

高レベル廃棄物地層処分システムの性能評価のための
Amに関する熱力学データベースの整備

1997年3月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所 (Tokai Works)

技術開発推進部 技術管理室

(Technology Management Section)

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel
Development Corporation 4-33, Muramatu Ooaza, Tokai, Naka-gun, Ibaraki,
319-11, Japan)

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation) 1997

高レベル廃棄物地層処分システムの性能評価のための Amに関する熱力学データベースの整備

Developments of Thermodynamic Database of Am for Performance Assessment of
Geological Disposal System of High Level Radioactive Waste

報告者：澁谷 早苗*

要 旨

高レベル廃棄物地層処分研究の第2次取りまとめに向けて、溶解度評価のための基礎データとしてより信頼性の高い、充実した熱力学データが必要とされている。そこで、「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-」以降使用してきた熱力学データベース（PNC-TDB :PNCのThermodynamic Database）の見直し整備・更新を進めている。

PNC-TDB におけるAmに関する熱力学データの出典は米国Battelle-PNL研究所のデータであるが、最近になってOECD-NEAがAmに関する熱力学データ整備報告書を公開したため、これと比較検討する必要がでてきた。本報告書では、Amの熱力学データについて、性能評価の観点から検討・見直しを行ったので、その結果を報告する。

*：動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所
環境技術開発部 地層処分開発室

目次

1. はじめに	1
2. PNC-TDB のAmに関するデータ及びその出典	1
2.1 Am水酸化物系	1
2.2 Am炭酸塩系	2
3. 固相の定義	3
4. OECD-NEAのAmに関する熱力学データ整備報告書との比較検討	4
4.1 Am水酸化物系データについての検討	4
4.2 AmOHCO ₃ (cr) の加水分解定数および炭酸錯体生成定数についての検討	5
5. 他のAmに関するデータについての検討	6
5.1 水溶性化学種についてのデータ	6
5.1.1 酸化還元反応	6
5.1.2 ハロゲン化物錯体	6
5.1.3 硫酸錯体	6
5.1.4 硝酸錯体, アジ化物錯体	6
5.1.5 リン酸錯体	6
5.1.6 チオシアン錯体	7
5.2 固相、ガスについてのデータ	7
5.2.1 酸化物	7
5.2.2 ハロゲン化物	7
5.2.3 硫化物, セレン化物, テルル化物	7
5.2.4 リン酸塩	8
5.2.5 炭酸塩	8
6. 結論	8
7. 謝辞	8
8. 参考文献	9

図表目次

表 1	整備されたAmについての熱力学データ	10
図 1	PNC-TDB のAm(OH) ₃ (s)データ	11
図 2	NEA-TDB(Am) との比較 - Am(OH) ₃ (cr) -	12
図 3	NEA-TDB(Am) との比較 - AmOHCO ₃ (cr) -	13

高レベル廃棄物地層処分システムの性能評価のための

Amに関する熱力学データベースの整備

1. はじめに

高レベル廃棄物地層処分研究の第2次取りまとめに向けて、溶解度評価のための基礎データとしてより信頼性の高い、充実した熱力学データが必要とされている。そこで、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—(動燃事業団, 1992)以降使用してきた熱力学データベース(PNC-TDB :PNCのThermodynamic Database)(油井ら, 1992 等)の見直し整備・更新を進めている。

PNC-TDB におけるAmに関する熱力学データの出典は米国Battelle-PNL研究所のデータであるが、最近になってOECD-NEAがAmに関する熱力学データ整備報告書(Silva et al, 1995 ; 以下NEA-TDB(Am) という)を公開したため、これと比較検討する必要がでてきた。本報告書では、Amの熱力学データについて、性能評価の観点から検討・見直しを行ったので、その結果を報告する。

2. PNC-TDB のAmに関するデータ及びその出典

PNC-TDB におけるAmに関する熱力学データの出典は米国Battelle-PNL研究所のデータである。これらは、以下の実験により得られたデータであり、実験手法・解析手法ともに妥当なものであり、信頼できるデータと考えられる。

2.1 Am水酸化物系 (Rai et al, 1983)

Ar雰囲気中におけるAm(OH)₃(s)の溶解度測定から得られたデータであり、実験条件等は以下のとおりである。

- ・ 雰囲気 ; N₂-8 %, Ar- 92%, O₂-<0.01%, CO₂-0.02%
- ・ 固相 ; ²⁴¹Am, ²⁴³Am それぞれのストック溶液にNaOHを加えて過飽和試験の一つとして合成
浸漬後固相はXRD で確認、 pH12.97で Am(OH)₃(cr)、 pH7.54, pH9.61ではピークなく、Am(OH)₃(am) と推定された。

