JAEA-Technology
2010-048

TRU 廃棄物処分に係る核種移行データ

―有機物（セメント混和剤）共存下におけるプルトニウムの溶解度試験結果―

Data on Migration Analysis for TRU Waste Repository
-Results of the Solubility Experiments in the Presence of Organic Materials used for Cement Additives -

須黒 寿康　西川 義朗　綿引 聖　加川 昭夫　飯島 和毅
Toshiyasu SUGURO, Yoshiaki NISHIKAWA, Takashi WATAHIKI
Akio KAGAWA and Kazuki IIJIMA

東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所
環境技術管理部

Waste Management Department
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center

March 2011
Japan Atomic Energy Agency　日本原子力研究開発機構

JAEA-Technology

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

JAEA-Technology 2010-048

TRU 廃棄物処分に係る核種移行データ
―有機物（セメント混和剤）共存下におけるプルトニウムの溶解度試験結果―

日本原子力研究開発機構　東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所　環境技術管理部

須黒　寿康、西川　義朗*、綿引　聖*、加川　昭夫、飯島　和毅

(2010 年 12 月 15 日受理)

TRU 廃棄物処分の安全評価上不可欠なプルトニウム(Pu)の有機物(セメント混和剤)共存下における溶解度データを取得するための試験を実施した。試験で使用したセメント混和剤は、TRU 廃棄物処分場で使用される可能性のあるナトリウムフォルムアルデヒド酸系化合物及びポリカルボン酸系化合物を選定した。試験は、処分環境を模擬した極低酸素濃度（O_2濃度 1 ppm 以下)、還元条件(還元剤：亜ジチオン酸ナトリウム)でバッチ式溶解度試験を行った。その他の試験条件として、Pu の初期添加濃度は 10^{-6} M の 1 ケース、液相は 1)蒸留水を水酸化ナトリウムにより pH を 12.5 に調整した溶液、2)セメント間隙水を想定した普通ポルトランドセメントの浸漬液及び 3) セメントが固化した後の間隙水中に存在するセメント混和剤の成分を想定し、分子量別に分画（分画分子量 5,000 の限外ろ過膜を透過する低分子量成分とろ過される高分子量成分に分画）した溶液の 3 ケースとした。また、温度は室温（298±5 K)、試験期間は 7、14、28 及び 56 日を基本とした。

その結果、セメント混和剤が存在しない場合の Pu の溶解度（約 10^{-10} mol/dm^3）に対し、セメント混和剤が存在すると、セメント混和剤の種類や濃度にかかわらず Pu 濃度は 2～3 桁上昇した。また、分子量別の試験から高 pH 条件では、高分子量成分よりも低分子量成分のセメント混和剤の方が Pu 濃度をより上昇させる傾向が示された。

セメント硬化体間隙水に存在する有機成分は、全てが混和剤に由来するものとは限らないことから、セメント硬化体間隙水に存在する有機成分が核種の溶解度に影響を及ぼすか否かを調べるには、今後、直接的な方法での試験（実際にセメント硬化体の間隙水を高圧で抽出する方法など）によって、Pu の溶解度測定を実施する必要がある。

核燃料サイクル工学研究所(駐在)：〒319-1194　茨城県那珂郡東海村村松 4-33
＊検査開発株式会社

Data on Migration Analysis for TRU Waste Repository -Results of the Solubility Experiments in the Presence of 0rganic Materials used for Cement Additives -

Toshiyasu SUGURO, Yoshiaki NISHIKAWA*, Takashi WATAHIKI*, Akio KAGAWA and Kazuki IIJIMA

Waste Management Department, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received December15,2010)

Cementitious materials are considered to be necessary for the construction of TRU waste repository. The cement additives are used for cements and concretes in order to provide their fluidity. Many kinds of cement additives contain organic compounds which may increase radionuclide solubility by complex formation. Therefore, it is important to obtain the solubility data with cement additives for safety assessment of TRU waste disposal.

In this work, two types of cement additives, such as sodium formaldehyde acid polymer and poly carboxylic acid polymer which are expected to be applied to the TRU waste disposal system, are selected.

Since the chemical condition of the repository is considered to be reducing, the authors carried out batch-type experiments of plutonium solubility under reducing ($Na_2S_2O_4$ added as reducant) and anoxic condition ($[O_2] \leqq 1$ ppm). Other experimental conditions are (1)initial plutonium concentration; 10^{-6} M, (2) temperature ; 298 ± 5 K, (3)experimental period ; 7, 14, 28 and 56 days and (4) molecular weight of cement additives ; without fractionation <5,000 and >5,000.

The plutonium concentration in the absence of the cement additives was in the order of 10^{-10} mol dm^{-3}, while, those in the presence of cement additives were two or three orders of magnitude higher. Additionally, low molecular weight fraction of cement additives brought relatively higher plutonium concentration than high molecular weight fraction.

The authors suggest the solubility experiment with extracted pore water of cementitious material should be carried out to evaluate the effect of organic materials mixed before the cement additives were added as a next step.

Keywords : TRU Waste Disposal, Plutonium, Solubility, Cement Additives, Organics

---

* Inspection Development Co.Ltd.

目　次

１．はじめに ……… 1

２．試験方法 ……… 1

2.1　薬品類 ……… 1

2.2　試験方法 ……… 2

2.2.1　脱気水系溶解度試験 ……… 2

2.2.2　OPC 平衡水系溶解度試験 ……… 3

2.2.3　分子量別溶解度試験 ……… 4

３．分析方法 ……… 5

3.1　水素イオン濃度指数（pH）及び酸化還元電位（Eh）測定 ……… 5

3.2　α線スペクトロメトリー ……… 5

４．試験結果 ……… 6

4.1　脱気水系溶解度試験 ……… 6

4.2　OPC 平衡水系溶解度試験 ……… 7

4.3　分子量別溶解度試験 ……… 8

５．考察 ……… 9

６．おわりに ……… 10

謝辞 ……… 11

参考文献 ……… 11

Contents

1. Introduction ········· 1

2. Experimental ········· 1
  2.1 Chemicals ········· 1
  2.2 Experiments ········· 2
    2.2.1 Solubility experiments with Deaerated water ········· 2
    2.2.2 Solubility experiments with OPC Equilibrium water ········· 3
    2.2.3 Solubility experiments with fractionated additives ········· 4

3. Analysis ········· 5
  3.1 pH-value and redox potential ········· 5
  3.2 Alpha spectrometer ········· 5

4. Results ········· 6
  4.1 Solubility experiments with Deaerated water ········· 6
  4.2 Solubility experiments with OPC Equilibrium water ········· 7
  4.3 Solubility experiments with fractionated additives ········· 8

5. Discussions ········· 9

6. Conclusion ········· 10

Acknowledgement ········· 11

References ········· 11

表目次

表 2.1-1　OPC の物理・化学的特性 ……………………………… 12
表 2.1-2　Pu の同位体組成比 ……………………………… 12
表 2.2.1-1　脱気水系溶解度試験条件 ……………………………… 13
表 2.2.2-1　OPC 平衡水系溶解度試験条件 ……………………………… 14
表 2.2.2-2　OPC 平衡水分析結果 ……………………………… 15
表 2.2.3-1　分子量別溶解度試験条件 ……………………………… 16
表 3.1-1　ORP の Eh（vs.SHE）への補正値 ……………………………… 17
表 3.2-1　αスペクトロメトリーの検出下限値確認結果 ……………………………… 17
表 4.1.1-1　脱気水系溶解度試験結果（pH・Eh） ……………………………… 18
表 4.1.2-1　脱気水系溶解度試験結果（Pu 濃度） ……………………………… 19
表 4.2.1-1　OPC 平衡水系溶解度試験結果（pH・Eh） ……………………………… 20
表 4.2.2-1　OPC 平衡水系溶解度試験結果（Pu 濃度） ……………………………… 21
表 4.3.1-1　分子量別溶解度試験結果（pH・Eh） ……………………………… 22
表 4.3.2-1　分子量別溶解度試験結果（Pu 濃度） ……………………………… 23

図目次

図 2.2.1-1　脱気水系溶解度試験手順 …… 24
図 2.2.2-1　OPC 平衡水系溶解度試験手順 …… 25
図 2.2.3-1　分子量別溶解度試験手順 …… 26
図 4.1.2-1　脱気水系溶解度試験結果 …… 27
図 4.2.2-1　OPC 平衡水系溶解度試験結果 …… 28
図 4.3.1-1　pH 調整（SOL-3-2） …… 29
図 4.3.1-2　pH 調整（SOL-4） …… 29
図 4.3.2-1　分子量別溶解度試験結果（分子量別） …… 30
図 4.3.2-2　分子量別溶解度試験結果（pH 別） …… 31
図 5-1　Pu の Eh-pH 線図と試験における Eh-pH 実測値との関係 …… 32

1. はじめに

再処理施設及び MOX 燃料施設の核燃料サイクル施設から発生する超ウラン（TRU）核種を含む放射性廃棄物は TRU 廃棄物と呼ばれている。この TRU 廃棄物は、廃棄体の性状がセメント、有機物、金属等を多く含み、多種多様である。このため、TRU 廃棄物の処分の安全評価のためには、これまでの高レベル放射性廃棄物処分の安全評価から得られた知見の他に、TRU 廃棄物の特有な条件に着目したデータ取得を進める必要がある。

TRU 廃棄物処分技術検討書 [1)]（以下、「技術検討書」という）によると、セメント系材料が処分坑道の支保工、構造躯体、充填材や廃棄体容器内の充填材として使用される可能性がある。このセメント系材料には、施工性を高めるために添加する薬剤（減水剤）を主成分とするセメント混和剤が使用されるが、この中には有機物が含まれる。そのため、有機物がアクチノイド元素等と錯体を形成する可能性があり、溶液中での錯生成の程度によっては、放射性核種の溶解度に影響を及ぼす可能性がある。

また、処分施設閉鎖後の地下水の化学的条件は、溶存酸素が金属の腐食等により消費され、比較的速やかに酸化還元電位（Eh）が負の値となると予想されている。従って、酸化還元に鋭敏なプルトニウム（Pu）などの核種については、処分環境の還元条件を模擬した試験が重要となる。

一方、処分施設に浸入する地下水は、セメント系材料の成分であるナトリウム，カリウム，カルシウム等との反応により、高 pH となることから、高 pH 条件下での試験も重要となる。このため、還元性、高 pH 条件での有機物（セメント混和剤）共存下における Pu の溶解度試験を実施した。

2. 試験方法

2.1 薬品類

試験に使用した薬品類のメーカ等を以下に示す。

- ・セメント混和剤：TRU 廃棄物処分場で使用される可能性のあるナトリウムフォルムアルデヒド酸系化合物（花王製：マイティ 150、以下「マイティ」という。）及びポリカルボン酸系化合物（BASF ポゾリス社製：レオビルド SP8LS、以下「レオビルド」という。）を用いた。
- ・セメント：普通ポルトランドセメント（以下「OPC」という。）の物理・化学的特性を表 2.1-1 に示す。

・Pu：JAEA のプルトニウム燃料第一開発室で調製したもので、2 mol/dm^3 の硝酸溶液、原液の Pu 濃度は 10^{-3} mol/dm^3 である。Pu の同位体組成比を表 2.1-2 に示す。

・蒸留水：蒸留水製造装置（ADVATEC GS-500）にて製造した蒸留水を、さらに超純水製造装置（ADVANTEC CPW-200）を透過させて精製した。精製した蒸留水を酸素濃度 1 ppm 以下のアルゴン雰囲気である雰囲気制御グローブボックス内へ搬入し、24 時間バブリングにより溶存酸素等の脱気を行ったもの（以下、「脱気水」という。）を用いた。

