



## ウラン廃棄物の溶出特性に関する予察試験

—溶出試験方法に関する考え方—

Preliminary Test for Elution of Uranium Waste

- Concept and Application for Elution Test -

秦 はるひ 横山 薫 綱嶋 康倫 大橋 裕介  
古賀 修 杉杖 典岳

Haruhi HATA, Kaoru YOKOYAMA, Yasumichi TSUNASHIMA, Yusuke OHASHI  
Osamu KOGA and Noritake SUGITSUE

人形峠環境技術センター  
環境保全技術開発部

Environmental Research and Development Department  
Ningyo-toge Environmental Engineering Center

September 2011

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,  
Japan Atomic Energy Agency  
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2011

## ウラン廃棄物の溶出特性に関する予察試験 —溶出試験方法に関する考え方—

日本原子力研究開発機構 人形峠環境技術センター  
環境保全技術開発部

秦 はるひ, 横山 薫<sup>\*</sup>, 綱嶋 康倫, 大橋 裕介, 古賀 修<sup>\*</sup>, 杉杖 典岳

(2011年7月7日 受理)

原子力施設等から発生する低レベル放射性廃棄物の埋設処分の安全評価の重要な要素のひとつに埋設後の溶出特性がある。そのうち、原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物については、既にコンクリートピットやトレンチ処分が行われており、溶出特性についても、その評価方法が確立している。一方、本報告で対象としているウラン廃棄物では、現状、溶出特性に関する試験方法について定まった考え方は示されていない。

このような状況を踏まえて、埋設処分の安全評価上の留意点を評価するために予察試験を行った。予察試験では、ソックスレー法及び環境庁告示 13 号に準拠した振とう法を用いて溶出試験を行った。一般的には、ソックスレー法は、有機化合物の抽出試験によく用いられる方法であり、環境庁告示 13 号は、主に土壤汚染について試験をするものである。また、試料には、金属、熔融スラグ及びコンクリートを用いた。本試験では、溶出特性を把握するため、ウラン廃棄物を「表面汚染」、「表面腐食汚染・浸透汚染」、「混在」の 3 種類の状態に分類して評価した。これより、ウラン廃棄物を処分した際に、処分場から溶出するウラン量を考察した。

これらの試験より、廃棄物を構成する材質とそこに含まれるウランの化学形態及び形状が溶出試験において重要なファクターになることが解った。加えて、処分場への降水量の多寡により、溶出特性が変わってくると考えられる。

以上のことから、ウラン廃棄物からの漏えい率を厳密に評価しようとするならば、これらのファクターを考慮した溶出試験を行う必要があることが解った。

---

人形峠環境技術センター：〒708-0698 岡山県苫田郡鏡野町上斎原 1550

※ 技術開発協力員

**Preliminary Test for Elution of Uranium Waste  
- Concept and Application for Elution Test -**

Haruhi HATA, Kaoru YOKOYAMA\*, Yasumichi TSUNASHIMA, Yusuke OHASHI,  
Osamu KOGA\* and Noritake SUGITSUE

Environmental Research and Development Department  
Ningyo-toge Environmental Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency  
Kagamino-cho, Tomata-gun, Okayama-ken

(Received July 7, 2011)

For disposal of Very low-level radioactive Waste (VLLW) from nuclear related facilities, one of important factors for safety assessment is the characteristics of elution. As for VLLW from the nuclear power plant, concrete pit and trench disposals have been performed and the evaluation methods for the characteristics have been established. On the other hand, as for the uranium waste, the concept on how to test the elution characteristics is not shown yet.

Based on these circumstances, preliminary tests have been conducted to study elution characteristics of uranium waste. For the test, two methods; Soxhlet extraction method and shake flask method, are used. Tests are carried out on specimens of metal, molten slag and concrete, representing "surface contaminated", "corroded" and "mixed".

The results show that the important factors for the uranium elution are how uranium exists in waste. In addition, the elution characteristics also depend on the precipitation amount on the disposal site. Therefore, to assess the elution rate from uranium waste, these factors must be considered.

Keywords: Uranium Waste, Elution Test, Safety Assessment

---

\* Collaborating Engineer

目次

1.はじめに.....	1
1.1 ウラン廃棄物の特徴.....	1
1.2 予察試験の基本的考え方.....	2
2.溶出試験方法.....	4
2.1 溶出試験条件.....	4
2.2 試料の構成.....	4
2.3 溶出試験手順.....	5
2.4 溶出率の定義.....	5
3.分析方法.....	6
3.1 試料の成分分析.....	6
3.2 ウラン量の定量分析.....	6
3.3 ろ液中の各種イオンの定量分析.....	6
4.試験結果.....	7
4.1 試験結果の概要.....	7
4.2 試験結果の妥当性.....	7
5.溶出率の位置づけ.....	10
5.1 処分後の安全評価シナリオとの関係.....	10
5.2 核種漏えい率定式との関係.....	10
5.3 放射性廃棄物の形状とその関係.....	11
5.4 母材(廃棄物)とウラン化合物の溶解度との関係.....	11
5.5 適用範囲.....	12
6.まとめ.....	13
謝辞.....	14
参考文献.....	14
Appendix 1 炭素鋼の pH 上昇.....	34
Appendix 2 熔融スラグの pH 上昇.....	35

Contents

1.	Introduction .....	1
1.1	Characteristics of Uranium Waste .....	1
1.2	Basic Concept of Preliminary Test.....	2
2.	Methods of Elution test .....	4
2.1	Condition of Elution Test .....	4
2.2	Composition of Samples .....	4
2.3	Procedure of Elution Test.....	5
2.4	Definition of Elution Rate .....	5
3.	Method for Analysis.....	6
3.1	Analysis of Samples.....	6
3.2	Quantitative Analysis of Uranium for Samples .....	6
3.3	Quantitative Analysis of some Ions in Filtrate .....	6
4.	Result of Elution Test.....	7
4.1	Outline of Test Result .....	7
4.2	Validity of the Test .....	7
5.	Position of Elution Rate .....	10
5.1	Relation to Safety Assessment for disposal scenario .....	10
5.2	Relation to Nuclide Elution Rate formula .....	10
5.3	Relation to the Form of Radioactive Waste .....	11
5.4	Relation to Base Material and Solubility of Uranium Waste .....	11
5.5	Range of Application .....	12
6.	Proposal .....	13
	Acknowledgment.....	14
	Reference.....	14
	Appendix 1 Increases in pH by Carbon Steel .....	34
	Appendix 2 Increases in pH by Molten Slag .....	35

## 図表リスト

Table 1-1 Segregation of waste from Ningyo-Toge .....	15
Table 1-2 Chemical forms of uranium compounds from the sludge in Ningyo-toge .....	16
Table 2-1 Mix ratio of cement and NaF .....	16
Table 2-2 Mix ratio of cement and sludge from neutralization .....	16
Table 4-1 Result of the test.....	17
Table 4-2 Measured intensity of filtrate on shaking test .....	18
Table 4-3 Calculation result of solubility by PHREEQC .....	18
Fig. 2-1 Structure of Soxhlet extractor .....	19
Fig. 2-2 Chips produced by cutting polluted surface .....	19
Fig. 2-3 Flow of the test and analysis .....	20
Fig. 4-1 Uranium quantity versus elution rate.....	21
Fig. 4-2 Evaluation of measured intensity .....	21
Fig. 4-3 Statistical significance of measured intensity and result on the tests .....	22
Fig. 4-4 Initial uranium quantity versus solubility .....	22
Fig. 4-5 Iron ion concentrations .....	23
Fig. 4-6 Chrome ion concentrations .....	23
Fig. 4-7 Fluorine ion concentrations .....	23
Fig. 4-8 XRD chart of carbon steel .....	24
Fig. 4-9 XRD chart of molten slag .....	24
Fig. 4-10 XRD chart of cement composites included NaF.....	25
Fig. 4-11 XRD chart of cement composites included sludge from neutralization .....	25
Fig. 4-12 Correlation between initial quantity of uranium and solubility.....	26
Fig. 5-1 Scenario of safety assessment model for disposal .....	26
Fig. 5-2 Source term model for the disposal.....	26
Fig. 5-3 Model of leak rate on the disposal site .....	27
Fig. 5-4 Category classification of radioactive waste.....	27
Fig. 5-5 Graph of solubility and elution rate .....	28
Fig. 5-6 Range of application for elution test.....	28
Photo 1-1 Corroded metal .....	29
Photo 1-2 Lagging material .....	29
Photo 1-3 Metals attached oxide uranium .....	29
Photo 1-4 Metal attached uranium fluoride.....	30
Photo 1-5 Surface of corroded metal with uranium (FIB) .....	30
Photo 1-6 Sludge from Ningyo-toge.....	30
Photo 2-1 Soxhlet extractor .....	31
Photo 2-2 Shaking apparatus .....	31
Photo 2-3 Cutting cylindrical carbon steel.....	31

Photo 2-4 Steel powder .....	32
Photo 2-5 Molten slag .....	32
Photo 2-6 Cement composites included NaF .....	32
Photo 2-7 Cement composites included sludge from neutralization .....	33



## 1. はじめに

原子力施設等から発生する低レベル放射性廃棄物の埋設処分の安全評価シナリオの重要な要素のひとつに埋設後の廃棄物らの核種の溶出特性がある。原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物（主に放射化物）については、既にコンクリートピットやトレンチ処分が行われており、溶出特性についても、その評価方法が確立している。一方、本報告で対象としているウラン廃棄物（主に表面汚染）については、現状、溶出特性に関する評価方法について定まった考え方は示されていない。

一般産業界においては、廃棄物を処分するにあたって、事前に溶出試験を行い、その安全性を評価してきた。主に、環境庁告示 13 号<sup>1)</sup>、環境庁告示 46 号<sup>2)</sup>が行われている。また、近年では、EU において、シリアルバッチ法や最大溶出可能試験（アベイラビリティ法）などが実施されている。日本においては、コンクリートやスラグなどを対象に、粉碎などの前処理の必要がない、有姿によるタンクリーチング法が JIS の規格(JIS K 0058)として定められた<sup>3)</sup>。

このような状況を踏まえて、ウラン廃棄物の溶出特性に関する予察試験として、金属、熔融スラグ及びコンクリート試料を用いた簡易な試験を実施し、ウラン廃棄物の溶出試験方法の考え方について考察を行った。

本試験では、ソックスレー法及び環境庁告示 13 号に準拠した振とう法を用いて溶出試験を行った。ソックスレー法は、一般的には、ダイオキシン等の有機化合物の抽出試験によく用いられる方法であり、環境庁告示 13 号は、土壤汚染について試験をするものである。

本報告書では、安全評価上の留意点を評価するためのウラン廃棄物の溶出特性を把握し、低レベルウラン廃棄物を処分した際に、処分場から溶出するウラン量に関して、理論計算等を交えて考察した。

### 1.1 ウラン廃棄物の特徴

人形峠環境技術センターで実施する廃止措置からは、Table1-1 に示したように多様なウラン廃棄物が発生する。これらのウラン廃棄物は、処分段階の形状により、最終的には、非固化物(金属、コンクリート等)と固化物(混練固化体や充填固化体)に分類される。以下に、本報告書で対象とするウラン廃棄物の溶出特性を各廃棄物の特徴について示す。

#### 1) 非固化物

非固化物の特徴は、廃棄物の材質とウランの化学組成及びウランの同伴形態により次のように整理することができる。

##### ①材質的特徴

廃棄物の物量において大部分をしめる主要な材質は金属(Photo1-1)である。なかでも鉄系金属(炭素鋼やステンレススチール等)の割合が多く、続いてアルミニウム合金の発生量が多く、その他の金属としては、銅合金等が存在する。金属以外の非固化物としては、複合材料やグラスウール、ロックウール等の保温材(Photo1-2)、テフロンや塩化ビニル等、

いわゆる雑固体に分類されるものがある。

## ②ウランの化学組成の特徴

廃棄物に同伴するウラン化合物の化学組成は、大別して、酸化物系(Photo1-3)とフッ化物系(Photo1-4)に分けることができる。具体的には  $UO_2$ 、 $UO_3$ 、 $UO_2F_2$  や  $UF_5$ 、 $UF_4$ 、 $U_4F_{17}$  等が存在することが知られているが、処分段階までにウラン回収や除染を行う場合、これらウラン化合物の化学組成が変化することが考えられる。

## ③ウランの同伴形態の特徴

廃棄物に同伴するウランの形態としては、廃棄物との間で化学反応を伴うものと物理的に吸着・付着しているものに分類される。また、いずれの場合も、廃棄物の極表面にウラン化合物が存在する場合と、Photo1-5 に示したように、腐食等により、廃棄物の内部にウラン化合物が拡散している形態が存在する。腐食等が生じない場合においても、廃棄物の表面がポーラス状態であれば、ウラン化合物は廃棄物の内部に拡散する。

## 2)固形化物

固形化物は、主に、Table1-2 に示した澱物類(Photo1-6)及び澱物類の処理残渣や焼却灰、液体廃棄物の処理残渣などをセメントに混ぜ、固化させることにより、安定化したものである。Table1-2 から分かるように澱物類は多様な組成をしており、澱物類中のウラン化合物の化学形態は様々である。さらに、含まれる放射能濃度も幅広く存在している。また、これらの澱物類は、処分段階までに、澱物等を酸溶解し、凝集沈殿させることによって、ウランの回収を行うことが想定される。そのときに発生する廃液や不溶解残渣などは、セメントで固化し、セメント混練固化体として処分するプロセスが検討されている。

