

# 地層処分システム性能評価手法の 高度化に関する研究(II)

技術資料		
開示区分	レポート No.	受領日
ㄩ	J1222 96-006	1996.7.8
この資料は技術管理室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です 動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室		

(動力炉・核燃料開発事業団 研究委託内容報告書)

1996年3月

株式会社 三菱総合研究所

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

This document is not intended for publication. No public reference nor disclosure to the third party should be made without prior written consent of Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

## 地層処分システム性能評価手法の 高度化に関する研究（Ⅱ）

大久保博生\*

### 要 旨

まず、昨年度抽出された我が国の高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価体系における重要な研究課題についての調査、我が国における性能評価上の取扱い法や今後の研究開発の方向性に関する検討を行った。

次に、より信頼性の高い溶解度を算定するため、昨年度より検討を行っている地球化学反応シミュレーション手法について、方法やデータの適用性をさらに具体的に検討した。

---

本報告書は、株式会社三菱総合研究所が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究内容結果である。

契約番号：070D0246

事業団担当部課及び担当者：環境技術開発推進本部 処分研究グループ

梅木 博之 殿

\* 地球環境研究センター エネルギー・資源研究部

Study on the Advanced Performance Assessment Methods  
Concerning Waste Disposal Isolation System : Part II

Hiroo Ohkubo\*

Abstract

This year, first, the discussion has been made on the methodology and the direction of R&D on the performance assessment of HLW disposal of Japan, through the investigation of the significant research themes listed up last year.

The second theme was concerning a simulation method handling a reaction in geochemistry, where the concrete discussion has been made on the theory and its applicability to the data in order to obtain more reliable calculational result on the solubility.

---

This report is the result of research conducted by Mitsubishi Research Institute, Inc. under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

Contract No.:070D0246

Department, section, and the name of staff in charge:

Hiroyuki Umeki, Isolation System Research Program, Radioactive  
Waste Management Project, Environmental Technology Department  
Division

\* Energy and Natural Resources Dept., Research Center for Environment  
and Development.

# 目 次

	頁
はじめに .....	1
1. 昨年度抽出課題の検討 .....	3
2. 地球化学反応シミュレーション手法の適用性の検討 .....	8
2.1 はじめに .....	8
2.1.1 本研究の目的 .....	8
2.1.2 これまでの経過 .....	8
2.2 平成7年度の検討項目 .....	10
2.2.1 熱力学データの検討 .....	10
2.2.2 シミュレーション手法の検討 .....	10
2.3 平成7年度検討結果 .....	12
2.3.1 熱力学データの検討 .....	12
2.3.2 シミュレーション手法の検討 .....	16
2.3.3 今後の展開 .....	57
2.4 まとめ .....	61
あしがき .....	63
参考文献 .....	65
付録 .....	67
A. 諸外国で検討されているFEPリストの比較 .....	69
B. PHREEQEの改良 .....	103

# 表 目 次

	頁
表1-1 シナリオ自動展開ツール改良化のための検討課題の整理 .....	6
表2-1 ウランの熱力学データ (OECD/NEAの最新データ) .....	13
表2-2 In Diffusion試験結果から推定した溶解度 .....	26
表2-3 PNC-TDBH31を用いてPHREEQEにより計算した溶解度 .....	26
表2-4 Debye長さと圧縮ペントナイトの間隙幅 .....	28
付・表-1 各コンポーネントにおけるFEPのグループ化 .....	70
付・表-2 各FEPの記述 .....	71

# 目 次

	頁
図1-1 ベントナイト中における放射線分解に関する インフルエンス・ダイアグラム	5
図1-2 F E P連鎖の重要度評価のための評価項目の階層化	7
図2-1 高圧縮状態での活量係数算定のフロー図	1 1
図2-2 U(I V)錯体の生成自由エネルギーと生成エンタルピー	1 5
図2-3 U(V I)錯体の生成自由エネルギーと生成エンタルピー	1 5
図2-4 電気中性条件に対するPHREEQEのソースの修正の 有無による結果の相違：mはイオンの価数	2 1
図2-5 イオン交換平衡定数の変化によるpHおよび仮想種 BENT <sup>-</sup> 濃度の計算結果：mはイオンの価数	2 1
図2-6 In Diffusion法による濃度プロファイルと拡散式への フィッティング	2 5
図2-7 ベントナイト間隙水中の核種溶解度	2 5
図2-8 デバイ長さとはベントナイトの面間隔の1/2との比	3 0
図2-9 電気2重層モデルによる浸透圧の計算値	3 0
図2-10 剛体球ポテンシャル粒子の動径分布関数（P Y近似）	5 5
図2-11 Lennard-Jonesポテンシャル粒子の動径分布関数 （P Y近似）	5 5
図2-12 ベントナイト中の核種溶解度検証試験の概念図	6 0

# はじめに

動燃事業団では、1991年度までに行われた高レベル放射性廃棄物地層処分に  
関する研究開発の成果を原子力委員会の方針に従い、報告書（H3レポート）と  
してとりまとめた。

この報告書は、同じく原子力委員会により評価が行われ、その内容が概ね妥当  
なものであるとともに、次期のとりまとめに対する課題が示された。

このような背景の下に、動燃事業団では、次期とりまとめを2000年前頃と設  
定し、包括的な研究計画に基づいて、現在研究開発を進めているところである。  
次期とりまとめにおいても、H3レポートと同様、地層処分システムの長期的な  
安全性を示すことに重点が置かれ、性能評価モデルの改良やデータの蓄積により、  
より信頼性の高い性能評価体系を構築することが目指されている。

本研究では、次期とりまとめにおける性能評価体系の信頼性をより確かなもの  
とするため、学問的な視点から性能評価体系に関する議論を行い、今後取り組む  
べき課題を抽出するとともに、それらについて具体的に研究を行うことを目的と  
する。

昨年度は、海外における最近の研究開発事例として、スイスNagra（放射性廃棄  
物処分全国組合）のKristallin-Iを中心とした分析を行い、H3レポートとの比  
較を行った。この作業によって、今後検討を行うべき課題が抽出されている。ま  
た、今後の性能評価において重要な課題であるベントナイト空隙水化学のモデリ  
ングに関して、従来のモデルの問題点が検討され、電気2重層モデルを適用した  
方法が提案されるとともに、試解析が行われた。さらに、オーバーパックの腐食  
による水素発生や緩衝材中の移行挙動について、国内の研究者による研究会等を  
開催し、研究の現状を把握すると同時に、今後の課題が抽出されている。これら  
の成果は、次期とりまとめに向けての性能評価手法をより高度で信頼性の高いも  
のにしていく上で極めて有益なものである。

本年度は、昨年度の成果を受け、抽出された課題について検討を行うとともに、  
引き続いて実際にモデル化や解析等の作業を実施した。

なお、本研究の実施に当たっては、主に、東京大学工学部システム量子工学科  
の鈴木篤之教授並びに東海大学工学部原子力工学科の大江俊昭助教授を中心とす  
る検討会の御指導を受けつつ実施した。ここに検討会に参加していただいた方々  
に深く謝意を表する次第である。

平成8年3月

株式会社 三菱総合研究所  
エネルギー・資源研究部



## 1. 昨年度抽出課題の検討

昨年度の検討<sup>(1)</sup>においては、主に以下の項目が検討課題として抽出された。

即ち、

- (1) 安全評価における生物圏の役割に関する検討
- (2) 地層処分システムの機能や挙動に関する理解、安全評価において解析が必要な核種の選定、関連するデータに関する時間的な発展過程の把握とその理由
- (3) シナリオの設定とスクリーニングに関する方法論的検討
- (4) モデル化の方法論の検討（例えば、ガラス固化体の割れによる表面積の増加、ベントナイト／岩盤境界条件、掘削影響領域を考慮した核種移行モデル、コロイド移行等）
- (5) 地質環境情報の性能評価への貢献に関する事例的検討
- (6) 原位置試験結果の性能評価への貢献に関する事例的検討
- (7) 不確実性解析手法、確率論的評価手法に関する適用性の検討

である。これらの課題に対処するべく、様々な専門分野に関係するエキスパートから構成された検討会を開催した。

まず、諸外国の性能評価<sup>(8)~(11)</sup>において考慮されている検討項目（付録A参照）に関して行われた検討の主な内容を箇条書きでリスト・アップすると、以下の通りである。

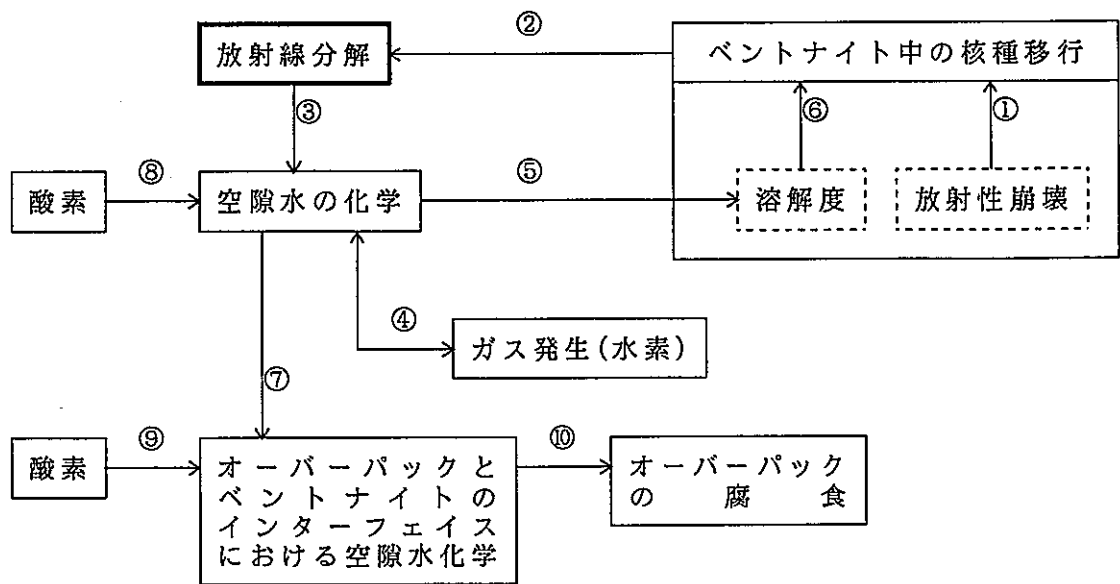
- ・（上記(1)項と関連して）生物圏の取り扱い
- ・（上記(5)(6)項と関連して）サイトスペシフィックな性質とジェネリックなものとの仕分け（EX. 岩種と地形）
- ・（上記(2)(3)(5)(6)項と関連して）ニアフィールドとファーフィールドの仕分け、優先度（データ等の蓄積状況－データ取得性、成果の継続性、コントロールラビリティ、安全評価の主旨）
- ・ 試行錯誤の工夫の必要性（上記(3)(4)(5)項と関連して）
- ・ 抜け落ちのチェック（上記(3)項と関連して）
- ・ コストへの反映（説明として）

特に、(3)(4)(7)項に関連して、性能評価の対象と考えられるFEP（Feature, Event, Process）からシナリオを構成していく方法論の検討が行われた。その主

なものをリスト・アップすると、以下の通りである。

- ・インフルエンス・ダイアグラム（以下 I.D. と略記）作成の前提条件・範囲の明確化（H3 レポートベース<sup>(2)</sup>、変動ケース）
- ・最終評価への反映の仕方（決定論／確率論、重要度設定の考え方）
- ・I.D. の表現方法（ブレイクレベル、時間軸別、パラメータ・変数・定数（温度・圧力）レベルあるいは影響レベル別、応力・水理・化学等の分野別図示工夫、熱・温度といったファクターを入れたサブシステムの結合、双方向矢印の一方向化、原因とその結果に分けた説明、画面のディスプレイを見ながらの試行錯誤的作業の可能化、F E P 関連過程の進行の容易さの表現、図の重疊的ディスプレイ）
- ・IAEA/NEA の事例（F E P リスト）の参照
- ・データベース記述内容における現象の理解の現状レベルのチェック&レビュー（参照文献レベル、F E P 間相関性の明記、内容の記述レベル）
- ・スクリーニングアウトに至るまでの過程の記録化（図1-1レベル、その内容の妥当性）
- ・方法論の妥当性（フォールト・ツリーへの展開可能性、シナリオとデータベースのいずれが先か）
- ・I.D. に示す位置（母岩、ベントナイト、オーバーパック）関係の重要性
- ・溶解度といった性能評価上キーとなる F E P を中心とした議論
  - －専門的アプローチ（EX, 図1-1）
  - －地下水シナリオでcrucialに効くパラメータの検討
  - －諸外国のアプローチの参照

これらの検討課題に対し、当社が開発中の F E P 連鎖ベースのシナリオ自動展開ツール<sup>(4)</sup>で対応することを考えたとしたらどのような対応の仕方が考えられるかを検討・整理したものを表1-1に示す。このようなツールの活用などを通じて作成されたシナリオは、F E P 連鎖から構成されているため、シナリオのスクリーニングを行う上では、各 F E P 連鎖の重要度を設定することが可能ならば自動的にシナリオの重要度も決定することが可能になると考えられる。そこで、HLW 処分性能評価体系において、各 F E P（連鎖）の重要度を判定するために必要と考えられる評価項目を検討し、階層的に整理したものを図1-2に示した。



- ①放射性崩壊による放射線の発生 (スーパーFEP内)  
 ②放射性崩壊による放射線の発生 (スーパーFEP内)  
 ③放射線分解による空隙水化学への影響  
 ④放射線分解による水素発生と、結果としての酸化性雰囲気の発生  
 ⑤酸化性雰囲気の発生による溶解度への影響  
 ⑥溶解度の変化による核種移行への影響  
 ⑦オーバーパックとベントナイトのインターフェイスにおける空隙水への連通  
 ⑧酸素中の窒素の消費 (結果として空隙水化学における硝酸の発生)  
 ⑨酸素中の窒素の消費 (結果としてインターフェイス空隙水化学における硝酸の発生)  
 ⑩酸化剤の発生によるオーバーパックの腐食への影響
- 凡 例 -
- : スーパーFEP,  
 : サブFEP

図1-1 ベントナイト中における放射線分解に関する  
インフルエンス・ダイアグラム

出典：(3)

表1-1 シナリオ自動展開ツール改良化のための検討課題の整理

検討課題	現行システムでの対応性(制限等も含め)	将来的対応(バージョンアップ等)可能性
①諸外国(他機関)の研究事例の参照	基本的にはOECD/NEAやIAEAの考え方 <sup>(5)</sup> を踏襲し、また、INTERAのP S Mモデル <sup>(6)</sup> 情報(境界条件の媒介、ファジイ理論の組み込みの考え方など)を参考に開発している。	SKB, TVOの表示例 <sup>(7)</sup> (主要なF E Pを対角成分に入れ、それに関連するものを非対角成分に入れる)等を参考に、F E Pメモコメント(データベース) <sup>7</sup> とのリンクを想定したシステムバージョンアップを志向。
②現象等の理解の進捗やシナリオ解析結果のスクリーニング等に応じ必要なF E Pの追加入力(あるいは削除等)	インフルエンス・ダイアグラムに含めるべきF E Pの総数の上限制約はほぼないが、ルート探索の過程で関係し得るパスを構成するF E P数が最大55個で打ち切られる。	システムの制限が解除できれば対応可能。
③F E P連鎖の意味、内容(範囲等)の明確化(原因と現象の仕分け、形態によってかかる時間の違い等)に伴う画面表示法の高度化(矢印の長さや太さ、色分け等)	インフルエンスA→Bの意味は、「F E P AがF E P Bに何らかの影響を与える」となっており、両方向表示も可能(但し、その場合にはループが生じ得るが、ループ対応もある程度可能)。	文献(4)の2.1節で検討した一般的評価項目で必要と考えられるF E P間の関係を新たに追加し、その関係別展開・表示を可能とする。また、ループ対応ロジックを可能な限り厳密化する。
④F E P連鎖への重要度(確率的概念も含め)付与	エキスパート知見が反映できるよう数ランクの重要度設定とスクリーニング等のための重要度範囲指定が可能。	エキスパート知見等を反映するためのAHP法やフォールト・ツリー法のような重要度(あるいは(主観的)確率)算定プログラムとのリンクが考えられる。
⑤時間軸(タイムスケール)別、データの種別(パラメータ、変数、定数)、影響レベル、4ないし5つの主要境界条件反映領域(分野)別(力学、化学、熱学、水理学、その他)などの表示	F E Pに関するデータ(I)とパラメータ等(II)に関するデータに分類後、まず入力データ(I)でツールを実行し、出力された該当パス事象に関するパラメータ等のデータを入力データ(II)に入れてツールを実行するといった2段階的アプローチで対応可能。	<ul style="list-style-type: none"> <li>・F E P(連鎖)毎にあらかじめ入力設定されているキーワード(時間、関連パラメータ、分野、現象…)別に検索できる機能を追加し、指定キーワード別にF E P連鎖を求める。</li> <li>・各レベル別のサブシステムを作成し、F E Pレベルの展開で出力されたもの(重要度評価項目にあらかじめこれらのレベル別の重要度を付与しておき、スクリーニングされた結果残ったもの)に関するサブシステム同志をリンクして表示することなどが考えられる。</li> </ul>
⑥F E Pスクリーニング・プロセスの軌跡の記録化	議論の出発点として動燃限が設定した102のF E Pをベースに入力されたものに対するF E P連鎖に、エキスパートが判断する(予定の)重要度に基づいてスクリーニングされたパス(全経路及び重要度順の各パス)が表示される。	スクリーニング前のインフルエンスダイアグラムとスクリーニング後のインフルエンス・ダイアグラムが比較できるようなシステム機能(スクリーニング・ステップに従った記録化と参照化(重畳表示等)の追加)。
⑦シナリオ構築手順の自動化	F E P選定からF E P連鎖出力及びそれに沿ったシナリオの文章化とモデル解析に必要なパラメータ等のリストアップまでのステップに対し、各ステップのバッチ的連携運用が可能。	シナリオ解析に必要な入力データをデータベースから読み込み、計算結果を表示、記録するシステムへの拡張とその結果を反映したF E Pスクリーニングプロセスへの再フィードバックまで盛り込んだ連続システム運用形態への進展。

\* 具体的には、付・表-2(付録A参照)に示す形式で各F E Pの内容が記述されたもの

出典：文献(4)をもとに作成

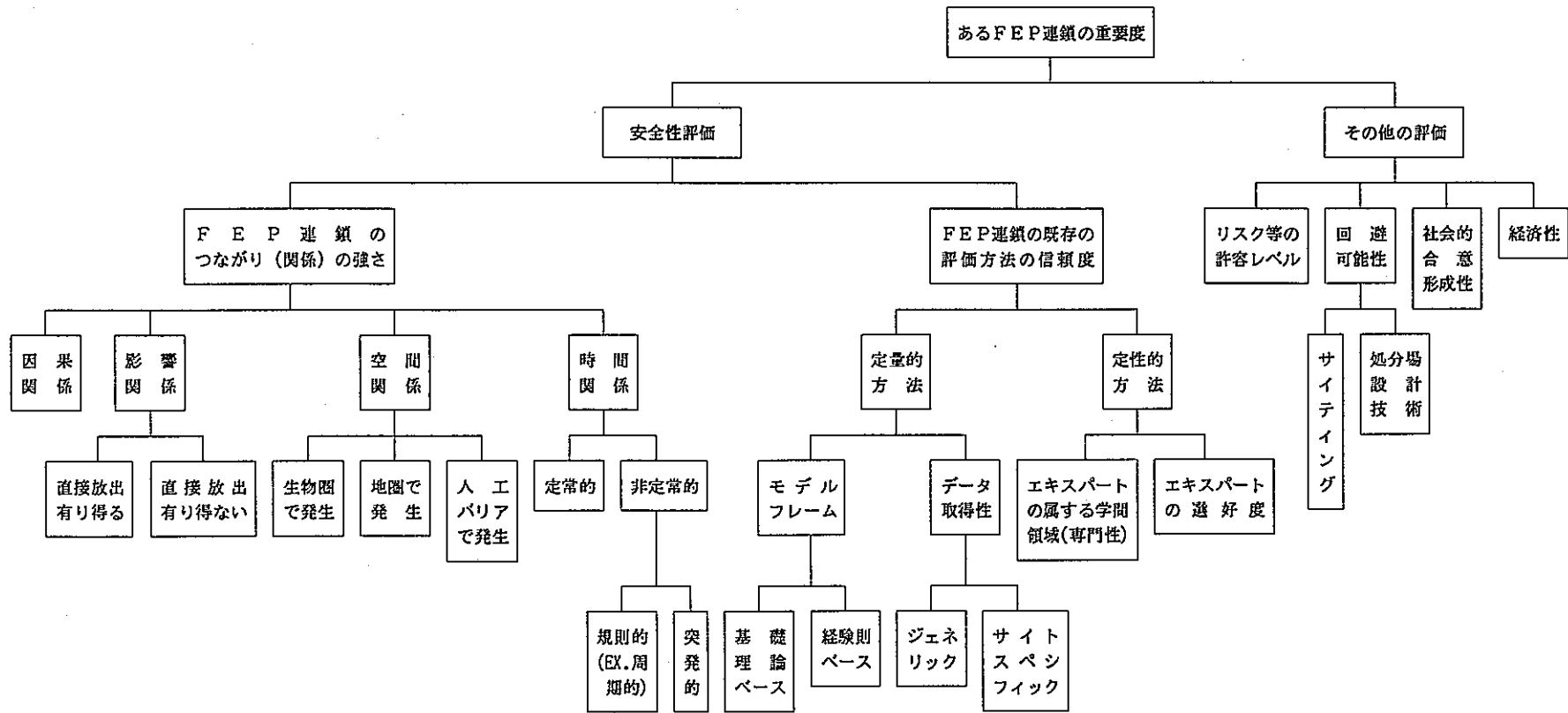


図1-2 FEP連鎖の重要度評価のための評価項目の階層化

## 2. 地球化学反応シミュレーション手法の適用性の検討

### －溶解度の信頼性の向上－

#### 2.1 はじめに

##### 2.1.1 本研究の目的

高レベル廃棄物地層処分の安全性を担う要因である核種の溶解度を推定する地球化学反応シミュレーション手法について、方法やデータの適用性を検討し、より信頼性の高い溶解度を算定する手法を検討することを目的とする。

高レベル廃棄物地層処分では、地下深部の環境において、TRU等の核種の溶解度が極めて低いため、万が一廃棄物より核種が漏洩するようなことがあっても、固体の沈殿として処分場内に大部分が堆積し、容易には移動しない、と考えられている。これが、地層処分の安全性を担保する原理の一つと考えられている。

##### 2.1.2 これまでの経過

現在、高レベル廃棄物地層処分の高い安全性が期待される背景には、TRU核種等の溶解度が非常に低いことが要因の一つに上げられる。昨年度は、この溶解度について、現在の評価方法の問題点を検討し次の結果を得た。

- ◆核種の溶解度を規定する緩衝材は高圧縮され、固体量に対して水量が非常に少ない。一方、従来推定の方法は水量と固体量とが適度な比率をもっている系に対して開発されたものであり、このような方法を上記の様な条件まで拡張して使用することの妥当性は明かでない。
- ◆溶解度の算定は、手法のみでなく、用いる熱力学データにも強く依存する。そのため、まず、解析に使用する熱力学データセットを確定する必要がある。しかし、既存の熱力学データセット内のデータには、欠損するデータがあったり、入力ミスによる異常データが含まれている可能性があり、これらのチェックが必要である。異常データの検出および修正、ならびに欠損データの推定には、幾つかの経験則が知られており、これが推定の手がかりとなる。
- ◆高圧縮緩衝材は固液比の大きな系であり、緩衝材から溶出するナトリウムイオンや硫酸イオン濃度は極めて高くなる。このような高濃度下では、イオン

は、粘土壁面からの電気化学ポテンシャルの影響を受け、通常の溶液中の活量とは大きく異なっている。そのため、これらの影響がどの程度であるかを知る必要がある。

- ◆電気2重層理論に立脚し、固体表面との相互作用を考慮した簡易法を用いて、粘土間隙水中のイオンの活量係数を見積った。その結果、イオンの活量係数は理想的な1よりも大きくずれ、条件によっては、これまでの溶解度の計算結果も大きく変わり得る可能性があることが判った。
- ◆現在の地球化学反応解析コードには、処分に特有の条件である、(1)粘土の多成分イオン交換反応、(2)地下水流れ、等を十分考慮できないため、これらに関しての改良が望まれる。

本年度は、昨年度の成果をもとに、溶解度をより信頼性ある値として決定することを目標に、熱力学データの再評価ならびに、溶解度シミュレーション手法の改良を実施する。

## 2.2 平成7年度の検討項目

### 2.2.1 熱力学データの検討

溶解度の算定は用いる熱力学データにも強く依存するため、今年度はウランのデータセットの中から異常なデータを排斥し、解析に使用する熱力学データセットを確定する。また、システムティクス<sup>注</sup>によって欠損データの推測を行う。

### 2.2.2 シミュレーション手法の検討

高圧縮状態での緩衝材間隙水中での核種溶解度シミュレーションに必要な手法の改良を行う。

#### 1)イオン交換反応

スメクタイト等の交換性粘土鉱物のイオン交換反応には、アルカリ金属、アルカリ土類金属など、地下水中に普遍的に存在する他種類の金属イオンが関与する。しかし、PHREEQEなどの地球化学反応解析コードでは、多成分イオン交換反応を解析することができず、近似的手法が用いられている。この近似手法の妥当性と適用限界については検討が不十分なため、改めて調査を行い、必要ならば、解析コードの改良を行う。

#### 2)核種溶解度

前年度は、簡易手法を用いて核種溶解度の近似解析を行い、緩衝材間隙水中の溶解度が従来法による評価と異なる可能性を示した。しかし、この近似手法にも依然として

- ・ 本来有限の大きさを持つイオンを大きさの無い点電荷とみなしている。
- ・ 媒体粒子を連続体とみなしている。

---

注) システムティクス：例えば、生成自由エネルギーと生成エンタルピーとが多くの場合経験的に比例関係にあることを利用し、生成自由エネルギーから未知の生成エンタルピーを求めたり、あるいは、両者が比例関係から大きくズレた場合には、生成自由エネルギーと生成エンタルピーのどちらかが正しくないと推定する。



等の非現実的仮定が含まれている。これを回避するには、イオン（粒子）間の相互作用を考慮して、1個1個の挙動を取り扱うモンテカルロ法によって間隙水中のイオンの分布を計算し、それから静電ポテンシャル分布を求め、さらに活量係数を算定するのが最も適切である。しかし、静電ポテンシャル分布自体の計算が複雑となり、本来の目的である溶解度の計算よりもはるかに長い計算時間を要してしまう。そのため、ここでは、静電ポテンシャル分布あるいはイオン分布を求めるための、より適切な計算手法を調査する。

固液界面での静電ポテンシャル分布を求めるには、イオンの分布状態を知る必要があり、それは分布関数（通常二体分布関数でよい）を求めることに帰着する。そのために、まず、イオンの存在が互いに与える影響を示す相関関数を求め、それから分布関数を得る。しかし、イオン全てについて互いの影響を考慮することは、多体ポテンシャル問題を解くことであり、解析的には解けない。それを液体構造理論から近似的に解く方法が幾つか提唱されており、ここではその手法について調査を行う。

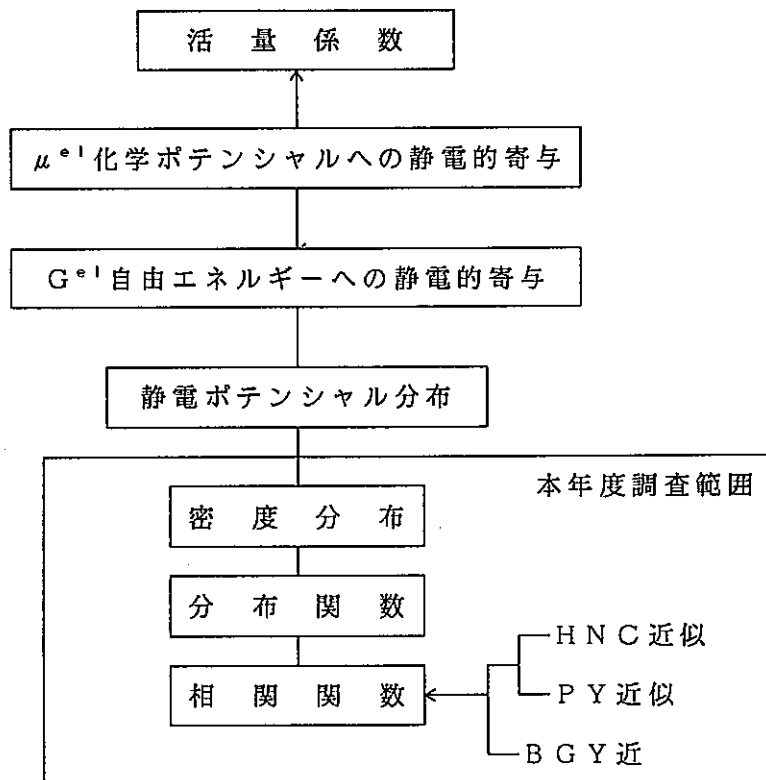


図2-1 高圧縮状態での活量係数算定のフロー図

## 2.3 平成7年度検討結果

### 2.3.1 熱力学データの検討

#### 1) ウランの熱力学データの検討

溶解度の算定は用いる熱力学データにも強く依存するため、今年度はウランの熱力学データセットを確定する。その際、生成自由エネルギーは既知であるが、生成エンタルピーが欠けている化学種が存在し、それらについては温度変化に対して解析が行えない。そのため、システムティクスによって欠損データの推測を行った。

#### (1) OECD/NEAのデータベース

OECD/NEAの最新データベースから、ウランに関する熱力学データを表2-1に掲げる。この表から、生成エンタルピーが欠けている化学種の値を推定した。図2-2はU(IV)のまた図2-3はU(VI)の錯体の、各々生成自由エネルギーと生成エンタルピーの関係を示した。両者ともに直線関係が成り立つことが判る。この理由は、

$$\Delta G_f^0 = \Delta H_f^0 - T\Delta S^0$$

において、エントロピー項の寄与が小さいためと考えられる。

いずれにしても、図2-2と図2-3を作業曲線として、生成エンタルピーが欠けている化学種の値を、第一次近似として推定した。その結果も表2-1に示す。この結果はあくまで経験則に基づくものであるため、今後、

- ・同一錯体に関して、他の金属イオンとの類似性があるか否か
- ・静電モデルや他の理論モデルによる推定が可能か

等について、チェックが必要と考える。

表2-1 ウランの熱力学データ (OECD/NEAの最新データ)

U(IV)の熱力学データ水酸化物、塩化物、硫酸・硝酸・炭酸錯体

	Name	$\Delta G_f$ (kJ/mol)	$\Delta H_f$ (kJ/mol)	$\Delta H_f$ (kJ/mol) (計算値)
master	$U^{4+}$	-5.299E+02	-5.912E+02	
水酸化物	$UOH^{3+}$	-7.639E+02	-8.301E+02	
	$U(OH)_4(aq)$	-1.453E+03	-1.656E+03	
	$U(OH)_5$	-1.621E+03		-1.876E+03
塩化物	$UCl^{3+}$	-6.709E+02	-7.773E+02	
硫酸錯体	$USO_4^{2+}$	-1.311E+03	-1.493E+03	
	$U(SO_4)_2(aq)$	-2.078E+03	-2.377E+03	
硫酸錯体	$UNO_3^{3+}$	-6.490E+02		-7.171E+02
	$U(NO_3)_2^{2+}$	-7.646E+02		-8.548E+02
炭酸錯体	$U(CO_3)_4^{4-}$	-2.842E+03		-3.331E+03
	$U(CO_3)_5^{6-}$	-3.363E+03	-3.987E+03	

U(VI)の熱力学データ I 水酸化物

	Name	$\Delta G_f$ (kJ/mol)	$\Delta H_f$ (kJ/mol)	$\Delta H_f$ (kJ/mol) (計算値)
master	$UO_2^{2+}$	-9.526E+02	-1.019E+03	
水酸化物	$UO_2OH^+$	-1.160E+03	-1.262E+03	
	$UO_2(OH)_2(aq)$	-1.368E+03		-1.514E+03
	$UO_2(OH)_3^-$	-1.554E+03		-1.726E+03
	$UO_2(OH)_4^{2-}$	-1.713E+03		-1.906E+03
	$(UO_2)_2OH^{3+}$	-2.127E+03		-2.377E+03
	$(UO_2)_2(OH)_2^{2+}$	-2.347E+03	-2.572E+03	
	$(UO_2)_3(OH)_4^{2+}$	-3.738E+03		-4.210E+03
	$(UO_2)_3(OH)_5^+$	-3.955E+03	-4.389E+03	
	$(UO_2)_3(OH)_7^-$	-4.341E+03		-4.895E+03
	$(UO_2)_4(OH)_7^+$	-5.345E+03		-6.037E+03

表2-1 ウランの熱力学データ (OECD/NEAの最新データ) (続き)

U(VI)の熱力学データ II 塩化物、硫酸・硝酸・リン酸・炭酸錯体

	Name	$\Delta G_f$ (kJ/mol)	$\Delta H_f$ (kJ/mol)	$\Delta H_f$ (kJ/mol) (計算値)
塩化物	$UO_2Cl^+$	-1.085E+03	-1.178E+03	
	$UO_2Cl_2(aq)$	-1.209E+03	-1.338E+03	
	$UO_2ClO_3^+$	-9.633E+02	-1.127E+03	
硫酸錯体	$UO_2SO_3(aq)$	-1.478E+03		-1.638E+03
	$UO_2SO_4(aq)$	-1.715E+03	-1.909E+03	
	$UO_2(SO_4)_2^{2-}$	-2.464E+03	-2.803E+03	
硝酸錯体	$UO_2NO_3^+$	-1.065E+03		-1.169E+03
リン酸錯体	$UO_2PO_4^-$	-2.054E+03		-2.293E+03
	$UO_2HPO_4(aq)$	-2.090E+03		-2.335E+03
	$UO_2H_2PO_4^+$	-2.108E+03		-2.356E+03
	$UO_2H_3PO_4^{2+}$	-2.106E+03		-2.353E+03
	$UO_2(H_2PO_4)_2(aq)$	-3.255E+03		-3.660E+03
	$UO_2(H_2PO_4)(H_3PO_4)^+$	-3.261E+03		-3.666E+03
炭酸錯体	$UO_2CO_3(aq)$	-1.536E+03	-1.689E+03	
	$UO_2(CO_3)_2^{2-}$	-2.105E+03	-2.351E+03	
	$UO_2(CO_3)_3^{4-}$	-2.660E+03	-3.084E+03	
	$UO_2(CO_3)_3^{5-}$	-2.587E+03		-2.900E+03
	$(UO_2)_3(CO_3)_6^{6-}$	-6.333E+03		-7.161E+03

Grenthe, I., Fuger, J., Konings, R.J.M., Lemire, R.J., Muller, A.B., Nguyen-Trung, C. and Wanner, H.: Chemical Thermodynamics of Uranium. Chemical Thermodynamics Series, Vol.1. Nuclear Energy Agency (NEA), Elsevier, New York (1992).

