

熱力学データベース整備のための 熱力学データ系統性に関する調査および 活量係数モデルの差異による溶解度計算結果の比較

Investigations on Systematics of Thermodynamic Date and Comparison of
Estimation of Solubility Values among Different Activity Coefficient Models for
Development of Thermodynamic Database

北村 晓 柴田 雅博 山口 徹治 飯田 芳久
油井 三和

Akira KITAMURA, Masahiro SHIBATA, Tetsuji YAMAGUCHI, Yoshihisa IIDA
and Mikazu YUI

地層処分研究開発部門
地層処分基盤研究開発ユニット

Geological Isolation Research Unit
Geological Isolation Research and Development Directorate

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

熱力学データベース整備のための熱力学データ系統性に関する調査
および活量係数モデルの差異による溶解度計算結果の比較

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

北村 晓, 柴田 雅博, 山口 徹治⁺¹, 飯田 芳久⁺², 油井 三和⁺³

(2009年12月18日受理)

高レベル放射性廃棄物および地層処分対象の TRU 廃棄物の地層処分の性能評価に用いるための熱力学データベースの整備に資することを目的として、熱力学データの系統性に関する調査を実施した。いくつかの元素について、標準生成自由エネルギーと標準生成エンタルピーとの相関関係を調査し、標準生成自由エネルギーから標準生成エンタルピーの推定が可能であることを示した。また、アクチニド元素の錯生成定数の系統性に関する 3 つのモデルについて、その適用性を比較検討し、最適なモデルを提案するとともに、未報告のアクチニド錯体の生成定数の推定が可能であることを示した。さらに、溶解度計算時に必要な活量係数について、2 つのモデルの比較検討を行い、推定される溶解度の差異を調査し、特に電荷絶対値の大きい化学種において大きな差異が生じることがわかった。以上の結果は、熱力学データの充足が可能であることから地層処分の性能評価の信頼性向上が図られるとともに、より精緻な活量係数モデルの導入が必要であることを示している。

本報告書の一部は、三菱マテリアル株式会社が日本原子力研究開発機構との契約により実施した業務成果に関するものである。

核燃料サイクル工学研究所（駐在）：〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

⁺¹ 経営企画部

⁺² 安全研究センター 原子力エネルギー関連施設安全評価研究ユニット

⁺³ 地層処分研究開発部門

Investigations on Systematics of Thermodynamic Data and Comparison of Estimation of Solubility Values among Different Activity Coefficient Models for Development of Thermodynamic Database

Akira KITAMURA, Masahiro SHIBATA, Tetsuji YAMAGUCHI⁺¹, Yoshihisa IIDA⁺²
and Mikazu YUI⁺³

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

(Received December 18, 2009)

Investigations on systematics of thermodynamic data were performed for enhancement of thermodynamic database for performance assessment of geological disposal of high-level radioactive and part of TRU wastes. Correlation between standard free energy of formation and standard enthalpy of formation was investigated, and it was shown that estimation of the standard enthalpy of formation from the standard free energy of formation was possible using the correlation. Three models on systematics of formation constant of actinides were compared and the best model was proposed. It was shown that estimation of formation constants for unpublished actinide species was possible using the model. Furthermore, two models for estimation of activity coefficient which was required to estimate solubility of elements of interest and the estimated activity coefficient were compared. It was found that the estimated solubility values using the one of the two models were 6 times larger/smaller at a maximum than those using the other. It was expected that the estimation of unreported thermodynamic data would enhance thermodynamic database was useful and use of more elaborate activity coefficient model was required to improve the reliability of the performance assessment of geological disposal.

Keywords: Thermodynamic Database, Performance Assessment, Geological Disposal, Systematics of Thermodynamic Data, Activity Coefficient Model, Standard Gibbs Free Energy of Formation, Standard Enthalpy of Formation

Part of this work was performed by the Mitsubishi Materials Cooperation under contract with Japan Atomic Energy Agency.

⁺¹ Policy Planning and Administration Department

⁺² Nuclear Facility Safety Research Unit, Nuclear Safety Research Center

⁺³ Geological Isolation Research and Development Directorate

目次

1. 緒言	1
2. 热力学データの系統性に関する調査	3
2.1 標準生成自由エネルギーと標準生成エンタルピーの相関	3
2.1.1 はじめに	3
2.1.2 使用した熱力学データベース	3
2.1.3 回帰分析の結果と考察	4
2.2 アクチニド元素の錯生成の系統性に関するモデルの調査	4
2.2.1 統一理論モデル	4
2.2.2 剛体球モデル	5
2.2.3 配位子反発モデル	6
2.2.4 NEA-TDB における平衡定数選定値の推定への適用性検討	7
3. 活量係数モデルの差異による溶解度計算結果の比較	10
3.1 はじめに	10
3.2 イオン相互作用係数の整備状況	11
3.3 Davies 法と SIT 法による活量係数の算出結果の比較	11
3.4 Davies 法と SIT 法による溶解度の算出結果の比較	12
4. 結言	14
参考文献	15

Contents

1.	Introduction	1
2.	Investigation of systematics of thermodynamic data.....	3
2.1	Correlation between standard free energy of formation and standard enthalpy of formation	3
2.1.1	Introduction	3
2.1.2	Used thermodynamic databases.....	3
2.1.3	Results and discussion for least-squares regression	4
2.2	Investigation of systematics of formation constants for actinides.....	4
2.2.1	Unified Theory	4
2.2.2	Hard Sphere Model.....	5
2.2.3	Ligand Repulsion Model	6
2.2.4	Application of the models for estimation of formation constants in NEA-TDB.....	7
3.	Comparison of estimated solubility among activity coefficient models.....	10
3.1	Introduction	10
3.2	Status of collection of ion interaction coefficient.....	11
3.3	Comparison of activity coefficient between using the Davies model and the SIT.....	11
3.4	Comparison of solubility between using the Davies model and the SIT	12
4.	Conclusions	14
	References	15

List of Tables

Table 1	Standard free energy of formation ($\Delta_f G^\circ_m$) and standard enthalpy of formation ($\Delta_f H^\circ_m$) for nickel and grouping of aqueous species and compounds for investigation of correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and $\Delta_f H^\circ_m$	17
Table 2	Standard free energy of formation and standard enthalpy of formation for americium(III).....	18
Table 3	Standard free energy of formation and standard enthalpy of formation for uranium(IV)	18
Table 4	Standard free energy of formation and standard enthalpy of formation for neptunium(V).....	18
Table 5	Standard free energy of formation and standard enthalpy of formation for uranium(VI)	19
Table 6	Obtained multiple coefficient of determination (R^2) for correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and $\Delta_f H^\circ_m$	19
Table 7	Status of ion interaction coefficients in the NEA-TDB for dominant aqueous species in the performance assessment of “H12” report.....	20
Table 8	Composition of modeled groundwaters ($\text{mol}\cdot\text{kg}^{-1}$)	21

List of Figures

Figure 1	Correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and $\Delta_f H^\circ_m$ for nickel (group 1) and its least-squares regression result	22
Figure 2	Correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and $\Delta_f H^\circ_m$ for nickel (group 2) and its least-squares regression result	22
Figure 3	Correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and $\Delta_f H^\circ_m$ for nickel (group 3) and its least-squares regression result	23
Figure 4	Correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and $\Delta_f H^\circ_m$ for americium(III) and its least-squares regression result	23
Figure 5	Correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and $\Delta_f H^\circ_m$ for uranium(IV) and its least-squares regression result	24
Figure 6	Correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and $\Delta_f H^\circ_m$ for neptunium(V) and its least-squares regression result	24
Figure 7	Correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and $\Delta_f H^\circ_m$ for uranium(VI) and its least-squares regression result	25
Figure 8	Estimated hydrolysis constants of zirconium(IV) compared with the NEA-TDB	25
Figure 9	Estimated hydrolysis constants of uranium(IV) compared with the NEA-TDB	26
Figure 10	Estimated hydrolysis constants of neptunium(IV) compared with the NEA-TDB	26
Figure 11	Estimated hydrolysis constants of plutonium(IV) compared with the NEA-TDB	27
Figure 12	Estimated hydrolysis constants of americium(III) compared with the NEA-TDB	27
Figure 13	Estimated formation constants of zirconium(IV) carbonate complexes compared with the NEA-TDB	28
Figure 14	Estimated formation constants of uranium(IV) carbonate complexes compared with the NEA-TDB	28
Figure 15	Estimated formation constants of neptunium(IV) carbonate complexes compared with the NEA-TDB	29
Figure 16	Estimated formation constants of plutonium(IV) carbonate complexes compared with the NEA-TDB	29
Figure 17	Estimated formation constants of americium(III) carbonate complexes compared with the NEA-TDB	30
Figure 18	Estimated formation constants of zirconium(IV) fluoride complexes compared with the NEA-TDB	30
Figure 19	Estimated formation constants of uranium(IV) fluoride complexes compared with the NEA-TDB	31
Figure 20	Estimated formation constants of neptunium(IV) fluoride complexes compared with the NEA-TDB	31

Figure 21 Estimated formation constants of plutonium(IV) fluoride complexes compared with the NEA-TDB	32
Figure 22 Estimated formation constants of americium(III) fluoride complexes compared with the NEA-TDB	32
Figure 23 Estimated formation constants of zirconium(IV) chloride complexes compared with the NEA-TDB	33
Figure 24 Estimated formation constants of uranium(IV) chloride complexes compared with the NEA-TDB	33
Figure 25 Estimated formation constants of neptunium(IV) chloride complexes compared with the NEA-TDB	34
Figure 26 Estimated formation constants of plutonium(IV) chloride complexes compared with the NEA-TDB	34
Figure 27 Estimated formation constants of americium(III) chloride complexes compared with the NEA-TDB	35
Figure 28 Estimated formation constants of zirconium(IV) sulfate complexes compared with the NEA-TDB	35
Figure 29 Estimated formation constants of uranium(IV) sulfate complexes compared with the NEA-TDB	36
Figure 30 Estimated formation constants of neptunium(IV) sulfate complexes compared with the NEA-TDB	36
Figure 31 Estimated formation constants of plutonium(IV) sulfate complexes compared with the NEA-TDB	37
Figure 32 Estimated formation constants of americium(III) sulfate complexes compared with the NEA-TDB	37
Figure 33 Estimated formation constants of zirconium(IV) nitrate complexes compared with the NEA-TDB	38
Figure 34 Estimated formation constants of uranium(IV) nitrate complexes compared with the NEA-TDB	38
Figure 35 Estimated formation constants of neptunium(IV) nitrate complexes compared with the NEA-TDB	39
Figure 36 Estimated formation constants of plutonium(IV) nitrate complexes compared with the NEA-TDB	39
Figure 37 Estimated formation constants of americium(III) nitrate complexes compared with the NEA-TDB	40
Figure 38 Activity coefficient for the AmCO_3^+ group estimated from the Davies model and the SIT	40
Figure 39 Activity coefficient for the $\text{Am}(\text{CO}_3)_2^-$ group estimated from the Davies model and the SIT	41
Figure 40 Activity coefficient for the $\text{Am}(\text{CO}_3)_3^{3-}$ group estimated from the Davies model	

and the SIT	41
Figure 41 Activity coefficient for a group with net charge of +2 estimated from the Davies model and the SIT	42
Figure 42 Activity coefficient for a group with net charge of -1 estimated from the Davies model and the SIT	42
Figure 43 Activity coefficient for a group with net charge of -2 estimated from the Davies model and the SIT	43
Figure 44 Estimated solubility of HSe ⁻ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT	43
Figure 45 Estimated solubility of Nb(OH) ₆ ⁻ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT	44
Figure 46 Estimated solubility of Sn(OH) ₅ ⁻ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT	44
Figure 47 Estimated solubility of Pb(CO ₃) ₂ ²⁻ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT	45
Figure 48 Estimated solubility of ThCO ₃ (OH) ₃ ⁻ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT.....	45
Figure 49 Estimated solubility of U(CO ₃) ₂ (OH) ₂ ²⁻ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT.....	46
Figure 50 Estimated solubility of Np(CO ₃) ₂ (OH) ₂ ²⁻ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT.....	46
Figure 51 Estimated solubility of Pu(CO ₃) ₂ (OH) ₂ ²⁻ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT.....	47
Figure 52 Estimated solubility of MCO ₃ ⁺ (M: Sm, Ac, Pu, Am, Cm) in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT	47
Figure 53 Estimated solubility of M(CO ₃) ₂ ⁻ (M: Sm, Ac, Pu, Am, Cm) in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT	48
Figure 54 Estimated solubility of M(CO ₃) ₃ ³⁻ (M: Sm, Ac, Pu, Am, Cm) in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT	48

1. 緒言

高レベル放射性廃棄物および地層処分対象の TRU 廃棄物の地層処分において、ガラス等の固化体に含まれる放射性核種の移行を支配する最も可能性の高い経路は、固化体に地下水が接触することにより放射性核種が地下水中に溶出し、人工バリアおよび天然バリア中を移行していく経路であると考えられる。したがって、様々な状態にある地下水中における放射性核種の溶解、人工バリアや天然バリアに対する収着および拡散についての挙動は、地層処分の性能評価を行ううえで重要な現象である。特に、溶解度は地下水中に含まれる放射性核種の濃度の最大値を規定し、錯生成挙動は人工バリアや天然バリアに対する収着および拡散挙動を明らかにするための基盤情報となることから、核種の溶解および錯生成挙動は核種移行挙動の中でも最も重要な情報であると言える。

日本原子力研究開発機構（原子力機構）の前身である核燃料サイクル開発機構は、「地層処分研究開発第2次取りまとめ（第2次取りまとめ）」¹⁾における高レベル放射性廃棄物の地層処分システムの性能評価に資することを目的として、処分環境条件での溶解度や溶存化学種の推定のために、性能評価上重要とされる元素を対象とする熱力学データベース（JNC-TDB）を構築した²⁾。その後、経済協力開発機構原子力機関（OECD/NEA）やイスラエル連邦共和国のポール・シェラー研究所などから熱力学データベースが公開されている^{3,4)}。熱力学データベースには常に高い信頼性が求められることから、このような国際的な熱力学データのレビューや最新の研究成果を取り入れながら、原子力機構熱力学データベース（JAEA-TDB）を継続的に更新していくことが計画されている⁵⁾。この熱力学データベース更新の際に、実験的に得られた熱力学データの報告値がない場合や、報告値があっても信頼性が低いと判断されるものについては、化学アノログやモデルを用いて未選定の熱力学データを推定する必要に迫られる可能性がある。例えば JNC-TDB の場合、サマリウム(III)、アクチニウム(III)、キュリウム(III)の熱力学データとして、その化学的類似性を根拠にアメリシウム(III)と同じ値が採用されている²⁾。しかしながら、科学的見地からは、化学アノログやモデルの適用は慎重に行われるべきであり、その適用範囲を理解しておくことが熱力学データおよび熱力学データベースの信頼性を担保するうえで重要である。

以上のことから、本報告では熱力学データ信頼性評価の一環として、既往の熱力学データベースで選定されているデータ等を対象に、データ相互の相関関係や、イオン半径等の元素の持つ特性値と錯生成定数の関係等の調査を実施することで、データの信頼性評価に有効な関係を明らかにすることとした。本報告書では、前者として Gibbs 標準生成自由エネルギー

と標準生成エンタルピーの相関関係を調べるとともに、後者としてアクチニドイオンの錯生成に関する既往の複数のモデルについて比較検討を行い、地層処分の性能評価に最適と思われるものを選定するとともに、熱力学データに未報告値が多いアクチニド錯体の熱力学データの推定を行うこととした。

また、JAEA-TDB では、実験条件における平衡定数から標準状態における平衡定数を導出するための活量係数補正方法として、OECD/NEA のガイドライン⁶⁾に基づき Brønsted-Guggenheim-Scatchard モデル (SIT¹⁾) を用いることとしている。しかしながら、SIT で必要となるイオン相互作用係数 (ϵ) については、OECD/NEA が整備した熱力学データベース (NEA-TDB) では整備されているものの、NEA-TDB の対象元素が限られていることからその充足度を把握しておく必要がある。したがって、「第 2 次取りまとめ」における支配的な溶存化学種に対する ϵ の充足度を調べることとした。さらに、第 2 次取りまとめにおいて活量係数補正に用いている Davies モデルと SIT によって推定される活量係数の差異を調べ、活量補正モデルの差異による溶解度の影響を整理した。

¹⁾ SIT は“Specific Ion Interaction Theory”的略であり、本モデルの通称としてよく用いられる。

2. 热力学データの系統性に関する調査

2.1 標準生成自由エネルギーと標準生成エンタルピーの相関

2.1.1 はじめに

JAEA-TDB にて掲載する熱力学データは、標準生成自由エネルギー ($\Delta_f G^\circ_m$)、反応の平衡定数 (K°)、反応の自由エネルギー ($\Delta_r G^\circ_m = -RT \ln K^\circ$; R は気体定数、 T は絶対温度) の掲載を必須とし、熱力学データの重要性および値の信頼性に応じて、エンタルピーやエントロピー、熱容量等の掲載を推奨するものとしている⁵⁾。このうち、 $\Delta_f G^\circ_m$ については多くの値が報告されているものの、標準生成エンタルピー ($\Delta_f H^\circ_m$) や標準エントロピー (S°_m)、熱容量 (C_p°) などの報告値はそれほど多くない。このうち $\Delta_f H^\circ_m$ については、 K° の温度依存性を示す重要な情報となるため、未報告の $\Delta_f H^\circ_m$ を推定できれば地層処分の性能評価の信頼性を向上させることができることが期待できる。大江ら⁷⁾は、ひとつの元素の化合物および溶存化学種について、 $\Delta_f H^\circ_m$ と $\Delta_f G^\circ_m$ との間によい相関関係があることが多いと報告している。

したがって、本報告では、既往の $\Delta_f H^\circ_m$ と $\Delta_f G^\circ_m$ との相関関係を調査し、既報の片方の値からもう一方の値を推定することが可能かどうか検討することとした。当機構では、過去に主要な元素（セレン（Se）、ジルコニウム（Zr）、テクネチウム（Tc）、トリウム（Th）、ウラン（U）、ネプツニウム（Np）、プルトニウム（Pu）、アメリシウム（Am））について、上記の相関関係を概括的に調査している⁸⁾。本報告では、2~6 倍の酸化数ごとに本調査を行い、その相関関係を比較検討したものである。

2.1.2 使用した熱力学データベース

2 倍の代表元素として、ニッケルを選択した。ニッケルの TDB としては、OECD/NEA が整備したもの（NEA-TDB）⁹⁾が最も信頼できると考えられる。ニッケルの NEA-TDB のうち、標準生成自由エネルギー ($\Delta_f G^\circ_m$) と標準生成エンタルピー ($\Delta_f H^\circ_m$) との 2 つの数値がそろっている化合物をグループ 1 として検討した（Table 1）。次に、ニッケルの溶存化学種のみをグループ 2 として選択し、相関関係を検討した。さらに、CN⁻あるいはSCN⁻を含む化合物を除き、グループ 3 とした。

3 倍の代表元素としてアメリシウムを、4 倍および 6 倍の代表としてウランを、5 倍の代表としてネプツニウムを選択した。熱力学データは、NEA-TDB を中心として米国原子力規制委員会（NRC）などの選定値を追加した当機構の TDB⁸⁾から、溶存化学種に関する値を抜粋したものを使用した（Table 2 – Table 5）。熱力学データは、実測による報告値のみを使用す

るとともに、 $\Delta_f G^\circ_m$ および $\Delta_f H^\circ_m$ の両者の値がそろっているもののみを対象とした。

$\Delta_f G^\circ_m$ と $\Delta_f H^\circ_m$ の相関関係には線形回帰分析を適用し、比較検討の指標として、決定係数（重決定 R^2 ）を使用した。決定係数（重決定 R^2 ）は、近似直線で求められる $\Delta_f G^\circ_m$ の変動を実際の $\Delta_f G^\circ_m$ の変動で割ったものであり、実際の $\Delta_f G^\circ_m$ の変動をどれくらい近似直線で説明できているかを示す値である。

2.1.3 回帰分析の結果と考察

ニッケル(II)のグループ1～3の回帰分析の結果をFigure 1からFigure 3に、アメリシウム(III)、ウラン(IV)、ネプツニウム(V)およびウラン(VI)の回帰分析の結果をFigure 4からFigure 7に示す。また、回帰分析で得られた決定係数の値を、Table 6に示す。ニッケル(II)の場合、グループ2の決定係数が他のグループより低くなっていることがわかる。この原因としてシアン化物イオン (CN^-) およびチオシアン化物イオン (SCN^-) を含む溶存化学種の存在が考えられた。これらの溶存化学種を除くことによって、グループ3の決定係数（重決定 R^2 ）は上昇した。なお、シアン化物イオンおよびチオシアン化物イオンの影響については、今後調査検討が必要である。