・試薬類：その他の試薬類については、全て特級以上のものを用いた。

2.2 試験方法

試験は、①マイティ及びレオビルドを所定量の脱気水に溶かした脱気水系溶解度試験、②マイティ及びレオビルドを所定量の OPC 平衡水に溶かした OPC 平衡水系溶解度試験、③低分子量成分と高分子量成分に分画したレオビルドを NaOH 溶液あるいは蒸留水に溶かした分子量別溶解度試験（レオビルドのみ）の 3 ケースを実施した。いずれの試験も室温（298±5 K）で、酸素濃度 1 ppm 以下のアルゴン雰囲気である雰囲気制御グローブボックス内で実施した。

また、試験期間中の pH、Eh はできるだけ一定である事を条件とし、pH が大きく変化した場合、及び Eh が還元側から酸化側へ変化した場合は、その都度調整を行うこととした。

なお、各試験でバラツキが大きい場合は、上方（大きい値）の溶解度データで評価することで、安全側の評価を行うこととした。

2.2.1 脱気水系溶解度試験

試験条件を表 2.2.1-1 に、試験フローを図 2.2.1-1 に示す。

試験は n＝2 で行い、30 mL のテフロン（PFA）容器を用い、ここに全体液量が 20 mL となるよう試験液類を添加した。

TRU 廃棄物処分場に浸入する地下水が高 pH になることを想定し、脱気水を水酸化ナトリウム（NaOH）により pH12.5 に調整し、試験の液相として使用した。そこに、マイティ及びレオビルドのそれぞれについて、0 g/kgw（ブランク試料）、50 g/kgw（一般的にセメント系材料へ添加される濃度）及び 0.5 g/kgw（一般的にセメント系材料へ添加される濃度の 1/100 倍）の濃度となるよう添加した。さらに、還元剤として

亜ジチオン酸ナトリウム（$Na_2S_2O_4$）を 0.1 mol/dm^3（ブランク試料及びマイティ）あるいは 0.05 mol/dm^3（レオビルド）となるように添加した。

最後に Pu（Pu 濃度 10^{-3} mol/dm^3 の 2 mol/dm^3 硝酸溶液）を初期濃度 10^{-6} mol/dm^3 となるように添加し、試験開始とした。

試験期間中容器は静置し、試験開始後 7 日、14 日、28 日及び 56 日にサンプリングを行った。サンプリングは、試験容器を 10 秒程度手で振とうし、代表サンプルの pH 及び ORP（Oxdation-reduction potential）を測定した後、300 μL を採取し、孔径 0.45 μm の遠心フィルター（ミリポア社製 Ultrafree-MC）によりろ過した。なお、28 日目のサンプリングについては、コロイドの影響を確認するため、孔径 0.45 μm の遠心フィルター及び分画分子量（MWCO）10,000 の遠心フィルター（ミリポア社製 Ultrafree-MC）を用いてろ過を行った。このろ液 200 μL をポリプロピレン(PP)製サンプリングジャグに採取し、容器の壁面へ Pu が付着することを防ぐため、濃硝酸（HNO_3）を 10 μL 添加した。

2.2.2　OPC 平衡水系溶解度試験

試験条件を表 2.2.2-1 に、試験フローを図 2.2.2-1 に示す。

試験は n＝2 で行い、30 mL のテフロン（PFA）容器を用い、ここに全体液量が 20 mL となるよう試験液類を添加した。

TRU 廃棄物処分場に浸入する地下水（処分坑道の支保工、構造躯体等に使用されたセメント系材料の間隙を通ってきた地下水）を想定し、脱気水（1 dm^3）中に OPC 粉末（10 g）を添加し、雰囲気制御グローブボックス内で 3 ヶ月間常温浸漬させた。この OPC 浸漬液を孔径 0.45 μm のメンブレンフィルター（ADVANTEC 社製 DISMIC-25CS）を用いてろ過した OPC 平衡水を試験の液相に使用した。OPC 平衡水の分析結果を表 2.2.2-2 に示す。

マイティ及びレオビルドのそれぞれについて、OPC 平衡水中に 0 g/kgw（ブランク試料）、50 g/kgw、0.5 g/kgw となるよう添加した。さらに、還元剤（$Na_2S_2O_4$）を 0.05 mol/dm^3 となるように添加した。

最後に Pu（Pu 濃度 10^{-3} mol/dm^3 の 2 mol/dm^3 硝酸溶液）を初期濃度 10^{-6} mol/dm^3 となるように添加し、試験開始とした。

試験期間中容器は静置し、試験開始後 7 日、14 日及び 28 日にサンプリングを行った。サンプリングは、試験容器を 10 秒程度手で振とうし、代表サンプルの pH 及び ORP を測定した後、300 μL を採取し、孔径 0.45 μm の遠心フィルターによりろ過

（28 日目のサンプリングについては、コロイドの影響を確認するため、孔径 0.45 μm の遠心フィルター及び MWCO 10,000 の遠心フィルターを用いてろ過）を行った。このろ液 200 μL を PP 製サンプリングジャグに採取し、容器の壁面へ Pu が付着することを防ぐため、濃硝酸を 10 μL 添加した。

2.2.3　分子量別溶解度試験

試験条件を表 2.2.3-1 に、試験フローを図 2.2.3-1 に示す。

試験は n＝3 で行い、30 mL のテフロン（PFA）容器を用い、ここに全体液量が 20 mL となるよう試験液類を添加した。

セメントが固化した後の間隙水中に存在する混和剤の成分は原液のものと異なり低分子量であることが確認されており [3]、原液で得られた知見を直接、処分の安全評価に反映することはできない。このため、分子量の違いによる溶解度の変化を確認するため分子量別の溶解度試験を行った。なお、本試験では、レオビルド(原液の TOC 濃度は 79,000 mg/dm^3)についてのみ実施した。

使用した混和剤の処理方法は、アルカリ溶液（pH 13.5 NaOH で調整）を用いて混和剤を 10 wt%に希釈し、電気炉を用いて 323 K で 30 日間加温した。参考としてアルカリ溶液の代わりに蒸留水（pH 9.5）を用いて同じ処理を行った試料も作製した。その後、分画分子量として 5,000 を選定し、遠心濃縮管（Vivascience 社製 vivaspin20）を用いた遠心法による限外ろ過で低分子量成分（<5,000）と高分子量成分（>5,000）に分画した。

分画した混和剤は、一般的にセメント混練時にレオビルドを添加した時（50 g/kgw）の TOC 濃度の計算値（3,950 mg/dm^3）と同程度に調整して試験に供した。ただし、低分子量成分についてはアルカリ溶液（SOL-1）及び蒸留水（SOL-3）で TOC 濃度が各々1,080 mg/dm^3、720 mg/dm^3 と調整予定の TOC 濃度を下回ったため、このまま試験に供した。また、高分子量成分のうち、アルカリ溶液（SOL-2）は TOC 濃度 42,000 mg/dm^3 を pH13.5 の NaOH 溶液で、蒸留水（SOL-4）は TOC 濃度 27,600 mg/dm^3 を脱気水でそれぞれ希釈し、3,600 mg/dm^3 となるように調製した。

さらに還元剤を添加した。なお、低分子量成分の蒸留水（SOL-3）は還元剤（$Na_2S_2O_4$）を添加すると pH が大きく下がったため、pH の維持を重視し還元剤を添加しないサンプル（SOL-3-1）と添加したサンプル（SOL-3-2）との 2 つを用意した。

最後に Pu（Pu 濃度 10^{-3} mol/dm^3 の 2 mol/dm^3 硝酸溶液）を初期濃度 10^{-6} mol/dm^3

となるように添加し、試験開始とした。

試験期間中容器は静置し、試験開始後 14 日、28 日及び 56 日にサンプリングを行った。サンプリングは、試験容器を 10 秒程度手で振とうし、代表サンプルの pH 及び ORP を測定した後、300 μL を採取し、孔径 0.45 μm の遠心フィルターによりろ過した。なお、56 日目のサンプリングについては、コロイドの影響を確認するため、孔径 0.45 μm の遠心フィルター及び MWCO 10,000 の遠心フィルターを用いてろ過を行った。このろ液 200 μL を PP 製サンプリングジャグに採取し、容器の壁面へ Pu が付着することを防ぐため、濃硝酸を 10 μL 添加した。

3. 分析方法

3.1 水素イオン濃度指数（pH）及び酸化還元電位（Eh）測定

サンプリング時及び適宜実施した試験液の pH 及び ORP の測定は、ガラス複合電極（TOA GST-5721C、PST-5721C）及び pH-イオンメーター（TOA Ion mater IM-55G）を用いて測定した。測定した ORP の Eh（vs SHE）への変換は、表 3.1-1 に示す各温度における補正値を加えて求めた。

3.2 α線スペクトロメトリー

サンプリングした液中の Pu の濃度は、α線スペクトロメトリーにより測定した。なお、測定は、サンプリング後の溶液を雰囲気制御グローブボックスから搬出し大気雰囲気中で実施した。また、サンプリングした溶液は、有機物等の影響を軽減するため 50 倍に希釈した。希釈後、50 μL のマイクロピペッターを用いて直径 2 cm 厚さ 1 mm のステンレス（SUS304）製の皿に滴下し、高周波加熱装置（タカノ電子工業製 THF-400）により焼付け固定し、α線測定用の試料とした。α線の測定は、イオン注入型低バックグラウンド検出器（ORTEC BU-020-450-AS）、α線測定モジュール（ORTEC SOLOIST）及びマルチチャンネルアナライザー（ORTEC ETHERNIM 920E）を用いて行った。

本試験に用いたα線スペクトロメーターの検出下限値は、以下に示す 3σ法に従って求めた。

$$\ell_d = \frac{9}{2t_{S+B}} + \frac{3}{2}\sqrt{\frac{9}{t_{S+B}^2} + 4n_B\left(\frac{1}{t_{S+B}} + \frac{1}{t_B}\right)} = \frac{3}{2}\left\{\frac{3}{t_{S+B}} + \sqrt{\frac{9}{t_{S+B}^2} + 4n_B\left(\frac{1}{t_{S+B}} + \frac{1}{t_B}\right)}\right\}$$

t_{S+B}：試料の計数時間

t_B：バックグラウンドの計数時間

n_B：バックグラウンドの計数率

上式を用いて、試料の計数時間、バックグラウンドの計数時間にそれぞれの測定時間を、バックグラウンドの計数率には実際にバックグラウンド計数により得られたカウント数を代入して、各検出器の検出下限値を得た。なお、バックグラウンドの測定は約 6 日間行った。各検出器の検出下限値を表 3.2-1 に示す。

4.　試験結果

4.1　脱気水系溶解度試験

4.1.1　試験期間中の pH 及び Eh の変化

溶液中における pH、Eh の変化を表 4.1.1-1 に示す。

試験期間中の試験液の pH は、12～13 を維持しており、大きな変化はなかった。

また、Eh は、試験期間 28 日までは、-600～-750 mV$_{SHE}$となり低い還元状態を維持した。しかし、レオビルド（Sod-4,Sod-5）の試験期間 56 日における Eh については、約-100 mV$_{SHE}$ となった。この原因は、先に実施したマイティの試験溶液へ添加した還元剤量では Eh が約-700 mV$_{SHE}$ と低い値となったため、レオビルドでは、還元剤添加量を少なくした結果、時間の経過ともに還元能力が低下したものと考えられた。

4.1.2　溶液中の Pu の濃度

脱気水系溶解度試験結果を表 4.1.2-1 及び図 4.1.2-1 に示す。Pu 濃度に対する各影響について、以下に記載する。

4.1.2.1　Pu 濃度の経時変化

ブランク（セメント混和剤濃度 0 g/kgw）において試験期間 7 日目では、まだ安定していないが、全体的に 14 日目以降では、Pu 濃度はほぼ一定の値を示した。

