはデータベース間で登録されている化学種自体に差異があること、三つめは  $\text{CO}_3^{2-}/\text{CH}_4$  の酸化還元平衡定数がデータベース間で異なることにより、 $\text{HCO}_3^-$  濃度がデータベースごとで異なることである。

このように、データベース間でデータに差異があることの原因としては次のことが挙げられる。一つはそれぞれのデータベースが作成された年代が異なることにより新しい知見が反映されていること、二つめは 1.章でも述べたようにデータベースの設計思想の違いから NEA-TDB および PSI-TDB においては値を選定していないケースがあること、三つめは JNC-TDB では K 値を一つの文献から引用しているのに対して、NEA-TDB および PSI-TDB では複数の文献値の平均値を選定したり、SIT model を適用したりするなど一つの文献に絞らない場合もあることである。

さらに、これらのデータの引用元を調査する過程において、平衡定数の選定のもととなる実験データが不足していることやデータ数はあるものの報告値のバラつきが大きいことが確認され、試験の実施による更なるデータの拡充および個別試験データの信頼性の確認が必要であることが改めて認識された。

今後、JAEA-TDB を整備するにあたっては、処分システムの安全評価に利用可能なデータベースを準備するという観点から、データベースの整備方針およびデータ選定の考え方や基準を明確にした上で、本調査により明らかにされた文献情報等を取り入れて値の選定を行う。

表 4.1 溶解度評価結果 (1/4)

溶解度評価および溶解度に影響を及ぼす熱力学データベースの比較評価	
Se	<ul style="list-style-type: none"> <li>FeSe<sub>2</sub>(cr)のデータが NEA-TDB および PSI-TDB にはない。</li> <li>以下の反応式の K 値が異なる。この反応式のもとになる反応式および引用文献がデータベースごとに異なる。  <math display="block">\text{HSe}^- = \text{Se (cr)} + \text{H}^+ + 2\text{e}^- \quad \dots (3-1-1)</math> <math display="block">\log K = 7.720(\text{JNC-TDB, Cross et al.,1987}^9),</math> <math display="block">7.770(\text{NEA-TDB, Oline et al.,2005}^7),</math> <math display="block">7.700(\text{PSI-TDB, Perrin,1982}^{10})</math> </li> </ul>
Th	<ul style="list-style-type: none"> <li>NEA-TDB では Th に対するデータ整備が終了していない。</li> <li>支配化学種である Th(OH)<sub>3</sub>CO<sub>3</sub><sup>-</sup>に関する次の式において  <math display="block">\text{Th(OH)}_3\text{CO}_3^- = \text{ThO}_2 + \text{H}_2\text{O} + \text{HCO}_3^- \quad \dots (3-2-4)</math> <math display="block">\log K = 3.547(\text{JNC-TDB}), 3.5290(\text{PSI-TDB})</math>                     のように K 値は大差ないので FRHP 間隙水中ではデータベース間で溶解度の差がほとんどない。</li> <li>SRHP 間隙水中では PSI-TDB の溶解度は JNC-TDB のものの約 100 倍にもなる。次の式の K 値が異なり、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度が PSI-TDB で JNC-TDB の約 100 倍になることが原因である。  <math display="block">\text{CO}_3^{2-} + 10\text{H}^+ + 8\text{e}^- - 3\text{H}_2\text{O} = \text{CH}_4</math> <math display="block">\log K = 41.071(\text{JNC-TDB}), 37.1782(\text{PSI-TDB})</math> </li> <li>活量補正の方法の違いにより Th(CO<sub>3</sub>)<sub>5</sub><sup>6-</sup>の濃度が異なる。</li> </ul>
Np	<ul style="list-style-type: none"> <li>JNC-TDB には Np(CO<sub>3</sub>)<sub>4</sub><sup>4-</sup>についてのデータがない。</li> <li>NEA-TDB および PSI-TDB では Np(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>2-</sup>に関するデータがない。</li> <li>以下の 2 式において NEA-TDB の K 値が JNC-TDB および PSI-TDB からずれている。  <math display="block">\text{NpO}_2(\text{am}) = \text{Np}^{4+} + 2\text{H}_2\text{O} - 4\text{H}^+ \quad \dots (3-3-3)</math> <math display="block">\log K = 1.510(\text{JNC-TDB, Rai et al.,1987}^{19}),</math> <math display="block">-0.695(\text{NEA-TDB, Neck and Kim,2001}^{20}),</math> <math display="block">1.5000(\text{PSI-TDB, Lemire et al.,2001}^{21})</math> </li> <li> <math display="block">\text{Np}^{4+} + 2\text{H}_2\text{O} - 4\text{H}^+ = \text{Np(OH)}_4 \quad \dots (3-3-5)</math> <math display="block">\log K = -10.00(\text{JNC-TDB, Rai and Ryan,1985}^{18}),</math> <math display="block">-8.305(\text{NEA-TDB, Neck and Kim,2001}^{20}),</math> <math display="block">-9.800(\text{PSI-TDB, Lemire et al.,2001}^{21})</math> </li> </ul>

