

JNC TJ6420 2003-002

鉍さい等の安全評価パラメータ測定

(核燃料サイクル開発機構 役務報告書)

2003年2月

三菱マテリアル株式会社

2003年2月

鉍さい等の安全評価パラメータ測定

生瀬博之*

要 旨

核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センターで採取された鉍さい試料 5 件について、U, Th, Ra の溶出率を測定するとともに、鉍さい試料から固液分離した地下水試料を使用して、分配係数を測定した。溶出率は法令で定められている溶出試験法（環境庁告示 46 号法（平成 3 年））に準拠し、分配係数は原子力学会標準に準拠して測定した。

U の溶出率（土壌中の含有量から蒸留水中に溶出した量の割合）は試料間による差が大きく、試料 B では、 6×10^{-2} であったが、その他の試料では、 $10^{-4} \sim 10^{-3}$ 程度であった。Th の溶出率は $10^{-5} \sim 10^{-4}$ 程度であり、試料 B, C については溶出濃度が検出下限値未満であったため精度は低下するが、いずれも 10^{-5} のオーダーと評価された。Ra の溶出率についても溶出濃度が検出下限値未満であったため正確な評価はできなかったが、 $10^{-3} \sim 10^{-2}$ 以下と推定された。

分配係数は、固液比 1.0 g/10ml とし、各トレーサ液に大気雰囲気中で 7 日間浸漬させて測定した。その結果、U の分配係数は試料間による差が比較的大きく、0.02（試料 B）～0.7（試料 A） m^3/kg であった。Th の分配係数はさらに試料間による差が大きく、試料 A の 0.46 m^3/kg から、試料 D の 160 m^3/kg まで分布した。Ra の分配係数は試料間の差は小さく、0.68～2.9 m^3/kg であった。

本報告書は、三菱マテリアル株式会社が核燃料サイクル開発機構との契約により実施した業務成果に関するものである。

機構担当部課室：人形峠環境技術センター 環境保全技術開発部 環境計画課

*三菱マテリアル株式会社 原燃サイクル事業センター

Feb.. 2003

Measurement of Safety Assessment Parameter for Uranium Mill Tailing

Hiroyuki IKUSE*

Abstract

For five samples (Sample-A, B, C, D, E) of mill tailing which were collected in the JNC Ningyo Toge site, elution rate (ratio of 'amount eluted into water' to 'amount in soil sample') of some elements and distribution coefficient (Kd) of uranium, thorium, and radium was measured. In case of Kd measurement, groundwater extracted from mill tailing samples were used for liquid phases. Measurement protocol for elution rate was referred to the regulation and that of Kd was referred to the standard stipulated by the Atomic Energy Society of Japan.

Uranium elution rates vary among samples, i.e., although sample-B shows $6E-2$, those of other samples indicate in the order of $E-4$ and $E-3$. Thorium elution rates vary in the order of $E-5$ and $E-4$, and that of sample-B and C are estimated approximately $E-5$ to $E-4$ respectively, because concentrations in liquid phase are less than detection limit. Radium elution rates are estimated below $E-3$ to $E-2$ because concentrations in liquid phase are less than detection limit.

For Kd measurement, solid-liquid ratio is 1.0g/10ml and duration of immersion is 7 days. Range of Kd of uranium is wide according with samples, that is $0.02 \text{ m}^3/\text{kg}$ for sample-B to $0.7 \text{ m}^3/\text{kg}$ for sample-A m^3/kg . Range of Kd of thorium is the wider according with samples, that is $0.47 \text{ m}^3/\text{kg}$ for sample-A to $160 \text{ m}^3/\text{kg}$ for sample-D. Kds of radium don't vary in samples, and are from 0.7 to $3.0 \text{ m}^3/\text{kg}$.

This Work was performed by Mitsubishi Materials Corporation under contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute.

JNC Liaison : Ningyo Toge Environmental Engineering Center, Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC)

* Nuclear fuel Cycle Technology Center, Mitsubishi Materials Corporation

目 次

はじめに

1. 試料の特性	1
1.1 鉍さい試料.....	1
2. 溶出率測定試験	13
2.1 測定方法	13
2.2 測定結果	13
3. 分配係数測定試験	21
3.1 試験試料	21
3.2 測定方法	22
3.3 測定結果	24
4. まとめ.....	28

おわりに

図 表 目 次

図 1-1	マルチサンプラー	2
図 1-2	PC ライナー採土器	2
図 1-3	鉍さい試料採取地点	3
図 1-4	鉍さい試料の外観	6
図 1-5	鉍さい試料の化学組成分析結果（主要化学成分）	9
図 1-6	鉍さい試料の化学組成分析結果（SiO ₂ 除く）	9
図 1-7	鉍さい試料の化学組成分析結果（U、Th、Ra-226）	10
図 1-8	鉍さい試料の比表面積	11
図 1-9	鉍さい試料の CEC	12
図 2-1	溶出試験における液性	15
図 2-2	溶出試験における液相中濃度（陽イオン）	15
図 2-3	溶出試験における液相中濃度（陰イオン）	16
図 2-4	溶出試験における液相中濃度（U、Th、Ra-226）	16
図 2-5	鉍さい試料の U、Th、Ra-226 の溶出率	17
図 3-1	鉍さい試料に対する U、Th、Ra の分配係数測定結果	24
表 1-1	鉍さい試料の化学組成分析結果	8
表 1-2	比放射能値	10
表 1-3	鉍さい試料の比表面積	11
表 1-4	鉍さい試料の CEC	12
表 2-1	鉍さい試料の溶出測定試験結果	14
表 2-2	鉍さい試料からの U の溶出率	18
表 2-3	鉍さい試料からの Th の溶出率	19
表 2-4	鉍さい試料からの Ra-226 の溶出率	20
表 3-1	各試料から固液分離した液相の水質分析結果	21
表 3-2	地下水試料の分析結果	22
表 3-3	鉍さい試料に対する U の分配係数測定結果	25
表 3-4	鉍さい試料に対する Th の分配係数測定結果	26
表 3-5	鉍さい試料に対する Ra-226 の分配係数測定結果	27

はじめに

核燃料サイクル開発機構（以下、「サイクル機構」と言う。）殿の人形峠環境技術センターでは、2002年4月に「人形峠環境技術センターにおける鉱山跡の措置に関する基本計画」を策定したが、これは、ウランの探鉱及び採鉱活動を行なってきたウラン鉱山について、サイクル機構殿の中長期事業計画に基づき、安全確保を大前提に活動を終了した鉱山の跡措置を確実にこなうために策定したものである。

今後、基本計画に沿って実際の跡措置が具体的に進められるが、基本計画策定にあたっては、「鉱山保安法のもとで長期的な安全確保方策を構築」するものの、「安全性に関しては、安全解析による安全性の見通しをつけ、その見通しをより確かなものにするための対策を強化する」こととしている。

本役務においては、鉱さいたい積場の安全解析を確かなものにするため、安全解析に必要な核種パラメータの一部を測定する。核種パラメータとしては、鉱さい中の代表的核種に対し、分配係数や溶出率を測定する。

鉍さいたい積場周囲における安全評価を行なうために必要となる主要核種の溶出率及び分配係数の測定を行った。

以下に、測定結果について項目ごとに記述するが、同じ鉍さいたい積場内の試料を用いた試験の結果¹も参考として比較した。

1. 試料の特性

溶出率及び分配係数測定に供する鉍さい試料について、その特性を評価するため、以下の項目を実施した。

- ・ 化学組成
- ・ 比表面積
- ・ 陽イオン交換容量 (CEC)

1.1 鉍さい試料

鉍さい試料は、夜次鉍さいたい積場から採取された代表的な性状と考えられる5試料である。以下に採取方法、前処理、試料の特徴について示す。

1.1.1 採取方法

鉍さいの堆積状況を反映した試料にするために、含水比等の堆積環境を考慮しながら、以下の装置を用いて間隙水等を含んだ状態で、可能な限り乱さない試料として採取した。なお、各地点での採取量は約1.0～1.6 Lである。

① マルチサンプラー (図 1-1参照)

泥状の軟弱な場所での試料採取に用いた。

機 種 : Daiki 社製 マルチサンプラー (採泥・採水用)

型 番 : DIK-180A

採取方法 : ピストン式

採 取 量 : $\phi 40\text{mm} \times 1,000\text{mm}$ (約 $1,300\text{cm}^3$)

② PC ライナー採土器 (図 1-2参照)

地盤が比較的強固な場所での試料採取に用いた。

¹ 鉍さいたい積場の措置に係る安全性評価, JNC TJ6410 2002-010

機 種 : Daiki 社製 PC ライナー採土器

型 番 : DIK-161C

採取方法 : エンジン打撃式

採 土 管 : $\phi 63\text{mm} \times 1,000\text{mm}$ (刃先付き)

採 取 量 : $\phi 50\text{mm} \times 1,000\text{mm}$ (約 $2,000\text{cm}^3$)



※出典 : DAIKI INDEX 2002-No.2

図 1-1 マルチサンプラー

図 1-2 PC ライナー採土器

1.1.2 採取地点

鉤さいたい積場の表面は、ほぼ全域にアシ (図 1-3の S 測線より上流部は草木類) が生えており、図 1-3の O 測線より下流部は冠水している。また、上流側にはより粗い粒子のたい積物 (廃砂) がたい積されている。これらのことから、鉤さい試料の採取は、種類や粒度、たい積状況に対応するように、①I-13、②I-10、③O-7、④S-4、⑤T-2 とし (図 1-3)、①から順に試料名を A、B、C、D、E とした。なお、平成 13 年度に実施した試験の試料の採取地点は、⑥M-7 地点 (F) である。

なお、①I-13 及び②I-10 は、表層水で地面が水没し、③O-7 は、表層水での地面の水没の度合いが少なく、アシが生え、④S-4 及び⑤T-2 は、地面が比較的強固で草木類が生えている。