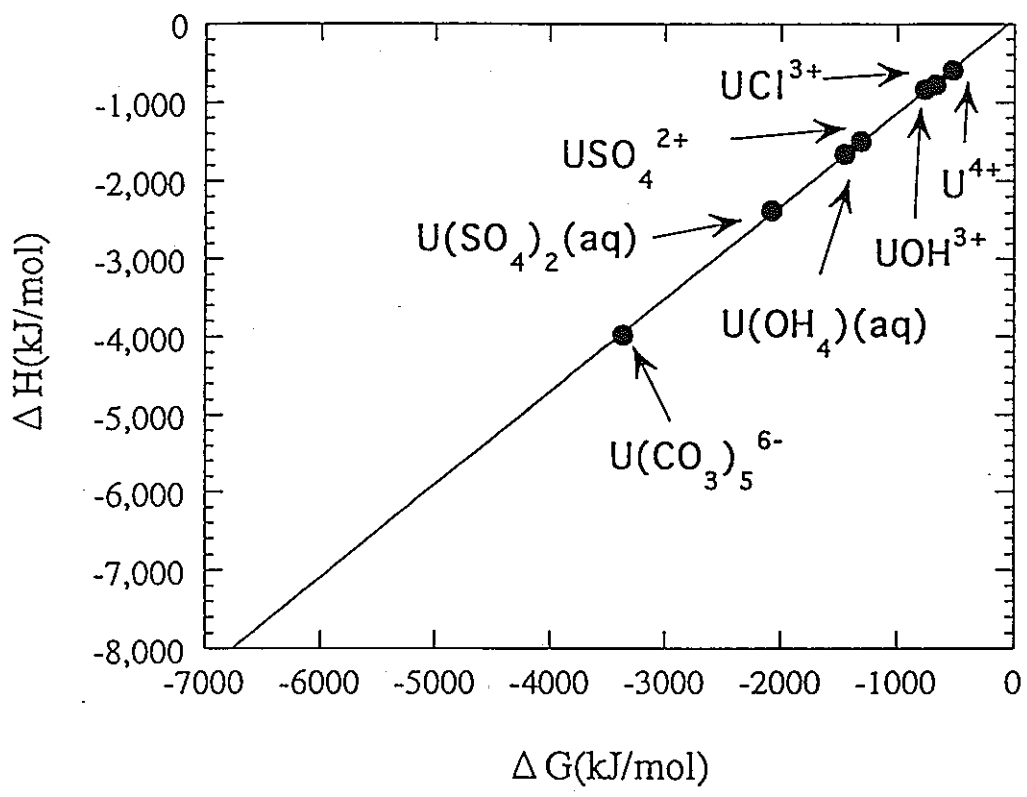


図2-2 U(IV)錯体の生成自由エネルギーと生成エンタルピー  
 $(\Delta H = 1.1922 \times \Delta G + 56.716)$

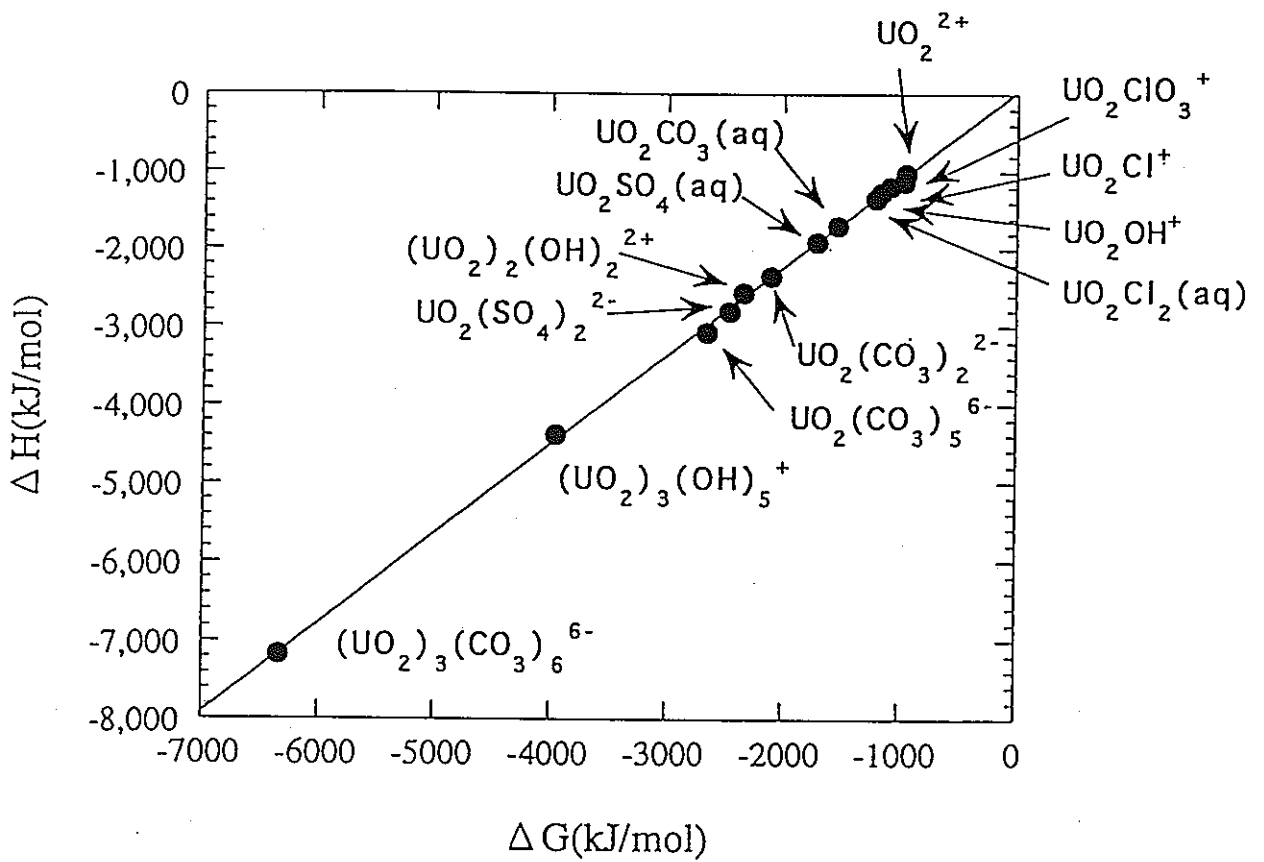


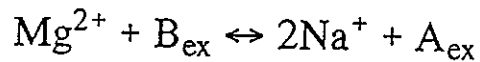
図2-3 U(VI)錯体の生成自由エネルギーと生成エンタルピー  
 $(\Delta H = 1.1374 \times \Delta G + 42.335)$

### 2.3.2 シミュレーション手法の検討

#### 1) イオン交換反応の解析

##### (1) イオン交換反応の解析の問題点

オリジナルのPHREEQEでは、イオン交換反応の平衡定数を次のような、溶液中のイオンの活量（と価数）の比として近似的に取り扱う。



$$K_{\text{ex1}} = \frac{[\text{Na}^+]^2}{[\text{Mg}^{2+}]}$$

ここで、固相（イオン交換体であるスメクタイト） $\text{A}_{\text{ex}}$ あるいは $\text{B}_{\text{ex}}$ の活量を1とする。この方法を用いる理由は、熱力学的な定義から平衡定数を考えると、固相側の活量がほぼ1とみなせるからである。しかし、ここでもう一つのイオン $\text{Ca}^{2+}$ がイオン交換反応に加わった場合を考えると、

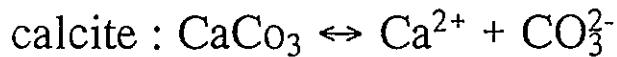


$$K_{\text{ex2}} = \frac{[\text{Na}^+]^2}{[\text{Ca}^{2+}]}$$

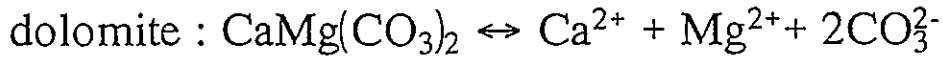
となって、次のように $\text{Mg}^{2+}$ と $\text{Ca}^{2+}$ の活量比も一義的に決まってしまう。

$$\frac{[\text{Mg}^{2+}]}{[\text{Ca}^{2+}]} = \frac{K_{\text{ex2}}}{K_{\text{ex1}}} = \text{これを定数1とする。}$$

さらに、calciteとDolomiteが固相として緩衝材中に共存していると、固相の溶解平衡から、



$$\text{Solubility Product} : K_1 = [\text{Ca}^{2+}][\text{CO}_3^{2-}]$$



$$\text{Solubility Product} : K_2 = [\text{Ca}^{2+}][\text{Mg}^{2+}][\text{CO}_3^{2-}]^2$$

上記平衡定数から  $[\text{CO}_3^{2-}] = K_1 / [\text{Ca}^{2+}]$  となり、これより、

$$K_2 = \frac{[\text{Ca}^{2+}][\text{Mg}^{2+}]}{[\text{Ca}^{2+}]} K_1^2 = K_1^2 \frac{[\text{Mg}^{2+}]}{[\text{Ca}^{2+}]}$$

となり、結局

$$\frac{[\text{Mg}^{2+}]}{[\text{Ca}^{2+}]} = \frac{K_2}{K_1^2} = \text{これを定数2とする。}$$

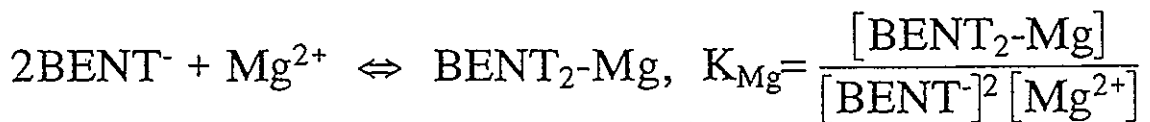
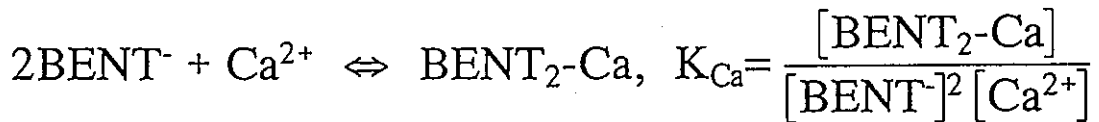
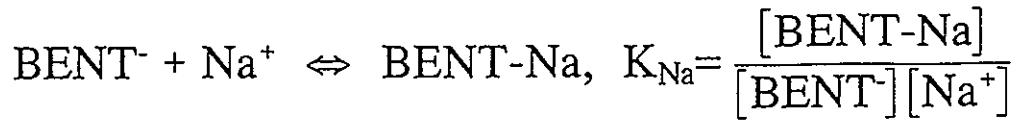
となって、イオンの活量の比が、イオン交換反応（定数1）と固相の溶解平衡（定数2）から2通りの異なった値として与えられてしまうことになる。そのため、PHREEQEは解析不能となる。

すなわち、多成分のイオンが関与するイオン交換反応と、同じ種類のイオンが関与する固相の沈殿・溶解反応が同時に考えられるような系では、PHREEQEで使われている”イオン交換反応の解析方法”は使えない。残念ながら、ベントナイトには、上記のdolomiteやcalciteが不純物として含まれる可能性が高く、PHREEQEの手法は使えないものと考えられる。

この欠点を補うものとして、Wannerはイオン交換反応を、溶液中の錯体生成反応に見立て、近似的に多成分イオン交換反応を解析する手法を提案<sup>注</sup>している。この方法の特徴は、イオン交換反応を、イオンと固相との2つの反応に分解し、各々を、下記に示す錯体生成反応で記述するものである。

---

注) H. Wanner, Nucl. Technol., 79, 338(1987).



この方法では、溶液中に本来存在しない $\text{BENT}^-$ というイオンの存在を仮定しなくてはならない。そのため、特に、固液比が大きな圧縮ベントナイトを解析する場合には、多量の固相が存在するため、 $\text{BENT}^-$ の（計算上の）存在量が大量となる。そうすると、

- ・形式上アニンと見なされる成分が大量に溶液に存在する

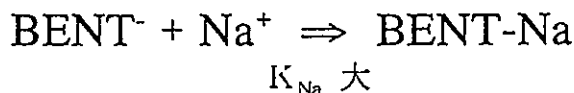
（ $\text{BENT}^-$ は固相であるから実際にはアニオンとして存在しない）

- ・大量のアニオンの存在は、溶液のイオン強度を変化させ、その結果、活量補正に用いる活量係数が現実ものとは異なった値となる。そのため、その他の錯体の生成濃度が変わってしまう。
- ・化学反応に伴うpH変化を解析する場合、PHREEQの方式では、溶液中のプロトンを除く全カチオンと、全アニオンの電荷の数から、電気中性条件を用いて、過不足する電荷に相当するプロトンが水中に存在する、としてpHが算定される。この電荷中性条件に $\text{BENT}^-$ が不当に関与することとなり、誤ったpHが算出される。



以上の不都合が予想される。これは、実際には存在しないBENT<sup>-</sup>なる化学種を考えたために起こるもので、Wannerのモデルには不可避の欠点となる。

この欠点を回避するため、Wannerらは、錯体生成定数Kを極端に大きくとり、反応がイオン対生成側に偏り、BENT<sup>-</sup>が殆ど存在しないように注意深く錯体生成定数Kを定めている。



しかし、Kの調整のみでは、前述の活量係数の改ざんには効果がない。このことを図2-4に示す。PHREEQEでは、生成したBENT-N等はあくまで水性錯体として取り扱うため、本来固相であるBENT-Naに対しても、水性錯体の活量係数を算定してしまう。図の例では、BENT-Na、BENT-Caなど全てのイオン交換反応に寄与する錯体の活量係数は、中性錯体と見なされて、 $\gamma = 1.654$ が与えられている。一方、PHREEQEを修正して、BENT-Mに関与する錯体の活量係数を全て $\gamma = 1$ <sup>注1</sup>に置き換える操作を行うと、溶液状態の計算結果、特にpHの結果が異なってくる。また、図中には、 $K_{\text{Na}} \sim K_{\text{H}}$ の値に、文献に記載の数値<sup>注2</sup>セットを用い、その数値全体を一律に10倍 $\sim 10^6$ 倍（2価のイオンでは $10^2$ 倍 $\sim 10^{12}$ 倍とする）とすることによって、pHがどの様に変化するかを示している。この結果から、pHの相違を、錯体生成定数Kを増すことによって解決しようとしても、殆ど効果が無いことが判る。

---

注1) イオン交換反応の平衡定数を実験的に求める場合には、固相を濃度で表す場合が实际的であり、その時には、固相の活量係数は1と見なす場合が多い。

$$K_{\text{ex1}} = \frac{[\text{Na}^+]^2[\text{S}_2\text{-Mg}]}{[\text{S-Na}]^2[\text{Mg}^{2+}]}$$

注2) 中山他、日本原子力学会誌、34(4)、342(1992).

## (2) PHREEQEの改良

Wannerらのモデルの適用性を高めるためには、活量係数の修正などを行う必要がある。そのため、ここではPHREEQEのソースプログラムの修正を検討した。修正が必要な個所は、

- ・電荷中性条件の計算に関与するサブルーチン
- ・活量係数の計算に関与するサブルーチン

である。具体的には「AQMOD」、「GAMMA」、「PTOT」が対象となる。詳しい修正内容は付録Bに示すが、この修正が妥当であるか否かをチェックした結果を、図2-5に示す。平衡定数を増加させるに従って、 $BENT^-$ の濃度が低下し、それに伴ってpHが一定値を示すようになる。また、未修整のオリジナル版と異なり、平衡定数のセットそのままのオリジナルデータでも殆ど同じデータpHが得られ、図2-4に示す場合と異なり、オリジナルデータを修正する必要が殆どない。

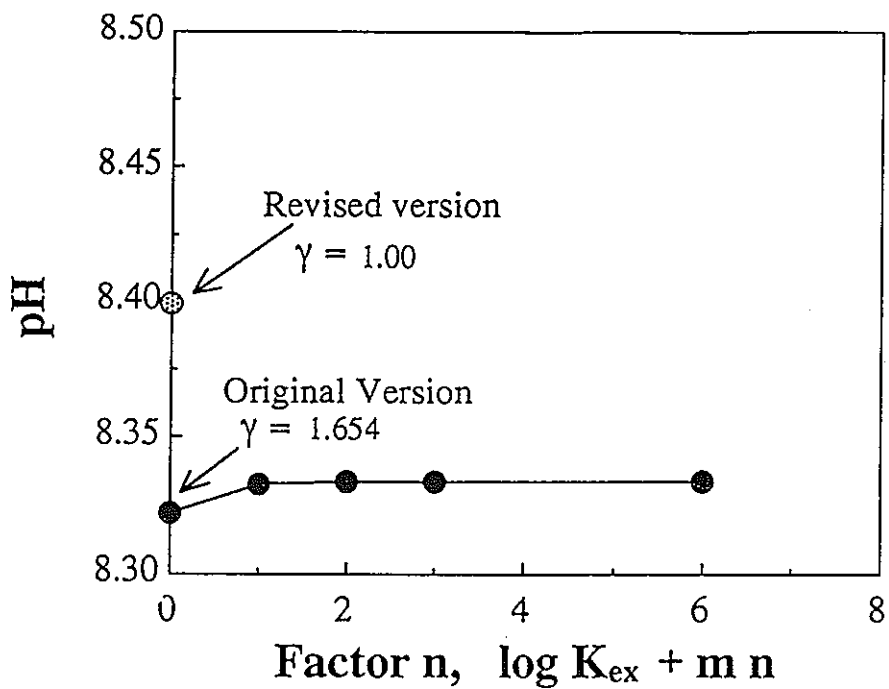


図2-4 電気中性条件に対するPHREEQEのソースの修正の有無による結果の相違：mはイオンの価数

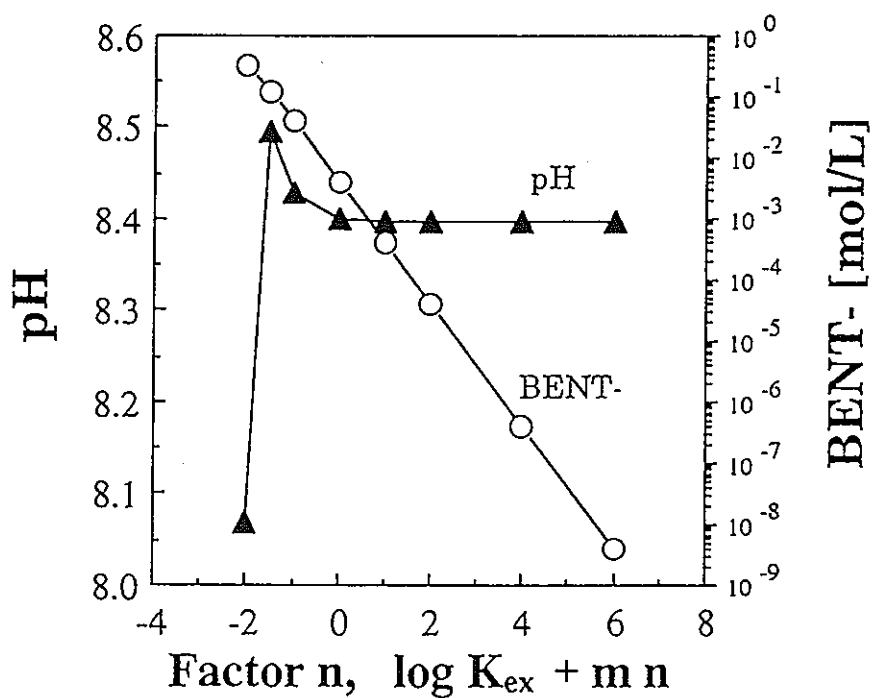


図2-5 イオン交換平衡定数の変化によるpHおよび仮想種BENT<sup>-</sup>濃度の計算結果：mはイオンの価数

## 2) 溶液構造論

### (1) ベントナイト間隙水中の核種溶解度解析の問題点

#### a. ベントナイト間隙水中の核種溶解度の推測<sup>注</sup>

圧縮ベントナイトの間隙水中の核種溶解度を直接実測した報告は、これまでなされていない。溶液量が極端に少なく、分析が不可能だからである。そこで、ここでは、拡散試験によって得られたデータを用いて、間接的に核種溶解度を推測した。

#### ・評価方法

In-Diffusion法では、ベントナイト表面では濃度が溶解度で一定になっているものと仮定し、拡散試験によって得られた濃度プロファイルの解析曲線を位置  $x = 0$  に外挿することによって、その外挿値を核種溶解度とする。

図2-6に外挿の方法を示す。ベントナイト表面に塗布した核種トレーサーの濃度が溶解度よりも十分高い場合には、表面近傍で固相が析出し、異常な高濃度が検出される。この固相の析出の影響を受けない、表面から離れた部位の濃度を拡散式にフッティングして、その曲線を表面に外挿すると、その値は核種の溶解度に相当すると考えられる。

図の縦軸は、間隙水中に溶解度で存在する核種と、その溶解度の濃度に対応してベントナイト固相に収着した核種の和であるから、表面の外挿濃度  $C_0$  は、

$$C_0 = (\varepsilon + \rho K_d) C_p$$

ただし、 $\varepsilon$  : 間隙率

$\rho$  : 密度

$K_d$  : 分配係数

$C_p$  : 溶解度

---

注) 動燃、渋谷 他のデータによる。

で与えられ、検出効率や回収率等を考慮して表面濃度 $C_0$ の絶対値を求め、さらに分配係数 $K_d$ を与えれば、間隙水中の溶解度 $C_0$ が求められる。

分配係数は溶解度を推定するための重要なファクターとなるので、ここでは次の3通りの異なった方法で与え、各々の相違をチェックした。

①見かけの拡散係数から与える

$$D_a = \frac{\varepsilon}{\varepsilon + \rho K_d} \frac{\delta}{\tau^2} D_0 \quad \rightarrow \quad K_d = \frac{\varepsilon}{\rho} \left( \frac{D_0}{D_a} \frac{\delta}{\tau^2} - 1 \right)$$

ここで、 $D_a$ ：見かけの拡散係数（In-Diffusion法で得られる）

$\tau^2$ ：屈曲度（トリチウムのIn-Diffusion法で得られる）

$\delta$ ：収斂度（電気2重層モデルより計算される）

②見かけの拡散係数と実効拡散係数から与える

$$K_d = \frac{1}{\rho} \left( \frac{D_e}{D_a} - \varepsilon \right)$$

ここで、 $D_a$ ：見かけの拡散係数（In-Diffusion法で得られる）

$D_e$ ：実効拡散係数（Through-Diffusion法で得られる）

③OECD/NEAのSDBから引用する

また、PuとAmについてはイオン交換モデルによって予測した分配係数も用いて評価した。

## ・評価結果

表2-2にウラン、プルトニウム、アメリシウム、ネプツニウムの評価結果注を示す。評価は、分配係数をどのように与えるかによって結果が左右されるため、表には、分配係数を4通りの異なった与え方をして比較をしてある。当然、パラメータである分配係数によって、溶解度は異なった値を示すが、何れの元素も $10^{-6}\text{mol/L}$ 以下の濃度であった。

一方、表2-3には、PHREEQE（イオン交換反応の修正前のバージョンによる）の解析結果を示す。溶解度制限固相の選定によって計算される溶解度は異なるが、上記の測定による推定値とは1桁以上、ウランの場合には数桁、結果が異なっていることが判る（図2-7参照）。このように、実験による推測値と計算値とに大きな乖離があると、核種溶解度を地層処分の安全担保要因の一つとして掲げるには、今一つ信頼性にかけると言わざるを得ない。

試験と計算との不一致の原因については、下記に示すいくつかの解釈が可能であり、現段階で特定することはできない。

- ・ 計算に用いる熱力学データに不備がある。
- ・ 活量補正等、溶解度の計算手法に不備がある。
- ・ 溶解度が正確に得られる試験条件になっていない。

これらの解釈に対して、今後どの様に対応すべきかを、実験側および計算側各々について、検討を進める必要があるものと考えられる。

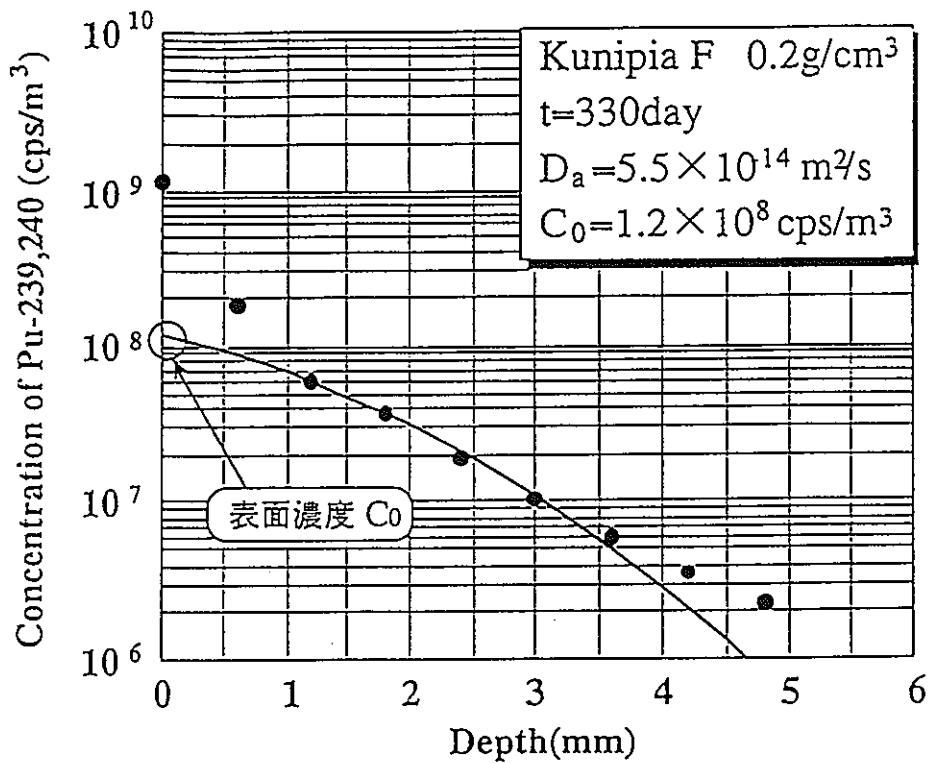


図2-6 In Diffusion法による濃度プロファイルと拡散式へのフィッティング

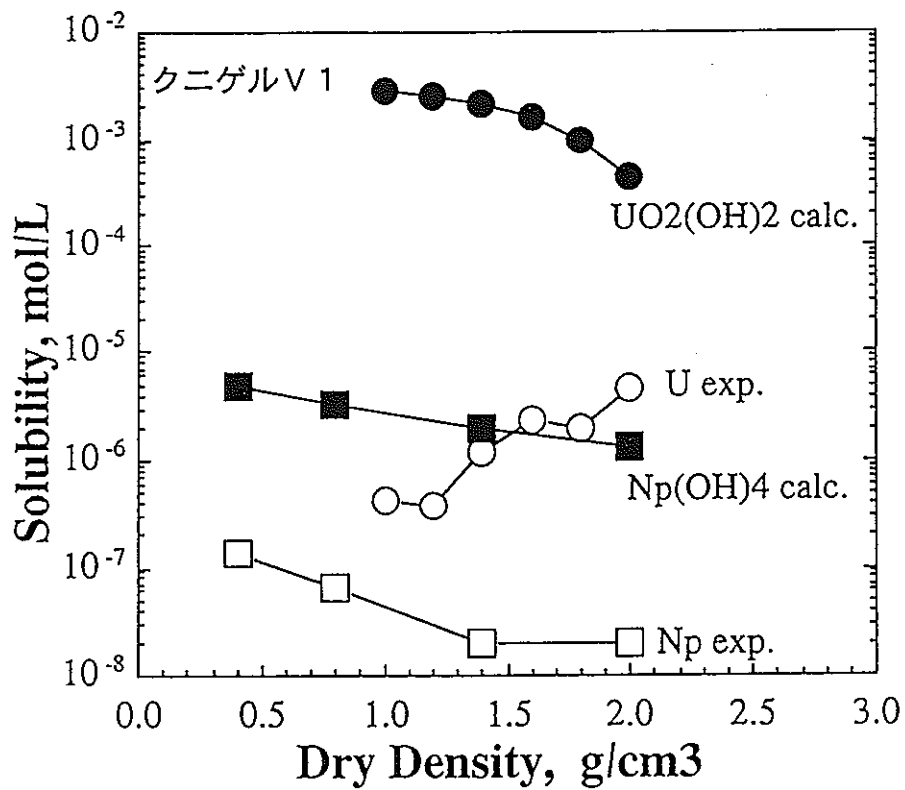


図2-7 ベントナイト間隙水中の核種溶解度

表2-2 In Diffusion試験結果から推定した溶解度

核種	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	拡散試験結果から推定した溶解度 (mol/l)			
		分配係数の 与え方 $K_d = \left[ \frac{\epsilon}{\rho} \frac{D_0}{D_a} \frac{\delta}{\tau^2} - 1 \right]$	NEA-SDBの幅	I-D及びT-D 試験から得られる 分配係数 $K_d = \frac{1}{\rho} \left[ \frac{D_0}{D_a} - \epsilon \right]$	イオン 交換 モデル
U	1.0	4.2e-7	7.2e-6~2.2e-8	1.6e-6	—
	1.2	3.9e-7	5.9e-6~1.6e-8	—	—
	1.4	1.2e-6	7.7e-6~2.0e-8	8.8e-6	—
	1.6	2.3e-6	8.3e-6~2.0e-8	—	—
	1.8	2.0e-6	5.0e-6~1.2e-8	—	—
	2.0	4.7e-6	2.9e-6~6.7e-9	5.9e-7	—
Pu	0.2	3.4e-10	1.9e-8~4.2e-10	—	1.7e-6
	0.4	2.8e-10	1.6e-8~3.6e-10	—	2.5e-6
	0.6	2.6e-11	2.4e-9~5.3e-11	—	2.5e-7
Am	1.4	7.8e-13	7.2e-11~1.0e-12	—	4.0e-11
Np	0.4	1.4e-7	2.7e-7~1.3e-8	—	—
	0.8	6.7e-8	3.2e-7~1.3e-8	—	—
	1.4	2.0e-8	1.2e-7~4.8e-9	—	—
	2.0	2.0e-8	5.9e-8~2.2e-9	—	—