表 4.1 溶解度評価結果 (2/4)

Pu	<ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>\text{Pu}(\text{OH})_2^+</math>、<math>\text{Pu}(\ )</math>の炭酸錯体 <math>\text{PuCO}_3^+</math>、<math>\text{Pu}(\text{CO}_3)_2^-</math>、<math>\text{Pu}(\text{CO}_3)_3^{3-}</math> および <math>\text{Pu}(\ )</math>の <math>\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}</math> が NEA-TDB および PSI-TDB にはデータがない。</li> <li>• JNC-TDB では <math>\text{Pu}(\ )</math>の炭酸錯体をアクチニド 価同士のアナログで <math>\text{Am}(\ )</math>の値を入れている。NEA-TDB および PSI-TDB はこのようなことは行っていない。</li> <li>• <math>\text{Pu}(\ )</math>の加水分解について JNC-TDB は <math>\text{Am}</math> の値を使っている。NEA は値を選定していない。PSI-TDB はとりあえず使えるデータの平均を使っている。</li> <li>• 以下の反応式で K 値がデータベースごとに異なる。</li> </ul> <p><math>\text{PuO}_2(\text{am}) = \text{Pu}^{4+} + 2\text{H}_2\text{O} - 4\text{H}^+ \dots (3-4-2)</math>  <math>\log K = -0.850(\text{JNC-TDB, Rai, 1984}^{40}),</math>  <math>-2.325(\text{NEA-TDB, Knopp et al., 1999}^{25}, \text{Capdevila \&amp; Vitorge, 1998}^{41}, \text{Fujiwara et al., 2001}^{42}, \text{Rai et al., 2002}^{43}),</math>  <math>-2.0000(\text{PSI-TDB, Lemire et al., 2001}^{21})</math></p> <p><math>\text{Pu}^{4+} + 4\text{H}_2\text{O} - 4\text{H}^+ = \text{Pu}(\text{OH})_4 \dots (3-4-3)</math>  <math>\log K = -9.150(\text{JNC-TDB, Yamaguchi et al., 1994}^{22}),</math>  <math>-8.500(\text{NEA-TDB, Knopp et al., 1999}^{25}, \text{Neck \&amp; Kim, 1999}^{26}, \text{Neck \&amp; Kim, 2001}^{39}),</math>  <math>-8.400(\text{PSI-TDB, Neck \&amp; Kim, 2001}^{39})</math></p> <p><math>\text{Pu}^{3+} + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ = \text{PuOH}^{2+} \dots (3-4-5)</math>  <math>\log K = -6.400(\text{JNC-TDB Silva et al., 1995}^{28}),</math>  <math>-6.9000 (\text{PSI-TDB, 4 回の potentiometric 測定の平均値})</math></p> <p><math>\text{Pu}^{4+} + \text{e}^{-1} = \text{Pu}^{3+} \dots (3-4-7)</math>  <math>\log K = 16.900(\text{JNC-TDB, Fuger and Oetting, 1976}^{44}),</math>  <math>17.694(\text{NEA-TDB}),</math>  <math>16.6900(\text{PSI-TDB})</math></p>
----	--

表 4.1 溶解度評価結果 (3/4)

