

JAERI-M

6 4 5 7

放射性廃棄物セメント固化体の安全評価

(3. 浸出に及ぼす供試体の形状の影響)

1976年3月

松鶴 秀夫・比佐 勇・大内 康喜  
森山 升・和達 嘉樹・伊藤 彰彦

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合せは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

放射性廃棄物セメント固化体の安全評価  
(3. 浸出に及ぼす供試体の形状の影響)

日本原子力研究所東海研究所保健物理安全管理部

松鶴秀夫・比佐 勇・大内康喜

森山 昇・和達嘉樹・伊藤彰彦

(1976年2月10日受理)

放射性廃棄物セメント固化体の海洋処分にあたって、その安全性を評価するため、放射性核種の浸出量と供試体の表面積－体積比との関係を調べた。 $^{137}\text{Cs}$  および  $^{60}\text{Co}$  を用いて、表面積－体積比を変化させ浸出比を求めた。

その結果、 $^{137}\text{Cs}$  および  $^{60}\text{Co}$  のいずれの場合も、浸出比と表面積－体積比との関係は比例関係にあり、平面拡散源モデルから導かれる拡散式から予想されるものと一致した。これらの知見をもとにして、IAEA サイズ ( $45\text{ cm}\phi \times 4.4\text{ cm}$  の円柱体) の供試体を用いて行なった浸出試験から、200 ラドラム缶大のセメント固化体の浸出挙動の予測を行なった。

Safety Evaluation of the Radioactive Waste-Cement Composites

3. Effect of the geometry on the leachability

Hideo MATSUZURU, Isamu HISA, Koki OUCHI,

Noboru MORIYAMA, Yoshiki WADACHI, and Akihiko ITO

Division of Health Physics and Safety, Tokai, JAERI

(Received February 10, 1976)

The relation between the leaching ratio and the ratio of surface area and volume(S/V) has been studied in safety evaluation of the radioactive waste-cement composites for sea disposal. The leaching ratios of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  were determined for the different S/V values.

In both  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$ , the leachability is directly proportional to the S/V ratio. It is in harmony with that expected from the diffusion equation derived with a plane source model.

The leached amounts of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  from 200 l drum size specimens are estimated on the basis of the above relation, referring to the data of IAEA size specimens.

## 目 次

1. 諸 言 .....	1
2. 実 驗 .....	1
2.1 試料および試薬 .....	1
2.2 実験操作 .....	2
3. 結果および考察 .....	2
3.1 $^{137}\text{Cs}$ の浸出 .....	3
3.2 $^{60}\text{Co}$ の浸出 .....	4
4. 浸出量予測 .....	4
5. 文 献 .....	5

## 1 緒 言

放射性廃棄物のセメント固化体の海洋処分に関する安全評価の一部に、固化体からの放射性物質の浸出性の評価があげられる。国際原子力機構（IAEA）が浸出試験法ならびに結果の表示法に関して、暫定指針<sup>1)</sup>を提案して以来浸出試験用供試体として円柱体（4.5 cm  $\phi$  × 4.4 cm）が採用されるようになってきた。著者らは前報<sup>2)</sup>において上記の形状の円柱体を用いて、セメント固化体からの放射性物質の浸出性の評価を検討した。また浸出過程の表示法においても、IAEAの提案した平面拡散源モデルから導かれる拡散式を用いた。このモデルでは平面からの拡散を問題としているので、拡散量は試料の表面積の函数として表わされる。しかし、実際の浸出試験では円柱体を用いているので、4.5 cm  $\phi$  × 4.4 cm の円柱体（以下 IAEA サイズの円柱体と略記する）について得られた浸出試験結果に基づいて、200 ℥ ドラム缶大の円柱体の浸出挙動を予測する際には、供試体の形状と浸出との関係を明らかにしておく必要がある。今まで、このような検討の報告例はないようである。

本報告では、放射性核種に<sup>60</sup>Co と <sup>137</sup>Cs を用いて浸出比の表面積依存性を調べた。供試体として IAEA サイズ、IAEA サイズの 1/2 および 1/4 分割体を用いて、供試体の表面積 - 容積の比を変化させ、浸出に及ぼす供試体の形状の影響を検討した。

得られた結果に基づいて、IAEA サイズの供試体について得られた浸出試験結果から 200 ℥ ドラム缶大の供試体の浸出挙動を予測する。

## 2 実 験

### 2.1 試料および試薬

BWR の蒸発缶濃縮廃液は、硫酸ナトリウムの所定量を水に溶解し、<sup>137</sup>Cs もしくは<sup>60</sup>Co を所定量加え、pH を 8 ~ 9 にして調製した。<sup>137</sup>Cs もしくは<sup>60</sup>Co の添加量は、供試体（4.5 cm  $\phi$  × 4.4 cm の円柱体）1 個当たりそれぞれ 100  $\mu$ Ci または 250  $\mu$ Ci 程度になるようにした。

セメントは普通ポルトランドセメントと C 種高炉セメントを用いた（組成は前報<sup>2)</sup>に記した）。ゼオライトは北海道長万部産（mordenite と clinoptilolite の混合物でゼオライト成分を 50 ~ 60 % 含有）で、粒度 100 ~ 300  $\mu$  程度のものを用いた。ゼオライトの化学組成は Shapiro<sup>3)</sup> らの方法で求め、結果を Table 1 に示す。