表2-3 PNC-TDBH31を用いてPHREEQEにより計算した溶解度

核種	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	PHREEQEにより計算した溶解度 (mol/l)			
		溶解度制限固相	UO <sub>2</sub> (OH) <sub>2</sub>	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	
U	1.0	溶解度制限固相	2.9e-3	2.9e-2	
	1.2		2.6e-3	3.0e-2	
	1.4		2.2e-3	3.0e-2	
	1.6		1.6e-3	2.9e-2	
	1.8		9.9e-4	2.4e-2	
	2.0		4.3e-4	1.7e-2	
Pu	0.2	溶解度制限固相	PuO <sub>2</sub>	Pu(OH) <sub>4</sub>	Pu(OH) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>
	0.4		4.8e-12	1.2e-4	1.6e-4
	0.6		1.3e-11	3.2e-4	4.4e-4
Am	0.6		2.5e-11	6.1e-4	8.3e-4
	1.4	溶解度制限固相	AmOHCO <sub>3</sub>		
Np	1.4		5.6e-10		
	0.4	溶解度制限固相	NpO <sub>2</sub>	Np(OH) <sub>4</sub>	NpO <sub>2</sub> OH
	0.8		1.9e-9	4.9e-6	3.8e-4
	1.4		1.2e-9	3.3e-6	3.3e-4
Np	1.4		7.3e-10	2.0e-6	2.8e-4
	2.0		4.1e-10	1.3e-6	2.3e-4



## b. 電気2重層モデルの限界

これまで、イオンを大きさの無い点電荷とし、また、イオン粒子を連続体と見なすことによって、Poisson-Boltzman方程式に立脚した電気2重層モデルをもとに、緩衝材中の微小間隙水中のイオンの活量係数の導出について検討を行ってきた。その際、冒頭にある”点電荷”および”連続体”を自明の前提としてきた。しかし、微小間隙中で、これらの前提が成り立つことは確認されておらず、

◆ベントナイト間隙水の蒸気圧測定<sup>注1</sup>からは、間隙中の水分子は強く束縛されており、むしろ固体の氷に近い状態にある。

◆ベントナイトの膨潤圧は、電気2重層の斥力から説明される浸透圧よりも1桁以上高い<sup>注2</sup>。

など、Poisson-Boltzman方程式の適用に疑問を呈する結果が得られるようになった。

簡単な例として、電気2重層モデルが成り立つか否かを幾何学的な面から検討してみる。まず、ベントナイト間隙水の化学組成を、実測から1:2電解質(Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>相当)にみなす。このとき、固体表面のイオン雰囲気を示す拡散電気2重層の厚さは次式で示される、Debye長さ $1/\kappa$ 「nm単位」で特徴づけられる。

$$\frac{1}{\kappa} = \left( \frac{e^2 \sum_i \rho_{\infty}^i z_i^2}{\epsilon_r \epsilon_0 k T} \right)^{1/2} \cong 0.176 \sqrt{[\text{Na}_2\text{SO}_4]} \quad (25^\circ\text{C})$$

ただし、  
e : 電荷素量  
 $\rho_{\infty}$  : バルク溶液中のモル濃度  
z : イオンの電荷  
 $\epsilon_r$  : 溶液の比誘電率  
 $\epsilon_0$  : 自由空間の誘電率  
k : ボルツマン定数  
T : 絶対温度

注1) Y. Torikai, S. Sato, and H. Ohashi, Mat. Res. Soc. Symp. Proc, 353, 321 (1995).

注2) 大江、弥生研究会、平成7年12月、東京大学。にて講演。発表要旨印刷中。

表2-4 Debye長さと圧縮ベントナイトの間隙幅

固液比 g/L	Na <sup>+</sup> mol/L	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> mol/L	[Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> ] mol/L	Debye長さ Å	圧縮ベントナイトの 間隙幅の1/2* Å
800	8.94E-2	4.16E-2	4.32E-2	0.366	38.2
1000	1.10E-1	5.05E-2	5.05E-2	0.396	30.6
2000	2.07E-1	9.18E-2	9.77E-2	0.550	15.3
4000	3.94E-1	1.67E-1	1.82E-1	0.751	7.46
6000	5.73E-1	2.35E-1	2.61E-1	0.899	6.89
8000	7.49E-1	3.00E-1	3.37E-1	1.022	3.82

\* 小峰、緒方、電力中央研究所報告 U90024, (1990). に記載の方法による推測。

上記式に、地球化学コード「PHREEQE」によるNa<sup>+</sup>およびSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>イオンの計算濃度を代入すると、Debye長さが求められる。このパラメータと、圧縮ベントナイトの間隙幅の推定値を比べると、図2-8のような関係が得られる。

この図からは、密度が大きくなり、ベントナイトの圧縮度が上昇すると、乾燥密度が1.7g/cm<sup>3</sup>（固液比で4000g/L以上）を超えると、1つの平面に対しての間隙幅がDebye長さの10倍程度しかないことが推測される。つまり、圧縮されたベントナイトの間隙には、拡散2重層が発達するに十分なスペースがあるとは、言いがたい。このことから、圧縮度が高い場合には、電気2重層モデルを援用することに問題があると考えられる。

また、電気2重層モデルの適用性の限界を示すものとして、ベントナイトの膨潤圧の計算があげられる。これは、電気2重層（特に拡散層）の重なりによる静電的反発力によって膨潤圧が発生する、という考え方<sup>2</sup>である。

$$P = 1.59 \times 10^8 C \gamma^2 \exp(-\kappa D)$$

ただし、  $\gamma = \tanh(e \phi_d / 4 kT)$

$$\kappa = \sqrt{C} / 0.304$$

D : 面間隔

$\phi_d$  : 拡散層電位

C : 電解質濃度 (1:1電解質に近似)

注) イスラエルアチヴィリ、「分子間力と表面力」、p182

粘土の膨潤圧の原因には、電気2重層による電氣的斥力（これを外部膨潤と呼ぶ）以外に、スメクタイト結晶層への水分子の侵入による層間距離の増加が上げられる（これを内部膨潤と呼ぶ）ベントナイトの膨潤圧が必ずしもすべて外部膨潤によるものとは限らないが、ここでは電気2重層理論のみから膨潤圧を説明するか否かを吟味する。

拡散層電位を入力パラメータとし、また、電解質濃度は1:1電解質に換算した値として、浸透圧を計算した結果を図2-9に示す。クニゲルV1で乾燥密度1.5~2.0g/cm<sup>3</sup>の圧縮試料に対して実測された膨潤圧1~10MPaに匹敵する浸透圧を発生するには、拡散層電位は100mVのオーダーになければならない。

ところで、拡散層電位は、ゼータ電位に近く、ここではクニゲルV1固液比1g/L、電解質濃度NaCl 0.02Mでの測定値-21.8mVを想定すると、必要な拡散層電位のレベルに達しない。また、Gouy-Chapmann理論から、

$$\sigma_d = 0.177 \sinh(\varphi_d / 51.4) \sqrt{C}$$

より、電荷密度 $\sigma_d$ が0.1C/m<sup>2</sup>以上でないと、拡散層電位は100mVに達しない。しかし、pH滴定から求められる表面電荷密度はせいぜい0.01C/m<sup>2</sup>程度であり、これからも膨潤圧を説明できないことがわかる。

### c. Pitzerモデル<sup>注</sup>

半経験的なDebye-Huckel式に代わるものとして、Pitzerモデルによる活量補正式が提案されている。

半経験的なDebye-Huckel式

$$\log \gamma_{\pm} = -S_{\gamma} |z_+ z_-| \frac{\sqrt{I}}{(1 + B a \sqrt{I})} + b \cdot I$$

---

注) Y. Marcus著、池田他訳、「マ-ス液体化学入門」、化学同人、1982年

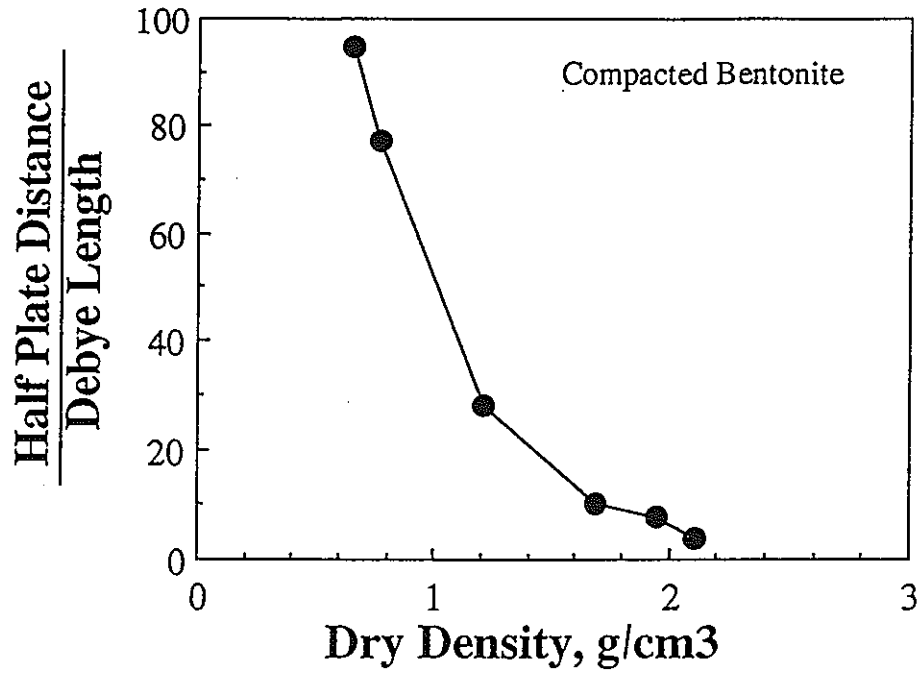


図2-8 デバイ長さとベントナイトの面間隔の1/2との比

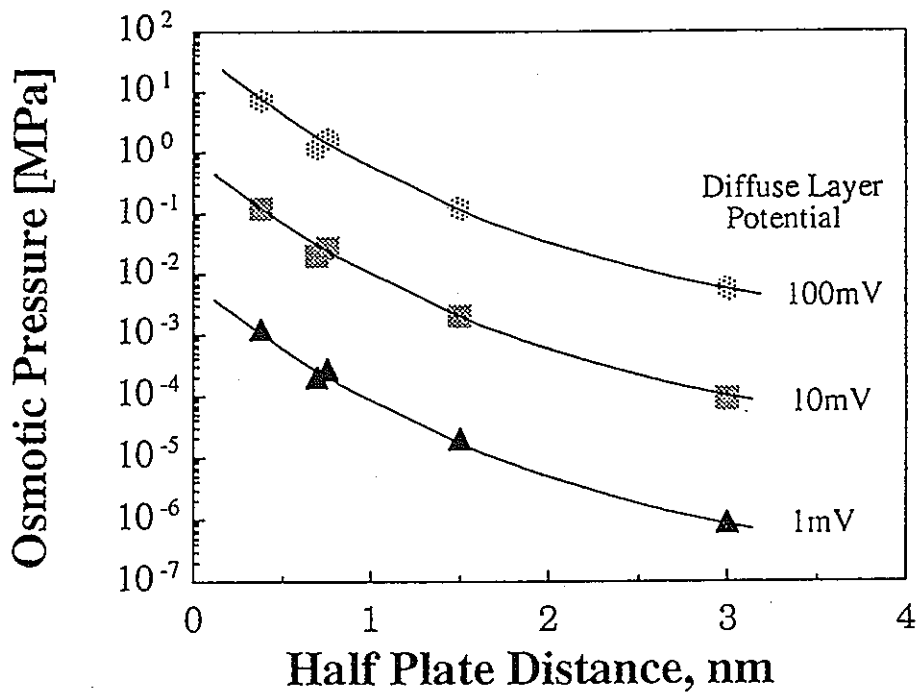


図2-9 電気2重層モデルによる浸透圧の計算値

このDebye-Huckel式は、静電的な寄与のみから算定した活量係数 $\log \gamma_{\pm}^e$ が、実際とは合わないため、経験的に濃度に比例する項  $b \cdot I$  " b-dot" を付加したものである。Pitzerモデルでは、この項が、単純に、濃度に線形に依存するのではなく、結果的には  $b$  自身が  $I$  に依存するというものである。

Pitzerモデルでは、2体のイオンの相互作用を短距離作用と長距離作用に分けて考え、前者は剛体球ポテンシャルを、後者は静電ポテンシャルを、各々根元とすると考える。係数  $b$  の濃度依存性は、前者の効果によるものである。

Pitzerモデルにおいても、溶液中のイオンの分布を動径分布関数  $g(r)$  とすれば、

$$g(r) = \exp\left(-\frac{U_{ij}(r)}{kT}\right) = 1 - \frac{U_{ij}(r)}{kT} + \frac{1}{2!} \left(\frac{U_{ij}(r)}{kT}\right)^2 - \frac{1}{3!} \left(\frac{U_{ij}(r)}{kT}\right)^3 + \dots$$

ただし、 $U_{ij}(r) = z_i e \cdot \varphi_j(r)$

イオン  $i$  の静電ポテンシャルエネルギー  $U_{ij}(r)$  は、 $r$  離れた距離にあるイオン  $j$  との間の平均の場のポテンシャルに相当する、と考え（これがDebye-Huckel理論の本質である）、Poisson-Boltzman 方程式から（Debye-Huckel近似を取り入れて）平均の場のポテンシャルを求めると、

$$\varphi_j(r) = \left( \frac{z_j e}{\epsilon_0 \epsilon_r} \frac{e^{\kappa a}}{1 + \kappa a} \frac{e^{-\kappa r}}{r} \right)$$

液体に対する浸透係数の定義から、

$$\phi = 1 - (2/3) \sum_i \sum_j c_i c_j \left( \sum_i c_i \right)^{-1} \int_0^\infty \left[ \frac{r}{kT} \frac{\partial u_{ij}(r)}{\partial r} g_{ij}(r) 4\pi r^2 \right] dr$$

上記式に、剛体球ポテンシャルと静電ポテンシャルを、各々以下の範囲について代入し、

$$\left( \begin{array}{ll} r < a, & u_{ij}(r) = \infty & \text{剛体球ポテンシャル} \\ r \geq a, & u_{ij}(r) = \frac{z_i z_j e^2}{\epsilon_0 \epsilon_r} & \text{静電ポテンシャル} \end{array} \right.$$

ただし、 $a$  はイオンの平均直径

さらに、動径分布関数の展開式の第3項以下を切り捨てると、

$$\phi = 1 - \frac{z^2 e^2}{6 \epsilon_0 \epsilon_r kT (1 + \kappa a)} + \left( \frac{2\pi}{3} \right) a^3 N_A C_s \\ + \left( \frac{\pi}{3} \right) \left( \frac{z^2 e^2}{\epsilon_0 \epsilon_r kT} \right)^2 \frac{a}{(1 + \kappa a)^2} N_A C_s$$

浸透係数  $\phi$  の右辺第1項は静電効果による長距離作用に、第2、3項は剛体球同士の反発による斥力を示す。浸透係数から活量係数を知ることができ、2つの普遍的パラメータと2つのイオンに固有のパラメータとによって、実測値と合うように調節ができる。

以上、示したように、Pitzerモデルは

- ・イオン-イオン間の相互作用を、到達距離によって、短距離力の剛体球ポテンシャルと長距離力の静電ポテンシャルの2つの力に分割して考える。
- ・イオンの分布を動径分布関数  $g(r)$  から記述する。

以上の2つの特徴があることが判る。ただし、球体のイオン同士の相互作用を考え、固体のような平面との相互作用を考慮していないので、固液界面での相互作用が問題となるような系にはそのまま適用できない。

---

注) K. S. Pitzer, J. Phys. Chem., 77(2), 268(1973).

## (2) 溶液理論による解析<sup>注</sup>

固体と気体には、その状態を記述する理想的なモデルが存在し、その物理的性質を予測するための理論的考察の出発点となり得る。つまり、固体では結晶構造が規則的であることを重視した結晶格子モデルがあり、気体では原子や分子の位置や運動状態が熱運動によって不規則に変化するため、統計的な手法を採用することで状態を記述する理想気体モデルがある。しかし、液体は固体と気体の中間領域にあるため、必然的に構造の規則性と熱運動とを同時に考慮しなければならず、今のところ理想化されたモデルは存在しない。

溶液の状態を記述するには、分子やイオンが多数存在し、互いの相互作用を考慮した多体問題を解析する必要がある、多体粒子間のエネルギー相互作用を取り扱うために統計熱力学の範疇に踏み込まざるを得ない。これが溶液の状態を解析することを著しく困難にしている。

そのため、ここでは、非常に簡単な例を用いて、溶液理論の概要を説明する。最終的な目標は、平面に囲まれた微小領域内でのイオンの分布を求め、それを基に活量係数を算定し、溶解度の補正に繋げることである。そのためには、まず、溶液中でのイオンの分布を溶液構造論を用いて求めることを考える。とりあえず、ここでは平面であることは考慮せず、球体のみを考え、最終的に1つの球体の半径が無限大の極限として平面を取り扱う方向にすすむことにする。

---

注) 本報告では、以下の成書の記述を適宜引用する。

- ・ Y. Marcus 著、池田他訳、「マ-カス液体化学入門」、化学同人、1982年。
- ・ 原島鮮、「熱力学 統計力学」、培風館、昭和53年。
- ・ N. E. Cusak 著、遠藤、八尾訳、「構造不規則系の物理(上)」、吉岡書店、1994年。
- ・ P. A. Egelstaff 著、廣池、守田訳、「液体論入門」、吉岡書店、1971年。
- ・ J. N. Israelachvili 著、近藤、大島訳、「分子間力と表面力」、マグロウヒル、1993年。

a. 用語と仮定

ある一つのイオンが原点にあると考え、そこを中心にイオンがどのように分布するかを求める。通常、これは2体分布関数を求めることであるが、動径分布関数を2体分布関数の代わりに用いることができる。本報告書のゴールは、動径分布関数を求める道筋を示すことである。その際、簡単化のために導入した幾つかの用語および近似を、以下に示す。

・ 2体力近似

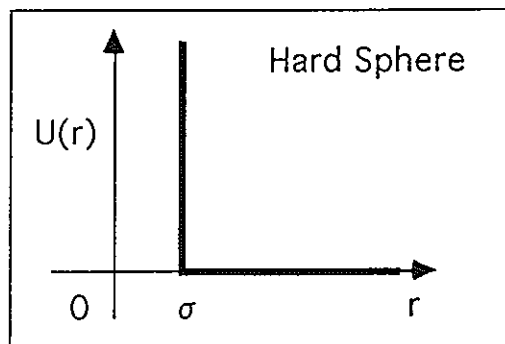
まず、2体力近似を採用する。すなわち、密な液体中で3個以上の粒子（分子やイオン）が互いに接近して存在するが、系のエネルギー  $U$  は粒子が2個ずつ存在するときのエネルギー  $u(r_{ij})$  の和で近似でき、3体力以上の多体力を無視する。すなわち、

$$\Phi = \sum_{1 \leq i < j \leq N} u(r_{ij})$$

・ 剛体球近似

溶液中の粒子を、パチンコ玉のような固い球とする。これは粒子が固い中心を持つと考えると妥当な問題に対しては良い近似となる。剛体球近似の場合の2粒子間ポテンシャルは次のように表される。ただし、 $r$  は粒子1と2の間の距離であり、 $\sigma$  は球の直径である。

$$\begin{aligned} u(r) &= +\infty & r < \sigma \\ u(r) &= 0 & r \geq \sigma \end{aligned}$$





## ・ 2体分布関数

分布関数は、溶液中で粒子が熱平衡にある時、ある特定の配置をとる確率を表すもので、そのうち、2体分布関数は、位置  $r_1$  にある体積要素  $dv_1$  の中に1つの粒子がある時、同時に位置  $r_2$  にある体積要素  $dv_2$  の中にもう1つの粒子を見いだす確率で、残りの粒子がどこにあるかは問わない。式で表せば次のようである。

$$n_N^{(2)}(r_1, r_2) = \frac{N!}{(N-n)!} \frac{\int_V \cdots \int \exp\left[-\frac{u(N)}{kT}\right] dv_1 dv_2 \cdots dv_{N-n}}{Z_N}$$

ただし、  
N : 粒子個数  
k : ボルツマン定数  
T : 絶対温度  
 $dv_i$  : 座標位置  $r_i$  にある体積要素  
 $Z_N$  : 配置積分

$$Z_N = \int_V \cdots \int \exp\left[-\frac{u(N)}{kT}\right] dv_1 dv_2 \cdots dv_N$$

右辺中の  $N!/(N-n)!$  は、N個の粒子の中からn個の粒子を選んで、体積要素  $dv_1 \cdots dv_n$  中に配置する方法の数である。また、積分項は残りの  $N-n$  個の粒子が任意の配置をとる確率の和である。この2つの項の積事象として、2体分布関数が表される。

## ・ 動径分布関数

2体分布関数の代わりに用いられ、 $r \rightarrow \infty$  の時  $g(r) = 1$  となるように規

格化したもので、次式で定義される。動径分布関数は、1つの粒子が原点にある時、位置  $r$  にもう一つの粒子を見いだす確率である。

$$g(r) \equiv \left(\frac{V}{N}\right)^2 n_N^{(2)} = \frac{1}{n_0^2} \cdot n_N^{(2)}$$

ただし、 $n_0$  : 粒子の個数密度

$N \gg n$  とみなせると、

$$\ln \frac{N!}{(N-n)!} = \ln N! - \ln(N-n)! \cong N \cdot \ln \frac{N}{N-n} + n \cdot \ln(N-n) \cong n \cdot \ln N$$

よって

$$\frac{1}{n_0^n} \cdot \frac{N!}{(N-n)!} \cong \frac{N^n}{n_0^n} = V^n$$

2体分布関数から、

$$\frac{1}{n_0^2} \cdot n_N^{(2)}(r_1, r_2) = \frac{1}{n_0^2} \cdot \frac{N!}{(N-2)!} \frac{\int_V \cdots \int \exp\left[-\frac{u(N)}{kT}\right] dv_1 dv_2 \cdots dv_{N-n}}{Z_N}$$

$$g(r) = V^2 \int_V \cdots \int \exp\left[-\frac{u(N)}{kT}\right] dv_1 dv_2 \cdots dv_{N-2} / Z_N$$

厳密には、粒子の分布を知るには多体分布関数を用いるべきであるが、具体的に用いるのは困難であり、通常は2体分布関数あるいは動径分布関数のみで議論する場合が殆どである。

・ 平均力ポテンシャル  $\phi(r)$

動径分布関数は、あるポテンシャルで相互作用している2つの粒子が、熱平衡状態で  $r$  だけ離れた位置に見いだす確率を示していると解釈できるので、熱平衡を表すボルツマン因子の形式になるように動径分布関数を指数関数で表した時、そのポテンシャルを平均力ポテンシャルという。

$$g(r) = \exp\left\{-\frac{\phi(r)}{kT}\right\}$$

・ 相関関数

例えば2体相関関数  $g(r_1, r_2)$  は、2体分布関数と次の関係がある。

$$n_N^{(2)}(r_1, r_2) = n_N^{(1)}(r_1) \cdot n_N^{(1)}(r_2) \cdot g(r_1, r_2)$$

$r_1$  に粒子があることに対して、 $r_2$  にある粒子の影響がなければ2体分布関数は、単に1体分布関数の積でよいから、

$$g(r_1, r_2) = 1$$

となる。つまり、2体相関関数は  $r_1$  に粒子があることと、 $r_2$  に粒子があることの相関を表す。また、1体分布関数は、ある座標において粒子を見いだす確率であるから、一様な溶液では、密度  $n_0$  と同じである。

$$n_N^{(1)}(r) = n_0 = \frac{N}{V}$$

よって、

$$n_N^{(2)}(r_1, r_2) = n_0^2 \cdot g(r_1, r_2)$$

同様に、

$$n_N^{(3)}(r_1, r_2, r_3) = n_0^3 \cdot g(r_1, r_2, r_3)$$

となり、 $n$ 体分布関数は、 $n$ 体相関関数と密度のべき乗の積で表すことができる。

### (3) 動径分布関数

#### a. 動径分布関数の導出

平均力ポテンシャル  $\phi(r)$  を粒子 1 の座標  $r_1$  で微分する。ポテンシャルを微分することは粒子 1 に作用する（平均的）力を求めることである。

$$\frac{\partial \phi(r)}{\partial r_1} = -kT \frac{\partial g(r) / \partial r_1}{g(r)}$$

平均力は、あるいは次のようにしても得られる。まず、2体力  $u(r)$  を座標で微分する。

$$-\frac{\partial u(r)}{\partial r_1} - \int \frac{\partial u(s)}{\partial r_1} p(r_1, r_2, r_3) dv_3$$

第 1 項は粒子 2 が粒子 1 に及ぼす力であり、第 2 項は粒子 3 が粒子 1 に及ぼす力である。この第 2 項は、粒子 1 と粒子 3 との間の 2 体力による力に、 $p(r_1, r_2, r_3)$  を乗じたものである。 $p(r_1, r_2, r_3)$  は、最初の 2 つの粒子 1, 2 が座標  $r_1$  と  $r_2$  に存在する時に、粒子 3 が座標  $r_3$  に存在する確率に相当する。

上記の 2 式から、

$$-kT \frac{\partial g(r) / \partial r_1}{g(r)} = -\frac{\partial u(r)}{\partial r_1} - \int \frac{\partial u(s)}{\partial r_1} p(r_1, r_2, r_3) dv_3$$

これを変形して、

$$\frac{\partial g(r)}{\partial r_1} \cdot \frac{1}{g(r)} + \frac{\partial u(r)}{\partial r_1} \cdot \frac{1}{kT} = -\frac{1}{kT} \int \frac{\partial u(s)}{\partial r_1} p(r_1, r_2, r_3) dv_3$$

さらに、

$$\frac{\partial}{\partial r} \left\{ \ln g(r) + \frac{u(r)}{kT} \right\} = - \frac{1}{kT} \int \frac{\partial u(s)}{\partial r_1} p(r_1, r_2, r_3) dv_3$$

積分により、

$$\ln g(r) + \frac{u(r)}{kT} = - \frac{1}{kT} \int_0^\infty dr' \int_v \frac{\partial u(s)}{\partial r_1} p(r_1, r_2, r_3) dv_3$$

何らかの方法で  $p(r_1, r_2, r_3)$  が与えられると、動径分布関数  $g(r)$  が求められる。しかし、

$$p(r_1, r_2, r_3) = \frac{n_N^{(3)}(r_1, r_2, r_3)}{n_N^{(2)}(r_1, r_2)}$$

であるから、動径分布関数（これは2体分布関数の代替である）を得るのに、3体分布関数  $n^{(3)}(r_1, r_2, r_3)$  が必要となり、同様に3体分布関数を得るのに4体分布関数が必要となり、4体分布関数を得るのに5体分布関数が．．．と袋小路の問題になってしまう。従って、何らかの近似の導入が不可欠となる。

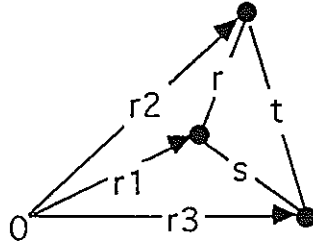
この近似として提案されているものには、次の3つが有名である。

- Born-Green-Yvon (BYG) 近似
- Percus-Yevic (PY) 近似
- Hyper-Netted-Chain (HNC) 近似

b. BGY近似

BGY近似は3体分布関数を、Kirkwoodの重ね合わせの原理により、2体分布関数の積で近似する方法である。

$$n_N^{(3)}(r_1, r_2, r_3) = \frac{n_N^{(2)}(r) \cdot n_N^{(2)}(s) \cdot n_N^{(2)}(t)}{n_0}$$



c. HNC近似とPY近似

HNC近似やPY近似では、3体分布関数の近似を行わず、別の方法を採用する。説明の都合上、まず、全相関関数 $h(r)$ なるものを導入する。相関関数とは、2体相関関数 $g(r_1, r_2)$ では、 $r_1$ に粒子があることと、 $r_2$ に粒子があることの相関を表し、一般に、 $n$ 体分布関数は、 $n$ 体相関関数と密度のべき乗の積で表すことができる。