4.1.2.2　固液分離方法の影響

試験期間 28 日目の固液分離方法の違い（孔径 0.45 µm ろ過と MWCO 10,000 ろ過）による Pu 濃度を比較すると、孔径 0.45 µm で固液分離したものより、MWCO 10,000 で固液分離した方が低い結果となり、Pu 濃度に差がみられた。また、孔径 0.45 µm で固液分離したものはセメント混和剤の濃度が違っても Pu 濃度は 10^{-7} mol/dm^3 程度で変化はないが、MWCO 10,000 で固液分離したものはセメント混和剤の濃度が高くなると Pu 濃度が上昇する傾向が示された。

固液分離方法の違いによる Pu 濃度の差は、マイティの場合ではセメント混和剤濃度 0.5 g/kgw の場合で 3 桁程度であるが、セメント混和剤濃度 50 g/kgw の場合では 2 桁程度となった。

レオビルドの場合では、セメント混和剤濃度 0.5 g/kgw の場合で 2 桁程度あるが、セメント混和剤濃度 50 g/kgw の場合では Pu 濃度の差は殆どなかった。

4.1.2.3　セメント混和剤の影響

ブランク（セメント混和剤濃度 0 g/kgw）の Pu 濃度（10^{-10} mol/dm^3）と比較して、セメント混和剤が存在すると Pu 濃度は 2～3 桁程度上昇した。なお、セメント混和剤の種類や濃度による Pu 濃度の大きな変化は見られなかった。

ただし、MWCO 10,000 でろ過したものについては、セメント混和剤の濃度が高くなると Pu 濃度が上昇する傾向が示された。

4.2　OPC 平衡水系溶解度試験

4.2.1　試験期間中の pH 及び Eh 変化

溶液中における pH、Eh の変化を表 4.2.1-1 に示す。

試験期間中の試験液の pH は、12～13 を維持しており、大きな変化はなかった。

また、Eh は、試験期間 28 日まで-600～-800 mV_{SHE} となり低い還元状態を維持した。

4.2.2　溶液中の Pu 濃度

OPC 平衡水系溶解度試験結果を表 4.2.2-1 及び図 4.2.2-1 に示す。Pu 濃度に対する各影響について、以下に記載する。

4.2.2.1　Pu 濃度の経時変化

試験期間 14 日目以降では、Pu 濃度はほぼ一定の値を示した。

4.2.2.2　固液分離方法の影響

試験期間 28 日目の固液分離方法の違い（孔径 0.45 μm ろ過と MWCO 10,000 ろ過）による Pu 濃度を比較すると、ブランク（セメント混和剤濃度 0 g/kgw）では Pu 濃度が 10^{-10} mol/dm^3 と同等であったが、セメント混和剤共存下では孔径 0.45 μm ろ過の 10^{-8} ～10^{-7}mol/dm^3 に比べ、MWCO 10,000 ろ過では 2～3 桁程度低い値となり、Pu 濃度の差が生じた。

4.2.2.3　セメント混和剤の影響

ブランク（セメント混和剤濃度 0 g/kgw）の Pu 濃度 10^{-10} mol/dm^3 程度に対し、セメント混和剤共存下の Pu 濃度（孔径 0.45 μm ろ過）は 10^{-7}～10^{-8} mol/dm^3 程度とセメント混和剤なし試料より 2～3 桁程度高い濃度を示した。また、セメント混和剤の濃度が高くなると Pu 濃度はわずかに増加した。なお、MWCO 10,000 ろ過のレオビルドについては、セメント混和剤の濃度が高くなると Pu 濃度が上昇する傾向が示された。

4.3　分子量別溶解度試験

4.3.1　試験期間中の pH 及び Eh 条件

測定された pH 及び Eh を表 4.3.1-1 に示す。pH13.5 の試料（SOL-1、SOL-2）及び pH9.5 の還元剤無添加試料（SOL-3-1）の pH は試験期間中大きな変化はなかったが、pH9.5 の還元剤添加（SOL-3-2）及び、高分子量試料（SOL-4）は pH が変化したため、随時 pH 調整を行った。pH 調整に伴う pH の推移を図 4.3.1-1、4.3.1-2 に示す。

4.3.2　溶液中の Pu 濃度

分子量別溶解度試験結果を表 4.3.2-1 にまとめる。また、pH を X 軸とした分子量別のグラフを図 4.3.2-1 に、試験期間を X 軸とした pH 別のグラフを図 4.3.2-2 に示す。各影響について以下に記載する。

4.3.2.1　Pu 濃度の経時変化

図 4.3.2-2 を見ると pH13.5 の高分子量（>5,000）については若干減少傾向にあるが、その他は試験期間を通して Pu 濃度はほぼ一定の値を示した。

4.3.2.2　pH、還元剤の影響

図 4.3.2-1 を見ると、高分子量（>5,000）の孔径 0.45 μm ろ過では、pH9.5 に比べ pH13.5 の方が Pu 濃度は低くなった。また、pH9.5 の還元剤の有無の条件では、還元剤を添加し、Eh を下げた方が Pu 濃度は高くなった。

4.3.2.3　固液分離方法の影響

図 4.3.2-1 により固液分離方法の違い（孔径 0.45 μm ろ過と MWCO 10,000 ろ過）による Pu 濃度を比較すると、pH9.5 の高分子量（>5,000）を除いては、0.45 μm ろ過及び MWCO 10,000 ろ過の影響は 1 桁以内であった。pH9.5 の高分子量（>5,000）については、2～3 桁近く差が見られた。なお、全体的に孔径 0.45 μm ろ過より MWCO 10,000 ろ過の方が Pu 濃度は低い傾向を示した。

4.3.2.4　分子量の影響

図 4.3.2-2 を見ると、pH13.5 では高分子量（>5,000）に比べ、低分子量（<5,000）の方が Pu 濃度は高い傾向が示された。また、参考として OPC 平衡水系の混和剤が存在しない場合における Pu 濃度は約 10^{-10} mol/dm^3 であるので、pH9.5 の高分子量（>5,000）の MWCO 10,000 ろ過以外は、分子量の違いに係らず、混和剤が共存することにより約 2～3 桁 Pu 濃度が上昇した。

5.　考察

脱気水系及び OPC 平衡水系溶解度試験の孔径 0.45 μm ろ過の Pu 濃度は、セメント混和剤の種類や濃度に関係なく、セメント混和剤濃度 0 g/kgw の場合に対し、セメント混和剤が存在することで 2～3 桁程度上昇する傾向が示された。これは、Pu とセメント混和剤中の有機物が有機錯体を形成したためと考えられる。

また、固液分離方法の違い（孔径 0.45 μm と MWCO 10,000）により Pu 濃度に差がみられたことから、孔径 0.45 μm は通過するが MWCO 10,000 では捕集される程度のコロイドが生成している可能性が考えられる。

分子量別溶解度試験から高 pH の条件では、高分子量成分より低分子量成分の Pu 濃度の方が高い傾向を示した。これは、セメント混和剤の分子量が小さくなると分子量当たりの反応に寄与する官能基の割合が増加し、錯形成しやすくなるためと考えられる。

参考として、分子量別溶解度試験における pH 及び Eh の条件を Pu の Eh-pH 線図に

プロットし、Pu の支配的な溶存化学種を検討した。Eh-pH 線図の作成においては、JNC-TDB[4)]を用い、Pu 濃度を試験条件と同じ 10^{-6} mol/dm^3 とした。

結果を図 5-1 に示す。これより、SOL-3-2（pH9.5 の低分子量成分に $Na_2S_2O_4$ を添加）を除いて、Pu の支配的な溶存化学種はⅣ価の Pu であり、$Pu(OH)_4(aq)$と推定された。SOL-3-2 の条件は、水の安定領域付近であり、Ⅲ価の Pu の $PuOH_2^+$が支配的であると推定された。

6. おわりに

本試験の結果において、セメント混和剤が共存することで、Pu 濃度が 2～3 桁上昇した。また、セメントが固化した後の間隙水中に存在する混和剤の成分は原液のものと異なり低分子量であることが確認されている。このため、混和剤を低分子量成分及び高分子量成分に分けて Pu の溶解度試験を実施した結果、高 pH 条件では低分子量成分の混和剤の方が Pu 濃度をより上昇させる傾向が示された。

これらは、TRU 廃棄物処分の安全評価では十分考慮する必要があるが、セメント硬化体間隙水に存在する有機成分は、全てが混和剤に由来するものとは限らないことが藤田ら[3)]によって指摘されている（セメントクリンカーの粉砕助剤など）。

今後は、実際にセメント硬化体の間隙水を高圧で抽出する方法などによって、間隙水を採取し、セメント硬化体間隙水に存在する有機成分が核種の溶解度に影響を及ぼすか否かを調べる必要がある。

謝辞

本試験の計画および実施並びに評価にあたり、地層処分研究開発部門　地層処分基盤研究開発ユニット　TRU 廃棄物処分研究グループ亀井玄人グループリーダーおよび三原守弘研究副主幹には、有益な助言を頂きました。記して謝意を表します。

参考文献

［1］ 電気事業連合会，核燃料サイクル開発機構：“TRU 廃棄物処分技術検討書 －第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめー”，JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02 (2005).

［2］ 三原守弘：セメント系材料に用いられている混和剤の核種移行への影響に関する知見と今後の進め方，地層処分研究開発レポート，I-05-6-005.(2006)

［3］ 藤田　英樹，他：セメントペースト硬化体の間隙水に残存する有機混和剤の挙動の評価，セメント・コンクリート論文集，No.61，p.65-71. (2008)

［4］ Yui，　M. et al : “JNC Thermodynamic Database for Performance Assessment of High-Level Radioactive Waste Disposal System”，JNC TN8400 99-070 (1999).

表 2.1-1　OPC の物理・化学的特性

・化学分析(JIS R 5204:2002、JIS R 5202:1999)

化学成分(%)							
Ig.loss	insol.	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	CaO	MgO	SO_3
0.74	0.13	21.07	5.40	2.77	64.62	1.74	2.09

化学成分(%)						全アルカリ(%)
Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	MnO	Cl	Na_2Oeq
0.21	0.42	0.27	0.29	0.08	0.015	0.49

＊insol.および Cl は JIS R 5202 による。それ以外の化学成分は JIS R 5204 による。

・物理試験(JIS R 5201:1997)

密度 (g/cm²)	比表面積 (cm²/g)	凝　結			安全性 (パット法)
		水量 (%)	始発 (h-m)	終結 (h-m)	
3.18	3370	28.7	2-22	3-50	良

強さ(N/mm²)					
圧縮			曲げ		
3日	7日	28日	3日	7日	28日
29.9	46.4	65.0	6.1	7.9	8.6

試験に供したセメントの分析結果

表 2.1-2　Pu の同位体組成比

質量数	238	239	240	241	242
組成比(wt%)	0.014	91.175	8.501	0.258	0.052

表 2.2.1-1 脱気水系溶解度試験条件

	溶解度試験	
使用元素	Pu	
Pu 添加濃度	10^{-6} M	
液相 （脱気水）	・セメント混和剤なしブランク試料	（Sod-1）
	・50 g/kgw-ﾅﾄﾘｳﾑﾌｫﾙﾑｱﾙﾃﾞﾋﾄﾞ酸系化合物(ﾏｲﾃｨ 150)	（Sod-2）
	・0.5 g/kgw-ﾅﾄﾘｳﾑﾌｫﾙﾑｱﾙﾃﾞﾋﾄﾞ酸系化合物(ﾏｲﾃｨ 150)	（Sod-3）
	・50 g/kgw-ﾎﾟﾘｶﾙﾎﾞﾝ酸系化合物(ﾚｵﾋﾞﾙﾄﾞ SP8LS)	（Sod-4）
	・0.5 g/kgw-ﾎﾟﾘｶﾙﾎﾞﾝ酸系化合物(ﾚｵﾋﾞﾙﾄﾞ SP8LS)	（Sod-5）
pH	12.5（NaOH により調整）	
試験容器	テフロン（PFA）製(30 mL 用)	
液量	20 mL	
還元剤	$Na_2S_2O_4$(ﾌﾞﾗﾝｸ及びﾏｲﾃｨの添加濃度：0.1 mol/dm^3, ﾚｵﾋﾞﾙﾄﾞの添加濃度：0.05 mol/dm^3)	
温度	室温（298±5 K）	
雰囲気	アルゴンガス雰囲気(酸素濃度 1 ppm 以下)	
試験期間	7, 14, 28 , 56 (d)	
n数	2	
固液分離	遠心ろ過(孔径 0.45 μm ろ過，一部 MWCO 10,000 ろ過)	
分析項目	・ pH ・ Eh ・ 各固液分離後の Pu 濃度	