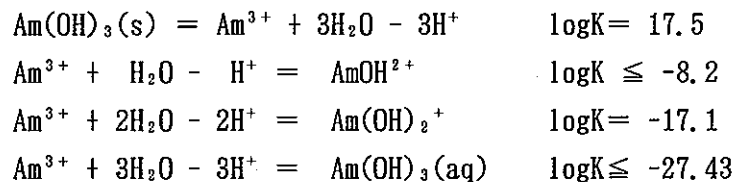
- ・液相 ; 0.0015mol/l-CaCl₂溶液にNaOH, HClを添加した液 (未飽和)
 - ・浸漬期間 ; 3~23日 (未飽和)、7日 (過飽和)
 - ・pH範囲 ; pH 7 ~13 (未飽和)、pH8 付近 (過飽和)
 - ・温度 ; 室温(22 ± 2 °C)
 - ・濾過方法 ; 0.0018 μm(分画分子量25,000相当) のメンブランフィルターによる濾過
 - ・Am定量法 ; ²⁴¹Am- α液体シンチレーションカウンター, ²⁴³Am-高純度Ge半導体検出器
- ・イオン強度補正 ; Davies 式 (25°C) (Davies, 1962)

$$\log \gamma_i = AZi^2 \left\{ \frac{\sqrt{\mu}}{1 + \sqrt{\mu}} - 0.3\mu \right\} \quad \begin{array}{l} A ; 0.509 \\ Zi ; \text{イオンの電荷} \end{array}$$

図1に示すデータについて式①を用いて最小二乗法によるカーブフィットにより、

$$\log [Am_{total}] = \log [(Am^{3+}) + (AmOH^{2+}) + (Am(OH)_2^+) + (Am(OH)_3^0)] \quad \text{----- ①}$$

下記反応式の平衡定数を算出した。



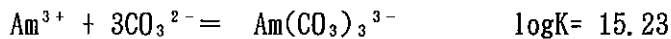
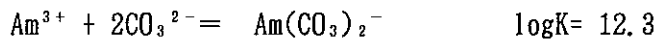
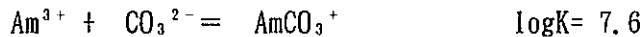
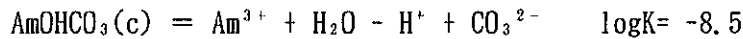
2.2 Am炭酸塩系 (Felmy et al, 1990)

P co₂=10⁻³atm におけるAmOHCO₃(cr) の溶解度測定から得られたデータであり、実験条件は以下のとおりである。

- ・雰囲気 ; P co₂=10⁻³atm
- ・固相 ; AmOHCO₃(cr) XRDにて確認
- ・液相 ; 0.003~0.1mol/l-Na₂CO₃(未飽和)
- ・浸漬期間 ; ~78日 (過飽和)、~66日 (未飽和)
- ・pH範囲 ; pH5~9.5(過飽和)、pH10.6~13.0 (未飽和)
- ・温度 ; 記載なし
- ・濾過方法 ; 0.0018 μm(分画分子量25,000相当) のメンブランフィルターによる濾過
- ・Am定量方法 ; ²⁴³Am; 高純度Ge半導体検出器、総Am濃度; ICP

・熱力学モデル ; Pitzer のイオン相互作用モデル(Pitzer, 1979)

解析の結果、下記反応式についての平衡定数を算出した。



3. 固相の定義

従来より熱力学データ取得研究においては、固相の定義が明確でなく、水溶液中における溶解度評価を実施する際でも水溶液中において不安定な固相を溶解度制限固相に指定したりしていた。そこで、本PNC-TDB 整備においては、溶解度評価上混乱を招かないよう、固相の定義を明確にすることとした。固相の化学形態判定にあたっては、データの出典論文まで遡り、固相同定結果を参照する。ただし、固相の情報不足の場合や表記があいまいな場合は、PNC-TDB 整備担当者がデータ取得状況、実験条件などから総合的に判断するものとする。

①crystal, dry

乾式的な実験において、結晶質の固相であることが明らかである場合、固相の添字として、(cr, dry)を使用する。

②crystal, wet

溶解度測定試験のように、湿式的な実験において、結晶質の固相であることがXRD 等により確認されている場合、固相の添字として、(cr, wet)を使用する。水溶液中における固相の表面は、水和していると考えられることから、上記①の(cr, dry)とは明確に区別する。

③solid

湿式的な実験において固相が同定されておらず未確認の場合、固相の添字として、(s)を使用する。

④amorphous

湿式的な実験において、非晶質の固相であることがXRD 等により確認されている場合、固相の添字として、(am)を使用する。

⑤酸化物と水酸化物の相違

上記②(cr, wet)等に該当し、明らかに水酸化物であることが判明している場合には、固相の形態としてM(OH)_nを使用する。それ以外の場合は、酸化物の水和状態であるとみなし、原則としてMO_nと表記する。