3～6 値のアクチニド元素の溶存化学種に関する決定係数を比較すると、ウラン(IV)およびウラン(VI)の決定係数がよい一方で、ネプツニウム(V)の決定係数が相対的に低いことがわかる。回帰直線からの残差が大きい化学種を調べてみたものの、特定の配位子について残差が大きくなるという傾向は見あたらない。したがって、決定係数の差異は実測値の充足度や信頼性に基づいているものと考えられる。

2.2 アクチニド元素の錯生成の系統性に関するモデルの調査

統一理論モデル、剛体球モデル、配位子反発モデルの3モデルについて、文献に基づき調査を行うとともに、NEA-TDBへの適用性を検討した。

2.2.1 統一理論モデル

Brown and Sylva¹⁰⁾らは、ランタニド元素やアクチニド元素のみならず、数多くの遷移金属元素イオンと種々の配位子との錯生成定数 (β_{pq}) を、統一理論 (Unified Theory) に基づくモデル（統一理論モデル）を用いて導出している。統一理論モデルによる錯生成定数 β_{pq} は、以下の計算式から求められる。

$$\log \beta_{pq} = \{q(Int_1) + (p-1)(Int_2)\} + \{q(Slp_1) + (p-1)(Slp_2)\} \left\{ g_1 \left(z_M / r_M^2 + g_2 \right) \right\} - \log U_{pq} \quad (1)$$

ここで, p は中心にある金属イオンの個数, q は配位子の個数, Int_1 と Slp_1 は $(p,q)=(1:1)$ の化学種の最小二乗直線の切片と傾き, Int_2 と Slp_2 は (p,q) 化学種の最小二乗直線の切片と傾き, z_M と r_M は金属イオンの電荷と半径を表す。 Slp_2 は, 各金属イオンに結合している配位子の個数 Θ_L を用いて, 次式で表される。

$$Slp_2 = 0.187 \Theta_L^2 - 0.814 \Theta_L + 0.78 \quad (2)$$

さらに,

$$Int_2 = 3.58 - 62.67 Slp_2 \quad (3)$$

$$\log U_{pq} = \log [(q-p+1)!] - 0.5 (q-p) (q-p+1) \log k \quad (4)$$

$$\log k = -(2 - \Theta_M) \exp \left(-\frac{1}{q} \sum_1^q (\varepsilon_M - \varepsilon_L)^2 \right) \quad (5)$$

ここで, Θ_M は各配位子に対して結合している金属イオンの個数, ε_M および ε_L は金属イオンおよび配位子の荷電粒子の自由度 (原著では“electronicity”) を表す。さらに,

$$g_1 = (1 + D + \varepsilon_L^2 S)(z_M + 2) \quad (6)$$

$$g_2 = g(n)(z_M - 1) - 0.05 d [(\gamma - 1)(\varepsilon_L^4 - 3) - 1][n - (3 + 2\gamma)]^2 (1 - \gamma z_M)(1 - S) \quad (7)$$

ここで, D は d 軌道が結合に使用されている場合 1, それ以外の場合は 0, S はイオンの最外殻に s 電子が存在する場合 1, それ以外の場合は 0, n は主量子数, $g(n)$ は $n > 1$ の場合 1, それ以外の場合は 0, d はイオンの最外殻における d 電子の個数, γ は配位子に対応する酸が二元酸 ($\text{CH}_4, \text{NH}_3, \text{H}_2\text{O}, \text{HF}, \text{HCl}, \text{HBr}, \text{HI}$) の場合は 0, オキソ酸 (過酸化水素酸, 硫酸, 酢酸など) の場合は 1 である。

2.2.2 剛体球モデル

Moriyama *et al.* は, アクチニドイオンの加水分解種^[11, 12] および炭酸錯体等^[13, 14] に対する錯生成定数を, 剛体球モデル (Hard Sphere Model) を用いて推定している。剛体球モデルでは,

中心のアクチニドイオンおよび周辺の配位子（錯生成の対イオンが存在しないあるいは配位数が少ない場合は H_2O が配位すると仮定）すべてを剛体球とみなし、正八面体構造（6 配位）の錯体が形成されるものと仮定したうえで、次式のようにクーロン相互作用に伴って発生する静電ポテンシャルの総和を求める。

$$E = \sum_{i \neq j} \left(Z_i Z_j / \epsilon d_{ij} \right) \quad (8)$$

ここで、 E は静電ポテンシャル、 Z_i および Z_j は剛体球 i および j の電荷、 ϵ は剛体球間の（平均）比誘電率、 d_{ij} は剛体球 i と j の離間距離を表す。イオン強度 0 における錯生成定数 β° は、錯生成種と非錯生成イオンとのポテンシャル・エネルギー差 ΔE 、気体定数 R および温度 T を用いて、次式で表される。

$$\beta^\circ = \exp(-\Delta E / R T) \quad (9)$$

2.2.3 配位子反発モデル

Neck and Kim¹⁵⁾は、配位子反発モデル（Ligand Repulsion Model）を用いて、アクチニドの加水分解定数の系統性に関する検討を行っている。配位子反発モデルには 2 種類の計算方法がある。

計算方法 (A)

錯生成定数はアクチニドイオンの電荷 (Z_M) とアクチニド-配位子との離間距離 (d_{M-L}) の比に比例する、すなわち、

$$\log \beta^\circ \propto (Z_M / d_{M-L}) \quad (10)$$

という仮定に基づき、既報告されている値に基づき、最小二乗法の比例直線を引く。この場合、配位子の個数ごとに異なる直線にて近似する。最小二乗法にて得られた一次関数に Z_M / d_{M-L} を入力し、安定度定数を求める。

計算方法 (B)

水酸化物イオン (OH^-) が n 個配位した単核のアクチニドイオンの加水分解定数は、以下の式で与えられる。

$$\log \beta_{1n}^\circ = n \log \beta_{11}^\circ - {}^{\text{rep}}E_L / R T \ln 10 \quad (11)$$

$${}^{\text{rep}}E_L = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} N_A e^2 \cdot \frac{1}{2} \sum_L \frac{Z_L Z_{L'}}{d_{L-L'} \epsilon_{L-L'}} \quad (12)$$

ここで、 N_A はアボガドロ数、 e は素電荷、 Z_L および $Z_{L'}$ は配位子の電荷数である。また、 $d_{L-L'}$ および $\epsilon_{L-L'}$ は、配位子 L と配位子 L' との間の離間距離および静電遮蔽 (electrostatic shielding) であり、以下の式で表される。

$$d_{L-L'} = (d_{M-L}^{-2} + d_{M-L'}^{-2} - 2 d_{M-L} d_{M-L'} \cos \theta_{L-M-L'})^{1/2} \quad (13)$$

$$\epsilon_{L-L'} = C^{(0)}_{L-M-L'} + C^{(1)}_{L-M-L'} (\theta_{L-M-L'} / 180^\circ) + \dots + C^{(20)}_{L-M-L'} (\theta_{L-M-L'} / 180^\circ)^{20} \quad (14)$$

ここで、 $\theta_{L-M-L'}$ は配位子 L と中心元素 M と配位子 L' とのなす角 ($^\circ$)、 $C^{(n)}_{L-M-L'}$ は遮蔽係数 ($C^{(0)}_{L-M-L'} = -23$, $C^{(1)}_{L-M-L'} = 94$, $C^{(20)}_{L-M-L'} = -15$) である。ここで、配位子と中心元素のなす角は、最小の反発が発生する場合とし、錯体種の組成が ML_2 であれば直線、 ML_3 であれば同一平面上での三角形、 ML_4 であれば正四面体構造、 ML_5 であれば三方晶系二重ピラミッド型 (trigonal bipyramidal)， ML_6 であれば正八面体構造とする。

2.2.4 NEA-TDB における平衡定数選定値の推定への適用性検討

各種配位子が配位する場合について、NEA-TDB の熱力学データベースと上記各モデル（統一理論モデル、剛体球モデル、配位子反発モデル (A および B)）の比較を行った。対象とした元素と酸化数は、報告値が比較的少ないジルコニウム(IV)、ウラン(IV)、ネプツニウム(IV)、プルトニウム(IV)、アメリシウム(III)とし、対象配位子は水酸化物イオン (OH^-)、炭酸イオン (CO_3^{2-})、フッ化物イオン (F^-)、塩化物イオン (Cl^-)、硫酸イオン (SO_4^{2-}) および硝酸イオン (NO_3^-) とした。

加水分解定数について比較した結果を、Figure 8からFigure 12に示す。統一理論モデルで推定された加水分解定数は、どの元素においても NEA-TDB の値よりも高いことがわかった。一方、剛体球モデルと配位子反発モデルでは、Zr(IV)以外については推定値が NEA-TDB と

一致するようパラメータが決定されていることから、推定値が NEA-TDB に近い値となるのは当然である。ただ、ジルコニウム(IV)の NEA-TDB は、両モデルの学術論文公開後に公開されていることから、ジルコニウム(IV)報告値をよく説明できることは注目に値する。

炭酸イオンが配位したときの結果を、Figure 13からFigure 17に示す。各モデルの中では、配位子反発モデル（A）による推定値がもっとも NEA-TDB 選定値に近く、剛体球モデルによる推定値がそれに続いて近い値となっていることがわかる。ジルコニウム(IV) ($Zr(CO_3)_4^{4-}$) の推定値については、剛体球モデルと配位子反発モデル（A および B）で顕著な差は見られなかつた。

フッ化物イオンが配位した場合の結果を、Figure 18からFigure 22に示す。統一理論モデルによる Zr(IV)の推定値が、配位数が 2 と 3 の間で大きく増加する理由は、配位数 3 以上では「d 軌道を使用する」としているためである。統一理論モデルによる推定値は、ウラン(IV) やネプツニウム(IV)では NEA-TDB 選定値に近いものとなっているが、ジルコニウム(IV)については NEA-TDB 選定値との不一致が大きいことがわかる。また、剛体球モデルによる推定値は、比較的 NEA-TDB 選定値に近いものの、配位数が高くなると NEA-TDB 選定値との差が大きくなる傾向を持つことがわかる。配位子反発モデル（A）による推定値は、ジルコニウム(IV), ウラン(IV), ネプツニウム(IV)では NEA-TDB 選定値に近いものの、フッ化物錯体 (PuF^{3+} や AmF_2^+) での不一致が目につく。

塩化物イオン、硫酸イオンおよび硝酸イオンが配位した場合の結果を、Figure 23からFigure 37に示す。配位子反発モデル（A）による推定値が、もっとも NEA-TDB 選定値に近いものとなっていることがわかる。剛体球モデルによる推定値は、フッ化物錯体の場合と同様に、配位数が高くなると NEA-TDB 選定値との差が大きくなる傾向を持つことがわかる。統一理論モデルによる推定値は、剛体球モデルによる推定値に比べると NEA-TDB 選定値に近いものとなっていることがわかる。

全体的には、配位子反発モデル（A）による推定値が、もっとも NEA-TDB 選定値に近いことがわかる。ただし、配位子反発モデルは既存の熱力学データの系統性を議論することが目的であるため、既存熱力学データと配位数が異なる錯体種の熱力学データは推定できるものの、複雑な錯体種（例えば後述するヒドロキソ炭酸錯体）の熱力学データの推定は困難である。

以上の結果から、アクチニド錯体の熱力学データの推定にもっとも適していると考えられるのは、総合的に系統性が説明できており、かつ未報告の熱力学データの推定が容易である剛体球モデルであると考えられる。ただし、これまで述べてきたように、剛体球モデルが常

に最適な推定値を提示するとは限らないことから、統一理論モデルによる推定値など他の推定値と比較検討しながら熱力学データを選定すべきであると考えられる。

3. 活量係数モデルの差異による溶解度計算結果の比較

3.1 はじめに

「第2次取りまとめ」の性能評価では、人工バリア中の間隙水および天然バリア中の地下水における対象元素の溶解度計算を行う際に、活量係数を次式で表される Davies モデルによって算出している¹⁶⁾。

$$\log_{10}\gamma_i = -0.5102 z_i^2 \left(\frac{\sqrt{I_m}}{1 + \sqrt{I_m}} - 0.3 I_m \right) \quad (15)$$

$$I_m = \frac{1}{2} \sum_i m_i z_i^2 \quad (16)$$

ここで、 γ_i 、 z_i および m_i はそれぞれイオン i の活量係数、電荷、モル重量濃度、 I_m はモルイオン強度である。このモデルは、イオン強度が $0.1 \text{ mol}\cdot\text{kg}^{-1}$ 以下の溶液において実験値をよく説明できるとされており¹⁷⁾、降水系地下水のような低イオン強度環境で用いることは妥当である一方、イオン強度が $0.5 \text{ mol}\cdot\text{kg}^{-1}$ を超える海水系地下水環境で用いることには疑問が生じる。

NEA-TDB では、活量係数モデルとして次式で表される SIT を用いており、このモデルであればイオン強度 $3.5 \text{ mol}\cdot\text{kg}^{-1}$ 程度まで適用が可能であると言われている¹⁸⁾。

$$\log_{10}\gamma_j = -z_j^2 D + \sum_k \varepsilon(j, k, I_m) m_k \quad (17)$$

$$D = \frac{A \sqrt{I_m}}{1 + B a_j \sqrt{I_m}} \quad (18)$$

ここで、 D は Debye-Hückel 項、 $\varepsilon(j, k, I_m)$ はイオン強度 I_m におけるイオン j の対電解質イオン k に対するイオン相互作用係数である。また、 A と $B a_j$ は 298.15 K 、 1 気圧 においてそれぞれ 0.509 、 1.5 という値になることが知られている⁶⁾。

JAEA-TDB でも、OECD/NEA のガイドライン⁶⁾に基づき、SIT を用いてイオン強度補正を行うこととしている。この SIT を用いるためには、イオン相互作用係数の値が必要となる。このため、本報告では代表例として、「第2次取りまとめ」における溶解度計算で支配的に溶存する化学種に対するイオン相互作用係数の充足度を調べるとともに、活量補正モデルの差

異が溶解度計算に及ぼす影響について検討を行った。

3.2 イオン相互作用係数の整備状況

「第2次取りまとめ」のレファレンスケースにおける主要な溶存化学種について、イオン相互作用係数の整備状況を調査した結果をTable 7に示す。性能評価上重要な18元素のうち、可溶性であるセシウムを除く17元素の支配的な溶存化学種に対して、電解質陰イオンとして塩化物イオン(Cl^-)、過塩素酸イオン(ClO_4^-)および硝酸イオン(NO_3^-)の3種、電解質陽イオンとしてリチウムイオン(Li^+)、ナトリウムイオン(Na^+)およびカリウムイオン(K^+)の3種に対するイオン相互作用係数の有無を調査した。イオン相互作用係数は、中性電荷の化学種では0であり、また同じ符号の化学種どうしの相互作用も存在しないものと仮定されている。イオン相互作用係数がNEA-TDBで整備されているものは、24溶存化学種(可溶性の Cs^+ と中性化学種を除く)72個のうち、アメリシウムの3溶存化学種4個しかないことがわかる。したがって、その他の溶存化学種については、何らかの方法でイオン相互作用係数を決定する必要がある。

3.3 Davies法とSIT法による活量係数の算出結果の比較

NEA-TDBでは、イオン相互作用係数が化学種の総電荷ごとに配置されている⁶⁾。このことは、同じ総電荷の化学種のイオン相互作用係数が類似していることを示唆している。また、JNC-TDB²⁾では、サマリウム、アクチニウムおよびキュリウムの熱力学データについて、すべてアメリシウムの値を使用している(溶解度計算においては、プルトニウム(III)も同様である¹⁶⁾)。その他の溶存化学種を総電荷ごとに分類すると、結果的に以下の7グループに分類されることになる。

- ・ AmCO_3^+ グループ : SmCO_3^+ , AcCO_3^+ , PuCO_3^+ , AmCO_3^+ , CmCO_3^+
- ・ $\text{Am}(\text{CO}_3)_2^-$ グループ : $\text{Sm}(\text{CO}_3)_2^-$, $\text{Ac}(\text{CO}_3)_2^-$, $\text{Pu}(\text{CO}_3)_2^-$, $\text{Am}(\text{CO}_3)_2^-$, $\text{Cm}(\text{CO}_3)_2^-$
- ・ $\text{Am}(\text{CO}_3)_3^{3-}$ グループ : $\text{Sm}(\text{CO}_3)_3^{3-}$, $\text{Ac}(\text{CO}_3)_3^{3-}$, $\text{Pu}(\text{CO}_3)_3^{3-}$, $\text{Am}(\text{CO}_3)_3^{3-}$, $\text{Cm}(\text{CO}_3)_3^{3-}$
- ・ 総電荷+2 グループ : Ra^{2+}
- ・ 総電荷0 グループ : $\text{Zr(OH)}_4(\text{aq})$, $\text{TcO(OH)}_2(\text{aq})$, $\text{Pd(OH)}_2(\text{aq})$, $\text{Sn(OH)}_4(\text{aq})$, $\text{PbCO}_3(\text{aq})$, $\text{PaO(OH)}_3(\text{aq})$, $\text{U(OH)}_4(\text{aq})$, $\text{Np(OH)}_4(\text{aq})$
- ・ 総電荷-1 グループ : HSe^- , Nb(OH)_6^- , Sn(OH)_5^- , $\text{Th(OH)}_3\text{CO}_3^-$
- ・ 総電荷-2 グループ : $\text{Pb}(\text{CO}_3)_2^{2-}$, $\text{U(OH)}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$, $\text{Np(OH)}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$, $\text{Pu(OH)}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$

ここで、SIT の定義により、総電荷 0 グループの $\log \gamma_i$ はつねに 0 である。総電荷+2 グループ (Ra^{2+}) の塩化物イオンに対するイオン相互作用係数 $\varepsilon(\text{Ra}^{2+}, \text{Cl}^-)$ は、既往の 2+電荷を持つ金属イオン ($\text{Cu}^{2+}, \text{Co}^{2+}, \text{Ni}^{2+}$) の値の平均 (0.14) を使用した。また、総電荷-1 および-2 の各グループのイオン相互作用係数は、NEA-TDB に掲載されている総電荷-1 および-2 の全化学種の平均値 (それぞれ-0.07 および-0.12) を使用した。なお、塩化物イオンに対するイオン相互作用係数が報告されておらず、同じ化学種の過塩素酸イオンに対するイオン相互作用係数が報告されている場合は、暫定的に過塩素酸イオンに対するイオン相互作用係数を使用した。

対象とした地下水 (イオン強度) は、「第 2 次とりまとめ」において設定された 5 つのモデル地下水¹⁹⁾；

- ・ 降水系還元性高 pH 地下水 (FRHP)
- ・ 降水系還元性低 pH 地下水 (FRLP)
- ・ 混合系還元性中性型地下水 (MRNP)
- ・ 海水系還元性高 pH 地下水 (SRHP)
- ・ 海水系還元性低 pH 地下水 (SRLP)

と、レファレンスケースのモデル地下水 (FRHP) でイオン強度を 0.02, 0.1 および 0.7 mol·kg⁻¹ となるよう塩化物イオンおよびナトリウムイオン濃度を変更したもの (それぞれ modified FRHP 1, 2 and 3) の計 8 種類とした。各地下水の組成の概要を、Table 8 に示す。なお、SIT モデルを用いた活量係数導出においては、簡単のため $[I_m] = [\text{Na}^+] = [\text{Cl}^-]$ とした。

各モデル地下水における活量係数を、グループごとに Figure 38 から Figure 43 に示す。いずれのグループにおいても、 $I_m = 0.2 \text{ mol}\cdot\text{kg}^{-1}$ 程度までは両モデルの活量係数がほぼ一致しているが、それより高いイオン強度においては両モデルの活量係数の差が広がっていくことがわかる。したがって、SRHP 等比較的イオン強度の高い水溶液に対する溶解度計算を行う際は、SIT のほうがより信頼性の高い結果が得られると思われる。

3.4 Davies 法と SIT 法による溶解度の算出結果の比較

前節で得られた活量係数を基に、モデル地下水における各溶存化学種の溶解度の算出値を比較検討した。対象とした地下水は、地下水組成の影響をナトリウムイオンおよび塩化物イオン濃度だけにとどめるため、FRHP および 3 種の modified FRHP を用いることとした。前

