



核種移行評価モデルにおける Ra の共沈現象の検討

Development on Coprecipitation Model of Ra for Radionuclide Migration Analysis

吉田 泰* 吉川 英樹

Yasushi YOSHIDA* and Hideki YOSHIKAWA

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

March 2008

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.029-282-6387, Fax.029-282-5920

© Japan Atomic Energy Agency, 2008

核種移行評価モデルにおける Ra の共沈現象の検討

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

吉田 泰*、吉川 英樹

(2008 年 1 月 16 日受理)

Ra が他の元素に伴って共沈反応する際に、従来は例えば Ca 塩との共沈に際しては、モル比を保ったまま液相から固相に変化するとの仮定でモデル化や評価がなされていた。

本報では、共沈実験により得られた元素分配比と固液の Ca/Ra 存在比（モル比）が異なる点に着目して、共沈反応による Ra 分配比を分配係数に換算して表現する分配モデルを提案するとともに、例として降水系還元性高 pH (FRHP)地下水反応間隙水条件における分配係数の換算値を示した。

分配係数の換算値を考慮して降水系還元性高 pH (FRHP)地下水反応間隙水の条件において 4n+2 系列核種の人工バリアからの核種移行率を計算した結果、²²⁶Ra の人工バリアからの移行率が 4n+2 系列で最も高くなることが示されたものの、人工バリアからの核種放出率が最も高い ¹³⁵Cs の約 25 分の 1 であった。

Development on Coprecipitation Model of Ra for Radionuclide Migration Analysis

Yasushi YOSHIDA* and Hideki YOSHIKAWA

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

(Received January 16, 2008)

A concentration of Ra limited by coprecipitation reaction with calcite used to be estimated by a model of distribution assuming that constant mol ratio of Ra/Ca is preserved in solid and liquid phase. However, according to experiments of coprecipitation, it has been revealed that mol ratio of Ra/Ca in solid differs from that in liquid. This difference of ratio in solid and liquid phase was evaluated by a partition coefficient.

In this study, a partition model was established to evaluate an effect of coprecipitation of Ra in calcite with a partition coefficient. In the model, partition coefficient was converted to a distribution coefficient and the effect of incorporation of Ra was examined. As an example, this model was adopted under a condition of pore water of bentonite reacted with fresh reducing high pH (FRHP) ground water and a converted distribution coefficient was conducted.

Release rates of 4n+2 series nuclides from engineered barrier with this model were also calculated. As a result of calculation, release rate of ^{226}Ra was largest in their series on an outer surface of engineered barrier. This release rate was more than one order magnitude lower than that of ^{135}Cs .

Keywords : Ra, Coprecipitation, Calcite, Partition Coefficient

* NESI Inc.

目次

1. 序論	1
2. 分配モデルの提案	1
2. 1 2000年レポート時の評価方法の問題点	1
2. 2 現在までに得られた知見	2
2. 3 元素分配比を分配係数に換算した分配モデルの提案	3
3. 分配係数への換算計算	3
3. 1 共沈データセットからの分配係数の導出	3
3. 2 FRHP 間隙水に対する K_{cp} の換算値	4
4. 解析	6
5. まとめ	10
5. 1 分配モデルについて	10
5. 2 移行率の解析	10
謝辞	11
引用文献	12
付録	14

Contents

1. Introduction	1
2. Partition model	1
2.1 An outstanding problem for evaluation of a coprecipitation reaction	1
2.2 Present understanding for a coprecipitation reaction	2
2.3 Partition model	3
3. Derivation of converted K_d	3
3.1 Procedure of derivation of K_d from data set of coprecipitation	3
3.2 Derived K_d value for pore water condition	4
4. Analysis of release rate	6
5. Conclusion	10
5.1 Partition model	10
5.2 Analysis of release rate of $4n+2$ series	10
Acknowledgement	11
Reference	12
Appendix	14

表リスト

表 2-1 $4n+2$ 系列核種の半減期 () 内は半減期, year 2
付録表 結晶の大きさと表面および 25 層分の Ca の mol 割合 15

図リスト

図 4-1 分配モデルを考慮した $4n+2$ 系列核種のリザーバ領域からの核種移行率 7
図 4-2 2000 年レポートで用いた簡易的共沈モデルを考慮した $4n+2$ 系列核種のリザーバ領域からの核種移行率 7
図 4-3 分配モデルを考慮した $4n+2$ 系列核種の人工バリアからの核種移行率 8
図 4-4 2000 年レポートで用いた簡易的共沈モデルを考慮した $4n+2$ 系列核種の人工バリアからの核種移行率 8
図 4-5 分配モデルと簡易的共沈モデルの Ra 移行率の比較 9

1. 序論

Ra の間隙水中の濃度上限値の設定においては、地層処分研究開発第 2 次取りまとめ¹⁾(以後「2000 年レポート」と称する)において Ca 塩の沈殿に伴う共沈反応を考慮すべきであるとしている。共沈反応の評価においては、簡易的共沈モデル²⁾が提案されているものの、Ra が Ca と同じ化学的挙動を示すと仮定しているため、イオン半径の違いによる Ra の固相への取り込まれにくさが反映されておらず、Ca 塩に対する Ra 固有の反応性について適切な評価が行われていないと考えられる。また、実際の Ra 濃度評価においては、親核種の放射性崩壊の効果が強く影響すると予想されるため、共沈のモデルのみならず、核種移行解析による親核種からの供給量を定量的に考慮する必要がある。そのため、本報告では、放射性崩壊の影響を考慮した従来の性能評価コードによる解析手法に適用することを念頭に、Ca 塩に対する Ra 固有の共沈反応特性を考慮したモデルを提案する。また、そのモデルを用いた $4n+2$ 系列核種の核種移行率計算により共沈反応の影響について調べる。