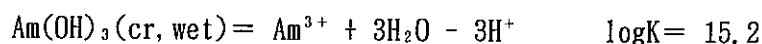
4. OECD-NEAのAmに関する熱力学データ整備報告書との比較検討

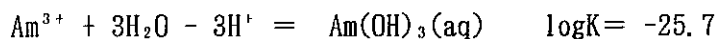
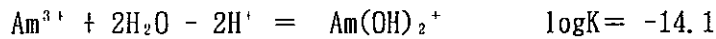
NEA-TDB(Am)では、既存データをレビューすることにより、固相・水溶性化学種に関する熱力学データが整備されている。その多くは、PNC-TDBに含まれていないデータであり、データ選定の根拠の明確さから、どれも信頼性の高いデータであると考えられる。この中には、性能評価上重要と考えられる水酸化物系および炭酸系のデータが含まれているが、これらはPNC-TDBのものとは異なる値が選定されている。そこで、PNC-TDBのデータとNEA-TDB(Am)のデータとを比較し、地層処分性能評価のための熱力学データとして妥当と考えられるデータを選択する。

4.1 Am水酸化物系データについての検討

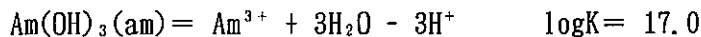
Am(OH)₃の溶解度に関して、NEA-TDB(Am)中で引用されているデータとPNC-TDBの出典データとの比較を行った。結果を図2に示す。これをみると、pH 8付近からpH11付近ではNEA-TDB(Am)を用いた方が溶解度はやや高く見積もられるが、実測値とほとんど一致している。しかし、pH 8以下およびpH11以上においてはPNC-TDBを用いた場合の方が溶解度は高く見積もられ、その差は低pH側で大きくなる。

両者のデータの信頼性について検討すると、まず、溶解度測定や解析の手法については、どちらも妥当であると考えられる。しかし、固相の種類において、Rai et al (1983)では中性付近における固相のXRDスペクトルが得られておらず、pH領域によって固相の種類が変化している可能性がある。つまり、Am(OH)₃(s)の加水分解定数として示されているが、Am(OH)₃(am)であったと考えられる。一方、NEA-TDB(Am)のデータの出典(Silva, 1982)では結晶性の固相であることを確認しており、Am(OH)₃(cr)の加水分解定数のデータとしては後者のほうがより信頼性が高いといえる。よって、以下のAm(OH)₃(cr)加水分解定数およびAm水酸化物系液相化学種の生成定数のデータについては、NEA-TDB(Am)のデータに更新する。固相の種類の表記方法については、3章の定義に従い、(cr, wet)とする。





ここで、Rai et al(1983) のpH7.5 以下の溶解度データについて、水溶性化学種のデータを上記のものに固定して、固相 $\text{Am}(\text{OH})_3(\text{am})$ の加水分解定数を再計算してみると、



となる。これは、NEA-TDB(Am) でも選択されており、信頼性の高いデータであると考えられる。よって、Am水酸化物系データとしては上記5つを選定する。

4.2 $\text{AmOHCO}_3(\text{cr})$ の加水分解定数および炭酸錯体生成定数についての検討

$\text{AmOHCO}_3(\text{cr})$ の溶解度に関して、NEA-TDB(Am) 中で引用されているデータとPNC-TDBの出典データとの比較を行った。結果を図3に示す。NEA-TDB(Am) 中で引用されている溶解度データはそれぞれ条件が異なるため、直接比較することはできない。そこで、NEA-TDB(Am)、PNC-TDBのデータを用いて $P_{\text{CO}_2} = 10^{-2} \sim 10^{-4} \text{atm}$ 、 25°C 、 10^{-1}mol/l のNaCl水溶液中の溶解度を地球化学計算コードP H R E E Q E (Parkhurst et al, 1980)を用いて算出して比較した。図3には、NEA-TDB(Am) 中で引用されているデータの中で条件の似ている3研究例の溶解度データも載せている。これをみると、NEA-TDB(Am)を用いて算出した溶解度はPNC-TDBを用いて算出した溶解度よりも1~2桁高く、実測溶解度とも一致していない。これは、NEA-TDB(Am) のデータ選定段階で用いられたイオン強度補正の手法がP H R E E Q E (Parkhurst et al, 1980)中で用いられているイオン強度補正法と異なるためと考えられる。第2次とりまとめにおける溶解度評価においては、イオン強度補正法はP H R E E Q E (Parkhurst et al, 1980)で用いられている手法 (Davies, Debye-Hueckel, 拡張Debye-Hueckel) もしくはPitzerのイオン相互作用モデル(Pitzer, 1979) を適用する予定であるので、計算に用いる熱力学データもこれら手法を用いて算出したものが望ましい。よって、P H R E E Q E (Parkhurst et al, 1980)の熱力学データベースとしては、PNC-TDBのデータの方が妥当である。

$\text{AmOHCO}_3(\text{cr})$ の加水分解定数および炭酸錯体生成定数としては、既存PNC-TDB の値のまま、変更はしないものとする。固相の種類を表記方法については、3章の定義に従い、(cr, wet)とする。