Am	<ul style="list-style-type: none"> <li>• JNC-TDB には <math>\text{AmSiO}(\text{OH})_3^{2+}</math> に関するデータはない。</li> <li>• 以下の反応式で K 値が異なる。  <math display="block">\text{AmOHCO}_3 = \text{Am}^{3+} + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ + \text{CO}_3^{2-} \quad \dots (3-5-4)</math> <math display="block">\log K = -8.500 (\text{JNC-TDB, Felmy et al., 1990}^{27}),</math> <ul style="list-style-type: none"> <li>-8.399 (NEA-TDB <math>\text{AmOHCO}_3 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}(\text{cr})</math> の場合, Silva et al. 1984<sup>29</sup>) と Meril, L. &amp; Fuger, L., 1996<sup>30</sup> の平均値),</li> <li>-6.199 (NEA-TDB <math>\text{AmOHCO}_3(\text{am, hyd})</math> の場合)</li> <li>-7.200 (PSI-TDB, Silva et al., 1995<sup>28</sup>)</li> </ul>   <math display="block">\text{Am}^{3+} + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ = \text{AmOH}^{2+} \quad \dots (3-5-9)</math> <math display="block">\log K = -6.400 (\text{JNC-TDB, Silva et al., 1995}^{28}),</math> <ul style="list-style-type: none"> <li>-7.200 (NEA-TDB, Stadler &amp; Kim, 1988<sup>32</sup>), Runde &amp; Kim, 1994<sup>33</sup>), Edelstein et al., 1983<sup>34</sup>), Caceci &amp; Choppin, 1983<sup>35</sup>), Wimmer et al., 1992<sup>36</sup>), Fanghänel et al., 1994<sup>37</sup>) のデータに基づく SIT model の適用),</li> <li>-7.3000 (PSI-TDB, Neck et al., 1998<sup>45</sup>)</li> </ul>   <math display="block">\text{Am}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} - 2\text{H}^+ = \text{Am}(\text{OH})_2^+ \quad \dots (3-5-11)</math> <math display="block">\log K = -14.100 (\text{JNC-TDB, Silva et al., 1995}^{28}),</math> <ul style="list-style-type: none"> <li>-15.100 (NEA-TDB, Stadler &amp; Kim, 1988<sup>32</sup>), Runde &amp; Kim, 1994<sup>33</sup>), Wimmer et al., 1992<sup>36</sup>), Fanghänel et al., 1994<sup>37</sup>) に基づく SIT model の適用),</li> <li>-15.200 (PSI-TDB, Neck et al., 1998<sup>45</sup>)</li> </ul>   <li>• <math>\text{HCO}_3^-</math> 濃度がデータベースごとに異なる (Th の項参照)</li> </li></ul>
----	---



表 4.1 溶解度評価結果 (4/4)

U	<ul style="list-style-type: none"> <li>• HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が JNC-TDB で小さくなる (Th の項参照)</li> <li>• NEA-TDB と PSI-TDB には U(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>2-</sup> のデータがない。</li> <li>• 以下の反応式で DB ごとに値が異なる</li> </ul> <p style="margin-left: 2em;"> <math display="block">\text{UO}_2(\text{am}) = -4\text{H}^+ + 2\text{H}_2\text{O} + \text{U}^{4+} \quad \dots (3-6-5)</math> <math display="block">\log K = 2.560(\text{JNC-TDB, Rai et al.,1997}^{38})</math> </p> <p style="margin-left: 2em;"> <math display="block">\text{UO}_2(\text{am,hyd}) = -4\text{H}^+ + 2\text{H}_2\text{O} + \text{U}^{4+} \quad \dots (3-6-6)</math> <math display="block">\log K = 1.505(\text{NEA-TDB, Neck \&amp; Kim,2001}^{39})</math> </p> <p style="margin-left: 2em;"> <math display="block">\text{UO}_2(\text{s}) = -4\text{H}^+ + 2\text{H}_2\text{O} + \text{U}^{4+} \quad \dots (3-6-7)</math> <math display="block">\log K = -0.000(\text{PSI-TDB, Hummel et al.,2002}^{3})</math> </p> <p style="margin-left: 2em;"> <math display="block">\text{U}^{4+} - 4\text{H}^+ + 4\text{H}_2\text{O} = \text{U}(\text{OH})_4 \quad \dots (3-6-8)</math> <math display="block">\log K = -11.250(\text{JNC-TDB, Yajima et al.,1995}^{46}),</math> <math display="block">-10.005(\text{NEA-TDB, Neck \&amp; Kim,2001}^{39}),</math> <math display="block">-9.0000(\text{PSI-TDB, Hummel et al.,2002}^{3})</math> </p>
---	---

