

群分離・消滅処理技術による放射性廃棄物地層処分の 環境安全性についてのコメント[†]

中山真一^{††} 安 俊弘^{†††}

群分離・消滅処理技術によって、高レベル放射性廃棄物に含まれる長寿命の放射性核種を短半減期核種に変換することができれば、高レベル放射性廃棄物を持つ放射能毒性の低減を図ることが可能である。しかしながら、このことがすなわち地層処分の環境安全性を向上させることにはならない。地下水中の放射性核種の濃度は廃棄物に含まれる放射性核種量に比例するのではなく、溶解度という限界値によって決まるからである。また、安全性の評価ではその対象としてできるだけ現実に近い状況が想定されなければいけない。この観点から、群分離・消滅処理技術で議論されている環境安全性の考え方を検討する。最後に群分離・消滅処理の地層処分への寄与の可能性についても言及する。

Partitioning-transmutation technology is capable of reducing the radioactivity of high-level radioactive waste (HLW). The reduction in radioactivity, however, does not necessarily lead to direct enhancement of the long-term environmental safety of geologic disposal of HLW. The reason is that concentrations of radionuclides in groundwater are not proportional to the inventory in disposed waste but are limited by the solubilities of the radionuclides. The concept of the solubility-limited dissolution is introduced briefly in this paper. Safety is assessed under realistic conditions and situations. We point out that the potential hazard of radioactive waste, on which the efficacy of partitioning-transmutation technology is based, is not the index of environmental safety. Lastly, potential contributions of partitioning-transmutation technology to geologic disposal are briefly mentioned.

1. はじめに

消滅処理技術はある元素を半減期の短い他の元素に変換することを主な目的とする一連の技術である。この技術と群分離技術とを組み合わせることによって、高レベル放射性廃棄物に含まれる長寿命放射性核種をより短半減期の核種に変換することができれば、廃棄物の放射能レベルをより短い時間で下げることができ、放射性廃棄物処分の環境安全性と許認可の簡素化、ひいては経済性を高めることができると期

待されている [1, 2]。

放射能を減らせばそれに伴って人間への危険性が低下するということは事実である。貯蔵や運搬など人間が放射性廃棄物を取り扱う際には、放射能を低減させることがほぼ直接的に作業員の被曝線量の低減につながるため、作業を容易にし安全性を高めることができる。その一方で、放射性廃棄物を地中処分した後の長期にわたる環境安全性は、必ずしも廃棄物中の放射性核種の量の低減に伴って向上するわけではない。なぜなら、廃棄物容器から漏洩し地下水によって運ばれた放射性核種が人間にもたらす被曝線量は、地下水中に溶け込む放射性核種の濃度に比例するが、その濃度は廃棄物に含まれる核種の量に比例せず、その元素の溶解度で上限を抑えられるからである。本報では、まず、この「溶解度限界溶解」の概念を簡単に解説する。

群分離・消滅処理技術においては、放射性廃

[†]Comments on Contributions from Partitioning-Transmutation to Environmental Safety of Geologic Disposal of Radioactive Waste, by Shinichi Nakayama, Joonhong Ahn

本稿は、東京工業大学原子炉工学研究所研究会「核エネルギーシステムからの最終放射性廃棄物の許容限度」(1995年10月23日)において中山が口頭発表した内容に加筆したものである。

^{††}日本原子力研究所環境安全研究部 Department of Environmental Safety Research, Japan Atomic Energy Research Institute

^{†††}カリフォルニア大学バークレー校 Department of Nuclear Engineering, University of California, Berkeley

棄物中の放射性核種のそれぞれに対して目標除去率を設定し、技術開発が進められている。しかし、廃棄物中の放射性核種の量を低減させることが地層処分環境安全性を直接に高めることにはならないため、この目標除去率は設定の基になった考え方が合理的ではない。本報では、この点についても若干言及する。最後に、群分離・消滅処理技術の地層処分への寄与について可能性を探る。