表 2.2.2-1 OPC 平衡水系溶解度試験条件

	溶解度試験	
使用元素	Pu	
Pu 添加濃度	10^{-6} M	
液相 （OPC 平衡液）	・セメント混和剤なしブランク試料 ・50 g/kgw−ﾅﾄﾘｳﾑﾌｫﾙﾑｱﾙﾃﾞﾋﾄﾞ酸系化合物(ﾏｲﾃｨ 150) ・0.5 g/kgw−ﾅﾄﾘｳﾑﾌｫﾙﾑｱﾙﾃﾞﾋﾄﾞ酸系化合物(ﾏｲﾃｨ 150) ・50 g/kgw−ﾎﾟﾘｶﾙﾎﾞﾝ酸系化合物(ﾚｵﾋﾞﾙﾄﾞ SP8LS) ・0.5 g/kgw−ﾎﾟﾘｶﾙﾎﾞﾝ酸系化合物(ﾚｵﾋﾞﾙﾄﾞ SP8LS)	（Soo−1） （Soo−2） （Soo−3） （Soo−4） （Soo−5）
pH	12～13（OPC 平衡液）	
試験容器	テフロン（PFA）製(30 mL 用)	
液量	20 mL	
還元剤	$Na_2S_2O_4$（添加濃度：0.05 mol/dm^3）	
温度	室温（298±5 K）	
雰囲気	アルゴンガス雰囲気(酸素濃度 1 ppm 以下)	
試験期間	7, 14, 28 (d)	
n数	2	
固液分離	遠心ろ過(孔径 0.45 μm ろ過, 一部 MWCO 10,000 ろ過)	
分析項目	・ pH ・ Eh ・ 各固液分離後の Pu 濃度	

表 2.2.2-2 OPC 平衡水分析結果

分析項目	分析値(mg/dm3)		分析方法※1
	0.45 μm ろ過	MWCO 10,000 ろ過	
pH	12.6	12.6	①
Na	22.4	22.2	④
K	59.1	58.2	④
Ca	649	677	②
Ma	＜0.05	＜0.05	②
Al	0.4	0.9	②
Fe	＜0.1	＜0.1	②
Si	0.3	0.4	②
SO_4^{2-}	7.4	7.3	③
Cl^-	0.4	0.4	③
NO_3^-	＜0.5	＜0.5	③
NO_2^-	＜0.5	＜0.5	③
NH_4^+	＜0.2	＜0.2	③
全炭素	4.9	77.4	⑤
全有機体炭素	3.9	77	⑤

※1:分析方法

①電極法(JIS K0101)

②高周波誘導結合プラズマ発光分光分析法(ICP-AES)
パーキンエルマー社製 OPTIMA3300XL 型

③イオンクロマトグラフ分析法(ダイオネクス社製 DX-500 型)

④原子吸光光度法(日立製作所製 Z-8100 型)

⑤燃焼酸化-赤外線分析法(島津製作所製 TOC-5000 型)

表 2.2.3-1 分子量別溶解度試験条件

	溶解度試験	
使用元素	Pu	
Pu 添加濃度	10^{-6} M	
液相 (ﾎﾟﾘｶﾙﾎﾞﾝ酸系化合物(ﾚｵﾋﾞﾙﾄﾞ SP8LS))	・分子量<5000, pH 13.5, TOC 濃度 0.09 mol/dm^3	SOL -1
	・分子量>5000, pH 13.5, TOC 濃度 0.3 mol/dm^3	SOL -2
	・分子量<5000, pH 9.5, TOC 濃度 0.06 mol/dm^3 (還元剤無)	SOL -3-1
	・分子量<5000, pH 9.5, TOC 濃度 0.06 mol/dm^3	SOL -3-2
	・分子量>5000, pH 9.5, TOC 濃度 0.3 mol/dm^3	SOL -4
pH	9.5(蒸留水) 、 13.5(NaOH により調整)	
試験容器	テフロン(PFA)製(30 mL 用)	
液量	20 mL	
還元剤	$Na_2S_2O_4$適量(Eh:－280 mV$_{SHE}$を目標)	
温度	室温(298±5 K)	
雰囲気	アルゴンガス雰囲気(酸素濃度 1 ppm 以下)	
試験期間	14, 28, 56 (d)	
N数	3	
固液分離	遠心ろ過(孔径 0.45 μm ろ過, 一部 MWCO 10,000 ろ過)	
分析項目	・ pH ・ Eh ・ 各固液分離後の Pu 濃度	

表 3.1-1　ORP の Eh（vs. SHE）への補正値

温度（K）	補正値（mV）
283	217
288	214
293	210
298	206
303	203
308	199

東亜ディーケーケー株式会社
酸化還元(ORP)電極取扱説明書より

表 3.2-1　αスペクトロメトリーの検出下限値確認結果

・3σ法により算出、 表 2.1-2 の Pu 組成及び焼付量は 50 µL を想定。

検出器 No.	バックグランド 測定時間(s)	バックグランド カウント数	検出効率	**検出下限値 (mol/dm^3)**
1	516,142	17	0.260	**6.12E−12**
2	516,144	7	0.265	**4.42E−12**
3	516,147	3	0.275	**3.36E−12**
4	516,150	6	0.268	**4.17E−12**
5*1	—	—	—	—
6	516,155	7	0.268	**4.36E−12**
7	516,157	4	0.271	**3.68E−12**
8	516,160	7	0.248	**4.72E−12**
9	516,163	4	0.257	**3.87E−12**
10*1	—	—	—	—
11	516,166	5	0.252	**4.20E−12**
12	516,168	17	0.252	**6.31E−12**
13	516,171	11	0.263	**5.18E−12**
14	516,173	7	0.264	**4.44E−12**
15	516,175	2	0.260	**3.26E−12**
16	516,177	5	0.282	**3.76E−12**

*1：検出器No.5，10 は故障中のため未測定

表 4.1.1-1 脱気水系溶解度試験結果（pH･Eh）

	液組成		サンプル名	pH/Eh	7日目	14日目	28日目	56日目
蒸留水系	有機物なし（ブランク） 0 g/kgw		Sod－1	pH	12.49	12.50	12.45	12.23
				Eh(mV_{SHE})	−734	−720	−740	−694
有機物（セメント混和剤）共存下	マイティ	50 g/kgw	Sod－2	pH	12.49	12.50	12.45	12.24
				Eh(mV_{SHE})	−745	−757	−765	−767
		0.5 g/kgw	Sod－3	pH	12.52	12.52	12.53	12.31
				Eh(mV_{SHE})	−748	−755	−755	−739
	レオビルド	50 g/kgw	Sod－4	pH	12.51	12.52	12.42	12.24
				Eh(mV_{SHE})	−651	−660	−640	−112
		0.5 g/kgw	Sod－5	pH	12.57	12.58	12.43	12.22
				Eh(mV_{SHE})	−638	−630	−620	−105

表 4.1.2-1 脱気水系溶解度試験結果（Pu 濃度）

〔Pu 濃度単位：mol/dm^3〕

液組成			サンプル名	7日目（0.45 μm ろ過） Pu 濃度		平均	14日目（0.45 μm ろ過） Pu 濃度		平均	28日目（0.45 μm ろ過） Pu 濃度		平均	28日目（MWCO10,000 ろ過） Pu 濃度		平均	56日目（0.45 μm ろ過） Pu 濃度		平均
脱気水のみ	有機物なし（ブランク） 0 g/kgw		Sod-1	2.81E-08	2.99E-08	2.90E-08	5.45E-10	5.46E-10	5.46E-10	9.48E-10	8.61E-10	9.04E-10	9.14E-11	7.99E-11	8.56E-11	4.53E-10	6.43E-10	5.48E-10
有機物（セメント混和剤）共存下	マイティ	50 g/kgw	Sod-2A	1.49E-07	1.58E-07	1.65E-07	1.57E-07	1.39E-07	1.51E-07	1.71E-07	1.63E-07	1.70E-07	4.30E-09	5.85E-09	4.34E-09	1.56E-07	1.58E-07	1.53E-07
			Sod-2B	1.82E-07	1.73E-07		1.48E-07	1.60E-07		1.79E-07	1.66E-07		3.78E-09	3.44E-09		1.45E-07	1.52E-07	
		0.5 g/kgw	Sod-3A	1.68E-07	1.47E-07	1.47E-07	1.47E-07	1.59E-07	1.47E-07	1.54E-07	1.44E-07	1.51E-07	3.32E-10	3.65E-10	2.17E-10	1.39E-07	1.06E-07	1.27E-07
			Sod-3B	1.38E-07	1.33E-07		1.40E-07	1.44E-07		1.45E-07	1.59E-07		1.03E-11	1.60E-10		1.22E-07	1.41E-07	
	レオビルド	50 g/kgw	Sod-4A	1.60E-07	1.55E-07	1.83E-07	1.86E-07	1.75E-07	1.78E-07	1.81E-07	1.72E-07	1.81E-07	5.68E-08	5.01E-08	9.48E-08	5.85E-08	9.17E-08	1.01E-07
			Sod-4B	2.15E-07	2.03E-07		1.76E-07	1.77E-07		1.78E-07	1.93E-07		1.28E-07	1.45E-07		9.48E-08	1.57E-07	
		0.5 g/kgw	Sod-5A	2.58E-07	2.78E-07	2.24E-07	2.33E-07	2.34E-07	2.00E-07	2.21E-07	2.27E-07	1.98E-07	8.58E-09	9.20E-09	4.75E-09	9.40E-08	1.02E-07	1.01E-07
			Sod-5B	1.78E-07	1.82E-07		1.67E-07	1.67E-07		1.78E-07	1.67E-07		5.28E-10	6.77E-10		1.01E-07	1.08E-07	

表 4.2.1-1 OPC 平衡水系溶解度試験結果（pH・Eh）

	液組成		サンプル名	pH/Eh	7日目	14日目	28日目
平衡水系	有機物なし（ブランク） 0 g/kgw		Soo－1	pH	12.22	12.21	12.21
				Eh(mV_{SHE})	−764	−739	−794
有機物（セメント混和剤）共存下	マイティ	50 g/kgw	Soo－2	pH	12.21	12.14	12.15
				Eh(mV_{SHE})	−754	−775	−804
		0.5 g/kgw	Soo－3	pH	12.23	12.25	12.27
				Eh(mV_{SHE})	−740	−762	−799
	レオビルド	50 g/kgw	Soo－4	pH	12.38	12.26	12.15
				Eh(mV_{SHE})	−760	−783	−791
		0.5 g/kgw	Soo－5	pH	12.40	12.30	12.22
				Eh(mV_{SHE})	−755	−777	−793