試薬は市販の特級品をそのまま用いた。用いた <sup>137</sup>Cs (Oak Ridge National Lab., 比放射能: carrier free) の化学形は塩化セシウムで、<sup>60</sup>Co (日本原子力研究所, 比放射能:  $7.3 \times 10^8$  mCi/g. Co) の化学形は塩化コバルト (II) である。

浸出水としてイオン交換水を用いた。

## 1 緒 言

放射性廃棄物のセメント固化体の海洋処分に関する安全評価の一部に、固化体からの放射性物質の浸出性の評価があげられる。国際原子力機構（IAEA）が浸出試験法ならびに結果の表示法に関して、暫定指針<sup>1)</sup>を提案して以来浸出試験用供試体として円柱体（4.5 cm  $\phi$  × 4.4 cm）が採用されるようになってきた。著者らは前報<sup>2)</sup>において上記の形状の円柱体を用いて、セメント固化体からの放射性物質の浸出性の評価を検討した。また浸出過程の表示法においても、IAEAの提案した平面拡散源モデルから導かれる拡散式を用いた。このモデルでは平面からの拡散を問題としているので、拡散量は試料の表面積の函数として表わされる。しかし、実際の浸出試験では円柱体を用いているので、4.5 cm  $\phi$  × 4.4 cm の円柱体（以下 IAEA サイズの円柱体と略記する）について得られた浸出試験結果に基づいて、200 ドラム缶大の円柱体の浸出挙動を予測する際には、供試体の形状と浸出との関係を明らかにしておく必要がある。今まで、このような検討の報告例はないようである。

本報告では、放射性核種に  $^{60}\text{Co}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を用いて浸出比の表面積依存性を調べた。供試体として IAEA サイズ、IAEA サイズの 1/2 および 1/4 分割体を用いて、供試体の表面積-容積の比を変化させ、浸出に及ぼす供試体の形状の影響を検討した。

得られた結果に基づいて、IAEA サイズの供試体について得られた浸出試験結果から 200 ドラム缶大の供試体の浸出挙動を予測する。

## 2 実 験

### 2.1 試料および試薬

BWR の蒸発缶濃縮廃液は、硫酸ナトリウムの所定量を水に溶解し、 $^{137}\text{Cs}$  もしくは  $^{60}\text{Co}$  を所定量加え、pH を 8 ~ 9 にして調製した。 $^{137}\text{Cs}$  もしくは  $^{60}\text{Co}$  の添加量は、供試体（4.5 cm  $\phi$  × 4.4 cm の円柱体）1 個当たりそれぞれ 100  $\mu\text{Ci}$  または 250  $\mu\text{Ci}$  程度になるようにした。

セメントは普通ポルトランドセメントと C 種高炉セメントを用いた（組成は前報<sup>2)</sup>に記した）。ゼオライトは北海道長万部産（mordenite と clinoptilolite の混合物でゼオライト成分を 50 ~ 60 % 含有）で、粒度 100 ~ 300  $\mu$  程度のものを用いた。ゼオライトの化学組成は Shapiro<sup>3)</sup> らの方法で求め、結果を Table 1 に示す。

試薬は市販の特級品をそのまま用いた。用いた  $^{137}\text{Cs}$  (Oak Ridge National Lab., 比放射能: carrier free) の化学形は塩化セシウムで、 $^{60}\text{Co}$  (日本原子力研究所, 比放射能:  $7.3 \times 10^3$  mCi/g, Co) の化学形は塩化コバルト(II) である。

浸出水としてイオン交換水を用いた。

## 2.2 実験操作

浸出試験に用いる供試体は、直径 4.5 cm、高さ 4.4 cm の円柱体を基本とし、これを 2 分割および 4 分割したものを用いた（Photo. 1 参照）。

供試体は廃液と固化材（セメントまたはセメントとゼオライトの混合物）を廃液—セメント比 ( $W_a/C$ ) 4.2% または 6.0% で均一に練り混ぜ、アクリル製円筒状型枠に注ぎ込んで作成した。型枠上部にアクリル製板を置き、これを空気中で養生した。

浸出試験法については前報<sup>2)</sup>に記した通りである。

$^{187}\text{Cs}$  の放射能測定は、供試体を取り出した後の浸出液の一定量をステンレス製試料皿に採り、これを低バックグラウンドガスフローカウンターで計測して行なった。 $^{60}\text{Co}$  の放射能測定法は前報<sup>2)</sup>に記した通りである。

## 3 結果および考察

供試体からの放射性物質の浸出過程を表示するために、IAEAが提案した平面拡散源モデル (plane source model) から導かれた拡散式を用いる。このモデルでは平面からの拡散を取り扱うので、物質の拡散量 ( $Q$ ) は表面積 ( $S$ ) の函数としてつぎのように示される<sup>4)</sup>。

$$Q = 2 S C_0 \sqrt{\frac{D t}{\pi}} \quad (1)$$

ここで  $C_0$  は拡散物質の初濃度、 $D$  は拡散物質の拡散係数である。この式から浸出量は他の条件が一定であれば表面積に比例することがわかる。

実際の浸出試験では有限の円柱体を用いているので、円柱体拡散源モデルから導かれる拡散式を用いて浸出試験結果を解析することが望ましい。しかしながら、円柱体拡散源モデル (cylindrical source model) による拡散式は(1)式のように単純なものとわならず、繁雑な数値解析作業を要する。そこで、浸出に関与する供試体が表面の薄層部分に限られると仮定すれば、近似的にこの系を平面拡散源モデルで取り扱うことができるので、(1)式を用いて浸出過程を表示することが一般的に行われている。