2. 地層処分の安全評価に与える溶解度の役割

2.1 ガラス固化体からの放射性核種の溶出

地下の処分場に高レベル放射性廃棄物のガラス固化体を埋設後、非常に長期間を経過した後は、地下水が緩衝材とオーバーパックを通過し、ガラス固化体に接して放射性核種を溶かし出す。こうして地下水中に溶け込んだ放射性核種が地下を移動し、生態圏に到達することを想定したシナリオが地下水シナリオである。

ガラス固化体からの放射性核種の地下水中之への移行は、地下水シナリオのモデル化の最初の境界条件である。放射性核種の地中移行のモデル化が研究された初期には、ガラス固化体が単位時間に一定の割合で溶ける band release モデルや、廃棄物中に含まれる放射性核種量に比例して核種が溶け出してくると考えた ex-

ponential release モデルが採用された[3]。これらのモデルは、ガラス固化体に含まれている放射性核種がガラスの溶解速度と同じ速度で地下水に溶け出てくるという描像に基づいている。

これに対して、Chambréらは1980年代に元素の溶解度を考慮したモデルを提唱した[4]。物質には「溶解度」という、水に、あるいは一般に液体にこれ以上には溶けないという限度がある。これを考慮して定式化したのが溶解度限界溶解(solubility-limited dissolution)の概念である。以下にその概念と、溶解度が地層処分の安全評価結果の中にどう反映されるかについて概説する。

2.2 ガラス固化体からの放射性核種の溶出

ガラス固化体からの元素の溶出のメカニズムは、水に対するその元素の溶解度とガラスの主成分であるシリカ(SiO_2)の溶解度によって分けられる(図1)。ガラスは非晶質物質であり、 SiO_4 四面体を作る網目構造が元素を包んでいる。もし含まれている元素がCsのように易溶性、すなわち溶解度が高い元素であれば、シリカが水に溶解するとともにCsも溶ける。すなわちCsの溶解速度はガラスの溶解速度に律せられる。この溶解を調和溶解(congruent dissolution)と呼ぶ。調和溶解の場合、元素を固化体

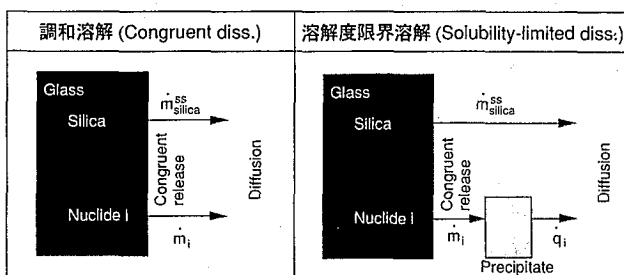


図1 調和溶解 (congruent dissolution) と溶解度限界溶解 (solubility-limited dissolution)

(文献[7]のFig.5を改変)。調和溶解では、元素の溶解速度はガラス固化体の母材であるシリカの溶解速度に比例する。一方、溶解度が低い元素は、シリカの溶解に伴ってガラス表面でその元素固有の化合物の沈殿を作り、水中の濃度はその化合物の溶解度と等しくなる。したがって、難溶性元素のガラス固化体から地下水への溶解はシリカの溶解ではなく、その元素の溶解度で制限される。この図では沈殿(precipitate)をガラス固化体から離して描いてあるが、実際はガラス固化体が地下水に接する表面に生成する。

から溶け出さないようにするには、固化体の母体（この場合ガラス）をできるだけ溶けにくくする、つまり耐浸出性の高い材料にするか、または当該元素（この場合 Cs）の量を減らせばよい。

一方、 SiO_2 の網目構造に含まれている元素の水に対する溶解度が低い場合は、シリカが溶けても含まれていた元素のすべてが水中に溶けることはない。水中におけるその元素の濃度は溶解度以上にはならない。水中の濃度が溶解度に達した後にガラス固化体から放出された元素は、溶解できず析出する。この溶解を溶解度限界溶解 (solubility-limited dissolution) と呼ぶ。