節と同様に、SIT モデルを用いた活量係数導出においては、簡単のため「 $I_m = [\text{Na}^+] = [\text{Cl}^-]$ 」とした。また、 Ra^{2+} については、「第 2 次取りまとめ」における溶解度評価において、熱力学的に得られる溶解度値を採用していないことから、本報告の検討から除外した。

得られた結果を、溶存化学種ごとに**Figure 44**から**Figure 54**に示す。イオン強度が低い FRHP や modified FRHP 1 では、両モデルにおける溶解度の導出値が同程度であることがわかる。また、イオン強度が高いほど SIT から得られる溶解度が Davies モデルから得られる値よりも高くなること、その傾向は総電荷の絶対値が大きくなるほど顕著に見られることがわかる。本報告で取り上げた溶存化学種は、総電荷の絶対値が最大 3 であり、その際に最もイオン強度が高い modified FRHP 3 における溶解度の差異は 6 倍程度であることがわかった。したがって、第 2 次取りまとめにおける溶解度が、やや過小に評価されている可能性がある。さらに、総電荷の絶対値がさらに大きい化学種（例えば $\text{U}(\text{CO}_3)_5^{6-}$ ）が支配的に存在するような系では、両モデルによる溶解度の差異がさらに拡大することが予想される。ただし、溶解度計算の基となる熱力学データそのものにも大きな誤差（不確実性）が含まれることもあるため、溶解度評価の妥当性については慎重に検討する必要がある。

以上のことから、活量係数モデルの差異によって溶解度計算にある程度の差異が発生することがわかった。一般に、SIT の方がより高いイオン強度まで適用可能と言われていることから、今後は SIT を用いて活量補正を行っていくのがよいと思われる。ただし、イオン相互作用係数が十分に整備されていないうえ、現在利用可能な地球化学計算コード（PHREEQC 等）では SIT による活量補正を取り扱うことができない。したがって、イオン相互作用係数の推定（導出）方法や、計算コードの改良もしくは SIT と他モデル（例えば Davies モデル）との関連づけのための手法を検討することが必要である。

4. 結言

地層処分の性能評価に用いるための熱力学データベースの整備に資することを目的として、標準生成自由エネルギーと標準生成エンタルピーとの相関関係を調査し、両者の直線関係から未報告の標準生成自由エネルギーもしくは標準生成エンタルピーの推定が可能であることを示した。また、アクチニド元素の錯生成定数の系統性に関する3つのモデルについて検討を行い、剛体球モデルが最適であることを示すとともに、未報告のアクチニド錯体の生成定数の推定が可能であることを示した。本報告において系統性が確認された熱力学データ群は、原子力機構の熱力学データベース（JAEA-TDB）に採用される予定である。これらの熱力学データの系統性の確認を行うことで、熱力学データベースの信頼性が向上したと考えられる。さらに、溶解度計算時に必要な活量係数について、Davies および SIT という2つのモデルの比較検討を行い、イオン強度が高いほど、また対象の溶存化学種の総電荷の絶対値が大きいほど、SIT モデルによる溶解度がより大きくなることを確認した。したがって、特に高イオン強度環境において、より信頼性の高い核種の溶解度評価を行うために、SIT モデルの導入が必要であることが示された。以上の結果は、熱力学データベース整備および地層処分の性能評価を行ううえで有益な基盤情報であると考えられる。

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 次取りまとめ一分冊 3 地層処分システムの安全評価”, 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. 例えば M. Rand, J. Fuger, I. Grenthe, V. Neck and D. Rai: “Chemical thermodynamics of thorium”, Organisation for Economic Co-Operation and Development, Elsevier B. V. (2008).
4. W. Hummel, U. Berner, E. Curti, F. J. Pearson and T. Thoenen: “Nagra / PSI chemical thermodynamic data base 01/01”, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste in Switzerland (Nagra), Technical Report 02-16 (2002).
5. A. Kitamura, M. Shibata, Y. Tachi, K. Fujiwara, R. Doi, Y. Yoshida, T. Yamaguchi and M. Yui: “JAEA thermodynamic database for performance assessment of geological disposal of high-level and TRU wastes: fundamental plan for selection of thermodynamic data”, presented at 12th International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere (Migration '09), PC1-4, September 2009, Kennewick, WA, USA (2009).
6. I. Grenthe and H. Wanner: “TDB-2: Guidelines for the extrapolation to zero ionic strength”, Nuclear Energy Agency in Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD/NEA) (2000).
7. 大江俊昭ほか: “廃棄物処分時の緩衝材の微小間隙水中の TRU 核種溶解度の推測”, 平成 11～13 年度科学研究費補助金研究成果報告書, 研究課題番号 11580519 (2002).
8. 日本原子力研究開発機構: “平成 17 年度放射性廃棄物処分の長期評価手法の調査(1/2) [確率論的アプローチによる長期的評価手法の調査]”, 経済産業省原子力安全・保安院受託事業報告書, pp. 5-89 – 5-93 (2006).
9. H. Gamsjäger, J. Bugajski, T. Gajda, R. J. Lemire and W. Preis: “Chemical thermodynamics of nickel”, Organisation for Economic Co-Operation and Development, Elsevier B. V. (2005).
10. Brown, P. L., Sylva, R. N.: “Unified theory of metal-ion-complex formation constants”, J. Chem. Res., (S)4-5, (M)0110 (1987).
11. H. Moriyama, A. Kitamura, K. Fujiwara and H. Yamana: “Analysis of mononuclear hydrolysis

- constants of actinie ions by hard sphere model”, Radiochim. Acta, 87, pp. 97–104 (1999).
12. H. Moriyama, T. Sasaki, T. Kobayashi and I. Takagi: “Systematics of polymeric hydrolysis constants of actinide ions”, J. Alloys Comp., 408–412, pp. 1302–1306 (2006).
13. H. Moriyama, M. I. Pratopo and K. Higashi: “Systematics of hydrolysis and carbonate comolexation constants of ions of transuranium elements”, Radiochimica Acta, 66/67, pp. 73–79 (1994).
14. H. Moriyama, K. Fujiwara and H. Yamana: “Systematics of complexation constants of actinide ions with inorganic ligands”, J. Nucl. Sci. Technol., Suppl. 3, pp. 246–250 (2002).
15. V. Neck and J. I. Kim: “Solubility and hydrolysis of tetravalent actinides,” Radiochim. Acta, 89, pp. 1-16 (2001).
16. 東侍郎, 柴田雅博, 油井三和, 濵谷朝紀, 能登屋信, 吉田泰: “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 (1999).
17. I. Grenthe , A. V. Plyasunov and K. Spahiu: “Estimations of medium effects on thermodynamic data”, in: “Modelling in Aquatic Chemistry Chapter IX.”, Organisation for Economic Co-Operation and Development, Elsevier B. V. (1997)
18. V. Neck, W. Runde, J. I. Kim and B. Kanellakopulos: “Solid-liquid equilibrium reactions of neptunium(V) in carbonate solution at different ionic strength”, Radiochim. Acta, 65, pp. 29–37 (1994).
19. M. Yui, H. Sasamoto and R. C. Arthur: “Groundwater evolution modeling for the second progress performance assessment (PA) report”, JNC TN8400 99-030 (1999).

Table 1 Standard free energy of formation ($\Delta_f G^\circ_m$) and standard enthalpy of formation ($\Delta_f H^\circ_m$) for nickel and grouping of aqueous species and compounds for investigation of correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and $\Delta_f H^\circ_m$ ⁹⁾

species or compound	$\Delta_f G^\circ_m$ (kJ·mol ⁻¹)	$\Delta_f H^\circ_m$ (kJ·mol ⁻¹)	grouping		
			1	2	3
Ni(cr)	0	0	○		
Ni(g)	384.686	430.1	○		
Ni(l)	14.035	17.5	○		
Ni ²⁺	-45.773	-55.012	○	○	○
NiO(cr)	-211.66	-239.7	○		
NiOH ⁺	-228.458	-287.042	○	○	○
β -Ni(OH) ₂	-457.1	-542.3	○		
Ni ₂ OH ³⁺	-268.181	-349.955	○	○	○
Ni ₄ (OH) ₄ ⁴⁺	-974.567	-1173.37	○	○	○
NiF ⁺	-335.458	-380.862	○	○	○
NiF ₂ (cr)	-609.852	-657.3	○		
NiCl ₂ (cr)	-258.743	-304.9	○		
NiCl ₂ ·2H ₂ O(cr)	-754.382	-913.374	○		
NiCl ₂ ·4H ₂ O(cr)	-1234.946	-1514.048	○		
NiCl ₂ ·6H ₂ O(cr)	-1713.669	-2104.7	○		
NiBr ₂ (cr)	-195.408	-213.5	○		
NiI ₂ (cr)	-94.36	-96.42	○		
β -Ni(IO ₃) ₂	-323.735	-487.112	○		
Ni(IO ₃) ₂ ·2H ₂ O(cr)	-802.068	-1087.672	○		
α -NiS	-87.792	-88.1	○		
β -NiS	-91.33	-94	○		
NiS ₂ (cr)	-123.832	-128	○		
Ni ₃ S ₂ (cr)	-211.172	-217.2	○		
Ni ₉ S ₈ (cr)	-746.803	-760	○		
NiSO ₄ (cr)	-762.688	-873.28	○		
α -NiSO ₄ ·6H ₂ O	-2225.467	-2683.817	○		
β -NiSO ₄ ·6H ₂ O	-2224.915	-2677.287	○		
NiSO ₄ ·7H ₂ O(cr)	-2462.699	-2977.327	○		
NiSO ₄ (aq)	-803.191	-958.692	○	○	○
NiAs(cr)	-66.583	-70.82	○		
Ni ₅ As ₂ (cr)	-237.638	-244.6	○		
Ni ₁₁ As ₈ (cr)	-715.758	-743	○		
Ni ₃ (AsO ₄) ₂ ·8H ₂ O(cr)	-3491.557	-4179	○		
NiCO ₃ (cr)	-636.416	-713.32	○		
NiCO ₃ ·5.5 H ₂ O(cr)	-1920.881	-2312.992	○		
Ni(CN) ₄ ²⁻	449.601	353.688	○	○	
Ni(CN) ₅ ³⁻	626.244	490.638	○	○	
NiSCN ⁺	36.596	9.588	○	○	
Ni(SCN) ₂ (aq)	124.273	76.788	○	○	
Ni(SCN) ₃ ⁻	215.089	145.188	○	○	
Ni ₂ SiO ₄ (oliv)	-1288.441	-1396	○		

Table 2 Standard free energy of formation and standard enthalpy of formation for americium(III)⁸⁾

species	$\Delta_f G^\circ_m$ (kJ·mol ⁻¹)	$\Delta_f H^\circ_m$ (kJ·mol ⁻¹)
Am ³⁺	-598.698	-616.7
Am(OH) ₂ ⁺	-976.885	-1110
AmCO ₃ ⁺	-1164.1	-1277
Am(CO ₃) ₂ ⁻	-1734.7	-1957
AmHCO ₃ ²⁺	-1217.55	-1337

Table 3 Standard free energy of formation and standard enthalpy of formation for uranium(IV)⁸⁾

species	$\Delta_f G^\circ_m$ (kJ·mol ⁻¹)	$\Delta_f H^\circ_m$ (kJ·mol ⁻¹)
U(OH) ₄ (aq)	-1421.309	-1624.607
U(CO ₃) ₅ ⁶⁻	-3363.432	-3987.35
U ⁴⁺	-529.86	-591.2
UOH ³⁺	-763.918	-830.12
USO ₄ ²⁺	-1311.423	-1492.54
U(SO ₄) ₂ (aq)	-2077.86	-2377.18

Table 4 Standard free energy of formation and standard enthalpy of formation for neptunium(V)⁸⁾

species	$\Delta_f G^\circ_m$ (kJ·mol ⁻¹)	$\Delta_f H^\circ_m$ (kJ·mol ⁻¹)
NpO ₂ ⁺	-907.765	-978.181
NpO ₂ OH(aq)	-1080.405	-1199.226
NpO ₂ (OH) ₂ ⁻	-1247.336	-1431.23
NpO ₂ SO ₄ ⁻	-1654.281	-1864.321
NpO ₂ CO ₃ ⁻	-1470.02	-1599.9
NpO ₂ (CO ₃) ₂ ³⁻	-2009.6	-2298.8
NpO ₂ (CO ₃) ₃ ⁵⁻	-2522.859	-3017.12

Table 5 Standard free energy of formation and standard enthalpy of formation for uranium(VI)⁸⁾

species	$\Delta_f G^\circ_m$ (kJ·mol ⁻¹)	$\Delta_f H^\circ_m$ (kJ·mol ⁻¹)
UO_2OH^+	-1159.724	-1261.371
$(\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{2+}$	-2347.303	-2572.065
$(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5^+$	-3954.594	-4389.086
$\text{UO}_2\text{CO}_3(\text{aq})$	-1537.188	-1689.23
$\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$	-2103.161	-2350.96
$\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$	-2660.914	-3083.89
$(\text{UO}_2)_3(\text{CO}_3)_6^{6-}$	-6333.285	-7171.08
UO_2^{2+}	-952.551	-1019
UO_2Cl^+	-1084.738	-1178.08
$\text{UO}_2\text{Cl}_2(\text{aq})$	-1208.707	-1338.16
$\text{UO}_2\text{SO}_4(\text{aq})$	-1714.535	-1908.84
$\text{UO}_2(\text{SO}_4)_2^{2+}$	-2464.19	-2802.58

Table 6 Obtained multiple coefficient of determination (R^2) for correlation between $\Delta_f G^\circ_m$ and

$$\Delta_f H^\circ_m$$

element (group)	R^2
nickel (group 1)	0.9950
nickel (group 2)	0.9895
nickel (group 3)	0.9985
americium(III)	0.9978
uranium(IV)	0.9995
neptunium(V)	0.9964
uranium(VI)	0.9994

Table 7 Status of ion interaction coefficients in the NEA-TDB ³⁾ for dominant aqueous species in the performance assessment of “H12” report ¹⁾

element	aqueous species	counter electrolyte ion						remarks
		Cl ⁻	ClO ₄ ⁻	NO ₃ ⁻	Li ⁺	Na ⁺	K ⁺	
Se	HSe ⁻				×	×	×	
Zr	Zr(OH) ₄ (aq)							no electric charge
Nb	Nb(OH) ₆ ⁻				×	×	×	
Tc	TcO(OH) ₂ (aq)							no electric charge
Pd	Pd(OH) ₂ (aq)							no electric charge
Sn	Sn(OH) ₅ ⁻				×	×	×	
	Sn(OH) ₄ (aq)							no electric charge
Cs	Cs ⁺							soluble
Sm	Sm(CO ₃) ₂ ⁻				×	×	×	taken from americium(III)
	Sm(CO ₃) ₃ ³⁻				×	×	×	
	SmCO ₃ ⁺	×	×	×				
Pb	PbCO ₃ (aq)							no electric charge
	Pb(CO ₃) ₂ ²⁻				×	×	×	
Ra	Ra ²⁺	×	×	×				
Ac	Ac(CO ₃) ₂ ⁻				×	×	×	taken from americium(III)
	Ac(CO ₃) ₃ ³⁻				×	×	×	
	AcCO ₃ ⁺	×	×	×				
Th	Th(OH) ₃ CO ₃ ⁻				×	×	×	
Pa	PaO(OH) ₃ (aq)							no electric charge
U	U(OH) ₂ (CO ₃) ₂ ²⁻				×	×	×	
	U(OH) ₄ (aq)							no electric charge
Np	Np(OH) ₂ (CO ₃) ₂ ²⁻				×	×	×	
	Np(OH) ₄ (aq)							no electric charge
Pu	Pu(OH) ₂ (CO ₃) ₂ ²⁻				×	×	×	taken from americium(III)
	Pu(CO ₃) ₂ ⁻				×	×	×	
	Pu(CO ₃) ₃ ³⁻				×	×	×	
	PuCO ₃ ⁺	×	×	×				
Am	Am(CO ₃) ₂ ⁻				×	○	×	
	Am(CO ₃) ₃ ³⁻				×	○	×	
	AmCO ₃ ⁺	○	○	×				
Cm	Cm(CO ₃) ₂ ⁻				×	×	×	taken from americium(III)
	Cm(CO ₃) ₃ ³⁻				×	×	×	
	CmCO ₃ ⁺	×	×	×				

○: selected in the NEA-TDB, ×: not selected in the NEA-TDB

Table 8 Composition of modeled groundwaters ($\text{mol}\cdot\text{kg}^{-1}$)

	FRHP	FRLP	modified FRHP 1*	modified FRHP 2**	MRNP	SRHP	SRLP	modified FRHP 3***
pH	8.46	5.70	8.46	8.46	7.07	7.95	5.96	8.46
E_h	-281mV	-156mV	-281mV	-281mV	-244mV	-303mV	-159mV	-281mV
I_m	4.20×10^{-3}	4.04×10^{-3}	2.00×10^{-2}	2.00×10^{-1}	3.91×10^{-1}	6.34×10^{-1}	6.58×10^{-1}	7.00×10^{-1}
Cl ⁻	1.46×10^{-5}	1.02×10^{-4}	5.68×10^{-3}	1.95×10^{-1}	2.95×10^{-1}	5.90×10^{-1}	5.90×10^{-1}	6.94×10^{-1}
ClO ₄ ⁻	0	0	0	0	0	0	0	0
NO ₃ ⁻	0	0	0	0	0	0	0	0
Li ⁺	-	-	0	0	-	-	-	0
Na ⁺	3.53×10^{-3}	3.47×10^{-3}	9.32×10^{-3}	1.99×10^{-1}	3.04×10^{-1}	6.17×10^{-1}	5.01×10^{-1}	6.99×10^{-1}
K ⁺	6.15×10^{-5}	5.99×10^{-5}	6.15×10^{-5}	6.15×10^{-5}	7.99×10^{-2}	1.06×10^{-2}	1.09×10^{-2}	6.15×10^{-5}

* FRHP adjusting I_m to 0.02 $\text{mol}\cdot\text{kg}^{-1}$ ** FRHP adjusting I_m to 0.1 $\text{mol}\cdot\text{kg}^{-1}$ *** FRHP adjusting I_m to 0.7 $\text{mol}\cdot\text{kg}^{-1}$

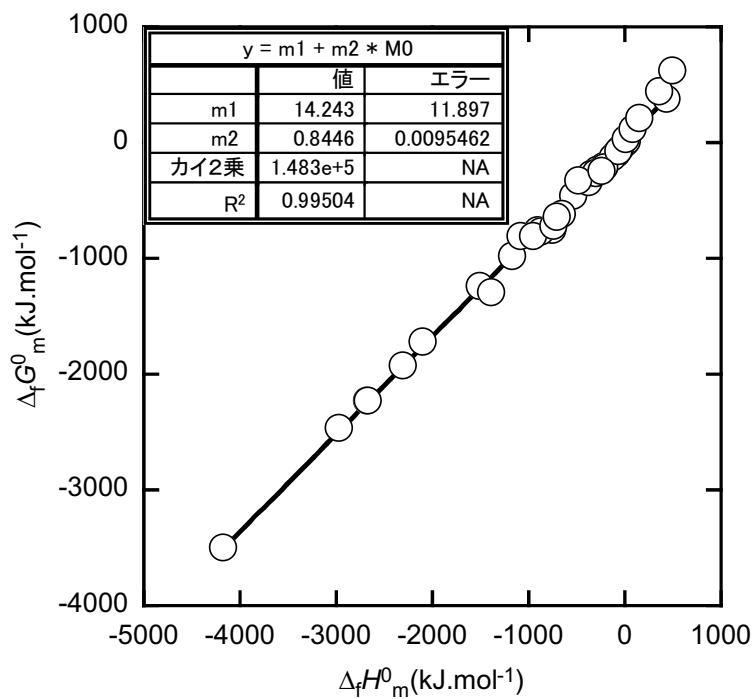


Figure 1 Correlation between $\Delta_f G_m^{\circ}$ and $\Delta_f H_m^{\circ}$ for nickel (group 1) and its least-squares regression result