原子力発電所から発生した廃棄物のコンクリートピット処分の例では、セメント混練固化体は、均質/均一固化体と呼ばれ、セメントと廃棄物を均一に練り合わせて廃棄体化することとなっており、この考え方に準拠した場合、固形化廃棄物では、セメント中に廃棄物とウランが一様に分布する。

### 1.2 予察試験の基本的考え方

ウラン廃棄物溶出特性に関する予察試験では、上述したウラン廃棄物の特徴を踏まえ、「表面腐食汚染・浸透汚染」に分類される金属系廃棄物、つまり炭素鋼と「均一汚染」に分類されるセメント固化体及び溶融スラグを用いて、処分場に浸透する雨水の量に対して、廃棄物中のウランがどのような挙動を示すのかを評価した。

具体的には、まずそれぞれの廃棄物に含まれるウランの特徴をとらえ、廃棄物中のウランの化学組成や表面状態等を解析する。ウランの溶出は、雨水をキャリアとして土壌へ溶出していくことを想定している。雨水にウランが溶出する量について分かれば、土壌への溶出が評価できる。

雨水への溶出に限定して、炭素鋼・溶融スラグ・セメント固化体について試験を2通りの方法により実施した。一つは、「産業廃棄物に含まれる金属等の検定方法」である環境庁告示13号に準拠した振とう法で、一定の水に細かくした廃棄物を入れ、水平方向に振とうさせるものである。他法は、抽出試験であるソックスレー法で、細かくした廃棄物を熱

した水に触れさせて、抽出を行うものである。一種の加速試験として、これらの試験を採用した。

## 2. 溶出試験方法

### 2.1 溶出試験条件

#### (1) ソックスレー法

Photo 2-1 にソックスレー試験装置を示す。ソックスレー抽出法は、Fig. 2-1 に示す装置を用いて行った。抽出部 (Fig. 2-1 ①) に試料 50g を入れた円筒ろ紙をセットし、試料の重量の 10 倍の溶媒 (蒸留水に水酸化ナトリウムを加えて pH5.8~6.3 に調整したもの) 500ml をフラスコ (Fig. 2-1 ②) にセットする。溶媒を熱して発生する蒸気をコンデンサ (Fig. 2-1 ③) で凝縮させて円筒ろ紙中の試料に滴下することで溶出を行う。この作業を 6 時間行い、装置等の温度低下後、得られた試料液を孔径  $0.45\mu\text{m}$  のメンブランフィルターによりろ過し、硝酸を 1% 添加して、ろ液中のウラン量を ICP-MS (誘導プラズマ質量分析装置) により分析した。

#### (2) 環境庁告示 13 号に準拠した振とう法

Photo 2-2 に振とう試験装置を示す。振とう試験は、環境庁告示 13 号の方法に準拠して、50g の試料を試料の重量の 10 倍の溶媒 (蒸留水に水酸化ナトリウムを加えて pH5.8~6.3 に調整したもの) 500ml の入った容器に入れ、振とう装置により 6 時間の連続振とうを行う。振とうの諸設定は、方向を水平方向、振とう幅 4cm、振とう回数約 200 回/分とする。振とう後、得られた試料液を 30 分静置し、孔径  $0.45\mu\text{m}$  のメンブランフィルターによりろ過し、硝酸を 1% 添加して、ろ液中のウラン量を ICP-MS により分析した。

### 2.2 試料の構成

#### (1) 炭素鋼

約 10 年間、 $\text{UF}_6$  に暴露された表面に  $\text{UF}_5\sim\text{UF}_4$  の中間フッ化物が付着している炭素鋼を希硫酸に浸透させ、表面を汚染した試料をグラインダーを用いて切削し、このとき生じる切粉を使用した。(Photo 2-3, Photo 2-4, Fig.2-2)

#### (2) 溶融スラグ

炭素鋼のウラン廃棄物に、ウラン濃度測定のトレーサーとしてさらにウランを添加し、溶融処理で発生したスラグ (Photo 2-5) を 5mm 以下に乳鉢で粉砕したものを使用した。なお、溶融処理に用いた炉は、耐火物溶融炉で溶融温度は約  $1550^\circ\text{C}$  である。

#### (3) セメント固化体

試験用に Table 2-1, 2-2 の配合でセメント固化体を作成した。セメントに混練するウラン廃棄物は、ウラン吸着剤として使用するフッ化ナトリウム (NaF) と転換プロセスから生じる廃液の中和処理から生じる中和澱物 (主成分は  $\text{CaF}_2$ ) を用いた。また、試料中のウラン量をパラメータとして、かつ、セメント量と廃棄物量の割合をほぼ一定とするため、ウラン等が吸着していない非放射性的 NaF および  $\text{CaF}_2$  と実廃棄物を混合して使用した。固化

後、材齢 7 日の供試体を電動ミルを用いて 5mm 以下に粉砕し、試験で使用した。

NaF を混練したセメント固化体には、試験パラメータが 10Bq/g と 50Bq/g になるよう、780Bq/g の実廃棄物を用い、100Bq/g のものには、7358Bq/g の実廃棄物を用いて調整した。(Table 2-1 , Photo 2-6)

中和澱物を混練したセメント固化体には、試験パラメータが 10Bq/g と 50Bq/g, 100Bq/g となるよう、3900Bq/g の実廃棄物を使って調整した。(Table 2-2 , Photo 2-7)

### 2.3 溶出試験手順

Fig. 2-3 に試験フローと分析フロー図を示した。

- (1) 試料作成・試料前処理 (粉砕等)
- (2) 試料のウラン量を計量, 試料計量
- (3) 蒸留水に水酸化ナトリウムを加えて pH 調整, 溶媒計量
- (4)-1 振とう試験用には, ポリエチレン製容器に溶媒と試料を充填する。
- (4)-2 ソックスレー試験用には, 試料を円筒ろ紙に入れ, フラスコに溶媒を入れる。
- (5)-1 振とう器に試料と溶媒を入れた容器をセットし, 6 時間振とうさせた後, 30 分静置
- (5)-2 ソックスレー抽出器に試料を入れた円筒ろ紙をセットし, 6 時間過熱をしながら抽出
- (6) ろ液の pH 測定
- (7) 孔径 0.45  $\mu$  m のメンブランフィルターを用いて, 吸引ろ過
- (8) 分析のため, 硝酸 1% 添加
- (9) ろ液中のウラン量を計量
- (10) その他イオン濃度等の分析

### 2.4 溶出率の定義

500ml の溶媒 (pH を調整した蒸留水) に対して, ろ液中にあるウラン量を, 試験で用いた試料中のウラン量で除したものである。

$$\text{溶出率} = \frac{\text{ろ液 500ml 中にあるウラン量}}{\text{試験で用いた試料中にあるウラン量(初期ウラン量)}} \quad \text{-----式 2.4-1}$$

### 3. 分析方法

#### 3.1 試料の成分分析

試料の成分分析を行うため、それぞれの試料に対して X 線回折による分析を行った。

使用機器は、(株)リガク製 Rota Flex で、機器測定条件は、管電圧 40kV、管電流 80mA、測定速度 4° /分、走査角度 3° ~70° とした。

#### 3.2 ウラン量の定量分析

試料のウラン量を定量するため、炭素鋼・溶融スラグはフッ酸や王水、ピロ硫酸カリウムなどで酸溶解した後、ICP-MS にてウラン量を分析した。また、セメント固化体に関しては、フッ酸溶解した後、ICP-AES(誘導結合プラズマ発光分光装置)にてウラン量を分析した。

使用した ICP-MS は、パーキンエルマージャパン社製 ELAN6100DRC 型で、ICP-AES は、日本ジャーレルアッシュ社製 ICAP-577 型である。

#### 3.3 ろ液中の各種イオンの定量分析

炭素鋼・溶融スラグについては、試料を構成する主要元素について着目し、試験後のろ液に含まれる、鉄イオンとクロムイオンの濃度を ICP-MS にて測定した。

セメント固化体については、実廃棄物に含まれる主要元素について着目し、試験後のろ液に含まれるフッ素イオン濃度をフッ素イオン計 (Thermo 社製 ORION 4 STAR) を用いて測定した。

## 4. 試験結果

### 4.1 試験結果の概要

試験結果を Table 4-1 に示す。ソックスレー試験ではろ液中のウラン量のごく微量であるため、ウラン溶出量を定量できないケースが多数発生している。このため、ケース間の比較検討等ができないため、以降の評価では、振とう法の結果のみを用いて評価・検討を行う。

振とう法による試験結果を式 2.3-1 で定義した「溶出率」を用いて評価した結果を Fig. 4-1 に示す。この結果から、各試料の溶出率は以下の通りになった。

- ①炭素鋼… $10^{-4} \sim 10^{-3}$ [g/g]
- ②熔融スラグ… $10^{-5} \sim 10^{-4}$ [g/g]
- ③セメント固化体(NaF)… $10^{-4} \sim 10^{-3}$ [g/g]
- ④セメント固化体(CaF<sub>2</sub>)… $10^{-8} \sim 10^{-7}$ [g/g]

また、振とう法による試験結果の特徴として、いずれのケースでも試験後の溶媒(ろ液)の pH が 9~13 程度に上昇している。

### 4.2 試験結果の妥当性

#### (1) ろ液中のウラン量分析結果(ICP-MS)の統計的評価

本試験では、ウラン量の定量分析を ICP-MS で行った。ICP-MS による分析結果の妥当性確認として、ここでは、まず、ろ液の測定強度とブランク試験との比較を行う。本試験では、ブランク試験(試料を入れずに溶媒だけの試験)も実施した。この試験液を ICP-MS でウラン量の定量分析を行った。これにより、本試験で用いた設備による影響、ICP-MS の影響を評価し、分析値の有意性について確認した。

その結果、Fig. 4-2 に示したように、振とう法においては、中和澱物を除いて測定強度(RSD; 相対標準偏差)がブランク試験での測定強度の平均より  $3\sigma$  高い値を取った(標準偏差:  $\sigma$ )。よって、これらの試料については十分な測定強度が得ており、これらは十分な信頼性を有しているものと判断した。また、中和澱物を混練したセメント固化体に関しては、測定強度が低く、ブランク試験での測定強度の平均+ $3\sigma$  に含まれてしまうため、ウラン量の溶出データの絶対値には信頼性がないものと判断した。ソックスレー法においては、NaF を混練したセメント固化体では十分な測定強度を得られたが、それ以外の対象物については、測定強度が不足し比較検討を行えなかった。

具体的には、Table 4-2 の値を用いて、ブランク試験の平均と標準偏差を計算し、ブランク試験における試験液の測定強度の平均+ $3\sigma$ (値は 3179)を超える値を有意な値とする。Fig. 4-2 から分かるように、評価対象データは全て、ブランク試験における平均値+ $3\sigma$  より高い値を得られており、振とう法における中和澱物以外の対象物については有意な値だと言える。測定強度と試験結果の有意性について、統計的なイメージを Fig. 4-3 に示した。

以上のことより、本報告書では、炭素鋼、熔融スラグ、セメント固化体(NaF)について

振とう法の結果について議論する。

## (2) 理論的評価と試験結果の比較

Table 4-3 に溶融スラグ、NaF 及び CaF<sub>2</sub> を混練したセメント固化体に含まれる主成分と想定されるウラン化合物の溶解度について、平衡計算ソフト PHREEQC<sup>9)</sup>の計算結果を示す。なお、炭素鋼については、主成分が鉄であるが、鉄は水に対して不溶解であることから評価は行っていない。

Fig. 4-4 に、溶解度の単位 [mol/l] に換算した値を示す。溶出率[g/g]は、500mlあたりのウラン 238 の質量濃度であるので、

$$\text{水 10あたりのウラン溶解度[mol/l]} = \frac{\text{ウランの質量濃度[g/g]} \times 2}{238}$$

となる。

さらに、ろ液中の各種イオン濃度を Fig.4-5～4-7 を示す。

Table 4-3 とろ液中の各種イオン濃度、およびセメント固化体の NaF, CaF<sub>2</sub> の配合率 (Table4-2, 3)より評価対象の試料の溶解度 (溶出特性) の特徴として、以下のことが言える。

### ①炭素鋼

Fig. 4-8 より、試験前の炭素鋼からは鉄しか検出されていない。したがって、分析結果からは、試料中に含まれる物質は鉄とウラン化合物ということになる。ここで、PHREEQCでの評価では鉄は水に対して不溶解(溶解度 0)であり、また、ウラン化合物の化学組成を UO<sub>2</sub> と想定すると、溶解度は 10<sup>-15</sup>mol/l程度と評価される。一方、溶出試験結果では 10<sup>-6</sup>mol/l程度となっており、大きな差異が生じている。これらの理由としては次のことが想定される。

本試験において用いた炭素鋼の試料は切断時の切子であり、粒径 2mm 程度の細粒である。したがって、空気と触れあう面積も広く、常温・常圧下でも容易に酸化鉄 (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) ができたと考えられる<sup>11)</sup>。Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の溶解度は 10<sup>-11</sup>mol/l程度であり、相対的には、水には溶けにくい物質であるが、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は、いわゆる赤さびであり、振動等により物理的に溶媒中に分散し、このとき、試料と同伴してウラン化合物も分散したことが想定される。

### ②溶融スラグ

Fig. 4-9 より、試験前の溶融スラグ中には、酸化鉄 (FeO) が含まれている。FeO の溶解度は、～10<sup>-5</sup>mol/l のオーダーであることから、ウランが FeO の溶解に伴って分散したと仮定すると、溶出試験結果と良く一致する。