ガラス固化体に含まれ半減期が長く長期の安全性が問題とされるアクチニド元素は一般に難溶性である。それらを包んでいたシリカが地下水に溶け、地下水に接したそれらの元素は、ガラス表面に水酸化物または酸化物を作ると言われている。すなわち、ガラス固化体に接している地下水中のアクチニド元素の濃度は、その元素の水酸化物や酸化物の溶解度で決まる。

2.3 溶解度で決まる地下水濃度

溶解度によって地下水中の濃度がどのように制限されるかを Np を例にとって簡単に説明する (図 2)。

これまでの研究によって、処分場周辺の地下水は還元性であり、Np は Np(IV) として安定であろうと推測されている [5]。ガラス固化体に接する地下水中には Np(IV) は $\text{Np}(\text{OH})_4(\text{s})$ として存在し、その溶解度はおよそ 10^{-9}mol/L (2 ppb) 程度 [6] である。つまり、 1m^3 の水に 2 mg 溶ける。かりに 1m^3 の水に Np を徐々に添加することを考えたとき、Np が 2 mg 以下であればすべて溶け、水中の Np 濃度は添加した Np の量に比例した濃度となる。たとえば 0.01 mg を添加すれば $[\text{Np}] = 0.01\text{mg/m}^3$ であり、1 mg であれば $[\text{Np}] = 1\text{mg/m}^3$ である。しかし、もし 10 mg の Np を添加したとすると、2 mg は溶けるが残り 8 mg は沈殿する。すなわち、水中の Np 濃度は 2mg/m^3 から変化しない。

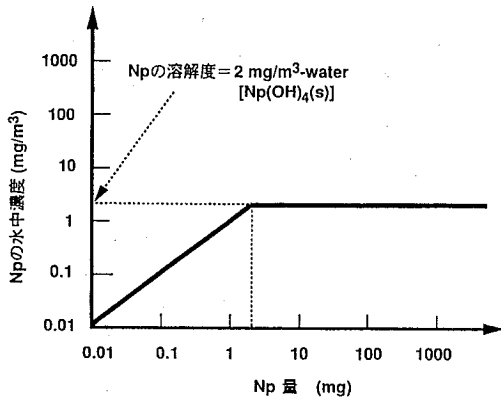


図 2 水に添加した Np 量と Np の水中濃度

Np の溶解度が 2mg/m^3 であれば、 1m^3 の水に 2 mg 以上の Np を添加しても、水中に溶けることができるのは 2 mg までである。

たとえば廃棄体キャニスターにピンホールがあき、そこから侵入した水がキャニスター内に溜まる、という場合を想定すると、1本のガラス固化体に接する地下水の量を見積もることができる。ここでは、簡単のため 1m^3 とする。またガラス固化体 1本に含まれる Np の量を 100 g とする。ガラス固化体が全部溶けて 100 g の Np が全部地下水に接したとしても、溶解度が 2mg/m^3 であるから、99.998 g の Np は沈殿し、キャニスターから放出される地下水中の Np 濃度は 2mg/m^3 を超えることはない。もし、キャニスター内の水の交換が十分ゆっくり進めば、その間に Np は崩壊し、実際にキャニスターの外に放出される量は低減する。

群分離など何らかの方法でガラス固化体に含まれる Np をあらかじめ除去するとする。たとえば、除染係数が 100 (除去率が 99%) であれば、ガラス固化体中の Np は 100 g から 1 g に減少する。しかし、水 1m^3 に対して 2 mg しか溶けないため、地下水中の Np 濃度は依然、溶解度に等しい 2mg/m^3 である。除去率を 2桁上げて 99.99% とし、固化体から 99.99 g の Np を除去したとしても、固化体中の Np は 0.01 g であり、まだ溶解度を超える量であるから、地下水中の Np 濃度は 2mg/m^3 より低くなることはない。ガラス固化体に接する地下水中の Np