2. 分配モデルの提案

2. 1 2000 年レポート時の評価方法の問題点

Ra の溶解度は 2000 年レポートでは Ca 塩の沈殿に伴う共沈反応により決定されると仮定し、インベントリより放出される Ra と Ca がその存在比のまま緩衝材中固相および間隙水で保存されるとし、インベントリ中 Ra/Ca モル比を間隙水中の Ca 濃度にかけることにより Ra 溶解度を算出している²⁾。

この手法では、Ra が Ca と同じ挙動をするという仮定がなされているが、Ra の Ca 炭酸塩に対する取り込み反応はイオン半径の違いから、Ca の沈殿量に対して Ra 取り込み割合はその数十分の一程度であることが実験により確認されている³⁾。

また、共沈反応による固液への分配を計算する際に用いられるインベントリ中の Ra/Ca モル存在比についても、放射性崩壊による ^{226}Ra 自身の減衰と親核種からの供給により ($4n+2$ 系列放射性崩壊は表 2-1 参照) 常に変化することが予想されるが、このような Ra/Ca モル存在比の変化についても 2000 年レポートにおける評価では考慮されていない。

したがって、より現実的な Ra の間隙水中の濃度を推定するには上述の Ca 塩に対する Ra 固有の取り込み割合と Ra の存在量変化を評価に取り込む必要がある。

表 2-1 4n+2 系列核種の半減期 () 内は半減期, year

$^{246}\text{Cm}(4.73 \times 10^3) \rightarrow ^{242}\text{Pu}(3.87 \times 10^5) \rightarrow ^{238}\text{U}(4.47 \times 10^9) \rightarrow ^{234}\text{U}(2.45 \times 10^5)$ $\rightarrow ^{230}\text{Th}(7.70 \times 10^4) \rightarrow ^{226}\text{Ra}(1.60 \times 10^3) \rightarrow ^{210}\text{Pb}(2.23 \times 10^1)$
--

2. 2 現在までに得られた知見

間隙水中において Ra の濃度は単成分の Ra 固相の形成により決まることはなく、Ra と化学的類似性のある元素の塩と共沈すると考えられる。Ra を取り込むことで知られている反応は Ba を含む炭酸塩や硫酸塩との共沈⁴⁾であり、Ba と Ra がともにアルカリ土類金属元素であり、かつイオン半径が似通っているため、Ra は Ba の固相によく取り込まれる。しかし、処分環境において Ba の炭酸塩や硫酸塩が存在することは確認されていない。一方、Ca を含む炭酸塩である方解石は一般に地下環境で存在が確認されており、また、処分環境で地下水および間隙水組成に影響を与える主要な鉱物として考えられている。方解石に対する Ra の共沈反応は、Ba の塩と比べて、その取り込み割合は低いものの、Gnanapragasam and Lewis⁵⁾や Yoshida et al.³⁾により実験での共沈反応が確認されている。したがって処分環境における Ra の濃度を評価する際には方解石との共沈反応を想定するのが妥当であると考えられる。

方解石に対する Ra の共沈反応を定量的に評価するには元素分配比(D)⁶⁾というパラメータが用いられている。元素分配比とは次式のようにあらわされる。

$$D = (\text{mol ratio of Ra/Ca in solid}) / (\text{mol ratio of Ra/Ca in solution}) \quad (1)$$

Ra の元素分配比(D)については方解石の沈殿速度が遅く処分環境に適用可能と考えられる値が Yoshida et al.³⁾により測定されており、 $(1.5 \pm 0.6) \times 10^{-1}$ となる。このパラメータを用いることにより Ra の固液の分配を求めることができる。

一方、式(1)により評価を行うには、固液中の Ca 存在量を把握する必要がある。固相に存在する Ca 量は、固相中の方解石含有率より算出できるものの、Ra のような Ca よりイオン半径の大きい元素の方解石結晶中の拡散速度が非常に遅く⁷⁾、方解石表面の数層のみと反応すると予想される。そのため、固相中に含まれる方解石量だけではなく、その固相の表面の反応に寄与する領域の評価が必要となる。表面から固相の深度方向に対する Ra 取り込み反応に寄与する層数については、Lorenz⁶⁾により約 25 層であると推定されているためこの値を用いる。また、表面より 25 層分の方解石量を求めるには、方解石の比表面積が必要である。溶液中 Ca 存在量については、化学組成計算の計算結果などの値を用いる。

2. 3 元素分配比を分配係数に換算した分配モデルの提案

式(1)と固液の Ca 存在量を用いることにより、Ra の供給量が与えられれば、Ra の固液の分配を評価することができる。ここで、固液の Ca 存在量は、処分環境が化学的に平衡となる系であるという仮定のため一定の値となる。つまり、式(1)は Ra 存在量のみの影響をうける式となり、分配係数と同様の形となる。