(1)式から、容積  $V$  ( $\text{cm}^3$ )、表面積  $S$  ( $\text{cm}^2$ )、初期の放射能含有量  $A$  ( $\text{Ci}$ ) の供試体から  $t$  時間後に  $a$  ( $\text{Ci}$ ) の放射能が浸出した場合、浸出比  $f$  ( $a/A$ ) はつぎのように示される。

$$f = \frac{a}{A} = \frac{2 S (A/V) \sqrt{\frac{D t}{\pi}}}{A} = 2 \left(\frac{S}{V}\right) \sqrt{\frac{D t}{\pi}} \quad (2)$$

この式では、供試体の形状は表面積と容積の比 ( $S/V$ ) で表現される。

(2)式から、形状 X の供試体の浸出比  $f_X$  と形状 Y の供試体の浸出比  $f_Y$  との関係は実験条件が同一であれば理論的につぎのように示される。

$$f_X = f_Y \left(\frac{S}{V}\right)_X / \left(\frac{S}{V}\right)_Y \quad (3)$$

前に述べたように、(2)式を円柱体からの拡散に適応する際に、浸出に関する部分が供試体の表

## 2.2 実験操作

浸出試験に用いる供試体は、直径 4.5 cm、高さ 4.4 cm の円柱体を基本とし、これを 2 分割および 4 分割したものを用いた (Photo. 1 参照)。

供試体は廃液と固化材 (セメントまたはセメントとゼオライトの混合物) を廃液-セメント比 ( $W_a/C$ ) 4.2% または 6.0% で均一に練り混ぜ、アクリル製円筒状型枠に注ぎ込んで作成した。型枠上部にアクリル製板を置き、これを空気中で養生した。

浸出試験法については前報<sup>2)</sup>に記した通りである。

$^{137}\text{Cs}$  の放射能測定は、供試体を取り出した後の浸出液の一定量をステンレス製試料皿に採り、これを低バックグラウンドガスフローカウンターで計測して行なった。 $^{60}\text{Co}$  の放射能測定法は前報<sup>2)</sup>に記した通りである。

## 3 結果および考察

供試体からの放射性物質の浸出過程を表示するために、IAEA が提案した平面拡散源モデル (plane source model) から導かれた拡散式を用いる。このモデルでは平面からの拡散を取り扱うので、物質の拡散量 ( $Q$ ) は表面積 ( $S$ ) の函数としてつぎのように示される<sup>4)</sup>。

$$Q = 2 S C_0 \sqrt{\frac{D t}{\pi}} \quad (1)$$

ここで  $C_0$  は拡散物質の初濃度、 $D$  は拡散物質の拡散係数である。この式から浸出量は他の条件が一定であれば表面積に比例することがわかる。

実際の浸出試験では有限の円柱体を用いているので、円柱体拡散源モデルから導かれる拡散式を用いて浸出試験結果を解析することが望ましい。しかしながら、円柱体拡散源モデル (cylindrical source model) による拡散式は(1)式のように単純なものとわならず、繁雑な数値解析作業を要する。そこで、浸出に関与する供試体が表面の薄層部分に限られると仮定すれば、近似的にこの系を平面拡散源モデルで取り扱うことができるので、(1)式を用いて浸出過程を表示することが一般的に行われている。

(1)式から、容積  $V$  ( $\text{cm}^3$ )、表面積  $S$  ( $\text{cm}^2$ )、初期の放射能含有量  $A$  ( $\text{Ci}$ ) の供試体から  $t$  時間後に  $a$  ( $\text{Ci}$ ) の放射能が浸出した場合、浸出比  $f$  ( $a/A$ ) はつぎのように示される。

$$f = \frac{a}{A} = \frac{2 S (A/V) \sqrt{\frac{D t}{\pi}}}{A} = 2 \left(\frac{S}{V}\right) \sqrt{\frac{D t}{\pi}} \quad (2)$$

この式では、供試体の形状は表面積と容積の比 ( $S/V$ ) で表現される。

(2)式から、形状 X の供試体の浸出比  $f_X$  と形状 Y の供試体の浸出比  $f_Y$  との関係は実験条件が同一であれば理論的につぎのように示される。

$$f_X = f_Y \left(\frac{S}{V}\right)_X / \left(\frac{S}{V}\right)_Y \quad (3)$$

前に述べたように、(2)式を円柱体からの拡散に適応する際に、浸出に関する部分が供試体の表

面層に限られるとの仮定を置いている。したがって、この仮定が成立しなければ(3)式も成り立たないことになる。そこで、(3)式の関係の有効性を実際の供試体を用いて検討する必要が生ずる。