濃度が減少し始めるのは、ガラス固化体中の Np が 2 mg かそれ以下になってから、すなわち元の量の 99.998 % 以上が除去されてからである。

ただし、この例でもわかるように、Np を除去しても生物圏に到達する Np の濃度は変化しないが、放出期間を短縮する効果はある。しかし、溶解度限界が適用できる場合に生物圏にもたらされる最大濃度はすでに非常に小さく、人間への影響は無視できるほど小さいため、いまのところ、このうえさらに、放出の継続期間に対しても基準を定めた例はない。

2.4 放射性核種の地中移行評価への影響

調和溶解と溶解度限界溶解との差が、核種の地中移行にどのように現れるかを見る。まず、ガラス固化体から緩衝材へと移行する核種のフラックスを比較する。図 1 に示したように調和溶解においては、核種 i が緩衝材中へ移行するフラックス m_i [mol/m²・s] はシリカのフラックス $m_{\text{silica}}^{\text{ssilica}}$ [mol/m²・s] に比例し、

$$m_i = m_{\text{silica}}^{\text{ssilica}} \left(\frac{M_i^0}{M_{\text{silica}}^0} \right) \quad (1)$$

で与えられる。ここに、 M_i^0 、 M_{silica}^0 [mol] はそれぞれガラス固化体中における核種 i およびシリカのインベントリを表す。一方、溶解度限界溶解においては、放射性核種 i の緩衝材中へのフラックス q_i [mol/m²・s] はガラス固化体表面に蓄積した析出物から溶解した核種 i の緩衝材中での拡散を考えると次式で与えられる：

$$q_i = -\epsilon D_i \left. \frac{\partial C_i}{\partial r} \right|_{r=r_1} \quad (2)$$

ここに、 ϵ [-] は緩衝材の空隙率、 D_i [m²/s] は緩衝材中における核種 i の拡散係数、 C_i [mol/m³] は核種濃度、 r [m] はガラス固化体中心からの距離、および r_1 [m] はガラス固化体中心からガラス固化体と緩衝材との境界（円筒形の緩衝材の内側）までの距離である。式(2)に現れる濃度 C_i は、文献[7]に詳しく示されているように、拡散方程式を厳密に解いて求められるものであるが、ここでは簡単のため、円筒の内側が一定濃度（この場合溶解度）で抑えられ、物質が拡

散によって外側に向かう移動を考慮して近似する。また、放射性崩壊と緩衝材中の吸着は考えず、また定常状態において比較する。このとき式(2)のフラックスは、

$$q_i = \frac{\epsilon D_i C_i^0}{r_1 \ln(r_2/r_1)} \quad (3)$$

である。ここに、 C_i^0 [mol/m³] は溶解度、 r_2 [m] はガラス固化体中心から緩衝材の外側までの距離である。式(1)、(3)と文献[7-9]に用いられたデータとを用いて、調和溶解の場合のフラックス m_i と溶解度限界溶解の場合のフラックス q_i を比較した結果を表 1 に示す。Tc、U、Np、Pu は m_i よりも q_i の方が小さいことから、調和溶解ではなく、溶解度限界溶解となる。²⁴³Am は、ガラス固化体中のインベントリ（式(1)中の M_i^0 ）が小さいため m_i よりも q_i の方が大きくなる。これは、すなわち、ガラス固化体表面における地下水中の濃度が溶解度に達せずに、調和的に溶解することを意味する。このような核種はあらかじめ廃棄物中のインベントリを減らすことによって地下水中濃度を下げることができる。

次に人工バリアの外側における核種移行への影響を見てみる。図 3 に、人工バリアと天然バリア（岩盤）との境界から天然バリアへ入る Cs と Np のフラックスを示す。式(1)に示したよう