### ③セメント固化体(NaF)

Fig. 4-10 より、試験前のセメント固化体中には、実廃棄物として混練した NaF がそのままの組成で含まれている。セメント固化体中のウランは、この NaF 成分に同伴してい



ると考える。セメント固化体中の NaF は全量で 0.9mol 入っており、NaF がセメント固化体中に均一に分布していると仮定すると、NaF が全体にしめる割合が 12%であることから、NaF 成分が溶媒に接触する面積比は、12%と評価される。このことから、溶媒に接触する NaF 濃度は  $0.9 \times 0.12 = 1.08 \times 10^{-1} \text{mol/l}$  となる。さらに、NaF の溶解度は、 $\sim 10^{-1} \text{mol/l}$  のオーダーである。以上の知見と試料中のウラン濃度を考慮すると、溶媒中への NaF の溶出に伴ってウラン化合物が分散したと考えると溶出試験結果と良く一致する。なお、溶媒への NaF の溶解度については、ろ液中のフッ素イオン濃度分析結果(Fig. 4-7)とも合致する。

### (3) 試験から求めた溶出率と飽和状態の関係性

Fig. 4-12 より、セメント固化体 (NaF) では試験前の試料のウラン含有量に依らず溶出率が一定となっている。仮に、ウラン溶出量が溶媒に対して平衡状態にあるとすると、溶媒中のウラン量が一定量になるため溶出率は変化し、試験データを説明できない。このことから今回の試験では、溶出率は平衡状態 (飽和状態) にはないものと考えられる。

また、Fig.4-5～4-7 の結果によると、炭素鋼、セメント固化体 (NaF, 中和澱物) は、構造材に含まれる鉄イオンやフッ素イオンの値が理論計算で求めた溶解度 (飽和状態) とオーダー的にはほぼ同等の値となっている。つまり、試料は絶えず溶け出ていることを示している。なお、スラグに関しては、鉄やクロムの溶出を阻害する物質が多いと考えられる。

### (4) pH 上昇の原因

#### ①炭素鋼

一般的に炭素鋼は不純物として微量のクロムを含有している<sup>12)</sup>。X線回折では測定できなかったが、試験後のろ液中からは  $1.0 \times 10^{-5} \text{mol}$  以上のクロムが検出されている。(Fig. 4-6) PHREEQC の計算より、 $9.0 \times 10^{-6} \text{mol}$  のクロムが存在するとき、pH は初期値を 6.0 とすると、8.4 に上昇する(Appendix 1)。これより少なくとも、試料中に  $1.0 \times 10^{-5} \text{mol}$  程度 Cr が存在するならば、試験結果が示している pH の上昇を説明できる。

これより、pH 上昇は起こりうる妥当な現象であると考ええる。

#### ②溶融スラグ

試験前試料の X線回折から FeO が存在することが解っている。 $1.0 \text{mol}$  の FeO が存在するとき、PHREEQC の計算によれば、pH は初期値を 6.0 とすると、計算結果では 9.3 になり(Appendix 2)、pH が上昇することを説明できる。

これより、pH 上昇は起こりうる妥当な現象であると考ええる。

#### ③セメント固化体

セメント中に含まれる石灰質が水と反応して水酸化カルシウムを生成するため、セメント固化体はアルカリ性を示すことは明らかである。

これより、pH 上昇は妥当な現象であると考ええる。

## 5. 溶出率の位置づけ

### 5.1 処分後の安全評価シナリオとの関係

処分後の安全評価シナリオには、地下水（基本）シナリオと変動シナリオがある。これらのシナリオを評価するために、処分場を「ソースタームモデル」、処分場の周りの土壌を「天然バリアモデル」、地下水移行先である河川や井戸水などを「生物圏モデル」とし、この3種類のモデルによって、最終的には被ばく量の評価をする。このうち、本溶出試験結果は「ソースタームモデル」(Fig. 5-1)での現象に適用することができる。本試験結果は、具体的には、ソースターム（処分場）から天然バリア（周りの土壌）に移行するウランの漏えい量 (Fig. 5-2) を示している。ただし、このことは定性的な位置づけであり、試験の厳密性等から、本試験結果をもってウランの漏えい量を定量的に評価できるものではない。

### 5.2 核種漏えい率定式との関係

いま、処分場全体の初期ウラン量を  $A_0(t=0)$  とすると、水の量が多ければ、 $t=t$  のときのウラン量を  $A(t)$  とおくと、以下の式が成り立つ。ここで、水の量が極端に少なければ、すぐ飽和して一定量しか溶けないので、右辺が定数となる。飽和していないことは、前述の 4.1.(3) から言えるので、漏えい率  $\eta$  という係数を持ちながら変化すると考えられる。

$$\frac{d}{dt}A(t) = -\eta A(t) \text{-----式 5.2-1}$$

この微分方程式を解くと ( $1 \gg \eta$ ),

$$A(t) = A_0 e^{-\eta t} \approx A_0 (1 - \eta t) \text{-----式 5.2-2}$$

となる。この式を図で表すと Fig. 5-3 になる。

水が  $P$  という浸透水量を持って処分場に入ってくると、全体のウラン量の  $P/H_w$  が入ってきた水の中に全溶解モデルだと  $A_0 \frac{P}{H_w} R_C t$  溶けだし、溶出率をもって溶け出すとすれば、 $A_0 \frac{P}{H_w} R_C \delta t$  だけ溶け出すと考えられる。よって、 $A(t)$  は次式のようになる。

$$A(t) = A_0 - A_0 \frac{P}{H_w} R_C \delta t = A_0 \left( 1 - \frac{P}{H_w} R_C \delta t \right) \text{-----式 5.2-3}$$

式 2 と式 3 を比較すると、 $\eta = \frac{P}{H_w} R_C \delta$  となる。ソースタームモデルにおける漏えい率  $\eta$

は全溶解モデルで、 $\eta = \frac{P}{H_w} R_C$  となる。本試験での溶出率  $\delta$  は、

$$\eta = \frac{P}{H_w} R_C \cdot \delta \text{-----式 5.2-4}$$

と考えられる。

本試験の結果は、核種漏えい率(式 5.2-4)の核種放出率 ( $R_C$ ) にかかる項(溶出率= $\delta$ )にあたると考えられる。

### 5.3 放射性廃棄物の形状とその関係

ウラン廃棄物は、その溶出特性との関係から「表面汚染」・「表面腐食汚染・浸透汚染」・「混在」の3種類に分けられる(Fig. 5-4)。表面汚染は、文字通り廃棄物の表面が付着等により放射性物質に汚染されているものをいう。よって、放射性物質と廃棄物は物理的・化学的に混ざっていない。表面腐食汚染・浸透汚染は、放射性物質が廃棄物の表面に入り込んで汚染された層ができる。その層において、放射性物質と廃棄物が混在している状態である。混在は、廃棄物中に均一に放射性物質が混ざっている状態である。

表面腐食汚染・浸透汚染と混在では、放射性物質と廃棄物が混ざっており、廃棄物(母材)の溶解が全体の溶解を支配する場合が考えられる。本試験における炭素鋼、熔融スラグが表面腐食汚染・浸透汚染にあたる。また、混在は、ウランが母材と混ざり合っていると考えられる。

また、水への分散事象には、物理的に母材等が剥がれるような場合も想定される。その場合は、水に溶けてはいないが、物質自身が浮遊、又は沈殿するような状態である。土壌での移行の仕方は、イオン等とは違い、抵抗が大きいため吸着分配係数は大きくなると考えられる。しかしながら、物質自体が処分場に有姿であるよりも処分場の外に出やすい形であるので、粒径が大きくても、安全評価上考慮しなければならない。このように、溶出試験では、イオンになって溶けている場合はもちろんのこと、コロイド状で溶媒に存在する場合、コロイドより粒径が大きい形に物質が入り込んでいる場合など様々な分散状態が考えられる。

### 5.4 母材(廃棄物)とウラン化合物の溶解度との関係

本報告書で定義した溶解度 $\delta$ は、廃棄物の主な構造材やウラン化合物などの溶解度と浸透水量により、4パターンに分類される。したがって、ウラン化合物の溶解度(溶出率)と母材の溶解度(溶出率)の評価が必要となる。イオン等の形で溶けている場合、溶出率 $\delta$ は「廃棄物(母材)の溶解度>ウラン化合物溶解度の場合( $\delta_{md}$ )」と「廃棄物(母材)の溶解度<ウラン化合物溶解度の場合( $\delta_{ud}$ )」に場合分けをする必要があり、それぞれ、式5.4-1、式5.4-2に定義される。

$$\delta_{md} = V_m \cdot C_u \quad \dots \dots \text{式 5.4-1}$$

$$\delta_{ud} = V_u \quad \dots \dots \text{式 5.4-2}$$

$V_m$ =廃棄物(母材)溶解度 (mol/l/y)

$C_u$ =廃棄物(母材)中のウラン化合物存在比(-)

$V_u$ =ウラン化合物溶解度 (mol/l/y)

本試験では6時間当たりの溶出量をもって溶出率を定めた。よって、溶出率は時間ユニットを含む形となる。しかしながら、処分場浸透水量が十分少なく水中の廃棄物・ウラン化合物濃度が平衡状態になる場合には時間ユニットが不要となり(mol/l)となる(Fig. 5-5)。これは、廃棄物の溶解度を示す。

ウラン化合物の溶解度は、PHREEQCの計算等により非常に低いことが分かっている。

それに対して、本試験で求めた溶出率はウラン化合物の溶解度より大きい。つまり、母材の溶解度が支配的になっていると考えられる。

また、試験結果から、上述した  $\delta_{md}$  が求められることがわかった。したがって、この値は試料中に含まれるウラン化合物量に依存した値である。

## 5.5 適用範囲

ウラン化合物の溶出形態を考慮にいたしたウラン系廃棄物の特徴分類と溶出試験との関係を Fig. 5-6 に示す。

ウラン化合物の溶出形態を考えた場合、まず、廃棄物中のウラン状態により、「表面汚染」、「表面腐食汚染・浸透汚染」、「混在」に分類する必要がある。次に、廃棄物(母材)とウラン化合物の溶解度の大小関係による区分が必要になる。さらに、試験時の試料と溶媒(水)の割合(=処分場浸透水量)により、溶媒中のウラン化合物濃度が平衡状態にあるか否かにより区分される。処分場への降水量が多ければ、それだけ水に対するウラン化合物の濃度が平衡になるのに時間がかかる。また、処分場の性質上、そのまま処分場に浸透水が留まるとは考えにくい。つまり、十分水の量があれば、濃度が平衡状態になる前に水が土壌へ移行していくということになる。逆に水の量が少ない場合は、多い場合に比べて濃度が高くなると考えられ、平衡に近い値になると想定される。このように、試験結果は降水量にも依存するので、降水量の多寡でも場合分けが必要となる。

本試験で用いた試料は「混在」及び「表面腐食汚染・浸透汚染」に類似し、「廃棄物(母材)溶解度 > ウラン化合物溶解度」の関係あり、また、溶媒中のウラン化合物濃度は、いずれの試験も非平衡状態であった。条件が制限されるが、この範囲において本試験で求めた溶出率等は、ウラン廃棄物の溶出特性評価に適用できると考えられる。

## 6. まとめ

ウラン廃棄物は、その溶出特性により 3 種類に分類される。ウランが物理的に吸着しているような「表面汚染」やウランが廃棄物の母材に浸透している「表面腐食汚染・浸透汚染」、さらにセメントとスラッジなどのウラン廃棄物を混ぜ合わせることによって、ある程度ウランが均等に母材の中に混ざっている「混在」の 3 種類である。

「表面汚染」では、主に物理的な吸着であるので、溶出の特性としても、物理的にウランが水へ分散していくと考えられる。「表面腐食汚染・浸透汚染」や「混在」では、母材そのものが水に溶け出すのに伴って、ウランが溶出していると考えられる。

処分場から溶出するウラン量の評価については、上記のウラン廃棄物の分類だけではなく、降水量の多寡も重要となる。実際のトレンチ処分場などでは、雨水が長い間留まるわけではなく、地中に分散していくと考えられる。降水量が多ければ、ウランの水への溶解度から、ウランの溶出が平衡状態になる前に、雨水が地中に分散していくことが推定できる。今回行った試験結果では、ウランの溶出が平衡にならなかったもので、振とう法を用いる試験では、地中へ雨水が分散していく事象についての評価ができると考えられる。

また、ウランが水を介してソースタームから天然バリアに移行する分散現象は、コロイド状態になるなど、必ずしもイオンの形になっているわけではないということも示された。過去の実験や理論計算等の溶解度に比べて、今回の試験では溶出量が多いものがあった。つまり、ウランは水に溶けるだけでなく、他の要因によっても水中に存在するということである。

以上のことより、廃棄物を構成する材質とそこに含まれるウランの化学形態及び形状・雨水の量が溶出試験において重要なファクターとなり、ウラン廃棄物からの核種(ウラン)漏えい率を厳密に評価しようとするならば、これらのファクターを考慮した溶出試験を行う必要がある。

## 謝辞

本試験を実施するにあたって、協力や支援をしていただいた人形峠環境技術センター環境保全技術開発部環境保全課並びに遠心機処理技術課に感謝する。また、核燃料サイクル工学研究所環境技術管理部村田雅人氏の協力に感謝する。