セメント供試体からの放射性物質の浸出を表わすために、(2)式を若干変形したつぎのような式を用いている。<sup>5)</sup>初期過程では、

$$f = m_i t^{\frac{1}{2}}, \quad (4)$$

後期浸出過程では、

$$f = m_\ell t^{\frac{1}{2}} + \alpha. \quad (5)$$

ここで  $m$  は浸出比と浸出時間の平方根との直線関係の傾きでつぎのように示される。

$$m = 2 \left( \frac{S}{V} \right) \sqrt{\frac{D}{\pi}} \quad (6)$$

$\alpha$  は切片で初期の浸出過程の寄与を示すものであり、

$$\alpha = \alpha' \left( \frac{S}{V} \right) \quad (7)$$

したがって、浸出比の表面積依存性を調べるために、 $m_i$ ,  $m_\ell$  および  $\alpha$  の  $S/V$  依存性を IAEA サイズ、IAEA サイズの  $1/2$  分割体および  $1/4$  分割体を用いて検討する。

### 3.1 $^{137}\text{Cs}$ の浸出

$^{137}\text{Cs}$  を用いて、表面積-容積比と浸出比との関係を検討した。C種高炉セメント供試体（以下 S - 供試体と略記する）からの浸出について得られた結果を Fig. 1 に示す。この図に与えた浸出比の値とそれに対応する浸出時間の平方根との関係の傾きから、(4) および (5) 式を用いて  $m_i$ ,  $m_\ell$  および  $\alpha$  の値を求め、 $S/V$  の函数として Fig. 2 に示す。この図に見られるように、実験に用いた  $S/V$  の範囲 ( $1.34 \sim 2.47$ ) \* で  $m_i$ ,  $m_\ell$  および  $\alpha$  のいずれも  $S/V$  と比例関係にあり、原点を通る直線が得られている。

ポルトランドセメント供試体（以下 P - 供試体と略記する）についても同様な検討を行なった。Fig. 3 に示すように、S - 供試体と同様に、 $m$  および  $\alpha$  のいずれも  $S/V$  と比例関係にあり、原点を通る直線が得られた。

前報 (JAERI-5779) において述べたように、天然ゼオライトを添加することによって、 $^{137}\text{Cs}$  の浸出量を  $1/100$  低度に低減化することができる。したがって、本報でもゼオライト添加供試体について、浸出量と  $S/V$  との関係を求めた。その結果、Fig. 4 に見られるように、浸出比と対応する浸出時間の平方根との関係の傾きと  $S/V$  とは直線関係にあり、この場合は(4)式の関係を満たしている事が明らかとなった。

以上の結果から、 $^{137}\text{Cs}$  の浸出では、実験に用いた  $S/V$  の範囲 ( $1.34 \sim 2.47$ ) で(4) および

\* IAEA サイズの容積、 $69.98 \text{ cm}^3$ 、表面積は  $94.01 \text{ cm}^2$  である ( $S/V=1.34$ )。

IAEA サイズの  $1/2$  分割体の容積は、 $34.99 \text{ cm}^3$ 、表面積は、 $66.81 \text{ cm}^2$  である ( $S/V=1.91$ )。

IAEA サイズの  $1/4$  分割体の容積は、 $17.50 \text{ cm}^3$ 、表面積は、 $43.30 \text{ cm}^2$  である ( $S/V=2.47$ )。

(5)式の関係が成立することが明らかとなった。

### 3.2 $^{60}\text{Co}$ の浸出

$^{60}\text{Co}$  を用いて、浸出比と表面積－容積比との関係を調べた。P－供試体からの浸出について得られた結果を Fig. 5 に示す。この図に見られるように、 $^{60}\text{Co}$  の場合は初期の浸出過程は極めて短いので、後期の浸出比の値と対応する浸出時間の平方根との関係の傾きから、(5)式を用いて  $m$  および  $\alpha$  の値を求め、S/V の函数として Fig. 6 に示す。S－供試体についての同様の関係もあわせて Fig. 6 に示す。この図に見られるように、実験に用いた S/V の範囲 (1.34～2.47) で、S－および P－供試体の双方とも  $m$  および  $\alpha$  のいずれも S/V と比例関係にあり、 $^{137}\text{Cs}$  の場合と同様に原点を通る直線が得られた。したがって、 $^{60}\text{Co}$  の浸出では、検討した S/V の範囲で(5)式の関係を満たしていることが明らかとなった。

## 4 浸出量予測

$^{137}\text{Cs}$  および  $^{60}\text{Co}$  の浸出過を記述するために、著者らは今まで平面拡散源モデルから導かれる拡散式を変形した浸出式 ((4) および (5)式) を用いてきた。前に述べたように、円柱体からの拡散を取扱う場合には円柱体拡散源モデルによる拡散式を用いることが望ましい。しかし、浸出に関与する部分が供試体の表面の薄層部分に限られる\*と仮定できれば、この系を平面拡散源モデルで取扱うことができる。この仮定の妥当性を検討した結果、すくなくとも、S/V が 1.34～2.47 の範囲では  $^{137}\text{Cs}$  および  $^{60}\text{Co}$  の浸出においてこの仮定が有効であることが明らかとなった。