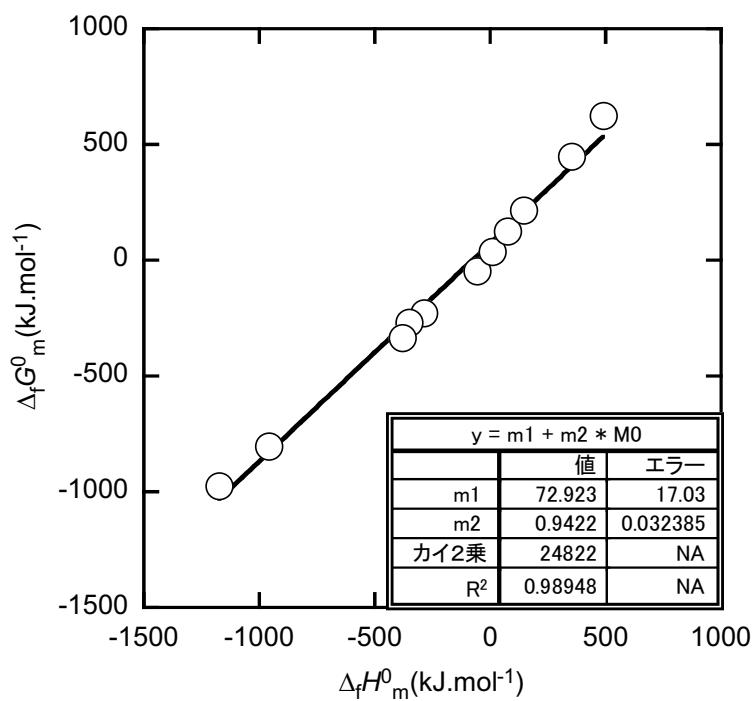


Figure 2 Correlation between $\Delta_f G_m^{\circ}$ and $\Delta_f H_m^{\circ}$ for nickel (group 2) and its least-squares regression result

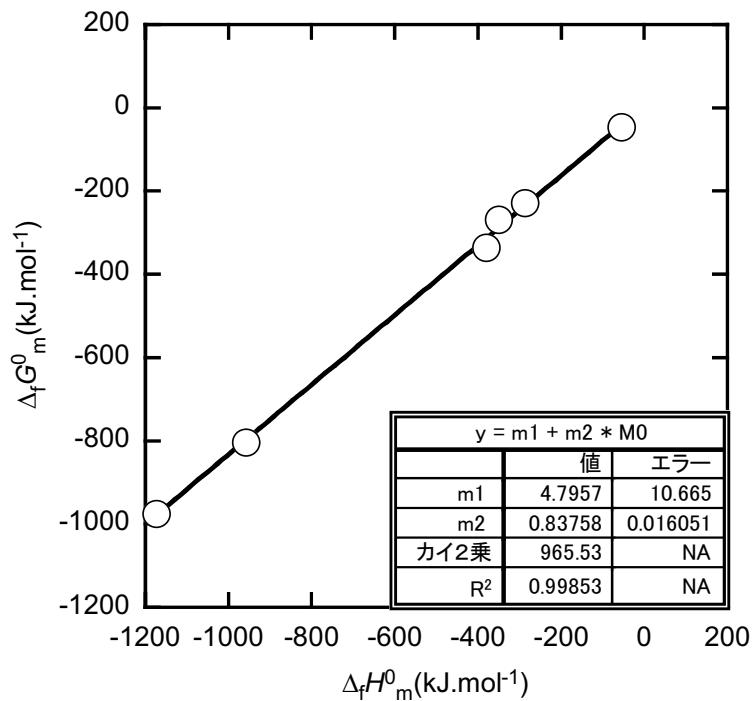


Figure 3 Correlation between $\Delta_f G_m^{\circ}$ and $\Delta_f H_m^{\circ}$ for nickel (group 3) and its least-squares regression result

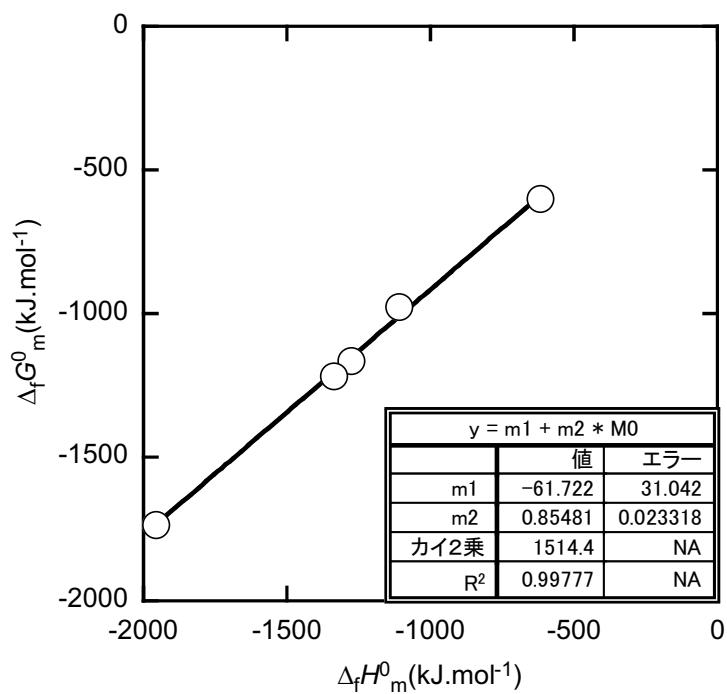


Figure 4 Correlation between $\Delta_f G_m^{\circ}$ and $\Delta_f H_m^{\circ}$ for americium(III) and its least-squares regression result

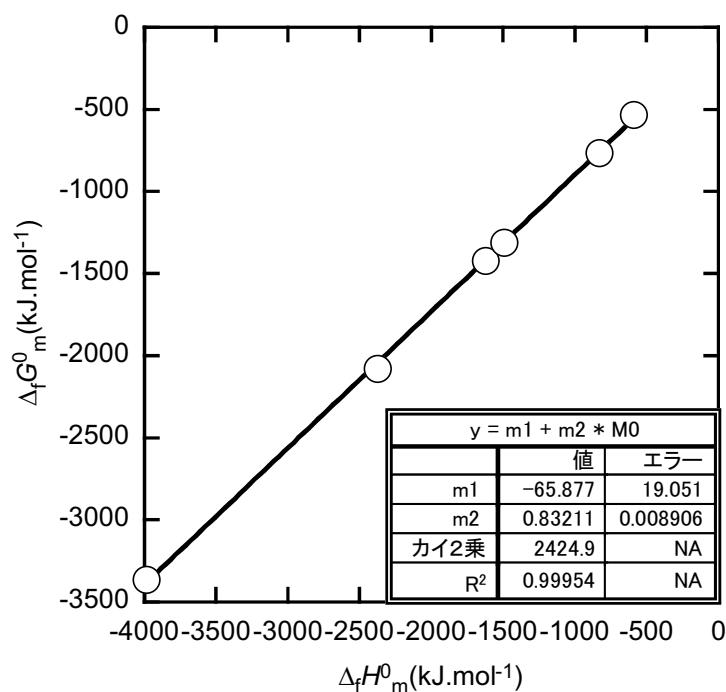


Figure 5 Correlation between $\Delta_f G_m^\circ$ and $\Delta_f H_m^\circ$ for uranium(IV) and its least-squares regression result

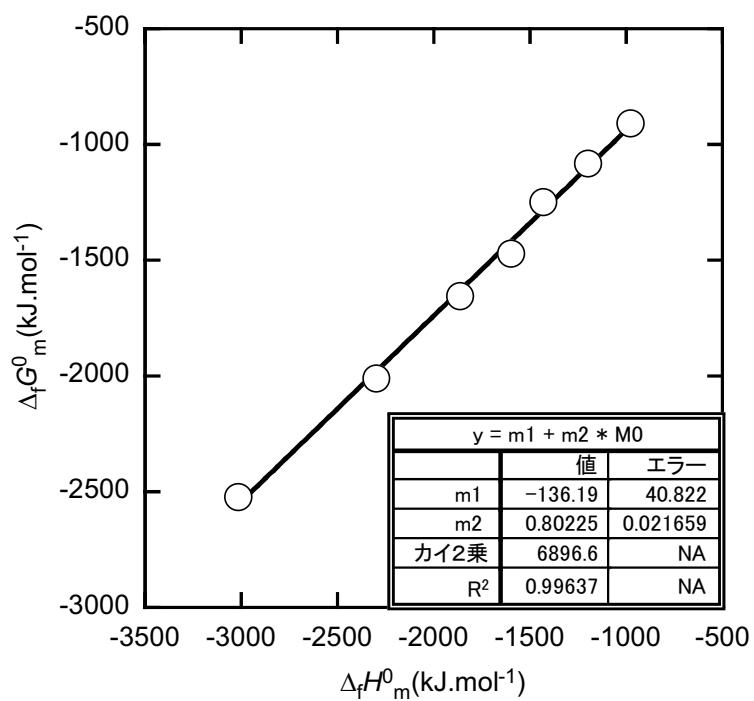


Figure 6 Correlation between $\Delta_f G_m^\circ$ and $\Delta_f H_m^\circ$ for neptunium(V) and its least-squares regression result

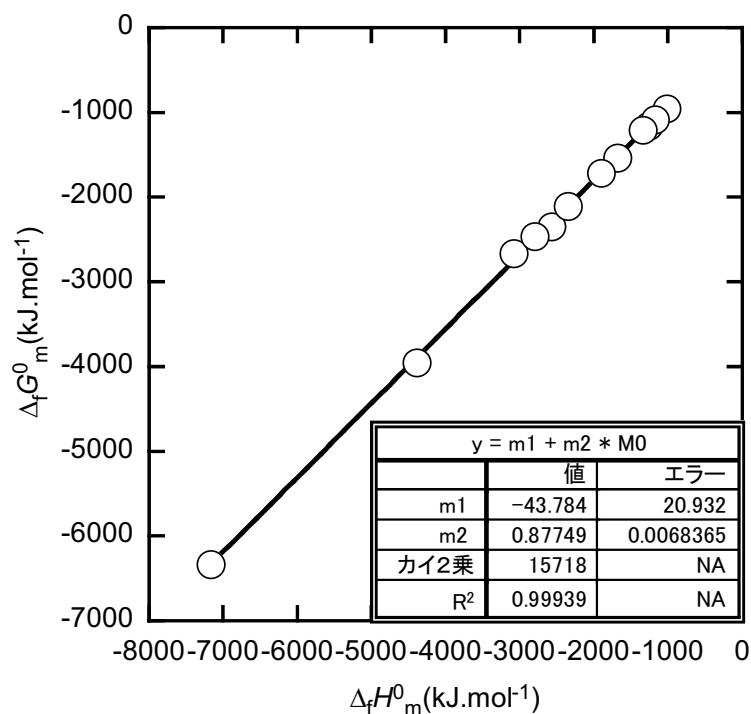


Figure 7 Correlation between $\Delta_f G_m^{\circ}$ and $\Delta_f H_m^{\circ}$ for uranium(VI) and its least-squares regression result

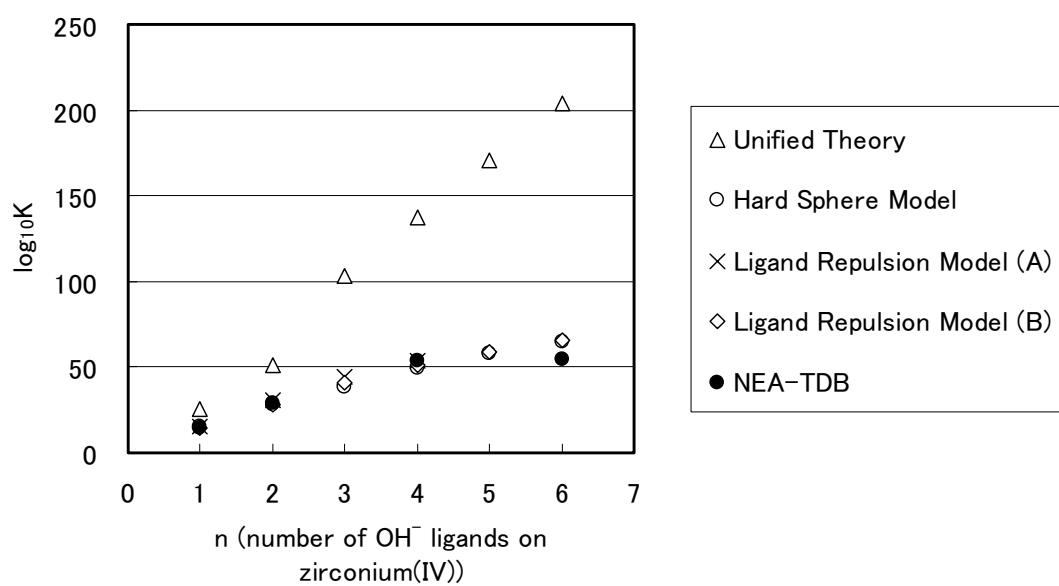


Figure 8 Estimated hydrolysis constants of zirconium(IV) compared with the NEA-TDB

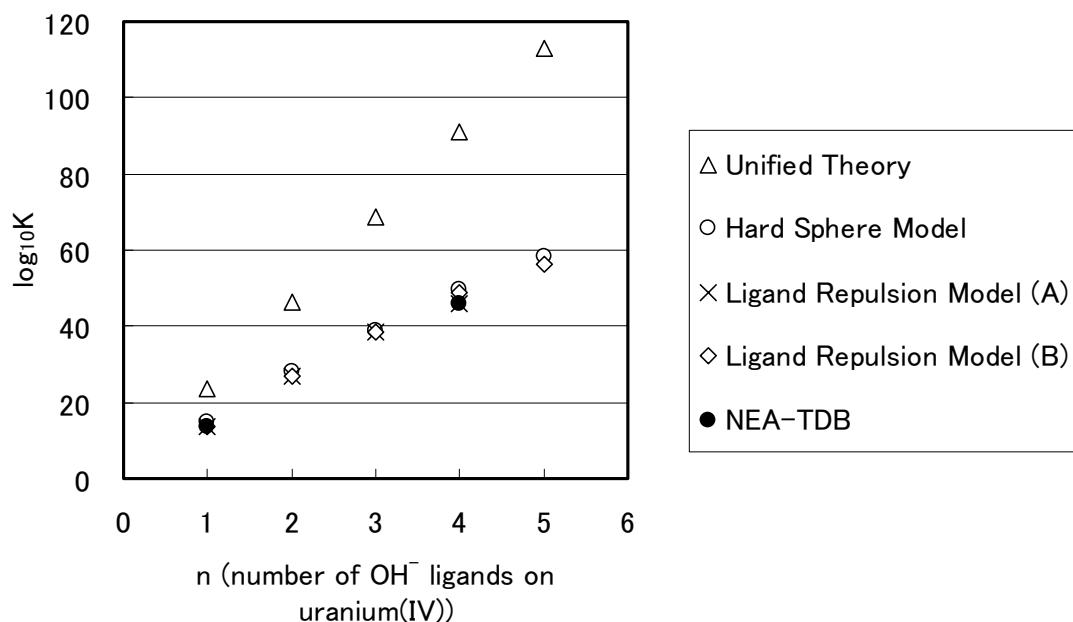


Figure 9 Estimated hydrolysis constants of uranium(IV) compared with the NEA-TDB

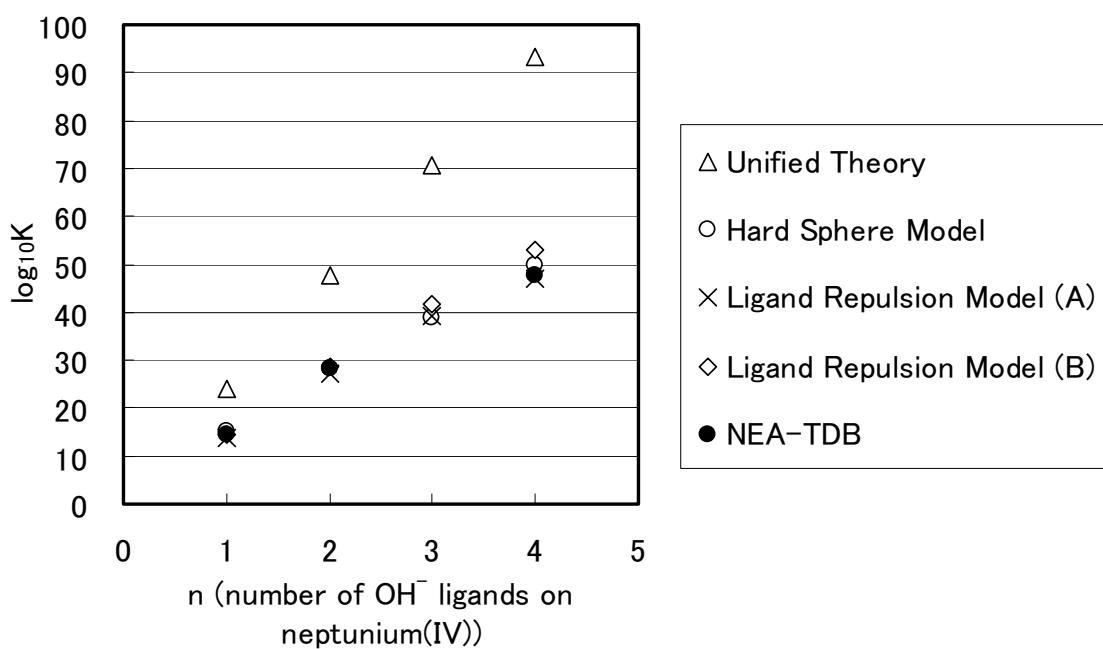


Figure 10 Estimated hydrolysis constants of neptunium(IV) compared with the NEA-TDB

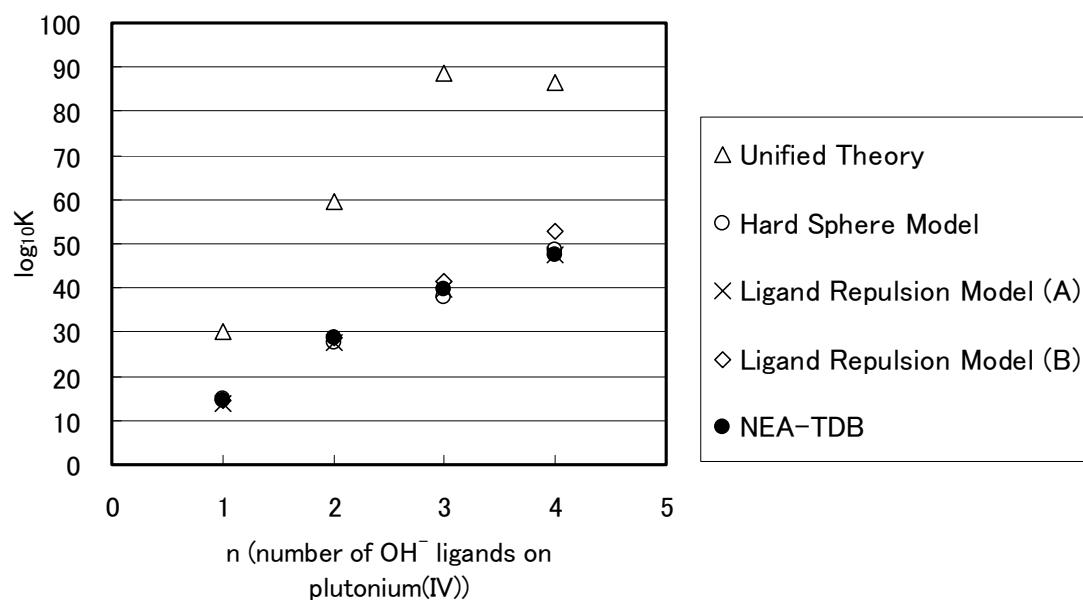


Figure 11 Estimated hydrolysis constants of plutonium(IV) compared with the NEA-TDB

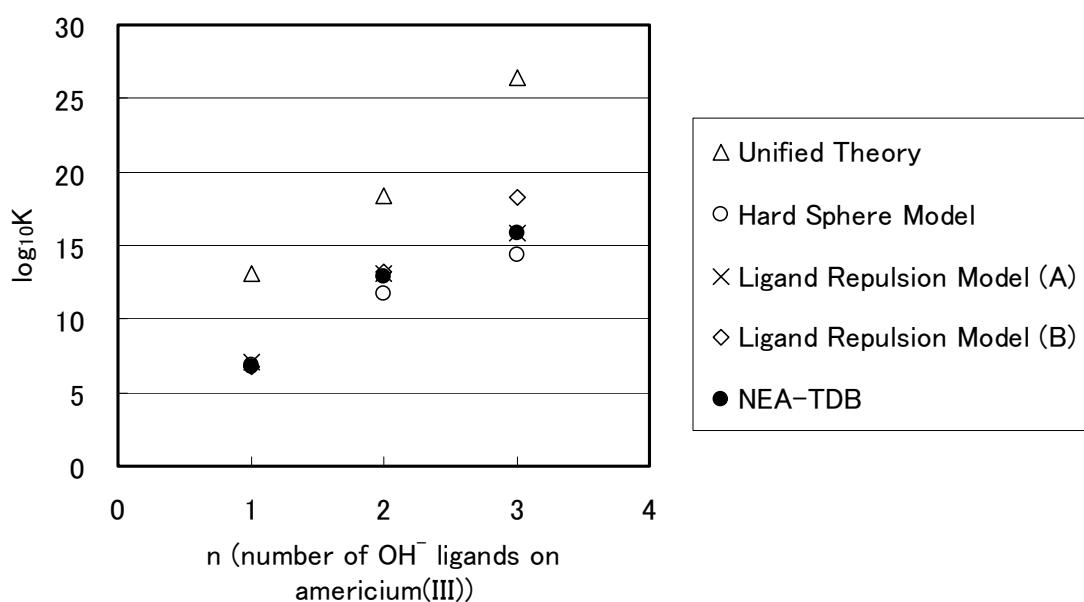


Figure 12 Estimated hydrolysis constants of americium(III) compared with the NEA-TDB