## 参考文献

- 1) 環境庁告示 13 号: "産業廃棄物に含まれる金属等の検定方法", 1973.2.17 公布, 2000 改正
- 2) 環境庁告示 46 号: "土壌の汚染に係る環境基準について", 1991.8.23 公布, 2010 改正
- 3) 上本道久(監修), 日本分析化学会関東支部(編集): "ICP 発光分析・ICP 質量分析の基礎と実際—装置を使いこなすために", オーム社, 2008
- 4) 武田聖司, 渡邊 正敏, 澤口拓磨, 佐々木利久, 落合透, 木村 英雄: "TRU 核種を含む放射性廃棄物及びウラン廃棄物のトレンチ処分に対する濃度上限値の評価", JAEA-Research, 2008
- 5) 宮本泰明, 山中智弘, 青山誠, 高橋邦明, 須藤收: "溶融除染技術評価報告書", JNC TN8400 2003-044
- 6) 日本原子力研究開発機構地層処分研究開発部門: 熱力学データベース, <http://migrationdb.jaea.go.jp/>, 2010
- 7) 原子力安全委員会, "低レベル放射性固体廃棄物の埋設処分に係る放射能濃度上限値について", 2007
- 8) 原子力安全委員会, "低レベル放射性廃棄物埋設に関する安全規制の基本的考え方", 2007
- 9) C.A.J. Appelo: "Hydrochemical Consultant", <http://www.xs4all.nl/~appt/>, 2010
- 10) Royal Society of Chemistry, "Classic Kit: Soxhlet extractor", <http://www.rsc.org/>, 2010
- 11) 長倉三郎: 酸化鉄, "岩波理化学辞典", 第 5 版, 岩波書店, 1999
- 12) JIS G 4051: "機械構造用炭素鋼鋼材", 2005

Table 1-1 Segregation of waste from Ningyo-Toge

分類	品名	収納容器			
		内容器	外容器		
固 体	可燃性	紙, 布, 木片	カートンボックス(桃色)	ドラム缶	
		フィルタ (減重率10%以下)	厚手ポリ袋等で梱包後, ダンボール箱に梱包	コンテナ	
	難燃性	1	ゴム類	カートンボックス(黄緑色)	ドラム缶
		2	ポリエチレン類, プラスチック類, 皮革, 樹脂類(吸着樹脂を除く), ガスケット, めくれウエス類, 難燃ベニヤ, 酢酸ビニル, 布テープ, 半面マスクのフィルタ(ゴム類を除く)	カートンボックス(黄緑色) 厚手ポリ袋等で二重梱包	ドラム缶
		3	木枠フィルタ <sup>4)</sup>	カートンボックス(黄緑色) 厚手ポリ袋等で二重梱包	ドラム缶 コンテナ
		4	塩ビ類	カートンボックス(灰色) 厚手ポリ袋等で二重梱包	ドラム缶 ケミカルドラム缶 <sup>6)</sup>
		5	テフロン, FRP, その他 <sup>6)</sup>	カートンボックス(青色) 厚手ポリ袋等で二重梱包	ドラム缶 ケミカルドラム缶
	不燃性	1 (金属類)	鉄材, 被覆材のある電線, 金属性廃棄機器及び部品, 半面マスクフィルタ(金属製のみ)	厚手ポリ袋等で梱包	ケミカルドラム缶 コンテナ等 <sup>4)</sup>
		2 (フィルタ類)	各種非気系フィルタ(木枠フィルタを除く)	厚手ポリ袋等で梱包	ケミカルドラム缶
		3 (澱物類)	スラッジ類, 薬品で沈殿させた澱物, プレコート剤	厚手ポリ袋等で梱包	ケミカルドラム缶
		4 (その他)	保温材, ガラス類, 構築物解体材, 耐火物類 (その他)	厚手ポリ袋等で梱包	ケミカルドラム缶 (焼却灰及び使用済みNaFペレット <sup>8)</sup>
			NaFペレット, 活性アルミナ, 流動媒体(アルミナ), 焼却灰, 吸着樹脂, (その他)	厚手ポリ袋等で梱包	は, SUS製ケミカルドラム缶を使用
	*15 (アルミ材)	アルミ製の廃棄機器及び部品等	厚手ポリ袋等で二重梱包	ドラム缶	

液体	可燃性	1	アセトン, 分析廃溶媒(アセトン, アルコール, エーテル, MIBK, TNOA, n-ヘキサン, ケロシン)	ケミカルドラム缶 ①100ℓまたは200ℓの容器に収納のこと。(ただし, 廃棄物貯蔵庫で保管する場合は, 200ℓの容器とする。) ②品名ごとに別々の容器に収納のこと。
		2	廃溶媒(ケロシン+TNOA+アルコール), 軽油	
		3	高真空オイル, 機械油, ギヤオイル, タービン油, グリース <sup>※</sup>	
	不燃性	フッ素油, トリクレン, クロロホルム, 四塩化炭素		

Table 1-2 Chemical forms of uranium compounds from the sludge in Ningyo-toge

	主成分	ウランの化学形態
	分析結果	分析, 工程・文献等による予測
転換系澱物	CaF <sub>2</sub> , Ca(OH) <sub>2</sub> , NaCl, CaSO <sub>4</sub> , CaCl <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub> , U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> , UO <sub>4</sub> , Na <sub>2</sub> U <sub>2</sub> O <sub>7</sub> , UO <sub>2</sub> (OH) <sub>2</sub>
NaF	NaF	NaUF <sub>6</sub> , Na <sub>3</sub> UF <sub>6</sub> , Na <sub>2</sub> UF <sub>8</sub>
珪藻土	SiO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
アルミナ吸着剤	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , AlF <sub>3</sub>	UO <sub>4</sub> , UO <sub>3</sub>
MgF <sub>2</sub>	MgF <sub>2</sub>	UO <sub>4</sub> , UO <sub>3</sub>

Table 2-1 Mix ratio of cement and NaF

試料No.	水[g]	セメント [g]	NaF[g] (非放射性)	NaF(実廃棄物)		合計[g]	放射能濃度
				NaF[g]	放射能 [Bq/g]		
NaF10	90.6	190.7	34.0	4.1	780	319.4	10.0
NaF50	90.6	190.7	17.6	20.5	780	319.4	50.1
NaF100	90.6	190.7	33.8	4.3	7358	319.4	99.1
重量%	28%	60%	12%			100%	

Table 2-2 Mix ratio of cement and sludge from neutralization

試料 No.	水[g]	セメント [g]	CaF <sub>2</sub> [g] (非放射性)	中和澱物(実廃棄物)		合計[g]	放射能濃度
				中和澱物[g]	放射能 [Bq/g]		
TD10	63.36	133.34	121.44	0.82	3900	318.96	10.03
TD50	63.36	133.34	118.16	4.1	3900	318.96	50.13
TD100	63.36	133.34	114.06	8.2	3900	318.96	100.3
重量%	20%	42%	38%			100%	



Table 4-1 Result of the test

試料名	試料No.	溶出装置	試料重量	試料中のU量	溶媒量 ml	溶媒のpH (溶出前)	溶媒のpH (溶出後)	U溶出濃度 (分析値)	溶出U量 (分析値)	測定強度	溶出率	溶出率
			g	mgU		-	-	ppb	mgU/500ml			
ブランク	B-1	ソックスレー	-	-	500	5.90	11.21	0.0604	3.0E-05	1878	-	-
	B-A	振とう	-	-	500	5.90	6.03	0.0744	3.7E-05	1801	-	-
炭素鋼	Fe-1	ソックスレー	50.09	0.566	501	5.90	11.28	0.1251	6.3E-05	3331	-	-
	Fe-2		50.20	0.567	502		11.16	-	-	768	-	-
	Fe-3		50.50	0.571	505		11.33	-	-	485	-	-
	Fe-4		50.08	0.566	501	10.72	0.0626	3.1E-05	2343	-	-	
	Fe-5		50.42	0.570	504	5.89	10.77	0.2355	1.2E-04	5074	-	-
	Fe-6		50.44	0.570	504		10.65	0.0547	2.8E-05	2218	-	-
	Fe-A	振とう	50.56	0.571	506	5.89	8.87	0.2631	1.3E-04	6188	2.3E-04	1.1E-09
	Fe-B		50.01	0.565	500		8.84	0.4750	2.4E-04	9658	4.2E-04	2.0E-09
	Fe-C		49.94	0.564	499		8.82	0.4932	2.5E-04	9955	4.4E-04	2.1E-09
熔融スラグ	S-1	ソックスレー	50.01	1.67	500	5.97	11.09	-	-	221	-	-
	S-2		50.00	1.67	500		11.29	-	-	297	-	-
	S-3		50.01	1.67	500		11.01	-	-	209	-	-
	S-4	振とう	49.99	1.67	500	5.97	9.92	0.1869	9.3E-05	5289	5.6E-05	7.9E-10
	S-5		50.00	1.67	500		9.90	0.2356	1.2E-04	6167	7.0E-05	9.9E-10
	S-6		50.00	1.67	500		9.89	0.3028	1.5E-04	7377	9.0E-05	1.3E-09
セメント固化物 (NaF 10Bq)	NaF-10-1	ソックスレー	50.01	22.5	500	5.90	13.37	313.307	1.6E-01	496307	7.0E-03	1.3E-06
	NaF-10-2		50.02	22.5	500		13.36	260.4867	1.3E-01	419783	5.8E-03	1.1E-06
	NaF-10-4	振とう	50.08	22.5	501	5.90	13.18	47.8999	2.4E-02	88210	1.1E-03	2.0E-07
	NaF-10-5		50.12	22.6	501		13.14	38.5742	1.9E-02	71410	8.6E-04	1.6E-07
	NaF-10-6		50.10	22.5	501		13.10	13.4672	6.7E-03	26182	3.0E-04	5.7E-08
セメント固化物 (NaF 50Bq)	NaF-50-1	ソックスレー	50.03	67.0	500	5.90	13.35	338.344	1.7E-01	535860	2.5E-03	1.4E-06
	NaF-50-2		50.07	67.1	501		13.38	448.733	2.2E-01	710249	3.4E-03	1.9E-06
	NaF-50-4	振とう	50.15	67.2	502	5.99	13.06	76.1024	3.8E-02	139015	5.7E-04	3.2E-07
	NaF-50-5		50.09	67.1	501		13.09	87.8277	4.4E-02	160137	6.6E-04	3.7E-07
	NaF-50-6		50.07	67.1	501		13.08	78.3257	3.9E-02	143020	5.8E-04	3.3E-07
セメント固化物 (NaF 100Bq)	NaF-100-1	ソックスレー	50.01	184.0	500	5.90	13.37	-	-	-	-	-
	NaF-100-2		50.01	184.0	500		13.36	-	-	-	-	-
	NaF-100-4	振とう	50.04	184.1	500	6.03	13.17	340.8196	1.7E-01	615882	9.3E-04	1.4E-06
	NaF-100-5		50.05	184.2	501		13.19	325.5722	1.6E-01	588415	8.9E-04	1.4E-06
	NaF-100-6		49.99	184.0	500		13.19	322.6913	1.6E-01	583225	8.8E-04	1.4E-06
セメント固化物 (中和藏物 10Bq)	TD-10-1	ソックスレー	50.01	27.51	500	5.90	12.44	-	-	-	-	-
	TD-10-2		50.10	27.56	501		12.37	-	-	-	-	-
	TD-10-4	振とう	50.09	27.55	501	5.88	12.73	-	-	-	-	-
	TD-10-5		50.11	27.56	501		12.74	-	-	-	-	-
	TD-10-6		50.06	27.53	501		12.71	-	-	-	-	-
セメント固化物 (中和藏物 50Bq)	TD-50-1	ソックスレー	50.16	98.31	502	6.00	12.33	-	-	-	-	-
	TD-50-2		50.04	98.08	500		12.24	-	-	-	-	-
	TD-50-4	振とう	50.08	98.16	501	6.00	12.76	-	-	-	-	-
	TD-50-5		50.08	98.16	501		12.70	-	-	-	-	-
	TD-50-6		50.16	98.31	502		12.72	-	-	-	-	-
セメント固化物 (中和藏物 100Bq)	TD-100-1	ソックスレー	50.00	203.0	500	5.90	12.18	-	-	-	-	-
	TD-100-2		50.00	203.0	500		12.19	-	-	-	-	-
	TD-100-4	振とう	50.00	203.0	500	5.90	12.79	-	-	-	-	-
	TD-100-5		49.99	203.0	500		12.71	-	-	-	-	-
	TD-100-6		50.01	203.0	500		12.74	-	-	-	-	-

Table 4-2 Measured intensity of filtrate on shaking test

測定強度	B.G.	鉄	溶融スラグ	セメント固化物				
				NaF			中和物	
				10Bq	50Bq	100Bq	10Bq	100Bq
ケース1	1801	6188	5289	88210	139015	615882	44	103
ケース2	399	9658	6167	71410	160137	588415	-	-
ケース3	709	9955	7377	26182	143020	583225	-	-