一般に廃液はセメントなどと均一に混合されて、200ℓのドラム缶につめられる。したがって、処分の対象となるセメント固化体は200ℓドラム缶の大きさである。このセメント固化体の浸出性を評価する際には、実物大の供試体を用いることが望ましいが、このような大きな試料について数多くの浸出試験を行なうことは困難である。したがって、IAEA サイズの供試体を用いて詳細な浸出挙動についての知見を得て、これを用いて 200ℓ ドラム缶大のセメント固化体の浸出挙動を予測する必要がある。そこで、S/V と浸出比との比例関係が、S/V が約 0.1 と小さい 200ℓ ドラム缶大 (56.5 cm  $\phi$  × 80 cm) の供試体においても成り立つと仮定して、浸出量の予測を試みる。

IAEA サイズの供試体の S/V は 1.34、200ℓ ドラム缶大の供試体の S/V は 0.096 である。IAEA サイズの供試体の浸出比 ( $f_x$ ) と 200ℓ ドラム缶大の供試体の浸出比 ( $f_y$ ) との関係はつきのように与えられる。

$$f_y = f_x \times 0.072 \quad (8)$$

\* このことは通常の熱拡散と異なる点であり、熱拡散に関する知見に基づいて、円柱体からの浸出を解析する際に平面拡散源モデルは用いるべきでないとの主張もあるが、著者らの採用できない見解である。

(5)式の関係が成立することが明らかとなった。

### 3.2 $^{60}\text{Co}$ の浸出

$^{60}\text{Co}$  を用いて、浸出比と表面積－容積比との関係を調べた。P－供試体からの浸出について得られた結果を Fig. 5 に示す。この図に見られるように、 $^{60}\text{Co}$  の場合は初期の浸出過程は極めて短いので、後期の浸出比の値と対応する浸出時間の平方根との関係の傾きから、(5)式を用いて  $m$  および  $\alpha$  の値を求め、S/V の函数として Fig. 6 に示す。S－供試体についての同様の関係もあわせて Fig. 6 に示す。この図に見られるように、実験に用いた S/V の範囲 (1.34～2.47) で、S－および P－供試体の双方とも  $m$  および  $\alpha$  のいずれも S/V と比例関係にあり、 $^{137}\text{Cs}$  の場合と同様に原点を通る直線が得られた。したがって、 $^{60}\text{Co}$  の浸出では、検討した S/V の範囲で(5)式の関係を満たしていることが明らかとなった。

## 4 浸出量予測

$^{137}\text{Cs}$  および  $^{60}\text{Co}$  の浸出過を記述するために、著者らは今まで平面拡散源モデルから導かれる拡散式を変形した浸出式 ((4) および (5)式) を用いてきた。前に述べたように、円柱体からの拡散を取扱う場合には円柱体拡散源モデルによる拡散式を用いることが望ましい。しかし、浸出に関与する部分が供試体の表面の薄層部分に限られる\*と仮定できれば、この系を平面拡散源モデルで取扱うことができる。この仮定の妥当性を検討した結果、すくなくとも、S/V が 1.34～2.47 の範囲では  $^{137}\text{Cs}$  および  $^{60}\text{Co}$  の浸出においてこの仮定が有効であることが明らかとなった。

一般に廃液はセメントなどと均一に混合されて、200ℓのドラム缶につめられる。したがって、処分の対象となるセメント固化体は200ℓドラム缶の大きさである。このセメント固化体の浸出性を評価する際には、実物大の供試体を用いることが望ましいが、このような大きな試料について数多くの浸出試験を行なうことは困難である。したがって、IAEA サイズの供試体を用いて詳細な浸出挙動についての知見を得て、これを用いて 200ℓ ドラム缶大のセメント固化体の浸出挙動を予測する必要がある。そこで、S/V と浸出比との比例関係が、S/V が約 0.1 と小さい 200ℓ ドラム缶大 (56.5 cm  $\phi$  × 80 cm) の供試体においても成り立つと仮定して、浸出量の予測を試みる。

IAEA サイズの供試体の S/V は 1.34、200ℓ ドラム缶大の供試体の S/V は 0.096 である。IAEA サイズの供試体の浸出比 ( $f_x$ ) と 200ℓ ドラム缶大の供試体の浸出比 ( $f_y$ ) との関係はつきのように与えられる。

$$f_y = f_x \times 0.072 \quad (8)$$

\* このことは通常の熱拡散と異なる点であり、熱拡散に関する知見に基づいて、円柱体からの浸出を解析する際に平面拡散源モデルは用いるべきでないとの主張もあるが、著者らの採用できない見解である。

この関係式を用いて、Table 2に示す固化体組成および浸出条件での浸出挙動から予測した  
200ℓドラム缶大の供試体の浸出量をTable 3に示す。

## 謝　　辞

本報告書を作成するにあたり、種々の御助言を賜わった宮永一郎博士に感謝する。また、本試験の実施にあたり種々の協力をいただいた廃棄物処分開発室の諸氏に感謝する。

## 5 文　　献

- 1) IAEA Technical Report Series No 82, p 101 (1968). およびHespe, E. D. : At. Energy Rev., 9 (1), 195 (1971).
- 2) 松鶴秀夫, 比佐勇, 大内康喜, 森山昇, 和達嘉樹, 伊藤彰彦 : JAERI-M-6361 (1976).
- 3) Shapiro, L. , Brannock, W. W. : "Rapid Analysis of Silicate, Carbonate and Phosphate Rocks", U. S. Government Printing Office (1962).
- 4) Crank, J. : "The mathematics of diffusion", Clarendon Press, Oxford, p. 31 (1956).
- 5) Moriyama, N., Matsuzuru, H., Dojiri, S., and Wadachi, Y. : JAERI-M 6302 (1975).