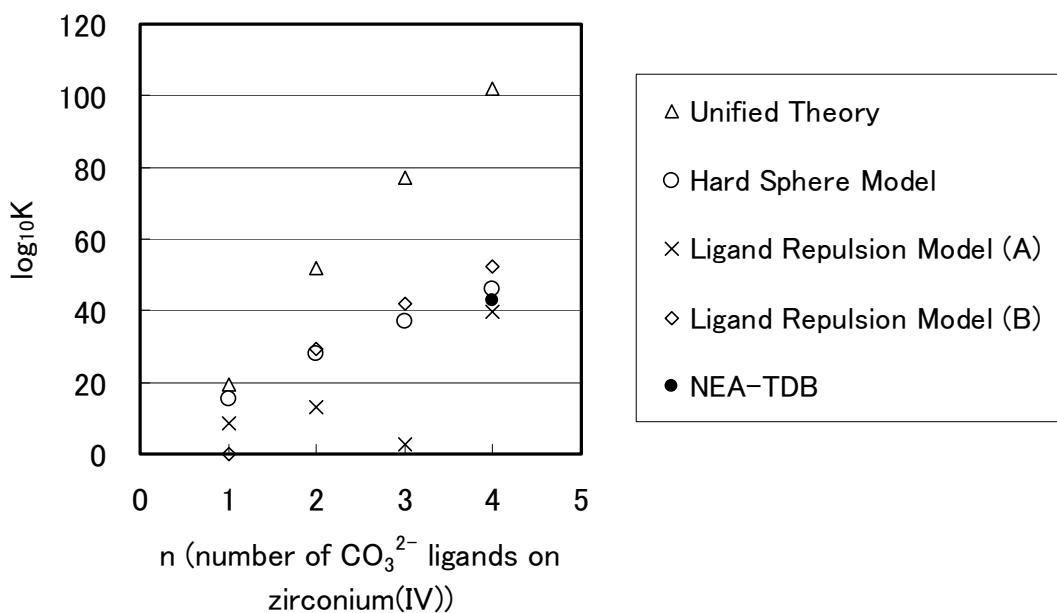


Figure 13 Estimated formation constants of zirconium(IV) carbonate complexes compared with the NEA-TDB

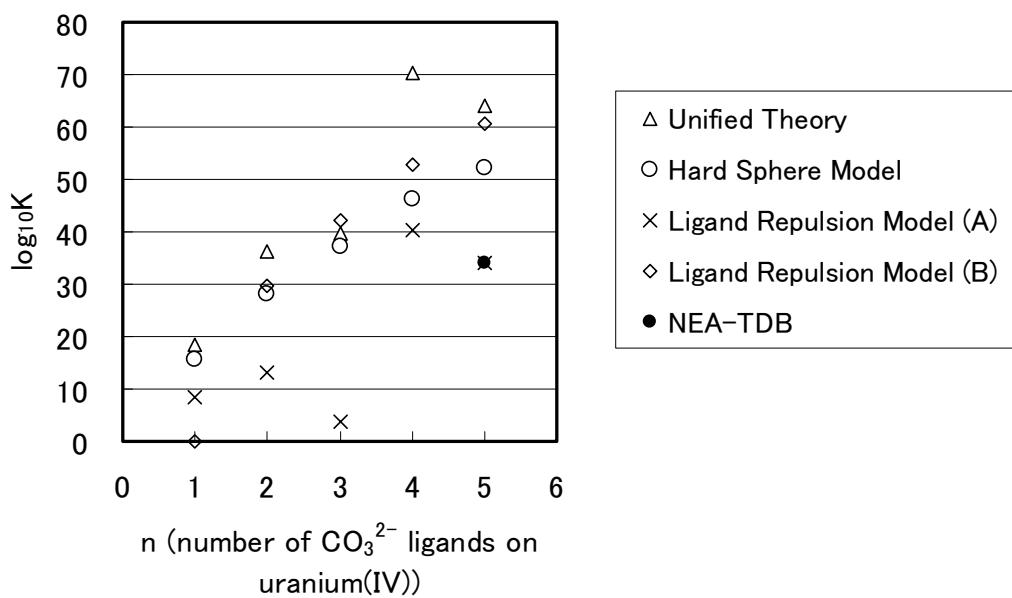


Figure 14 Estimated formation constants of uranium(IV) carbonate complexes compared with the NEA-TDB

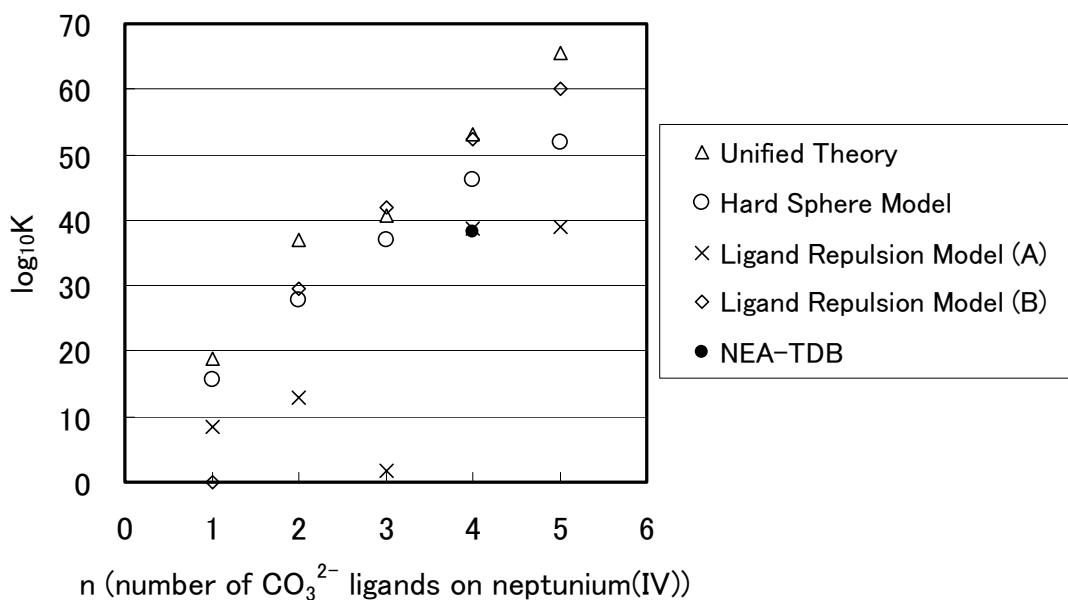


Figure 15 Estimated formation constants of neptunium(IV) carbonate complexes compared with the NEA-TDB

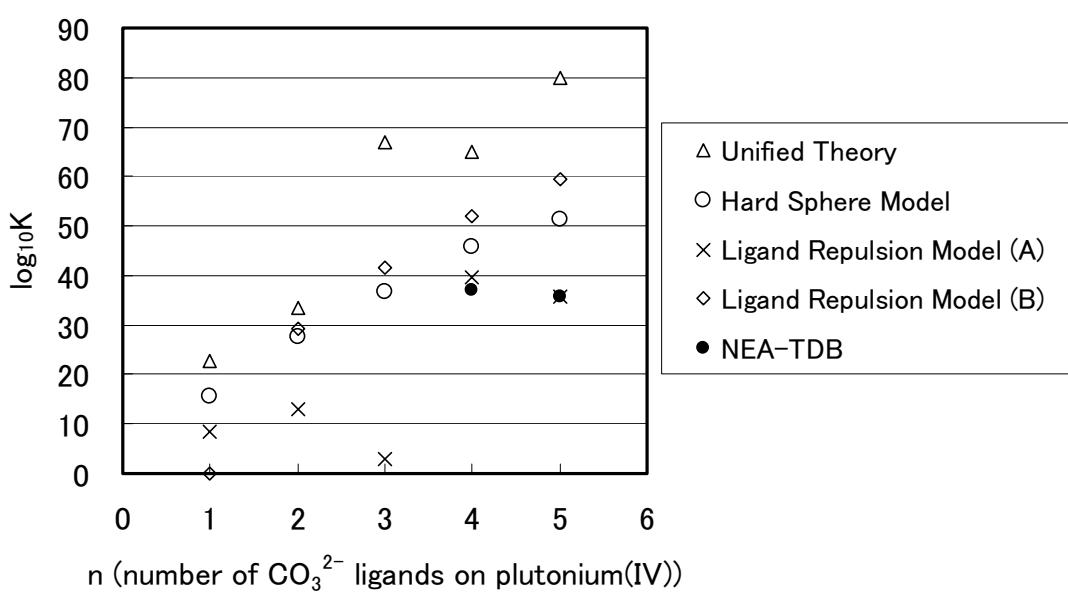


Figure 16 Estimated formation constants of plutonium(IV) carbonate complexes compared with the NEA-TDB

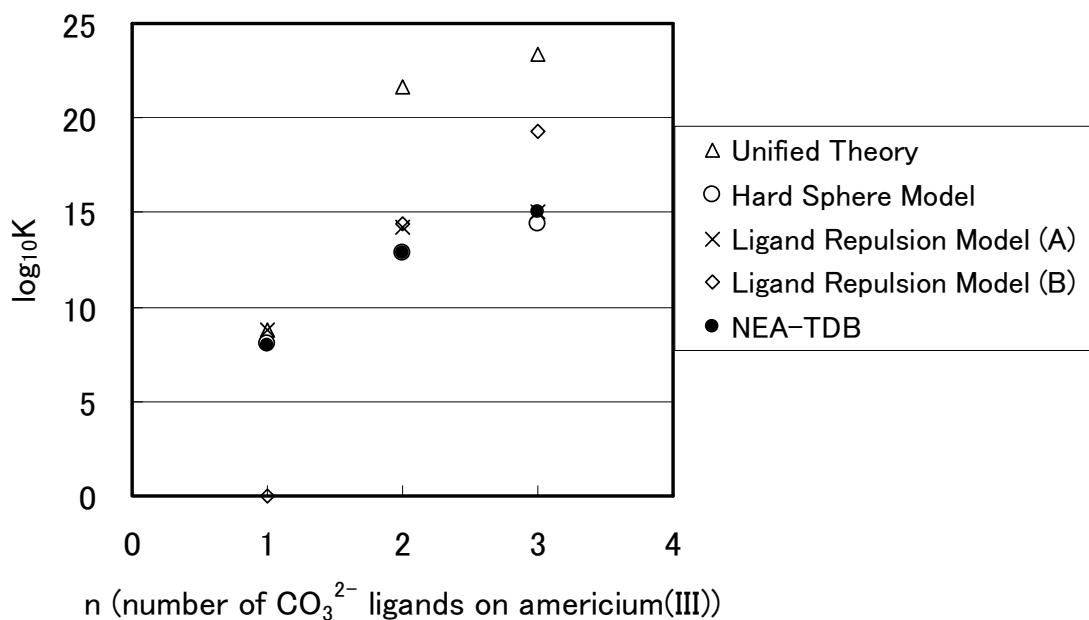


Figure 17 Estimated formation constants of americium(III) carbonate complexes compared with the NEA-TDB

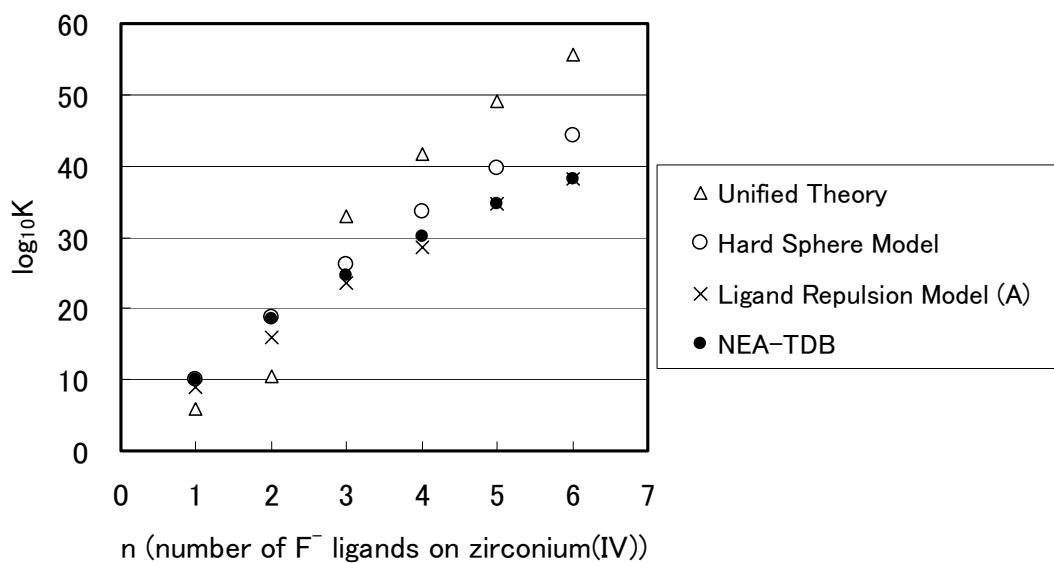


Figure 18 Estimated formation constants of zirconium(IV) fluoride complexes compared with the NEA-TDB

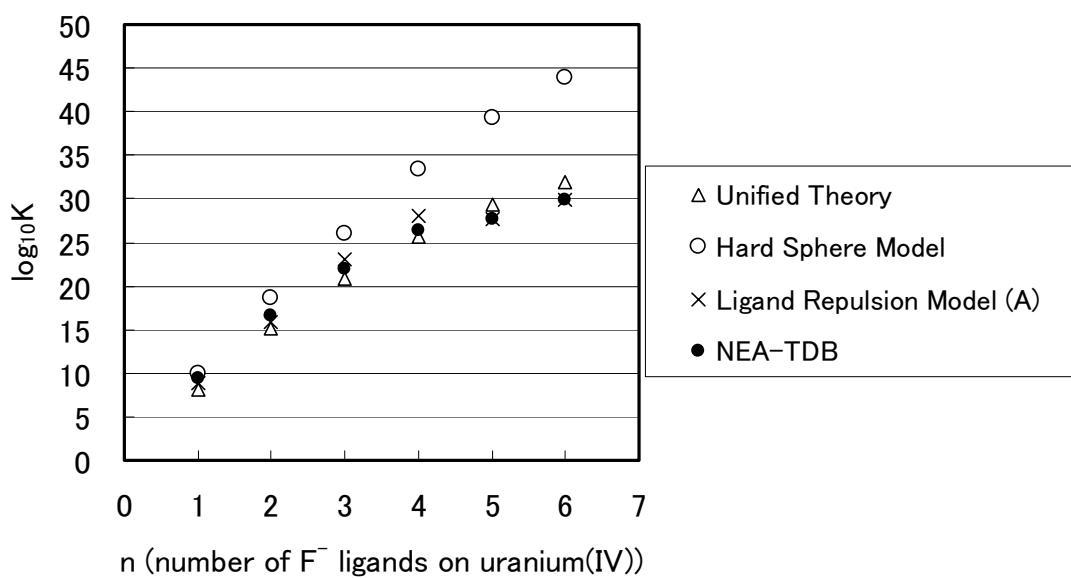


Figure 19 Estimated formation constants of uranium(IV) fluoride complexes compared with the NEA-TDB

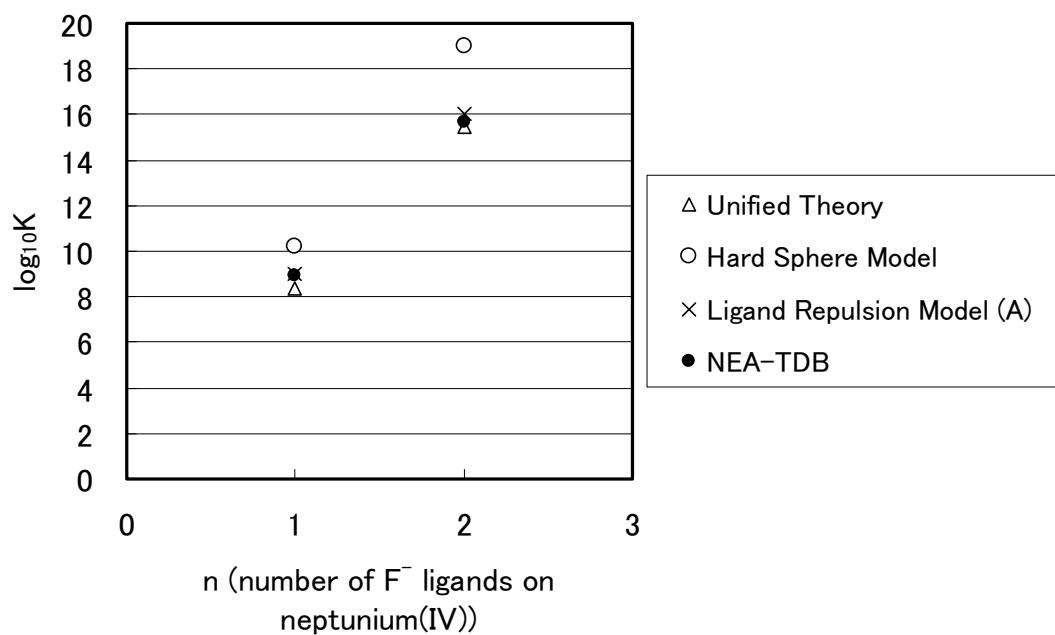


Figure 20 Estimated formation constants of neptunium(IV) fluoride complexes compared with the NEA-TDB

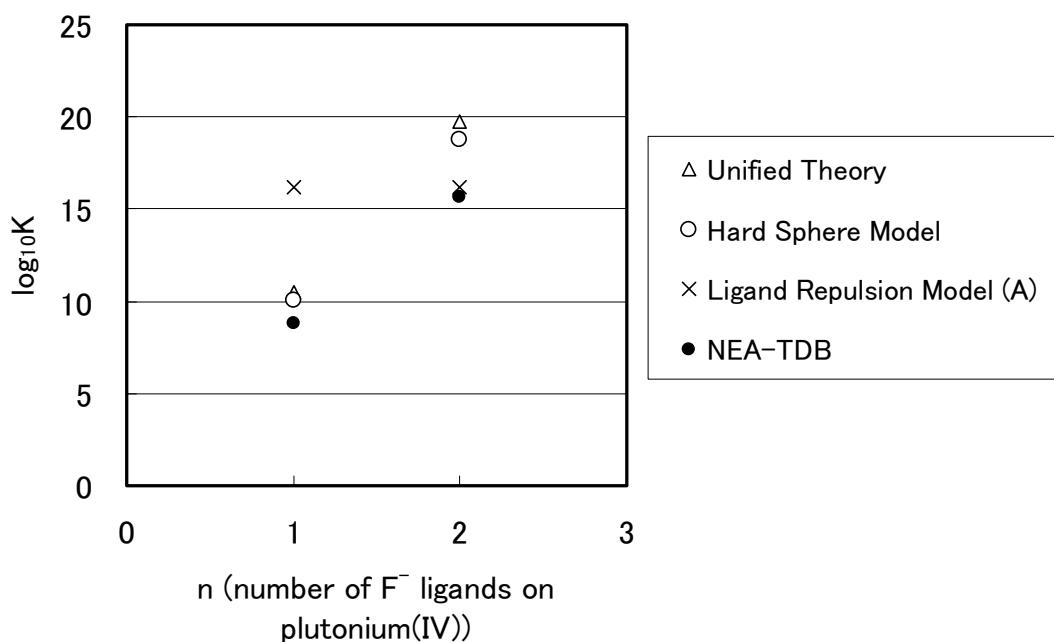


Figure 21 Estimated formation constants of plutonium(IV) fluoride complexes compared with the NEA-TDB