謝辞

本研究を実施するにあたり、地層処分研究開発部門 核種移行研究グループ 宮原 要氏、吉田 泰氏、藤原健壮氏、地層処分基盤研究開発ユニット ユニット長 油井 三和氏および虎田真一郎氏には多大なご助言・ご協力を頂きました。ここに記して感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構：“わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 - 地層処分研究開発第 2 次取りまとめ - 分冊 3 地層処分システムの安全評価 ”、サイクル機構技術報告書、JNC-TN1400 99-023 ( 1999 )
- 2) M. Yui, J. Azuma and M. Shibata : JNC Thermodynamic Database for Performance Assessment of High-level Radioactive Waste Disposal System, JNC TN8400 99-070 ( 1999 )
- 3) W. Hummel, U. Berner, E. Curti, F. J. Pearson and T. Thoenen : “ Nagra/PSI Chemical Thermodynamic Data Base 01/01 ” , Universal Publishers ( 2002 )
- 4) R. Guillaumont : “ Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium ” , ELSEVIER ( 2003 )
- 5) 吉田 泰、柴田雅博：OECD/NEA で整備された熱力学データベース利用環境の整備 その 2 -Tc, U, Np, Pu, Am および auxiliary の熱力学データの更新-, JNC TN8400 2004-025 (2005)
- 6) Parkhurst, D. L. : “ PHREEQC – User’s Guide to PHREEQC – A Computer Program for Speciation, Reaction – Path, Advective – Transport, and Inverse Geochemical Calculations, ” U.S.Geological Survey, Water – Resources Investigations Report 95-4227 ( 1995 )
- 7) A. Olin : “ Chemical Thermodynamics of Selenium ” , ELSEVIER ( 2005 )
- 8) 東 侍郎、柴田雅博、油井三和、澁谷朝紀、能登屋 信、吉田 泰：地層処分第 2 次取りまとめにおける放射性元素の溶解度評価, JNC-TN8400 99-071 (1999)
- 9) Cross, L. E., Ewart, F. T. and Tweed, C. J. : Thermodynamic Modelling with Application to Nuclear Waste Processing and Disposal, AERE-R 12324 ( 1987 )
- 10) Perrin D. D. : Ionisation constants for inorganic acids and bases in aqueous solution. 2<sup>nd</sup> ed., IUPAC Chemical Data Series 29, Oxford Pergamon Press, 180p. ( 1982 )
- 11) Séby F., Point-Gautier M., Giffaut E., Borge G., Donard O. F. X. : A critical review of thermodynamic data for Selenium species at 25 . Chemical Geology, 171, 173-194 (2001)
- 12) Bruner-Krakau, L. : Über Selen- und Tellurwasserstoff als Säuren, Z.Elektrochem., 21, 861, in German (1913)
- 13) de Hlasko, M., Sur la dissociation électrolytique de l’hydrogène sélénié et de l’hydrogène telluré, J. Chim. Phys. Phys.-Chim. Biol., 20, 167-172, in French. (1923)
- 14) Hagiwara, H., Dissociation constants of hydrogen selenide, Bull. Inst. Phys. Chem. Res.(Tokyo), 20, 384-389. (1941)
- 15) Rai, D., Felmy, A. R., Moore, D. A. and Mason, M. J. : “ The Solubility of Th( ) and U( ) Hydrated Oxides in Concentrated NaHCO<sub>3</sub> and Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> Solutions ” , Materials Research Society Symposium, Vol.353, p.1143 ( 1995 )
- 16) Parkhurst, D. L., Thorstenson, D. C. and Plummer, L. N. : PHREEQE – A Computer Program for Geochemical Calculations, U. S. Geological Survey, Water-Resources Investigations 80-96.