Ra の供給源は、ガラス固化体からの浸出のみならず半減期の長い親核種の放射性崩壊による影響が大きいと考えられるが、親核種の寄与を考慮するには、放射性崩壊を考慮した $4n+2$ 系列核種の物質移行計算を行う必要がある。ここで、共沈反応を反応と同じ形で扱うことにより、従来、性能評価で用いられてきた計算コードにより Ra の供給源となる $4n+2$ 系列核種の親化学種の影響を計算することができ、また同時に共沈反応による Ra の固液間の分配を計算することができる。本報告では、Ra の方解石との共沈反応と親核種の放射性崩壊の影響を考慮した Ra の間隙水中の濃度を従来の性能評価コードによる解析手法により導出するための、分配係数の換算値を示すとともに、換算分配係数を用いた核種移行解析を行い、その結果を考察する。

3. 分配係数への換算計算

3. 1 共沈データセットからの分配係数の導出

分配係数(K_{ep})の単位を $m^3 kg^{-1}$ とすると、その式は

$$K_{ep} = V_{Ra} / C_{Ra} \quad (2)$$

となる。ここで V_{Ra} は 1kg 固相中の Ra mol 量、 C_{Ra} は $1m^3$ 溶液中の Ra mol 量である。式(1)を V_{Ra} , V_{Ca} , C_{Ra} および C_{Ca} で表すと

$$D = (V_{Ra} / V_{Ca}) / (C_{Ra} / C_{Ca}) \quad (1')$$

となる。式(2)に式(1')を代入すると

$$K_{ep} = V_{Ca} / C_{Ca} \times D \quad (3)$$

となる。つまり、 K_{ep} は固相中の Ca mol 量、溶液中の Ca mol 量および元素分配比により計算できる。元素分配比である D は Yoshida et al.³⁾により報告されており、 $(1.5 \pm 0.6) \times 10^{-1}$ となる。1kg 固相中の Ca mol 量(V_{Ca})および $1m^3$ 溶液中の Ca mol 量(C_{Ca})については共沈

反応を考慮する系に依存する。具体的な例として、降水系還元性高 pH 地下水反応間隙水⁸⁾ (以下「FRHP 間隙水」と称する) に対して共沈反応を K_{cp} に換算した結果を以下に示す。

3. 2 FRHP 間隙水に対する K_{cp} の換算値

式(3)を用いて K_{cp} を導出するには 1kg 固相中の Ca mol 量および 1m³ 溶液中の Ca の濃度が必要となる。以下に導出方法を示す。

第 2 次取りまとめにおける緩衝材の仕様において、Na 型ベントナイトであるクニゲル V1 中の方解石含有量は 2.1% から 2.6%⁹⁾ と推定されている。この中間値 2.35% を用いることとすると、1kg ベントナイト中の方解石モル数は

$$1000 \text{ [g]} \times 2.35 \div 100 \div 100 \text{ [g/mol]} = 0.235 \text{ [mol kg-bentonite}^{-1}\text{]}$$

このうち方解石の表面 25 層分が共沈反応に寄与すると考えられる。25 層分の方解石量はクニゲル V1 中の方解石の比表面積により計算することができる。クニゲル V1 中の方解石の比表面積は測定されていないが、粒径の分布については、伊藤ほか⁹⁾により報告されている。伊藤ほか⁹⁾より、方解石は 22 μm 以上の粒径に主に存在しており、またベントナイト製造時に 250 メッシュ (62 μm) 以下にそろえているということから、方解石の平均粒径は 22 ~ 62 μm の範囲と推定できる。この平均粒径を方解石結晶の一辺の長さとし、方解石結晶の単位格子が x,y および z 方向に等しく積み重なっていると仮定することにより対象となる平均粒径における結晶粒子の比表面積および 25 層分に含まれる Ca 量の結晶全体に対する割合を計算することができる (詳細は付録および付録表参照)。粒径を 22 μm および 62 μm とすると、ベントナイトに含まれる方解石比表面積は 5.44×10^{-2} から $1.53 \times 10^{-1} \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ となり、結晶全体に対する表面から 25 層分の Ca のモル比は 1.54×10^{-3} および 4.34×10^{-3} となる。よって、1kg ベントナイト含まれる方解石のうち、共沈反応に寄与する量は

粒径 22 μm の場合: $0.235 \text{ [mol/kg-bent.]} \times 4.34 \times 10^{-3} = 1.02 \times 10^{-3} \text{ [mol-calcite/kg-bent.]}$

粒径 62 μm の場合: $0.235 \text{ [mol/kg-bent.]} \times 1.54 \times 10^{-3} = 3.62 \times 10^{-4} \text{ [mol-calcite/kg-bent.]}$

となる。

元素分配比反応に寄与する溶液中の Ca の濃度は FRHP 間隙水組成計算においてすでに導出されており、 $5.25 \times 10^{-5} \text{ mol kgw}^{-1}$ となる。

以上の V_{Ca} , C_{Ca} および D の値を式(3)に代入すると、 K_{cp} への換算値は、

粒径 $62 \mu\text{m}$ の場合 :

$$\begin{aligned} K_{cp} &= 3.62 \times 10^{-4} [\text{mol-calcite/kg-bent.}] \div 5.25 \times 10^{-2} [\text{mol/m}^3] \times 1.5 \times 10^{-1} \\ &= 1.03 \times 10^{-3} [\text{m}^3/\text{kg}^{-1}] \end{aligned}$$