表 4.2.2-1 OPC 平衡水系溶解度試験結果（Pu 濃度）

〔Pu 濃度単位：mol/dm^3〕

液組成			サンプル名	7日目（0.45μm ろ過）			14日目（0.45μm ろ過）			28日目（0.45μm ろ過）			28日目（MWCO10,000 ろ過）		
				Pu 濃度		平均	Pu 濃度		平均	Pu 濃度		平均	Pu 濃度		平均
平衡水系	有機物なし（ブランク）0 g/kgw		Soo-1A	4.72E-11	8.07E-11	1.29E-10	2.05E-10	1.81E-10	1.14E-10	4.94E-10	2.39E-11	2.75E-10	3.52E-10	3.57E-12	1.89E-10
			Soo-1B	1.60E-10	2.28E-10		6.66E-11	3.80E-12		3.64E-10	2.19E-10		2.53E-10	1.47E-10	
有機物（セメント混和剤）共存下	マイティ	50 g/kgw	Soo-2A	1.14E-07	1.07E-07	9.94E-08	1.09E-07	9.86E-08	9.88E-08	1.03E-07	1.09E-07	1.08E-07	5.01E-10	3.65E-10	4.35E-10
			Soo-2B	9.02E-08	8.63E-08		9.30E-08	9.47E-08		1.02E-07	1.17E-07		3.02E-10	5.71E-10	
		0.5 g/kgw	Soo-3A	2.62E-08	3.01E-08	4.37E-08	2.31E-08	2.62E-08	4.15E-08	3.14E-08	3.46E-08	4.42E-08	5.87E-11	6.07E-12	2.45E-11
			Soo-3B	6.03E-08	5.81E-08		5.53E-08	6.13E-08		5.44E-08	5.63E-08		2.72E-11	5.95E-12	
	レオビルド	50 g/kgw	Soo-4A	1.56E-07	1.42E-07	1.49E-07	1.67E-07	1.60E-07	1.58E-07	4.41E-07	3.96E-07	2.82E-07	3.59E-09	3.76E-09	3.61E-09
			Soo-4B	1.46E-07	1.53E-07		1.60E-07	1.47E-07		1.45E-07	1.48E-07		3.50E-09	3.59E-09	
		0.5 g/kgw	Soo-5A	9.44E-08	9.41E-08	9.57E-08	7.80E-08	7.85E-08	8.69E-08	5.77E-08	6.28E-08	9.73E-08	2.67E-10	2.32E-10	1.97E-10
			Soo-5B	9.98E-08	9.47E-08		9.60E-08	9.51E-08		1.57E-07	1.12E-07		1.96E-10	9.44E-11	

表 4.3.1-1 分子量別溶解度試験結果（pH・Eh）

〔 対象混和剤：レオビルド 〕

pH	分子量	TOC濃度 (mol/dm^3)	還元剤 (mol/dm^3)	サンプル名	pH/Eh	14日目	28日目	56日目
13.5	<5,000	0.09	0.01	SOL−1	pH	13.15	13.11	13.56
					Eh(mV_{SHE})	−169	−101	−260
	>5,000	0.3	0.005	SOL−2	pH	13.66	13.61	13.76
					Eh(mV_{SHE})	−459	−403	−330
9.5	<5,000	0.06	無	SOL−3-1	pH	8.93	9.12	9.08
					Eh(mV_{SHE})	189	171	197
	<5,000	0.06	0.144	SOL−3-2	pH	8.94	9.02	9.28
					Eh(mV_{SHE})	−484	−570	−589
	>5,000	0.3	0.02	SOL−4	pH	8.86	9.48	9.05
					Eh(mV_{SHE})	−90	−80	−82

表 4.3.2-1　分子量別溶解度試験結果（Pu 濃度）

〔対象混和剤：レオビルド，Pu 濃度単位：mol/dm³〕

液組成 pH	分子量	TOC 濃度 (mol/dm³)	還元剤 (mol/dm³)	サンプル名	14日目 (0.45 μm ろ過) Pu 濃度		14日目 平均	28日目 (0.45 μm ろ過) Pu 濃度		28日目 平均	56日目 (0.45 μm ろ過) Pu 濃度		56日目 平均	56日目 (MWCO 10,000 ろ過) Pu 濃度		56日目 (MWCO) 平均
13.5	<5,000	0.09	0.01	SOL-1A	7.48E-08	8.03E-08	1.16E-07	6.95E-08	7.21E-08	1.08E-07	7.68E-08	7.54E-08	1.21E-07	2.36E-08	2.58E-08	2.74E-08
				SOL-1B	1.15E-07	1.27E-07		1.29E-07	1.39E-07		1.40E-07	1.47E-07		3.32E-08	3.09E-08	
				SOL-1C	1.54E-07	1.43E-07		1.22E-07	1.18E-07		1.45E-07	1.41E-07		2.80E-08	2.26E-08	
	>5,000	0.3	0.005	SOL-2A	2.20E-08	2.31E-08	2.50E-08	1.77E-08	1.65E-08	1.76E-08	6.84E-09	7.54E-09	1.18E-08	2.68E-09	2.99E-09	3.97E-09
				SOL-2B	4.00E-08	2.85E-08		2.37E-08	2.40E-08		1.62E-08	1.80E-08		6.96E-09	7.80E-09	
				SOL-2C	2.20E-08	1.43E-08		1.41E-08	9.88E-09		1.39E-08	8.39E-09		1.38E-09	2.03E-09	
9.5	<5,000	0.06	無	SOL-3A	8.11E-08	8.94E-08	7.96E-08	8.00E-08	8.52E-08	7.37E-08	6.80E-08	6.85E-08	6.40E-08	2.38E-08	2.12E-08	1.61E-08
				SOL-3B	5.65E-08	5.83E-08		5.70E-08	5.82E-08		5.55E-08	6.02E-08		7.64E-09	8.06E-09	
				SOL-3C	9.94E-08	9.30E-08		8.54E-08	7.66E-08		6.58E-08	6.60E-08		1.81E-08	1.79E-08	
	<5,000	0.06	0.144	SOL-3D	7.09E-07	6.21E-07	8.96E-07	9.97E-07	9.52E-07	8.92E-07	6.57E-07	7.25E-07	8.58E-07	4.91E-07	5.33E-07	7.58E-07
				SOL-3E	1.06E-06	1.12E-06		7.40E-07	7.91E-07		8.92E-07	9.20E-07		7.89E-07	7.89E-07	
				SOL-3F	8.87E-07	9.83E-07		9.70E-07	9.03E-07		1.04E-06	9.17E-07		1.00E-06	9.44E-07	
	>5,000	0.3	0.02	SOL-4A	3.20E-07	3.69E-07	3.27E-07	2.31E-07	2.42E-07	3.25E-07	2.23E-07	2.35E-07	2.92E-07	3.28E-11	2.28E-10	6.04E-10
				SOL-4B	3.57E-07	3.15E-07		3.75E-07	3.76E-07		3.09E-07	3.07E-07		3.95E-11	1.89E-10	
				SOL-4C	3.14E-07	2.89E-07		3.88E-07	3.36E-07		3.62E-07	3.17E-07		1.53E-09	1.61E-09	
参考：有機物無添加			0.05	Soo-1A	2.05E-10	1.81E-10	1.14E-10	4.94E-10	2.39E-11	2.75E-10						
				Soo-1B	6.66E-11	3.80E-12		3.64E-10	2.19E-10							