さて、全相関関数 $h(r)$ は、粒子1の粒子2への”直接の効果”を示す直接相関関数 $c(r)$ と、他の全ての粒子による”間接の効果”を足しあわせたものとして表現する。その”間接効果”を $h(r)$ と $c(r)$ のたたみこみで表す方法がOrnstein-Zernike方程式である。すなわち、粒子1と粒子2の直接相関関数を $c(1,2)$ 、全相関関数を $h(1,2)$ とした場合、OZ方程式は、

$$h(1,2) = c(1,2) + n_0 \int c(1,3) h(2,3) dv_3$$

直接相関関数 $h(2,3)$ は同じく、

$$h(2,3) = c(2,3) + n_0 \int c(2,4) h(3,4) dv_4$$

これを繰り返せば、

$$h(3,4) = c(3,4) + n_0 \int c(3,5) h(4,5) dv_5$$

よって、全相関関数を逐次代入すると

$$h(1,2) = c(1,2) + n_0 \int c(1,3) \left\{ c(2,3) + n_0 \int c(2,4) h(3,4) dv_4 \right\} dv_3$$

$$h(1,2) = c(1,2) + n_0 \int c(1,3) \left\{ c(2,3) + n_0 \int c(2,4) \left[ c(3,4) + n_0 \int c(3,5) h(4,5) dv_5 \right] dv_4 \right\} dv_3$$

これを整理して、

$$\begin{aligned} h(1,2) &= c(1,2) + n_0 \int c(1,3) c(2,3) dv_3 dv_4 \\ &\quad + n_0^2 \iint c(1,3) c(2,4) c(3,4) dv_3 dv_4 dv_5 \\ &\quad + n_0^3 \iiint c(1,3) c(2,4) c(3,5) \cdots dv_3 dv_4 dv_5 dv_6 + \cdots \end{aligned}$$

となり、全相関関数を密度  $n_0$  の級数によって展開できる。

d. クラスタ展開

被積分関数は直接相関関数  $c(r)$  の積であるから、2粒子間のポテンシャル  $u(r_{ij})$  を用いて、次のように表される。すなわち、動径分布関数  $g(r)$  は、平均力ポテンシャル  $\phi(r)$  で相互作用する2つの粒子が熱平衡状態において互いに  $r_{ij}$  だけ離れた位置に見いだされる確率であり、

$$g(r) = \exp\left[-\frac{\phi(r)}{kT}\right]$$

$g(r)=1$  の時に2つの粒子に相関が無いことであるから、全相関関数を平均力ポテンシャル  $\Phi$  の関数として、次のように表すことができる。

$$h(i,j) = \exp\left[-\frac{\Phi}{kT}\right] - 1$$

2体力近似から、

$$\Phi\{N\} = \sum_{1 \leq i < j \leq N} u(r_{ij})$$

従って、

$$\begin{aligned} \exp\left\{-\frac{\Phi}{kT}\right\} &= \exp\left\{\sum_{1 \leq i < j \leq N} u(r_{ij})\right\} = \exp\left\{-\frac{1}{kT} [u(r_{12}) + u(r_{13}) + \dots]\right\} \\ &= \prod \exp\left\{-\frac{u(r_{ij})}{kT}\right\} = \prod (1 + f_{ij}) \end{aligned}$$

ただし、  $f_{ij} = \exp\left\{-\frac{u(r_{ij})}{kT}\right\} - 1$  : Mayerの  $f$  関数



ここで  $f_{ij}$  をわざわざ定義するのは、 $r_{ij} \rightarrow 0$  の時  $u(r_{ij}) \rightarrow \infty$  となり、 $\exp\{-u(r_{ij})/kT\}$  が扱いにくいのに比べ、 $f_{ij} \rightarrow 1$  となる有界な関数であるからである。

新たな関数  $f_{ij}$  を用いて、直接相関関数の積は次のような密度展開となることが示されている。また、Mayerの  $f$  関数の組み合わせで表す方法をクラスター展開という。

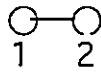
$$\begin{aligned} \alpha(1,2) = & f_{12} + n_0 \int f_{12} f_{31} f_{23} dv_3 \\ & + n_0^2 \int \cdot \int ( f_{12} f_{23} f_{34} f_{14} + 2 f_{12} f_{23} f_{34} f_{14} f_{13} \\ & + \frac{1}{2} f_{12} f_{23} f_{34} f_{14} f_{24} f_{13} + \\ & \frac{1}{2} f_{13} f_{23} f_{24} f_{14} + \frac{1}{2} f_{12} f_{23} f_{14} f_{24} f_{13} \\ & + \frac{1}{2} f_{23} f_{34} f_{14} f_{24} f_{13} ) dv_3 dv_4 \\ & + n_0^3 \int \cdot \int \cdot \int ( \dots \dots \end{aligned}$$

密度の3次の項には、全体で238個のクラスターが含まれるので、これを全て求めるのは事実上不可能に近い。そこで、グラフ理論が用いられる。

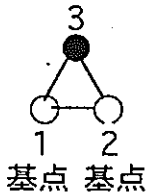
#### e. グラフ理論

直接相関関数  $C(r)$  は、接続点も節点も含まないグラフの組として評価できる。接続点とは、ある点から別の点へ移動する際、全ての経路が通過しなければならない点、節点とは、2つの基点間にある接続点で、当然全ての経路は節点を通らなければならない。直接相関関数は、粒子1と粒子2との間の“直接効果”を示すものであるから、粒子1と粒子2との間にダイレクトな

結合があり、それに第3、第4の粒子が関与する。具体的にこのケースのグラフを示すと、



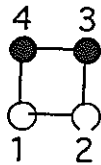
粒子1と粒子2の直接結合： $f_{12}$ を示す。



粒子1と粒子2の結合に、粒子3が影響を与える：

$$n_0^2 \int (f_{12} f_{23} f_{31}) dv_3$$

を示し、●は積分操作を意味する。

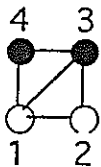


粒子1と粒子2の結合に、粒子3と4が影響を与える：

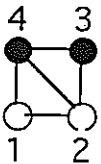
$$n_0^2 \int (f_{12} f_{23} f_{34} f_{41}) dv_3 dv_4 \text{ を示す。}$$

粒子1と粒子2の結合に、粒子3と4が影響を与える：

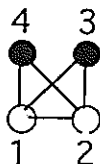
粒子1が粒子4と相互作用を持たないのは、両者の距離が粒子1と粒子3との距離よりも遠いケースだからである



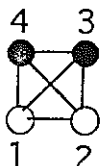
$$n_0^2 \int (f_{12} f_{23} f_{34} f_{41} f_{13}) dv_3 dv_4$$



$$n_0^2 \int (f_{12} f_{23} f_{34} f_{41} f_{14}) dv_3 dv_4$$



$$n_0^2 \int (f_{12} f_{23} f_{41} f_{13} f_{24}) dv_3 dv_4$$



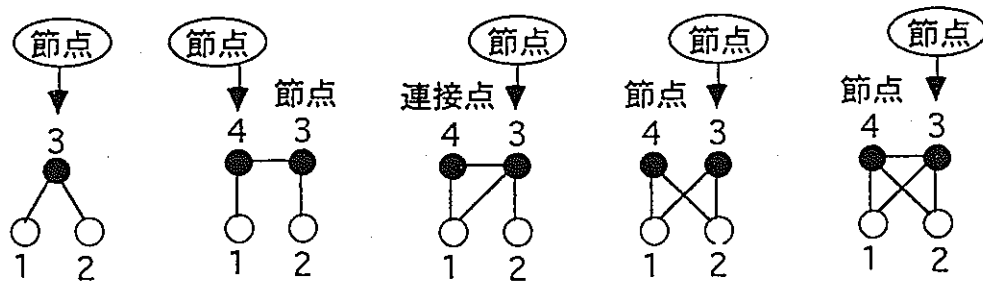
$$n_0^2 \int (f_{12} f_{23} f_{34} f_{41} f_{13} f_{24}) dv_3 dv_4$$

上記のケースには、接続点も節点も存在しない。なぜならば、点1と点2の間に直接結合があるため、この経路を通過すれば、点3あるいは4を経由する必要がないからである。

接続点のみを含むケースは次の例であり、点5から別の点へ移動するには、どの点が目的地であろうと、必ず点4を通らねばならないので、点4は接続点である。また類似した配置であっても、基点間に直接の結合がない場合には、同じ位置にありながら、点4は基点の間に存在する特別な接続点、すなわち節点となる。この2ケースは当然直接相関関数では考慮しない。また、接続点4と点5は基点と相互作用（相関）が無いことも図から判る。すなわち接続点を含むグラフは相関関数から除外されなければならない。



”間接効果”の評価には少なくとも1個の節点を含むグラフの組を考える。これには、次のようなものがある。いずれも基点1と2の間に直接の結合はない。



全相関関数は、”直接効果”のグラフ（接続点も節点も含まない）と”間接効果”のグラフ（少なくとも1個の節点を含む）の和を考えれば、全ての相関を包含できる。従って、全相関関数の密度展開を考えるには、各々の効果のグラフも密度展開を考え、和をとればよい。

"直接効果"のグラフの項：

$$f(i,j) = \text{---} + n_0 \text{---} + n_0^2 \left( \text{---} + 2 \text{---} + \text{---} + \text{---} \right) + \dots$$

"間接効果"のグラフの項：

$$b(i,j) = n_0 \text{---} + n_0^2 \left( \text{---} + 2 \text{---} \right) + \dots$$

PY近似は、"直接効果"のグラフのうち、基点1と2の粒子のいずれか一方の粒子と相互作用する近距離相互作用のみを考え、他のグラフを省略する。すなわち、交差した対角線を持つ成分を落とす。これは、基点粒子の両方と干渉する粒子の相互作用を無視することであり、反発力が重要となる系では、互いに打ち消しあうので、この省略は妥当である。

$$f(i,j)^{PY} = \text{---} + n_0 \text{---} + n_0^2 \left( \text{---} + 2 \text{---} \right) + \dots$$

密度級数展開をPY近似から計算すると、級数の和は次の関数に近似できる。

$$c(r) \cong g(r) (1 - e^{u(r)/kT})$$

従って、OZ方程式から全相関関数は

$$h(r) \cong g(r) (1 - e^{u(r)/kT}) + n_0 \int g(s) (1 - e^{u(s)/kT}) h(t) dv_3$$

これを变形して、

$$g(r) \cdot e^{u(r)/kT} = -h(r) + g(r) + n_0 \int g(s) (1 - e^{u(s)/kT}) h(t) dv_3$$

動径分布関数と全相関関数との間には、 $h(r) = g(r) - 1$  の関係 ( $g(r)$  は 2 体分布関数を  $r \rightarrow \infty$  で 1 に規格化したものである) があるから これを上記式に代入し、その後両辺の対数をとる、

$$\ln g(r) + \frac{u(r)}{kT} = \ln \left[ 1 + n_0 \int g(s) (1 - e^{u(s)/kT}) h(t) dv_3 \right]$$

右辺のカッコ内の第 2 項は、” 間接効果 ” に相当する項であるから、

$$\ln g(r) + \frac{u(r)}{kT} = \ln [1 + b(i,j)]$$

$$\ln g(r) + \frac{u(r)}{kT} = \ln [1 + b(i,j)] = \ln [1 + h(r) - c(r)]$$

従って、

$$\ln g(r) + \frac{u(r)}{kT} = \ln [g(r) - c(r)]$$

PY 近似

一方、HNC 近似は PY 近似よりも省略するグラフの数を制限し、次の ” 直接効果 ” に近似する。

$$f(i,j)^{HNC} = \text{---} + n_0 \text{---} + n_0^2 \left( \text{---} + 2 \text{---} + \text{---} \right) + \dots$$

HNC 近似の級数の和も次の関数に近似できる。

$$c(r) \equiv h(r) - \ln g(r) - \frac{u(r)}{kT}$$

よって、

$$\boxed{\ln g(r) + \frac{u(r)}{kT} = h(r) - c(r)} \quad \text{HNC近似}$$

である。

#### f. PY近似による剛体球の動径分布関数

##### ・Wertheimの解析解<sup>注</sup>

動径分布関数  $g(r)$  を次のように仮定する。動径分布関数が、取り扱いの不便な平均力ポテンシャル  $\Phi$  を用いて、ボルツマン形式の指数関数で記述されているため、より取り扱い易い2体ポテンシャル  $u(r)$  に置き換えて表現したいからである。従って、下式に現れる  $\tau(r)$  の項は、2体ポテンシャルで表現した場合の補正関数とみることができる。

$$g(r) = \exp\left(-\frac{u(r)}{kT}\right) \cdot \tau(r)$$

$$\begin{aligned} \text{ただし、} \quad & g(r) = 0, \quad r < \sigma \\ & g(r) = \tau(r), \quad r > \sigma \\ & c(r) = -\tau(r), \quad r < \sigma \\ & c(r) = 0, \quad r > \sigma \end{aligned}$$

直接相関関数は、短距離の近接相互作用を示すから、剛体球の直径よりも遠い距離では0である。また、 $g(r)$  は、粒子が剛体球の直径以上に近づけないから、 $r < \sigma$  の場合には0となる。

PY近似では、直接相関関数は

$$c(r) = g(r) \left[ 1 - \exp\left(-\frac{u(r)}{kT}\right) \right] = \tau(r) \cdot \left[ \exp\left(-\frac{u(r)}{kT}\right) - 1 \right]$$

---

注) M. S. Wertheim, Phys. Rev. Let., 10(8), 15(1963).

全相関関数の定義であるOrnstein-Zernike方程式から、

$$h(r) - c(r) = n_0 \int h(|r-r'|) c(r') dr'$$

さらに、 $h(r) = g(r) - 1$ 、および直接相関関数のPY近似式を代入して、

$$\begin{aligned} h(r) - c(r) &= [g(r) - 1] - c(r) \\ &= \left\{ \left[ \exp\left(-\frac{u(r)}{kT}\right) - 1 \right] \cdot \tau(r) - 1 \right\} - \tau(r) \cdot \left[ \exp\left(-\frac{u(r)}{kT}\right) - 1 \right] \\ &= \tau(r) - 1 \end{aligned}$$

さらに、OZ式の被積分関数を、上記の式を用いて整理すると、

$$\begin{aligned} h(|r-r'|) c(r') &= [\tau(|r-r'|) - 1 + c(|r-r'|)] \times \tau(r') \cdot \left[ \exp\left(-\frac{u(r')}{kT}\right) - 1 \right] \\ &= -\tau(r') \cdot \left[ \exp\left(-\frac{u(r')}{kT}\right) - 1 \right] \\ &\quad + \tau(|r-r'|) \cdot \tau(r') \cdot \left[ \exp\left(-\frac{u(r')}{kT}\right) - 1 \right] \cdot \exp\left(-\frac{u(|r-r'|)}{kT}\right) \end{aligned}$$

よって、

$$\begin{aligned} h(r) - c(r) &= -n_0 \int \tau(r') [e^{-u(r')/kT} - 1] dr' \\ &\quad + n_0 \int e^{-u(r-r')/kT} \tau(|r-r'|) \tau(r') [e^{-u(r')/kT} - 1] dr' \end{aligned}$$

$u(r)$ に剛体球ポテンシャルを入れると、

$$r' < \sigma, \quad u(r') = \infty, \quad \tau(r') [e^{-u(r')/kT} - 1] = \tau(r')$$

$$r' > \sigma, \quad u(r') = 0, \quad \tau(r') [e^{-u(r')/kT} - 1] = 0$$

最終的に、

$$\tau(r) = 1 + n_0 \int_{r' < \sigma} \tau(r') dr' - n_0 \int_{r' < \sigma, |r-r'| > \sigma} \tau(r') \tau(r-|r'|) dr'$$

これをLaplace変換して、整理すると

$$t[F(t) + G(t)] = \frac{1}{t} \left[ 1 + \frac{24\eta}{\sigma^3} \int_0^\sigma \tau(r) r^2 dr \right] - 12\eta [F(-t) - F(t)] G(t)$$

ただし、

$$F(t) = \frac{1}{\sigma^2} \int_0^\sigma r \tau(r) e^{-t \cdot r/\sigma} dr$$

$$G(t) = \frac{1}{\sigma^2} \int_\sigma^\infty r \tau(r) e^{-t \cdot r/\sigma} dr$$

$$\eta = \frac{1}{6} \pi \sigma^3 n_0 \quad (\sigma \text{ は剛体球の直径、} n_0 \text{ は個数密度})$$

$r < \sigma$  では  $c(r) = -\tau(r)$  であるので、直接相関関数を次の多項式に想定する。

$$-c(r) = \alpha + \beta \left( \frac{r}{\sigma} \right) + \gamma \left( \frac{r}{\sigma} \right)^2 + \delta \left( \frac{r}{\sigma} \right)^3$$

多項式で表した  $c(r)$  ( $= -\tau(r)$ ) から、 $F(t)$  と  $F(-t)$  を求め、Laplace変換した式に代入して  $G(t)$  を  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  で表し得る。また、 $t$  が大きければ、 $G(t)$  は次の級数に展開でき、

$$G(t) e^t = \left[ \frac{\xi^{(0)}(1)}{t} + \frac{\xi^{(1)}(1)}{t^2} + \frac{\xi^{(2)}(1)}{t^3} + \dots \right]$$



ただし、
$$\xi^{(n)}(x) = \frac{d^n [x \cdot \tau(x)]}{d x^n}$$

上記の級数の係数と、 $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  で表した  $G(t)$  の係数を比較することで、係数  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  が同定できる。最終的な答えは、

$$\alpha = \frac{(1 + 2\eta)^2}{(1 - \eta)^4}$$

$$\beta = -\frac{6\eta(1 + \eta/2)^2}{(1 - \eta)^4}$$

$$\gamma = 0$$

$$\delta = \frac{\eta(1 + 2\eta)^2}{2(1 - \eta)^4}$$

よって、直接相関関数は

$$c^{PY}(r) = -\frac{1}{(1 - \eta)^4} \times \left[ (1 + 2\eta)^2 - 6\eta \left(1 + \frac{\eta}{2}\right)^2 \left(\frac{r}{\sigma}\right) + \frac{\eta}{2} (1 + 2\eta)^2 \left(\frac{r}{\sigma}\right)^3 \right], r < \sigma$$

$$c^{PY}(r) = 0, r \geq \sigma$$

動径分布関数の導出はやや面倒で、係数  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  で表した  $G(t)$  を、Laplace変換式を整理した次式に代入する。

$$G(t) = \frac{1 + 24\eta K - t^2 F(t)}{t^2 + 12\eta t [F(-t) - F(t)]}$$

ただし、

$$K = \int_0^{\sigma} \tau(r) r^2 dr$$

さらに、整理して、Laplace逆変換<sup>注</sup>をすると、最終的に

$$r \cdot g(r) = \frac{1}{2\pi i} \int_{\delta-i\infty}^{\delta+i\infty} \frac{t L(t) e^{r \cdot t}}{12\eta t [L(t) + S(t) e^t]} dt$$

・ 動径分布関数の数値解法<sup>注</sup>

Laplace逆変換して求めた動径分布関数の分母は級数展開でき、

$$g(r) = \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ \frac{(-1)^{n+1}}{24\pi i} \int_{\delta-i\infty}^{\delta+i\infty} \exp[t(r - n\sigma)] \left[ \frac{L(t)}{S(t)} \right]^n t \cdot dt \right\}$$

さらに、この関数は、次のような部分分割によって数値的に計算できることが示されている。

---

注) R. E. Bellman, R. E. Kalaba, and J. Lockett, "Numerical Inversion of the Laplace Transform", Elsevier, 1966.

G. J. Throop and R. J. Bearman, J. Chem. Phys., 42(7), 2408(1965).

$$g_1(r) = \frac{1}{12\eta r} \sum_{n=1}^3 \lim_{t \rightarrow t_i} \left\{ (t - t_i) \cdot t \cdot \left[ \frac{L(t)}{S(t)} \right] \exp [t(r - \sigma)] \right\}$$

$$g_2(r) = \frac{1}{12\eta r} \sum_{n=1}^3 \lim_{t \rightarrow t_i} \left\{ \frac{d}{dt} \left[ (t - t_i)^2 \cdot t \cdot \left[ \frac{L(t)}{S(t)} \right]^2 \exp [t(r - 2\sigma)] \right] \right\}$$

$$g_3(r) = \frac{1}{24\eta r} \sum_{n=1}^3 \lim_{t \rightarrow t_i} \left\{ \frac{d^2}{dt^2} \left[ (t - t_i)^3 \cdot t \cdot \left[ \frac{L(t)}{S(t)} \right]^3 \exp [t(r - 3\sigma)] \right] \right\}$$

ただし、

$$S(t) = (1 - \eta)^2 t^3 + 6\eta(1 - \eta) t^2 + 18\eta^2 t - 12\eta(1 + 2\eta)$$

$$L(t) = 12\eta \left[ (1 + \eta/2) t + (1 + 2\eta) \right]$$

$$r < \sigma \text{ の時} \quad g(r) = 0$$

$$\sigma < r < 2\sigma \text{ の時} \quad g(r) = g_1(r)$$

$$2\sigma < r < 3\sigma \text{ の時} \quad g(r) = g_1(r) + g_2(r)$$

$$3\sigma < r < 4\sigma \text{ の時} \quad g(r) = g_1(r) + g_2(r) + g_3(r)$$

以上のような数学的取り扱いによって得られる、動径分布関数の計算例を図2-10に掲げる。これは、PY近似による剛体球の動径分布関数で、規格化した密度が  $n_0 \eta^3 = 0.7$  のケースの結果である。

#### g. その他の近似方式の例示

##### ・ Lennard-Jones粒子のPY近似による動径分布関数<sup>注</sup>

剛体球ポテンシャルは、固い芯のあるような粒子の解析には良い近似であるが、実際の溶液中の粒子のポテンシャルとしては、余りに単純化しすぎている。液体アルゴンのように、非極性の溶媒粒子を対象とする場合には、次のLennard-Jonesポテンシャルを用いる場合が多い。

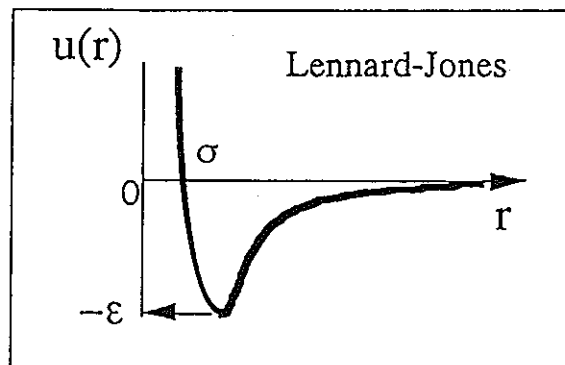
注) A. A. Broyles, J. Chem. Phys., 35(2), 493(1961).

$$u(r) = 4\varepsilon \left[ \left( \frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{r} \right)^6 \right]$$

ただし、  $\sigma$  : 分子直径とは異なる粒子サイズのパラメータ

$\varepsilon$  : 最小エネルギー

上記の式は、"6-12"ポテンシャルといい、べき乗指数12で示される斥力項と、指数6で示されるvan der Waals分散力（引力）項の和で、全体のポテンシャルを示す。ただし、前者のべき乗則による斥力項には理論的根拠はない。（イスラエルアチヴィリ）



Lennard-Jonesポテンシャルを仮定して、PY近似によって動径分布関数を得た例が、Broylesによって報告されている。結果を図2-11に示す。この結果も、剛体球近似と同様の考え方に基づくが、全相関関数  $h(r)$  を数値解法によって求め、それから動径分布関数を得ている。

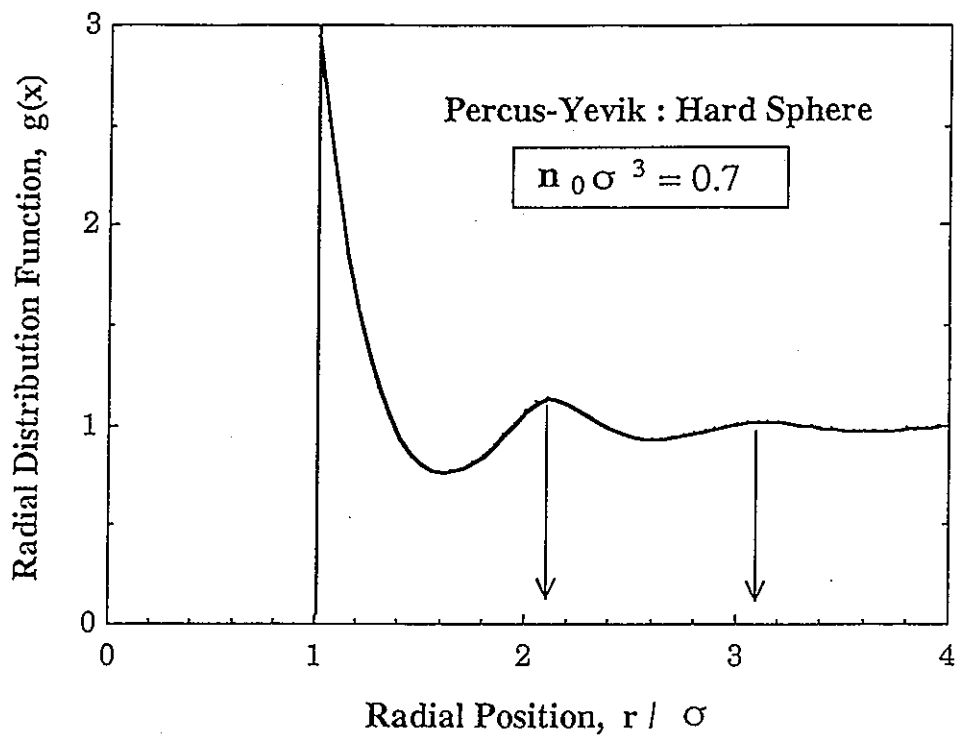


図2-10 剛体球ポテンシャル粒子の動径分布関数 (PY近似)

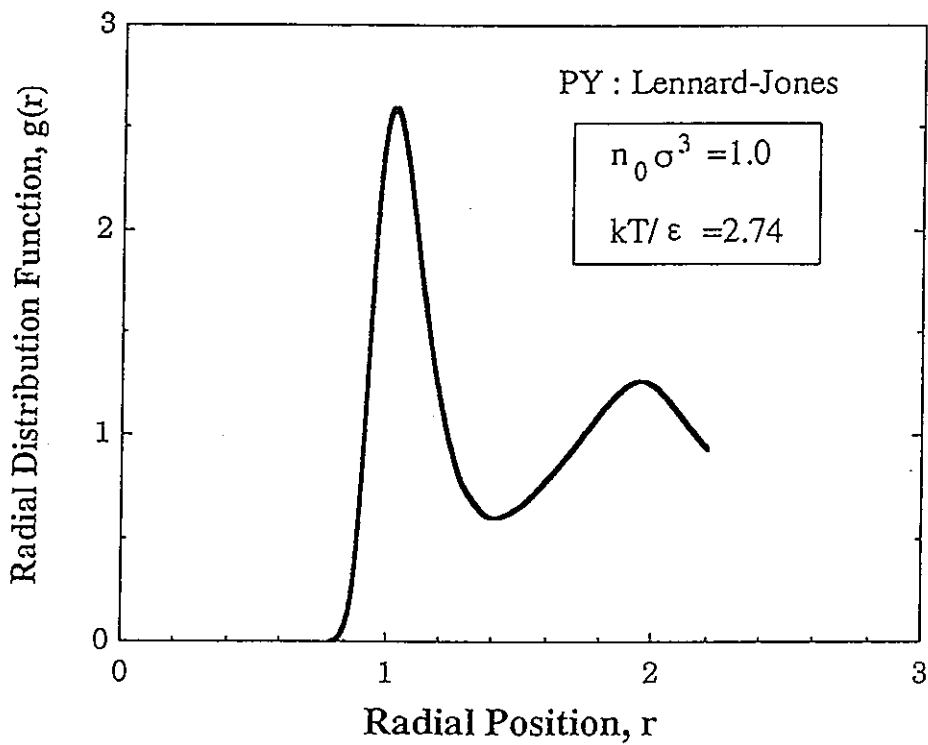


図2-11 Lennard-Jonesポテンシャル粒子の動径分布関数 (PY近似)

(4) その他の近似的解法

ここでは、特に内容を示さないが、次のような報告が、既に行われている。

① n成分-剛体球混合系のPY近似：

剛体球混合系の動径分布関数を、Lennard-Jonesポテンシャルを仮定してPY近似により解析。n成分系であるため、一般性のある解となっている。

出典：J. L., Lebowitz, Phys. Rev., 133(4A), A895(1964).

② Lennard-Jonesポテンシャルを用いたBGY近似：

Born-Green-Yvon近似を採用して、Lennard-Jonesポテンシャルを有する単成分粒子の動径分布関数を定式化。

出典：A. A., Broyles, J. Chem. Phys., 33(2), 456(1960).

③ 1:1電解質のHNC近似：

剛体球と静電ポテンシャルを組み合わせた2体ポテンシャルを仮定し、2成分系の電解質のイオン相互作用を、HNC近似で解き、活量係数を算定。

出典：J. C. Rasaiah and H. L. Friedman, J. Chem. Phys., 50(9), 3965 (1969).