粒径 $22 \mu\text{m}$ の場合 :

$$\begin{aligned} K_{cp} &= 1.02 \times 10^{-3} [\text{mol-calcite/kg-bent.}] \div 5.25 \times 10^{-2} [\text{mol/m}^3] \times 1.5 \times 10^{-1} \\ &= 2.91 \times 10^{-3} [\text{m}^3/\text{kg}^{-1}] \end{aligned}$$

となる。ベントナイトに対する Ra の K_d は Tachi et al.¹⁰⁾ より 0.01 とされており。粒径が $22 \mu\text{m}$ の場合においてはその値の約 1/3 となる。このことより、ベントナイト中においては、方解石の Ra 取り込みの強さは、ベントナイトの Ra 収着能力より低いことが示される。

4. 解析

共沈パラメータより導出した K_{cp} を用い、4n+2 系列核種について核種移行解析を行い、FRHP 間隙水条件における Ra の移行率の計算を行った。計算コードは MESHNOTE¹⁾を用いた。計算においてはソースタームとなるガラス固化体領域、リザーバ領域および緩衝材領域を考慮した。

共沈パラメータの K_{cp} への変換の計算により、FRHP 間隙水の条件においては、共沈反応による Ra 取り込み能力よりベントナイトの収着反応が大きく

$$K_{d_bentonite} + K_{cp} \doteq K_{d_bentonite}$$

であることが示された。このため、ベントナイトを含有する領域においては、共沈反応による Ra 取り込みの効果が $K_{d_bentonite}$ に含まれるとし、 Ra の固液への分配は、 $K_{d_bentonite}$ により考慮することとした。また、リザーバ領域においては、境界面のベントナイトに含まれる方解石との共沈反応のみを考慮し、 Ra の固液への分配計算には K_{cp} を用いることにより評価した。ここでの K_{cp} は 2.9×10^{-3} とした。4n+2 系列核種の移行率 ($Bq \text{ yr}^{-1}$) についてのリザーバ領域および人工バリア外側境界面における分配モデルを用いた計算結果を図 4-1 および 4-3 にそれぞれ示す。また、簡易的共沈モデル²⁾を用いたリザーバ領域および人工バリア外側境界面における計算結果を図 4-2 および 4-4 にそれぞれに示す。

リザーバ領域における Ra の移行率については、分配モデルを適用した場合、約 7 万年までは親核種の影響を強く受けるプロファイルを示すが、それ以降低い核種移行率を示す (図 4-1)、一方、簡易的共沈モデルにおいては低く設定された溶解度のために大部分の Ra が沈殿し、特に約 4000 年以降における核種移行率は低い値となった (図 4-2)。

図 4-3 より分配モデルを用いた人工バリア外側境界面における ^{226}Ra の核種移行率は全時間領域において 4n+2 系列核種において高い移行率を示し、そのピークは約 20 万年で約 4100 Bq yr^{-1} となり、人工バリアからの移行率が最大である ^{135}Cs の約 25 分の 1 となった。

図 4-3 と図 4-4 の Ra の移行率の比較を図 4-5 に示す。約 4000 年までは分配モデルと簡易的共沈モデルでほぼ差はないが、それ以降では簡易的共沈モデルでは約 10 Bq yr^{-1} で移行率が一定であるのに対して分配モデルでは約 20 万年後に約 4100 Bq yr^{-1} のピークを示し、その後減少し、300 万年以降で約 320 Bq yr^{-1} となる。