Table 4-3 Calculation result of solubility by PHREEQC

構造物			ウラン化合物	
種類	pH, pe	溶解度 [mol/l]	種類	溶解度[mol/l]
溶融スラグ FeO	pH =7.0 ⇒ pH=9.321 pe=0.0 ⇒ pe=-6.353	0.0000132	UO <sub>2</sub>	1.69E-15
			U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	8.09E-15
			Na <sub>2</sub> U <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	7.71E-05
			UO <sub>2</sub> (OH) <sub>2</sub>	6.57E-06
セメント 固化体 NaF	pH =7.0 ⇒ pH=8.549 pe=0.0 ⇒ pe=8.982	0.87	Na <sub>2</sub> UO <sub>2</sub> F <sub>5</sub>	-
			NaUF <sub>6</sub>	-
			Na <sub>3</sub> UF <sub>6</sub>	-
			Na <sub>2</sub> UF <sub>8</sub>	-
セメント 固化体 (中和物) CaF <sub>2</sub>	pH =7.0 ⇒ pH=7.076 pe=0.0 ⇒ pe=10.426	0.000147	UO <sub>2</sub>	1.69E-15
			U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	8.09E-15
			Na <sub>2</sub> U <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	7.71E-05
			UO <sub>2</sub> (OH) <sub>2</sub>	6.57E-06