これらの採取位置それぞれにおいて、鉤さいたい積場の表面を覆っている植物根の影響を少なくするために、深度約 1~2m の試料を採取した。

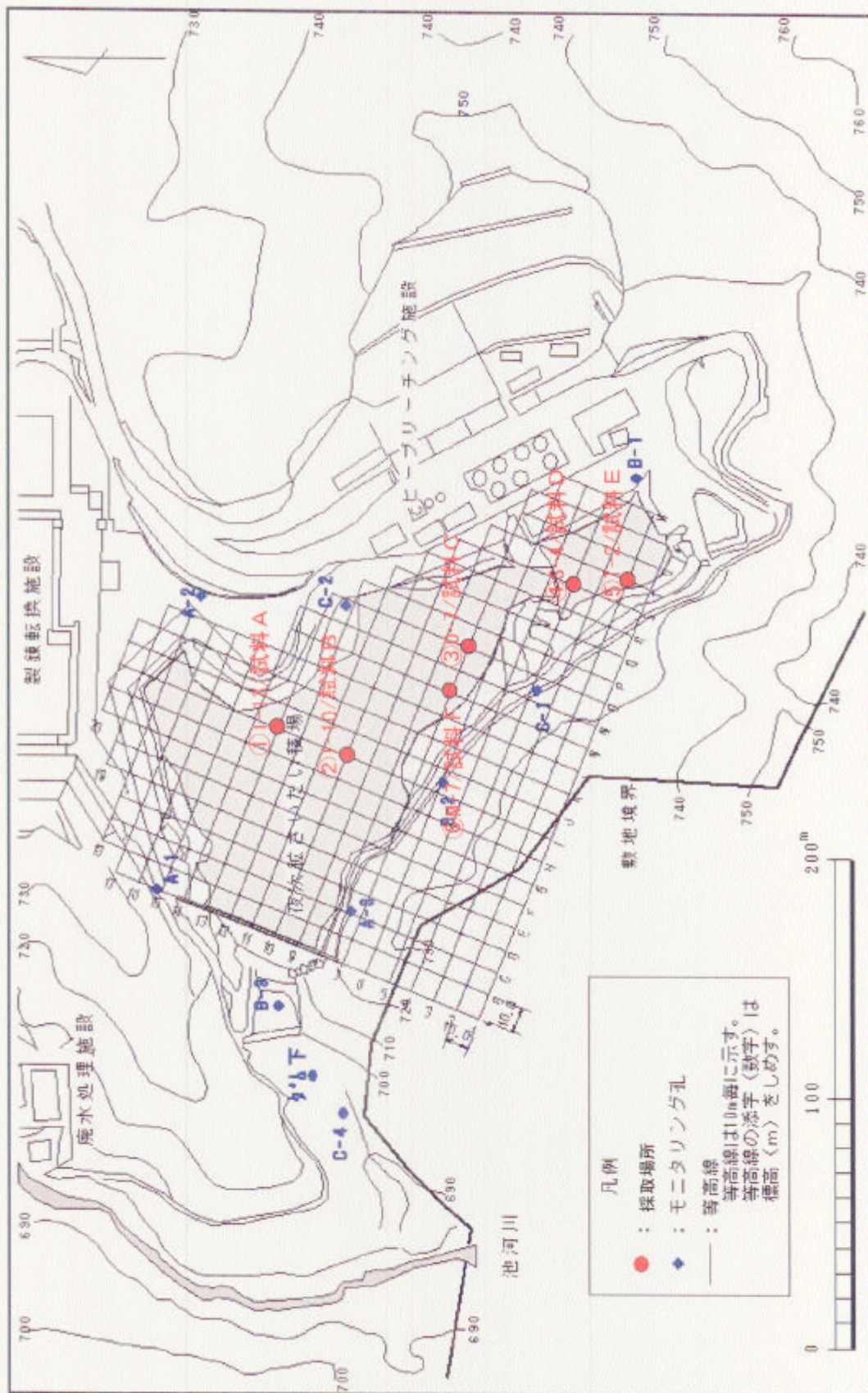


図 1-3 鉛さい試料採取地点

1.1.3 前処理

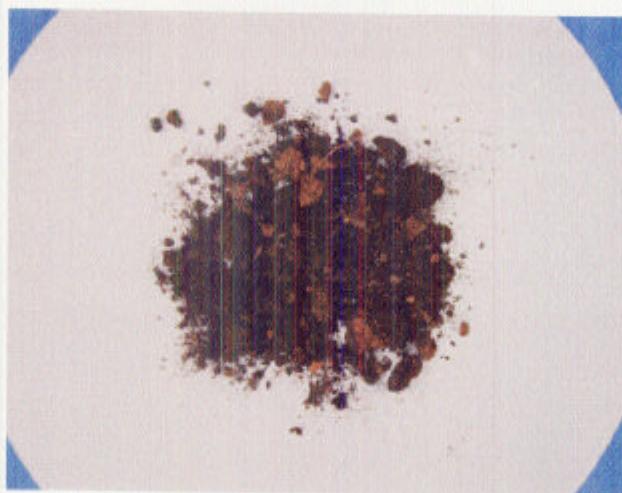
採取した鉍さい試料は、濾紙 No.5A を用いて固液分離を行った。固相は、風乾後、植物根等の不純物を分別・除去し、ふるい (8.6mesh) を用いて粒径 2mm 以下に調整した。一方、液相は、堆積環境及び鉍さいの外観、間隙水の水質を考慮して、類似したものについては混合して、分配係数測定に供した。

1.1.4 鉍さい試料の特徴

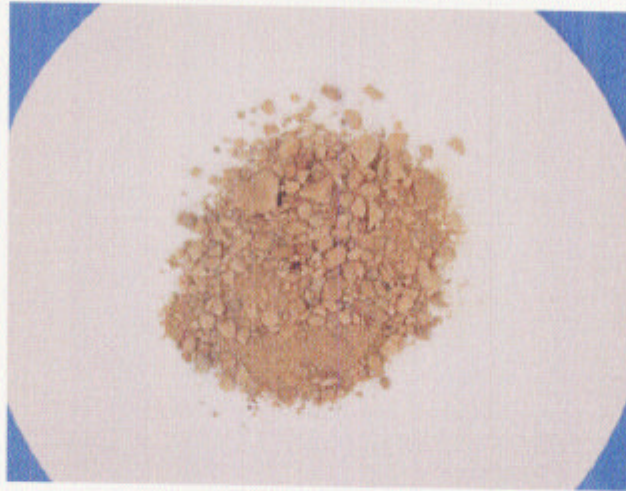
鉍さい試料 (固相) は、外観による特徴 (色調, 粒度, 含水比) は以下のとおりである。

- 試料 A: 黒灰～暗褐色を呈し、泥状で腐植物繊維を多く含む有機質なシルト分及び粘土分が主で、含水比は約 380% である。
- 試料 B: 黄褐色を呈し、泥状でシルト分及び粘土分が主で、砂分を含み、含水比は約 180% である。
- 試料 C: 黄灰色を呈し、砂分が主で、シルト分及び粘土分を若干含み、含水比は約 25% である。
- 試料 D: 黄褐～褐色を呈し、砂分が主で、シルト分及び粘土分を若干含み、含水比は約 22% である。
- 試料 E: 試料 D と同様

また、前処理後の各試料の外観を図 1-4 に示す。



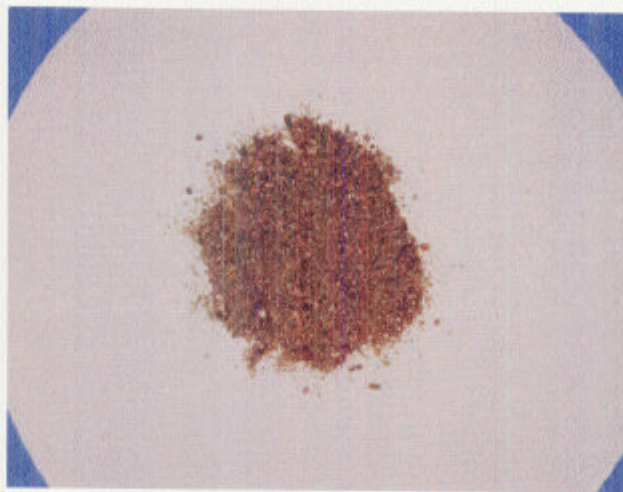
(1) 試料 A (I-13)



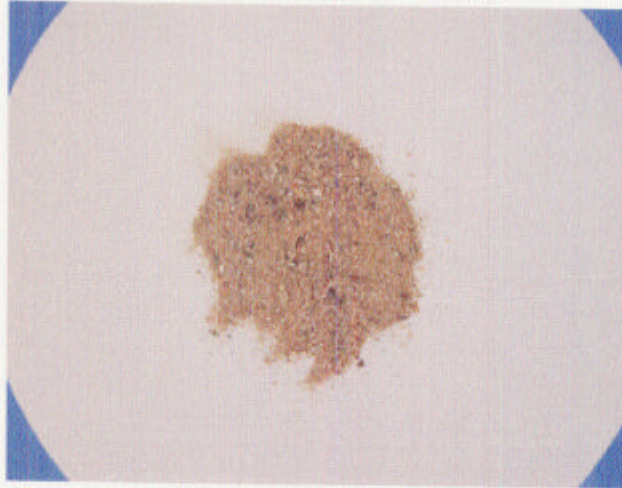
(2) 試料 B (I-10)



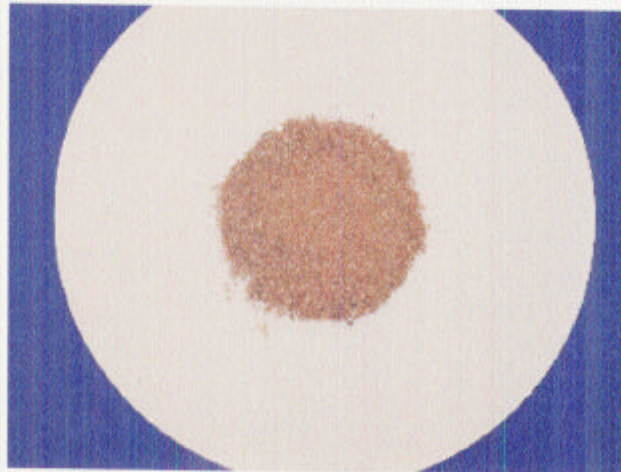
(3) 試料 C (O-7)