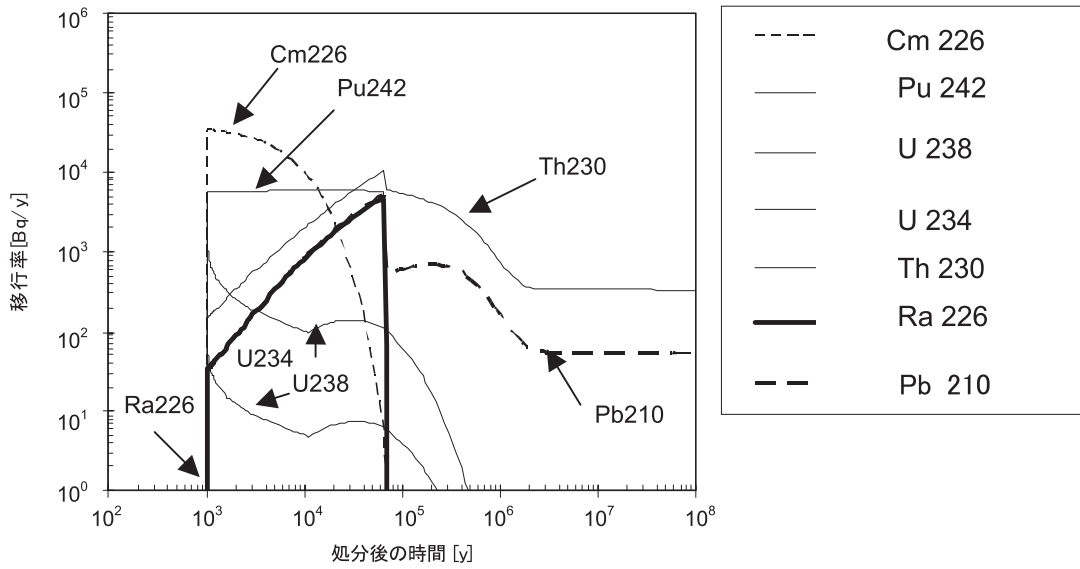


図 4-1 分配モデルを考慮した 4n+2 系列核種の
リザーバ領域からの核種移行率

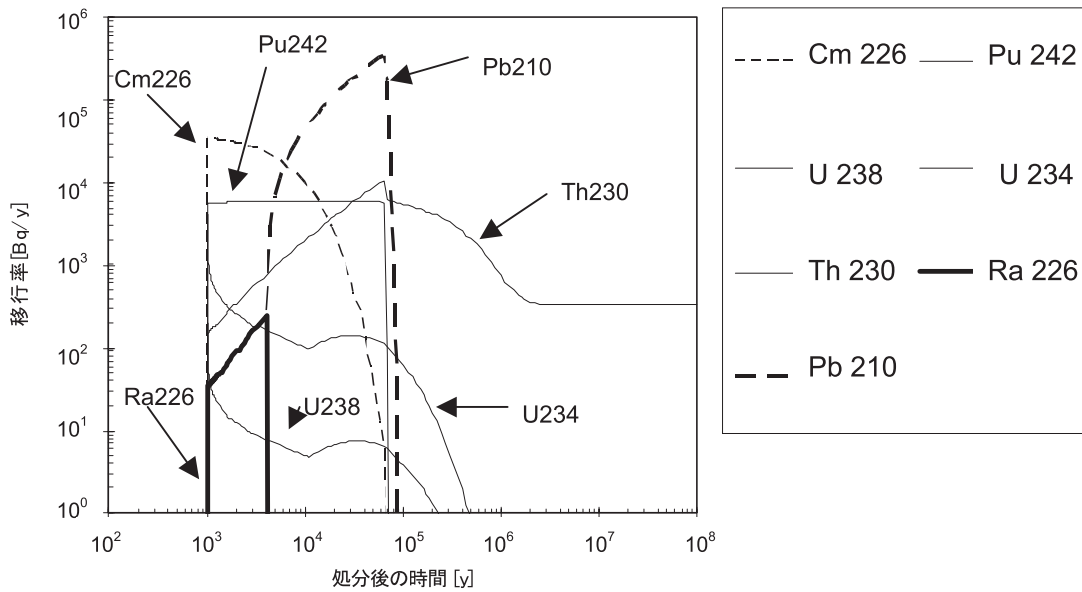


図 4-2 2000 年レポートで用いた簡易的共沈モデルを考慮
した 4n+2 系列核種のリザーバ領域からの核種移行率

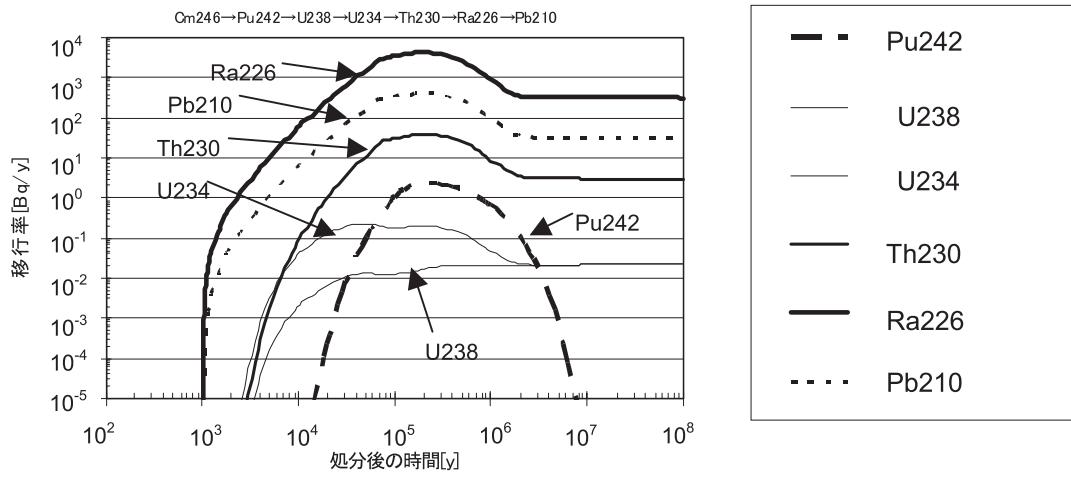


図 4-3 分配モデルを考慮した 4n+2 系列核種の人工バリアからの核種移行率

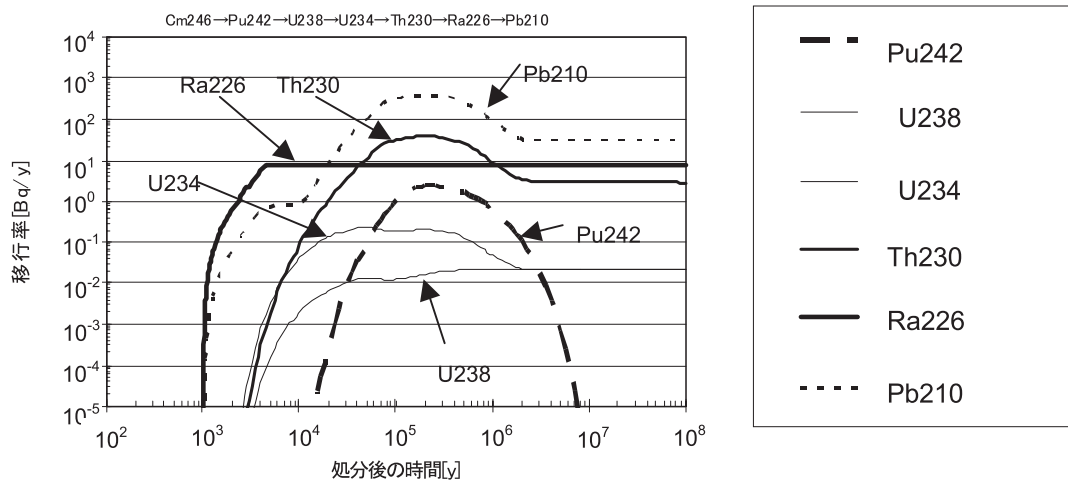


図 4-4 2000 年レポートで用いた簡易的共沈モデルを考慮した 4n+2 系列核種の人工バリアからの核種移行率

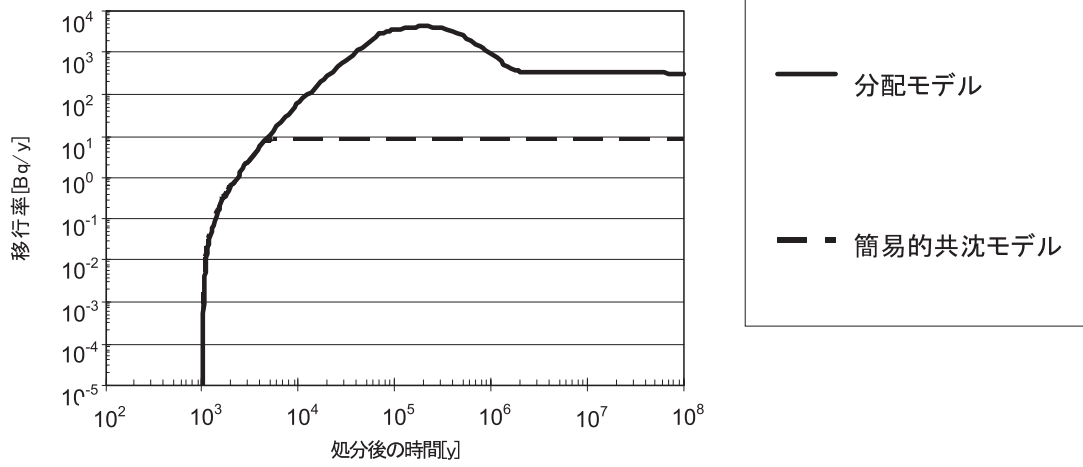


図 4-5 分配モデルと簡易的共沈モデルの Ra 移行率の比較

5. まとめ

5. 1 分配モデルについて

本報告では、**Ra** の共沈反応による固液の存在比の評価を分配係数(K_{cp})に割り付ける分配モデルを示した。固相中の方解石含有量と粒径（または比表面積）および溶液中の **Ca** 濃度のパラメータにより **Ra** の固液への分配を計算する K_{cp} を求めることができる。この手法により、共沈反応により **Ra** が固相に取り込まれると考えられる系において定量的にその濃度を評価することが可能となる。