5. 他のAmに関するデータについての検討

PNC-TDB には上記データ以外にAmに関するデータは含まれていない。そこで、NEA-TDB(Am) に含まれているデータのうち、地層処分条件におけるAmの溶解度評価に必要なデータとなるデータを、PNC-TDB との整合性を考慮して採用することとする。

5.1 水溶性化学種についてのデータ

5.1.1 酸化還元反応

NEA-TDB(Am) では、 Am^{2+} / Am^{3+} / Am^{4+} / AmO_2^+ / AmO_2^{2+} 間の酸化還元反応に関するデータが示されている。大気雰囲気、水溶液中で安定なのは Am^{3+} であるが、地層処分条件下においてはこれよりも酸化されることはないと考えられるため、 Am^{4+} , $\text{Am}^{(VI)}\text{O}_2^+$, $\text{Am}^{(VI)}\text{O}_2^{2+}$ については整備の対象から外すこととする。また、 Am^{2+} についても、その存在はパルスラジオリシスやポーラログラフィーでしか確認されておらず、半減期は $5\mu\text{s}$ と短く、 $\text{Am}(\text{metal})$ から Am^{3+} を生成する反応の中間生成物として存在すると考えられていることから、地層処分条件下における存在は考え難い。よって、PNC-TDB 整備においては3価のAmのみを考慮する。

5.1.2 ハロゲン化物錯体

NEA-TDB(Am) では、 AmCl^{2+} , AmF^{2+} , AmF_2^+ のデータが選定されている。ハロゲンを配位子とする水溶性化学種は、地層処分条件下における水溶液中でも安定に存在すると考えられることから、PNC-TDB に含めることとする。

5.1.3 硫酸錯体

NEA-TDB(Am) では、 AmSO_4^+ , $\text{Am}(\text{SO}_4)_2^-$ のデータが選定されている。これら錯体についても、ハロゲン化物錯体同様、存在する可能性があることから、PNC-TDB に含めることとする。

5.1.4 硝酸錯体, アジ化物錯体

NEA-TDB(Am) では、 AmNO_3^{2+} , AmN_3^{2+} のデータが選定されている。アジ化物錯体については、地層処分条件での存在量は極微量で溶解度評価への寄与はないものと考えられることから、整備対象外とする。硝酸錯体については、ハロゲン化物、硫酸錯体と同様、PNC-TDB に含めることとする。

5.1.5 リン酸錯体

NEA-TDB(Am) では、 $\text{AmH}_2\text{PO}_4^{2+}$ のデータが選定されている。この錯体についても、

存在する可能性のあることから、PNC-TDB に含めることとする。

5.1.6 チオシアン錯体

NEA-TDB(Am) では、 AmSCN^{2-} のデータが選定されているが、地層処分条件下で存在するチオシアンイオン量は極微量で溶解度評価への寄与はないものと考えられることから、整備対象外とする。

5.2 固相, ガスについてのデータ

5.2.1 酸化物

NEA-TDB(Am) にはAm(III)の酸化物として $\text{Am}_2\text{O}_3(\text{cr})$ のデータが選定されている。アクチニドの結晶性酸化物については水溶液中で非晶質化または水酸化物への固相変遷が起こることが知られており、地層処分条件下における $\text{Am}_2\text{O}_3(\text{cr})$ の存在は疑わしい。しかし、データの信頼性は高いと考えられるので、PNC-TDB に含めることとする。固相の種類を表記方法については、3章の定義に従い(cr, dry)とする。

5.2.2 ハロゲン化物

NEA-TDB(Am) では、Am(III)のハロゲン化物として $\text{AmF}_3(\text{g})$, $\text{AmF}_3(\text{cr})$, $\text{AmCl}_3(\text{cr})$, $\text{AmOCl}(\text{cr})$, $\text{AmBr}_3(\text{cr})$, $\text{AmOBr}(\text{cr})$ のデータが選定されている。しかし、フッ化物を除くハロゲン化物は易溶性であり、地層処分条件下において溶解度制限固相となる可能性はないものと考えられる。よって、PNC-TDB には含めないものとする。 $\text{AmF}_3(\text{cr})$ についてのデータは、生成エンタルピーと固相のエントロピーから算出されたギブス自由エネルギーを $\log K$ に換算したものであり、実測溶解度の値と食い違う点もあることからNEA-TDB(Am) では不明確なデータとしている。よって、 $\text{AmF}_3(\text{cr})$ のデータもPNC-TDB には含めないものとする。NEA-TDB(Am) では $\text{AmF}_3(\text{g})$ について $\text{AmF}_3(\text{cr})$ からの蒸気圧測定からのデータを選定しているが、PNC-TDB では $\text{AmF}_3(\text{cr})$ のデータを選定しないことから、 $\text{AmF}_3(\text{g})$ についても採用しないものとする。

さらにアルカリ金属を含んだ塩化物として、 $\text{Cs}_2\text{NaAmCl}_6(\text{cr})$ のデータも含まれているが、他ハロゲン化物同様易溶性であるので、整備対象外とする。