(4) 試料 D (S-4)



(5) 試料 E (T-2)



(5) 試料 F (M-7)

図 1-4 鉍さい試料の外観

1.1.5 化学組成

(1) 測定方法

鉍さい試料 (A~F) の化学組成は以下の手法で測定した。

- Na_2O , K_2O ; 酸分解-原子吸光法
- FeO ; ニクロム酸カリウム滴定法
- Fe_2O_3 ; GB-FX 分析法で Total-Fe を定量し, Fe と FeO との差から算出 (試料 F に対しては, ICP 発光法により Fe 全量を分析)

- H_2O^+ ; カールフィッシャー法 (容量滴定法)
- U, Th ; ICP 質量分析法により, U-238 及び Th-232 の濃度を測定
- Ra (Ra-226) ; 試料 1.0g を密閉容器内に封入し, 放射平衡後, γ 線スペクトメータを用いて子孫核種の Bi-214 から放出される γ 線 (609keV, 放出率 42.6%) を測定して定量 (試料 F については, 試料 1.0g を酸溶解して 50ml に定容後, γ 線スペクトメータを用いて γ 線 (185.99keV, 放出率 3.82%) を測定して定量)
- その他 ; GB-FX 分析法 (JIS M 8205)² (試料 F に対する Ca, Mg, Al の分析は ICP 発光法による)

(2) 測定結果

鉍さい試料の化学組成を表 1-1及び図 1-5～図 1-7に示す。ただし、試料 F は分析対象が異なるので図 1-5～図 1-7には記載しないこととした。主成分である SiO_2 は、試料 A では 40wt%, 試料 B では 57wt%, 試料 C, D, E, F では～75wt%であった。試料 A では Fe が、試料 B では Ca が他の試料に比べ高い割合で含有していた。5種類の試料の内、試料 C, D, E, F の化学組成に大きな差はなく、比較的類似していた。

U, Th は試料 A が最も高く、Ra は試料 B が最も高かった。U, Th, Ra-226 の3元素については、概して試料 A, B の方が試料 C, D, E, F より高くなった。なお、天然 U, U-238, Th (Th-232), Ra-226 の比放射能値を表 1-2に示す。U, Th および Ra-226 について鉍さい試料中の放射能濃度は、それぞれ 1～13 Bq/g (U-238 と仮定), 0.02～0.1 Bq/g および 4～34 Bq/g と評価された。

² JIS M 8205 「鉄鉍石の蛍光 X 線分析方法」

表 1-1 鉍さい試料の化学組成分析結果

単位 ; wt% (下3段のカラム以外)

成分	試料 A (I-13)	試料 B (I-10)	試料 C (O-7)	試料 D (S-4)	試料 E (T-2)	試料 F (M-7)
SiO ₂	39.3	57.1	75.4	73.7	74.6	76.6
TiO ₂	0.7	0.5	0.2	0.3	0.3	— *1
Al ₂ O ₃	16.3	12.3	11.5	12.1	12.4	11.5
Fe ₂ O ₃	3.9	2.5	1.2	1.6	1.2	Fe とし て 1.5
FeO	3.0	0.6	0.2	0.1	0.2	
MnO ₂	0.12	0.04	0.01	0.10	0.02	— *1
MgO	0.95	0.26	0.17	0.22	0.22	0.13
CaO	1.8	5.5	0.6	0.9	1.0	1.1
P ₂ O ₅	0.56	0.21	0.05	0.08	0.04	— *1
Na ₂ O	0.7	2.6	2.5	3.1	2.9	2.7
K ₂ O	1.2	2.4	4.1	3.6	3.6	3.0
H ₂ O ⁻ (105°C)	1.1	1.6	0.16	0.13	0.11	— *1
H ₂ O ⁺ (1000°C)	7.6	2.5	0.9	0.9	0.7	— *1
U-238	1.0 × 10 ⁻¹	5.9 × 10 ⁻²	8.7 × 10 ⁻³	1.3 × 10 ⁻²	1.0 × 10 ⁻²	1.0 × 10 ⁻²
Th-232	2.6 × 10 ⁻³	1.0 × 10 ⁻³	1.0 × 10 ⁻³	6.0 × 10 ⁻⁴	7.0 × 10 ⁻⁴	9.0 × 10 ⁻⁴
Ra-226	4.9 × 10 ⁻⁸	9.2 × 10 ⁻⁸	1.0 × 10 ⁻⁸	2.2 × 10 ⁻⁸	1.1 × 10 ⁻⁸	2.6 × 10 ⁻⁸
U-238 (Bq/g) *2	1.2 × 10 ¹	7.3	1.1	1.6	1.2	1.2
Th-232 (Bq/g) *2	1.0 × 10 ⁻¹	4.0 × 10 ⁻²	4.0 × 10 ⁻²	2.4 × 10 ⁻²	2.8 × 10 ⁻²	3.6 × 10 ⁻²
Ra-226 (Bq/g) *2	1.8 × 10 ¹	3.4 × 10 ¹	3.7	8.1	4.0	9.6

* 1) 平成 13 年度に実施した試料 F における「—」は分析対象外

* 2) 表 1-2 の比放射能の値を用いて換算

(U-238 : 1.24 × 10⁴ Bq/g, Th-232 : 4.0 × 10³ Bq/g, Ra-226 : 3.7 × 10¹⁰ Bq/g)

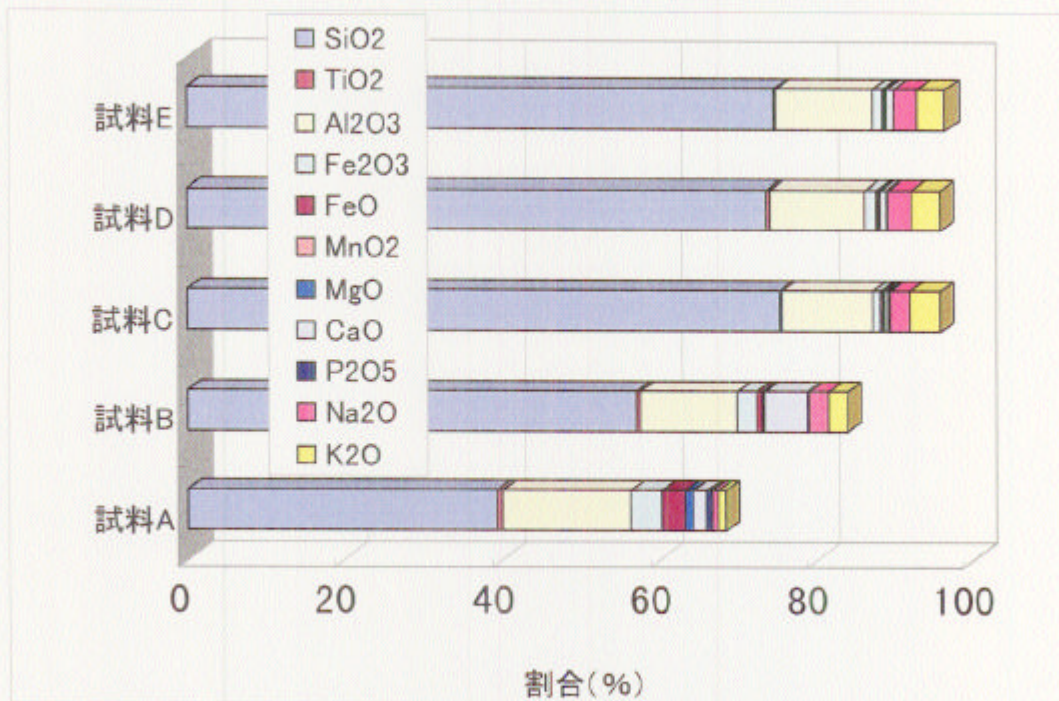


図 1-5 鈦さい試料の化学組成分析結果 (主要化学成分)

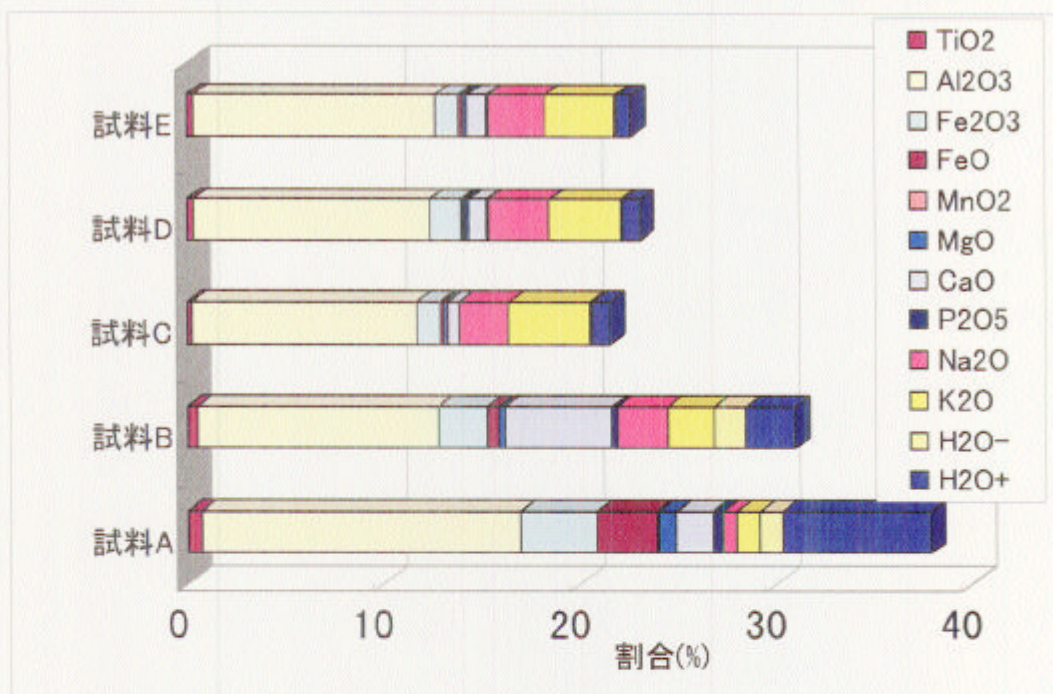


図 1-6 鈦さい試料の化学組成分析結果 (SiO₂ 除く)