また、安全評価の解析においては、物質移行と親核種の放射性崩壊の影響を考慮する際には、 K_{cp} に換算することにより、既存の計算コードをそのまま用いることができる。

一方、**Ra** を収着する媒体の K_d が、分配モデルにより得られる換算値の K_{cp} より大きい場合には、共沈反応による影響が見られることはない。例えば 3.2 で示した **FRHP** 間隙水の環境において共沈現象による K_{cp} はベントナイトへの収着反応への K_d の 3 分の 1 となる。この場合、共沈反応による **Ra** の方解石への取り込み効果はベントナイトの収着能力に比べて小さいことが示される。

5. 2 移行率の解析

共沈反応パラメータからの換算分配係数 K_{cp} がベントナイトの収着 K_d にくらべて小さいため、緩衝材領域においてベントナイトの K_d のみを考慮した **FRHP** 間隙水の条件で $4n+2$ 系列核種の核種移行解析計算を行った結果、**Ra** は $4n+2$ 系列核種でもっとも移行率の高い核種となり、約 20 万年後に約 4100 Bq yr^{-1} となる。この値は 2000 年レポートで示された簡易的共沈モデルを考慮した計算結果に比べて高い値をとることが示されたものの、人工バリアからの核種放出率が最も高い ^{135}Cs の約 25 分の 1 であった。

謝辞

本報告書の核種移行率の計算を行うにあたり、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 システム性能研究グループ 大井貴夫氏および株式会社 NESI 小尾繁氏のご協力をいただきました。ここに記して感謝の意を表します。