この関係式を用いて、Table 2に示す固化体組成および浸出条件での浸出挙動から予測した  
200ℓドラム缶大の供試体の浸出量をTable 3に示す。

## 謝　　辞

本報告書を作成するにあたり、種々の御助言を賜わった宮永一郎博士に感謝する。また、本試験の実施にあたり種々の協力をいただいた廃棄物処分開発室の諸氏に感謝する。

## 5 文　　献

- 1) IAEA Technical Report Series No 82, p 101 (1968). およびHespe, E. D. : At. Energy Rev., 9 (1), 195 (1971).
- 2) 松鶴秀夫, 比佐勇, 大内康喜, 森山昇, 和達嘉樹, 伊藤彰彦 : JAERI-M-6361 (1976).
- 3) Shapiro, L. , Brannock, W. W. : "Rapid Analysis of Silicate, Carbonate and Phosphate Rocks", U. S. Government Printing Office (1962).
- 4) Crank, J. : "The mathematics of diffusion", Clarendon Press, Oxford, p. 31 (1956).
- 5) Moriyama, N., Matsuzuru, H., Dojiri, S., and Wadachi, Y. : JAERI-M 6302 (1975).

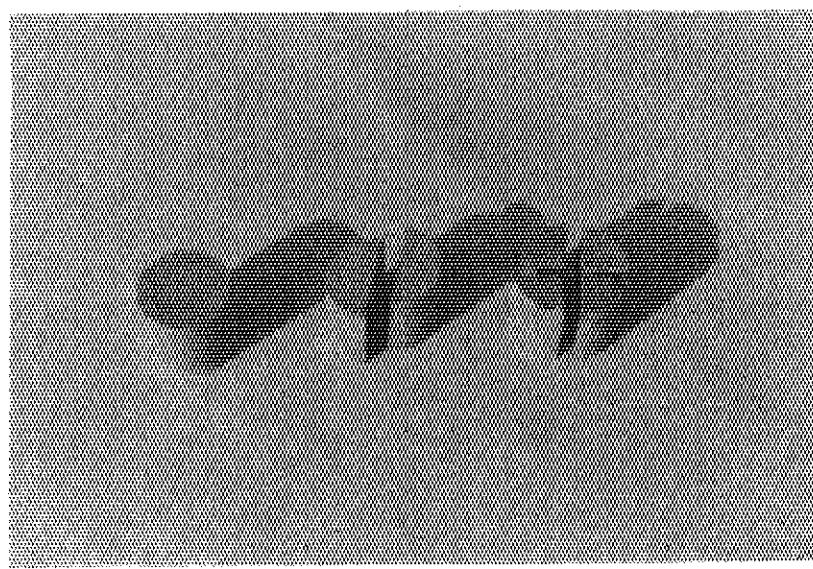


Photo.1 Shapes of the specimens tested

Table 1 Chemical composition of zeolite

SiO <sub>2</sub>	82.4 %
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9.04
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5.22
CaO	0.83
K <sub>2</sub> O	0.78
MgO	0.31
MnO	0.55

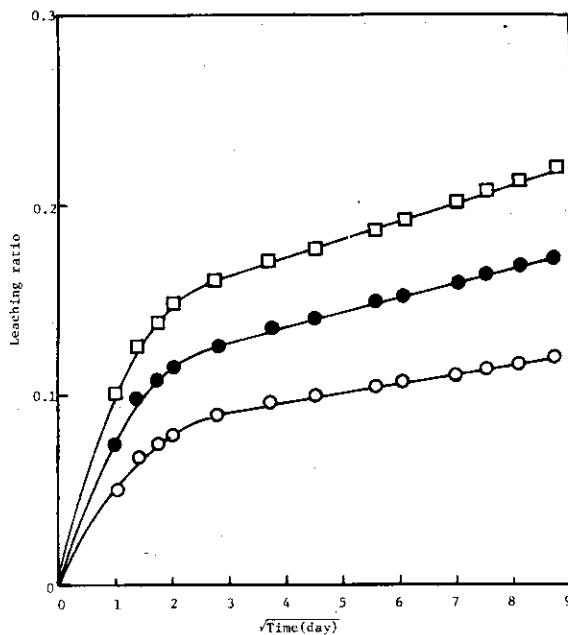


Fig. 1 Effect of variation of S/V on the leachability  
(cement: slag cement, wa/c: 42,  
waste: 15%  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  solu., temp.: 25°C)

$\circ$  : IAEA size  
 $\bullet$  : 1/2 of IAEA size  
 $\square$  : 1/4 of IAEA size