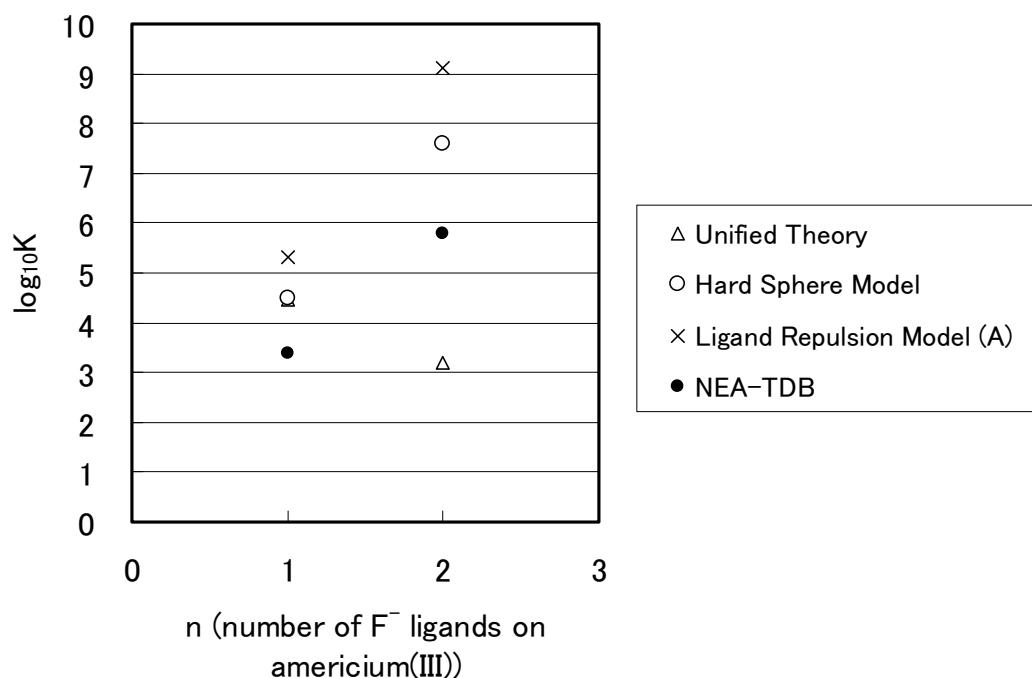


Figure 22 Estimated formation constants of americium(III) fluoride complexes compared with the NEA-TDB

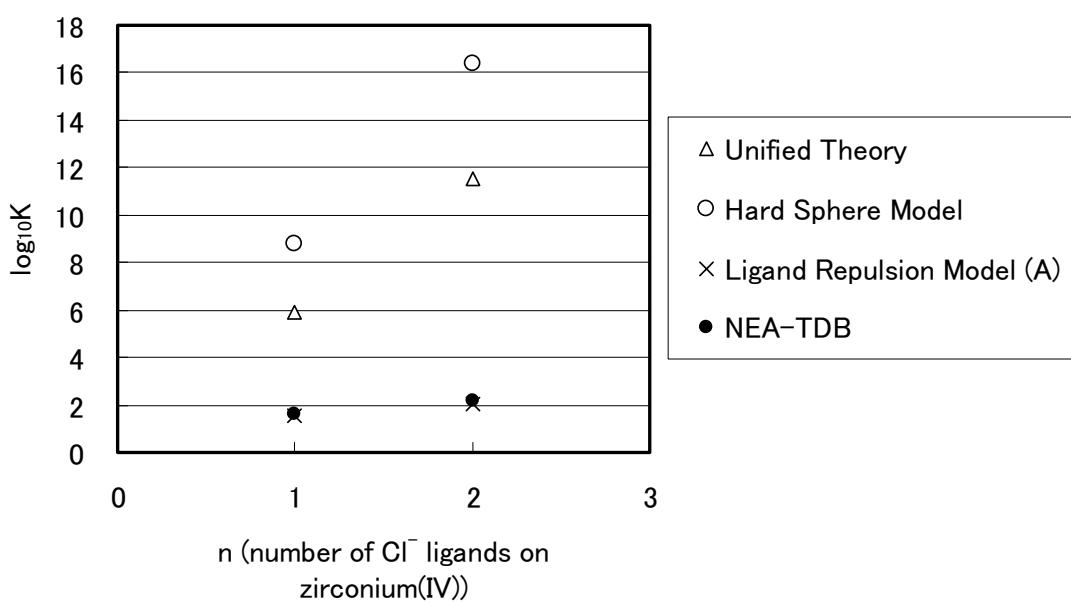


Figure 23 Estimated formation constants of zirconium(IV) chloride complexes compared with the NEA-TDB

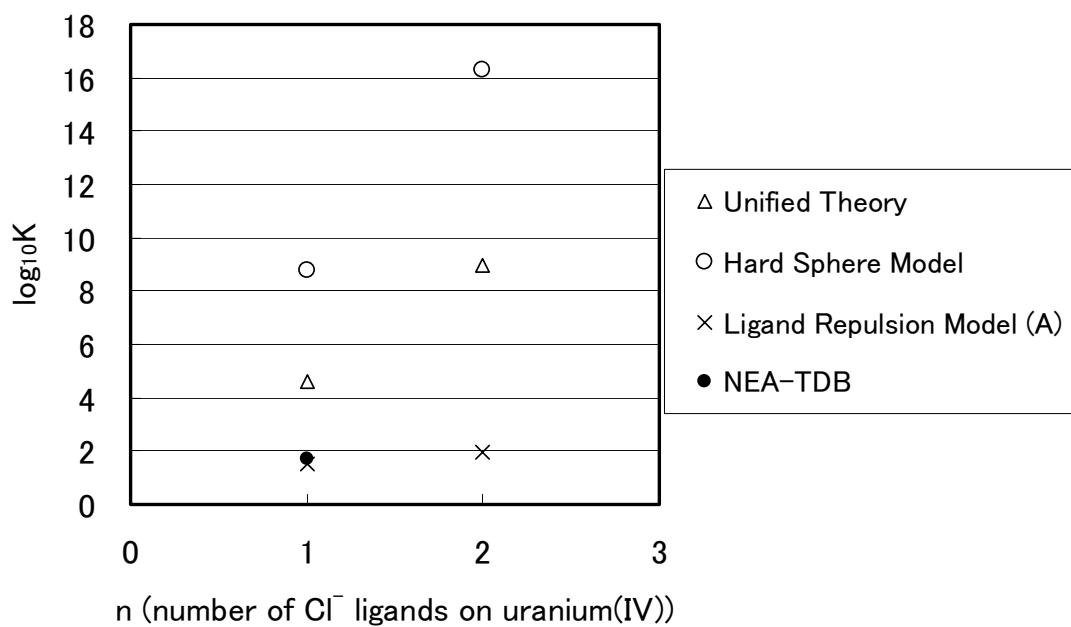


Figure 24 Estimated formation constants of uranium(IV) chloride complexes compared with the NEA-TDB

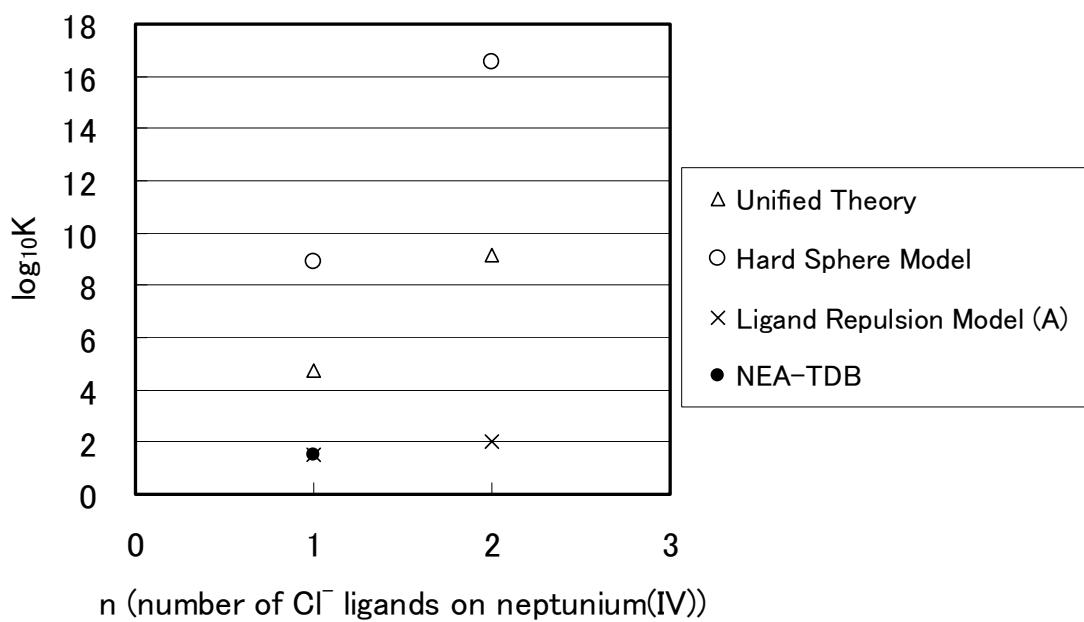


Figure 25 Estimated formation constants of neptunium(IV) chloride complexes compared with the NEA-TDB

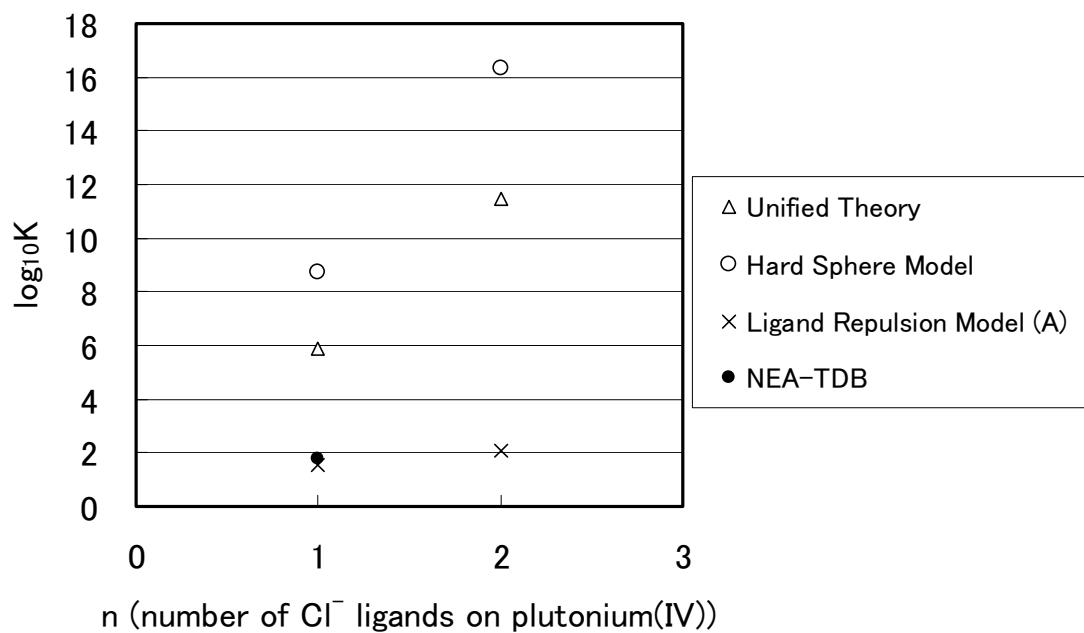


Figure 26 Estimated formation constants of plutonium(IV) chloride complexes compared with the NEA-TDB

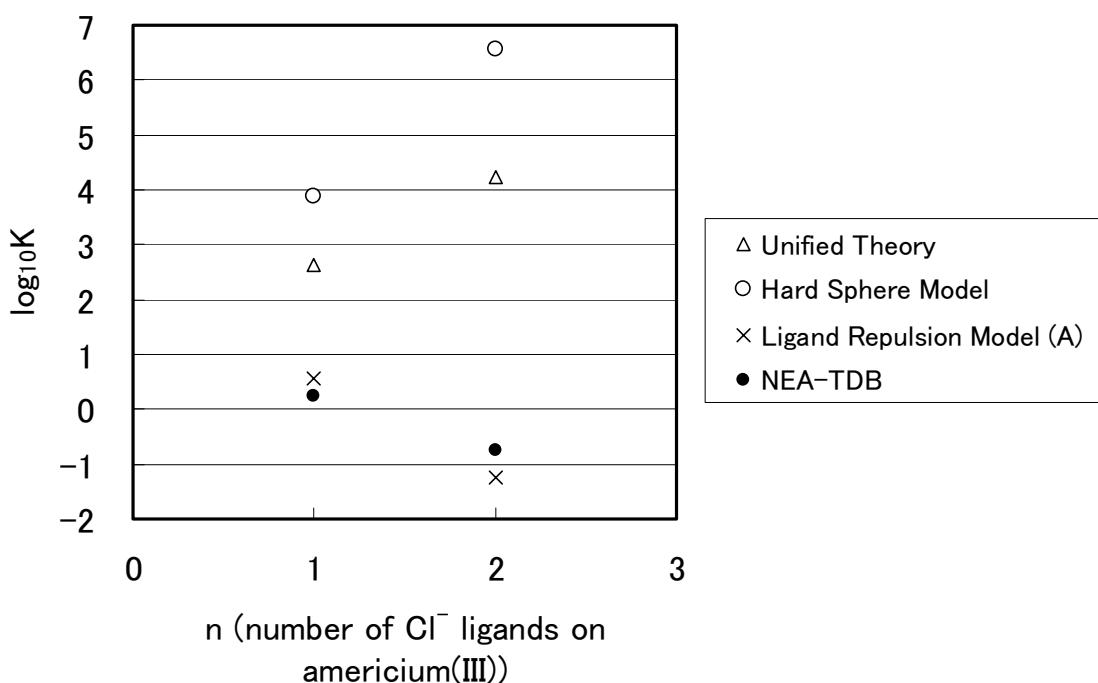


Figure 27 Estimated formation constants of americium(III) chloride complexes compared with the NEA-TDB

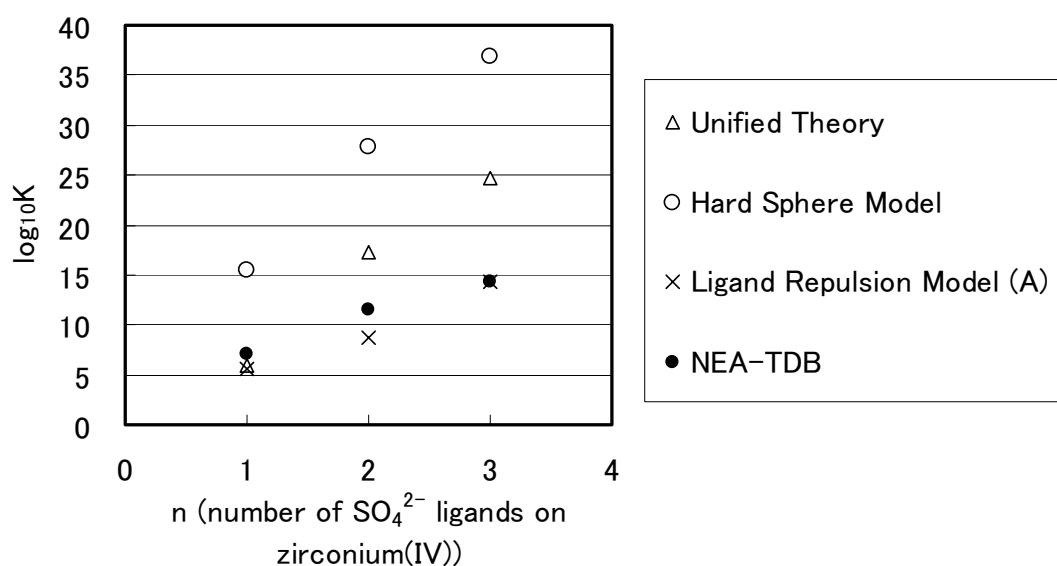


Figure 28 Estimated formation constants of zirconium(IV) sulfate complexes compared with the NEA-TDB

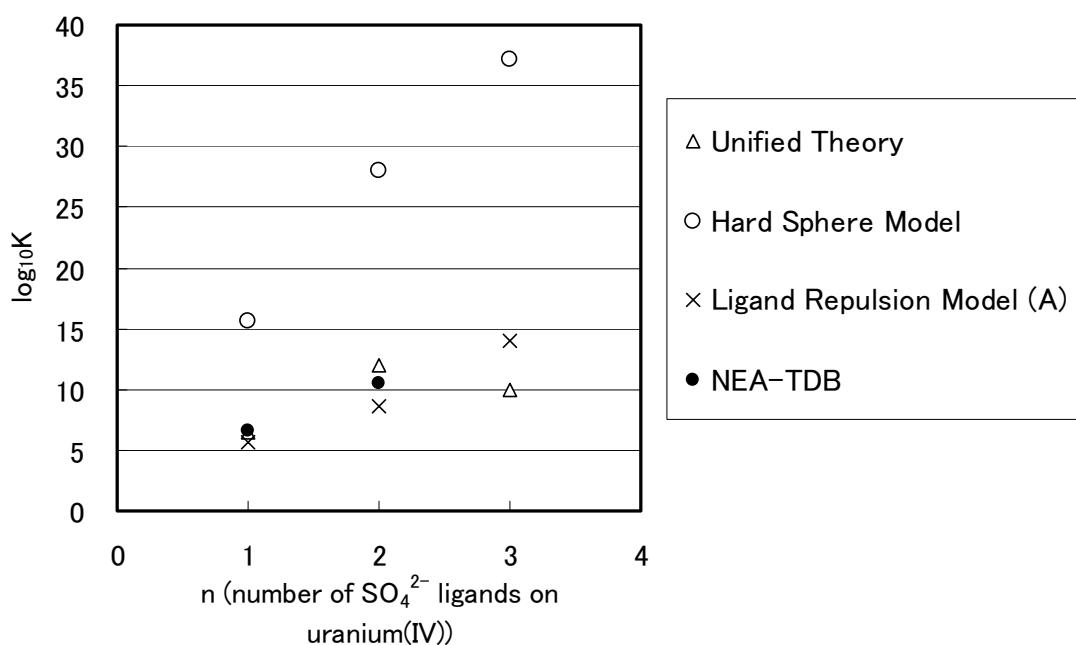


Figure 29 Estimated formation constants of uranium(IV) sulfate complexes compared with the NEA-TDB

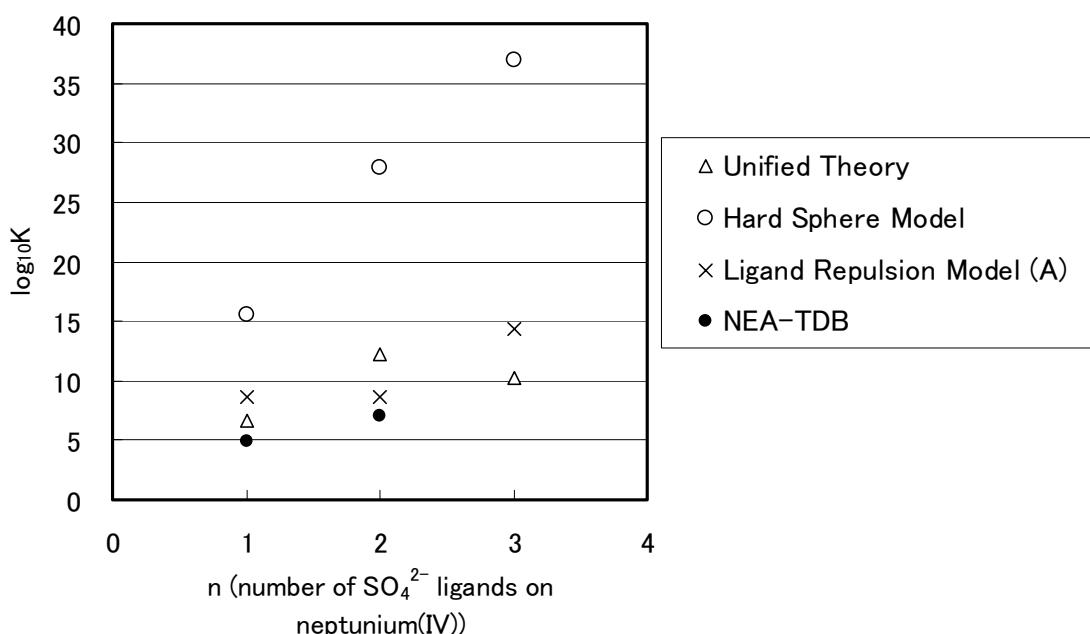


Figure 30 Estimated formation constants of neptunium(IV) sulfate complexes compared with the NEA-TDB