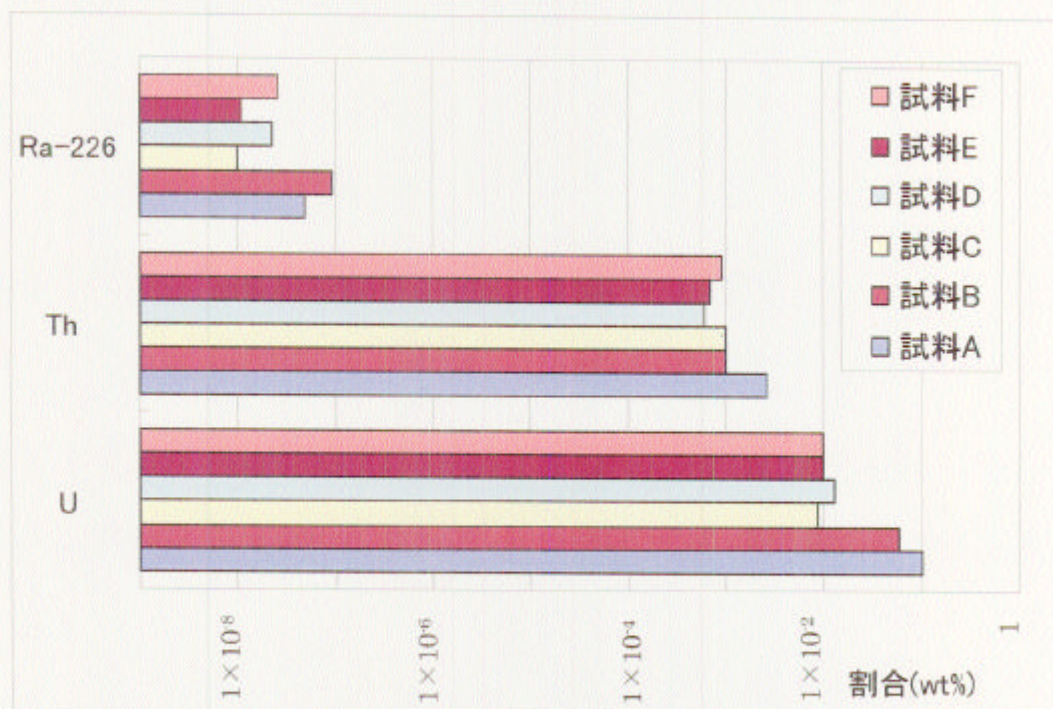


図 1-7 鉱さい試料の化学組成分析結果 (U、Th、Ra-226)

表 1-2 比放射能値

物質	濃縮度もしくは組成	半減期 (年)	比放射能 (Bq/g)	出典
天然ウラン	濃縮度 : 0.72%	U-238 4.5×10^9 U-235 7.0×10^8	2.6×10^4 (註1)	1
U-238	U-238 : 100%	4.5×10^9	1.24×10^4	2
トリウム	Th-232 : 100%	1.4×10^{10}	4.0×10^3	1
ラジウム	Ra-226 : 100%	1.6×10^3	3.7×10^{10}	1

1) IAEA, Safety series No.37, pp126, 1990

2) 原子力環境整備センター (現 : 原子力環境整備促進・資金管理センター)、放射性廃棄物データブック、平成 10 年

1. 1. 6 比表面積

粒径 2mm 以下に調整した鋳さい試料について、比表面積を BET 法 (N₂ ガス吸着法) で測定した。測定結果を表 1-3 及び図 1-8 に示す。試料 A, B のグループの比表面積は 20~40 m²/g 程度であり、試料 C, D, E のグループでは試料 A, B と比較して小さく 4~6 m²/g 程度であった。平成 13 年度実施の試料 F は、試料 C, D, E のグループに近い値であるが、試料 A, B のグループとの中間の値である。

表 1-3 鋳さい試料の比表面積

種類	比表面積 (m ² /g)
試料 A	39.5
試料 B	21.9
試料 C	4.2
試料 D	6.3
試料 E	4.6
試料 F	9.4

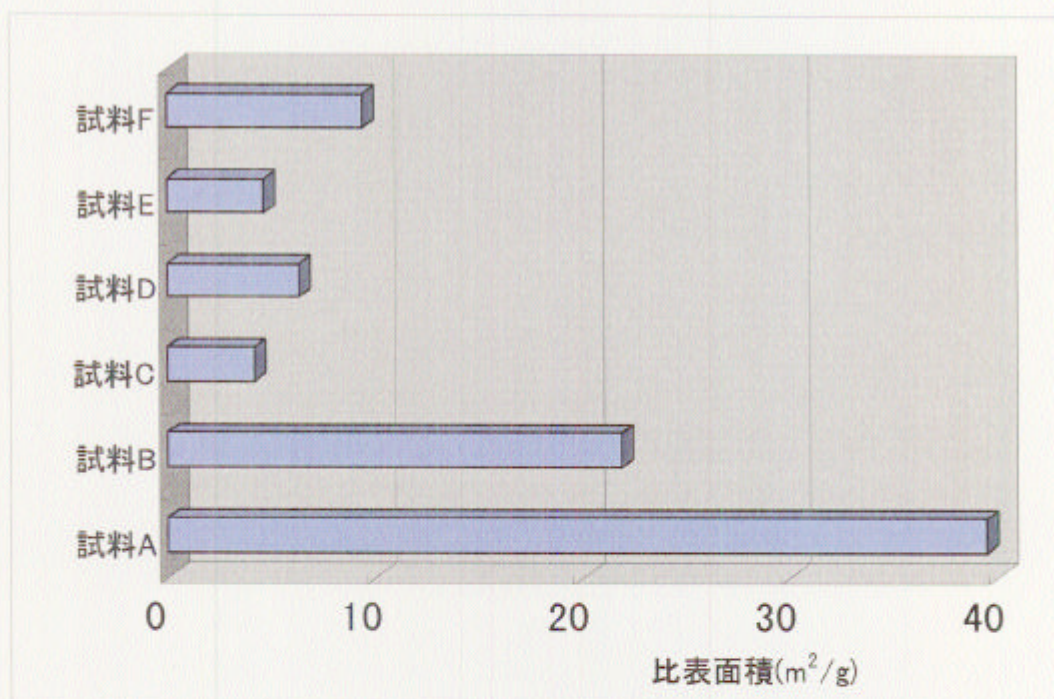


図 1-8 鋳さい試料の比表面積

1. 1. 7 陽イオン交換容量 (Cation Exchange Capacity)

鉍さい試料 (A~E) の CEC を酢酸アンモニウム法で測定した (平成 13 年度実施の試料 F は測定対象外)。鉍さい試料の交換性陽イオンを 1N-酢酸アンモニウムでアンモニウムイオンと置換し、次いで、塩化カリウム溶液で試料中のアンモニウムイオンとカリウムイオンを置換することによりアンモニウムイオンを浸出させ、浸出したアンモニウムイオンを定量することにより CEC を求めた。なお、測定は繰り返し数 2 回で行った。

測定結果を表 1-4 及び図 1-9 に示す。CEC は、試料 A, B でやや大きく 10~30 meq/100g 程度であり、試料 C, D, E では試料 A, B と比較して小さく数 meq/100g 程度であった。

表 1-4 鉍さい試料の CEC

種類	n	測定値 (meq/100g)	平均値 (meq/100g)
試料 A	1	19.6	24.6
	2	29.6	
試料 B	1	14.0	13.8
	2	13.6	
試料 C	1	2.4	2.2
	2	2.0	
試料 D	1	2.2	2.3
	2	2.4	
試料 E	1	3.6	3.6
	2	3.6	

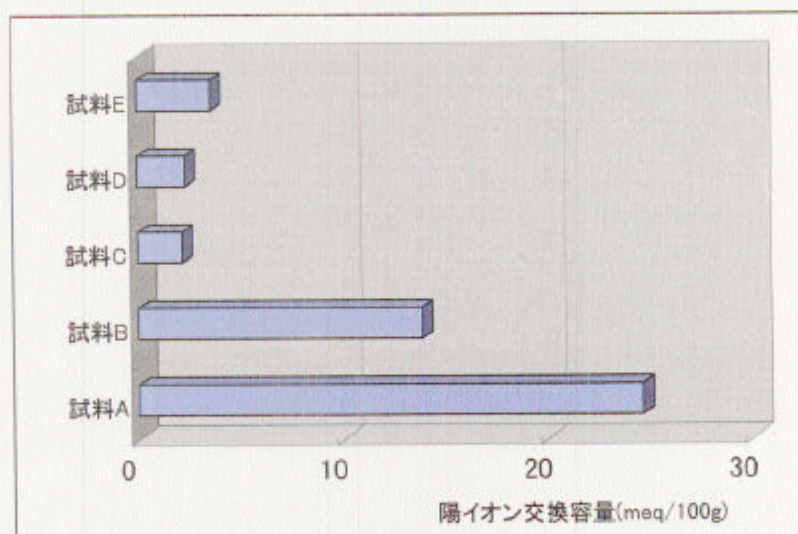


図 1-9 鉍さい試料の CEC

2. 溶出率測定試験

U, Th, Ra の溶出率は、「土壌の汚染に係る環境基準について」（平 3 環境庁告示 46 号）で定められている溶出試験法に準拠して測定を行った。

2.1 測定方法

粒径 2mm 以下に調整した鉍さい試料 50g と蒸留水 500ml (pH6.2) をポリビンに入れ、室温（約 20℃）にて 6 時間振とうした。振とう回数は 200 回/分、振とう幅は約 4cm とした。振とう終了後、試料液を遠心分離（3000 回転/分で 20 分間）後、上澄液を 0.45 μm のメンブランフィルターでろ過し、ろ液中の pH, Eh（酸化還元電位）、EC（電気伝導度）、元素濃度を測定した。なお、繰り返し試験数は 3 回とした。