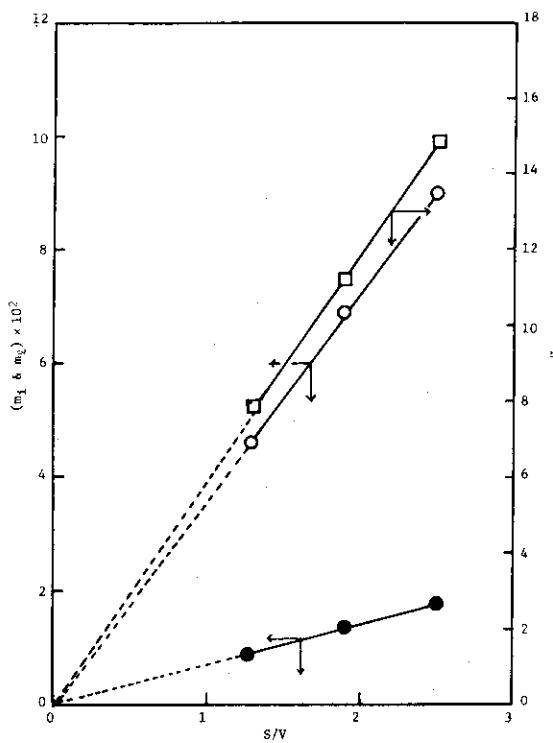


Fig. 2 Effect of variation in S/V on the controlling  
coefficients for the leaching process (S-specimen)  
 $\circ$  :  $m_1$ ,     $\bullet$  :  $m_2$ ,     $\square$  :  $\alpha$

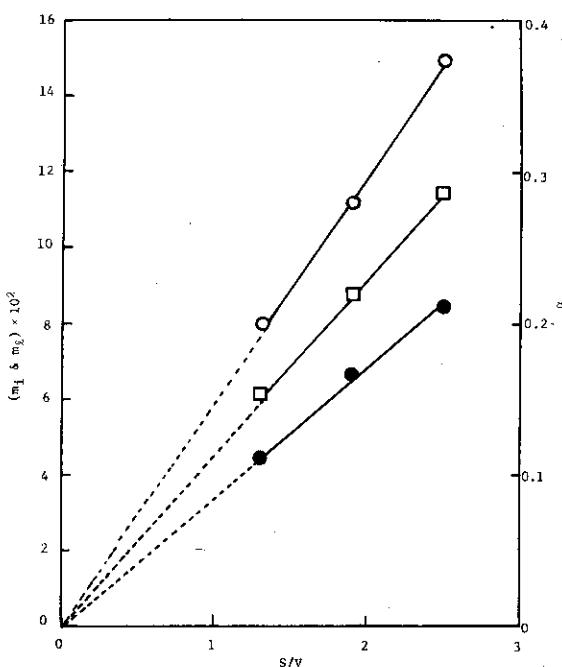


Fig. 3 Effect of S/V on the controlling coefficient for the leaching process (P-specimen)  
 ○ :  $m_1$ , ● :  $m_2$ , □ :  $\alpha$

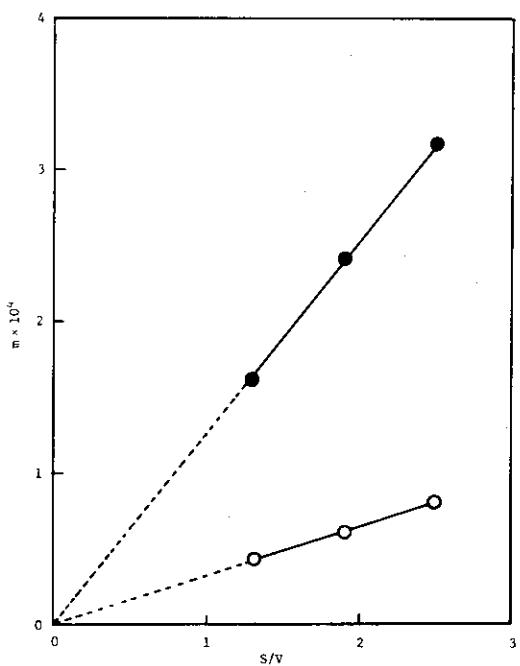


Fig. 4 Effect of variation in S/V on the controlling coefficient for the leaching process  
 ○ : S-specimen, w/c: 60, zeolite: 25%  
 ● : P-specimen, w/c: 60, zeolite: 25%

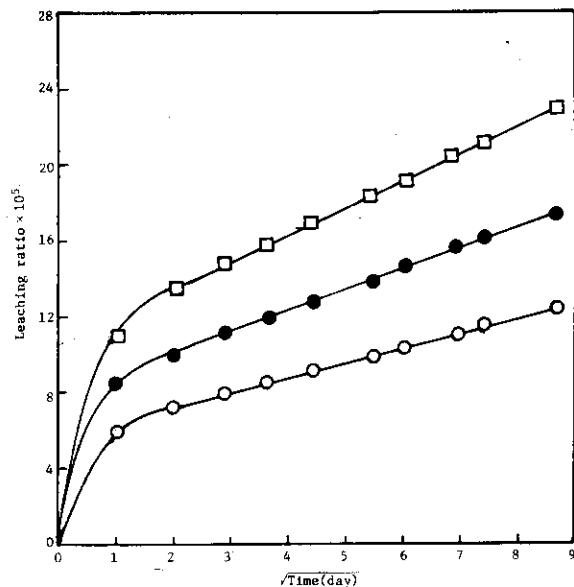


Fig. 5 Leaching of  $^{60}\text{Co}$  from a cement composite of various geometry (cement: portland cement, w/c: 42, waste: 15%  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  solu., temp: 25°C)