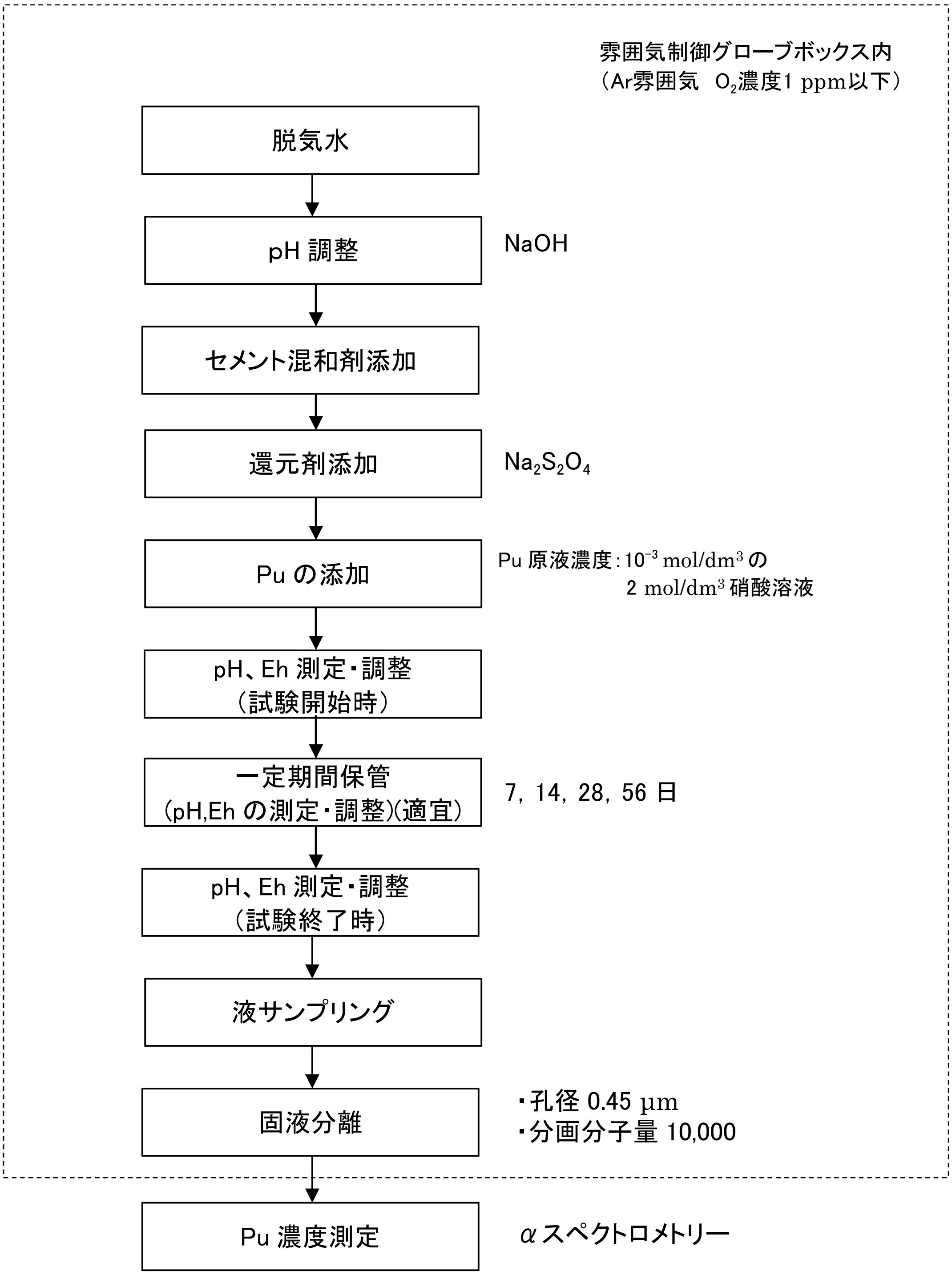


図 2.2.1-1　脱気水系溶解度試験手順

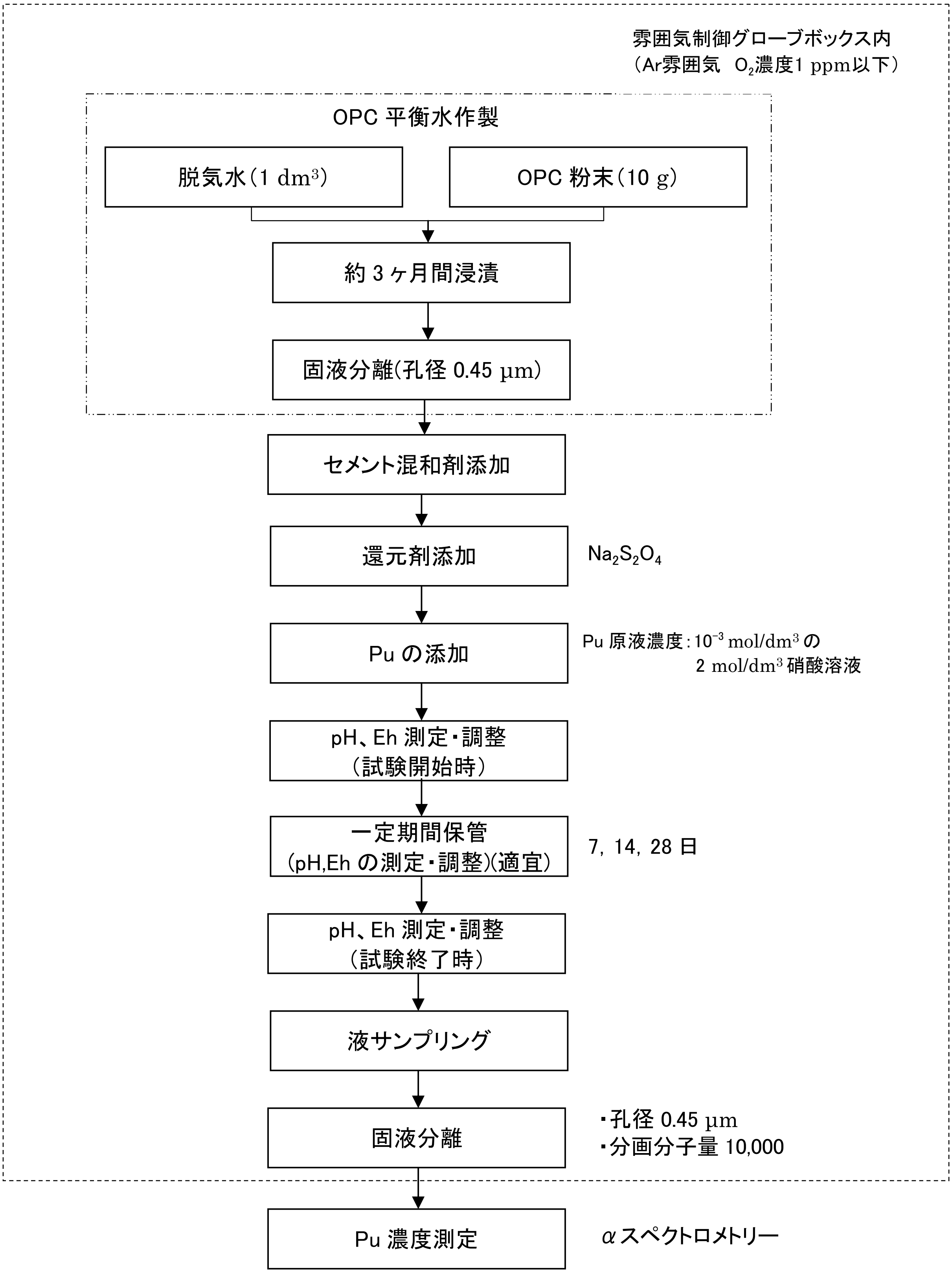


図 2.2.2-1　OPC 平衡水系溶解度試験手順

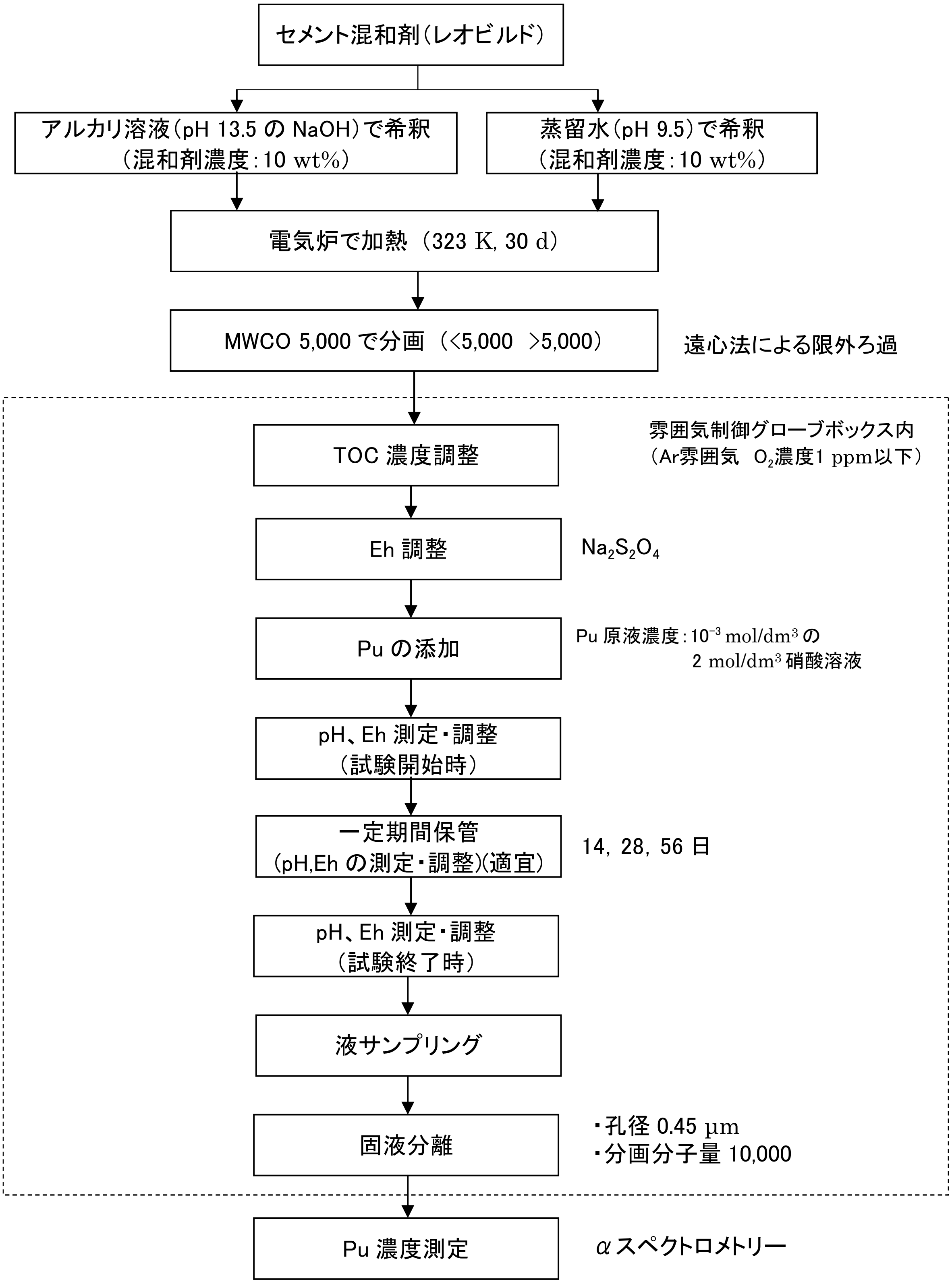
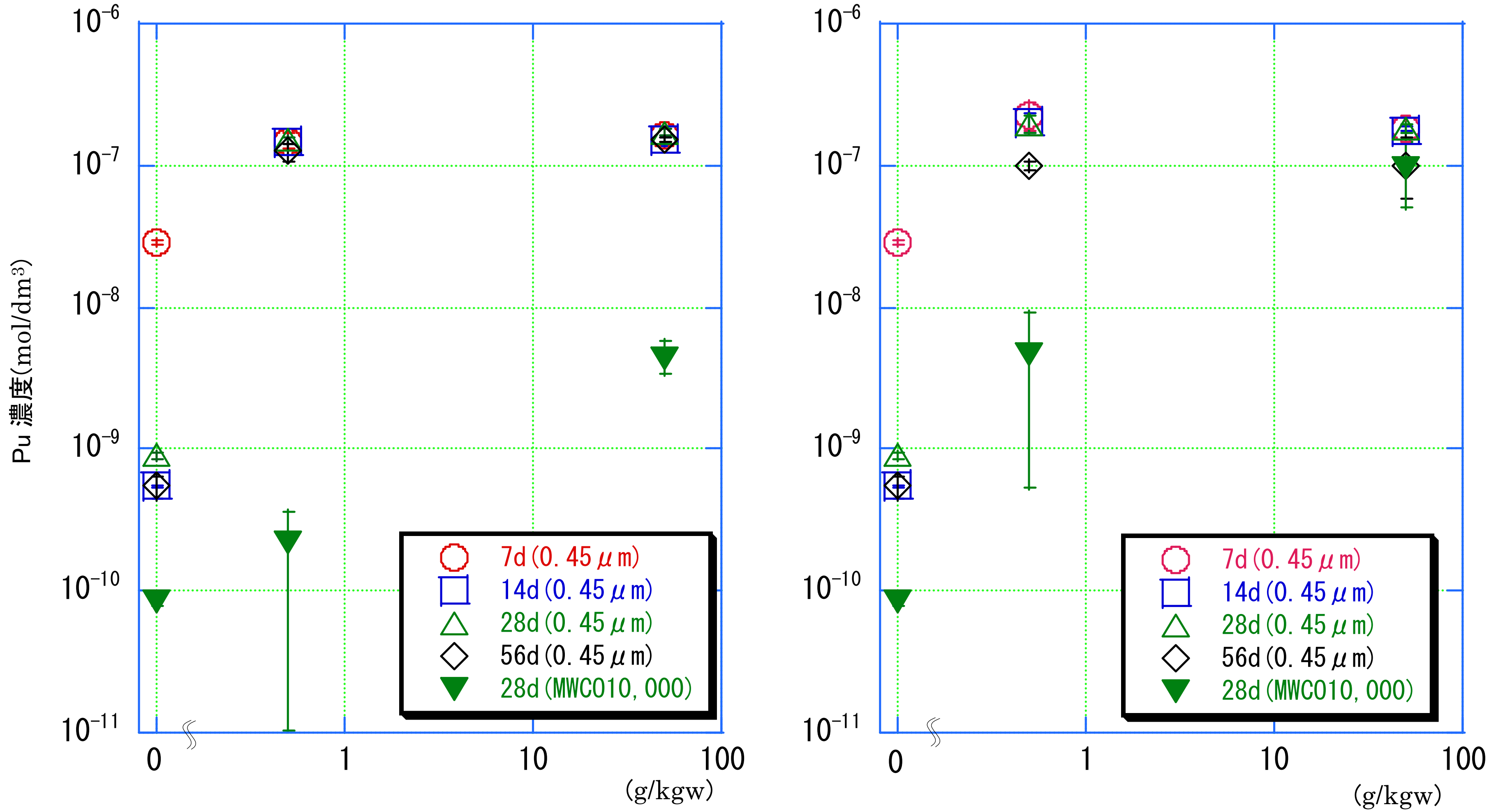