2.2 測定結果

鉍さい試料の溶出試験結果（液相中の測定対象の濃度）を表 2-1 及び図 2-1～図 2-4 に示す。なお、平成 13 年度実施の試料 F において分析対象外とした元素は空欄のままとした。

溶出液の pH は、試料 A では 6.3、試料 B (7.3)、E (7.6) では 7 以上、試料 C では 5.4、試料 D, E では 5.9 とほぼ同じであった。Eh（酸化還元電位）は試料 A, B では +150～+160 mV の範囲であり、試料 C, D, E では A, B に比べやや高く +250～+280 mV の範囲となった。EC（電気伝導度）は、試料 A, B では 1,000～2,000 μS/cm であり、試料 C, D, E の数十 μS/cm に比べ 1 オーダ以上高いことから、元素の溶出量が多かったと考えられる。

溶出液中の元素濃度は、試料によって傾向が異なり、概して試料 A, B と試料 C, D, E がそれぞれ類似した傾向にあった。試料 A, B では Ca や SO₄²⁻ の溶出が試料 C, D, E に比べオーダで高く見られた。

溶出液中の U 濃度は、試料 B が他の試料に比べ 2 オーダ程度高く、3.4 mg/l となった。試料 A では 44.6 μg/l、試料 C では 32.8 μg/l、試料 D では 9.2 μg/l、試料 E では 21.0 μg/l であり、ほぼ同オーダであった。Th 濃度は U 濃度と比較してオーダで低く、試料 A, D, E では 0.2 μg/l 程度であり、試料 B, C ではさらに 1 オーダ低い 0.04～0.06 μg/l であった。Ra-226 濃度は、試料 A～D で何れも検出下限値 (2.2×10^{-4} μg/L) 以下となった。試料 E については、一部検出下限値を僅かに上回る濃度が検出された。

表 2-1 鉱さい試料の溶出測定試験結果

	n	pH	Eh ⁺ (mV)	EC (μS/cm)	Na (mg/L)	K (mg/L)	Ca (mg/L)	Mg (mg/L)	Al (mg/L)	Fe (mg/L)	Si (mg/L)	PO ₄ ³⁻ (mg/L)	SO ₄ ²⁻ (mg/L)	Cl (mg/L)	HCO ₃ ⁻ (mg/L)	U (ug/L)	Th (ug/L)	Ra-226 (ug/L)
A	1	6.3	151	865	2.5	1.5	235	6.2	<0.1	0.11	5.9	<0.03	682	2.9	2.7	42	0.26	<2.2×10 ⁻⁴
	2	6.3	148	881	2.5	1.7	251	6.2	<0.1	0.10	6.4	<0.03	489	2.9	2.8	46	0.19	2.3×10 ⁻⁴
	3	6.3	150	923	2.5	1.5	251	6.1	<0.1	0.12	5.8	<0.03	492	3.0	3.0	46	0.13	<2.2×10 ⁻⁴
	Ave.	6.3	150	890	2.5	1.6	246	6.2	<0.1	0.11	6.0	<0.03	554	2.9	2.8	45	0.19	2.2×10 ⁻⁴
B	1	7.4	163	1953	3.3	1.3	686	5.2	<0.1	<0.05	4.6	0.20	1340	0.7	6.1	4.4×10 ³	0.07	<2.2×10 ⁻⁴
	2	7.3	162	1971	3.0	1.6	684	4.7	<0.1	<0.05	3.2	0.19	1340	0.7	5.6	3.5×10 ³	0.06	<2.2×10 ⁻⁴
	3	7.3	163	2030	2.6	1.2	716	3.5	<0.1	<0.05	3.5	0.17	1420	0.5	4.8	2.4×10 ³	0.05	<2.2×10 ⁻⁴
	Ave.	7.3	163	1985	3.0	1.4	695	4.5	<0.1	<0.05	3.7	0.19	1367	0.6	5.5	3.4E+03	0.06	2.2×10 ⁻⁴
C	1	5.4	237	88	<1.0	<1.0	12.3	0.26	<0.1	<0.05	1.4	<0.03	33.4	0.6	<0.5	33	0.05	<2.2×10 ⁻⁴
	2	5.4	235	87	<1.0	<1.0	12.4	0.27	<0.1	<0.05	1.3	<0.03	32.9	0.5	<0.5	32	0.07	<2.2×10 ⁻⁴
	3	5.4	236	90	<1.0	<1.0	12.9	0.28	<0.1	<0.05	1.4	<0.03	34.0	0.6	<0.5	33	0.01	<2.2×10 ⁻⁴
	Ave.	5.4	236	88	<1.0	<1.0	12.5	0.27	<0.1	<0.05	1.4	<0.03	33.4	0.5	<0.5	33	0.04	2.2×10 ⁻⁴
D	1	5.9	256	26	<1.0	<1.0	3.3	0.22	0.12	0.39	1.8	0.08	7.2	<0.1	<0.5	10.7	0.19	<2.2×10 ⁻⁴
	2	5.9	253	26	<1.0	<1.0	3.2	0.21	0.14	0.30	1.8	0.08	6.7	<0.1	<0.5	8.6	0.19	<2.2×10 ⁻⁴
	3	5.9	254	25	<1.0	<1.0	3.2	0.21	0.10	0.31	1.6	0.09	6.6	<0.1	<0.5	8.3	0.16	<2.2×10 ⁻⁴
	Ave.	5.9	255	26	<1.0	<1.0	3.2	0.21	0.12	0.33	1.7	0.08	6.8	<0.1	<0.5	9.2	0.18	2.2×10 ⁻⁴
E	1	5.9	267	67	<1.0	<1.0	10.1	0.18	0.10	0.29	1.4	0.05	25.7	<0.1	<0.5	22	0.30	<2.2×10 ⁻⁴
	2	5.9	276	68	<1.0	<1.0	10.2	0.18	0.12	0.31	1.6	0.05	25.6	<0.1	<0.5	21	0.21	2.5×10 ⁻⁴
	3	5.9	273	68	<1.0	<1.0	10.2	0.18	0.14	0.33	1.5	0.05	25.2	<0.1	<0.5	20	0.20	2.3×10 ⁻⁴
	Ave.	5.9	272	68	<1.0	<1.0	10.2	0.18	0.12	0.31	1.5	0.05	25.2	<0.1	<0.5	21	0.23	2.3×10 ⁻⁴
F	1	7.6	320	740	-	-	-	-	-	-	-	-	-	As:12.2	(mg/L)	327	<0.1	<5.2×10 ⁻⁶
	2	7.6	330	750	-	-	-	-	-	-	-	-	-	11.7	〃	313	<0.1	<5.2×10 ⁻⁶
	3	7.6	340	735	-	-	-	-	-	-	-	-	-	11.8	〃	303	<0.1	<5.2×10 ⁻⁶
	Ave.	7.6	330	742	-	-	-	-	-	-	-	-	-	11.5	〃	314	<0.1	5.2×10 ⁻⁶