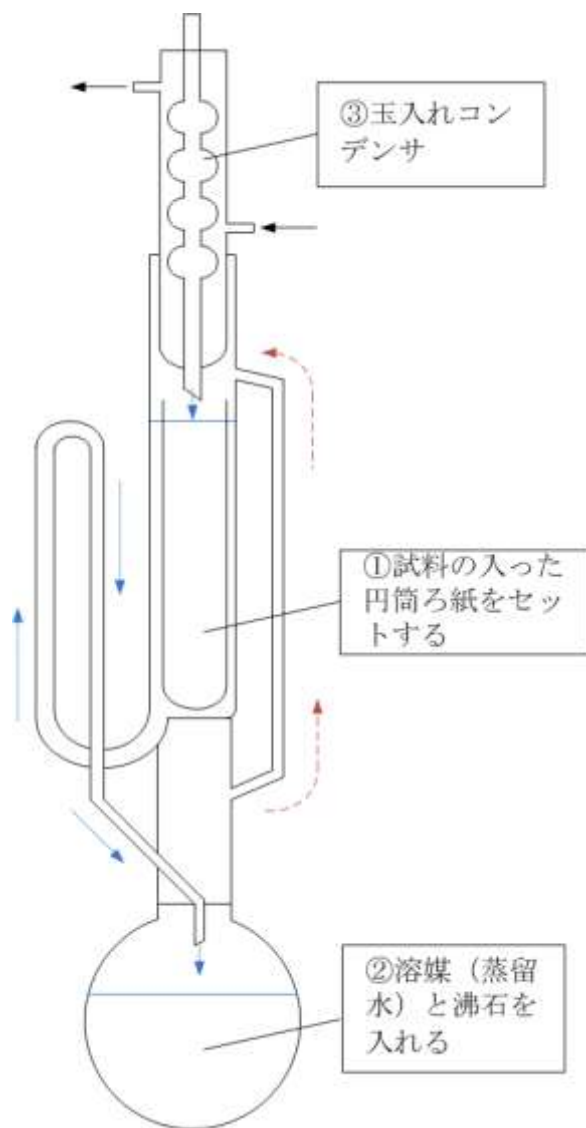


Fig. 2-1 Structure of Soxhlet extractor

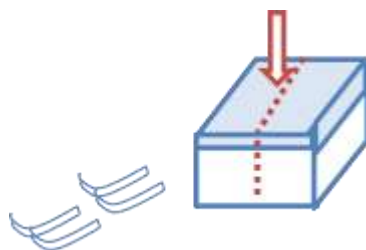


Fig. 2-2 Chips produced by cutting polluted surface

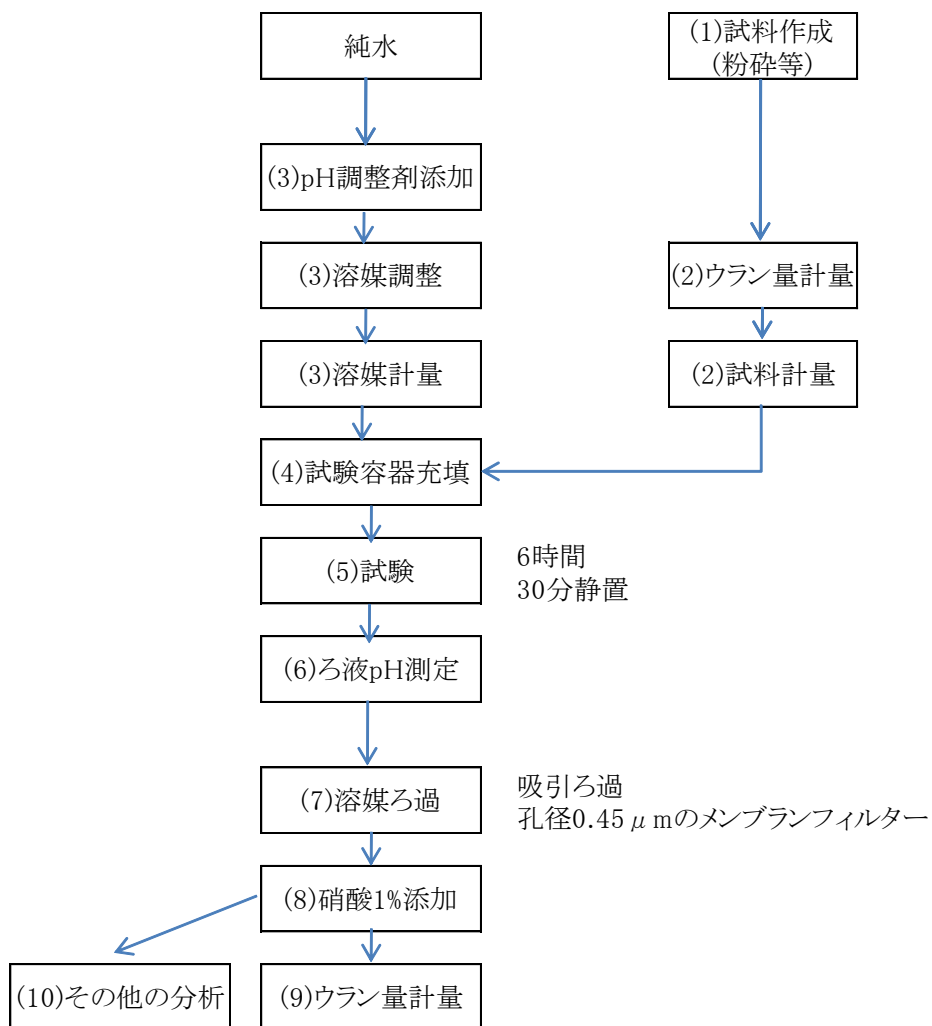


Fig. 2-3 Flow of the test and analysis

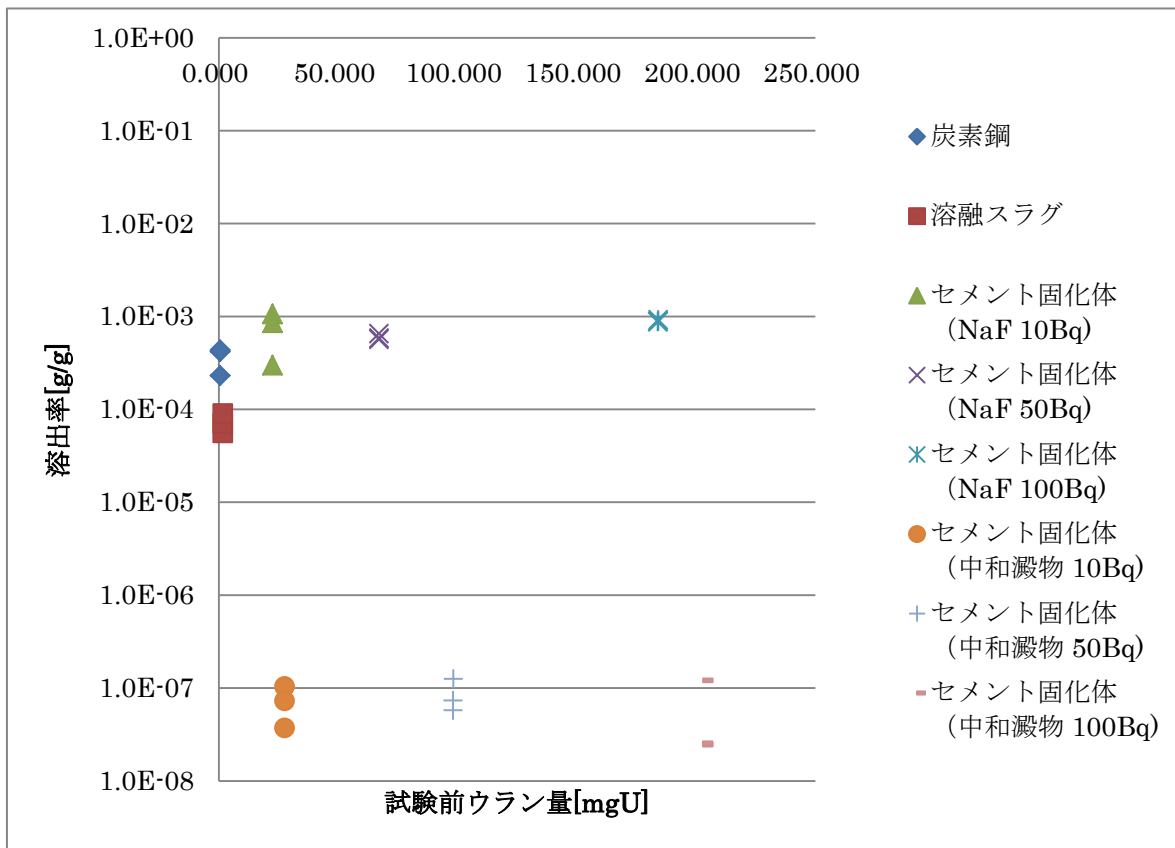


Fig. 4-1 Uranium quantity versus elution rate

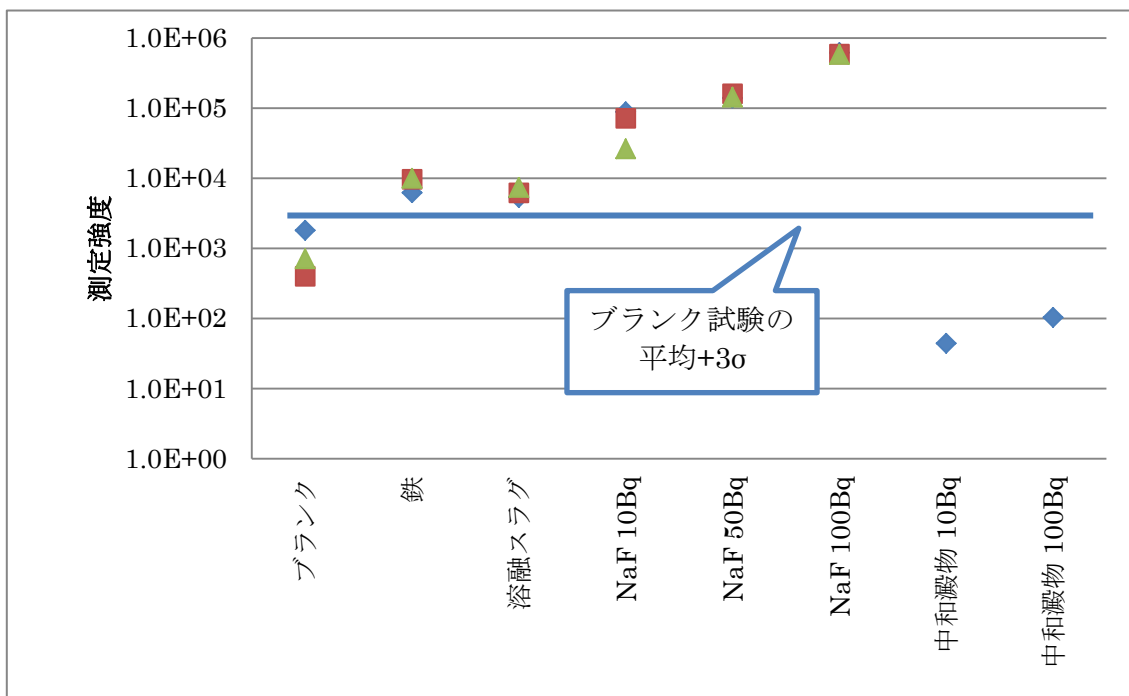


Fig. 4-2 Evaluation of measured intensity

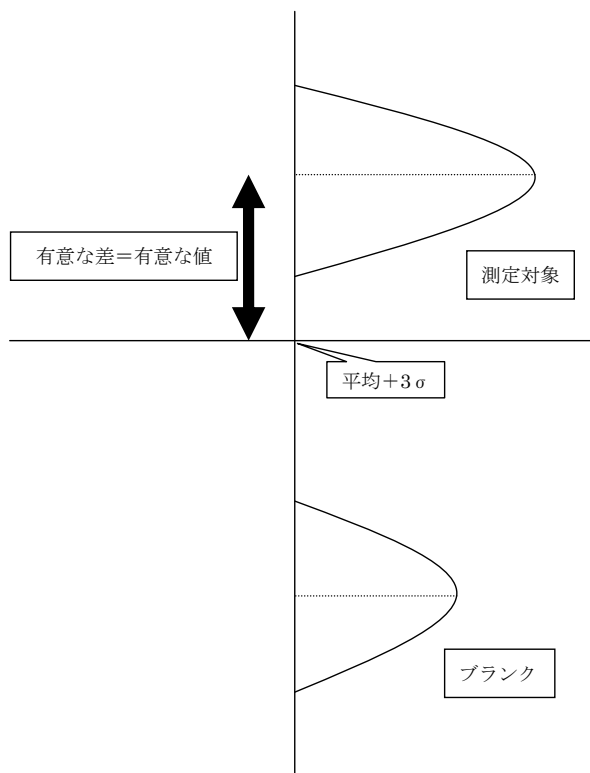


Fig. 4-3 Statistical significance of measured intensity and result on the tests

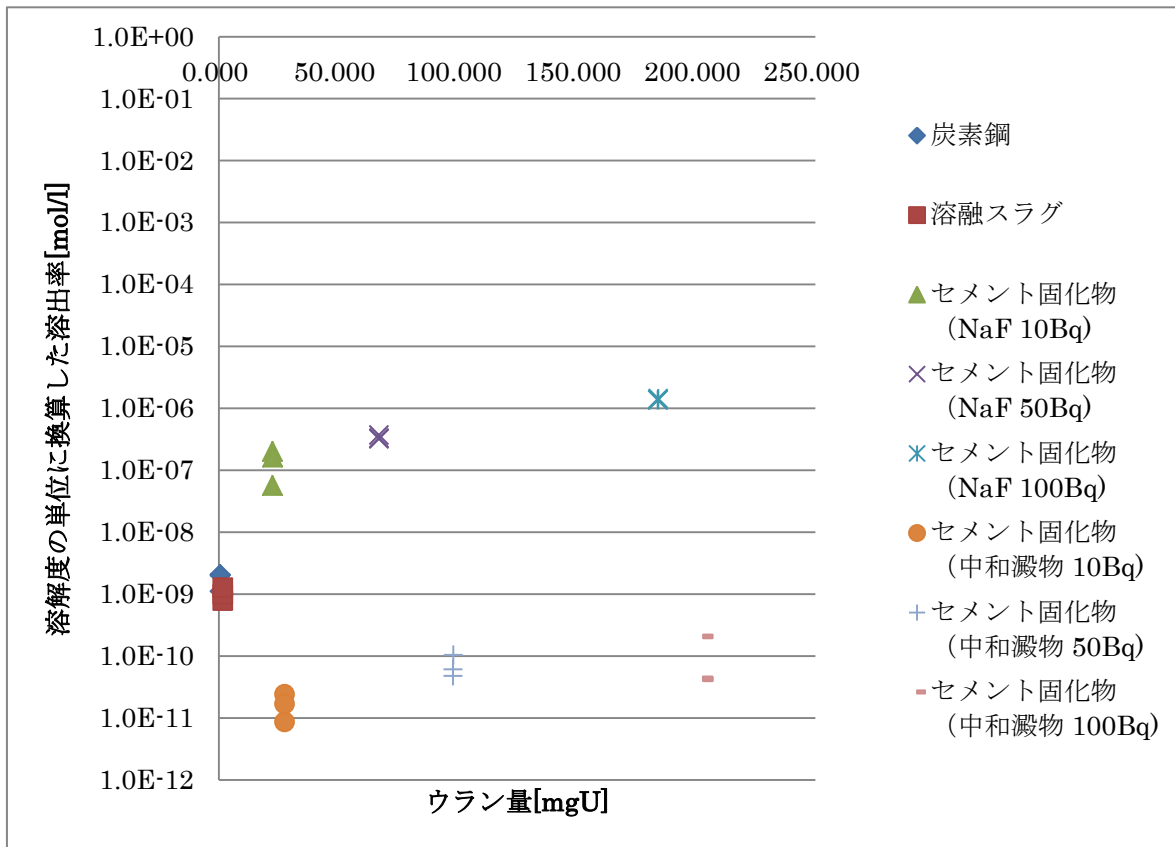


Fig. 4-4 Initial uranium quantity versus solubility [mol/l]

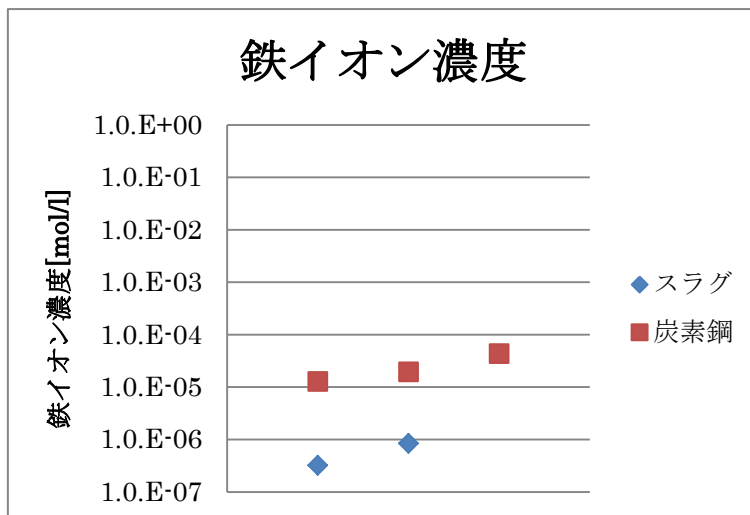


Fig. 4-5 Iron ion concentrations

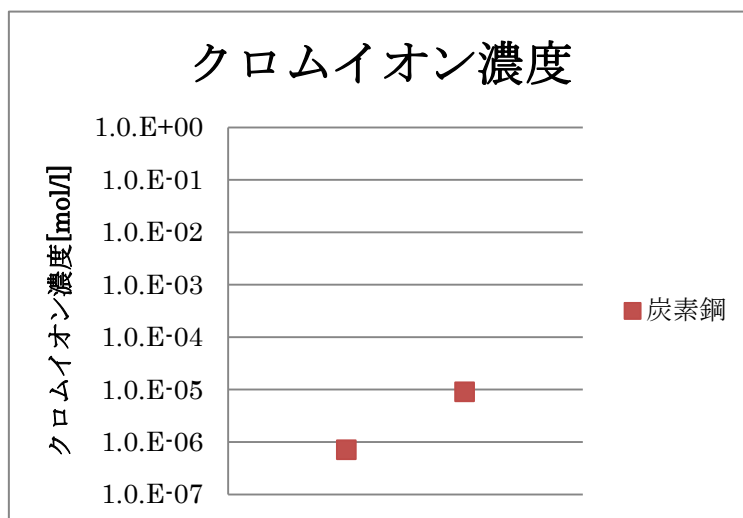


Fig. 4-6 Chrome ion concentrations

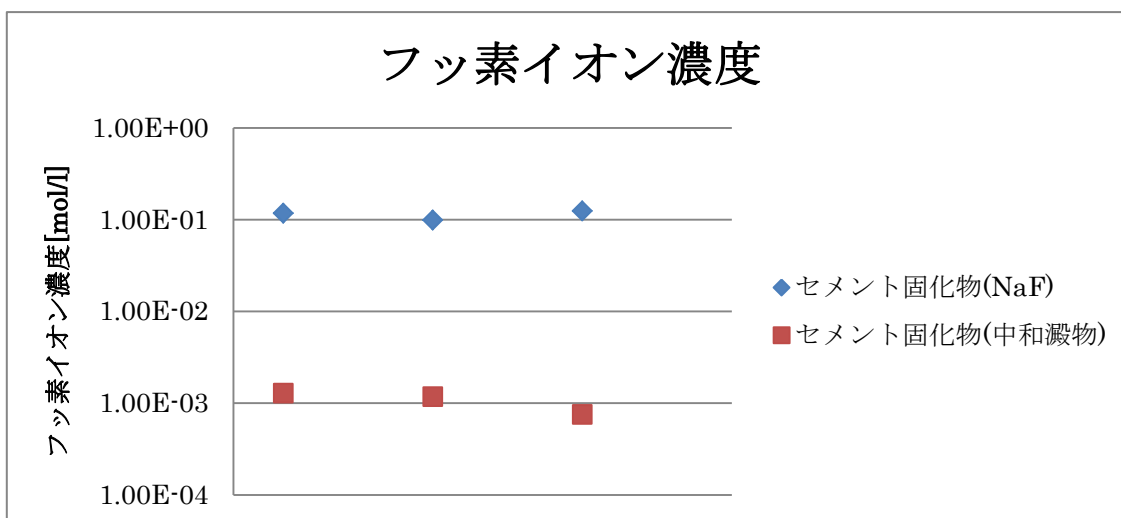


Fig. 4-7 Fluorine ion concentrations

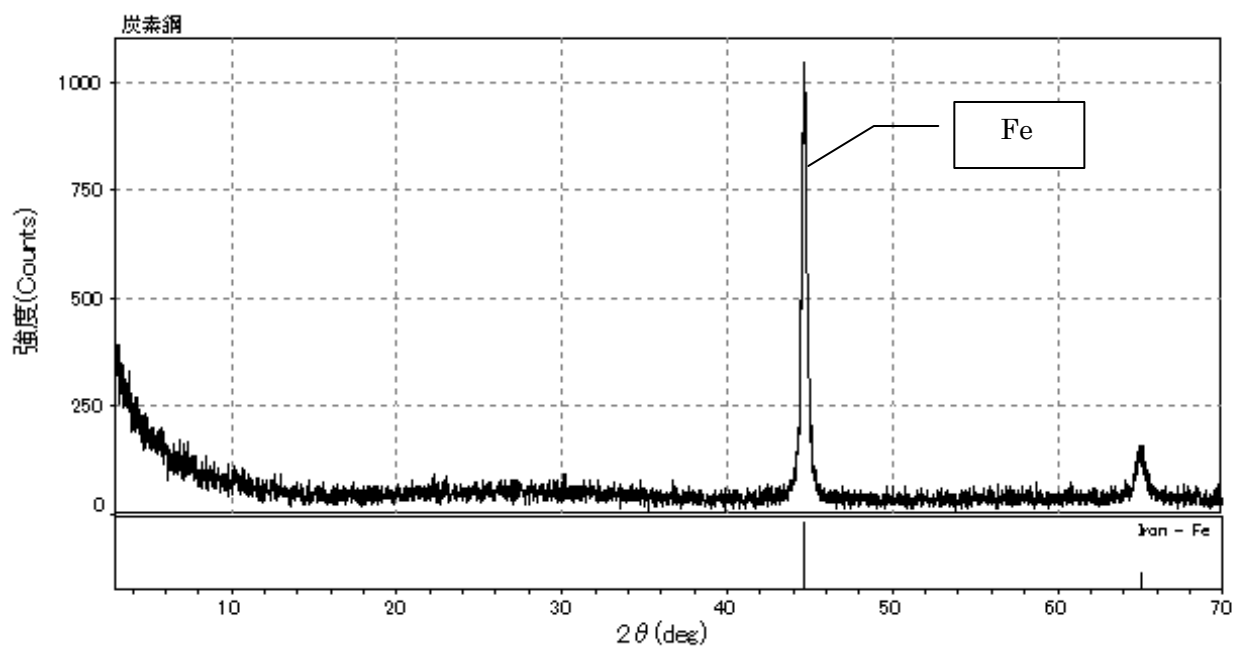


Fig. 4-8 XRD chart of carbon steel  
(It was detected only iron.)

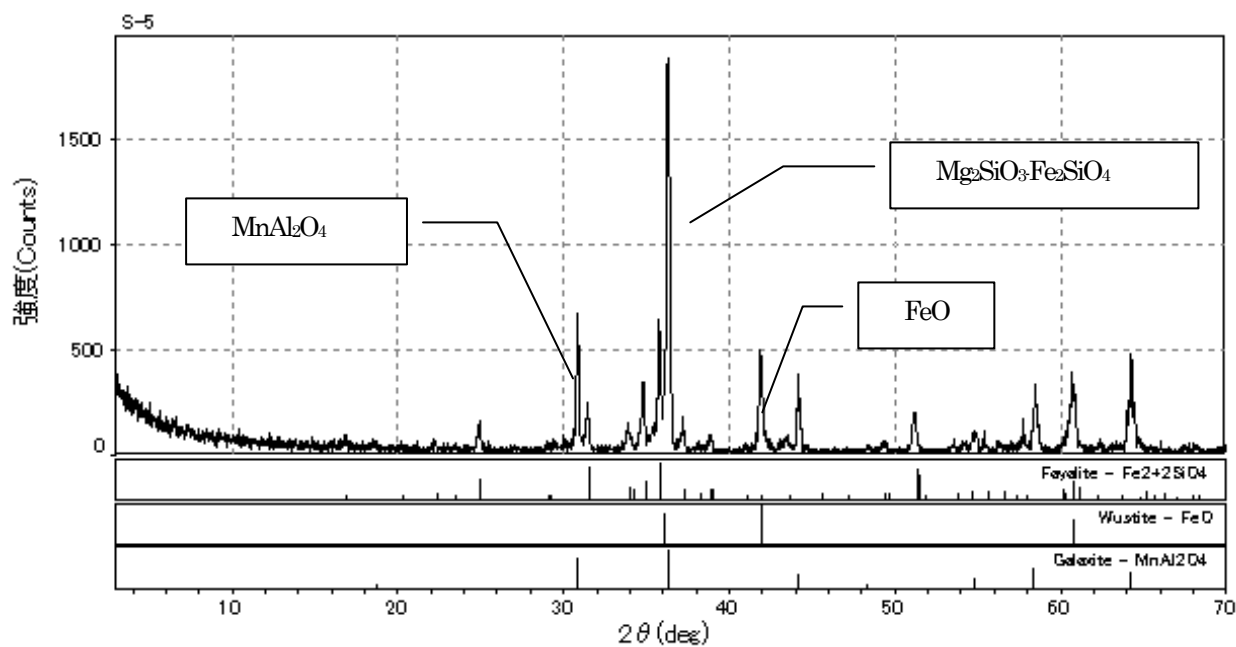


Fig. 4-9 XRD chart of molten slag  
(It was detected Olivine (Mg<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>-Fe<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>), Galaxite (MnAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>), and Wustite (FeO).)