表 1 溶解度に制限される溶解の効果
—ガラス固化体から溶解した元素の緩衝材中へのフラックス [mol/m²・s] の比較—
人工バリアシステムの寸法や核種データは文献[7-9]で使用されたものを用いた。式(3)で用いた緩衝材中における拡散係数には吸着の効果は考慮されていない。吸着がある場合は拡散係数が小さくなるため、フラックスの値は小さくなる。

核種	調和溶解の場合	溶解度限界律速の場合
	式(1)	式(3)
⁹⁹ Tc	2E-14*	5E-15
¹²⁹ I	3E-17	—
¹³⁵ Cs	6E-15	—
²³⁸ U	9E-15	1E-17
²³⁷ Np	6E-15	2E-19
²³⁹ Pu	4E-16	3E-21
²⁴³ Am	8E-16	6E-15

* Read as 2x10⁻¹⁴

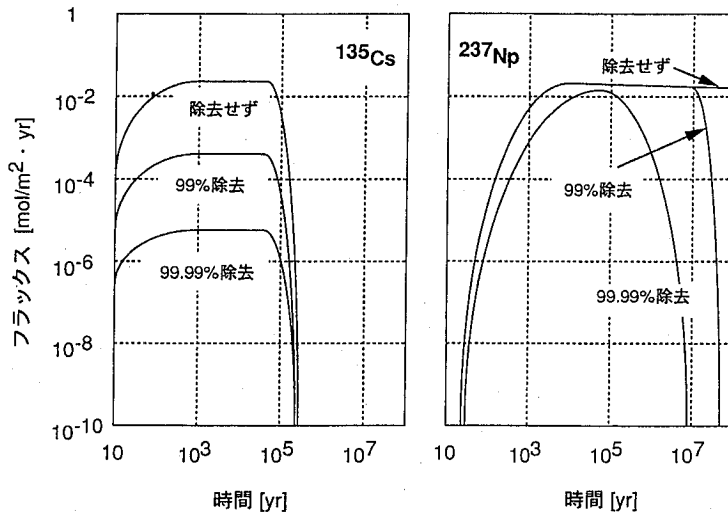


図3 人工バリア外側（人工バリアと天然バリアとの境界）における天然バリアへのフラックスの時間変化
縦軸は相対値。ガラス固化体から調和的に溶解する¹³⁵Csではガラス固化体中のインベントリを減らせばそれに比例してピーク値は減少する。溶解度限界溶解をする²³⁷Npではインベントリを減らしてもピーク値はほとんど変化しない。

に、Csなど易溶性元素のガラス固化体からの溶解速度は固化体内に含まれる量に比例する。そのため、あらかじめCsを除去してガラス固化体内に含まれる量を減らせばそれに比例してピーク値は減少する。一方、溶解度の制限を受けるNpでは、ガラス固化体内の量を減らしてもピーク値は変化しない。ただし、先に述べたように、ピークの持続時間は短くなる。生成する沈殿の量が少なくなるからである。

このNpの例では、除去率を上げてピーク値に変化がないことを示したが、図に示したよりもさらに高い除去率を設定し、溶解度の制限を受けないほどに除去すればピーク値を下げる事ができるであろう。上で触れたように、Amは固化体中のインベントリが少ないため、ガラスとともに調和的に溶けても地下水中濃度が溶解度に達しない。したがって、調和的に溶解する。

図4はAmとCmを除去することによって、人工バリア外側における毒性が減少する可能性があることを示す計算例[10]である。この図において、10,000年あたりに見られるピークはPuの寄与であるが、このPuは、親核種である