(1980)

- 17) Wagman, D. D., Evans, W. H., Parker, V.B., Schumm, R. H., Halow, I., Bailey, S. M., Churney, K. L. and Nuttal, R. L. : The NBS Tables of Chemical Thermodynamic Properties Selected Values for Inorganic and C1 and C2 Organic Substances in SI Units, Journal of Physical and Chemical Reference Data, Vol.11, No.2 (1982)
- 18) Rai, D. and Ryan, J. L. : Neptunium( ) Hydrous Oxide Solubility Under Reducing and Carbonate Conditions, Inorg.Chem., 24, pp.247-251. (1985)
- 19) Rai, D., Swanson, J. L., and Ryan, J. L. : Solubility of  $\text{NpO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}(\text{am})$  in the Presence of  $\text{Cu}(\ )/\text{Cu}(\ )$  Redox Buffer, Radiochimica Acta, 42, 35-41 (1987)
- 20) Neck, V., Kim, J. I., Seidel, B. S., Marquardt, C. M., Dardenne, K., Jensen, M.P., Hauser, W., A spectroscopic study of the hydrosis, colloid formation and solubility of  $\text{Np}(\ )$ , Radiocim.Acta, 89, 439-446 (2001)
- 21) Lemire et al. : Chemical Thermodynamics of Neptunium and Plutonium, Nuclear Energy Agency Data Bank, Organisation for Economic Co-operation, Development, Ed., vol.4, Chemical Thermodynamics, North Holland Elsevier Science Publishers B. V., Amsterdam, The Netherlands (2001)
- 22) Yamaguchi, T., Sakamoto, Y., and Ohnuki, T. : Effect of the Complexation on Solubility of  $\text{Pu}(\ )$  in Aqueous Carbonate System, Radiochimica Acta 66/67, 4-14 (1994)
- 23) Lieser, C. & Kim, J. I. : Chemisches Verhalten von Plutonium in natürlichen aquatischen Systemen : Hydrolyse, Carbonatkomplexierung und Redoxreaktionen. Report RCM 02286, Institut für Radiochemie, Technische Universität München (1986)
- 24) Rai, D., Hess, N.J., Felmy, A. R., Moore, D. A., Yui, M. & Vitorge, P. : A thermodynamic model for the solubility of  $\text{PuO}_2(\text{am})$  in the aqueous  $\text{K}^+ - \text{HCO}_3^- - \text{CO}_3^{2-} - \text{OH}^- - \text{H}_2\text{O}$  system. Radiochimica Acta, 86, 89 (1999)
- 25) Knopp, R., Neck, V., Kim, J.I. : Solubility, hydrolysis and colloid formation of plutonium( ), Radiochim. Acta, 435, 1-8. (1999)
- 26) Neck, V., Kim, J. I. : Solubility and hydrolysis of tetravalent actinides, Forschungszentrum Karlsruhe, Report FZKA 6350, 40pp. (1999)
- 27) Felmy, A. R., Rai, D., Fulton, R. W., The solubility of  $\text{AmOHCO}_3(\text{c})$  and the aqueous thermodynamics of the system  $\text{Na}^+ - \text{Am}^{3+} - \text{HCO}_3^- - \text{CO}_3^{2-} - \text{OH}^- - \text{H}_2\text{O}$ , Radiochim.Acta, 50, 193-204 (1990)
- 28) Silva, R. J., Bidoglio, G., Rand, M. H., Robouch, P. B., Wanner, H., Puigdomenech, I. : Chemical Thermodynamics of Americium. Elsevier, Amsterdam, 374p (1995)
- 29) Silva, R. J., Nitsche, H. : Thermodynamic properties of chemical species of waste radionuclides, NRC Nuclear waste geochemistry'83, Alexander, D. H., Birchard, G. F., Eds., NUREG/CP-0052, pp.70-93, U. S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, D. C., USA