### 2.3.3 今後の展開

#### 1) 熱力学データの検討

今回、システムティクスを用いて、ウランのデータベースの欠損部分である標準生成エンタルピーを補完した。この作業では、標準生成自由エネルギーと標準生成エンタルピーとの間に直線関係を仮定し、U(IV)とU(VI)のデータを求めた。この際、ウランのデータのみに着目したが、今後は錯体形成の相手側のリガンドに注目し、同一リガンドに対して、ウランと他の金属イオンとの比較を行い、システムティクスで得た結果の補足を行う。また、当然ながら、TRU核種等の欠損データの補完をさらに進める。

#### 2) シミュレーション手法の検討

##### (1) PHREEQEの改良

WannerモデルをそのままPHREEQEコードに適用すると、イオン交換反応の解析のために導入した仮想化学種BENT-Na等に不適切な活量補正が加わり、それが溶液pHの解析結果を変化させてしまうことが判った。この影響を排除できるように、PHREEQEのソースの改良を行った。これにより、従来のようなイオン交換反応の生成定数を数十桁も大きくして計算しなければならない事態を回避でき、実測値をそのまま計算に用いても、適正な解を得ることができるようになった。これによってイオン交換反応の解析についての改良はほぼ終了した。

しかし、地下水流動条件や表面錯体反応については、現行のPHREEQEでは適用できないため、今後改良を続ける。

##### (2) 核種溶解度解析の高度化

緩衝材間隙水中の溶解度を解析できるように、間隙でのイオン分布を評価する方法を検討した。そのため、まず、単純化した系での動径分布関数の求め方について調査した。溶液中でのイオンの相互作用を考慮して、イオン分布を求めるには、多体ポテンシャル問題を取り扱う必要があるため、

◇多体問題をグラフ理論により単純化し、一部の相互作用を省略して解析する手法を調査し、Percus-Yevik近似およびHNC近似の概要を明らかにした。

◇粒子間の2体力に剛体球ポテンシャルを仮定する単純な系について、PY近似から動径分布関数を得る方法について調査した。

◇Born-Green-Yvon近似、Lennard-Jonesポテンシャルを用いる手法等についても文献探査を行い、該当する報告を明らかにした。

今後は、実際の緩衝材の系に適用できるように、

◆溶液中のイオン相互作用をポテンシャルに組み込む

◆粘土壁面は平板と考えられるため、イオンサイズの極限として平板を取り扱う

◆多体ポテンシャル問題の近似的解法からイオンの活量係数の算定に結びつける

等の作業が必要になるものと考えられる。また、今回、文献探査を行った論文は、それらの作業の糸口となると思われる。

### (3) ベントナイト中の核種溶解度検証試験の提案

核種溶解度の解析手法を高度化する作業と並行して、手法の検証のための試験方法を検討した。

地層処分システムの緩衝材中における核種移行において、核種は圧縮ベントナイトの間隙水中を拡散により移行する。これは、自由水中の拡散に比べ、ベントナイト粒子表面との相互作用の影響を受ける点が異なる。核種とベントナイト粒子表面との相互作用としては、主として核種の吸着現象に関する研究が多数なされてきているが、一方ベントナイト中の沈澱固相の溶解度に影響を及ぼす可能性が指摘されている。

本提案試験は、ベントナイト間隙水中の固相の溶解度と自由水中の溶解度の相対的な差を把握することにより、従来の熱力学データに基づく、自由水中での溶解度の予測がベントナイト間隙水中にも適用できるかどうかを検討し、併せて、より信頼性の高い溶解度データを取得するものである。



#### a. 試験方法

以下の2種類の圧縮ベントナイトにおける拡散実験により、実測・推定される溶解度の値を比較検討する。

##### ・試験1：自由水中の溶解度を境界条件とする拡散試験

トレーサーの過飽和側からの平衡溶液にフィルターを介した圧縮ベントナイトカラムを浸し、拡散試験を行う。

- ・圧縮ベントナイトカラムを所定のイオン強度・組成の溶液に浸漬して含水する。
- ・所定のイオン強度・組成に調整した溶液に、トレーサーを添加し、トレーサー過飽和溶液を作成し、溶解度平衡を確認する。
- ・トレーサー溶液に圧縮ベントナイトカラムを浸漬し、拡散試験を行う。
- ・試験後トレーサー溶液が溶解度に保たれていることを確認する。
- ・ベントナイト中の濃度プロファイルを測定し、トレーサー溶液との接触面近傍の濃度を求める。この値はベントナイトへの吸着分を含んでいる（以下みかけの溶解度という）。

試験装置の概念を図2-12に示す。ここで用いる平衡溶液は、核種の溶解度に達していることが前提となるが、そもそも核種溶解度を規定する制限固相がアンノウンであるので調製することができない。そのため、ここでは、ベントナイトと蒸留水の接触試験結果から、平衡溶液中の主成分イオンを $\text{Na}^+$ と $\text{SO}_4^{2-}$ とし、硫酸ナトリウム水溶液に対象とする核種を溶解させ、ある時間保持して、沈殿を生成させた後、沈殿を含む液相を平衡溶液の代替とする。

##### ・試験2：圧縮ベントナイト中の沈澱固相の溶解度を境界条件とする拡散試験

従来よりPNCで実施しているin-diffusion試験において、トレーサー源として沈澱固相を用いる。なお圧縮ベントナイトの含水においては、（試験1）の溶液と同じものを用いる。

ベントナイト中の濃度プロファイルの経時変化を調べ、トレーサーとベントナイトの境界近傍部分の濃度が定常状態になるまで試験を継続する。この境界濃度の定常値を圧縮ベントナイト中の溶解度平衡に達したみかけの溶解度と考える。

b. 評価

- ・ (試験1) と (試験2) で得られたみかけの溶解度の差を求め、モデル解析により見積もられる差との比較評価を行い、モデルの妥当性を検討する。
- ・ ベントナイト中の拡散の境界条件が溶解度で支配されることを確認する。

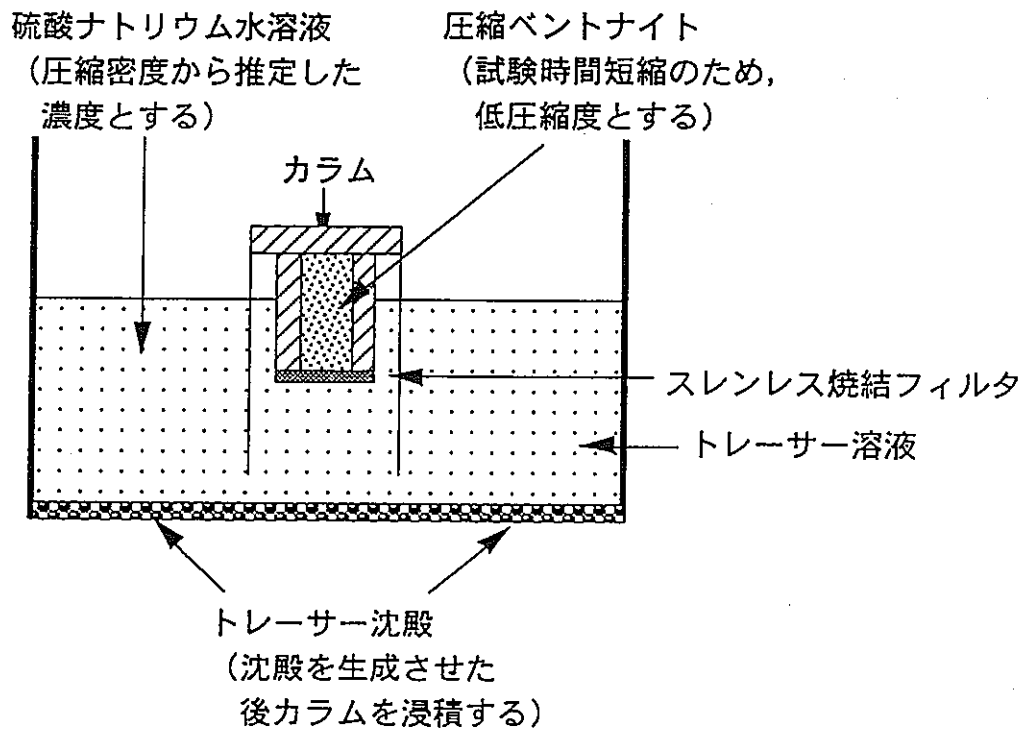


図2-12 ベントナイト中の核種溶解度検証試験の概念図

## 2.4 まとめ

### 1) 熱力学データの検討

今回、システムティクスを用いて、ウランのデータベースの欠損部分である標準生成エンタルピーを補完した。この作業では、標準生成自由エネルギーと標準生成エンタルピーとの間の直線関係を利用し、U(IV)とU(VI)のデータを求めた。

### 2) シミュレーション手法の検討

#### (1) PHREEQEの改良

従来Wannerモデルを単純にPHREEQEに適用すると、一部の活量係数に不適当な補正が加わることが判った。その影響を排除できるように、PHREEQEのソースの改良を行った。これにより、従来イオン交換反応の生成定数を数十桁も大きくして計算しなければならない事態を回避でき、実測値をそのまま計算に用いても、適正な解を得ることができるようになった。

#### (2) 核種溶解度解析の高度化

緩衝材間隙水中の溶解度を解析できるように、間隙でのイオン分布を評価する方法を検討した。イオン分布を求めるには、溶液中でのイオンの相互作用を考慮して、多体ポテンシャル問題を取り扱う必要があるため、まず、単純化した系での動径分布関数の求め方について調査し、以下の知見が得られた。

- ◆多体問題をグラフ理論により単純化し、一部の相互作用を省略して解析する手法を調査し、Percus-Yevik近似およびHNC近似の概要を明らかにした。
- ◆粒子間の2体力に剛体球ポテンシャルを仮定する単純な系について、PY近似から動径分布関数を得る方法について調査した。
- ◆Born-Green-Yvon近似、Lennard-Jonesポテンシャルを用いる手法等についても文献探査を行い、該当する報告を明らかにした。

### (3) 検証試験の提案

核種溶解度の解析手法を高度化する作業と並行して、手法の検証のための試験方法を検討した。「自由水中の溶解度を境界条件とする拡散試験」と「圧縮ペントナイト中の沈澱固相の溶解度を境界条件とする拡散試験」の2種類の試験を実施し、各々の試験結果の差異から、緩衝材間隙水中の溶解度の変化の有無を確認することが有効である。

## あ と が き

昨年度の検討結果から抽出されたいくつかの研究課題に対する調査・検討を行い、我が国におけるHLW処分性能評価上の取扱い法や今後の研究開発の方向性に関する検討を行った。

また、昨年度より検討を実施している地球化学反応シミュレーション手法について、熱力学データの検討、イオン交換反応の解析、溶液構造論の検討、ベントナイト空隙水中の核種溶解度を求めるための試験方法の検討を具体的に行った。

今後の検討課題としては、地層処分性能評価シナリオに関するFEPの検討、検討を行うべきシナリオの設定やスクリーニングに関する方法論的検討、さらに、ベントナイト空隙水化学のモデル化に関するコードの理論的検討及びアメリカウム等に関する熱力学データのシステムティックスの確認などが考えられる。

## 参 考 文 献

- (1) (株)三菱総合研究所  
「地層処分システム性能評価手法の高度化に関する研究」 動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書 PNC ZJ1211 95-005(1995).
- (2) 動力炉・核燃料開発事業団  
「高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書－平成3年度－」  
PNC TN 1410 92-081(1992).
- (3) 梅木、内藤  
「動燃におけるFEPデータベース」 地層処分性能評価シナリオに関連するFEPの検討会資料 (1996).
- (4) (株)三菱総合研究所  
「地層処分シナリオ隔離性能に関する稀頻度事象定量化手法の検討(Ⅲ)  
－地下水シナリオの変動のモデル化に関する概略的検討－」  
PNC委託研究成果報告書、PNC ZJ1222 95-001 (1995).
- (5) NEA: 「Systematic Approaches to Scenario Development」 A report of the NEA Working Group on the Identification and Selection of Scenarios for Performance Assessment of Radioactive Waste Disposal, Paris (1992).
- (6) M.J. Apted (Intera Information Technologies, Inc.): 「Impacts of Igneous Intrusion on HLW Repository Performance - A Process System Modelling Approach -」 IED-9310 Version 1, 27. Feb. (1994).
- (7) T. Eng, J. Hudson, O. Stephansson, K. Skagius and M. Wiborgh :  
「Scenario Development Methodologies」 SKB Technical Report 94-28 (1994).
- (8) J. Anderson(ed.): 「The Joint SKI/SKB Scenario Development Project」 SKB TR 89-35 (1989).
- (9) N.A. Chapman et al.: 「System Analysis, Scenario Construction and Consequence Analysis Definition for SIT-94」 SKI Report 95:26 (1995).

(10) T. Vieno et al. : 「Application of the RES Methodology for Identifying Features, Events and Processes (FEPs) for Near-field Analysis of Copper-steel Canister」 YJT-94-21 (1994).

(11) Nagra : 「Kristallin-I, Safety Assessment Report」 NTB 93-22 (1994).

# 付 録



## A. 諸外国で検討されているF E Pリストの比較

動燃事業団殿で検討されているF E Pリストと諸外国の検討結果<sup>(8)~(11)</sup>と比較するため、階層的にグループ化されたF E P項目例(付・表-1参照)を作成し、その項目毎(但し、付・表-1に示すF E P項目以外の比較項目として、生物圏、地質学的プロセス等、気候学的プロセスと事象、人間活動、処分場に関連する事象を加えている)に比較した結果を以下に示す。

なお、各F E Pの内容は付・表-2に示す形式で具体的に記述されている。

付・表-1 各コンポーネントにおけるFEPのグループ化

950429

	①ファーフールド	②ニアフィールド母岩 (掘削影響領域を含む) 26(5) FEP's	③ベントナイト 27(4) FEP's	④オーバーバック 36(10) FEP's	⑤ガラス固化体 (将来キヤムに関するFEPを追加) 21(3) FEP's
水理	F-1 広域水理	H-1 ニアフィールド母岩中の水理 H-1.1 NF母岩中の水理 H-1.2 掘削影響 H-1.3 熱の影響	B-1 ベントナイト中の水理 B-1.1 ベントナイトの冠水 B-1.2 熱の影響	OP-1 ベントナイトとの接触面における水理 OP-1.1 オーバーバックへのベントナイト空隙水の接触 OP-1.2 熱の影響	G-1 ガラス固化体周囲における水理 G-1.1 ガラス固化体へのベントナイト空隙地下水の接触 G-1.2 熱の影響
力学的安定性		H-2 ニアフィールド母岩の力学的安定性 H-2.1 機械的応力 H-2.2 掘削影響 H-2.3 ベントナイトの侵入 H-2.4 熱の影響	B-2 ベントナイトの力学的安定性 B-2.1 ベントナイトの影響 B-2.2 機械的応力 B-2.3 オーバーバックの沈下 B-2.4 ベントナイトの流失 B-2.5 熱の影響	OP-2 オーバーバックの力学的安定性 OP-2.1 機械的応力 OP-2.2 オーバーバックの破損 OP-2.3 オーバーバックの沈下 OP-2.4 熱の影響 OP-2.5 腐食生成物の影響	G-2 ガラス固化体の力学的安定性 G-2.1 機械的応力 G-2.2 ガラス固化体の割れ G-2.3 腐食生成物の影響 G-2.4 熱の影響
地球化学	F-2 地下水の地球化学的変遷	H-3 ニアフィールド母岩中の地下水化学 H-3.1 NF母岩中の地下水化学 H-3.2 放射線分解 H-3.3 ガス(空気) H-3.4 微生物の影響 H-3.5 有機物 H-3.6 熱の影響 H-3.7 コロイド	B-3 ベントナイト中の地下水化学 B-3.1 ベントナイト空隙水の化学 B-3.2 放射線分解 B-3.3 ガス発生(水素) B-3.4 ガス(空気) B-3.5 微生物の影響 B-3.6 有機物 B-3.7 熱の影響 B-3.8 コロイドの形成	OP-3 オーバーバックとベントナイトとの接触面での地下水化学 OP-3.1 ベントナイト内部におけるベントナイト空隙水の化学 OP-3.2 放射線分解 OP-3.3 ガス発生(水素) OP-3.4 ガス(空気) OP-3.5 微生物の影響 OP-3.6 有機物 OP-3.7 熱の影響 OP-3.8 コロイドの形成 OP-3.9 腐食生成物の影響	G-3 ガラス固化体周囲の地下水化学 G-3.1 ガラス固化体周囲のベントナイト空隙水の化学 G-3.2 放射線分解 G-3.3 ガス(空気) G-3.4 熱の影響 G-3.5 ガラス溶解によるコロイド形成
物理/化学的性質		H-4 ニアフィールド母岩の物理/化学的性質 H-4.1 NF母岩の物理/化学的性質 H-4.2 掘削影響 H-4.3 熱の影響 H-4.4 放射線損傷	B-4 ベントナイトの物理/化学的性質 B-4.1 ベントナイトの物理/化学的性質 B-4.2 熱の影響 B-4.3 放射線損傷	OP-4 オーバーバックの物理/化学的性質 OP-4.1 オーバーバックの物理/化学的性質 OP-4.2 オーバーバックの腐食 OP-4.2.1 均一腐食 OP-4.2.2 孔食 OP-4.2.3 すきま腐食 OP-4.2.4 大気腐食(不飽和状態) OP-4.2.5 水素脆化 OP-4.2.6 応力腐食割れ OP-4.3 機械的応力 OP-4.4 熱の影響 OP-4.5 微生物の影響 OP-4.6 放射線損傷 OP-4.7 腐食生成物の物理/化学的性質	G-4 ガラス固化体の物理/化学的性質 G-4.1 ガラス固化体の物理/化学的性質 G-4.2 ガラス固化体のインベントリ G-4.3 放射線損傷(熱の発生, 放射線の放出) G-4.4 熱の影響 G-4.5 放射線損傷
物質移動		H-5 ニアフィールド母岩中の物質移動 H-5.1 NF母岩中の核種移行 H-5.1.1 移流/分散 H-5.1.2 拡散(マトリクス拡散を含む) H-5.1.3 吸着 H-5.1.4 放射性崩壊 H-5.1.5 沈澱/溶解 H-5.2 コロイドと有機物の移動 H-5.3 ガス移行	B-5 ベントナイト中の物質移動 B-5.1 ベントナイト中の核種移行 B-5.1.1 拡散 B-5.1.2 吸着 B-5.1.3 放射性崩壊 B-5.1.4 沈澱/溶解 B-5.2 土壌/有機物/微生物への74Bq-1効果 B-5.3 ガス移行 B-5.4 溶質の拡散	OP-5 オーバーバックとベントナイトとの接触面での物質移動 OP-5.1 腐食生成物中での核種移行 OP-5.1.1 拡散 OP-5.1.2 吸着 OP-5.1.3 放射性崩壊 OP-5.1.4 沈澱/溶解 OP-5.2 コロイドの移動 OP-5.3 ガス移行	G-5 ガラス固化体からの物質移動 G-5.1 ガラスの溶解 G-5.1.1 コンクリート溶解 G-5.1.2 溶解度制限 G-5.1.3 長期的溶解速度 G-5.2 熱の影響

付・表-2 各F E Pの記述

● [スーパーF E P名 (もしくはサブF E P名)]

① 内容に関する記述

当該スーパーF E Pの内容を記述する。ここでは、F E P (特質・現象・プロセス) の内容とともに、他のF E Pとの因果関係についても記述する。

・例 (ベントナイト中の地下水化学でのスーパーF E P「放射線分解」の場合)

放射線分解は廃棄物からの放射線により酸化剤を形成することによって、人工バリア中の水の化学的条件に影響を与える可能性がある。これによる酸化還元フロントがベントナイト中を進展していくことが想定され、これに鋭敏な放射性核種の溶解度を増加させることにつながる。

② 評価に関する記述

当該スーパーF E Pについて、シナリオで想定する期間とともに、評価を行ううえでの取扱いを記述する。

・例 (ベントナイト中の地下水化学でのスーパーF E P「放射線分解」の場合)

想定期間：閉鎖後

オーバーパックの健全性が維持される期間においては、しゃへい効果により化学的な影響は重要とはならないことが想定される。オーバーパックが破損した後においては、 $\alpha$ 線と $\beta$ 線による放射線分解を考慮する必要がある。しかしながら単純な分解によれば、過酸化水素といった放射線分解によって発生するすべての酸化剤については炭素鋼製オーバーパックの腐食生成物で緩衝できることを示している。

③ モデル化に関する記述

当該スーパーF E Pについて、具体的にモデル化を行ううえでの取扱いを記述する。ここでは、モデル化で必要となるパラメータについても記述することになる。

④ 文献リスト

上記①、②、③の記述の根拠となる文献をリスト化する。

⑤ 諸外国での取扱い

当該スーパーF E Pについて、諸外国でどのように取り扱っているかの記述を行う。

出典：(3)



G-2 ガラス固化体の力学的安定性

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>【ガラス固化体】 G-2.1 機械的応力</p> <p>G-2.2 ガラス固化体の割れ</p> <p>G-2.3 腐食生成物の影響</p> <p>G-2.4 熱の影響</p>	<p>【使用済燃料】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・急激なエネルギー放出 Sudden energy release (Wigner effect)</li> </ul> <p>・腐食生成物の体積膨張 Swelling of corrosion products</p> <p>・熱-水-応力の影響 Thermo-hydro-mechanical effects</p>	<p>【使用済燃料】</p>	<p>【使用済燃料】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ヘリウムによる被覆管内圧の変化 Internal pressure due to helium</li> <li>・キャニスタ中のベントナイトの侵入 Intrusion of bentonite in the canister</li> <li>・充填物質によるキャニスタへのベントナイト侵入の阻止 Filling materials prevent intrusion of bentonite in the canister</li> <li>・キャニスタ内部の発生ガスの充満 Gas bubble may fill the canister</li> </ul> <p>・ガス発生によるキャニスタ内圧上昇が引き起こす損傷 Damage caused by internal overpressure due to gas generation</p>	<p>【ガラス固化体】</p> <p>・ガラスの割れ Glass cracking</p> <p>・熱による変遷 Thermal evolution</p>

G-3 ガラス固化体周囲の地下水化学

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>{ガラス固化体}</p> <p>G-3.1 ガラス固化体周囲のバント付空隙水の化学</p> <p>G-3.2 放射線分解</p> <p>G-3.3 ガス (空気)</p> <p>G-3.4 熱の影響</p> <p>G-3.5 ガラス溶解によるコロイド形成</p>	<p>{使用済燃料}</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・酸化還元フロント Redox front</li> <li>・酸化還元電位 Redox potential</li> <li>・酸化性条件 Oxidizing conditions</li> <li>・pHの変動 pH-deviations</li> <li>・溶解の化学 Dissolution chemistry</li> </ul> <p>・放射線分解 Radiolysis</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ガス発生 Gas generation</li> <li>・水蒸気/酸素の爆発 H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> explosions</li> <li>・ガス発生：ヘリウム発生 Gas generation: He production</li> </ul> <p>・熱化学的変化 Thermochemical changes</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイド発生 発生源 Colloid generation - source</li> <li>・コロイド, 錯化剤 Colloids, complexing agents</li> </ul>	<p>{使用済燃料}</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・空隙水の化学 Water chemistry, bentonite buffer</li> <li>・電気化学的電位勾配 Electrochemical gradients, buffer</li> <li>・酸化還元フロント Redox front, buffer</li> </ul> <p>・放射線分解 Radiolysis, buffer</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・水と接触する以前の放射線分解 Radiolysis prior to wetting</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ガス発生 Gas generation</li> </ul> <p>・微生物の影響 Microbial activity, buffer</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイドの形成 Colloid generation-source, buffer</li> <li>・コロイドの凝集 Coagulation of bentonite, buffer</li> </ul>	<p>{使用済燃料}</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・化学的及び地球化学的条件 Chemical and geochemical conditions</li> <li>・緩衝材と他の処分場構成材料が地下水化学に与える影響 Effects of buffer and other repository materials on groundwater chemistry</li> <li>・鉄とその腐食生成物による化学的緩衝性 Chemical buffering provided by iron and its corrosion products</li> </ul> <p>・放射線の影響→応力腐食割れの発生条件 Radiation → favourable conditions for stress corrosion cracking</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・キャニスタ中とその外側における放射線分解 Radiolysis, inside and outside of canister</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ガス Gases</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物 Microbes</li> <li>・錯体 Complexes</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイド Colloids</li> </ul>	<p>{ガラス固化体}</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・共沈物/固溶体 Cocipitates/solid solutions</li> </ul> <p>・放射線分解 Radiolysis</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ヘリウムガスの生成 He gas production</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物の影響 Microbial activity</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイドの形成 Colloid formation</li> </ul>

G-4 ガラス固化体の物理/化学的性質

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>【ガラス固化体】 G-4.1 ガラス固化体の物理/化学的性質</p>	<p>【使用済燃料】 ・欠陥又は設計仕様から逸脱した使用済燃料 Damaged or deviating fuel ・廃棄物によるキャニスタ内の腐食 Internal corrosion due to waste</p>	<p>【使用済燃料】 ・使用済燃料の構成金属部材の腐食 Corrosion of metal parts ・使用済燃料の鋼製容器の腐食 Corrosion of steel vessel ・水と接触する前に生じる腐食 Corrosion prior wetting ・使用済燃料要素の劣化 Degradation of fuel elements ・腐食生成物との相互作用 Interaction with corrosion products</p>	<p>【使用済燃料】 ・使用済燃料の性質 Properties of fuel ・被覆管と燃料集合体における他の構成部材の特性 Properties of cladding tubes and other structural parts of the fuel assembly ・化学的物質 (セシウムなど) Chemical substances (e.g. cesium)</p>	<p>【ガラス固化体】 ・廃棄物 (ガラス製) Waste product (glass) ・ステンレス鋼製の固化体容器 Stainless steel fabrication flask ・ガラスに含まれるボイド空間 Void space ・鉄の腐食生成物 Iron corrosion products ・相分離 Phase separation ・ガラスの表面積 Glass surface area ・ガラスの再結晶化 Glass recrystallisation ・放射性核種のインベントリ Radionuclide inventory ・ソースターム Radionuclide source term ・熱出力 (放射性核種の崩壊熱) Heat output (RN decay heat) ・ガラスの温度 Glass temperature ・放射線損傷 Radiation damage ・品質管理 Quality control ・ガラス固化体の取扱い事故 Handling accidents ・逸脱したインベントリのガラス固化体 Deviant inventory flask</p>
G-4.2 ガラス固化体のインベントリ		<p>・放射性核種インベントリの変化 Changes in radionuclide inventory</p>		
G-4.3 放射線崩壊 (熱の発生, 放射線の放出)	<p>・放射線崩壊; 発熱 Radioactive decay; heat</p>	<p>・放射線崩壊 Radioactive decay, fuel</p>	<p>・発熱 Heat generation</p>	
G-4.4 熱の影響				
G-4.5 放射線損傷	<p>・α線による反跳核 Recoil of alpha decay</p>			

G-5 ガラス固化体からの物質移動

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>【ガラス固化体】 G-5.1 ガラスの溶解</p> <p>G-5.1.1 コングルエント溶解</p> <p>G-5.1.2 溶解度制限</p> <p>G-5.1.3 長期的溶解速度</p> <p>G-5.2 熱の影響</p>	<p>【使用済燃料】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・燃料表面へのヨウ素とセシウムの移行 I, Cs-migration to fuel surface</li> <li>・酸化材と放射性核種の極端なチャンネル流れ Extreme channel flow of oxidants and nuclides</li> <li>・キャニスタ内の均等なチャンネル流れの役割 Role of the eventual channeling within canister</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・燃料マトリクス中の溶解度 Solubility within fuel matrix</li> <li>・連成効果 (電気泳動) Coupled effects (electrophoresis)</li> <li>・再濃集 Reconcentration</li> <li>・再結晶化 Recrystallization</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ソレー効果 Soret effect</li> </ul>	<p>【使用済燃料】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・使用済燃料の溶解と変質 Fuel dissolution and conversion</li> <li>・ギャップと粒界からの放射性核種の放出 Gap and grain boundary release</li> <li>・使用済燃料マトリクスからの放射性核種の放出 Release from fuel matrix</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・燃料表面へのI,Csの移行 I, Cs migration to fuel surface</li> <li>・使用済燃料の構成金属部材からの放射性核種の放出 Release from metal parts</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・燃料全体からの放射性核種の放出 Total release from fuel elements</li> </ul>	<p>【使用済燃料】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・使用済燃料の劣化及び被覆管ギャップ、粒界と燃料マトリクスからの核種放出 Degradation of fuel and releases from the fuel-cladding gap, grain boundaries and fuel matrix</li> <li>・被覆管と他の構成物質の劣化及び放射化生成物の放出 Degradation of cladding and other structural parts and releases of activation products in them</li> <li>・ベントナイト空隙水中の物質濃度に与える熱の影響 Effects of heat on concentration of substances in bentonite porewater</li> <li>・化学種分配 Speciation</li> </ul>	<p>【ガラス固化体】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ガラスからの放射性核種の放出 Radionuclide release from glass</li> <li>・ガラスの変質/溶解 Glass alteration/dissolution</li> <li>・溶質の移動に対する抵抗 Solute transport resistance</li> <li>・選択的浸出 Selective leaching</li> <li>・珪酸塩/シリカゲルの沈殿 Precipitation of silicates/silica gel</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・コングルエント (調和) 溶解 Congruent dissolution</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・放射性元素の溶解度制限 Elemental solubility limits</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ガラスの溶解速度 Rate of glass dissolution</li> </ul>



OP-1 ベントナイトとのインターフェイス部における水理

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
OP-1.1 オブ・カへのベントナイト空隙水の接触	<ul style="list-style-type: none"> <li>・緩衝材（埋め戻し材）の地下水流動 Flow through buffer/backfill</li> <li>・再飽和 Resaturation</li> <li>・緩衝材/埋め戻し材中の選択的経路 Preferential pathways in the buffer/backfill</li> <li>・透水性に与える応力の影響 Stress changes of conductivity</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ベントナイト空隙水の交換 Water turnover, copper canister</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・欠陥のあるキャニスタへの水の浸入 Intrusion of water in a defective canister</li> <li>・鉄製キャニスタへの水の浸入 Intrusion of water in the steel canister</li> <li>・ガス発生によるキャニスタからの排水 Displacement of water from the canister due to gas generation</li> </ul>	
OP-1.2 熱の影響	<ul style="list-style-type: none"> <li>・熱-水-応力の影響 Thermo-hydro-mechanical effects</li> <li>・熱による浮力 Thermal buoyancy</li> </ul>			

OP-2 オーバーパックの力学的安定性

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	Nagra
<p>OP-2.1 機械的応力</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 外部応力 External stress</li> <li>・ キャニスタに与える水頭圧 Hydrostatic pressure on canister</li> <li>・ キャニスタに与える水頭圧の変化 Changed hydrostatic pressure on canister</li> <li>・ 内 圧 Internal pressure</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ キャニスタへの機械的影響 Mechanical impact on canister</li> <li>・ 機械的強度の劣化 Reduced mechanical strength, canister</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ キャニスタ中のベントナイトの侵入 Intrusion of bentonite in the canister</li> <li>・ 充填物質によるキャニスタへのベントナイト侵入の阻止 Filling materials prevent intrusion of bentonite in the canister</li> <li>・ キャニスタ内部の発生ガスの充満 Gas bubble may fill the canister</li> <li>・ 腐食による鉄製キャニスタの脆化 Weakening of steel canister due to corrosion</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ キャニスタの健全性 (その他の影響による) Canister integrity (other effects)</li> </ul>
<p>OP-2.2 オーバーパックの破損</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 電気化学的なキャニスタのクラック発生 Electro-chemical cracking</li> <li>・ 溶接部に沿ったクラック発生 Cracking along welds</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 銅製キャニスタの破損 Failure of copper canister</li> <li>・ 鉄製容器の破損 Failure of steel vessel</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 銅製キャニスタの破損 (鉄キャニスタの腐食による) Collapse of the copper container (due to corrosion of iron canister)</li> <li>・ 応力による初期欠陥キャニスタの破損 Stress induced collapse of initially defective canister</li> <li>・ ガス発生による内圧上昇が引き起こす損傷 Damage caused by internal overpressure due to gas generation</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ キャニスタ破損 (レファレンス) Canister failure (reference)</li> <li>・ キャニスタ破損 (代替モード) Canister failure (alternative modes)</li> </ul>
<p>OP-2.3 オーバーパックの沈下</p>				
<p>OP-2.4 熱の影響</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 熱によるキャニスタのクラック発生 Thermal cracking</li> <li>・ 熱-水-応力の影響 Thermo-hydro-mechanical effects</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ キャニスタの温度 Temperature, canister</li> </ul>		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ キャニスタの温度 Canister temperature</li> </ul>
<p>OP-2.5 腐食生成物の影響</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 腐食生成物の体積膨張 Swelling of corrosion products</li> </ul>			