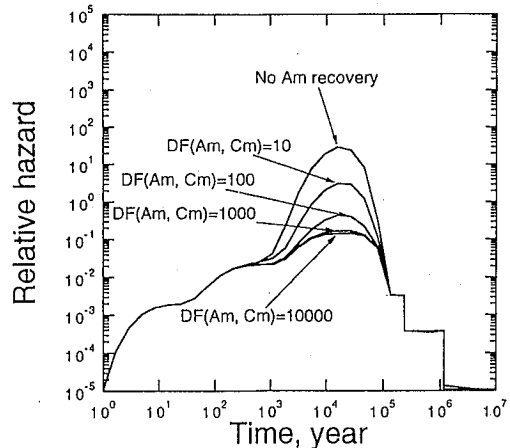


図4 人工バリア外側における相対放射能毒性に対するAm、Cmの分離効果[10]
この図では縦軸を相対放射能毒性（放出率をALIで除した値）で示してある。

Amおよびその親核種であるCmがガラス固化体から溶け、人工バリア内を移行している間に生成した分である。ガラス固化体からAmおよびCmを除去することによって、これらの核種から生成するPuの地下水中濃度が下がる。

これまでの説明で、廃棄物中のインベントリを少なくすることが、必ずしもそれに比例して地下水中濃度の減少をもたらすわけではないことを示した。同様なことが固化体の浸出率にも言える。式(1)および(3)、ならびに表1からわかるように、耐浸出性を高めることによって(すなわちシリカの溶解速度 m_{silica} を小さくすることによって) ガラス固化体からの溶解速度を小さくできるのは、Csのような易溶性の元素である。溶解速度が溶解度で律速される難溶性の元素に対しては、固化体を少々溶けにくくしても必ずしも地下水中の元素の濃度は下がらない。地下水中の濃度が溶解度に達しない程度の、極めて低い浸出性を達成する必要がある。しかし、もしそのような固化体を実現すれば、難溶性のアクチニド元素も調和溶解となる。すなわち、このような極めて耐浸出性の高い固化体が存在しない限り群分離・消滅処理の効果は現れない。

放射性廃棄物地層処分安全評価において、地下水シナリオに基づく環境安全性は、放射性核種が生態圏に到達し、それが人間によって摂取されたと仮定した場合の被曝線量を用いて評価する。ガラス固化体から溶解した放射性核種は人間によって摂取されるまでに、人工バリア材料や岩石へ吸着し、生態圏においては希釈や生物濃縮などさまざまな過程を経るが、個々の放射性核種による被曝線量は、その核種の地下水中濃度に比例する。上記の説明は、その地下水中濃度が必ずしもガラス固化体中の放射性核種のインベントリに比例するのではないことを示した。このことはすなわち、廃棄物として処分される放射性核種の量を減らすことが、地層処分環境安全性を高めることにはならないことを意味する。

3. 環境安全性の現実さ

図5は高レベル放射性廃棄物が持つ放射能毒性の時間変化を示したグラフである[11]。縦軸の値が「潜在的放射能毒性」と呼ばれる指標であり、放射能を、経口摂取した場合の内部被曝に対する年摂取限度 (ALI: Annual Limit of

Intake、単位は Bq/yr) で除することによって、その放射能が何人分・何年分の摂取限度に相当するかを表す。数値が大きいほど人間に対する放射能毒性が高い。

群分離・消滅処理の地層処分への影響を予測しようとするとき、このようなグラフ上で放射能の低減効果が議論されることが多い[12]。図5は、高レベル放射性廃棄物からマイナーアクチニド (MA) や長半減期核分裂生成物 (LFP) を異なる消滅効率で除去した場合の「毒性」の時間変化を示す。このグラフによれば、高レベル放射性廃棄物から MA や LFP を除去することによる毒性の低減効果は極めて顕著である。たとえば、MA と LFP をともに 99.5% 除去することによって、廃棄物発生後の毒性は 1000 年以降 2 桁以上減少する。しかし、それが地層処