- (1984)
- 30) Merli, L., Fuger, J. : Thermochemistry of selected lanthanide and actinide hydroxycarbonates and carbonates, *Radiochim. Acta*, 74, 37-43 (1996)
  - 31) Neck, V., Fanghanel, Th., Kim, J. I. : Aquatische Chemie und thermodynamische Modellierung von trivalenten Actiniden. Wissenschaftliche Berichte FZKA 6110, Forschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, Germany, 108p. (1998)
  - 32) Stadler, S., Kim, J. L. : Chemisches Verhalten von Americium in natürlichen wässrigen Lösungen: Hydrolyse, Radiolyse und Redox-reaktionen, Inst. für Radiochemie der Technischen Universität, München, Report RCM-01188, 141pp. (1988)
  - 33) Runde, W., Kim, J. L. : Chemical behaviour of trivalent and pentavalent americium in saline NaCl-solutions. Studies of transferability of laboratory data to natural conditions, Technische Universität München, Report RCM 01094, 236pp. (1994)
  - 34) Edelstein, N. M., Bucher, J. J., Silva, R. J., Nitsche, H. : Thermodynamic properties of chemical species in nuclear waste, Lawrence Berkeley Laboratory, Report ONWI-399 and LBL-14325, 115pp. (1983)
  - 35) Caceci, M. S., Choppin, G. R. : The determination of the first hydrolysis constant of Eu( ) and Am( ), *Radiochim. Acta*, 33, 101-104. (1983)
  - 36) Wimmer, H., Klenze, R., Kim, J. I. : A study of hydrolysis reaction of curium( ) by time resolved laser fluorescence spectroscopy , *Radiochim. Acta*, 56, 79-83 (1992)
  - 37) Fanghänel, T., Kim, J. I., Paviet, P., Klenze, R., Hauser, W. : Thermodynamics of radioactive trace elements in concentrated electrolyte solutions: hydrolysis of Cm<sup>3+</sup> in NaCl-solutions, *Radiochim. Acta*, 66/67, 81-87. (1994)
  - 38) Rai, D., Felmy, A. R., and Ryan, J. L. : The Solubility of Th( ) and U( ) Hydrrous Oxide in Concentrated NaCl and MgCl<sub>2</sub> Solutions, *Radiochim. Acta* Vol.79, 239-249. (1997)
  - 39) Neck, V., Kim, J. I. : Solubility and hydrolysis of tetravalent actinides, *Radiochim. Acta*, 89, 1-46.(2001)
  - 40) Rai, D. : Solubility Product of Pu( ) Hydrrous Oxide and Equilibrium Constants of Pu( )/Pu( ), Pu( )/Pu( ), and Pu( )/Pu( ) Couple., *Radiochim. Acta* 35, 97-106 (1984)
  - 41) Capdevila, H., Vitorge, P. : Solubility product of Pu(OH)<sub>4</sub>(am), *Radiochim. Acta*, 82, 11-16. (1998)
  - 42) Fujiwara, K., Yamana, H., Fujii, T., Moriyama, H. : Solubility product of plutonium hydrrous oxide, *J. Nucl. Mater.*, 297, 332-340. (2001)
  - 43) Rai, D., Gorby, Y. A., Fredrickson, J. K., Moore, D. A., Yui, M. : Reductive dissolution of PuO<sub>2</sub>(am): The effect of Fe( ) and hydroquinone, *J. Solution Chem*, 31, 433-453. (2002)
  - 44) Fuger, J., and Oetting, F. L. : The Chemical Thermodynamics of Actinide Elements and Compounds Part 2, The Actinide Aqueous Ions. International Atomic Energy Agency, Vienna,

Austria (1976)

- 45) Neck, V., Fanghänel, T., Kim, J. I. : Aquatische Chemie und thermodynamische Modellierung von trivalenten Actiniden. Wissenschaftliche Berichte FZKA 6110, Forschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, Germany, 108p. (1998)
- 46) Yajima, T., Kawamura, T. and Ueta, S. : Uranium( ) Solubility and Hydrolysis Constants under Reduced Conditions, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 353, pp.1137-1142 (1995)

# 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
物質の量	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 <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
波数	毎メートル	m <sup>-1</sup>
密度 (質量密度)	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
質量体積 (比体積)	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
(物質の)濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>
屈折率	(数の) 1	1

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 <sup>24</sup>	ヨタ	Y	10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>21</sup>	ゼタ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>18</sup>	エクサ	E	10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>15</sup>	ペタ	P	10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>12</sup>	テラ	T	10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>9</sup>	ギガ	G	10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>6</sup>	メガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>3</sup>	キロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト	a
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h	10 <sup>-21</sup>	ゼプト	z
10 <sup>1</sup>	デカ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト	y