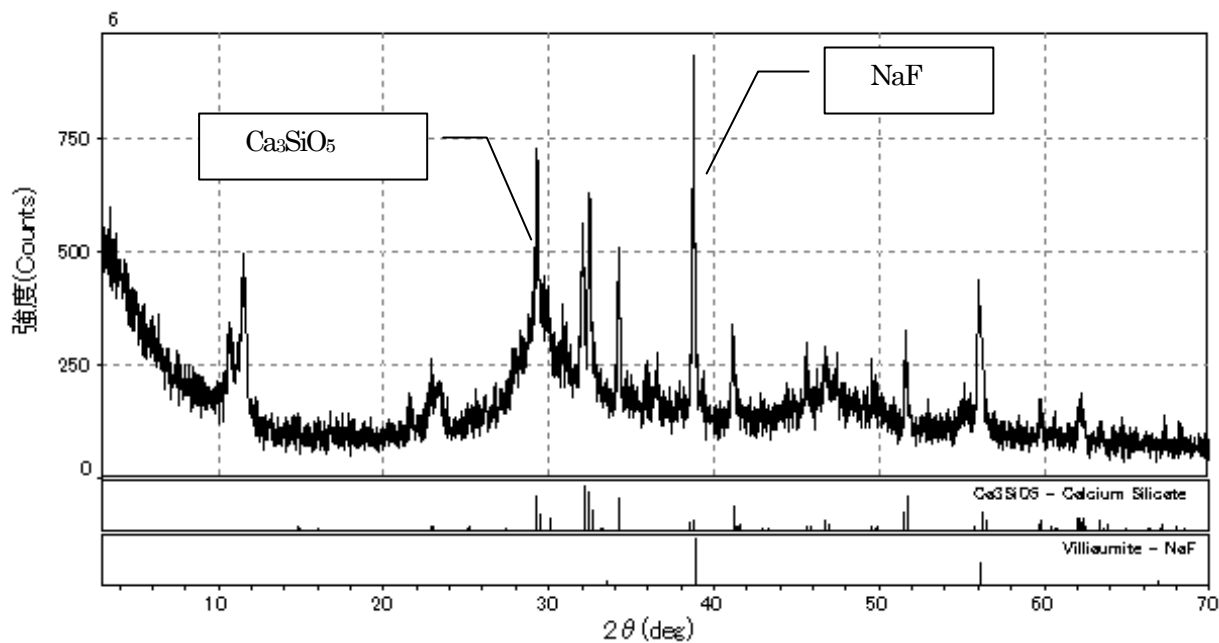


Fig. 4-10 XRD chart of cement composites included NaF  
 (It was mainly detected  $\text{Ca}_3\text{SiO}_5$  and NaF.)

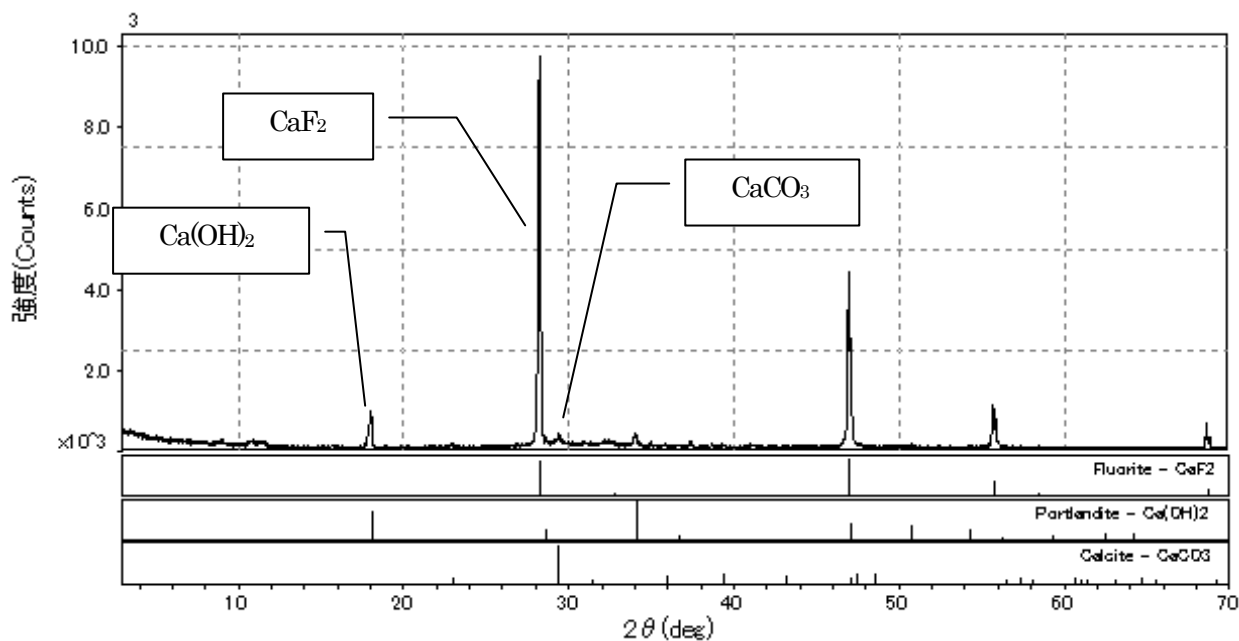


Fig. 4-11 XRD chart of cement composites included sludge from neutralization  
 (It was detected  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{Ca(OH)}_2$ .)