* 1) 試料A～Eについては、Ag/AgCl電極を使用して測定したため、測定値をEh(mV vs NHE)に換算(測定値+約210mV)した

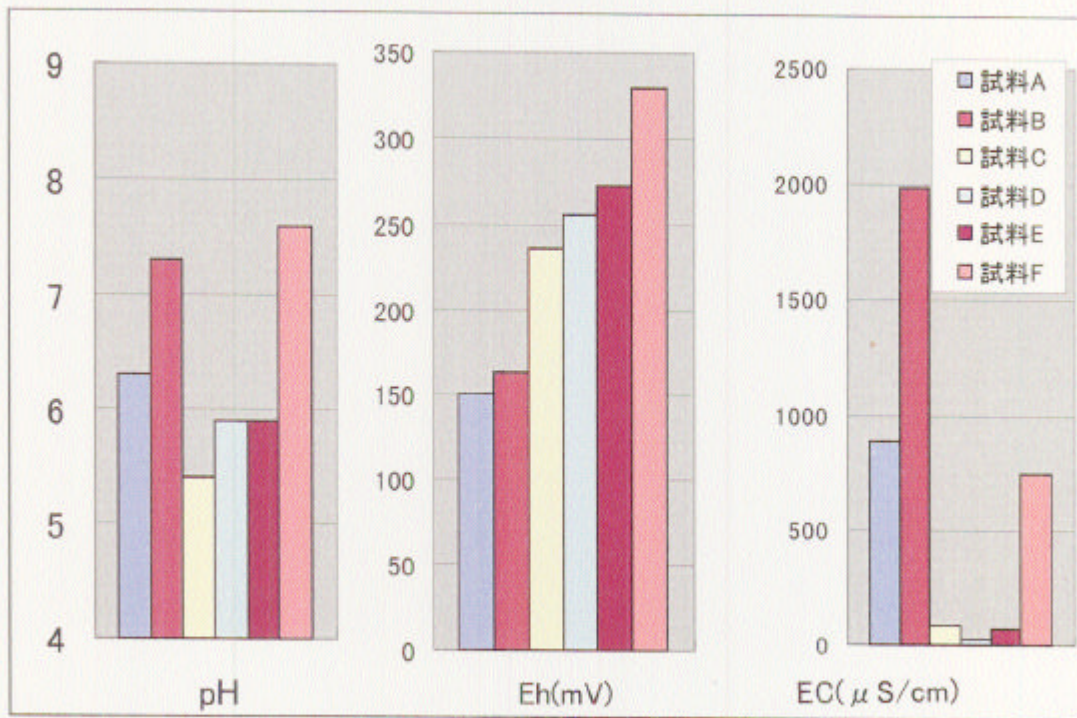


図 2-1 溶出試験における液性

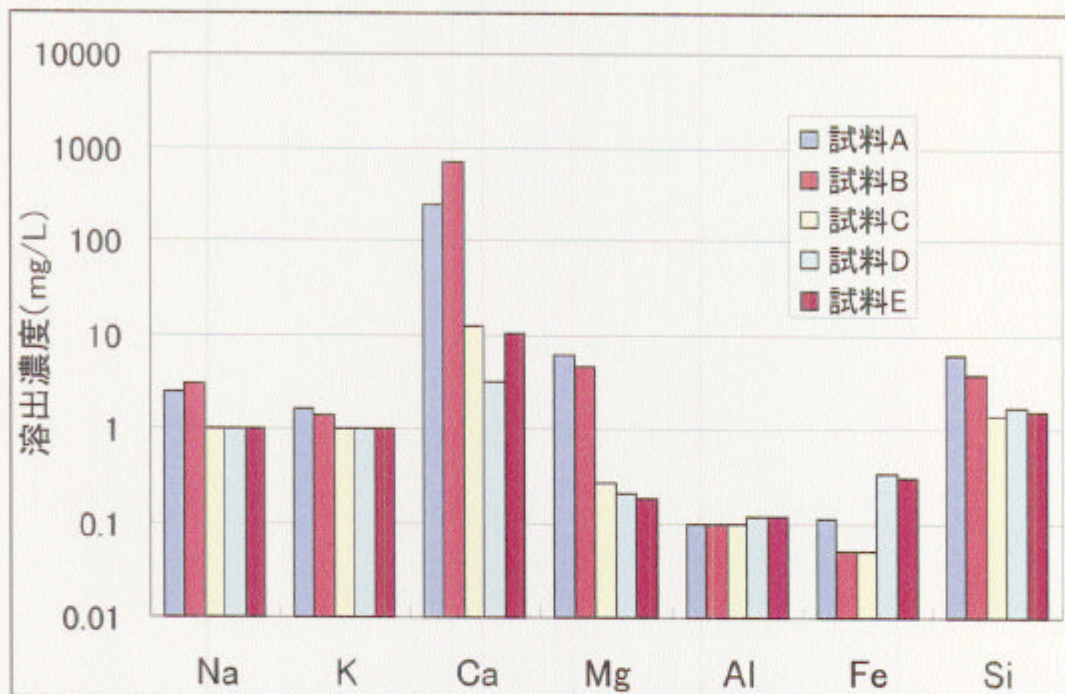


図 2-2 溶出試験における液相中濃度 (陽イオン)

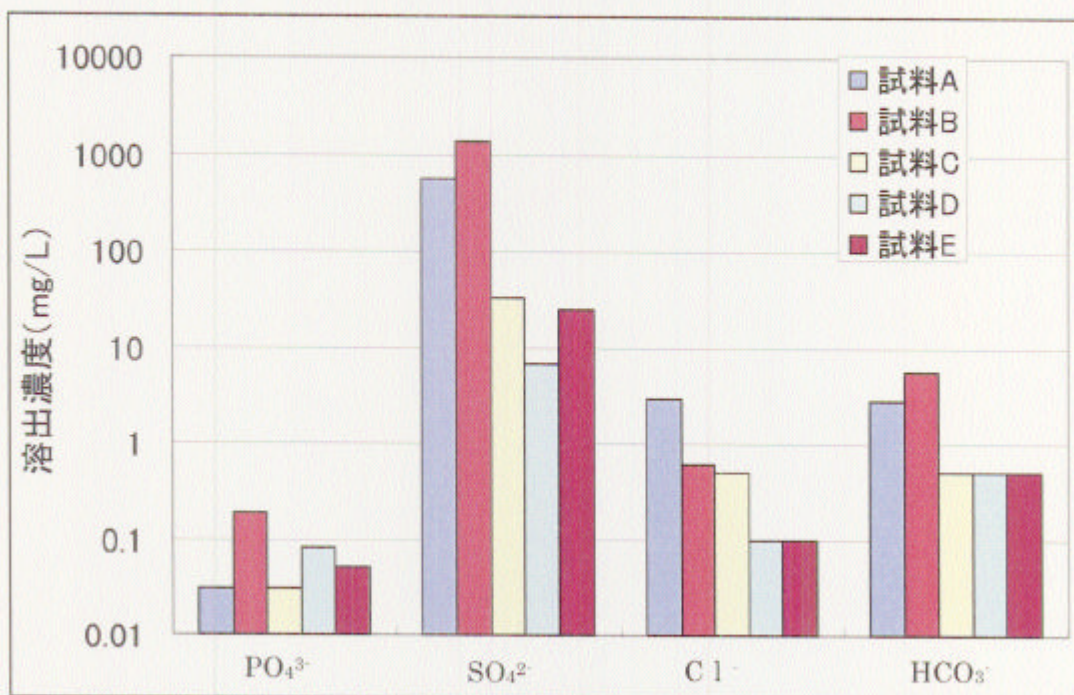


図 2-3 溶出試験における液相中濃度 (陰イオン)

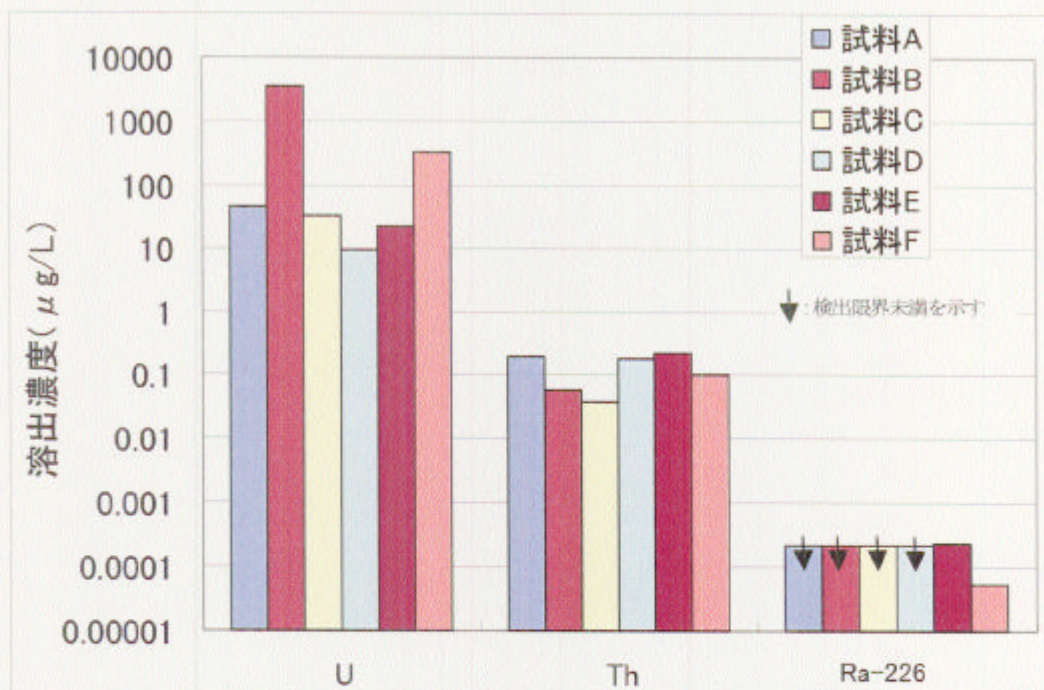


図 2-4 溶出試験における液相中濃度 (U、Th、Ra-226)

U, Th, Ra-226 の溶出率を表 2-2～表 2-4及び図 2-5に示す。U の溶出率は試料 B が最も高く 6×10^{-2} であった。他の試料はこれよりオーダーで低く $10^{-4} \sim 10^{-3}$ であった。

Th の溶出率は U の溶出率と比較して全般的に低く、試料 D, E では他の試料よりやや高く 3×10^{-4} 程度、試料 A, B, C は何れも 10^{-5} オーダーであった。なお、試料 B, C については Th の溶出濃度が検出下限値未満であったため、その精度は低くなる。

Ra-226 の溶出率は、Ra-226 の溶出濃度が検出下限値未満となるケースが多く、正確な評価はできなかったが、試料 A では 4.5×10^{-3} 以下、試料 B では 2.4×10^{-3} 以下、試料 C では 2.2×10^{-3} 以下、試料 D では 9.7×10^{-3} 以下、試料 E では 2.1×10^{-2} 以下と推定された。