引用文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構(1999): 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, JNC TN1400 99-023.
- 2) 東 侍郎, 柴田 雅博, 油井 三和, 澁谷 朝紀, 能登屋 信, 吉田 泰 (1999): 地層処分研究開発第2次とりまとめにおける放射性元素の溶解度評価, JNC TN8400 99-071.
- 3) Yoshida, Y., Yoshikawa, H. and Nakanishi, T. (2007): Partition coefficients of Ra and Ba in calcite, *Geochemical Journal*(submitted).
- 4) Dorner, H.A. and Hoskins, W.M. (1925): Co-precipitation of radium and barium sulphates, *Journal of American Chemical Society*, vol. 47, pp.662-675.
- 5) Gnanapragasam, E.K. and Lweis, B.G. (1995): Elastic strain energy and the distribution coefficient of radium in solid solutions with calcium salts, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol. 59, 24, pp.5103-5111.
- 6) Lorens, R.B. (1981): Sr, Cd, Mn and Co distribution coefficients in calcite as a function of calcite precipitation rate, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol. 45, pp.553-561.
- 7) Cherniak, D.J. (1997): An experimental study of strontium and lead diffusion in calcite, and implications for carbonate diagenesis and metamorphism, *geochimica et Cosmochimica Acta*, vol. 61, 19, pp.4173-4179.
- 8) 小田 治恵, 柴田 雅博, 油井 三和 (1999): 地層処分研究開発第2次とりまとめにおける緩衝材間隙水化学の評価, JNC TN8400 99-078.
- 9) 伊藤 雅和, 岡本 真由美, 柴田 雅博, 佐々木 康雄, 壇原 徹, 鈴木 啓三, 渡辺 隆 (1993): ベントナイトの鉱物組成分析, PNC TN8430 93-003.
- 10) Tachi, Y., Shibutani, T., Sato, M. and Yui, M. (2001): Experimental and modeling studies on sorption and diffusion of radium in bentonite, *Journal of Contaminant Hydrology* 47, pp. 171-186.

- 11) Zhou, W., Apted, M.J. and Robinson, P. (1994): Comparison of International Source-Term Codes, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., vol.333, pp.769-774.

付録. 比表面積または結晶粒径からの方解石表面 25 層分の Ca mol 量の算出方法

Ra を取り込む反応に寄与することのできる方解石表面 25 層分の Ca mol 量を算出する方法を示す。

方解石単位格子の格子定数は

$$a = 6.35 \text{ \AA} = 6.35 \times 10^{-10} \text{ m}$$

$$\alpha = 2\pi \times (46.06^\circ / 360^\circ)$$

となり、菱面体構造を示す。密度は

$$\rho = 2.71 \text{ g cm}^{-3} = 2.71 \times 10^6 \text{ g m}^{-3}$$

である。よって単位格子の 1 面の面積、体積および重量は

$$1 \text{ 面の面積} = a \times a \times \sin(\alpha) = 2.92 \times 10^{-19} \text{ m}^2$$

$$\text{体積} = 1 \text{ 面の面積} \times \text{単位格子の高さ}$$

$$= 2.92 \times 10^{-19} \text{ m}^2 \Delta \sqrt{a^2 4 \frac{\cos^2 \frac{\zeta}{2}}{2} + \frac{4 \cdot 3 a \sin^2 \frac{\zeta}{2} \cdot 2 a \cos^2 \frac{\zeta}{2}}{2}}$$

$$= 1.22 \times 10^{-28} \text{ m}^3$$

$$\text{重量} = \text{体積} \times \text{密度} = 3.31 \times 10^{-22} \text{ g}$$

となる。また、結晶格子が x, y および z 軸に等しく積み重なることにより結晶が形成されると仮定し、中心からの単位格子の積み重なる層数を n とすると、結晶に含まれる単位格子の総数と n 層目に含まれる単位格子数は、

$$\text{単位格子数} = (n \times 2 + 1)^3$$

$$n \text{ 層目単位格子数} = (n \times 2 + 1)^3 - ((n-1) \times 2 + 1)^3$$

となる。これらの値を用いて結晶の比表面積(m² g⁻¹)をあらわすと、

$$\text{暴露している面積} = \text{単位格子 1 面の面積} \times (n \times 2 + 1)^2 \times 6$$

を用いて

$$\text{比表面積} = \text{暴露している面積} \div (\text{単位格子数} \times 3.31 \times 10^{-22} \text{ g})$$

$$\left| \frac{2.92 \Delta 10^{419} \text{ m}^2 \Delta / n \Delta 2 \cdot 2 \cdot 10^6 \Delta 6}{3.31 \Delta 10^{422} \text{ g} \Delta / n \Delta 2 \cdot 2 \cdot 10^8} \right|$$

$$\left| \frac{5291}{n \Delta 2 \cdot 2 \cdot 1} \right|$$

となる。よって比表面積が測定されている場合には方解石結晶の深さ方向に対する単位格子数を推定することができる。結晶の平均粒径が測定されている場合は、平均粒径を結晶の一辺の長さであると仮定すると

平均粒径=単位格子の一辺の長さ×(n×2+1)