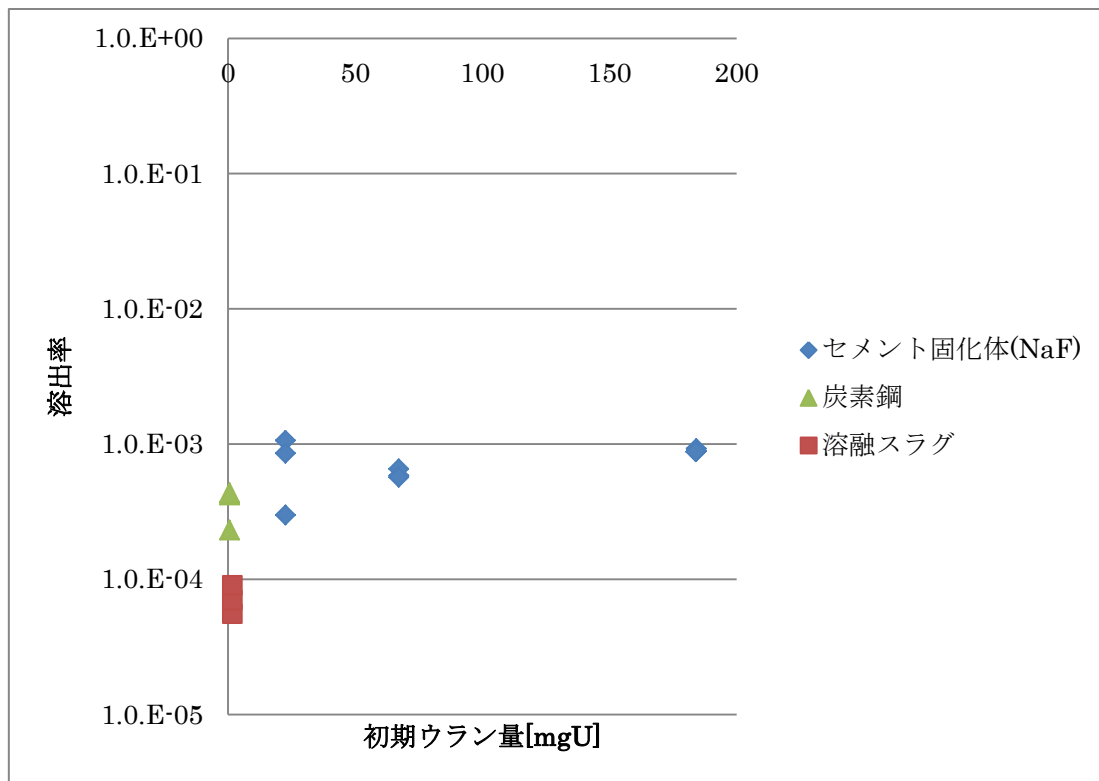


Fig. 4-12 Correlation between initial quantity of uranium and solubility

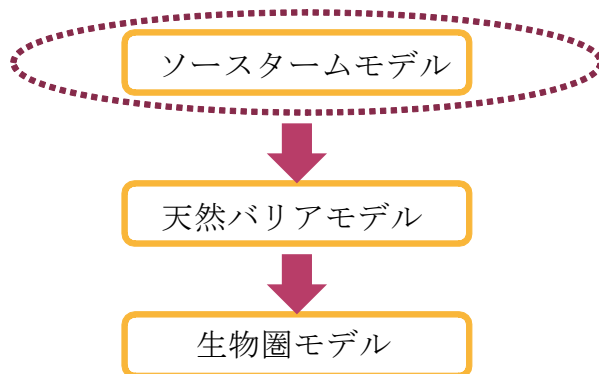


Fig. 5-1 Scenario of safety assessment model for disposal

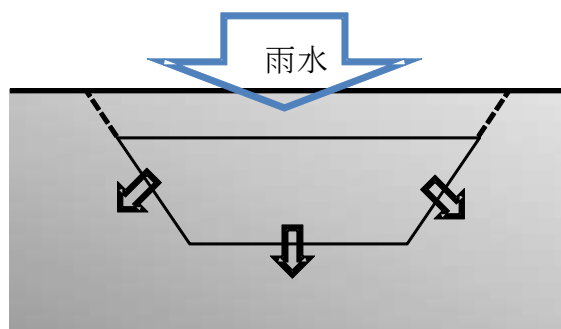


Fig. 5-2 Source term model for the disposal

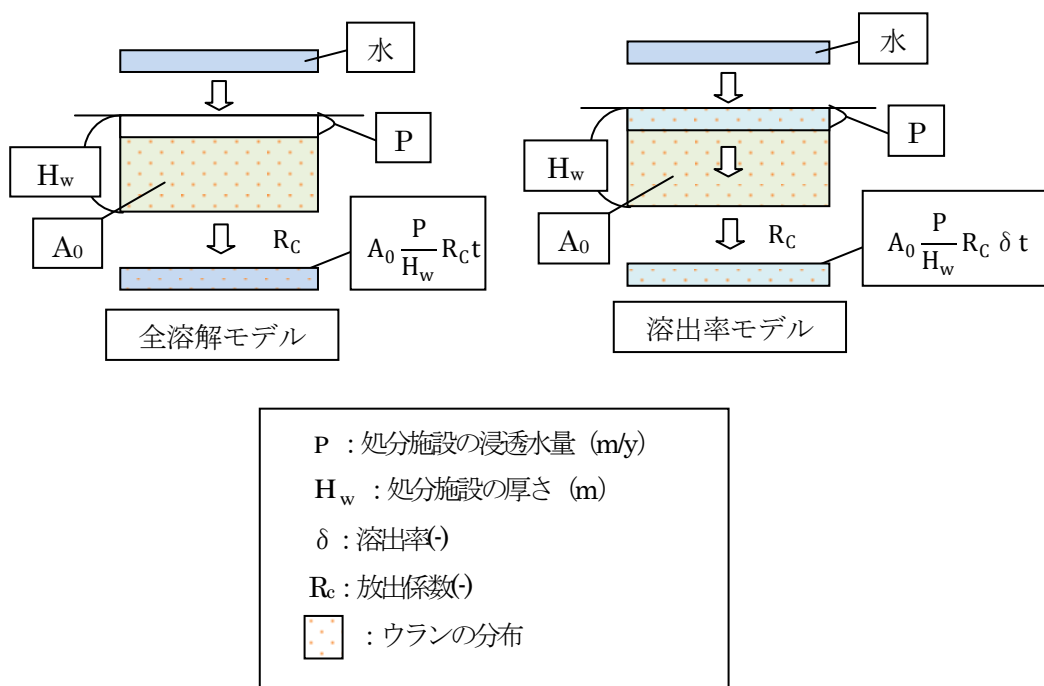


Fig. 5-3 Model of leak rate on the disposal site

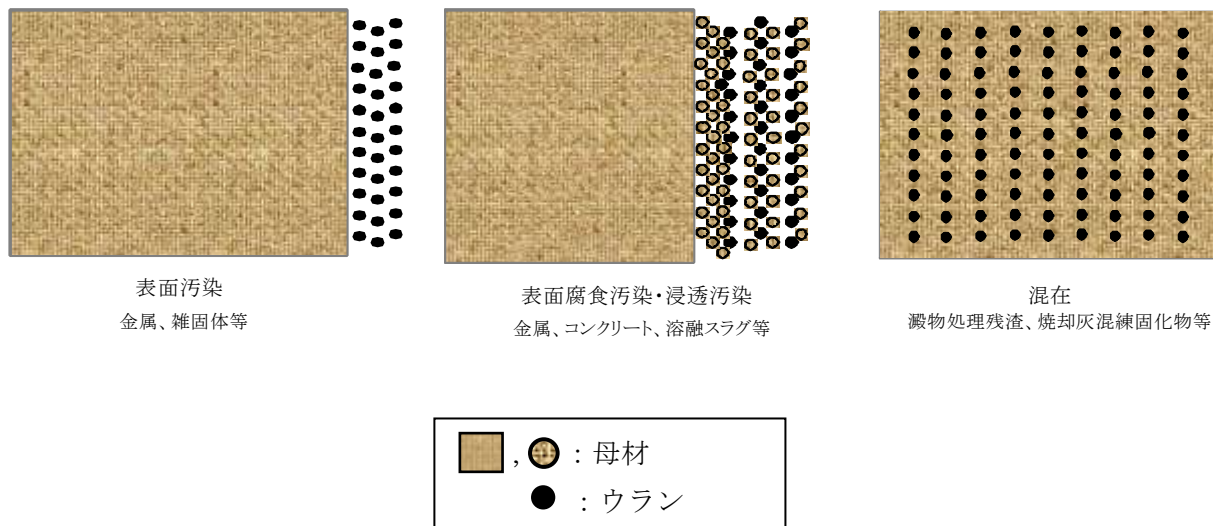


Fig. 5-4 Category classification of radioactive waste

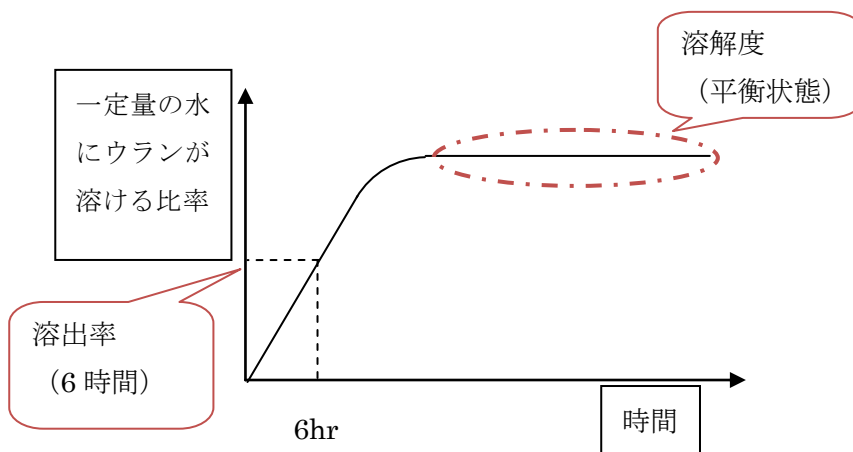


Fig. 5-5 Graph of solubility and elution rate

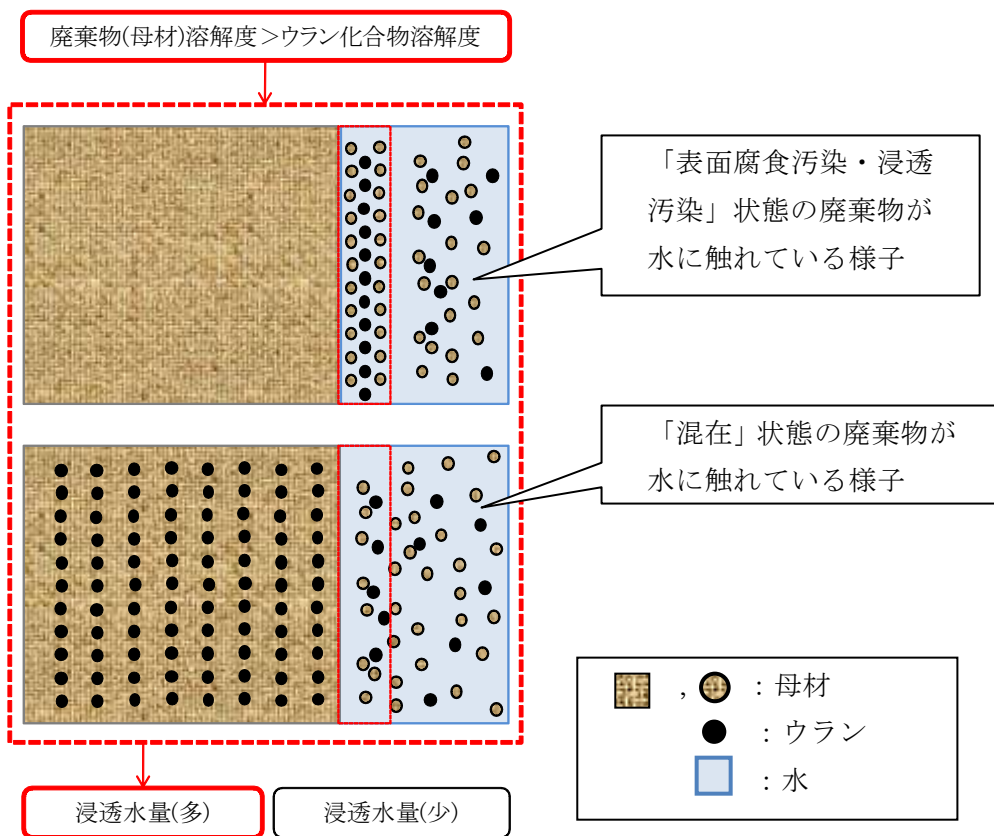


Fig. 5-6 Range of application for elution test



Photo 1-1 Corroded metal



Photo 1-2 Lagging material



Photo 1-3 Metals attached oxide uranium

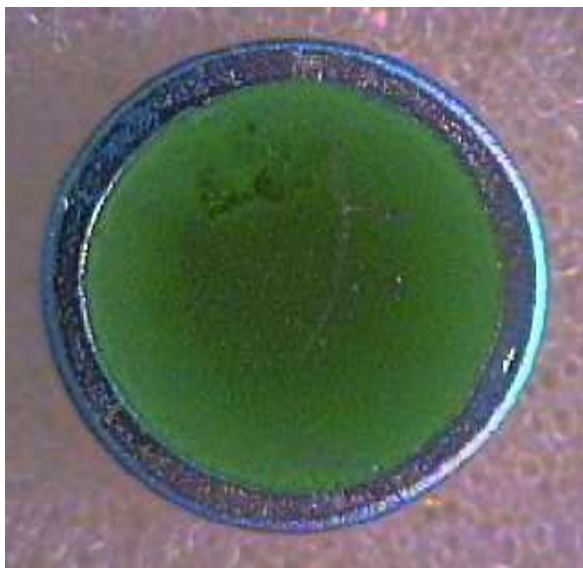


Photo 1-4 Metal attached uranium fluoride

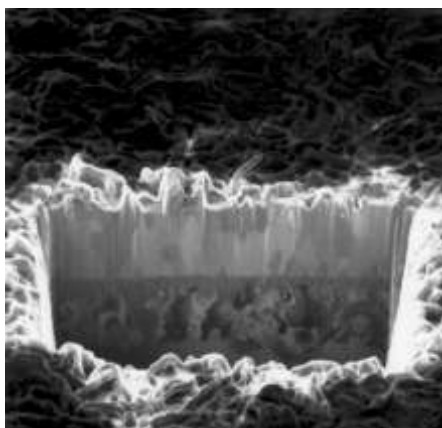


Photo 1-5 Surface of corroded metal with uranium (FIB)



轉換系中和澱物



NaF

アルミナ

珪藻土

Photo 1-6 Sludge from Ningyo-toge



Photo 2-1 Soxhlet extractor



Photo 2-2 Shaking apparatus



Photo 2-3 Cutting cylindrical carbon steel



Photo 2-4 Steel powder



Photo 2-5 Molten slag



Photo 2-6 Cement composites included NaF





Photo 2-7 Cement composites included sludge from neutralization

## Appendix 1 炭素鋼の pH 上昇

### 1. 概要

溶出試験で試料に炭素鋼を用いた場合、試験前後で溶媒の pH に上昇が見られた。この原因を調査するため、炭素鋼に含まれるクロムと溶媒（水）の化学反応について平衡計算を実施した。

### 2. 計算方法

計算コード PHREEQC 2.17.00

TDB名 (format) llnl.dat (PHREEQC)

### 3. 評価結果

炭素鋼は、溶出試験後のろ液分析により、少量のクロムが含まれていることが解っている。計算条件と計算結果を以下に示す。この結果から、クロムによって pH が上昇したと推定できる。

#### ①計算条件

##### SOLUTION

	設定値
pH	6.0
Pe	0.0
Density(g/cm <sup>3</sup> )	1.0
Temp	25.0
Mass of water (kg)	1.0e+00

##### EQUILIBRIUM\_PHASES

	設定値
Cr(mol)	9.0e-06

SI(Saturation Index)

SI=0

⇒ Mineral equilibrium with solution.

#### ②計算結果

##### Phase assemblage

Phase	SI	log IAP	log KT	Initial	Final	Delta
Cr	-24.15	74.52	98.67	9.000e-06	0	-9.000e-06

##### Description of solution

	計算結果
pH	8.392
Pe	-7.508

## Appendix 2 溶融スラグの pH 上昇

## 1. 概要

溶出試験で試料に溶融スラグを用いた場合、試験前後で溶媒の pH に上昇が見られた。この原因を調査するため、溶融スラグと溶媒（水）の化学反応について平衡計算を実施した。

## 2. 計算方法

計算コード PHREEQC 2.17.00

TDB名 (format) 050700c0.tdb (PHREEQC)

## 3. 評価結果

溶融スラグは、X線回折の結果、酸化鉄（FeO）が含まれていることが解っている。計算条件と計算結果を以下に示す。この結果から、酸化鉄（FeO）によって pH が上昇したと推定できる。

## ①計算条件

## SOLUTION

	設定値
pH	6.0
Pe	0.0
Density(g/cm <sup>3</sup> )	1.0
Temp	25.0
Mass of water (kg)	1.0e+00

## EQUILIBRIUM\_PHASES

	設定値
FeO(mol)	1.0

## ②計算結果

## Phase assemblage

Phase	SI	log IAP	log KT	Initial	Final	Delta
FeO	-0.00	13.53	13.53	1.000e+00	1.000e+00	-1.359e-05

## Description of solution

	計算結果
pH	9.314
Pe	-6.343

This is a blank page.

# 国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質の量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立法メートル	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
波数	毎メートル	m <sup>-1</sup>
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m <sup>2</sup>
比体積	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 <sup>(a)</sup> , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>
屈折率 <sup>(b)</sup>	(数字の)	1
比透磁率 <sup>(b)</sup>	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。  
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	他のSI単位による表し方
平面角	ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	1 <sup>(b)</sup>
立体角	ステラジアン <sup>(b)</sup>	sr <sup>(c)</sup>	1 <sup>(b)</sup>
周波数	ヘルツ <sup>(d)</sup>	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m kg s <sup>-2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s
電荷, 電気量	クーロン	C	s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V
磁束	ウエーバ	Wb	Vs
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(e)</sup>	°C	K
光照射度	ルーメン	lm	cd sr <sup>(c)</sup>
放射線量	グレイ	Gy	J/kg
放射性核種の放射能 <sup>(f)</sup>	ベクレル <sup>(d)</sup>	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト <sup>(g)</sup>	Sv	J/kg
酸素活性化	カタール	kat	s <sup>-1</sup> mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。  
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。  
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。  
 (d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。  
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。  
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。  
 (g) 単位シーベルト (PV.2002.70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s
表面張力	ニュートンメートル	N m
角速度	ニュートン毎メートル	N/m
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s <sup>2</sup>
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>
電荷密度	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>
電表面電荷	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>
電束密度, 電気変位	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>
誘電率	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>
透磁率	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎キログラム	C/kg
吸収線量率	ジュール毎キログラム	C/kg
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> sr)
	カタール毎立方メートル	kat/m <sup>3</sup>

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 <sup>24</sup>	ヨタ	Y	10 <sup>1</sup>	デシ	d
10 <sup>21</sup>	ゼタ	Z	10 <sup>2</sup>	センチ	c
10 <sup>18</sup>	エクサ	E	10 <sup>3</sup>	ミリ	m
10 <sup>15</sup>	ペタ	P	10 <sup>6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>12</sup>	テラ	T	10 <sup>9</sup>	ナノ	n
10 <sup>9</sup>	ギガ	G	10 <sup>12</sup>	ピコ	p
10 <sup>6</sup>	メガ	M	10 <sup>15</sup>	フェムト	f
10 <sup>3</sup>	キロ	k	10 <sup>18</sup>	アト	a
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h	10 <sup>21</sup>	ゼプト	z
10 <sup>1</sup>	デカ	da	10 <sup>24</sup>	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
リットル	L, l	1 L=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1 t=10 <sup>3</sup> kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

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

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1 MPa=100 kPa=10 <sup>5</sup> Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322 Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1 nm=100 pm=10 <sup>-10</sup> m
海里	M	1 M=1852 m
バイン	b	1 b=100 fm <sup>2</sup> =(10 <sup>12</sup> cm) <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>
ノット	kn	1 kn=(1852/3600) m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。
ベール	B	
デジベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エル	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1 Pa s
ストークス	St	1 St=1 cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> =10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
スチルブ	sb	1 sb=1 cd cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> cd m <sup>-2</sup>
フオト	ph	1 ph=1 cd sr cm <sup>-2</sup> 10 <sup>4</sup> lx
ガリ	Gal	1 Gal=1 cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm <sup>2</sup> =10 <sup>-8</sup> Wb
ガウス	G	1 G=1 Mx cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> T
エルステッド <sup>(c)</sup>	Oe	1 Oe <sub>e</sub> =(10 <sup>3</sup> /4π) A m <sup>-1</sup>

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1 cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット		1メートル系カラット=200 mg=2×10 <sup>-4</sup> kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858 J (「15°C」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1 μm=10 <sup>-6</sup> m