図 2.2.3-1　分子量別溶解度試験手順



セメント混和剤(マイティ 150)濃度　　セメント混和剤(レオビルド SP8LS)濃度

図 4.1.2-1　脱気水系溶解度試験結果

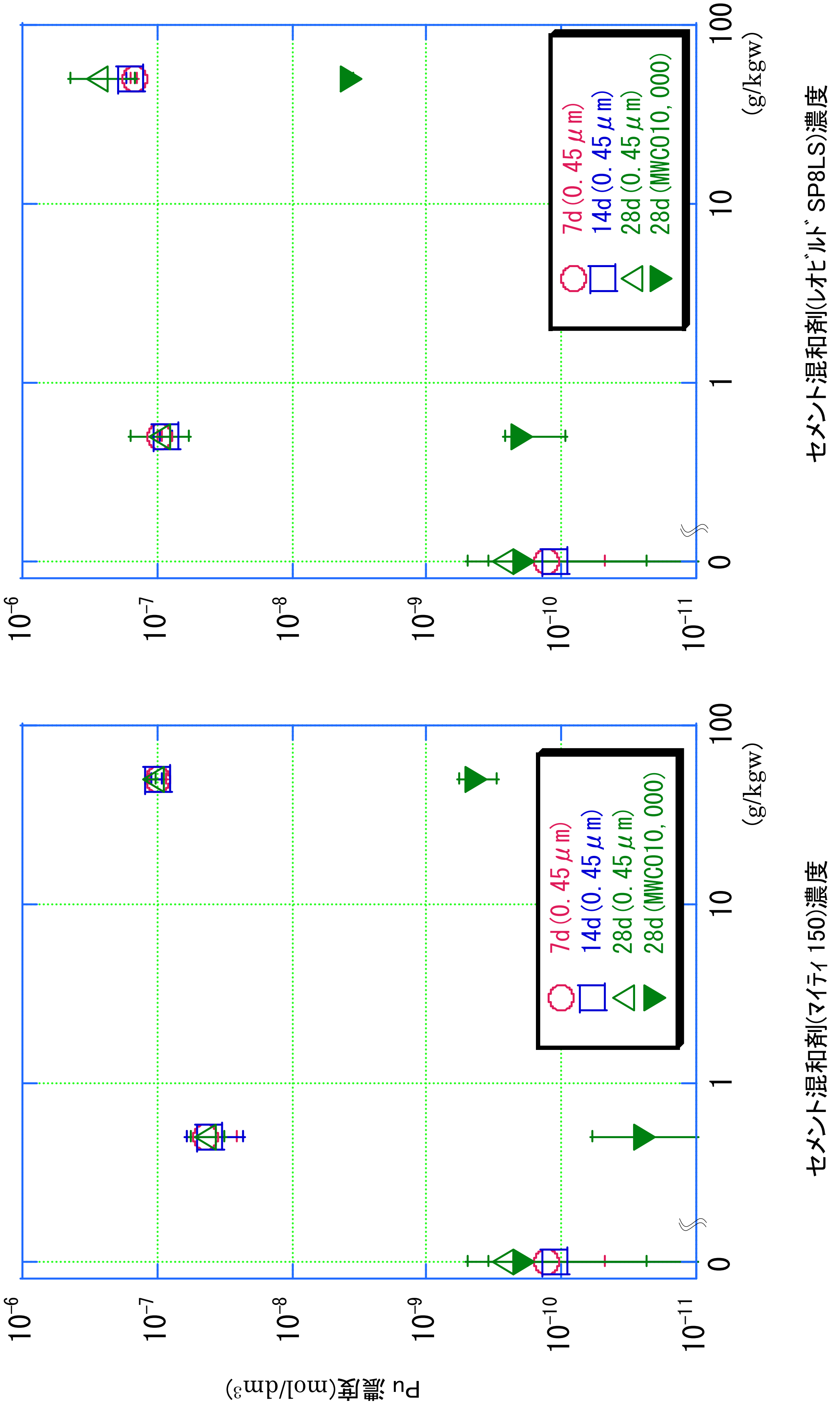


図 4.2.2-1 OPC 平衡水系溶解度試験結果

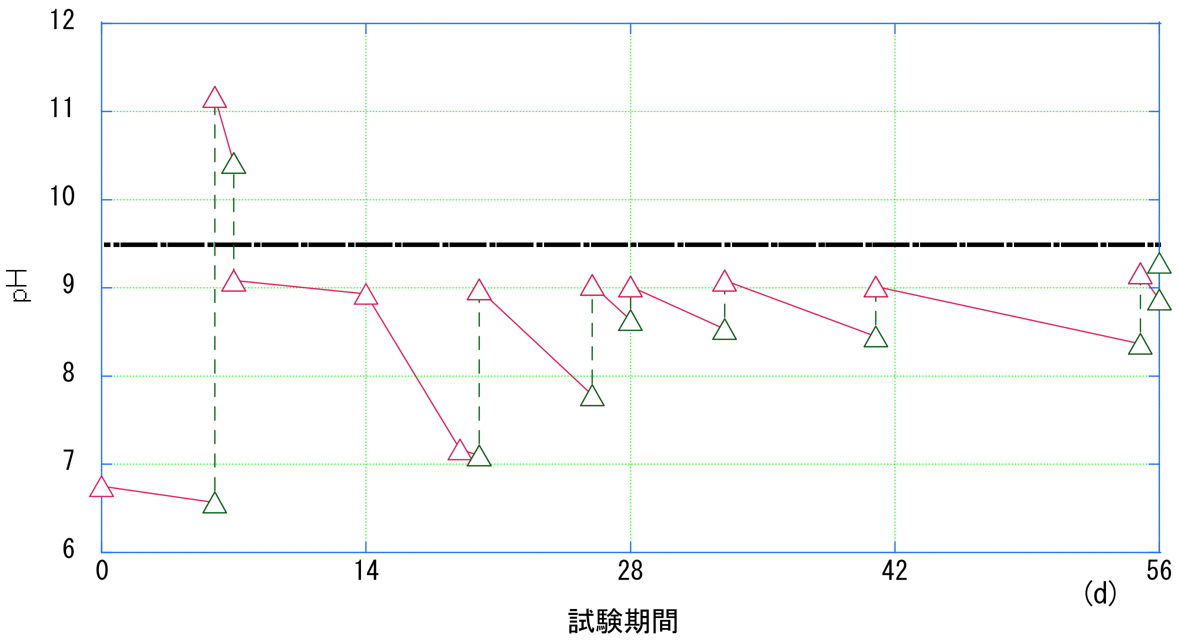


図4.3.1-1　pH 調整（SOL-3-2）

※ 点線は pH 調整を表す

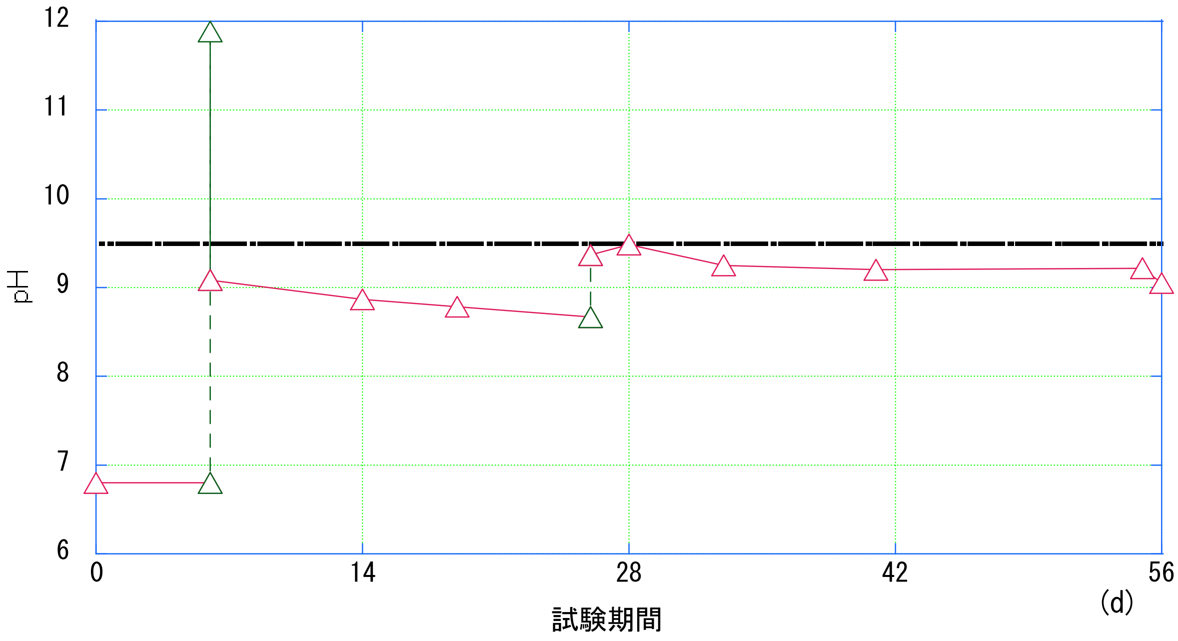
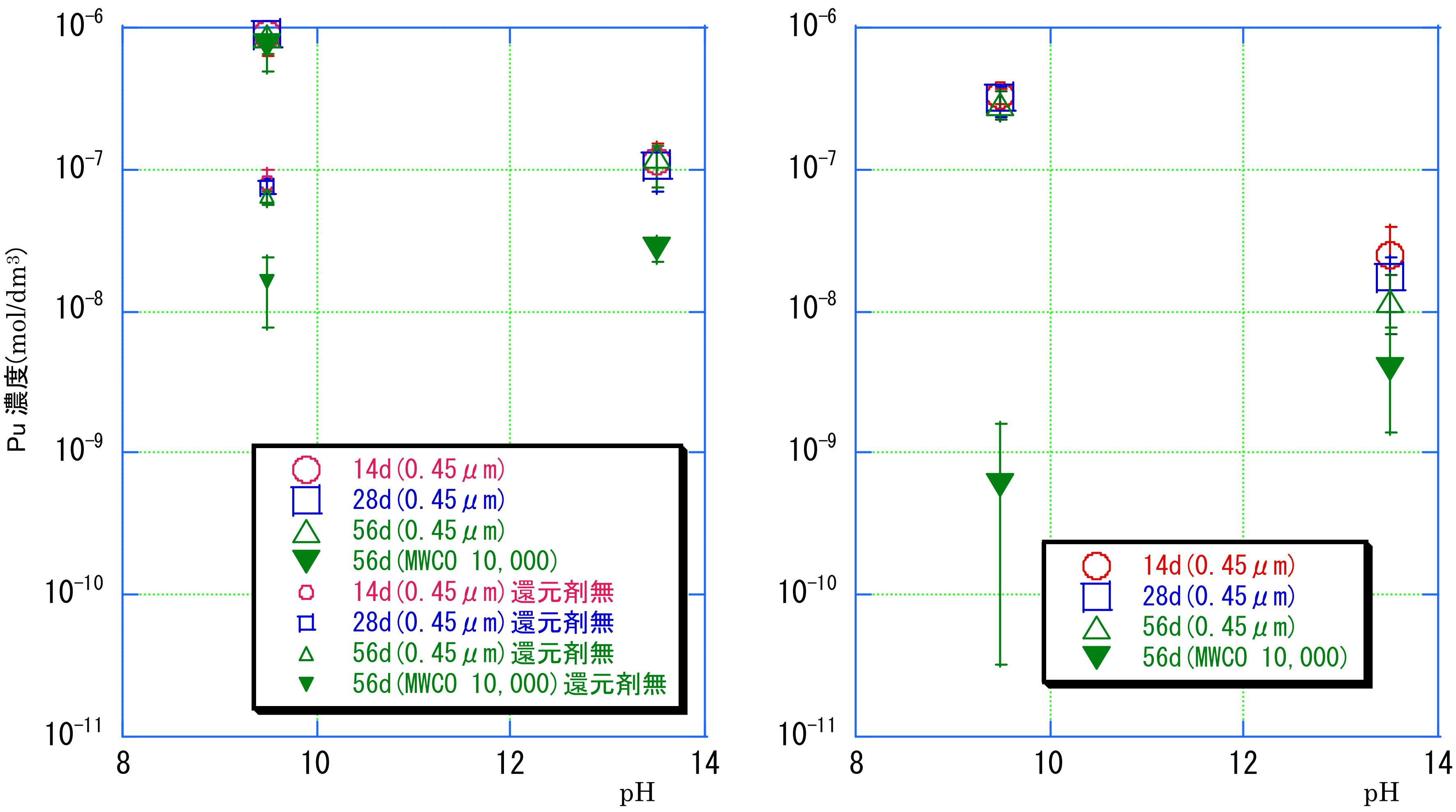