となり、nについて展開することにより単位格子数を導出することができる。

単位格子の数 n が導出されると、25 層分の Ca mol 数の導出は、25 層分が結晶全体に占める割合を

25 層分の結晶割合=25 層分の単位格子数÷結晶全体の単位格子数

$$\frac{1/n \Delta 2 2 10^6 4 // n 4 250 \Delta 2 2 10^6}{1/n \Delta 2 2 10^6}$$

より求め、具体的な Ca mol 数は方解石重量より

25 層分の Ca mol 数=方解石重量(x g)÷方解石分子量×25 層分結晶割合により求める。表に計算の例を示す。

付録表. 結晶の大きさと表面および 25 層分の Ca の mol 割合

中心から表面までの単位格子数, n	一辺の長さ, m	比表面積, m ² g ⁻¹	粒子ひとつ分の結晶格子数	暴露 Ca 割合	25 層 Ca 割合
1000000	1.27 × 10 ⁻³	0.00265	8.00 × 10 ⁻¹⁸	3.00 × 10 ⁻⁶	7.50 × 10 ⁻⁵
100000	1.27 × 10 ⁻⁴	0.0265	8.00 × 10 ⁻¹⁵	3.00 × 10 ⁻⁵	7.50 × 10 ⁻⁴
48665	6.20 × 10 ⁻⁵	0.0544	9.22 × 10 ⁻¹⁴	6.16 × 10 ⁻⁵	1.54 × 10 ⁻³
17267	2.20 × 10 ⁻⁵	0.153	4.12 × 10 ⁻¹³	1.74 × 10 ⁻⁴	4.34 × 10 ⁻³
10000	1.27 × 10 ⁻⁵	0.265	8.00 × 10 ⁻¹²	3.00 × 10 ⁻⁴	7.48 × 10 ⁻³
5880	7.49 × 10 ⁻⁶	0.450	1.63 × 10 ⁻¹²	5.10 × 10 ⁻⁴	1.27 × 10 ⁻²
1000	1.27 × 10 ⁻⁶	2.64	8.01 × 10 ⁻⁹	3.00 × 10 ⁻³	7.31 × 10 ⁻²
500	6.38 × 10 ⁻⁷	5.29	1.00 × 10 ⁻⁹	5.98 × 10 ⁻³	1.42 × 10 ⁻¹
250	3.19 × 10 ⁻⁷	10.6	1.26 × 10 ⁻⁸	1.19 × 10 ⁻²	2.71 × 10 ⁻¹
100	1.28 × 10 ⁻⁷	26.3	8.12 × 10 ⁻⁶	2.96 × 10 ⁻²	5.76 × 10 ⁻¹
50	6.43 × 10 ⁻⁸	52.4	1.03 × 10 ⁻⁶	5.82 × 10 ⁻²	8.71 × 10 ⁻¹

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

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		他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
	名称	記号		
平面角	ラジアン ^(a)	rad		m ⁰ = m ⁻¹ × m ¹ = 1 ^(b)
立体角	ステラジアン ^(a)	sr ^(c)		m ² × m ⁻² = 1 ^(b)
周波数	ヘルツ	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m ⁰ × kg ¹ × 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
工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² × kg × s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s × A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² × kg × s ⁻³ × A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² × kg ⁻¹ × s ⁴ × A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² × kg × s ⁻³ × A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ⁻² × kg ⁻¹ × s ³ × A ²
磁束	ウェーバ	Wb	V × s	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 ^(d)	°C		K
光束	ルーメン	lm	cd × sr ^(c)	m ² × m ⁻² × cd = cd
照射 (放射性核種の)放射能	ベクレル	Bq	lm/m ²	m ² × m ⁻⁴ × cd = m ⁻² × 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	グレイ	Gy	J/kg	m ² × s ⁻²
	シーベルト	Sv	J/kg	m ² × s ⁻²

- (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		SI 基本単位による表し方
	名称	記号	
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa · s	m ⁻¹ × kg × s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N · m	m ⁰ × kg × s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg × s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m ⁰ × m ⁻¹ × s ⁻¹ = s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎平方秒	rad/s ²	m ⁰ × m ⁻¹ × s ⁻² = s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg × s ⁻³
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	m ² × kg × s ⁻² × K ⁻¹
質量エネルギー (比エネルギー)	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² × s ⁻² × K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム毎メートル	W/(m · K)	m ⁰ × 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 ⁰ × kg × s ⁻³ × A ⁻¹
体積電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ × s × A
電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² × s × A
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 ⁰ × 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, 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 × s × A
吸収線量	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

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 = 60 s
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 ³ = 10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t = 10 ³ kg
ネーパ	Np	1 Np = 1
ベル	B	1 B = (1/2) ln 10 (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 ⁻¹⁹ J
統一原子質量単位	u	1 u = 1.6605402(10) × 10 ⁻²⁷ kg
天文単位	ua	1 ua = 1.49597870691(30) × 10 ¹¹ m

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

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

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 ⁻⁷ J
ダイナ	dyn	1 dyn = 10 ⁻⁵ N
ポインズ	P	1 P = 1 dyn · s/cm ² = 0.1 Pa · s
ストークス	St	1 St = 1 cm ² /s = 10 ⁻⁴ m ² /s
ガウス	G	1 G ≐ 10 ⁻⁴ T
エルステッド	Oe	1 Oe ≐ (1000/4π) A/m
マクスウェル	Mx	1 Mx ≐ 10 ⁻⁸ Wb
スチルブ	sb	1 sb = 1 cd/cm ² = 10 ⁴ cd/m ²
ホリ	ph	1 ph = 10 ⁴ lx
ガル	Gal	1 Gal = 1 cm/s ² = 10 ⁻² m/s ²

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 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R = 2.58 × 10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad = 1 cGy = 10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem = 1 cSv = 10 ⁻² Sv
X線単位		1 X unit = 1.002 × 10 ⁻⁴ nm
ガンマ	γ	1 γ = 1 nT = 10 ⁻⁹ T
ジャンスキー	Jy	1 Jy = 10 ⁻²⁶ W · m ⁻² · Hz ⁻¹
フェルミ	fm	1 fermi = 1 fm = 10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 metric carat = 200 mg = 2 × 10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	
マイクロン	μ	1 μ = 1 μm = 10 ⁻⁶ m