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

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 <sup>(a)</sup>	rad		m <sup>2</sup> ・m <sup>-1</sup> =1 <sup>(b)</sup>
立体角	ステラジアン <sup>(a)</sup>	sr <sup>(c)</sup>		m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> =1 <sup>(b)</sup>
周波数	ヘルツ	Hz		s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N		m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N・m	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup>
工率, 放射束	ワット	W	J/s	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup>
電荷, 電気量	クーロン	C		s <sup>1</sup> ・A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-1</sup>
静電容量	ファラド	F	C/V	m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup>
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-2</sup>
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>3</sup> ・A <sup>2</sup>
磁束密度	ウェーバ	Wb	V・s	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>1</sup>
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>	kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-1</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-2</sup>
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(d)</sup>	°C		K
光度 (放射能)	ルーメン	lm	cd・sr <sup>(c)</sup>	m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・cd=cd
照射線量	グレイ	Gy	J/kg	m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・cd=m <sup>2</sup> ・cd
吸収線量, 質量エネルギー分与, カーマ線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量, 組織線量当量	シーベルト	Sv	J/kg	s <sup>-1</sup>

- (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に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°C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

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 <sup>-1</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-1</sup>	
表面張力	ニュートンメートル	N・m	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup>	
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup>	
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m <sup>2</sup> ・m <sup>-1</sup> ・s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>	
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎平方秒	rad/s <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> ・m <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>	
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup>	
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/K	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>	
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	J/(kg・K)	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>	
熱伝導率	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg・K)	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>	
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m・K)	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup> ・K <sup>-1</sup>	
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>-1</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup>	
体積電荷	ボルト毎メートル	V/m	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-1</sup>	
電気変位	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> ・s <sup>1</sup> ・A	
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>-2</sup> ・s <sup>1</sup> ・A	
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m <sup>-3</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup>	
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m <sup>-3</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup>	
モルエントロピー	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・mol <sup>-1</sup>	
モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup> ・mol <sup>-1</sup>	
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> ・s <sup>1</sup> ・A	
吸収線量	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup>	
放射線強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m <sup>4</sup> ・m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup> =m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup>	
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> ・sr)	m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup> =kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup>	

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	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	′	1′=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	″	1″=(1/60)′=(π/648000) rad
リットル	l, L	1 l=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1 t=10 <sup>3</sup> kg
ネーパ	Np	1 Np=1
ベル	B	1 B=(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	1 eV=1.60217733(49)×10 <sup>-19</sup> J
統一原子質量単位	u	1 u=1.6605402(10)×10 <sup>-27</sup> kg
天文単位	ua	1 ua=1.49597870691(30)×10 <sup>11</sup> 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

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海里		1 海里=1852m
ノット		1 ノット=1 海里毎時=(1852/3600)m/s
アール	a	1 a=1 dam <sup>2</sup> =10 <sup>2</sup> m <sup>2</sup>
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
バル	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 <sup>5</sup> Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=10 <sup>-10</sup> m
バー	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ポアズ	P	1 P=1 dyn・s/cm <sup>2</sup> =0.1Pa・s
ストークス	St	1 St=1cm <sup>2</sup> /s=10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> /s
ガウス	G	1 G=10 <sup>4</sup> T
エルステッド	Oe	1 Oe=(1000/4π)A/m
マクスウェル	Mx	1 Mx=10 <sup>-8</sup> Wb
スチル	sb	1 sb=1cd/cm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> cd/m <sup>2</sup>
ホト	ph	1 ph=10 <sup>11</sup> lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm/s <sup>2</sup> =10 <sup>-2</sup> m/s <sup>2</sup>

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
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
X線単位	X unit	1 X unit=1.002×10 <sup>-4</sup> nm
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
ジャンスキー	Jy	1 Jy=10 <sup>-26</sup> W・m <sup>-2</sup> ・Hz <sup>-1</sup>
フェルミ	fm	1 fermi=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット	Torr	1 metric carat = 200 mg = 2×10 <sup>-4</sup> kg
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m