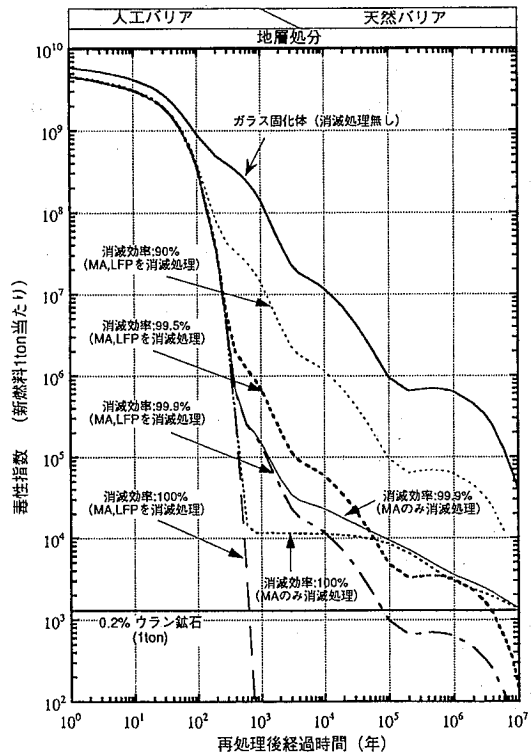


図5 高レベル放射性廃棄物の潜在的経口摂取放射能毒性の時間変化、およびマイナーアクチニドならびに長半減期核分裂生成物の核変換による毒性低減の効果 [11]。

分の安全性あるいは環境安全性の向上に直結するわけではない。

発生した放射性廃棄物の放射能毒性はその廃棄物を処分した場合の環境への影響を直接反映するものではない。地中に処分された廃棄物中の放射性核種が地下水を媒体として生態圏に到達するためには、ガラス固化体から溶出し、人工バリア材や天然バリアと反応しながら移行する過程を含めて考える必要があり、図5に示された結果にはそれらが反映されていない。

実際、高レベル放射性廃棄物中で重要な核種が必ずしも地層処分の安全評価上重要となるわけではない。初期の数十年間に ^{137}Cs や ^{90}Sr が毒性の大部分を占めるが、これらは半減期が約30年と短いため、地層処分の安全評価が対象とする1000年以上の期間においては問題にならない。また、AmやCmは半減期が比較的短いことに加えて、人工バリア材への吸着が大きいため移動しにくく、人工バリア中で崩壊する。したがって、廃棄物中にインベントリとして含まれるAmやCmは安全評価上あまり重要ではない。「潜在的」毒性である図5の縦軸の値が「顕在化」するかどうかを判断するためには別の解析(いわゆる核種移行評価を含む安全評価)が必要である。

このグラフ上で、廃棄物発生後数十年後には廃棄物は地中に処分されるため、数十年から後は地層処分した場合の評価をしなくてはいけない。処分した後の評価には、上で述べたように、ガラス固化体の溶解性やバリア材との相互作用のモデル化を必要とする。

放射性廃棄物に対して、最終的には、われわれの対処には2通りがある。処分する(dispose)か減衰を待つか(wait & see)である。図5の意味は、発生した高レベル廃棄物あるいは消滅処理によって放射能を低減させた廃棄物を数千万年の長きにわたって地表に貯蔵したとき(wait & see)に、人間が故意もしくは誤って経口摂取した場合の毒性の時間変化である。そのような対処は現実にはあまり考えられない。

ただし、図5の計算結果は短期間を考えた場合、ある意味を持つ。廃棄物発生後処分される

までの数十年間は廃棄物を貯蔵・運搬する必要がある。人間が近づく以上、放射能およびその毒性を可能な限り低くすることができれば作業環境の安全性を高めることができる。

放射性廃棄物処分の環境安全性は生態圏における被曝線量で示される。ガラス固化体から天然バリア中までの中間段階の計算は、処分システムの性能評価上必要であるが、最終目的ではない。なぜならば、人間が地中に処分したガラス固化体に接する地下水や人工バリアから浸み出る地下水を飲み込むと仮定することは現実的ではないからである。また、廃棄物自身が持つ潜在的毒性も同様の理由から、環境安全性を示す指標として現実的でない。