OP-3 ベントナイトとのインターフェイスにおける地下水化学

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	Nagra
OP-3.1 貯蔵容器内におけるベンチ空疎水の化学	<ul style="list-style-type: none"> <li>・酸化還元フロント Redox front</li> <li>・酸化性条件 Oxidizing conditions</li> <li>・pHの変動 pH-deviations</li> <li>・酸化還元電位 Redox potential</li> <li>・溶解の化学 Dissolution chemistry</li> <li>・鉛とヨウ素の反応 Pb-I reactions</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・空隙水の化学 Water chemistry, canister</li> <li>・電気化学的電位勾配 Electrochemical gradients, buffer</li> <li>・酸化還元フロント Redox front, buffer</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・緩衝材と他の処分場構成材料が地下水化学に与える影響 Effects of buffer and other repository materials on groundwater chemistry</li> <li>・鉄とその腐食生成物による化学的緩衝性 Chemical buffering provided by iron and its corrosion products</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・化学的緩衝性 (キャニスタの腐食による) Chemical buffering (canister corrosion)</li> </ul>
OP-3.2 放射線分解	<ul style="list-style-type: none"> <li>・放射線分解 Radiolysis</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・放射線分解 Radiolysis, canister</li> <li>・水と接触する以前の放射線分解 Radiolysis prior to wetting</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・放射線の影響→応力腐食割れの発生条件 Radiation → favourable conditions for stress corrosion cracking</li> <li>・キャニスタ中とその外側における放射線分解 Radiolysis, inside and outside of canister</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・放射線分解 Radiolysis</li> </ul>
OP-3.3 ガス発生 (水蒸) OP-3.4 ガス (空気)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ガス発生 Gas generation</li> <li>・水蒸/酸蒸の爆発 H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> explosions</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ガス発生 Gas generation</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・充填したガスの特性 Properties of filling gas</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・水蒸の発生 Hydrogen production</li> </ul>
OP-3.5 微生物の影響 OP-3.6 有機物	<ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物 Microbes</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物の影響 Microbial activity, can</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物 Microbes</li> <li>・錯体 Complexes</li> </ul>	
OP-3.7 熱の影響	<ul style="list-style-type: none"> <li>・熱化学的変化 Thermochemical changes</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・キャニスタの温度 Temperature, canister</li> </ul>		<ul style="list-style-type: none"> <li>・キャニスタの温度 Canister temperature</li> </ul>
OP-3.8 コロイドの形成	<ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイド発生 発生源 Colloid generation - source</li> <li>・コロイド, 錯化剤 Colloids, complexing agents</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・キャニスタ中のコロイド/粒子 Colloid/particles in canister</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイド Colloids</li> </ul>	
OP-3.9 腐食生成物の影響				

OP-4 オーバーパックの物理/化学的性質

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	Nagra
<p>OP-4.1 オーバーパックの物理/化学的性質</p> <p>OP-4.2 オーバーパックの腐食                      OP-4.2.1 均一腐食                      OP-4.2.2 孔食                      OP-4.2.3 すきま腐食                      OP-4.2.4 大気腐食 (不飽和状態)                      OP-4.2.5 水素脆化                      OP-4.2.6 応力腐食割れ</p> <p>OP-4.3 機械的応力</p> <p>OP-4.4 熱の影響</p> <p>OP-4.5 微生物の影響</p> <p>OP-4.6 放射線損傷</p> <p>OP-4.7 腐食生成物の物理/化学的性質</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>銅のクリープ Creeping of copper</li> <li>キャニスタの延性喪失 Loss of ductility</li> <li>鉛充填物中の空隙 Voids in the lead filling</li> <li>キャニスタの化学反応 (銅の腐食) Chemical reactions (copper corrosion)</li> <li>銅の腐食における塩化物の役割 Role of chlorides in copper corrosion</li> <li>孔食 Pitting</li> <li>処分場による鉛/銅の電気泳動的反応 Repository induced Pb/Cu electrochemical reactions</li> <li>地電流による電気化学的反応 Natural telluric electrochemical reactions</li> <li>腐食剤、硫化物、酸素等 Corrosive agents, Sulphides, oxygen etc</li> <li>埋め戻し材による銅の腐食への影響 Backfill effects on Cu corrosion</li> <li>応力腐食割れ Stress corrosion cracking</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>キャニスタに与える放射線の影響 Radiation effects on canister</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>腐食生成物と廃棄物との相互作用 Interactions with corrosion products and waste</li> <li>ランダムなキャニスタの欠陥 - 品質管理 Random canister defects - quality control</li> <li>共通要因によるキャニスタの欠陥 - 品質管理 Common cause canister defects - quality control</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>鉄と銅のクリープ Creeping of steel/copper</li> <li>破損キャニスタの特性 Properties of failed canister</li> <li>銅製キャニスタの腐食 Corrosion of copper canister</li> <li>水と接触する前に生じる腐食 Corrosion prior wetting</li> <li>機械的強度の劣化 Reduced mechanical strength, canister</li> <li>キャニスタの温度 Temperature, canister</li> <li>キャニスタに与える放射線の影響 Radiation effects on canister</li> <li>腐食生成物との相互作用 Interaction with corrosion products</li> <li>腐食生成物による体積膨張 Volume increase of corrosion products</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>銅のタイプ Type of copper</li> <li>鉄のタイプ Type of steel</li> <li>初期欠陥のあるキャニスタ (種々の欠陥の生起確率) Initially defective canisters: probabilities of different kind of defects</li> <li>銅製キャニスタの製作と密封及び溶接部の位置と種類 Manufacturing and sealing of the copper canister, location and types of welds</li> <li>銅製キャニスタと鉄製キャニスタとの間のギャップ Gap between the copper and steel containers</li> <li>銅部と鉄部との間のギャップの閉塞 Closing of the initial gap between copper and iron</li> <li>銅製キャニスタの製作と密封及び、ボルト締め、溶接蓋、設計荷重 Manufacturing and sealing of the steel canister, bolted vs. welded lid, design basis load</li> <li>銅の可塑性→欠陥部の変形 Plasticity of copper → deformation of the defect</li> <li>銅のクリープ Creeping of copper</li> <li>充填物質の特性 Properties of solid filling materials</li> <li>充填物質のクリープ Creeping of filling material</li> <li>応力、キャニスタ変形、応力によって生じる腐食、応力腐食割れ Stress, deformation of canister, stress induced corrosion, stress corrosion cracking</li> <li>銅の腐食 (腐食剤の濃集と移行、腐食生成物の寿命) Corrosion of copper: concentration and transport of corrodants, fate of corrosion products</li> <li>鉄の腐食 (腐食剤の濃集と移行、腐食生成物の寿命) Corrosion of iron: concentration and transport of corrodants, fate of corrosion products</li> <li>好気性腐食 (初期欠陥を有するキャニスタ) Aerobic corrosion (in an initially defective canister)</li> <li>異種金属接触腐食 Galvanic corrosion</li> <li>応力腐食割れ (ボルト部) Stress corrosion cracking (in bolts)</li> <li>鉄製ラックの腐食 (水と腐食剤) Corrosion of steel rack (consumes water and corrodants)</li> <li>腐食生成物: 化学的條件、核種移行遅延と共沈、体積膨張 Corrosion products: chemical conditions, retardation and coprecipitation, volume expansion</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>鋳鉄製キャニスタ Cast steel canister</li> <li>キャニスタの肉厚 Canister thickness</li> <li>破損キャニスタ (クラック/孔などの影響) Residual canister (crack/hole effects)</li> <li>酸化状態での腐食 Oxic corrosion</li> <li>微生物を介した腐食 Microbially mediated corrosion</li> <li>還元状態での腐食 Anoxic corrosion</li> <li>局部腐食 Localised corrosion</li> <li>全腐食速度 Total corrosion rate</li> <li>応力腐食割れ Stress corrosion cracking</li> <li>キャニスタの温度 Canister temperature</li> <li>放射線に対するしゃへい性 Radiation shielding</li> <li>腐食生成物 (体積膨張を含む物理的影響) Corrosion products (physical effects, including volume increase)</li> <li>品質管理 Quality control</li> <li>密封に失敗したキャニスタ Mis-sealed canister</li> </ul>

OP-5 ベントナイトとのインターフェイスにおける物質移動

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
OP-5.1 腐食生成物中での核種移行	<ul style="list-style-type: none"> <li>破損キャニスタからの放射性核種の放出 Release of radionuclides from the failed canister</li> <li>ソレー効果 Soret effect</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>放射性核種の移行と放出 (破損キャニスタ中) Transport and release of nuclides, failed canister</li> <li>キャニスタ内の選択的移行経路 Preferential pathways in canister</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>【緩衝材中の物質移動】</li> <li>初期欠陥キャニスタからの短半減期核種の放出 Release of short-lived nuclides from an initially defective canister</li> <li>ベントナイト空隙水中の物質濃度に与える熱の影響 Effects of heat on concentration of substances in bentonite porewater</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>放射性核種の移行 Radionuclide transport</li> </ul>
OP-5.1.1 拡散	<ul style="list-style-type: none"> <li>拡散-表面拡散 Diffusion - surface diffusion</li> <li>分散 Dispersion</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>破損キャニスタからの拡散 Diffusion in and through failed canister</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>拡散による物質移動 Mass flows by diffusion</li> <li>陰イオン排除 Anionic exclusion</li> <li>表面拡散 Surface diffusion</li> </ul>	
OP-5.1.2 吸着	<ul style="list-style-type: none"> <li>吸着 Sorption</li> <li>吸着サイトの飽和 Saturation of sorption sites</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>キャニスタ充填物質への吸着 Sorption on filling material</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>吸着サイトの飽和 Saturation of sorption places</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>放射性核種の吸着と共沈 Radionuclide sorption and co-precipitation</li> </ul>
OP-5.1.3 放射性崩壊		<ul style="list-style-type: none"> <li>移動性の放射性核種の放射性崩壊 Radioactive decay of mobile nuclides, canister</li> </ul>		
OP-5.1.4 沈澱/溶解	<ul style="list-style-type: none"> <li>溶解度と沈澱 Solubility and precipitation</li> <li>連成効果 (電気泳動) Coupled effects (electrophoresis)</li> <li>再濃集 Reconcentration</li> <li>再結晶化 Recrystallization</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>沈澱/溶解 Precipitation/dissolution, canister</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>溶解度 Solubilities</li> <li>化学種分配 Speciation</li> </ul>	
OP-5.2 コロイドの移動				
OP-5.3 ガス移行	<ul style="list-style-type: none"> <li>ガス移行 Gas transport</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>キャニスタからのガス放出 Gas escape from canister</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>ガスの圧力と移行 Gas pressure and release</li> </ul>	

B-1 ベントナイト中の水理

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>B-1.1 ベントナイトの冠水</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・緩衝材/埋め戻し材の地下水流動 Flow through buffer/backfill</li> <li>・再飽和 Resaturation</li> <li>・緩衝材/埋め戻し材中の選択的経路 Preferential pathways in the buffer/backfill</li> <li>・透水性に与える応力の影響 Stress changes of conductivity</li> </ul>	<p>[緩衝材]</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・緩衝材中の水理 Flow through buffer</li> <li>・ベントナイトの飽和 Resaturation of bentonite buffer</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ (不均等な) ベントナイトの飽和 (Uneven) saturation of bentonite</li> <li>・ 応力による処分場構成材料への影響 Effects of stress on repository structures</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 地下水によるベントナイトの飽和 Bentonite saturation</li> <li>・ 緩衝材の不透水性 Buffer impermeability</li> </ul>
<p>B-1.2 熱の影響</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 熱-水-応力の影響 Thermo-hydro-mechanical effects</li> <li>・ 熱による浮力 Thermal buoyancy</li> </ul>	<p>・ 温度 Temperature, bentonite buffer</p>		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 熱による変遷 Thermal evolution</li> </ul>
		<p>[埋め戻し材]</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 埋め戻し材中の水理 Flow through backfill</li> <li>・ 埋め戻し材の飽和 Resaturation of bentonite backfill</li> </ul> <p>・ 温度 Temperature, bentonite backfill</p>		

B-2 ベントナイトの力学的安定性

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
B-2.1 ベントナイトの膨潤	<ul style="list-style-type: none"> <li>不均等なベントナイト膨潤 Uneven swelling of bentonite</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>[緩衝材]</li> <li>ベントナイトの膨潤 Bentonite swelling, buffer</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>ベントナイトの膨張 Swelling of bentonite</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>ベントナイトの膨潤圧 Bentonite swelling pressure</li> </ul>
B-2.2 機械的応力	<ul style="list-style-type: none"> <li>緩衝材/埋め戻し材の機械的破損 Mechanical failure of buffer/backfill</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>機械的影響/破損 Mechanical impact/failure, buffer</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>腐食生成物の体積膨張によるベントナイトの圧密 Compaction of bentonite due to volume expansion of corrosion products</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>ベントナイトの可塑性 Bentonite plasticity</li> </ul>
B-2.3 オーバーパックの沈下	<ul style="list-style-type: none"> <li>緩衝材/埋め戻し材中のキャニスタ移動 Movement of canister in buffer/backfill</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>緩衝材中でのキャニスタの移動 Movement of canister in buffer</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>キャニスタによるベントナイトへの負荷→キャニスタの沈下 Load of canister on bentonite =&gt; sinking of canister</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>キャニスタ (オーバーパック) の沈下 Canister sinking</li> </ul>
B-2.4 ベントナイトの流失	<ul style="list-style-type: none"> <li>緩衝材/埋め戻し材の流失 Erosion of buffer/backfill</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>ベントナイトの侵食 Erosion of buffer</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>ベントナイトと他の処分場構成物質の流失 Erosion of bentonite and other repository materials</li> </ul>	
B-2.5 熱の影響	<ul style="list-style-type: none"> <li>熱-水-応力の影響 Thermo-hydro-mechanical effects</li> <li>熱による浮力 Thermal buoyancy</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>温度 Temperature, bentonite buffer</li> </ul>		<ul style="list-style-type: none"> <li>熱による変遷 Thermal evolution</li> </ul>
		<ul style="list-style-type: none"> <li>[埋め戻し材]</li> <li>埋め戻し材の侵食 Erosion of backfill</li> <li>機械的影響/破損 Mechanical impact/failure, backfill</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>温度 Temperature, bentonite backfill</li> </ul>		

B-3 ベントナイト中の地下水化学

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>B-3.1 ベントナイト空隙水の化学</p> <p>B-3.2 放射線分解</p> <p>B-3.3 ガス発生 (水蒸)</p> <p>B-3.4 ガス (空気)</p> <p>B-3.5 微生物の影響</p> <p>B-3.6 有機物</p> <p>B-3.7 熱の影響</p> <p>B-3.8 コロイドの形成</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・緩衝材の化学 Near field buffer chemistry</li> <li>・ベントナイトによる地下水化学への影響 Effects of bentonite on groundwater chemistry</li> <li>・セメント空隙水との反応 Reactions with cement pore water</li> <li>・酸化還元電位 Redox potential</li> <li>・酸化還元フロント Redox front</li> <li>・酸化性条件 Oxidizing conditions</li> <li>・pHの変動 pH-deviations</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・放射線分解 Radiolysis</li> <li>・ガス発生 Gas generation</li> <li>・水蒸/酸素の爆発 H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> explosions</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物 Microbes</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・熱化学的変化 Thermochemical changes</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイド発生 発生源 Colloid generation - source</li> <li>・コロイド, 錯化剤 Colloids, complexing agents</li> <li>・コロイドの凝集 Coagulation of bentonite</li> </ul>	<p>【緩衝材】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・空隙水の化学 Water chemistry, bentonite buffer</li> <li>・電気化学的電位勾配 Electrochemical gradients, buffer</li> <li>・酸化還元フロント Redox front, buffer</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・放射線分解 Radiolysis, buffer</li> <li>・ガス発生 Gas generation, buffer</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物の影響 Microbial activity, buffer</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイドの形成 Colloid generation-source, buffer</li> <li>・コロイドの凝集 Coagulation of bentonite, buffer</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・化学的及び地球化学的条件 Chemical and geochemical conditions</li> <li>・地下水の塩分 Salinity of groundwater</li> <li>・緩衝材と他の処分場構成材料が地下水化学に与える影響 Effects of buffer and other repository materials on groundwater chemistry</li> <li>・鉄とその腐食生成物による化学的緩衝性 Chemical buffering provided by iron and its corrosion products</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・放射線の影響→応力腐食割れの発生条件 Radiation → favourable conditions for stress corrosion cracking</li> <li>・キャニスタ中とその外側における放射線分解 Radiolysis, inside and outside of canister</li> <li>・ガス Gases</li> <li>・微生物 Microbes</li> <li>・錯体 Complexes</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイド Colloids</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ベントナイト空隙水の化学 Bentonite porewater chemistry</li> <li>・セメントの成分との相互作用 Interaction with cement components</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・放射線分解 Radiolysis</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物の影響 Microbial activity</li> <li>・有機物とベントナイトの汚染 Organics/contamination of bentonite</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・熱による変遷 Thermal evolution</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ベントナイトの侵食/コロイドの形成 Bentonite erosion/colloid formation</li> </ul>
		<p>【埋め戻し材】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・空隙水の化学 Water chemistry, tunnel backfill</li> <li>・電気化学的電位勾配 Electrochemical gradients, backfill</li> <li>・酸化還元フロント Redox front, backfill</li> <li>・放射線分解 Radiolysis, backfill</li> <li>・ガス発生 Gas generation, backfill</li> <li>・微生物の影響 Microbial activity, backfill</li> <li>・コロイドの形成 Colloid generation-source, backfill</li> <li>・コロイドの凝集 (埋め戻し材中) Coagulation of bentonite, backfill</li> </ul>		



B-4 ベントナイトの物理/化学的性質

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	Nagra
<p>B-4.1 ベントナイトの物理/化学的性質</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>緩衝材の化学 Near field buffer chemistry</li> <li>化学反応によるベントナイトの劣化 Degradation of the bentonite by chemical reactions</li> <li>緩衝材の化学的性質に与える擾乱 Perturbed buffer material chemistry</li> <li>緩衝材の欠陥 Backfill material deficiencies</li> </ul>	<p>{緩衝材}</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>ベントナイトの特性 Properties of bentonite buffer</li> <li>緩衝材の化学的変質 Chemical alteration of buffer</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>ベントナイトの特性 (密度, 初期含水率, 不純物等) Properties of bentonite (e.g. density, initial saturation, impurities)</li> <li>ベントナイトと他の処分場構成物質の変質 Alteration of bentonite and other repository materials</li> <li>緩衝材と埋め戻し材中の腐食剤 Corrodants in buffer and backfill</li> <li>初期の処分場仕様からの逸脱 Deviations from the planned repository design</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>ベントナイトの施工と組成 Bentonite emplacement and composition</li> <li>鉱学的変質 Mineralogical alteration</li> <li>ベントナイトのセメント化 Bentonite cementation</li> <li>キャニスタとベントナイトとの相互作用 Canister/bentonite interaction</li> <li>ベントナイトの不均質性 (特性・・・) Inhomogeneties (properties and ...)</li> <li>キャニスタ間の相互作用 Interaction between canisters</li> <li>品質管理 Quality Control</li> <li>緩衝材の施工ミス Poor emplacement of buffer</li> <li>熱による変遷 Thermal evolution</li> </ul>
<p>B-4.2 熱の影響</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>緩衝材に与える熱の影響 Thermal effects on the buffer material</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>温度 Temperature, bentonite buffer</li> <li>熱による緩衝材の劣化 Thermal degradation of buffer</li> </ul>		
<p>B-4.3 放射線損傷</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>ベントナイトに与える放射線の影響 Radiation effects on bentonite</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>放射線の影響 Radiation effects, buffer</li> </ul>		
		<p>[埋め戻し材]</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>坑道の埋め戻し材の特性 Properties of tunnel backfill</li> <li>放射線の影響 Radiation effects, backfill</li> <li>熱による劣化 Thermal degradation of backfill</li> <li>埋め戻し材の化学的変質 Chemical alteration of backfill</li> </ul>		
		<ul style="list-style-type: none"> <li>温度 Temperature, bentonite backfill</li> </ul>		

B-5 ベントナイト中の物質移動

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>B-5.1 ベントナイト中の核種移行                      B-5.1.1 拡散                      B-5.1.2 吸着                      B-5.1.3 放射性崩壊                      B-5.1.4 沈澱/溶解</p> <p>B-5.2 加付/有機物/微生物への付着効果</p> <p>B-5.3 ガス移行</p> <p>B-5.4 溶質の拡散</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 拡散-表面拡散 Diffusion - surface diffusion</li> <li>・ マトリクス拡散 Matrix diffusion</li> <li>・ 吸着 Sorption</li> <li>・ 吸着サイトの飽和 Saturation of sorption sites</li> <li>・ 分散 Dispersion</li> <li>・ 溶解度と沈澱 Solubility and precipitation</li> <li>・ 再濃集 Reconcentration</li> <li>・ 連成効果 (電気泳動) Coupled effects (electrophoresis)</li> <li>・ 再結晶化 Recrystallization</li> <li>・ 希釈 Dilution</li> <li>・ ソレー効果 Soret effect, buffer</li> </ul> <p>・ 緩衝材中のガス移行 Gas transport in bentonite</p>	<p>【緩衝材】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 緩衝材中の放射性核種の移行と放出 Transport and release of nuclides, bentonite buffer</li> <li>・ 分散 Dispersion, buffer</li> <li>・ 拡散 Diffusion, buffer</li> <li>・ マトリクス拡散 Matrix diffusion, buffer</li> <li>・ 陰イオン排除 Anion Exclusion, buffer</li> <li>・ 吸着 Sorption, buffer</li> <li>・ 暴動性の放射性核種の崩壊 Radioactive decay of mobile nuclides, buffer</li> <li>・ 沈澱/溶解 Precipitation/dissolution, buffer</li> <li>・ 希釈 Dilution, buffer</li> <li>・ ソレー効果 Soret effect, buffer</li> </ul> <p>・ ガスの移行とガスによる物質移動 Gas flow and transport, buffer</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 初期欠陥キャニスタからの短半減期核種の放出 Release of short-lived nuclides from an initially defective canister</li> <li>・ 拡散による物質移動 Mass flows by diffusion</li> <li>・ 表面拡散 Surface diffusion</li> <li>・ 陰イオン排除 Anionic exclusion</li> <li>・ 吸着サイトの飽和 Saturation of sorption places</li> <li>・ 溶解度 Solubilities</li> <li>・ 化学種分配 Speciation</li> </ul> <p>・ ガスの圧力と移行 Gas pressure and release</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 緩衝材中の放射性核種の移行 Radionuclide transport through buffer</li> <li>・ 放射性核種の移行遅延 Radionuclide retardation</li> <li>・ 放射性元素の溶解度/沈澱 Elemental solubility/precipitation</li> </ul> <p>・ コロイドのフィルター効果 Colloid filtration</p> <p>・ ガスの透気性 Gas permeability</p>
		<p>【埋め戻し材】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 埋め戻し材中の放射性核種の移行と放出 Transport and release of nuclides, tunnel backfill</li> <li>・ 拡散 Diffusion, backfill</li> <li>・ マトリクス拡散 Matrix diffusion, backfill</li> <li>・ 陰イオン排除 Anion Exclusion, backfill</li> <li>・ 吸着 Sorption, backfill</li> <li>・ 希釈 Dilution, backfill</li> <li>・ 沈澱/溶解 Precipitation/dissolution, backfill</li> <li>・ 暴動性の放射性核種の崩壊 Radioactive decay of mobile nuclides, backfill</li> </ul> <p>・ ガスの移行とガスによる物質移動 Gas flow and transport, backfill</p>		

H-1 ニアフィールド母岩中の水理

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>H-1.1 NF母岩中の水理</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>地下水流動の変化 Changes of groundwater flow</li> <li>再飽和 Resaturation</li> <li>透水性に与える応力の影響 Stress changes of conductivity</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>ニアフィールド母岩中の地下水流動 Groundwater flow, NF rock</li> <li>ニアフィールド母岩の再飽和 Resaturation, NF rock</li> <li>ニアフィールド母岩の断層 Faulting, NF rock</li> <li>地下水流動の境界条件 External flow boundary conditions</li> </ul>		<p>[低透水性領域 (LPD)] [ベントナイトと母岩とのインターフェイス部] (*)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>低透水性領域における水理学的特性 LPD effective hydraulic properties</li> <li>導水性要素 (タイプ) Water-conducting features (types)</li> <li>低透水性領域中の地下水流動 Groundwater flow in LPD</li> <li>地下水の移行経路 Groundwater flowpath</li> <li>動水勾配の変化 (大きさと方向) Hydraulic gradient changes (magnitude, direction)</li> <li>地層中のガス (初生ガス等) Geogas</li> </ul>
<p>H-1.2 掘削影響</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>透水性の変化-掘削/埋め戻しの影響 Hydraulic conductivity change - Excavation/backfilling effect</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>近傍の岩体への掘削影響 Excavation effect on nearby rock</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>処分場の存在による地下水流動への影響 Effects of repository on groundwater flow</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>不飽和/再飽和状態の掘削影響領域(*) Disaturation/resaturation of EDZ</li> <li>掘削影響領域へのベントナイト膨潤の影響(*) Effect of bentonite swelling on EDZ</li> <li>ベントナイトと母岩とのインターフェイス部における地下水流動(*) Water flow at the bentonite/host rock interface</li> </ul>
<p>H-1.3 熱の影響</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>熱-水-応力の影響 Thermo-hydro-mechanical effects</li> <li>地熱による地下水流動への影響 Geothermally induced flow</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>温度 Temperature, NF rock</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>気候変動による地下水の水理と化学への影響 Effects of climatic changes on flow and chemistry of groundwater</li> <li>人間活動による地下水の水理と化学への影響 Effects of human actions on flow and chemistry of groundwater</li> <li>氷河期における水頭圧 Hydrostatic pressure during glaciation</li> <li>氷河によって生じる動水勾配と透水性の変化 Glaciation induced changes in gradients and infiltration</li> <li>氷河の融水 Glacial meltwater</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>密度差による地下水流動 (温度依存) Density-driven groundwater flow (thermal)</li> <li>地熱分布 Geothermal regime</li> </ul>

H-2 ニアフィールド母岩の力学的安定性

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
II-2.1 機械的応力		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 応力場 Stress field, NF rock</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ ベントナイトの膨張 Swelling of bentonite</li> <li>・ 深さが及ぼす機械荷重への影響 Effects of disposal depth on mechanical loads</li> </ul>	<p>【低透水性領域 (LPD)】 【ベントナイトと母岩とのわが-7.1.1.1部】 (*)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 広域応力分布 Regional stress regime</li> <li>・ ガス圧の影響 Gas pressure effects</li> </ul>
II-2.2 掘削影響	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 近傍の岩体を与える掘削/埋め戻しの影響 Excavation/backfilling effects on nearby rock</li> <li>・ 機械的影響-掘削/埋め戻しの影響 Mechanical effects - Excavation/backfilling effect</li> </ul>			
II-2.3 ベントナイトの侵入	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 坑道や岩体の割れへのベントナイトの侵入 Swelling of bentonite into tunnels and cracks</li> </ul>		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 亀裂へのベントナイトの侵入 Intrusion of bentonite into fractures</li> </ul>	
II-2.4 熱の影響	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 熱-水-応力の影響 Thermo-hydro-mechanical effects</li> <li>・ 熱による浮力 Thermal buoyancy</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 温度 Temperature, NF rock</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 氷による荷重 Ice load</li> <li>・ 氷河による応力場の変化と岩体での亀裂発生 Changes in stress field and fracturing of rock due to glaciation</li> <li>・ 氷河による処分場構成物質の流失 Erosion of structures of the repository due to glaciation</li> </ul>	

H-3 ニアフィールド母岩中の地下水化学

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
H-3.1 NF母岩中の地下水化学	<ul style="list-style-type: none"> <li>・近傍の岩体中の地下水の地球化学的变化 Change of groundwater chemistry in nearby rock</li> <li>・ベントナイトによる地下水化学への影響 Effects of bentonite on groundwater chemistry</li> <li>・塩水 (又は淡水) の地下水の侵入 Saline (or fresh) groundwater intrusion</li> <li>・酸化還元フロント Redox front</li> <li>・酸化性条件 Oxidizing conditions</li> <li>・pHの変動 pH-deviations</li> <li>・酸化還元電位 Redox potential</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・地下水の化学 Groundwater chemistry</li> <li>・深部塩水地下水の侵入 Deep saline water intrusion</li> <li>・異なる地下水とのインターフェイス Interface different waters</li> <li>・空隙水の化学 Water chemistry, NF rock</li> <li>・電気化学的電位勾配 Electrochemical gradients, NF rock</li> <li>・酸化還元フロント Redox front, NF rock</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・化学的及び地球化学的条件 Chemical and geochemical conditions</li> <li>・緩衝材と他の処分場構成材料が地下水化学に与える影響 Effects of buffer and other repository materials on groundwater chemistry</li> <li>・地下水の塩分 Salinity of groundwater</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>【低透水性領域 (LPD)】</li> <li>・鉱物学 Mineralogy</li> <li>・地下水化学 Groundwater chemistry</li> <li>・塩水地下水の侵入 Intrusion of saline groundwater</li> <li>・酸化性地下水の流入 Influx of oxidising water</li> </ul>
H-3.2 放射線分解	<ul style="list-style-type: none"> <li>・放射線分解 Radiolysis</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・放射線分解 Radiolysis, NF rock</li> </ul>		
H-3.3 ガス (空気)		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ガス発生 Gas generation, NF rock</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ガス Gases</li> </ul>	
H-3.4 微生物の影響 H-3.5 有機物	<ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物 Microbes</li> <li>・錯化剤 Complexing agents</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物の活動 Microbial activity, NF rock</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物 Microbes</li> <li>・錯体 Complexes</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・微生物の活動 Microbial activity</li> <li>・有機物 Organics</li> </ul>
H-3.6 熱の影響	<ul style="list-style-type: none"> <li>・熱化学的变化 Thermochemical changes</li> </ul>			
H-3.7 コロイド	<ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイド, 錯化剤 Colloids, complexing agents</li> <li>・溶解の化学 Dissolution chemistry</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイドの形成 Colloid generation-source, NF rock</li> <li>・再濃集 Reconcentration, NF rock</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・コロイド Colloids</li> </ul>	
			<ul style="list-style-type: none"> <li>・気候変動による地下水の水理と化学への影響 Effects of climatic changes on flow and chemistry of groundwater</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>【ベントナイトと母岩とのインターフェイス部及び処分施設】</li> <li>・地下水地球化学 Groundwater chemistry</li> <li>・石油や有機物を含む流体の流出 Oil or organic fluid spill</li> </ul>