○ : IAEA size  
 ● : 1/2 of IAEA size  
 □ : 1/4 of IAEA size

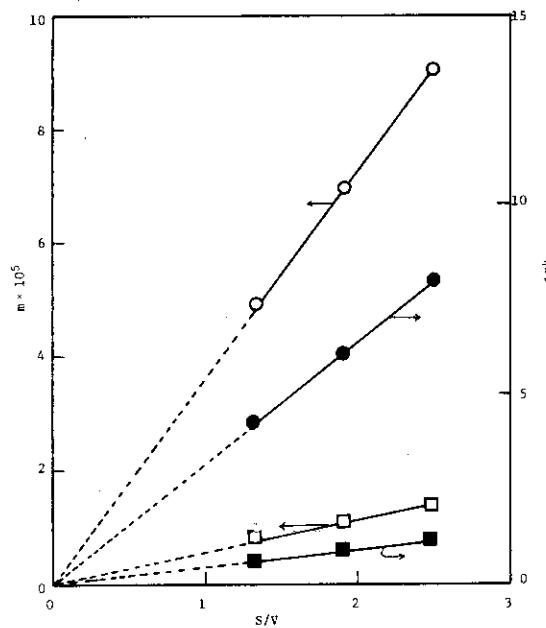


Fig. 6 Effect of variation in S/V on the controlling coefficients for the leaching of  $^{60}\text{Co}$ .

○ : S-specimen, w/c: 42, waste: 15%  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , temp: 25°C  
 □ : P-specimen, w/c: 42, waste: 15%  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , temp: 25°C

Table 2 Compositions of the specimens and leaching conditions

Case	Nuclide	Cement	Waste (%)	Aggregate (%)	Leachant	Temp. (°C)	Setting time (day)	Wa/C
1	137Cs	portland	Na SO :15	—	Deionized water	25°C	7	33
2	137Cs	slag	"	—	"	25°C	7	36
3	137Cs	"	"	Synthetic : 50 pumice	"	25°C	30	60
4	137Cs	"	"	" : 50	Sea water	25°C	30	60
5	137Cs	"	"	Zeolite : 25	Deionized water	25°C	7	60
6	137Cs	"	"	" : 25	Sea water	25°C	7	60
7	60Co	portland	"	—	Deionized water	25°C	7	42
8	60Co	"	"	—	Sea water	25°C	7	42
9	60Co	"	"	Synthetic : 50 pumice	Deionized water	25°C	7	60
10	60Co	slag	"	—	"	"	7	42

Table 3 Estimation of the amount leached from the cement  
composites of 200ℓ drum size

Case	Controlling coefficient			Leaching ratio*		
	$m_1$ (day <sup>-1/2</sup> )	$m_2$ (day <sup>-1/2</sup> )	$\alpha$	10 day	50 day	100 day
1	$3.8 \times 10^{-3}$	$1.6 \times 10^{-3}$	$8.5 \times 10^{-3}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$1.9 \times 10^{-2}$	$2.45 \times 10^{-2}$
2	$2.5 \times 10^{-3}$	$2.4 \times 10^{-4}$	$5.0 \times 10^{-3}$	$5.8 \times 10^{-3}$	$6.7 \times 10^{-3}$	$7.4 \times 10^{-3}$
3	$2.2 \times 10^{-3}$	$3.8 \times 10^{-4}$	$6.4 \times 10^{-3}$	$7.2 \times 10^{-3}$	$9.1 \times 10^{-3}$	$1.0 \times 10^{-2}$
4	$2.3 \times 10^{-3}$	$3.7 \times 10^{-4}$	$6.5 \times 10^{-3}$	$7.3 \times 10^{-3}$	$9.1 \times 10^{-3}$	$1.0 \times 10^{-2}$
5	$3.0 \times 10^{-5}$	—	—	$9.5 \times 10^{-5}$	$2.1 \times 10^{-4}$	$3.0 \times 10^{-4}$
6	$3.0 \times 10^{-5}$	—	—	$9.5 \times 10^{-5}$	$2.1 \times 10^{-4}$	$3.0 \times 10^{-4}$
7	—	$5.5 \times 10^{-7}$	$4.5 \times 10^{-6}$	$6.2 \times 10^{-6}$	$8.4 \times 10^{-5}$	$1.0 \times 10^{-5}$
8	—	$1.8 \times 10^{-7}$	$4.7 \times 10^{-6}$	$5.3 \times 10^{-6}$	$6.0 \times 10^{-6}$	$6.5 \times 10^{-6}$
9	—	$5.6 \times 10^{-7}$	$4.5 \times 10^{-6}$	$6.3 \times 10^{-6}$	$8.5 \times 10^{-6}$	$1.0 \times 10^{-5}$
10	—	$3.6 \times 10^{-6}$	$3.1 \times 10^{-5}$	$4.2 \times 10^{-5}$	$5.6 \times 10^{-5}$	$6.7 \times 10^{-5}$

\* These values were uncorrected for the decay of radionuclides.