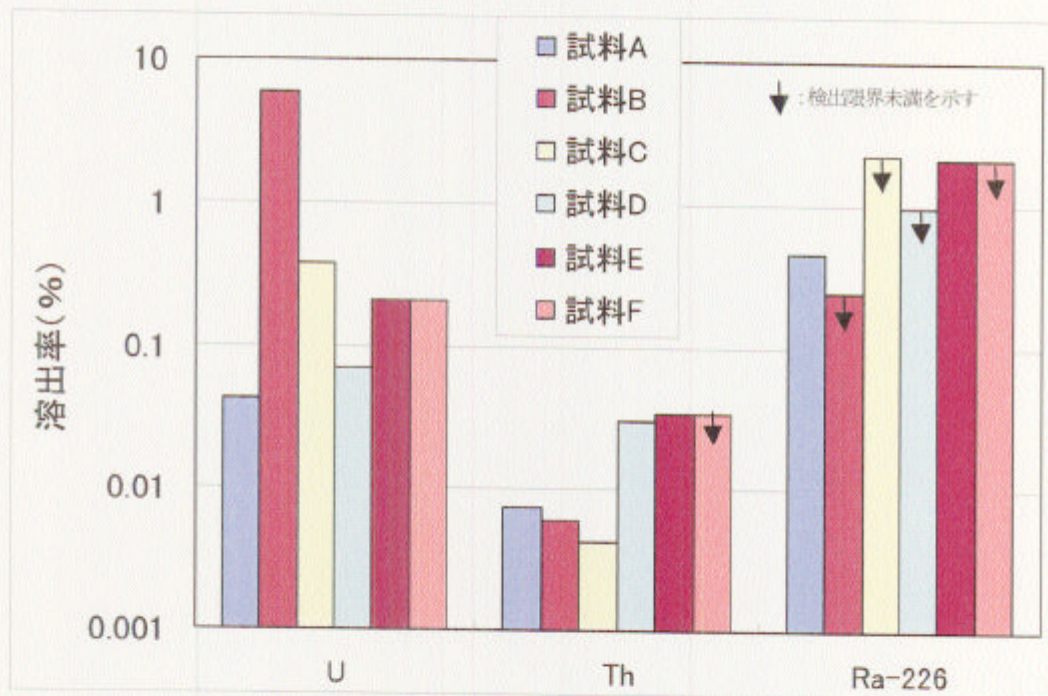


図 2-5 鉱さい試料の U, Th, Ra-226 の溶出率

表 2-2 鉍さい試料からの U の溶出率

元素	試料	n 数	溶出液中 の濃度 (ng/ml)	溶出量 (ng) ①	固相中 含有濃度 (ng/g)	固相中 含有量 (ng) ②	溶出率 (%) (100×①/②)
U	A	1	42	2.1×10^4	1.0×10^6	5.2×10^7	4.1×10^{-2}
		2	46	2.3×10^4			4.5×10^{-2}
		3	46	2.3×10^4			4.5×10^{-2}
		平均	45	2.2×10^4			4.3×10^{-2}
	B	1	4.4×10^3	2.2×10^6	5.9×10^5	2.9×10^7	7.5
		2	3.5×10^3	1.8×10^6			6.0
		3	2.4×10^3	1.2×10^6			4.1
		平均	3.4×10^3	1.7×10^6			5.9
	C	1	33	1.7×10^4	8.7×10^4	4.4×10^5	3.8×10^{-1}
		2	32	1.6×10^4			3.7×10^{-1}
		3	33	1.7×10^4			3.8×10^{-1}
		平均	33	1.6×10^4			3.8×10^{-1}
	D	1	10.7	5.4×10^3	1.3×10^5	6.6×10^6	8.2×10^{-2}
		2	8.6	4.3×10^3			6.6×10^{-2}
		3	8.3	4.2×10^3			6.3×10^{-2}
		平均	9.2	4.6×10^3			7.0×10^{-2}
	E	1	22	1.1×10^4	1.0×10^5	5.1×10^6	2.2×10^{-1}
		2	21	1.1×10^4			2.1×10^{-1}
		3	20	1.0×10^4			2.0×10^{-1}
		平均	21	1.1×10^4			2.1×10^{-1}
	F	1	327	1.6×10^5	2.0×10^5	1.0×10^7	1.6
		2	313	1.6×10^5			1.6
		3	303	1.5×10^5			1.6
		平均	314	1.6×10^5			1.6

注 1) 液量はいずれも 500ml, 固相量はいずれも 50g

表 2-3 鉍さい試料からの Th の溶出率

元素	試料	n 数	溶出液中の濃度 ¹⁾ (ng/ml)	溶出量 (ng) ①	固相中 含有濃度 (ng/g)	固相中 含有量(ng) ②	溶出率 (%) (100×①/②)
Th	A	1	0.26	130	2.6×10^4	1.3×10^6	1.0×10^{-2}
		2	0.19	95			7.3×10^{-3}
		3	0.13	65			5.0×10^{-3}
		平均	0.19	97			7.4×10^{-3}
	B	1	0.07	36	1.0×10^4	5.0×10^5	7.2×10^{-3}
		2	0.06	31			6.1×10^{-3}
		3	0.05	24			4.7×10^{-3}
		平均	0.06	30			6.0×10^{-3}
	C	1	0.05	25	1.0×10^4	5.0×10^5	5.1×10^{-3}
		2	0.07	34			6.8×10^{-3}
		3	0.005	3			5.4×10^{-4}
		平均	0.04	21			4.2×10^{-3}
	D	1	0.19	94	6.0×10^3	3.0×10^5	3.1×10^{-2}
		2	0.19	94			3.1×10^{-2}
		3	0.16	82			2.7×10^{-2}
		平均	0.18	90			3.0×10^{-2}
	E	1	0.30	149	7.0×10^3	3.5×10^5	4.3×10^{-2}
		2	0.21	103			3.0×10^{-2}
		3	0.20	100			2.8×10^{-2}
		平均	0.23	117			3.4×10^{-2}
F	1	< 0.1	< 50	9.0×10^3	4.5×10^5	< 1.1×10^{-2}	
	2	< 0.1	< 50			< 1.1×10^{-2}	
	3	< 0.1	< 50			< 1.1×10^{-2}	
	平均	< 0.1	< 50			< 1.1×10^{-2}	

注 1) 液量はいずれも 500ml, 固相量はいずれも 50g

表 2-4 鉍さい試料からの Ra-226 の溶出率

元素	試料	n 数	溶出液中 の濃度 (ng/ml)	溶出量 (ng) ①	固相中 含有濃度 (ng/g)	固相中 含有量(ng) ②	溶出率 (%) (100×①/②)
Ra-226	A	1	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}	4.9×10^{-1}	2.5×10^1	$<4.4 \times 10^{-1}$
		2	2.3×10^{-4}	1.1×10^{-1}			4.6×10^{-1}
		3	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}			$<4.4 \times 10^{-1}$
		平均	2.2×10^{-4}	1.1×10^{-1}			4.5×10^{-1}
	B	1	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}	9.3×10^{-1}	4.6×10^1	$<2.4 \times 10^{-1}$
		2	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}			$<2.4 \times 10^{-1}$
		3	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}			$<2.4 \times 10^{-1}$
		平均	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}			$<2.4 \times 10^{-1}$
	C	1	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}	1.0×10^{-1}	5.1	<2.1
		2	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}			<2.1
		3	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}			<2.1
		平均	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}			<2.1
	D	1	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}	2.2×10^{-1}	1.1×10^1	$<9.7 \times 10^{-1}$
		2	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}			$<9.7 \times 10^{-1}$
		3	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}			$<9.7 \times 10^{-1}$
		平均	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}			$<9.7 \times 10^{-1}$
	E	1	$<2.2 \times 10^{-4}$	1.1×10^{-1}	1.1×10^{-1}	5.5	<2.0
		2	2.5×10^{-4}	1.2×10^{-1}			2.2
		3	2.3×10^{-4}	1.1×10^{-1}			2.1
		平均	2.3×10^{-4}	1.2×10^{-1}			2.1
F	1	$<5.2 \times 10^{-5}$	$<2.6 \times 10^{-2}$	2.6×10^{-1}	1.3×10^1	$<2.0 \times 10^{-1}$	
	2	$<5.2 \times 10^{-5}$	$<2.6 \times 10^{-2}$			$<2.0 \times 10^{-1}$	
	3	$<5.2 \times 10^{-5}$	$<2.6 \times 10^{-2}$			$<2.0 \times 10^{-1}$	
	平均	$<5.2 \times 10^{-5}$	$<2.6 \times 10^{-2}$			$<2.0 \times 10^{-1}$	

注1) 液量はいずれも 500ml, 固相量はいずれも 50g

3. 分配係数測定試験

鉍さい試料に対する U, Th, Ra-226 の分配係数測定を行った。

3.1 試験試料

3.1.1 地下水試料

地下水試料（液相）は、図 1-3に示す地点から採取した試料に対して固液分離した液相を試料とした。液相の水質（表 3-1）が類似していることから、①試料 A, 試料 B, 試料 C と②試料 D, 試料 E をそれぞれ混合して、分配係数に用いる地下水①及び地下水②とした（表 3-2参照）。また、平成 13 年度実施の試料 F については、M-7 から採取した地下水（③）を他と混合せずに使用した。

分配係数測定試験に供する混合後の地下水試料（①, ②, ③）の地下水組成の分析結果を表 3-2に示す。Ra-226 について、試料①及び②については、浸出液 50ml を採取し、放射平衡後、 γ 線スペクトメータを用いて子孫核種の Bi-214 の γ 線（609keV、放出率 42.6%）を測定することにより定量したが、試料③においては、試料 50ml を採取し、 γ 線スペクトメータを用いて γ 線（185.99keV、放出率 3.82%）を測定して定量した。

表 3-1 各試料から固液分離した液相の水質分析結果

項目	試料 A	試料 B		試料 C	試料 D		試料 E	分析手法
	I-13	I-10		O-7	S-4		T-2	
pH	7.3	7.7	7.4	6.8	5.7	6.4	6.2	半導体方式
EC(mS/cm)	1.24	2.5	2.4	0.58	0.054	0.095	0.36	電極法
Na(ppm)*1	5.3 *2	31	39	10	3.4	3.1	4.5 *2	ICP 法
Ca(ppm)*1	312	579	618	88	3.9	10.7	52	〃
U(ppm)*1	0.17	2.36	0.88	0.033	0.0003	0.0005	0.0014 *2	ICP-MS 法

*1 Na, Ca 及び U は、100 倍希釈して測定（但し、S4-23 及び S4-32 を除く）。

*2 定量下限値以下

表 3-2 地下水試料の分析結果

項目	地下水① (試料 A, B, C 用)	地下水② (試料 D, E 用)	地下水③ (試料 F 用)	分析手法
pH	8.3	6.9	6.7	ガラス電極法
Eh (mV)	+240	+300	+410	〃
EC (μS/cm)	1640	150	490	電極法
U (mg/L)	1.1	1.4×10^{-3}	$< 1.0 \times 10^{-4}$	ICP-MS 法
Th (mg/L)	$< 1.0 \times 10^{-4}$	$< 1.0 \times 10^{-4}$	$< 1.0 \times 10^{-4}$	〃
Ra-226 (Bq/L)	< 8.0	< 8.0	< 1.9	放射能測定