4. 地層処分に対する群分離・消滅処理の寄与

これまで述べてきたように、もし地層処分システムがわれわれの期待どおりの性能を発揮すれば、群分離・消滅処理技術が地層処分の環境安全性に寄与できる部分は大きくはないと思われる。一方、環境安全性以外の安全性に対しては、処分する廃棄物インベントリを低減することは効果的である。たとえば、悪意を持った人間の侵入によって核分裂性物質が再回収され悪用される危険性は、廃棄物中に含まれる核分裂性物質が少ないほど小さい。また、埋設された核分裂性物質が濃集し臨界事故を起こす危険性も埋設される核分裂性物質の量に比例して小さくなる。環境安全性についても、たとえば処分場の化学的雰囲気酸化性となった場合、アクチニド元素の溶解度は高くなり、その溶解度に頼るよりはあらかじめインベントリを減らしておくことが得策かもしれない。

考えておかねばならないことは、群分離・消滅処理によって高レベル廃棄物は減少する一方で、群分離・消滅処理システムの運転に伴い発生する二次放射性廃棄物である。それを含めた放射性廃棄物が最終的に地中処分されるのであれば、そのための総合的な環境安全評価を行わなくてはならない。このために、群分離・消滅処理システムにおけるマテリアル・フローを確立し、発生する廃棄物の量、種類、形態などを

予測しておくべきである。

5. 謝辞

本報の内容の一部は、日本原子力研究所原子炉工学部高速炉物理研究室のゼミにおいて話したものであり、同研究室の研究員に議論いただいた。また、同研究室の向山武彦室長からは、群分離・消滅処理の観点から本原稿へ貴重なコメントを、さらに東海大学の大江俊昭助教授、原研環境安全研究部の木村英雄氏、高橋知之氏、磯部博志氏、山口徹治氏および永野哲志氏からもコメントをいただいた。動力炉・核燃料開発事業団の大井貴夫氏からは計算部分についてご助言をいただいた。

6. 参考文献

[1] 久保田益充：高レベル廃棄物の群分離の研究開発、原子力誌、**29**、775 (1987)。

[2] Skåberg, M. and Liljenzin, J.-O.: Partitioning and Transmutation: the State of the Art, *Nucl. Eng. Int'l.*, **32**, February 1993.

[3] たとえば、Higashi, K. and Pigford, T. H.: Analytical Models for Migration of Radionuclides in Geologic Sorbing Media, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **17**, 700 (1980)。

[4] Chambré, P.L. et al.: Analytical Performance Models for Geologic Repositories, LBL-14842, University of California, Berkeley (1982)。

[5] 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、PNC TN 1410 92-081 (1992)。

[6] たとえば、Nakayama, S. et al.: Solubility of Neptunium(IV) Hydrated Oxide under Reducing Conditions, submitted to *Radiochimica Acta*.

[7] 安俊弘 他：高レベル放射性廃棄物地層処分における多重バリア性能の定量的評価、原子力誌、**37**、59 (1995)。

[8] 中山真一 他：高レベル放射性廃棄物の地層処分における人工バリアの性能評価モデル、原子力誌、**34**、342 (1992)。

[9] 大江俊昭 他：高レベル放射性廃棄物地層処分システムの初期過渡状態の解析、原子力誌、**35**、420 (1993)。

[10] 安俊弘：高レベル廃棄物の消滅処理研究開発、地層処分と消滅処理、原子力誌、**37**、181 (1995)。

[11] 向山武彦：長半減期核種と消滅処理、放射性廃棄物研究、**2**、15 (1996)。

[12] 消滅処理研究専門委員会「消滅処理研究の現状—新しい原子力技術の可能性を求めて—」、日本原子力学会 (1994)。