5.2.3 硫化物, セレン化物, テルル化物

NEA-TDB(Am) では、 $\text{AmS}(\text{cr})$, $\text{AmSe}(\text{cr})$, $\text{AmTe}(\text{cr})$ のデータが選定されている。これらは硫黄, セレン, テルルが-3価となるため、Eh-pHダイアグラム(Brookins, 1988)に基づくと地層処分条件下での生成は考え難い。よって、PNC-TDB には含めないものとする。

5.2.4 リン酸塩

NEA-TDB(Am)では、 $\text{AmPO}_4(\text{am, hydr})$ のデータが選定されている。この固相は難溶性でリン酸濃度の高い条件では溶解度制限固相となる可能性もあるため、PNC-TDBに含めるものとする。固相の種類を表記方法については、3章の定義に従い(am)とする。

5.2.5 炭酸塩

4章において、Am水酸化炭酸塩について検討したが、NEA-TDB(Am)では他に炭酸塩として $\text{Am}_2(\text{CO}_3)_3(\text{cr})$ のデータを選定している。この固相もpHや炭酸濃度によっては溶解度制限固相となる可能性があることから、PNC-TDBに必要なデータである。水溶性の炭酸錯体の生成定数は、NEA-TDB(Am)とPNC-TDBで異なっているが、その差は小さく、また、 $\text{Am}_2(\text{CO}_3)_3(\text{cr})$ の加水分解定数選定の段階では炭酸錯体生成の影響のないデータを用いていることから、PNC-TDBのデータと矛盾しないと考えられる。よって、PNC-TDBに含めるものとする。固相の種類を表記方法については、3章の定義に従い(cr, wet)とする。他に、イオン強度の高い条件において、アルカリ金属やアルカリ土類金属を含んだ炭酸塩も観察されているが、その熱力学データについては信頼性が不確かでNEA-TDB(Am)でも選定していないことから、現段階では整備対象外とする。

6. 結論

以上、Amの熱力学データに関して、PNC-TDBとNEA-TDB(Am)との比較・検討を中心として議論した。その結果、Am水酸化炭酸塩の加水分解反応定数と炭酸錯体生成定数および地層処分条件下における溶解度評価に不必要と考えられるデータを除いてNEA-TDB(Am)のデータを受け入れることとした。今回整備されたAmに関する熱力学データの一覧表を表1に示す。

7. 謝辞

本整備を進めるにあたり、スイス連邦原子力規制局のDr. H. Wanner、米国Florida大のProf. G. R. Choppin、Battelle-PNL研究所のDr. D. Rai、日本原子力研究所東海研究所の山口徹治氏、動燃事業団環境技術開発部地層処分開発室の油井三和氏、牧野仁史氏、澁谷朝紀氏には有益な議論をしていただき、多数のコメントを頂いた。ここに謝意を表します。

8. 参考文献

- Bernkopf, M. F. and Kim, J. I. (1984): Hydrolysereaktionen und Karbonatkomplexierung von Dreiwertigen Americium im Natuerlichen Aquatischen System, Report RCM-02884, Inst. Fur Radiochemie, Technische Universitaet Muenchen
- Brookins, D. G. (1988) : Eh-pH Diagrams for Geochemistry, Springer-Verlag
- Davies, C. W. (1962) : Ion Association, Washington, D. C. : Butterworths
- 動燃事業団(1992) : 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 - 動燃事業団技術資料 PNC TN 1410 92-081
- Felmy, A. R., Rai, D. and Fulton, R. W. (1990): The Solubility of $\text{AmOHCO}_3(\text{c})$ and the Aqueous Thermodynamics of the System $\text{Na}^+ - \text{Am}^{3+} - \text{HCO}_3^- - \text{CO}_3^{2-} - \text{OH}^- - \text{H}_2\text{O}$. Radiochimica Acta 50, p193-204, (1990)
- Parkhurst, D. L., Thorstenson, D. C. and Plummer, L. N. (1980) : PHREEQE-A Computer Program for Geochemical Calculations, U. S. Geological Survey, Water-Resources Investigations 80-96.
- Pitzer, K. S. (1979) : Theory; Ion Interaction Approach, in: Activity Coefficients in Electrolyte Solutions (Pytkowicz, R. M., ed.) Vol. I, Boca Raton: CRC Press, pp157-208
- Rai, D., Strickert, R. G., Moore, D. A. and Ryan, J. L. (1983) : $\text{Am}(\text{III})$ Hydrolysis Constants and Solubility of $\text{Am}(\text{III})$ Hydroxide. Radiochimica Acta 33, p201-206
- Silva, R. J. (1982) : The Solubilities of Crystalline Neodymium and Americium Trihydroxides: Thermodynamic Properties of Chemical Species in Nuclear Waste, Topical Report ONWI B511-05100, LBL-15055
- Silva, R. J. (1985) : Preparation, Characterisation and Solubility Constant of AmOHCO_3 , in: Americium and Curium Chemistry and Technology (Edelstein, N. M., J. D. Navratil and W. W. Schulz, eds.) Dordrecht: D. Reibel Publ. Co. pp225-238
- Silva, R. J., Bidoglio, G., Rand, M. H., Roubouch, P. B., Wanner, H. and Puigdomenech, I. (1995) : Chemical Thermodynamic of Americium, Amsterdam ; Elsevier Science Publishers B. V. 374p
- 油井三和, 牧野仁史, 芦田敬, 梅木博之, 石黒勝彦, 根山敦史(1992) : ガラス固化体からの元素の溶出挙動と人工バリア空隙水中の溶解度評価 動燃事業団技術資料 PNC TN 8410 92-161