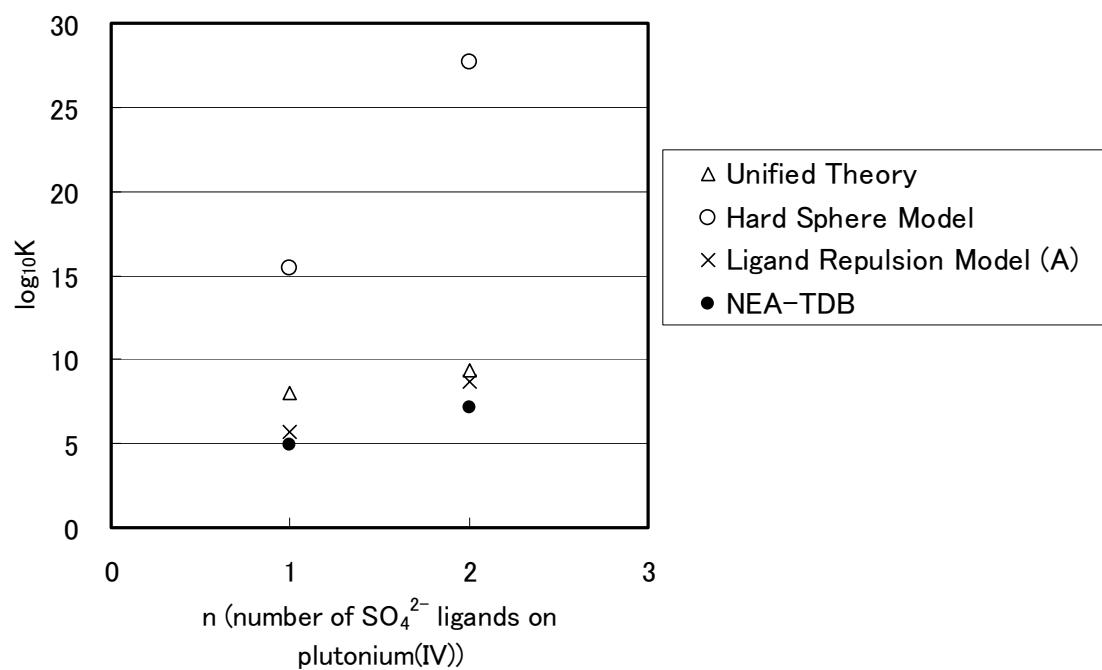


Figure 31 Estimated formation constants of plutonium(IV) sulfate complexes compared with the NEA-TDB

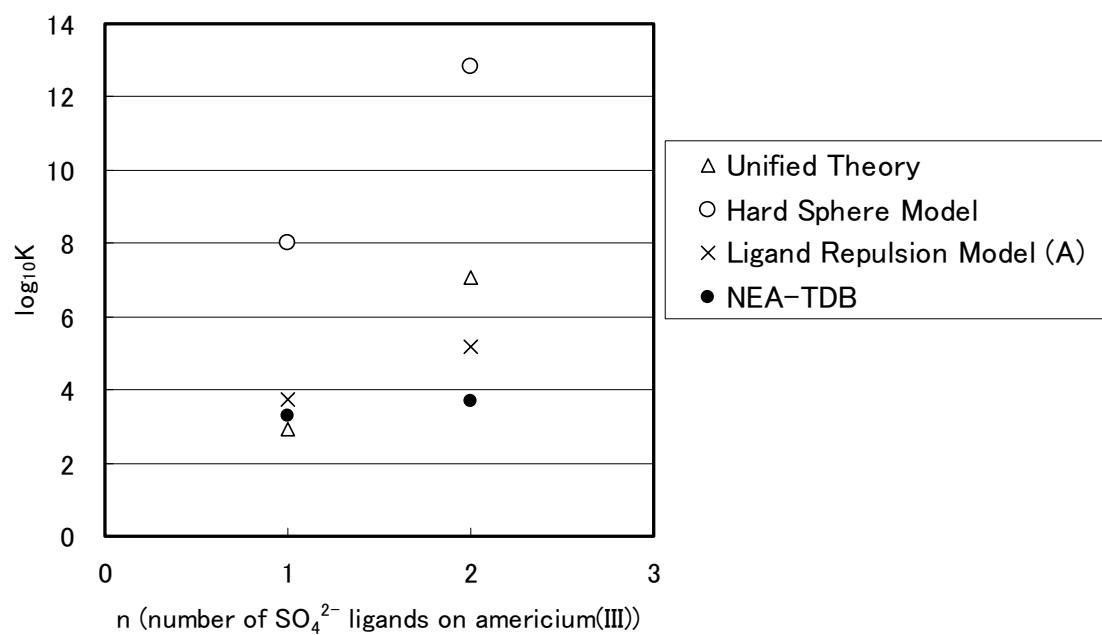


Figure 32 Estimated formation constants of americium(III) sulfate complexes compared with the NEA-TDB

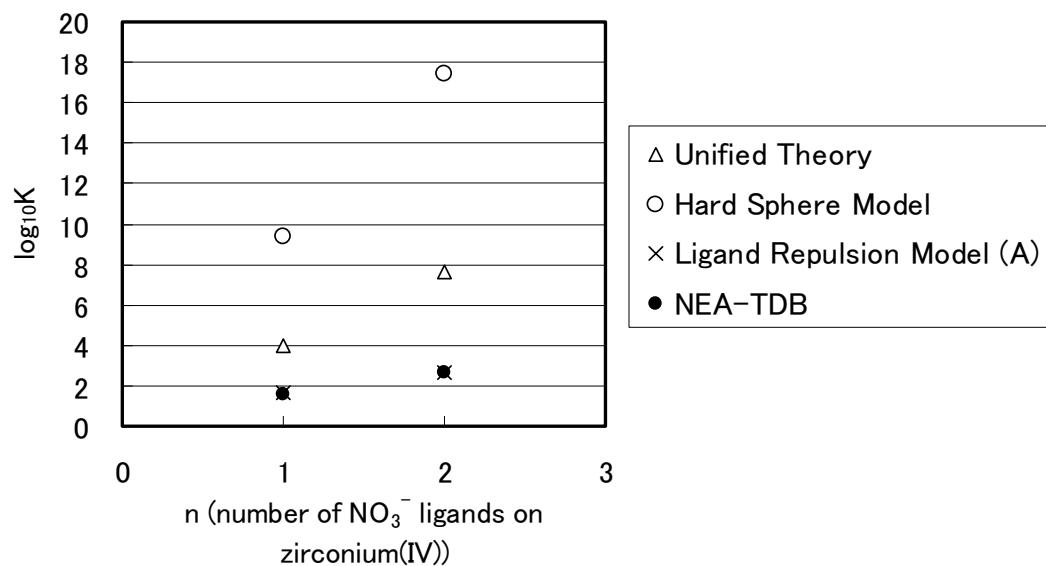


Figure 33 Estimated formation constants of zirconium(IV) nitrate complexes compared with the NEA-TDB

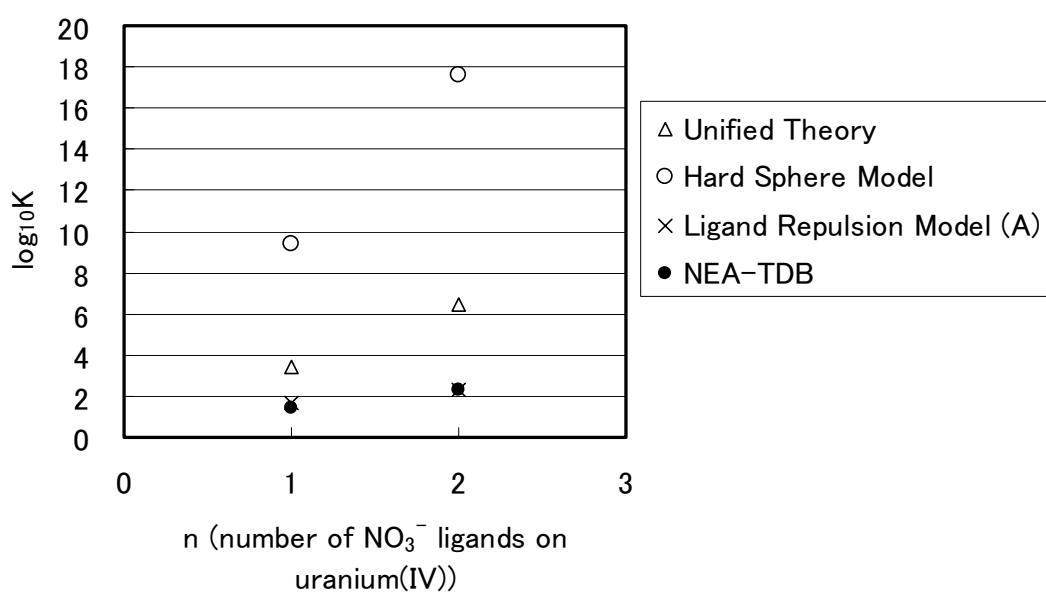


Figure 34 Estimated formation constants of uranium(IV) nitrate complexes compared with the NEA-TDB

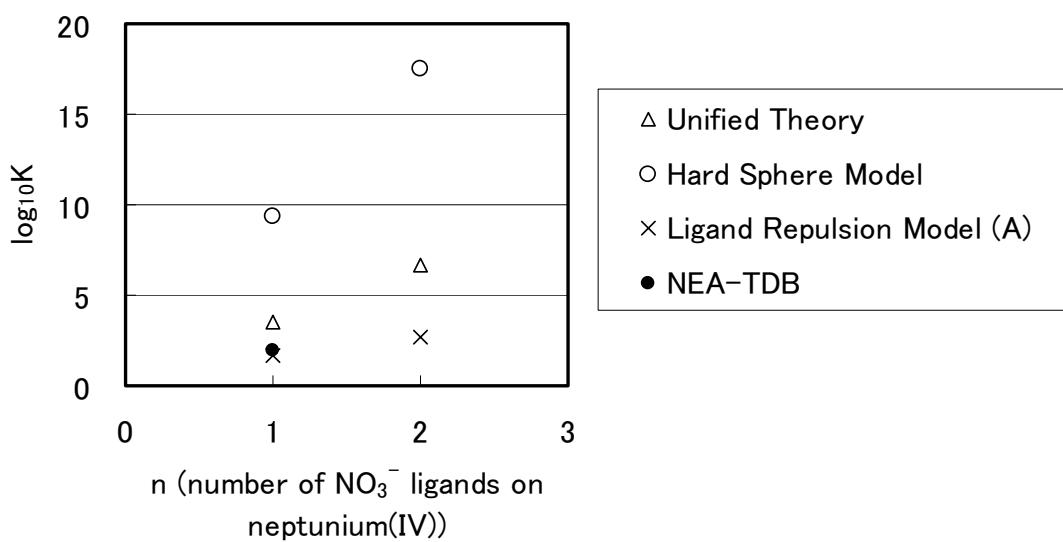


Figure 35 Estimated formation constants of neptunium(IV) nitrate complexes compared with the NEA-TDB

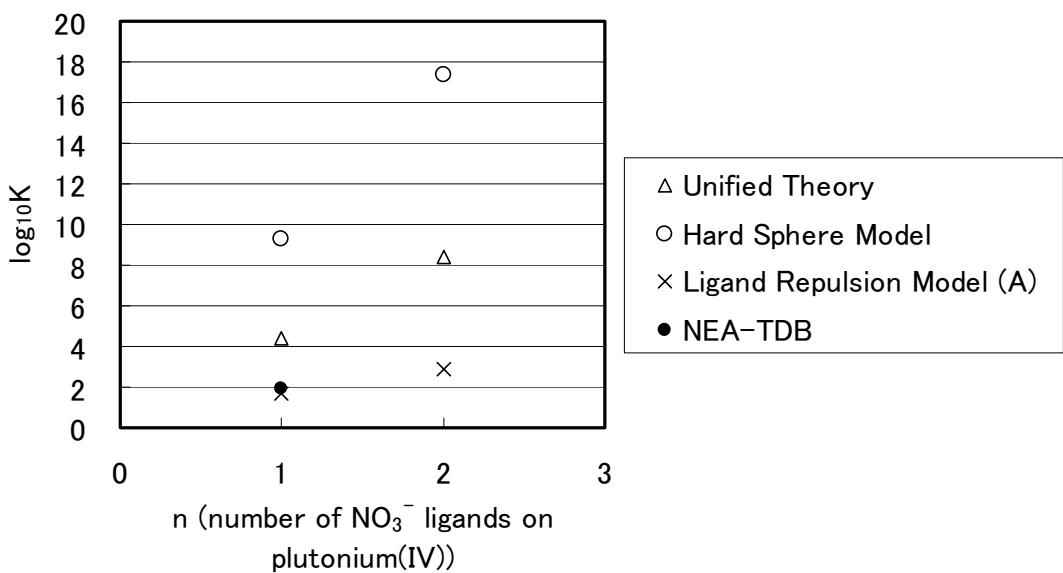


Figure 36 Estimated formation constants of plutonium(IV) nitrate complexes compared with the NEA-TDB

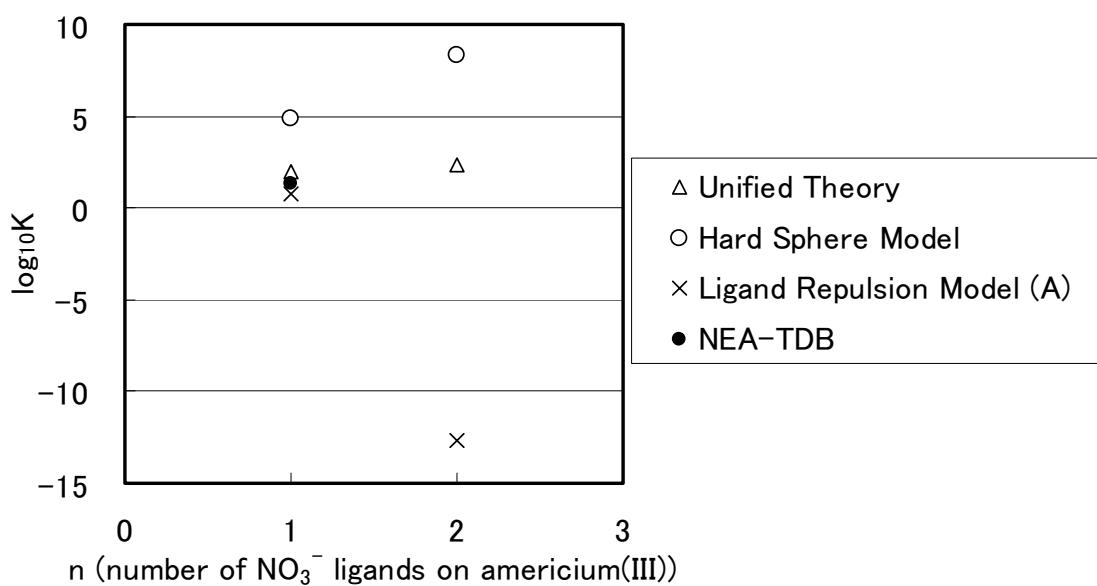


Figure 37 Estimated formation constants of americium(III) nitrate complexes compared with the NEA-TDB

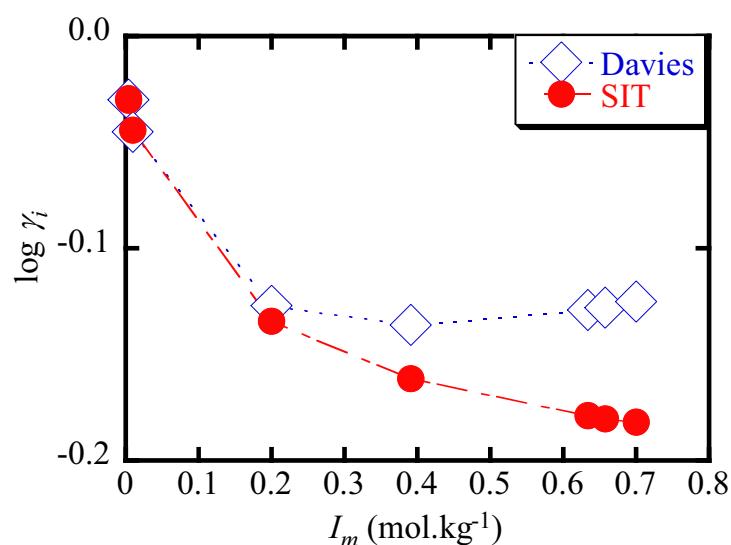


Figure 38 Activity coefficient for the AmCO_3^+ group estimated from the Davies model and the SIT

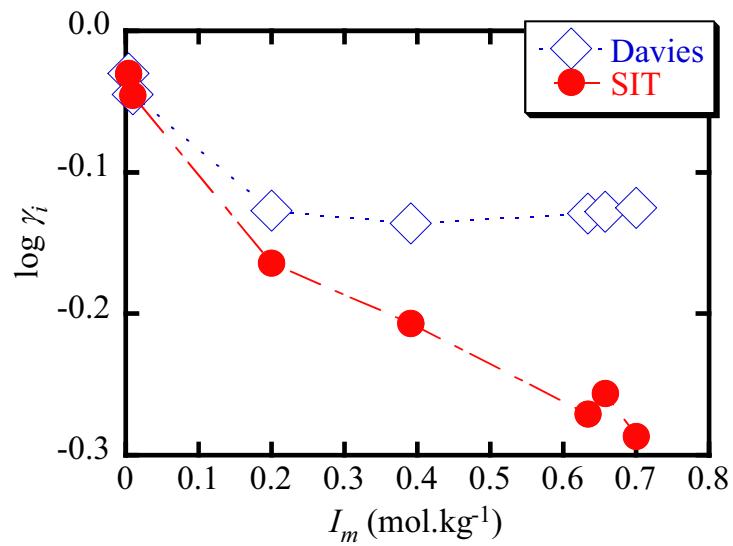


Figure 39 Activity coefficient for the $\text{Am}(\text{CO}_3)_2^-$ group estimated from the Davies model and the SIT

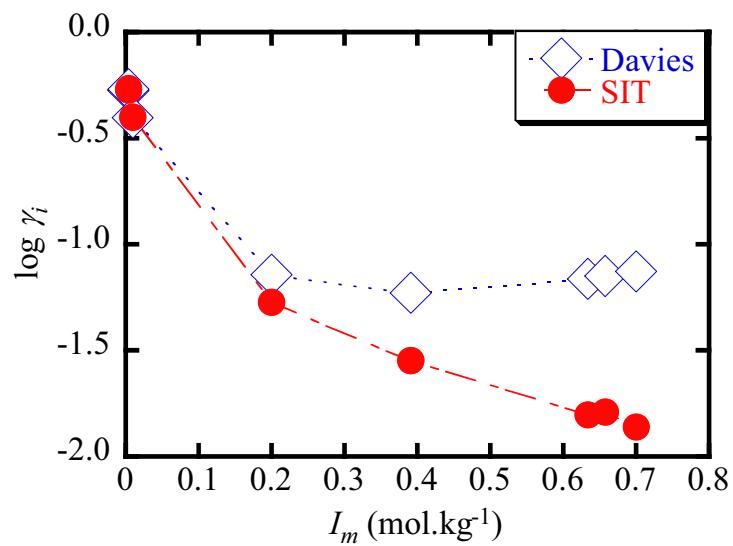


Figure 40 Activity coefficient for the $\text{Am}(\text{CO}_3)_3^{3-}$ group estimated from the Davies model and the SIT

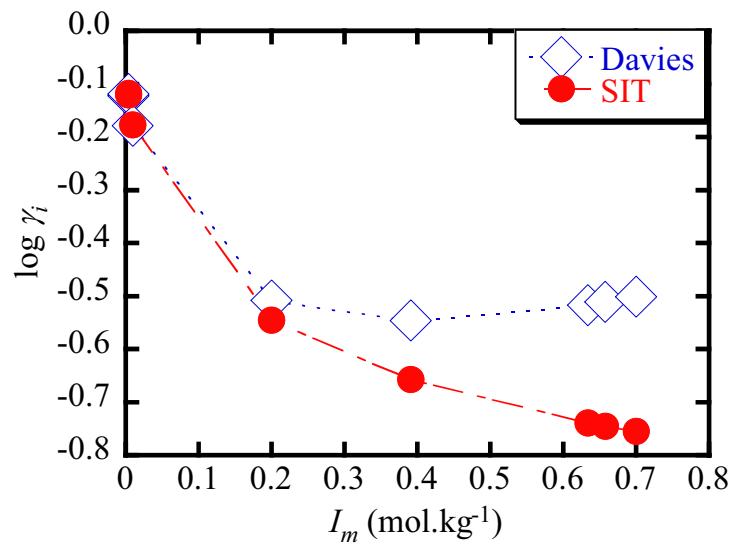


Figure 41 Activity coefficient for a group with net charge of +2 estimated from the Davies model and the SIT