H-4 ニアフィールド母岩の物理/化学的性質

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>H-4.1 NF母岩の物理/化学的性質</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 岩体中の亀裂の増大 Enhanced rock fracturing</li> <li>• 岩体のクリープ Creeping of rock mass</li> <li>• 岩体前線部に与える化学的影響 Chemical effects of rock reinforcement</li> <li>• 亀裂中のベントナイト堆積 Sedimentation of bentonite</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• ニアフィールド母岩の特性 Properties of NF rock</li> <li>• ニアフィールド母岩中の地下水流路の変化と風化 Alteration/weathering of flow paths, NF rock</li> <li>• ニアフィールド母岩の亀裂の増大 Enhanced rock fracturing, NF</li> <li>• 岩体のクリープ Creeping of rock mass, NF</li> <li>• 亀裂中のベントナイト堆積 Sedimentation of bentonite</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 岩体亀裂の特性 Properties of rock fractures</li> <li>• 亀裂充填物質の変質 Alteration of fracture fillings</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>• 岩体の掘削影響領域 Disturbed rock zone</li> </ul>	<p>[低透水性領域 (LPD)] [ベントナイトと母岩との接触界面] (*) • 導水性要素 (タイプ) Water-conducting features(types)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• 掘削影響領域 (EDZ) (*) Excavation-disturbed zone(EDZ)</li> <li>• 地球化学的变化(*) Geochemical alteration</li> </ul>
<p>H-4.2 掘削影響</p>				
<p>H-4.3 熱の影響</p>		<ul style="list-style-type: none"> <li>• 温度 Temperature, NF rock</li> </ul>		
<p>H-4.4 放射線損傷</p>				

H-5 ニアフィールド母岩中の物質移動

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>H-5.1 NF母岩中の核種移行</p> <p>H-5.1.1 移流/分散</p> <p>H-5.1.2 拡散 (マトリクス拡散を含む)</p> <p>H-5.1.3 吸着</p> <p>H-5.1.4 放射性崩壊</p> <p>H-5.1.5 沈澱/溶解</p> <p>H-5.2 コロイドと有機物の移動</p> <p>H-5.3 ガス移行</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・分散 Dispersion</li> <li>・拡散-表面拡散 Diffusion - surface diffusion</li> <li>・マトリクス拡散 Matrix diffusion</li> <li>・吸着 Sorption</li> <li>・吸着サイトの飽和 Saturation of sorption sites</li> <li>・溶解度と沈澱 Solubility and precipitation</li> <li>・再濃集 Reconcentration</li> <li>・連成効果 (電気泳動) Coupled effects (electrophoresis)</li> <li>・再結晶化 Recrystallization</li> <li>・希釈 Dilution</li> <li>・同位体希釈 Isotopic dilution</li> <li>・コロイドの形成と移行 Colloid generation and transport</li> <li>・ガス移行 Gas transport</li> <li>・亀裂充填鉱物/沈澱物の溶解 Dissolution of fracture filling/precipitations</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ニアフィールド母岩中の放射性核種の移行と放出 Transport and release of nuclides, NF rock</li> <li>・分散 Dispersion, NF rock</li> <li>・拡散 Diffusion, NF rock</li> <li>・陰イオン排除 Anion Exclusion, NF rock</li> <li>・マトリクス拡散 Matrix diffusion, NF rock</li> <li>・吸着 Sorption, NF rock</li> <li>・移動性の放射性核種の崩壊 Radioactive decay of mobile nuclides, NF rock</li> <li>・沈澱/溶解 Precipitation/dissolution, NF rock</li> <li>・ガスの移行とガスによる物質移動 Gas flow and transport, NF rock</li> <li>・ニアフィールド・バリア領域の差別的な熱の膨がり Differential thermal expansion of NF barriers</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・拡散による物質移動 Mass flows by diffusion</li> <li>・ガスの圧力と放出 Gas pressure and release</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>【低透水性領域 (LPD)】 【ベントナイトと母岩との界面部】 (*)</li> <li>・低透水性領域中の核種移行 Radionuclide transport through LPD</li> <li>・掘削影響領域からの放射性核種の放出(*) Radionuclide release from EDZ</li> <li>・掘削影響領域中の放射性核種の移行(*) Radionuclide migration</li> <li>・マトリクス拡散 Matrix diffusion</li> <li>・吸着 Sorption</li> <li>・非線形吸着 Non-linear sorption</li> <li>・放射性核種の移行遅延(*) Radionuclide retardation</li> <li>・溶解度制限/コロイド形成 Solubility limits/colloid formation</li> <li>・放射性元素の溶解度(*) Elemental solubility</li> <li>・地下水中の希釈効果 (低透水性領域から高透水性領域または導水性要素への) Dilution of radionuclides in ground-water (LPD to HPD or MWCF)</li> <li>・天然コロイド Natural colloids</li> <li>・コロイド(*) Colloids</li> <li>・ガスの移行/溶解(*) Gas transport/dissolution</li> <li>・天然の放射性核種/元素(*) Natural radionuclides/elements</li> </ul>

F-1 ファーフィールド母岩中の水理

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>F-1.1 FF母岩中の水理</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・地下水流動の変化 Changes of groundwater flow</li> <li>・地下水流動の増大 Enhanced groundwater flow</li>   <li>・地熱による地下水流動の変化 Geothermally induced flow</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ファーフィールドの地下水流動 Groundwater flow, FF</li> <li>・ファーフィールドの再飽水 Resaturation, FF rock</li> <li>・ニアフィールド母岩の断層 Faulting, FF</li> <li>・地下水流動の境界条件 External flow boundary conditions</li>   <li>・温度 Temperature, FF</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・処分場の存在による地下水流動への影響 Effects of repository on groundwater flow</li>   <li>・気候変動による地下水の水理と化学への影響 Effects of climatic changes on flow and chemistry of groundwater</li> <li>・人間活動による地下水の水理と化学への影響 Effects of human actions on flow and chemistry of groundwater</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>【主要な導水空隙(MWCF)】</li> <li>・MWCFの水理学的特性 MWCF effective hydraulic properties</li> <li>・導水性の要素(タイプ) Water-conducting features(types)</li> <li>・MWCFにおける地下水流動 Groundwater flow in MWCF</li> <li>・地下水の移行経路 Groundwater flowpath</li> <li>・動水勾配の変化(大きさと同方向) hydraulic gradient changes(magnitude, direction)</li> <li>・密度差による地下水の駆動(温度差/塩水濃度) Density-driven groundwater flows (thermal)</li>   <li>【高透水性領域 (HPD)】</li> <li>・高透水性領域における水理学的特性 HPD effective hydraulic properties</li> <li>・地下水の移行経路 Groundwater flow path</li> <li>・地下水流動 Groundwater flow</li> <li>・地下水流動の境界条件 Boundary conditions for flow</li> <li>・動水勾配(大きさと同方向) hydraulic gradient(magnitude, regional direction)</li> <li>・密度差による地下水の駆動(温度差/塩水濃度) Density-driven groundwater flows (temperature/salinity differences)</li>   <li>・TRU廃棄物によるアルカリまたは有機物のプルーム TRU alkaline or organic plume</li> <li>・地層中のガス Geogas</li> <li>・探査ボーリング(シーリング) Exploratory boreholes(sealing)</li> </ul>



F-2 ファーフィールド母岩の力学的安定性

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>F-2.1 機械的応力</p>		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 応力場 Stress field, FF</li>   <li>・ 温度 Temperature, FF</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 深さによる機械的荷重への影響 Effects of disposal depth on mechanical loads</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>【主要な導水空隙(HWCF)】</li> <li>・ 広域の応力体系 Regional stress regime</li> <li>・ ガス圧の影響 Gas pressure effects</li>   <li>・ 地熱体系 Geothermal regime</li>   <li>【高透水性領域 (HPD)】</li> <li>・ 応力体系 Stress regime</li> <li>・ 侵食 Erosion</li> </ul>

F-3 ファーフィールド母岩中の地下水化学

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>F-3.1 FF母岩中の地下水化学</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・塩水 (又は天水) の地下水の侵入 Saline (or fresh) groundwater intrusion</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・地下水の化学 Groundwater chemistry</li> <li>・深部塩水地下水の侵入 Deep saline water intrusion</li> <li>・異なる地下水のインターフェイス Interface different waters</li> <li>・電気化学的電位勾配 Electrochemical gradients, FF</li> <li>・酸化還元フロント Redox front, FF</li> <li>・ガス発生 Gas generation and gas sources, FF</li> <li>・微生物の活動 Microbial activity, FF</li> <li>・コロイドの形成 Colloid generation-source, FF</li> <li>・再濃集 Reconcentration, FF</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・化学的及び地球化学的條件 Chemical and geochemical conditions</li> <li>・地下水の塩分 Salinity of groundwater</li> <li>・ガス Gases</li> <li>・微生物 Microbes</li> <li>・錯体 Complexes</li> <li>・コロイド Colloids</li> <li>・気候変動による地下水の水理と化学への影響 Effects of climatic changes on flow and chemistry of groundwater</li> <li>・人間活動による地下水の水理と化学への影響 Effects of human actions on flow and chemistry of groundwater</li> </ul>	<p>[主要な導水空隙(HWCF)]</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・地下水の化学 Groundwater chemistry</li> <li>・塩水地下水の侵入 (熱による) Intrusion of saline groundwater(thermal)</li> <li>・酸化性地下水の侵入 Influx of oxidising water</li> <li>・鉱物学 Mineralogy</li> <li>・地層中のガス Geogas</li> <li>・微生物の活動 Microbial activity</li> <li>・有機物 Organics</li> <li>・天然コロイド Natural colloids</li> <li>・高透水性領域 (HPD) ]</li> <li>・地下水化学 Groundwater chemistry</li> </ul>

F-4 ファーフィールド母岩の物理/化学的性質

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>F-4.1 FF母岩の物理/化学的性質</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・岩体中の亀裂の増大 Enhanced rock fracturing</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ファーフィールド母岩の特性 Properties of FF rock</li> <li>・ファーフィールドの地下水流路の変化と風化 Alteration/weathering of flow paths, FF</li>   <li>・温度(*) Temperature, FF</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・岩体亀裂の特性 Properties of rock fractures</li> <li>・亀裂充填物質の変質 Alteration of fracture fillings</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>【主要な導水空隙(MCF)】</li> <li>・導水性要素 (タイプ) Water-conducting features(types)</li>   <li>【高透水性領域 (HPD)】</li> <li>・中生代被覆層 Mesozoic sedimentary cover</li> <li>・パルモカルボニフェラストラフ Permian-Carboniferous Trough</li> </ul>

F-5 ファーフールド母岩中の物質移動

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>F-5.1 FF母岩中の核種移行</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・分散 Dispersion</li> <li>・拡散-表面拡散 Diffusion - surface diffusion</li> <li>・マトリクス拡散 Matix diffusion</li> <li>・吸着 Sorption</li> <li>・吸着サイトの飽和 Saturation of sorption sites</li> <li>・溶解度と沈殿 Solubility and precipitation</li> <li>・希釈 Dilution</li> <li>・同位体希釈 Isotopic dilution</li> <li>・コロイドの形成と移行 Colloid generation and transport</li> <li>・ガス移行 Gas transport</li> <li>・亀裂充填物/沈殿物の溶解 Dissolution of fracture filling/precipitations</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・分散 Dispersion, FF</li> <li>・拡散 Diffusion, FF</li> <li>・マトリクス拡散 Matrix diffusion, FF rock</li> <li>・陰イオン排除 Anion Exclusion, FF rock</li> <li>・吸着 Sorption, FF</li> <li>・移動性の放射性核種の崩壊 Radioactive decay of mobile nuclides, FF</li> <li>・沈殿/溶解 Precipitation/dissolution, FF</li> <li>・ガスの移行とガスによる物質移動 Gas flow and transport, FF</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・拡散による物質移動 Mass flows by diffusion</li> </ul>	<p>[主要な導水空隙(MWCF)]</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・MWCFにおける放射性核種の移行 Radionuclide transport through MWCF</li> <li>・マトリクス拡散 Matrix diffusion</li> <li>・吸着 Sorption</li> <li>・非線形吸着 Non-linear sorption</li> <li>・溶解度/コロイド形成 Solubility limit/colloid formation</li> <li>・ガス圧の影響 Gas pressure effects</li> <li>・地下水による放射性核種の希釈 (MWCFから高透水性領域や生物圏) Dilution of radionuclides in groundwater (MWCF to HPD and Biosphere)</li> <li>・高透水性領域 (HPD) ]</li> <li>・放射性核種の吸着 Radionuclide sorption</li> <li>・高透水性領域での放射性核種の希釈 Dilution of radionuclides in HPD</li> </ul>

生物圏 (1)

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>植物による吸入 動物による吸入 土壌及び堆積物中のバイオターベーション 土壌生成作用 化学的変化 微生物との相互作用 生態系の変化 (山火事等) 気候変動への生態系の追従 (砂漠化等) 動植物の適化</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 表層/堆積層の侵食 Erosion on surface/sediments</li> <li>・ 移行経路の風化 Weathering of flow paths</li> <li>・ 堆積層での蓄積 Accumulation in sediments</li> <li>・ 泥炭での蓄積 Accumulation in peat</li> <li>・ 生物圏の蓄積領域への侵入 Intrusion into accumulation zone in the biosphere</li> <li>・ 人間活動による表層水水理の変化 Human induced changes in surface hydrology</li> <li>・ 人間活動による表層水の化学的変動 Altered surface water chemistry by humans</li> <li>・ メタンの侵入 Methane intrusion</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 表層水の化学 Surface water chemistry</li> <li>・ 地質圏からの放射性核種の分布と放出 Distribution and release of nuclides from the geosphere</li> </ul>		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 現時点の生物圏 Present-day biosphere</li> <li>・ 将来の生物圏の条件 Future biosphere conditions</li> <li>・ 局所的な帯水層への核種の浸出 Exfiltration to local aquifer</li> <li>・ 表層水への核種の浸出 Exfiltration to surface waters</li> <li>・ 堆積層での放射性核種の蓄積 RN accumulation in sediments</li> <li>・ 土壌での放射性核種の蓄積 Radionuclide accumulation in soils</li> <li>・ 水源開発 Water resource exploitation</li> <li>・ 浸透 Filtration</li> <li>・ 農作物の吸入 Uptake by crops</li> <li>・ 農作物の吸入 Uptake by livestock</li> <li>・ 魚類の吸入 Uptake in fish</li> <li>・ 放射性核種の揮発/エアロゾル/ダスト Radionuclide volatilisation/aerosol/dust production</li> <li>・ ばびく経路 Exposure pathways</li> <li>・ 人間の生活様式 Human lifestyle</li> <li>・ 放射線の線量 Radiation doses</li> <li>・ 食物連鎖の均衡 Food chain equilibrium</li> <li>・ 放射性核種の吸着 Radionuclide sorption</li> <li>・ 放射平衡 Secular equilibrium of RN chains</li> <li>・ 表層水の流れ Surface water flow (river Rhine)</li> <li>・ 地下水の流れ Groundwater flow (alluvium of Rhine valley)</li> <li>・ 放射性核種の希釈 Dilution of radionuclides (alluvium to river)</li> <li>・ 浸食/堆積 (変化) Erosion/deposition (changes)</li> <li>・ 堆積層 Sedimentation</li> <li>・ 土壌の形成 Soil formation</li> <li>・ 土壌 Soil</li> <li>・ 表層水の体系 Surface water bodies</li> <li>・ 大気 Atmosphere</li> <li>・ インターフェイスの効果 Interface effects</li> </ul>

生物圏 (2)

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
				<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 降 雨 Precipitation</li> <li>・ 蒸発・発散 Evapotranspiration</li> <li>・ 毛管現象による吸引 Capillary rise</li> <li>・ パーコレーション Percolation</li> <li>・ 灌 漑 Irrigation</li> <li>・ 表面水の流出 Surface run-off</li> <li>・ バイオターベーション Bioturbation</li> <li>・ 浮遊堆積物の移動 Suspended sediment transport</li> <li>・ 地表での活動 (人間活動, 浚渫等) Earth works(human actions, dredging etc.)</li> <li>・ 農耕作業 Ploughing</li> <li>・ 農業プロセス Agricultural processes</li> <li>・ 自然環境と半自然環境 Natural and semi-natural environments</li> <li>・ 狩猟/取獲の生活様式 Hunter/gathering lifestyle</li> <li>・ 汚染生成物 Contaminated products(non-food)</li> <li>・ 削刺のメカニズム Removal mechanisms</li> <li>・ 非汚染物質の消費 Consumption of uncontaminated products</li> <li>・ ラドンの移行経路と線量 Radon pathways and doses</li> </ul>

地質学的プロセス等

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>地球外の現象 隕石の衝突 太陽放射</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 隕石の衝突 Meteorite</li> </ul>			<p>【地質学的プロセス】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 地球外の事象 Extraterrestrial events</li> </ul>
<p>地質学的現象 プレート運動/テクトニクス的变化 地磁気の変化 火成活動 変成作用 統成作用 隆起/沈降 地震/断層運動 岩体の不均質性 (透水性, 鉱物組成)</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 構造運動-大規模 Tectonic activity - large scale</li> <li>・ プレートの動きの影響 Effect of plate movements</li> <li>・ 磁場の変動 Changes of the magnetic field</li> <li>・ 火山活動 Volcanism</li> <li>・ ダイクの貫入 Intruding dykes</li> <li>・ 隆起/沈降 Uplift and subsidence</li> <li>・ 地震 Earthquakes</li> <li>・ 断層運動 Faulting</li> <li>・ 統成作用 Diagenesis</li> <li>・ 未知の地質構造の不連続性 Undetected discontinuities</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 地球潮汐 Earth tides</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 岩体の動き Rock movements</li> <li>・ 隆起 Land uplift</li> <li>・ 地震 Earthquakes</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ マグマ活動 (火山活動と深成活動) Magmatic activity (volcanism and plutonism)</li> <li>・ 地震活動 Seismic activity</li> <li>・ 基盤岩の変質 Basement alteration</li> </ul>
<p>地形学的現象 地滑り 表面削刷 河川侵食 河川の蛇行 海食 堆積作用 寒冷気候の影響 (ソリフラクション等) 化学的侵食作用及び風化作用</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 未知の破砕帯 Undetected fracture zones</li> <li>・ 河川の蛇行 River meandering</li> </ul>			<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 侵食/削刷 Erosion/denudation</li> </ul>
<p>水理学的現象 地下水循環 不均質系での地下水流動 地下水流動状況の変化 地下水系への汚水の混入 塩漬境界の影響 被圧帯水層 地熱の影響</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 地下水の補給と流出 Groundwater recharge/discharge</li> <li>・ ガス田での地下水化学-酸, 酸化剤, 窒化物 Gas field hydrochemistry - acids, oxidants, nitrate</li> <li>・ 地下水流動の増大 Enhanced groundwater flow</li> </ul>			<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 応力の変化-水理地質学的影響 Stress changes-hydrogeological effects</li> <li>・ 広域地下水の水平方向の動き Regional horizontal movements</li> <li>・ 広域地下水の垂直方向の動き Regional vertical movements</li> <li>・ 主要な断層に沿った地下水の動き Movements along major faults</li> <li>・ 小規模の断層に沿った地下水の動き Movements along small-scale faults</li> <li>・ 熱水活動 Hydrothermal activity</li> </ul>

気候学的プロセスと事象

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>気候学的現象</p> <p>永久凍結層の影響 氷河作用 (氷河侵食等)</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>氷河作用 Glaciation</li> <li>No ice age</li> <li>凍土 Permafrost</li> <li>凍上下のガスの蓄積 Accumulation of gases under permafrost</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>氷河作用 Glaciation</li> <li>凍土 Permafrost</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>氷河作用 Glaciation</li> <li>凍土 Permafrost</li> <li>氷の荷重 Ice load</li> <li>氷河期における水頭圧 Hydrostatic pressure during glaciation</li> <li>氷河による応力場の変化と岩体での亀裂発生 Changes in stress field and fracturing of rock due to glaciation</li> <li>氷河による処分場構成物質の流失 Erosion of structures of the repository due to glaciation</li> <li>氷河による動水勾配と透水性の変化 Glaciation induced changes in gradients and infiltration</li> <li>氷河による地下水中の浮遊物質とガスの濃度変化 Glaciation induced changes in concentration of dissolved substances and gases in groundwater</li> <li>氷河の融水 Glacial meltwater</li> </ul>	<p>【気候学的プロセスと事象】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>氷河による侵食/堆積 Glacial erosion/sedimentation</li> <li>氷河-河川による侵食/堆積 Glacial-fluvial erosion/sedimentation</li> <li>氷床の影響 (機械的負荷、融水の涵養) Ice sheet effects (loading, melt water recharge)</li> <li>凍土 Permafrost</li> <li>氷河気候 Glacial climate</li> </ul>
<p>海面変動</p> <p>降雨, 気温, 土壌の水収支 洪水</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>海水準の変動 Change in sealevel</li> <li>砂漠化と地下水の枯渇 Desert and unsaturation</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>海水準の変動 Sea-level change</li> </ul>		<ul style="list-style-type: none"> <li>現在の気候条件 Present-day climatic conditions</li> <li>影響を及ぼす水分 (量) Effective moisture (amount)</li> <li>気候の季節的変動 Seasonality of climate</li> <li>将来の気候条件 Future climatic conditions</li> <li>ツンドラ気候 Tundra climate</li> <li>温暖乾燥気候 Warmer climate-arid</li> <li>温暖湿潤気候 (季節変動有り) Warmer climate-seasonal humid</li> <li>温暖湿潤気候 (季節変動なし) Warmer climate-equable humid</li> <li>温室効果 Greenhouse effect</li> </ul>
				<ul style="list-style-type: none"> <li>河川による侵食/堆積 Fluvial erosion/sedimentation</li> <li>表面削刷 Surface denudation</li> </ul>



人間活動

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	N a g r a
<p>閉鎖後の地下活動 (処分場への侵入)                      廃棄物あるいは資材回収                      テロ行為あるいは戦争                      試 鉱                      探 鉱                      地熱エネルギー利用                      資源採取                      トンネル工事利用                      地下構造物建設 (居住, 他廃棄物の処分)                      考古学的調査                      液体廃棄物等の注入                      地下水のくみ上げ</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 廃棄物回収, 探鉱 Waste retrieval, mining</li> <li>・ 結晶質岩の将来利用 (資源として) Other future uses of crystalline rock</li> <li>・ 地熱エネルギーの利用 Geothermal energy production</li> <li>・ 地下での居住 Underground dwellings</li> <li>・ 考古学的調査 Archeological intrusion</li> <li>・ 飲料水用の井戸 Water producing well</li> <li>・ ボーリング孔の再利用 Reuse of boreholes</li> </ul>		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 人間侵入 Human intrusion</li> <li>・ 井 戸 Well</li> </ul>	<p>【人間活動】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 探査探削 Exploratory drilling</li> <li>・ 探鉱活動 Mining activities</li> <li>・ 地熱探査 Geothermal exploitation</li> <li>・ 液体廃棄物の注入 Liquid waste injection</li> <li>・ 深部地下水の汲み上げ Deep groundwater abstraction</li> <li>・ 地下水の汚染 Groundwater pollution</li> <li>・ 表層の汚染 (土壌, 河川) Surface pollution (soils, rivers)</li> </ul>
<p>閉鎖後の地表の活動                      記録の喪失                      ダム, 貯水池の建設, 放水                      河川の引水                      灌 漑                      土壌改良及び地下水水質制御                      農 (畜産を含む) 林水産業                      人口変化及び都市開発                      人間活動による気候変化 (温室効果等)                      採石・泥炭採取</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 記録の喪失 Loss of records</li> <li>・ 人間活動による地下水滞留 Human induced actions on groundwater recharge</li> <li>・ サイトにおける都市化 City on the site</li> <li>・ 人間活動による気候変動 Human induced climate change</li> <li>・ 核戦争 Nuclear war</li> <li>・ 地下での核兵器実験 Underground test of nuclear devices</li> <li>・ 爆 発 Explosions</li> </ul>			<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 処分場の記録, マーカー Repository records, markers</li> <li>・ 人間が引き起こす気候変動 Human-induced climate changes</li> <li>・ 立入り制限 Planning restrictions</li> </ul>

処分場に関連する事象

PNC	SKB/SKI	SKI (SITE94)	TVO	Nagra
<p>処分場の設計及び建設 未検出の過去の漏洩（貫通孔等） 調査用試験孔の閉鎖欠陥あるいは閉鎖材劣化 立坑又は連絡坑道の閉鎖欠陥あるいは閉鎖材劣化 応力場の変化（地盤沈下、沈降、空洞の形成） 母岩の吸水 人工材料の欠陥（オーバーバックの早期破損等）</p> <p>崩壊及び閉鎖 覆面材又は埋め戻し材の圧縮又は空隙の生成 廃棄物の不均質性（物理的又は化学的）</p> <p>臨界</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ ボーリングの失敗と過去に行われた未知のボーリング Failure boreholes and undetected past boreholes</li> <li>・ シーリングされていない処分場 Non-sealed repository</li> <li>・ 残留した汚染物質 Stray materials left</li> <li>・ 汚染物質の残留 Decontamination materials left</li> <li>・ 化学的破壊 Chemical sabotage</li> <li>・ 処分場の設計ミス Poorly designed repository</li> <li>・ 処分建設のミス Poorly constructed repository</li> <li>・ シーリングされていないボーリング孔と立坑 Unsealed boreholes and/or shafts</li> <li>・ 操業期間中の事故 Accidents during operation</li> <li>・ 孔と立坑のシーリングの劣化 Degradation of hole- and shaft seals</li> <li>・ 閉鎖後モニタリング Postclosure monitoring</li> <li>・ サイト改良の失敗 Unsuccessful attempt of site improvement</li> <li>・ 処分場の機械的破壊 Mechanical failure of repository</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 他の廃棄物との共処分 Co-storage of other waste</li> <li>・ 近傍に処分された他の廃棄物 Near storage of other waste</li> <li>・ 廃棄物の化学的毒性 Chemical toxicity of wastes</li> </ul> <p>臨界 Criticality</p>	<p>臨界 Criticality</p>	<p>臨界 Criticality</p>	<p>【処分場に関連する事象】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 探査ボーリング（シーリング） Exploratory boreholes (sealing)</li> <li>・ 高レベル放射性廃棄物処分場パネル（立地） HLW panels (siting)</li> <li>・ アクセス坑道と立坑 Access tunnels and shafts</li> <li>・ 立坑と坑道のシーリング Shaft and tunnel seals</li> </ul>

## B. PHREEQEの改良

本文2.3.2節の検討に基づき、地球化学計算コードPHREEQEの改良結果を以下に示す。

### B.1 PHREEQEのソース修正箇所

In SUBROUTINE "AQMOD"

```
C          ELECTRICAL BALANCE
C *****
C          BENTONITE MUST BE IGNORED FROM ELECTRICAL BALANCE
C
C          IF (SNAME(I). EQ. 'BENT-  ') GO TO 105
C
C          AR(1,K2)=AR(1,K2)+DM*ZSP(I)
105 CONTINUE
C *****
C          THOR BALANCE
C          AR(2,K2)=AR(2,K2)+DM*THSP(I)
C          ALKALINITY EQUATION
C          AR(3,K2)=AR(3,K2)+DM*ALKSP(I)
110 CONTINUE
C          THSOLN=THSOLN+M(I)*THSP(I)
C
C *****
C          REVISE FOR KEEPING OF CHARGE BALANCE IN PRESENCE OF
C          BENTONITE.  BENTONITE IS REGARDED AS FIXIOUS
C          SPECIES THEREFORE EXCLUDED FROM BALANCE EQUATION
C
C          IF (SNAME(I). EQ. 'BENT-  ') GO TO 115
C
C          REVISED FOR CORROSION PRODUCT AS WELL AS BENTONITE
C
C          IF (SNAME(I). EQ. 'SI:ADSI ') GO TO 115
C          IF (SNAME(I). EQ. 'SI:ADSII') GO TO 115
C          IF (SNAME(I). EQ. 'AL:ADS  ') GO TO 115
C
C          ELECT=ELECT+M(I)*ZSP(I)
115 CONTINUE
C *****
```

in SUBROUTINE "GAMMA"

```
C          CALCULATE IONIC STRENGTH
C          DOLDMU=MU
C          SUM=M(1)
C          MU=M(1)
C *****
C          REVISE FOR PASSING OF ACTIVITY COEFF. CALCULATION FOR
C          SOLID SPECIES BECAUSE THESE SOLID SPECIES SHOULD HAVE
C          UNIT ACTIVITY COEFFICIENT.
C
C
C          DO 10 I=4,LASTS
C
C          ---- ADSORPTION DUE TO ION EXCHANGE ----
C          IF (SNAME(I). EQ. 'BENT-') GOTO 10
C          IF (SNAME(I). EQ. 'H-BENT ') GOTO 10
C          IF (SNAME(I). EQ. 'NA-BENT ') GOTO 10
C          IF (SNAME(I). EQ. 'K-BENT ') GOTO 10
C          IF (SNAME(I). EQ. 'CS-BENT ') GOTO 10
C          IF (SNAME(I). EQ. 'CA-BENT ') GOTO 10
C          IF (SNAME(I). EQ. 'MG-BENT ') GOTO 10
C          IF (SNAME(I). EQ. 'SR-BENT ') GOTO 10
C
C          ---- ADSORPTION TO CORROSION PRODUCT ----
C          IF (SNAME(I). EQ. 'COROSION') GOTO 10
C          IF (SNAME(I). EQ. 'SI:ADSI ') GOTO 10
C          IF (SNAME(I). EQ. 'SI:ADSII') GOTO 10
C          IF (SNAME(I). EQ. 'AL:ADS ') GOTO 10
C
C *****
C
C          LG FOR CARBONIC ACID
C
C *****
C          REVISE FOR PASSING OF ACTIVITY COEFF. CALCULATION FOR
C          SOLID SPECIES BECAUSE THESE SOLID SPECIES SHOULD HAVE
C          UNIT ACTIVITY COEFFICIENT.
C
C          DO 80 I=4,LASTS
C
C          ---- ADSORPTION DUE TO ION EXCHANGE ----
C          IF (SNAME(I). EQ. 'BENT-') LG(I)=0
C          IF (SNAME(I). EQ. 'H-BENT ') LG(I)=0
C          IF (SNAME(I). EQ. 'NA-BENT ') LG(I)=0
C          IF (SNAME(I). EQ. 'K-BENT ') LG(I)=0
C          IF (SNAME(I). EQ. 'CS-BENT ') LG(I)=0
C          IF (SNAME(I). EQ. 'CA-BENT ') LG(I)=0
C          IF (SNAME(I). EQ. 'MG-BENT ') LG(I)=0
C          IF (SNAME(I). EQ. 'SR-BENT ') LG(I)=0
C
C          ---- ADSORPTION TO CORROSION PRODUCT ----
```

```
IF (SNAME(I). EQ. 'COROSION') LG(I)=0
IF (SNAME(I). EQ. 'SI:ADSI ') LG(I)=0
IF (SNAME(I). EQ. 'SI:ADSII') LG(I)=0
IF (SNAME(I). EQ. 'AL:ADS ') LG(I)=0
```