表1 整備されたAmについての熱力学データ

水溶性化学種	反応式	logK	
		更新前	更新後
Am ²⁺	Am ³⁺ + e ⁻ = Am ²⁺	—	-38.878
AmOH ²⁺	Am ³⁺ + H ₂ O - H ⁺ = AmOH ²⁺	-8.2	-6.4
Am(OH) ₂ ⁺	Am ³⁺ + 2H ₂ O - 2H ⁺ = Am(OH) ₂ ⁺	-17.1	-14.1
Am(OH) ₃ (aq)	Am ³⁺ + 3H ₂ O - 3H ⁺ = Am(OH) ₃ (aq)	-28.5	-25.7
AmF ²⁺	Am ³⁺ + F ⁻ = AmF ²⁺	—	3.4
AmF ₂ ⁺	Am ³⁺ + 2F ⁻ = AmF ₂ ⁺	—	5.8
AmCl ²⁺	Am ³⁺ + Cl ⁻ = AmCl ²⁺	—	1.05
AmSO ₄ ⁺	Am ³⁺ + SO ₄ ²⁻ = AmSO ₄ ⁺	—	3.85
Am(SO ₄) ₂ ⁻	Am ³⁺ + 2SO ₄ ²⁻ = Am(SO ₄) ₂ ⁻	—	5.4
AmNO ₃ ²⁺	Am ³⁺ + NO ₃ ⁻ = AmNO ₃ ²⁺	—	1.33
AmH ₂ PO ₄ ²⁺	Am ³⁺ + PO ₄ ³⁻ + 2H ⁺ = AmH ₂ PO ₄ ²⁺	—	22.562
AmCO ₃ ⁺	Am ³⁺ + CO ₃ ²⁻ = AmCO ₃ ⁺	7.6	7.6
Am(CO ₃) ₂ ⁻	Am ³⁺ + 2CO ₃ ²⁻ = Am(CO ₃) ₂ ⁻	12.3	12.3
Am(CO ₃) ₃ ³⁻	Am ³⁺ + 3CO ₃ ²⁻ = Am(CO ₃) ₃ ³⁻	15.23	15.23
固相	反応式	更新前	更新後
Am ₂ O ₃ (cr,dry)	Am ₂ O ₃ (cr,dry) = 2Am ³⁺ + 3H ₂ O - 6H ⁺	—	51.77
Am(OH) ₃ (cr,wet)	Am(OH) ₃ (cr,wet) = Am ³⁺ + 3H ₂ O - 3H ⁺	17.5	15.2
Am(OH) ₃ (am)	Am(OH) ₃ (am) = Am ³⁺ + 3H ₂ O - 3H ⁺	—	17.0
AmPO ₄ (am)	AmPO ₄ (am) = Am ³⁺ + PO ₄ ³⁻	—	-24.79
Am ₂ (CO ₃) ₃ (cr,wet)	Am ₂ (CO ₃) ₃ (cr,wet) = 2Am ³⁺ + 3CO ₃ ²⁻	—	-33.4
AmCO ₃ OH(cr,wet)	AmOHCO ₃ (cr,wet) = Am ³⁺ + H ₂ O - H ⁺ + CO ₃ ²⁻	-8.5	-8.5