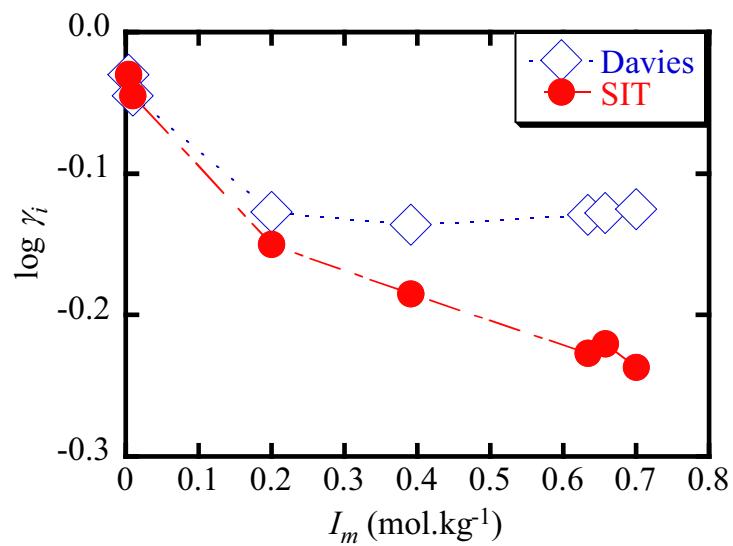


Figure 42 Activity coefficient for a group with net charge of -1 estimated from the Davies model and the SIT

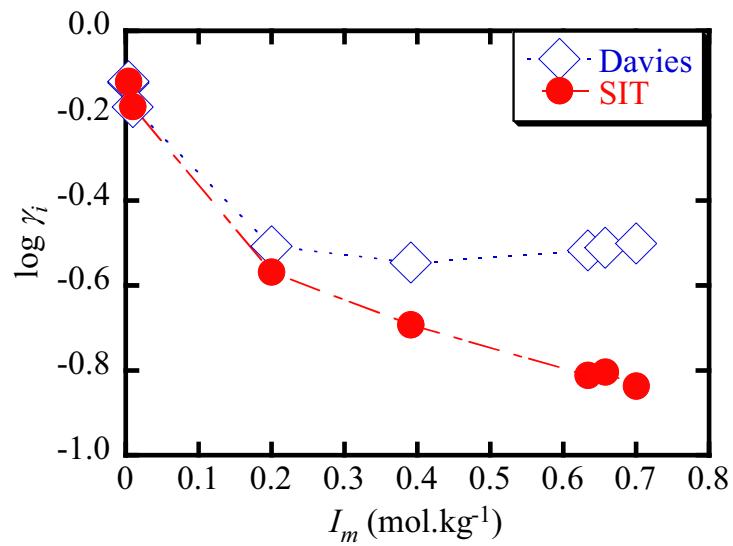


Figure 43 Activity coefficient for a group with net charge of -2 estimated from the Davies model and the SIT

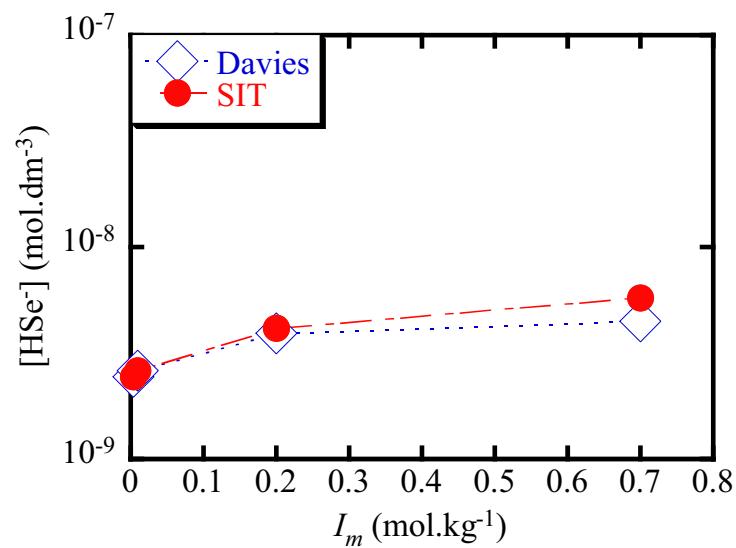


Figure 44 Estimated solubility of HSe⁻ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

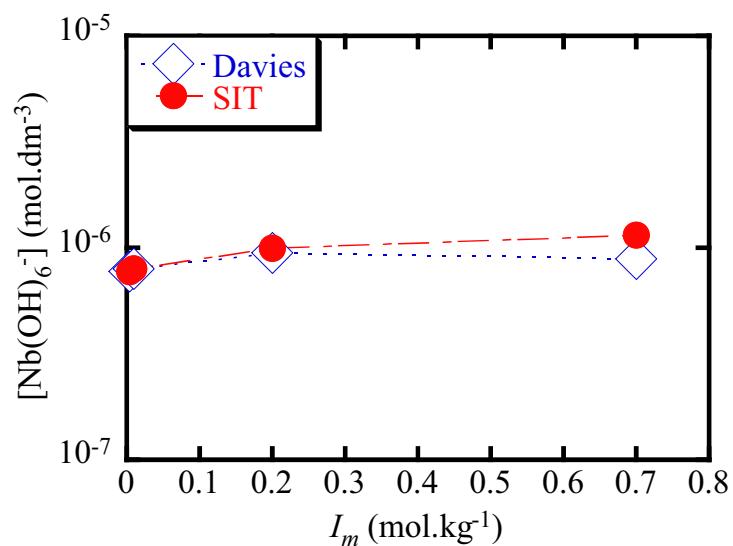


Figure 45 Estimated solubility of $\text{Nb}(\text{OH})_6^-$ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

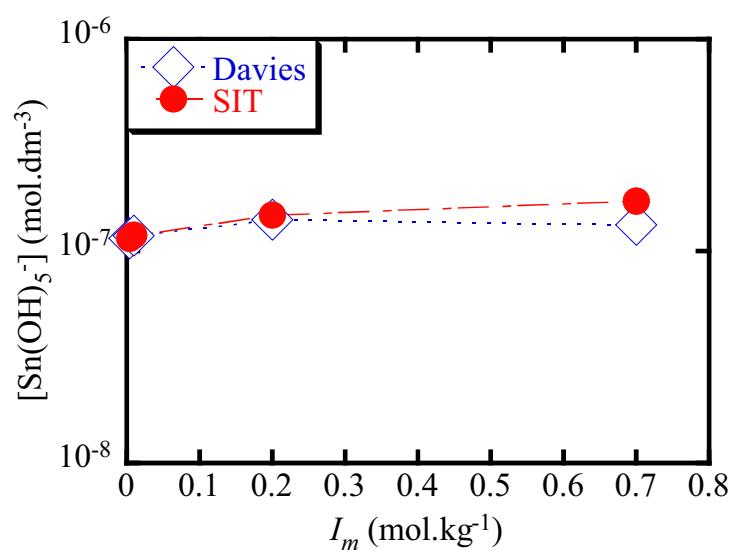


Figure 46 Estimated solubility of $\text{Sn}(\text{OH})_5^-$ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

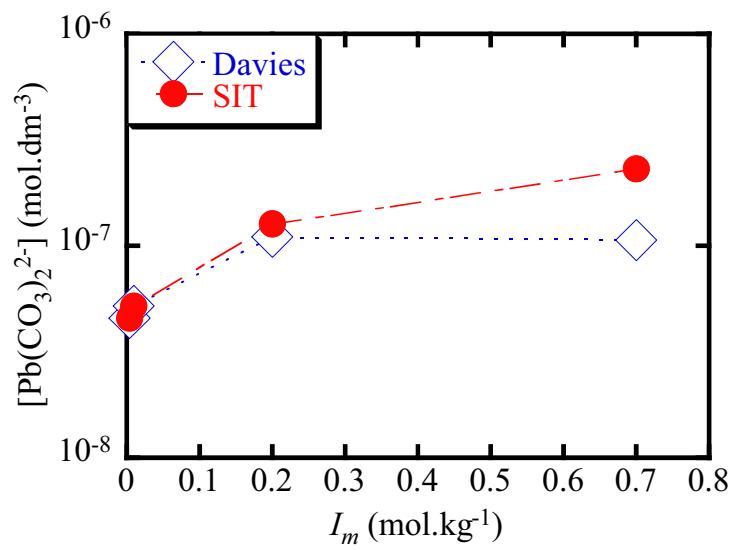


Figure 47 Estimated solubility of $\text{Pb}(\text{CO}_3)_2^{2-}$ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

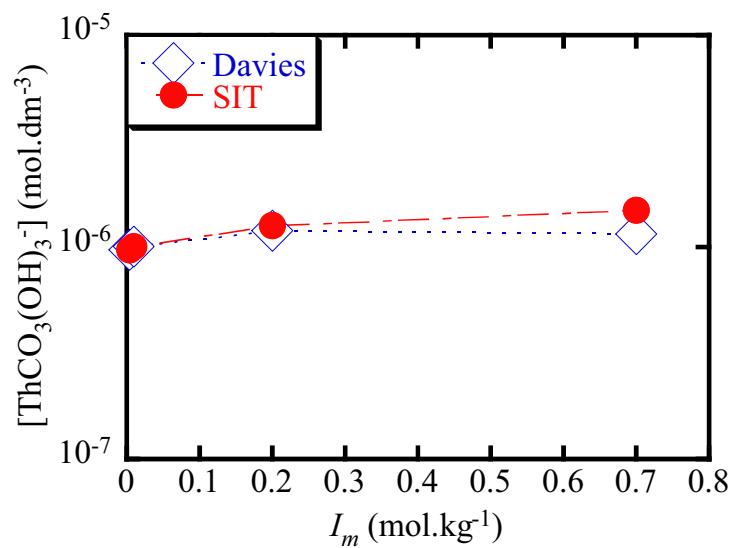


Figure 48 Estimated solubility of $\text{ThCO}_3(\text{OH})_3^-$ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

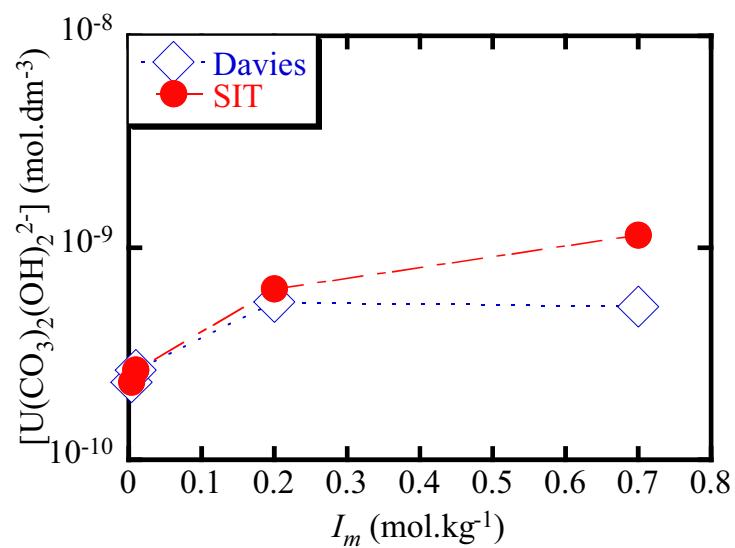


Figure 49 Estimated solubility of $\text{U}(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2^{2-}$ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

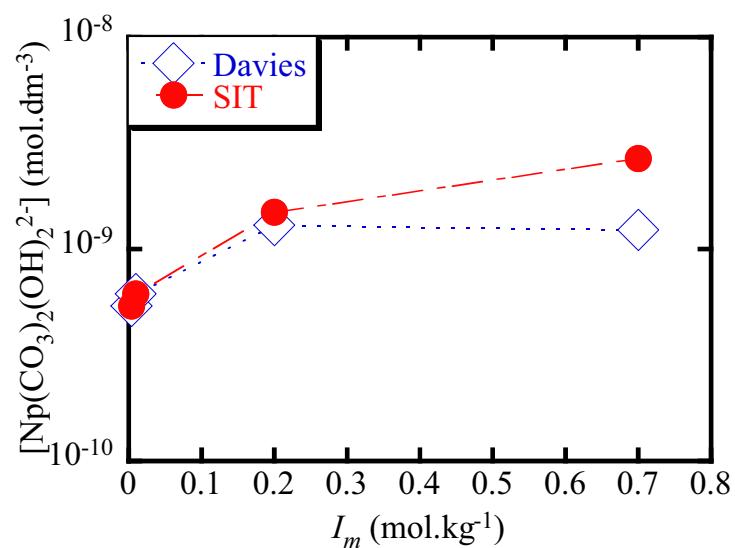


Figure 50 Estimated solubility of $\text{Np}(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2^{2-}$ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

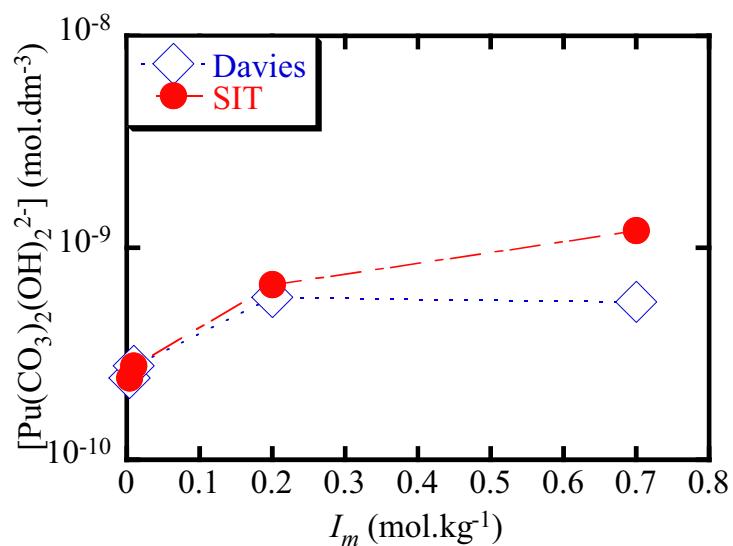


Figure 51 Estimated solubility of $\text{Pu}(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2^{2-}$ in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

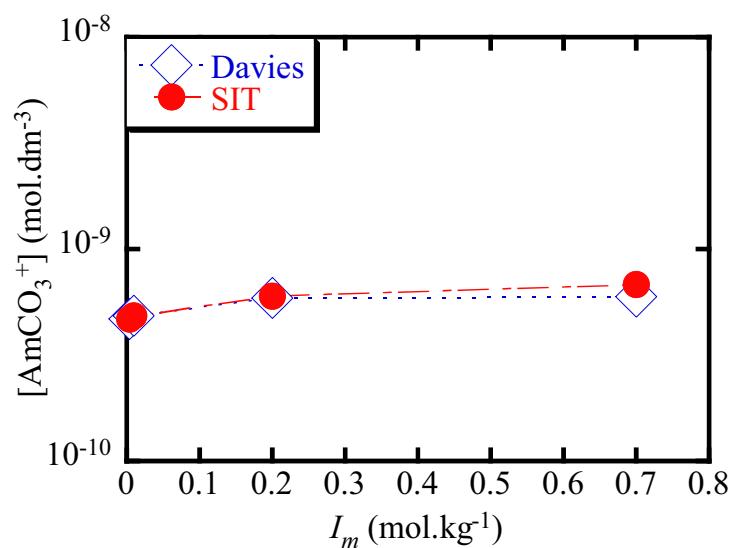


Figure 52 Estimated solubility of MCO_3^+ (M: Sm, Ac, Pu, Am, Cm) in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

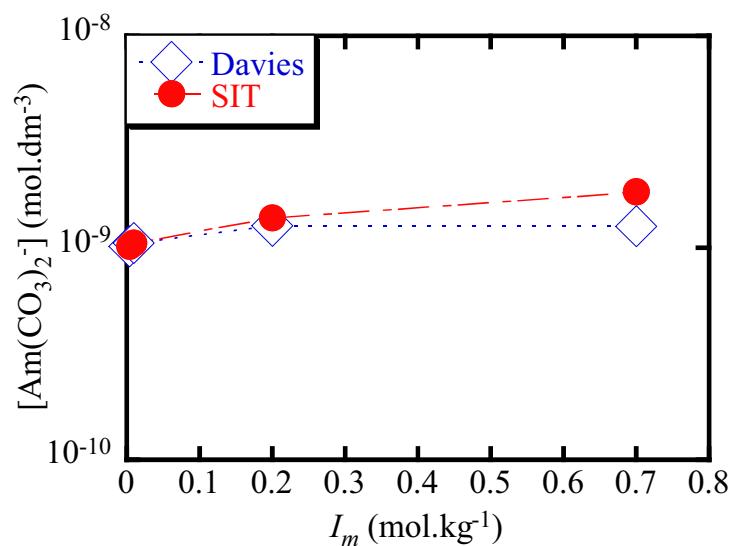


Figure 53 Estimated solubility of $M(CO_3)_2^-$ (M : Sm, Ac, Pu, Am, Cm) in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

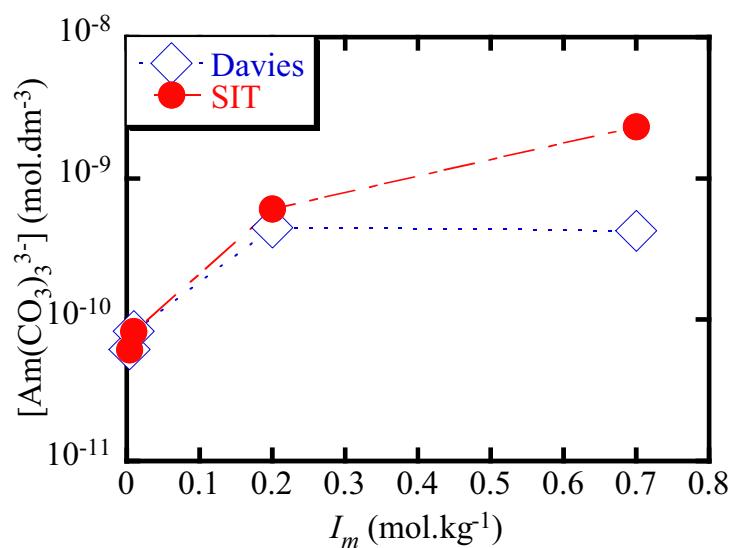


Figure 54 Estimated solubility of $M(CO_3)_3^{3-}$ (M : Sm, Ac, Pu, Am, Cm) in FRHP and modified FRHP groundwaters using the Davies model and the SIT

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	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度、質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比體積	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
質量濃度 ^(a) 、濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の) 1	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	1	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	ファラード	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
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C	K	
光度	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、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前と記号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
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ 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、エンタルピー	ジュール每ケルビン	J/K	m ² kg s ² K ⁻¹
比熱容量、比エンタルピー	ジュール每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	ジュール每キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
熱伝導率	ワット每メートル毎ケルビン	W/(m K)	kg m ⁻³ K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール每立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電界の強さ	ボルト每メートル	V/m	m kg s ³ A ⁻¹
電荷密度	クーロン每立方メートル	C/m ³	m ³ sA
表面電荷密度	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	フアラード每メートル	F/m	m ⁻³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
透磁率	ヘンリー每メートル	H/m	m kg s ² A ²
モルエネルギー	ジュール每モル	J/mol	m ² kg s ² mol ⁻¹
モルエンタルピー、モル熱容量	ジュール每モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ² K ⁻¹ mol ⁻¹
照射線量(X線及びγ線)	クーロン每キログラム	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	ワット每メートル每ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
放射輝度	ワット每平方メートル每ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
酵素活性濃度	カタール每立方メートル	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	ヨーダ	Y	10 ⁻¹	デシ	d
10 ²¹	ゼータ	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	ビロ	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	ゼット	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°=(n/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(n/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(n/648000) rad
ヘクタール	ha	1ha=1hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L	1L=1dm ³ =10 ³ cm 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表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	1ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バーン	b	1 b=100fm ² =(10 ⁻¹² cm) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネル	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	

(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
ダイナ	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ボアズ	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
スチール	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フォント	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² 10 ⁴ lx
ガル	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1G cm ⁻² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド	Oe	1 Oe=1(10 ⁴ /4π)A m ⁻¹
キュリ	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	fm	1フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット	Torr	1メートル系カラット=200 mg=2×10 ⁻⁴ kg
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1868J (115°Cカロリー), 4.1868J (ITカロリー) 4.184J (熱化学カロリー)
ミクロ	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