C

```
80 CONTINUE
```

C

```
*****
```

C

```
RETURN
END
```

The following change may be required if some solid species are accounted as aqueous species because they must be excluded

in SUBROUTINE "PTOT"

```
      DO 10 I=4,MAXT
      IF (TOT(I).EQ.0.0D0) GO TO 10
      KK=1
      DLT=DLOG10(TOT(I))
      DNAME=TNAME(I)
      IF (IASPEC.EQ.I) DNAME=DALK
C
C=ADD FOR BENT- MODEL CORRECTION
      TOTC(I)=TOT(I)
C
      PRINT 240, DNAME,TOT(I),DLT
10 CONTINUE
```

also in SUBROUTINE "PTOT"

```
      PRINT 320, I,SNAME(I),ZSP(I),DM,LM(I),DA,DLA,DG,LG(I)
C
C *****
C      MODIFICATION OF THE CORRECTION FOR BENT- MODEL
C
      IF (SNAME(I). EQ. 'NA-BENT ') DTOT1=DM
      IF (SNAME(I). EQ. 'K-BENT ') DTOT2=DM
      IF (SNAME(I). EQ. 'MG-BENT ') DTOT3=DM
      IF (SNAME(I). EQ. 'CA-BENT ') DTOT4=DM
      IF (SNAME(I). EQ. 'SR-BENT ') DTOT5=DM
      IF (SNAME(I). EQ. 'CS-BENT ') DTOT6=DM
C
      IF (SNAME(I). EQ. 'SI:ADSI ') DTOT7=DM
      IF (SNAME(I). EQ. 'SI:ADSI I') DTOT8=DM
      IF (SNAME(I). EQ. 'AL:ADS ') DTOT9=DM
C *****
C
C      40 CONTINUE
C
C *****
C      MODIFICATION OF THE CORRECTION FOR BENT- MODEL
C
      FLG=0
      DO 41 I=4,MAXT
      IF (TNAME(I). EQ. 'BENT ') FLG=1
C
      IF (TNAME(I). EQ. 'COROSION') FLG=1
      41 CONTINUE
C
C ***** THE CASE OF BENT- MODEL NOT UTILISED *****
      IF (FLG. EQ. 0) GOTO 43
C
C
      PRINT 221
      PRINT 230
```

```

DO 42 J=4,MAXT
  IF (TNAME(J). EQ. 'NA      ') TOTC(J)=TOTC(J)-DTOT1
  IF (TNAME(J). EQ. 'K       ') TOTC(J)=TOTC(J)-DTOT2
  IF (TNAME(J). EQ. 'MG      ') TOTC(J)=TOTC(J)-DTOT3/2
  IF (TNAME(J). EQ. 'CA      ') TOTC(J)=TOTC(J)-DTOT4/2
  IF (TNAME(J). EQ. 'SR      ') TOTC(J)=TOTC(J)-DTOT5/2
  IF (TNAME(J). EQ. 'CS      ') TOTC(J)=TOTC(J)-DTOT6
C
  IF (TNAME(J). EQ. 'SI      ') TOTC(J)=TOTC(J)-DTOT7-DTOT8
  IF (TNAME(J). EQ. 'AL      ') TOTC(J)=TOTC(J)-DTOT9
C
  DTC=DLOG10(TOTC(J))
  IF (TOTC(J).EQ.0.0D0) GO TO 42
  PRINT 240, TNAME(J),TOTC(J)
42 CONTINUE
  PRINT 260
C
  43 CONTINUE
C *****
C

```

B.2 イオン交換反応解析の「PHREEQE」出力例

=====

DATA READ FROM DISK

```

ELEMENTS
SPECIES
LOOK MIN
1INITIAL GRANITIC GROUNDWATER
0200001000 0 0 .00000
SOLUTION 1
Granitic groundwater
 8 0 3 8.30 3.47 18.3 1.00
 6 1.560D+01 7 5.300D-01 4 1.040D+01 5 1.000D+00 14 5.800D+00
 15 3.664D+01 16 1.360D+01 13 1.770D+01
NEUTRAL
 7 16
ELEMENTS
BENT 26 0.62000E+02
 0 0.00000E+00
SPECIES
26
BENT- 101 -1.000 .000 .000 .000 .000 .000
 .000 .000 .00000 .00000 .00000 .00000 .00000
26 1.000
200
NA-BENT 201 .000 .000 .000 .000 .000 .000
 .920 .000 .00000 .00000 .00000 .00000 .00000
26 1.000 6 1.000
201
K-BENT 201 .000 .000 .000 .000 .000 .000
 .890 .000 .00000 .00000 .00000 .00000 .00000
26 1.000 7 1.000
202
CA-BENT 201 .000 .000 .000 .000 .000 .000
 2.930 .000 .00000 .00000 .00000 .00000 .00000
26 2.000 4 1.000
203
MG-BENT 201 .000 .000 .000 .000 .000 .000
 4.710 .000 .00000 .00000 .00000 .00000 .00000
26 2.000 5 1.000
204
H-BENT 201 .000 .000 .000 .000 .000 .000
 7.990 .000 .00000 .00000 .00000 .00000 .00000
26 1.000 1 1.000
 0
LOOK MIN
ALBITE-L 5 2.98 31.9 0
 6 1.00 10 1.00 13 3.00 1 -4.00 3 -4.00
ANALCIME 5 7.18 -23.6 0
 6 1.00 10 1.00 13 2.00 1 -4.00 3 -1.00
GIBBSITE 3 8.77 -22.8 0
 10 1.00 3 3.00 1 -3.00
FERRIHYD 3 3.79 -19.6 0
 115 1.00 3 3.00 1 -3.00

```





14	Cl-	-1.0	1.636E-04	-3.786	1.563E-04	-3.806	9.551E-01	-.020
15	CO3-2	-2.0	7.481E-06	-5.126	6.251E-06	-5.204	8.356E-01	-.078
16	SO4-2	-2.0	1.391E-04	-3.857	1.161E-04	-3.935	8.347E-01	-.078
31	OH-	-1.0	1.251E-06	-5.903	1.194E-06	-5.923	9.550E-01	-.020
33	H2 AQ	.0	2.185E-27	-26.661	2.186E-27	-26.660	1.000E+00	0.000
34	HCO3-	-1.0	8.119E-04	-3.090	7.763E-04	-3.110	9.561E-01	-.020
35	H2CO3	.0	9.634E-06	-5.016	9.638E-06	-5.016	1.000E+00	0.000
36	CO2 AQ	.0	1.570E-22	-21.804	1.570E-22	-21.804	1.000E+00	0.000
40	HSO4-	-1.0	4.916E-11	-10.308	4.696E-11	-10.328	9.553E-01	-.020
75	CaOH+	1.0	6.305E-09	-8.200	6.024E-09	-8.220	9.553E-01	-.020
76	CaCO3	.0	1.629E-06	-5.788	1.630E-06	-5.788	1.000E+00	0.000
77	CaHCO3+	1.0	1.442E-06	-5.841	1.378E-06	-5.861	9.553E-01	-.020
78	CaSO4	.0	4.695E-06	-5.328	4.696E-06	-5.328	1.000E+00	0.000
85	MgOH+	1.0	6.219E-09	-8.206	5.941E-09	-8.226	9.553E-01	-.020
86	MgCO3	.0	1.813E-07	-6.742	1.814E-07	-6.741	1.000E+00	0.000
87	MgHCO3+	1.0	3.413E-09	-8.467	3.261E-09	-8.487	9.553E-01	-.020
88	MgSO4	.0	6.587E-07	-6.181	6.589E-07	-6.181	1.000E+00	0.000
95	NaCO3-	-1.0	5.560E-08	-7.255	5.312E-08	-7.275	9.553E-01	-.020
96	NaHCO3	.0	2.805E-07	-6.552	2.806E-07	-6.552	1.000E+00	0.000
97	NaSO4-	-1.0	3.777E-07	-6.423	3.608E-07	-6.443	9.553E-01	-.020
100	KSO4-	-1.0	1.020E-08	-7.991	9.743E-09	-8.011	9.553E-01	-.020
170	H3SiO4-	-1.0	4.994E-06	-5.302	4.771E-06	-5.321	9.553E-01	-.020
171	H2SiO4-2	-2.0	8.440E-07	-6.074	7.030E-07	-6.153	8.330E-01	-.079

-----  
TOTAL MOLALITIES CORRECTED FOR BENT- MODEL  
-----

ELEMENT	MOLALITY	LOG MOLALITY
Ca	-6.970914+126	
Mg	3.952525-323	
Na	6.958368-301	
Fe	8.285706-301	
Mn	-1.722898-206	
Al	5.476660D+02	
Ba	4.413751-312	
Sr	3.275655-321	
Si	2.758595-313	
Cl	2.419075-312	
C	8.379009-301	
S	7.218496-301	
N	8.301939-301	
B	1.625001D+00	
P	2.703041-168	
F	4.413751-312	
Li	8.285535-301	
Br	-2.457243D+91	
U	-1.491668-154	
BENT	1.000000D-10	

---- LOOK MIN IAP ----

PHASE	LOG IAP	LOG KT	LOG IAP/KT
CALCITE	-8.8812	-8.4375	-.4437
DOLOMITE	-18.5576	-16.8803	-1.6772
GYP SUM	-7.6125	-4.8524	-2.7601
CHALCEDY	-3.5392	-3.6008	.0615
QUARTZ	-3.5392	-4.1108	.5716
SEPIOLIT	-43.2539	-40.5261	-2.7278
PCO2	-5.0160	-1.3867	-3.6293
O2 GAS	-41.2714	-2.9289	-38.3424
H2 GAS	-26.6604	-3.1204	-23.5400

1HAND DISSOLUTION OF CALCITE and DOLOMITE

0131001000 1 3 .00000

MINERALS

CALCITE	2	4.0	-8.5	-2.6	0	.000
15	1.00	4	1.00			
DOLOMITE	3	8.0	-17.	-8.3	0	.000
4	1.00	5	1.00	15	2.00	
	0	.00	.00	.00	0	.000

TEMP

30.0

STEPS

1.00

REACTION

4 2.158 .000 15 2.918 4.000 5 .759 .000

1STEP NUMBER 1

0-----

0 1.00D+00 MOLES OF REACTION HAVE BEEN ADDED.

REACTION IS:

2.16 MOLES OF Ca VALENCE = .000  
 2.92 MOLES OF C VALENCE = 4.000  
 .76 MOLES OF Mg VALENCE = .000  
 30.00 = NEW TEMPERATURE (C).

-----  
 TOTAL MOLALITIES OF ELEMENTS  
 -----

ELEMENT	MOLALITY	LOG MOLALITY
Ca	2.158360D+00	.3341
Mg	7.595411D-01	-.1194
Na	6.786305D-04	-3.1684
K	1.355695D-05	-4.8678
Si	2.946159D-04	-3.5307
Cl	1.636134D-04	-3.7862
C	2.918433D+00	.4651
S	1.448023D-04	-3.8392

----PHASE BOUNDARIES----

PHASE	DELTA PHASE*	LOG IAP	LOG KT	LOG IAP/KT
CALCITE	-1.398770D+00	-8.5113	-8.5113	.0000
DOLOMITE	-7.593662D-01	-17.1202	-17.1202	.0000

\* NEGATIVE DELTA PHASE INDICATES PRECIPITATION  
AND POSITIVE DELTA PHASE INDICATES DISSOLUTION.

---- LOOK MIN IAP ----

PHASE	LOG IAP	LOG KT	LOG IAP/KT
CALCITE	-8.5113	-8.5094	-.0019
DOLOMITE	-17.1202	-17.1202	.0000
GYPSUM	-7.7076	-4.8448	-2.8628
CHAICEDY	-3.6026	-3.4672	-.1354
QUARTZ	-3.6026	-3.9308	.3282
SEPIOLIT	-39.4451	-39.7582	.3132
PCO2	-5.3489	-1.5229	-3.8259
O2 GAS	-36.1480	-2.9823	-33.1657
H2 GAS	-27.3225	-3.1713	-24.1512

TOTAL MOLALITIES OF ELEMENTS

ELEMENT	MOLALITY	LOG MOLALITY
Ca	2.234020D-04	-3.6509
Mg	1.749663D-04	-3.7570
Na	6.786305D-04	-3.1684
K	1.355695D-05	-4.8678
Si	2.946159D-04	-3.5307
Cl	1.636134D-04	-3.7862
C	9.303392D-04	-3.0314
S	1.448023D-04	-3.8392

----DESCRIPTION OF SOLUTION----

PH = 8.6056  
 PE = 3.4700  
 ACTIVITY H2O = 1.0000  
 IONIC STRENGTH = .0020  
 TEMPERATURE = 30.0000  
 ELECTRICAL BALANCE = -1.4443D-13  
 THOR = 4.5902D-03  
 TOTAL ALKALINITY = 1.0357D-03  
 ITERATIONS = 99

-----  
 DISTRIBUTION OF SPECIES  
 -----

I	SPECIES	Z	MOLALITY	LOG MOLAL	ACTIVITY	LOG ACT	GAMMA	LOG GAM
1	H+	1.0	2.599E-09	-8.585	2.480E-09	-8.606	9.540E-01	-.020
2	E-	-1.0	3.388E-04	-3.470	3.388E-04	-3.470	1.000E+00	.000
3	H2O	.0	1.000E+00	0.000	1.000E+00	0.000	1.000E+00	.000
4	Ca+2	2.0	2.124E-04	-3.673	1.742E-04	-3.759	8.203E-01	-.086
5	Mg+2	2.0	1.694E-04	-3.771	1.392E-04	-3.857	8.215E-01	-.085
6	Na+	1.0	6.776E-04	-3.169	6.446E-04	-3.191	9.512E-01	-.022
7	K+	1.0	1.355E-05	-4.868	1.288E-05	-4.890	9.506E-01	-.022
13	H4SiO4	.0	2.496E-04	-3.603	2.497E-04	-3.603	1.000E+00	0.000
14	Cl-	-1.0	1.636E-04	-3.786	1.555E-04	-3.808	9.506E-01	-.022
15	CO3-2	-2.0	2.155E-05	-4.666	1.768E-05	-4.752	8.205E-01	-.086
16	SO4-2	-2.0	1.373E-04	-3.862	1.126E-04	-3.949	8.195E-01	-.086
31	OH-	-1.0	6.180E-06	-5.209	5.874E-06	-5.231	9.505E-01	-.022
33	H2 AQ	.0	4.757E-28	-27.323	4.759E-28	-27.322	1.000E+00	0.000
34	HCO3-	-1.0	8.943E-04	-3.048	8.512E-04	-3.070	9.518E-01	-.021
35	H2CO3	.0	4.476E-06	-5.349	4.478E-06	-5.349	1.000E+00	0.000
36	CO2 AQ	.0	1.087E-22	-21.964	1.087E-22	-21.964	1.000E+00	0.000
40	HSO4-	-1.0	3.277E-11	-10.485	3.116E-11	-10.506	9.509E-01	-.022
75	CaOH+	1.0	2.794E-08	-7.554	2.657E-08	-7.576	9.509E-01	-.022
76	CaCO3	.0	4.946E-06	-5.306	4.948E-06	-5.306	1.000E+00	0.000
77	CaHCO3+	1.0	1.883E-06	-5.725	1.791E-06	-5.747	9.509E-01	-.022
78	CaSO4	.0	4.159E-06	-5.381	4.161E-06	-5.381	1.000E+00	0.000
85	MgOH+	1.0	1.457E-07	-6.837	1.385E-07	-6.859	9.509E-01	-.022
86	MgCO3	.0	2.535E-06	-5.596	2.536E-06	-5.596	1.000E+00	0.000
87	MgHCO3+	1.0	1.152E-08	-7.938	1.096E-08	-7.960	9.509E-01	-.022
88	MgSO4	.0	2.894E-06	-5.538	2.896E-06	-5.538	1.000E+00	0.000
95	NaCO3-	-1.0	2.848E-07	-6.546	2.708E-07	-6.567	9.509E-01	-.022
96	NaHCO3	.0	3.072E-07	-6.513	3.074E-07	-6.512	1.000E+00	0.000
97	NaSO4-	-1.0	3.945E-07	-6.404	3.751E-07	-6.426	9.509E-01	-.022
100	KS04-	-1.0	1.149E-08	-7.940	1.092E-08	-7.962	9.509E-01	-.022
170	H3SiO4-	-1.0	1.594E-05	-4.797	1.516E-05	-4.819	9.509E-01	-.022
171	H2SiO4-2	-2.0	2.912E-05	-4.536	2.380E-05	-4.623	8.175E-01	-.088

TOTAL MOLALITIES CORRECTED FOR BENT- MODEL  
 -----

ELEMENT	MOLALITY	LOG MOLALITY
Ca	2.234020D-04	
Mg	1.749663D-04	
Na	6.786305D-04	
K	1.355695D-05	
Fe	-5.260037+141	
Mn	1.310720D+05	
Al	6.579184-289	
Ba	-3.230496+231	
Sr	2.726775-312	
Si	2.946159D-04	
Cl	1.636134D-04	

C 9.303392D-04  
 S 1.448023D-04  
 N 8.301939-301  
 B 1.625001D+00  
 P 1.929414-301  
 F 6.365987-314  
 Li 8.285535-301  
 Br -2.457243D+91  
 U -1.491668-154  
 BENT 1.000000D-10

CHEMICAL SPECIATION OF BENTONITE PORE WATER AS FUNCTIONS OF SOLID/WATER  
 0231101000 1 6 .00000

MINERALS

KUNIV1-M	9	.72	2.5	-27.	0	.000
6	.240	4	0.600E-01	7	0.200E-01	5 .280 10 1.66
13	3.84	115	.240	1	-6.64	3 -3.36
QUARTZ	2	.00	-4.0	6.2	0	.000
13	1.00	3	-2.00			
ALBITE-L	5	.00	3.0	32.	0	.000
6	1.00	10	1.00	13	3.00	1 -4.00 3 -4.00
CALCITE	2	4.0	-8.5	-2.6	0	.000
15	1.00	4	1.00			
DOLOMITE	3	8.0	-17.	-8.3	0	.000
4	1.00	5	1.00	15	2.00	
PYRITE	4	.00	-18.	11.	0	.000
1	-2.00	2	-2.00	8	1.00	42 2.00
MAGNETIT	4	8.0	30.	-70.	0	.000
8	3.00	3	4.00	1	-8.00	2 -2.00
	0	.00	.00	.00	0	.000

TEMP

30.0

STEPS

7.00

REACTION

7	.029	.000	6	.351	.000	4	.088	.000	5	.044	.000
16	.143	6.000	26	.644	.000						

1STEP NUMBER 1

0-----

0 7.000D+00 MOLES OF REACTION HAVE BEEN ADDED.

REACTION IS:

.03 MOLES OF	K	VALENCE =	.000
.35 MOLES OF	Na	VALENCE =	.000
.09 MOLES OF	Ca	VALENCE =	.000
.04 MOLES OF	Mg	VALENCE =	.000
.14 MOLES OF	S	VALENCE =	6.000
.64 MOLES OF BENT		VALENCE =	.000
30.00 = NEW TEMPERATURE (C).			

TOTAL MOLALITIES OF ELEMENTS

---

ELEMENT	MOLALITY	LOG MOLALITY
Ca	6.155234D-01	-.2108
Mg	3.074750D-01	-.5122
Na	2.457679D+00	.3905
K	2.030136D-01	-.6925
Si	2.946159D-04	-3.5307
Cl	1.636134D-04	-3.7862
C	9.303392D-04	-3.0314
S	1.001145D+00	.0005
BENT	4.508000D+00	.6540

----PHASE BOUNDARIES----

PHASE	DELTA PHASE*	LOG IAP	LOG KT	LOG IAP/KT
KUNIV1-M	-1.894832D+00	2.1974	2.1974	0.0000
QUARTZ	-2.160345D+00	-3.9308	-3.9308	0.0000
ALBITE-L	3.145421D+00	3.3708	3.3708	0.0000
CALCITE	-1.005897D+00	-8.5113	-8.5113	0.0000
DOLOMITE	5.108281D-01	-17.1202	-17.1202	0.0000
PYRITE	-1.033544D-02	-18.3434	-18.3434	0.0000
MAGNETIT	1.550317D-01	29.1525	29.1525	0.0000

\* NEGATIVE DELTA PHASE INDICATES PRECIPITATION  
AND POSITIVE DELTA PHASE INDICATES DISSOLUTION.

---- LOOK MIN IAP ----

PHASE	LOG IAP	LOG KT	LOG IAP/KT
CALCITE	-8.5113	-8.5094	-.0019
DOLOMITE	-17.1202	-17.1202	0.0000
SIDERITE	-13.4396	-10.6144	-2.8252
GYPSUM	-5.4651	-4.8448	-.6202
CHALEDY	-3.9308	-3.4672	-.4636
QUARTZ	-3.9308	-3.9308	0.0000
GIBBSITE	6.9548	8.4944	-1.5396
KAOLINIT	-38.8361	-36.3268	-2.5093
SEPIOLIT	-43.6576	-39.7582	-3.8994
HEMATITE	-3.6684	-4.3809	.7125
GOETHITE	-1.8596	.3249	-2.1845
FeOH3A	-1.9102	4.8910	-6.8012
PYRITE	-18.3434	-18.3434	0.0000
FeS PPT	-9.7505	-3.9150	-5.8355
PCO2	-3.7729	-1.5229	-2.2500
O2 GAS	-68.1378	-2.9823	-65.1555
H2 GAS	-11.3782	-3.1713	-8.2070
ALBITE-L	3.3708	3.3708	0.0000
ANALCIME	7.2509	6.8994	.3515

FERRIHYD      -1.9102      3.5536      -5.4639

TOTAL MOLALITIES OF ELEMENTS

ELEMENT	MOLALITY	LOG MOLALITY
Ca	6.764387D-03	-2.1698
Mg	2.877501D-01	-.5410
Na	5.148340D+00	.7117
K	1.651169D-01	-.7822
Fe	1.090145D-08	-7.9625
Al	3.056062D-08	-7.5148
Si	5.834335D-05	-4.2340
Cl	1.636134D-04	-3.7862
C	1.668932D-02	-1.7776
S	9.804739D-01	-.0086
BENT	4.508000D+00	.6540

----DESCRIPTION OF SOLUTION----

PH = 8.0701  
 PE = -3.9666  
 ACTIVITY H2O = .8899  
 IONIC STRENGTH = 2.1784  
 TEMPERATURE = 30.0000  
 ELECTRICAL BALANCE = -2.0387D-10  
 THOR = 5.9496D+00  
 TOTAL ALKALINITY = 1.8134D-02  
 ITERATIONS = 170

DISTRIBUTION OF SPECIES

I	SPECIES	Z	MOLALITY	LOG MOLAL	ACTIVITY	LOG ACT	GAMMA	LOG GAM
1	H+	1.0	1.179E-08	-7.929	8.510E-09	-8.070	7.220E-01	-.141
2	E-	-1.0	9.259E+03	3.967	9.259E+03	3.967	1.000E+00	.000
3	H2O	.0	8.899E-01	-.051	8.899E-01	-.051	1.000E+00	.000
4	Ca+2	2.0	2.316E-04	-3.635	6.879E-05	-4.162	2.971E-01	-.527
5	Mg+2	2.0	1.356E-04	-3.868	5.495E-05	-4.260	4.053E-01	-.392
6	Na+	1.0	1.522E+00	.183	1.224E+00	.088	8.038E-01	-.095
7	K+	1.0	6.237E-02	-1.205	3.517E-02	-1.454	5.639E-01	-.249
8	Fe+2	2.0	4.850E-09	-8.314	8.115E-10	-9.091	1.673E-01	-.776
10	Al+3	3.0	1.478E-16	-15.830	7.881E-18	-17.103	5.333E-02	-1.273
13	H4SiO4	.0	5.624E-05	-4.250	9.287E-05	-4.032	1.651E+00	.218
14	Cl-	-1.0	1.636E-04	-3.786	9.226E-05	-4.035	5.639E-01	-.249



15	CO3-2	-2.0	3.091E-04	-3.510	4.479E-05	-4.349	1.449E-01	-.839
16	SO4-2	-2.0	5.921E-01	-.228	6.291E-02	-1.201	1.063E-01	-.974
26	BENT-	-1.0	3.193E-01	-.496	3.193E-01	-.496	1.000E+00	.000
31	OH-	-1.0	2.912E-06	-5.536	1.523E-06	-5.817	5.230E-01	-.281
33	H2 AQ	.0	2.535E-12	-11.596	4.186E-12	-11.378	1.651E+00	.218
34	HCO3-	-1.0	1.199E-02	-1.921	7.398E-03	-2.131	6.170E-01	-.210
35	H2CO3	.0	9.090E-05	-4.041	1.501E-04	-3.824	1.651E+00	.218
36	CO2 AQ	.0	2.207E-21	-20.656	3.645E-21	-20.438	1.651E+00	.218
38	CH4 AQ	.0	8.920E-14	-13.050	1.473E-13	-12.832	1.651E+00	.218
40	HSO4-	-1.0	5.583E-08	-7.253	5.977E-08	-7.224	1.070E+00	.030
41	S-2	-2.0	2.858E-13	-12.544	3.711E-14	-13.430	1.299E-01	-.887
42	HS-	-1.0	3.562E-09	-8.3	1.863E-09	-8.730	5.230E-01	-.281
43	H2S	.0	4.660E-11	-10.332	7.696E-11	-10.114	1.651E+00	.218
75	CaOH+	1.0	2.542E-09	-8.595	2.721E-09	-8.565	1.070E+00	.030
76	CaCO3	.0	2.997E-06	-5.523	4.948E-06	-5.306	1.651E+00	.218
77	CaHCO3+	1.0	5.741E-06	-5.241	6.146E-06	-5.211	1.070E+00	.030
78	CaSO4	.0	5.562E-04	-3.255	9.184E-04	-3.037	1.651E+00	.218
85	MgOH+	1.0	1.325E-08	-7.878	1.418E-08	-7.848	1.070E+00	.030
86	MgCO3	.0	1.536E-06	-5.814	2.536E-06	-5.596	1.651E+00	.218
87	MgHCO3+	1.0	3.513E-08	-7.454	3.761E-08	-7.425	1.070E+00	.030
88	MgSO4	.0	3.870E-04	-3.412	6.391E-04	-3.194	1.651E+00	.218
95	NaCO3-	-1.0	1.216E-03	-2.915	1.302E-03	-2.885	1.070E+00	.030
96	NaHCO3	.0	3.072E-03	-2.513	5.072E-03	-2.295	1.651E+00	.218
97	NaSO4-	-1.0	3.719E-01	-.430	3.981E-01	-.400	1.070E+00	.030
100	KSO4-	-1.0	1.558E-02	-1.807	1.668E-02	-1.778	1.070E+00	.030
105	FeOH+	1.0	3.620E-11	-10.441	3.875E-11	-10.412	1.070E+00	.030
106	FeOH2	.0	3.203E-14	-13.494	5.289E-14	-13.277	1.651E+00	.218
107	FeOH3-	-1.0	2.015E-16	-15.696	2.157E-16	-15.666	1.070E+00	.030
108	FeSO4	.0	6.015E-09	-8.221	9.932E-09	-8.003	1.651E+00	.218
109	Fe(HS)2	.0	4.946E-19	-18.306	8.167E-19	-18.088	1.651E+00	.218
110	Fe(HS)3-	-1.0	8.828E-26	-25.054	9.450E-26	-25.025	1.070E+00	.030
115	Fe+3	3.0	2.017E-25	-24.695	1.076E-26	-25.968	5.333E-02	-1.273
116	FeOH+2	2.0	7.421E-21	-20.130	9.744E-21	-20.011	1.313E+00	.118
117	FeOH2+	1.0	2.359E-16	-15.627	2.526E-16	-15.598	1.070E+00	.030
118	FeOH3	.0	1.879E-16	-15.726	3.103E-16	-15.508	1.651E+00	.218
119	FeOH4-	-1.0	3.031E-16	-15.518	3.245E-16	-15.489	1.070E+00	.030
122	FeCL+2	2.0	2.680E-29	-28.572	3.518E-29	-28.454	1.313E+00	.118
125	FeSO4+	1.0	5.889E-24	-23.230	6.304E-24	-23.200	1.070E+00	.030
126	FeSO42-	-1.0	1.194E-23	-22.923	1.278E-23	-22.893	1.070E+00	.030
150	AlOH+2	2.0	8.944E-15	-14.048	1.174E-14	-13.930	1.313E+00	.118
151	AlOH2+	1.0	6.394E-12	-11.194	6.845E-12	-11.165	1.070E+00	.030
152	AlOH3	.0	5.457E-10	-9.263	9.011E-10	-9.045	1.651E+00	.218
153	AlOH4-	-1.0	3.001E-08	-7.523	3.212E-08	-7.493	1.070E+00	.030
154	AlSO4+	1.0	5.149E-16	-15.288	5.512E-16	-15.259	1.070E+00	.030
155	AlSO42-	-1.0	2.623E-15	-14.581	2.808E-15	-14.552	1.070E+00	.030
170	H3SiO4-	-1.0	1.535E-06	-5.814	1.643E-06	-5.784	1.070E+00	.030
171	H2SiO4-2	-2.0	5.724E-07	-6.242	7.516E-07	-6.124	1.313E+00	.118
189	H2S(aq)	.0	5.112E-11	-10.291	8.441E-11	-10.074	1.651E+00	.218
190	H2SO3(a)	.0	8.861E-21	-20.053	1.463E-20	-19.835	1.651E+00	.218
191	HS2O3-	-1.0	2.444E-20	-19.612	2.617E-20	-19.582	1.070E+00	.030
192	HSO3-	-1.0	2.322E-14	-13.634	2.485E-14	-13.605	1.070E+00	.030
193	S2O3-2	-2.0	6.019E-14	-13.220	7.903E-14	-13.102	1.313E+00	.118
194	SO3-2	-2.0	1.340E-13	-12.873	1.760E-13	-12.755	1.313E+00	.118
200	NA-BENT	.0	3.250E+00	.512	3.250E+00	.512	1.000E+00	.000
201	K-BENT	.0	8.716E-02	-1.060	8.716E-02	-1.060	1.000E+00	.000
202	CA-BENT	.0	5.968E-03	-2.224	5.968E-03	-2.224	1.000E+00	.000

203 MG-BENT	.0	2.872E-01	-.542	2.872E-01	-.542	1.000E+00	.000
204 H-BENT	.0	2.655E-01	-.576	2.655E-01	-.576	1.000E+00	.000

TOTAL MOLALITIES CORRECTED FOR BENT- MODEL

-----

ELEMENT	MOLALITY	LOG MOLALITY
Ca	6.764387D-03	
Mg	2.877501D-01	
Na	5.148340D+00	
K	1.651169D-01	
Fe	1.090145D-08	
Mn	1.310720D+05	
Al	3.056062D-08	
Ba	1.127118-296	
Sr	4.243992-314	
Si	5.834335D-05	
Cl	1.636134D-04	
C	1.668932D-02	
S	9.804739D-01	
N	8.301939-301	
B	2.125001D+00	
P	1.000234-293	
F	1.697597-313	
Li	8.285535-301	
Br	-2.457243D+91	
U	-1.491668-154	
BENT	4.508000D+00	