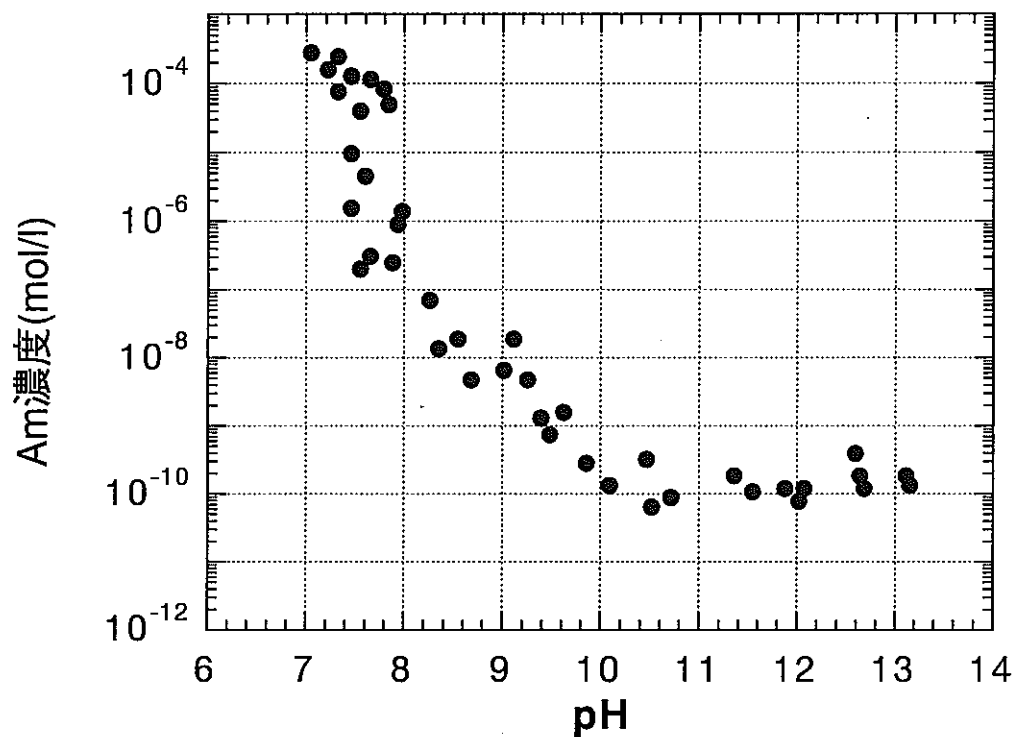


図1 PNC-TDBのAm(OH)₃(s)データ

出典：Rai et al(1983)のAm(OH)₃(s)溶解度データ

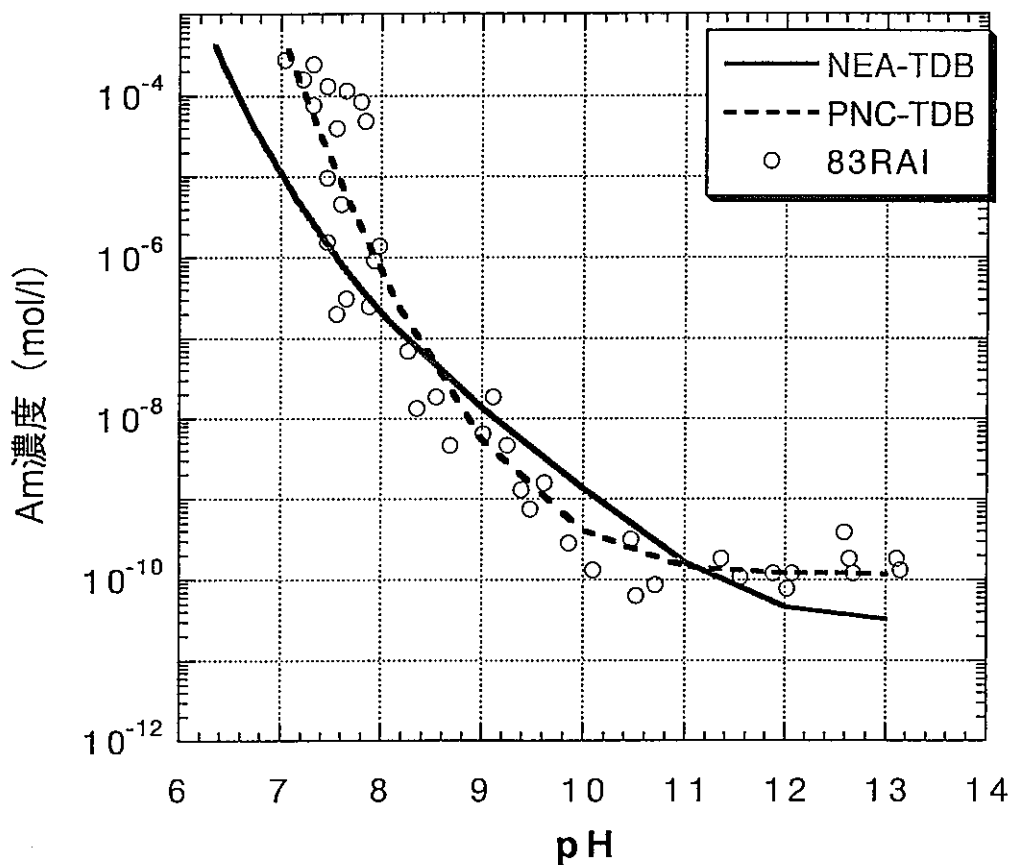


図2 NEA-TDB(Am)との比較 -Am(OH)₃(cr)-

NEA-TDB(Am)のデータは条件の異なるいくつかの研究例を集めて水溶性化学種の生成定数を選定しているため、直接比較することはできない。そこで、それぞれの熱力学データから25℃、 10^{-3} mol/l -NaCl水溶液中の溶解度を算出して比較した。