図4.3.1-2　pH 調整（SOL-4）

※ 点線は pH 調整を表す



分子量（＜5,000）　　分子量（＞5,000）

図 4.3.2-1　分子量別溶解度試験結果（分子量別）

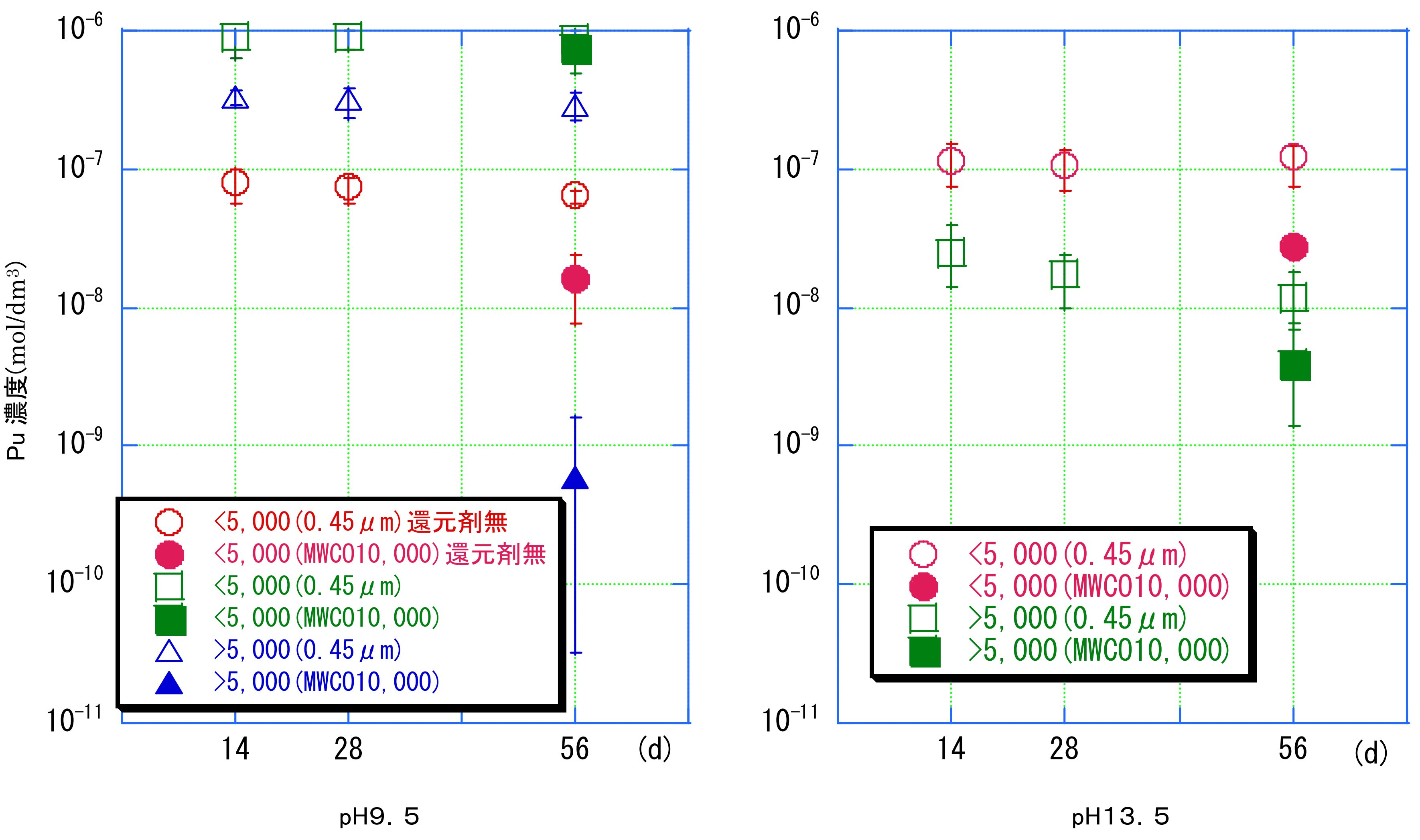


図 4.3.2-2 分子量別溶解度試験結果（pH 別）

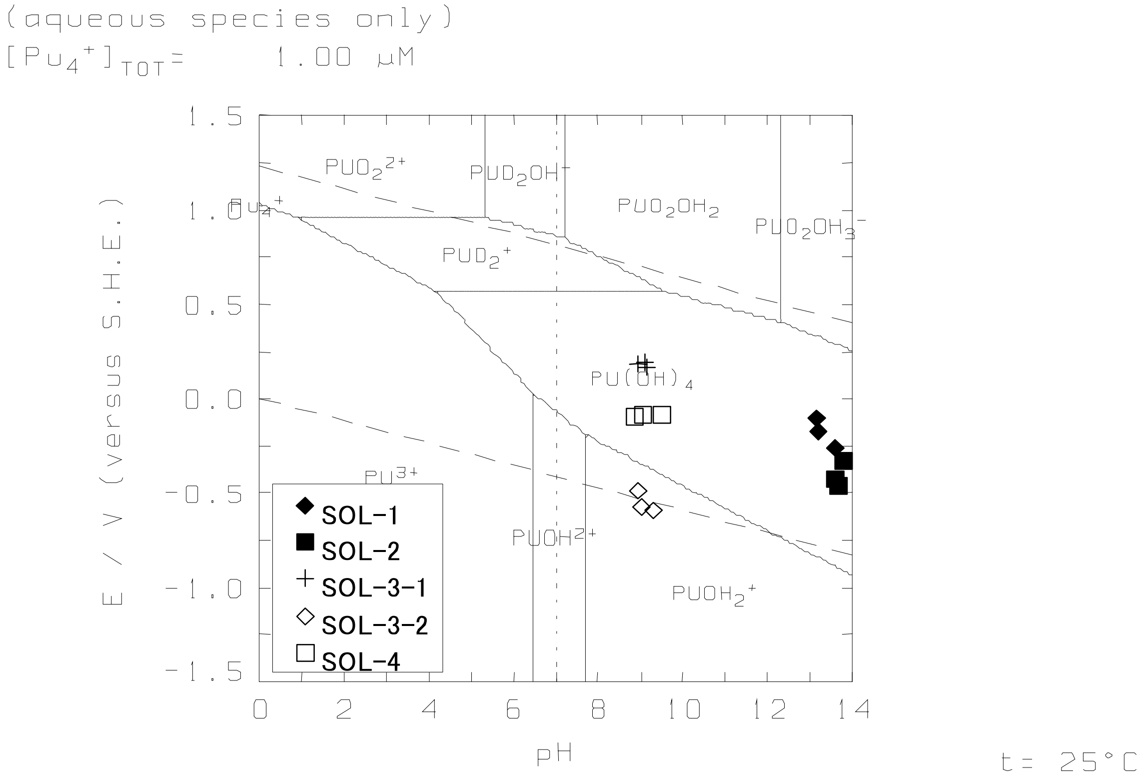


図5-1 Pu の Eh-pH 線図と試験における Eh-pH 実測値との関係

国際単位系（SI）

表１．SI 基本単位

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

表２．基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

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

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

表３．固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン[(b)]	rad	1[(b)]	m/m
立体角	ステラジアン[(b)]	sr[(c)]	1[(b)]	$m^{2/}m^2$
周波数	ヘルツ[(d)]	Hz		s^{-1}
力	ニュートン	N		$m\ kg\ s^{-2}$
圧力，応力	パスカル	Pa	N/m^2	$m^{-1}\ kg\ s^{-2}$
エネルギー，仕事，熱量	ジュール	J	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
仕事率，工率，放射束	ワット	W	J/s	$m^2\ kg\ s^{-3}$
電荷，電気量	クーロン	C		s A
電位差（電圧），起電力	ボルト	V	W/A	$m^2\ kg\ s^{-3}\ A^{-1}$
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^{-2}\ kg^{-1}\ s^4\ A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	$m^2\ kg\ s^{-3}\ A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2}\ kg^{-1}\ s^3\ A^2$
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	$m^2\ kg\ s^{-2}\ A^{-1}$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2	$kg\ s^{-2}\ A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	$m^2\ kg\ s^{-2}\ A^{-2}$
セルシウス温度	セルシウス度[(e)]	℃		K
光束	ルーメン	lm	cd sr[(c)]	cd
照度	ルクス	lx	lm/m^2	$m^{-2}\ cd$
放射性核種の放射能[(f)]	ベクレル[(d)]	Bq		s^{-1}
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト[(g)]	Sv	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
酸素活性	カタール	kat		$s^{-1}\ mol$

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b)ラジアンとステラジアンは数字の１に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、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	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	$m^{-1}\ kg\ s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	$kg\ s^{-2}$
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	$m\ m^{-1}\ s^{-1}=s^{-1}$
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	$m\ m^{-1}\ s^{-2}=s^{-2}$
熱流密度，放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^2	$kg\ s^{-3}$
熱容量，エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}$
比熱容量，比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^2\ s^{-2}\ K^{-1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	$m\ kg\ s^{-3}\ K^{-1}$
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m^3	$m^{-1}\ kg\ s^{-2}$
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	$m\ kg\ s^{-3}\ A^{-1}$
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m^3	$m^{-3}\ sA$
表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2}\ sA$
電束密度，電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2}\ sA$
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3}\ kg^{-1}\ s^4\ A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	$m\ kg\ s^{-2}\ A^{-2}$
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2\ kg\ s^{-2}\ mol^{-1}$
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)	$m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}\ mol^{-1}$
照射線量（Ｘ線及びγ線）	クーロン毎キログラム	C/kg	$kg^{-1}\ sA$
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^2\ s^{-3}$
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4\ m^{-2}\ kg\ s^{-3}=m^2\ kg\ s^{-3}$
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2\ sr)$	$m^2\ m^{-2}\ kg\ s^{-3}=kg\ s^{-3}$
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m^3	$m^{-3}\ s^{-1}\ mol$

表５．SI 接頭語

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

表６．SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	’	1’=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	”	1”=(1/60)’=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	$1ha=1hm^2=10^4m^2$
リットル	L，l	$1L=11=1dm^3=10^3cm^3=10^{-3}m^3$
トン	t	$1t=10^3\ kg$

表７．SIに属さないが、SIと併用される単位で、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	$1eV=1.602\ 176\ 53(14)\times10^{-19}J$
ダルトン	Da	$1Da=1.660\ 538\ 86(28)\times10^{-27}kg$
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	$1ua=1.495\ 978\ 706\ 91(6)\times10^{11}m$

表８．SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

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

表９．固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	$1\ erg=10^{-7}\ J$
ダイン	dyn	$1\ dyn=10^{-5}N$
ポアズ	P	$1\ P=1\ dyn\ s\ cm^{-2}=0.1Pa\ s$
ストークス	St	$1\ St\ =1cm^2\ s^{-1}=10^{-4}m^2\ s^{-1}$
スチルブ	sb	$1\ sb\ =1cd\ cm^{-2}=10^4cd\ m^{-2}$
フォト	ph	$1\ ph=1cd\ sr\ cm^{-2}\ 10^4lx$
ガル	Gal	$1\ Gal\ =1cm\ s^{-2}=10^{-2}ms^{-2}$
マクスウェル	Mx	$1\ Mx = 1G\ cm^2=10^{-8}Wb$
ガウス	G	$1\ G\ =1Mx\ cm^{-2}\ =10^{-4}T$
エルステッド[(c)]	Oe	$1\ Oe \triangleq (10^3/4\pi)A\ m^{-1}$

(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「 $\triangleq$ 」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	$1\ Ci=3.7\times10^{10}Bq$
レントゲン	R	$1\ R = 2.58\times10^{-4}C/kg$
ラド	rad	$1\ rad=1cGy=10^{-2}Gy$
レム	rem	$1\ rem=1\ cSv=10^{-2}Sv$
ガンマ	γ	1γ=1 nT=10-9T
フェルミ		1フェルミ=1 fm=10-15m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10-4kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリー	cal	1cal=4.1858J（「15℃」カロリー），4.1868J（「IT」カロリー）4.184J（「熱化学」カロリー）
ミクロン	µ	$1\ \mu=1\mu m=10^{-6}m$

（第8版，2006年改訂）

この印刷物は再生紙を使用しています