実線：NEA-TDB(Am)のデータを用いて算出したAm(OH)₃(cr)の溶解度

点線：PNC-TDBのデータを用いて算出したAm(OH)₃(s)の溶解度

○：Rai et al,1983のAm(OH)₃(s)の実測溶解度 (PNC-TDBのデータの出典)

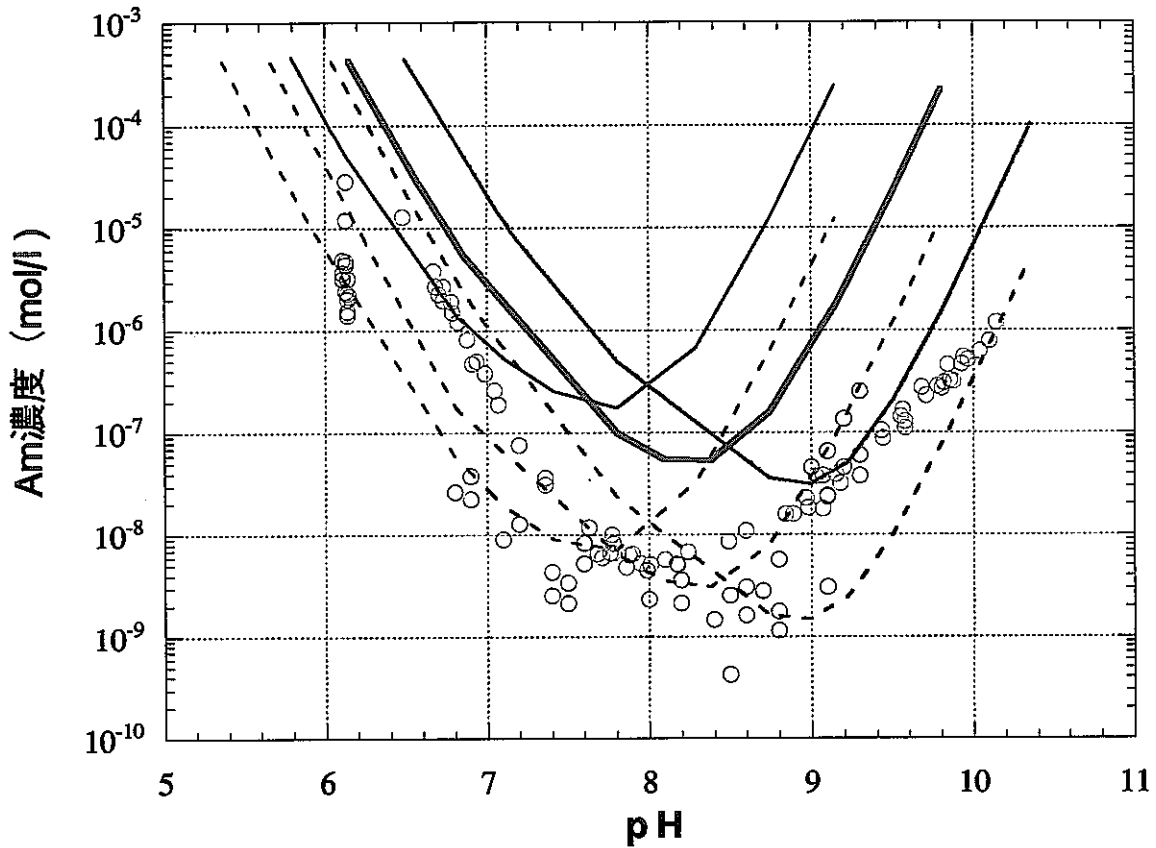


図3 NEA-TDB(Am)との比較 -AmOHCO₃(cr)-

NEA-TDB(Am)のデータの出典はそれぞれ条件が異なるため、直接比較することはできない。そこで、それぞれの熱力学データから $P_{CO_2} = 10^{-2} \sim 10^{-4} \text{ atm}$, 25°C , $10^{-1} \text{ mol/l-NaCl}$ 水溶液中の溶解度を算出して比較した。

図に載せてあるプロットは、PNC-TDBのデータの出典である Felmy et al(1990)とその条件に近い以下の溶解度データである。

- Silva(1985)($P_{CO_2} = 10^{-2.1} \text{ atm}$)
- Felmy et al(1990)($P_{CO_2} = 10^{-3} \text{ atm}$)
- Bernkopf et al(1984)($P_{CO_2} = 10^{-3.5} \text{ atm}$)
- NEA-TDB(Am)($P_{CO_2} = 10^{-2} \text{ atm}$)
- NEA-TDB(Am)($P_{CO_2} = 10^{-3} \text{ atm}$)
- NEA-TDB(Am)($P_{CO_2} = 10^{-4} \text{ atm}$)
- - - - PNC-TDB($P_{CO_2} = 10^{-2} \text{ atm}$)
- - - - PNC-TDB($P_{CO_2} = 10^{-3} \text{ atm}$)
- - - - PNC-TDB($P_{CO_2} = 10^{-4} \text{ atm}$)