3.1.2 トレーサ溶液

U, Th, Ra のトレーサ溶液は、以下の方法により調整した。

(1) U

0.28 g の U_3O_8 を濃硝酸に加熱溶解し、蒸留水で 100 ml に定容した。さらに 10 倍希釈して約 1×10^{-3} mol/L (240 ppm) の溶液を作製した。

(2) Th

0.26 g の ThO_2 を濃硝酸に加熱溶解し、蒸留水で 100 ml に定容した。さらに 100 倍希釈して約 1×10^{-4} mol/L (23 ppm) の溶液を作成した。

(3) Ra (Ra-226)

日本アイソトープ協会より購入した Ra-226 を蒸留水で希釈し、約 5 kBq/ml の溶液 (約 6.1×10^{-7} mol/L, 0.14 ppm) に調整した。

3.2 測定方法

分配係数は大気雰囲気中で測定を行った。地下水試料 10ml に U, Th, Ra-226 のトレーサ溶液をそれぞれ単独で 0.1ml 加え、試験溶液とした。試験溶液に鉍さい試料 1.0g を入れて軽く攪拌後、20℃の恒温槽内で7日間静置した。その後、孔径 0.45 μm のメンブランフィルターを用いてろ過を行い、ろ液を回収して、pH, Eh, 電気伝導度及び各トレーサ濃度を測定した。なお、試料 B に対する U の分配係数測定では、溶出試験において他試料より U の高い溶出が見られたことから、1 オーダ高い初期濃度で試験を行った。また、

Th の試験では、地下水 1 で沈殿の生成が見られたため、地下水 2 より 1 オーダ低い初期濃度で試験を行った。なお、沈殿は白色の綿状であり、完全には沈降せず液相中を浮遊した状態であった。

U 及び Th は ICP 質量分析法により、それぞれ U-238, Th-232 の濃度を測定した。Ra (Ra-226) は溶液をガラス容器に密閉し、子孫核種 (Rn-222) との放射平衡後、液体シンチレーションカウンタにより定量した。

なお、繰り返し試験数は 3 回 (ブランク試験は 1 件) とした。pH, Eh, 電気伝導度については各条件につき 1 件の測定とした。

分配係数の評価式を以下に示す。試験容器内壁への吸着による影響を排除するため、鉍さい試料を入れないブランク試験も並行して実施し、分配係数の評価においてはブランク試料のトレーサ濃度を初期濃度として評価した。

$$Kd = \frac{\text{固相中の元素濃度}}{\text{液相中の元素濃度}} = \{(Co - C) / C\} \times (V / S)$$

Kd : 分配係数 (m³/kg)

Co : ブランク試料の液相中の元素濃度

C : 試験後の液相中の元素濃度

V : 溶液の体積 (m³)

S : 固相の質量 (kg)

3.3 測定結果

鉍さい試料の分配係数測定結果を表 3-3～表 3-5及び図 3-1に示す。分配係数の測定結果は以下の通りである：

- ・ U；試料 A の $0.70 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 C, D, F の $0.19\sim 0.27 \text{ m}^3/\text{kg}$ に比べて、試料 B ($0.02 \text{ m}^3/\text{kg}$) や試料 E ($0.05 \text{ m}^3/\text{kg}$) はやや小さい値であった。
- ・ Th；試料によって大きく異なり，最大の値の試料 D の $160 \text{ m}^3/\text{kg}$ から最小の値の試料 A の $0.46 \text{ m}^3/\text{kg}$ の範囲に分布した。(試料 B で $3.0 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 C で $10 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 E で $9.5 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 F で $22 \text{ m}^3/\text{kg}$)
- ・ Ra-226；試料間による差は U や Th に比べると小さかった。概ね $1 \text{ m}^3/\text{kg}$ 程度であったが，試料 F の $0.38 \text{ m}^3/\text{kg}$ から，試料 C の $0.68 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 D の $0.87 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 A の $0.99 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 B の $2.2 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 E の $2.9 \text{ m}^3/\text{kg}$ まで，一桁の範囲で分布している。

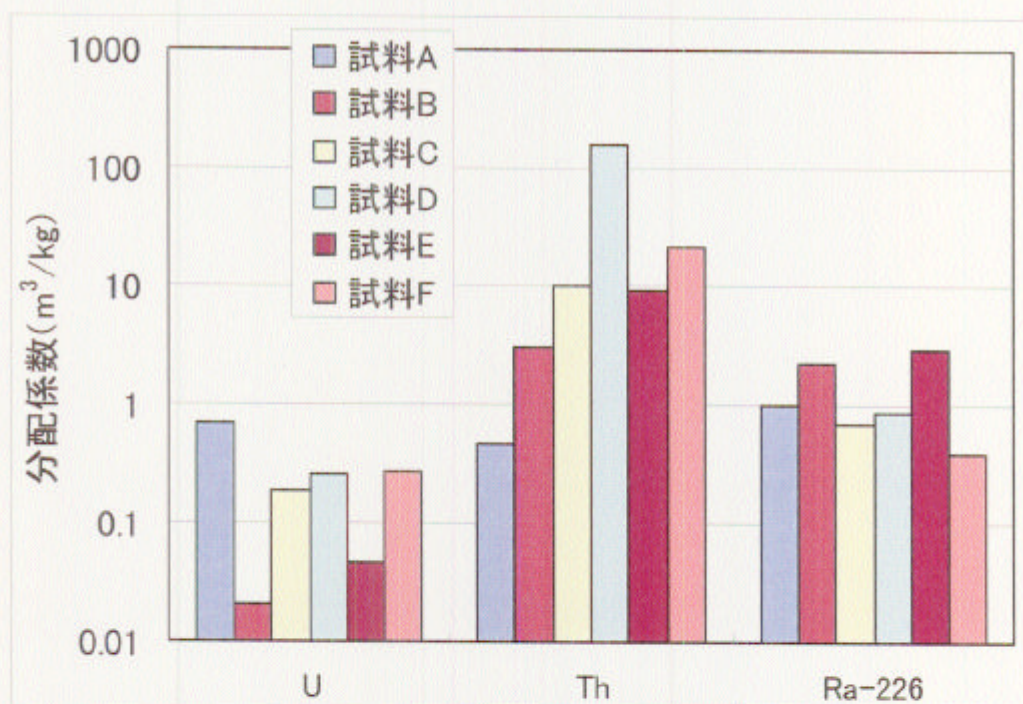


図 3-1 鉍さい試料に対する U, Th, Ra の分配係数測定結果

表 3-3 鉍さい試料に対する U の分配係数測定結果

元素	試料	n 数	pH	Eh (mV)	EC (μ S/cm)	ブレンカ濃度 (ng/ml)	試験後濃度 (ng/ml)	分配係数 (m^3/kg)
U	A	1	5.8	295	2470	2.9×10^3	4.0×10^1	7.2×10^{-1}
		2	—	—	—		4.1×10^1	7.0×10^{-1}
		3	—	—	—		4.2×10^1	6.8×10^{-1}
		平均	5.8	295	2470		4.1×10^1	7.0×10^{-1}
	B	1	6.7	328	2890	2.9×10^4	9.9×10^3	1.9×10^{-2}
		2	—	—	—		9.3×10^3	2.1×10^{-2}
		3	—	—	—		8.6×10^3	2.4×10^{-2}
		平均	6.7	328	2890		9.3×10^3	2.1×10^{-2}
	C	1	6.0	339	1973	2.9×10^3	1.4×10^2	2.0×10^{-1}
		2	—	—	—		1.4×10^2	2.0×10^{-1}
		3	—	—	—		1.5×10^2	1.8×10^{-1}
		平均	6.0	339	1973		1.4×10^2	1.9×10^{-1}
	D	1	4.6	365	250	1.9×10^3	6.5×10^1	2.8×10^{-1}
		2	—	—	—		7.6×10^1	2.4×10^{-1}
		3	—	—	—		7.6×10^1	2.4×10^{-1}
		平均	4.6	365	250		7.2×10^1	2.5×10^{-1}
	E	1	4.4	156	360	1.9×10^3	3.2×10^2	4.9×10^{-2}
		2	—	—	—		3.5×10^2	4.4×10^{-2}
		3	—	—	—		3.4×10^2	4.6×10^{-2}
		平均	4.4	156	360		3.4×10^2	4.6×10^{-2}
	F	1	8.0	370	690	2.5×10^2	9.3	2.6×10^{-1}
		2	—	—	—		8.8	2.7×10^{-1}
		3	—	—	—		9.0	2.7×10^{-1}
		平均	8.0	370	690		9.0	2.7×10^{-1}

表 3-4 鉍さい試料に対する Th の分配係数測定結果

元素	試料	繰返し 試験数	pH	Eh (mV)	EC (μ S/cm)	ブランク濃度 (ng/ml)	試験後濃度 (ng/ml) ^{註 1)}	分配係数 (m^3/kg)
Th	A	1	5.8	281	2680	8.4×10^0	2.2×10^{-1}	3.7×10^{-1}
		2	—	—	—		1.6×10^{-1}	5.2×10^{-1}
		3	—	—	—		1.6×10^{-1}	5.2×10^{-1}
		平均	5.8	281	2680		1.8×10^{-1}	4.6×10^{-1}
	B	1	6.9	372	3240	8.4×10^0	3.4×10^{-2}	2.5×10^0
		2	—	—	—		3.2×10^{-2}	2.6×10^0
		3	—	—	—		1.7×10^{-2}	4.9×10^0
		平均	6.9	372	3240		2.8×10^{-2}	3.0×10^0
	C	1	7.0	376	2150	8.4×10^0	1.0×10^{-2}	8.4×10^0
		2	—	—	—		1.0×10^{-2}	8.4×10^0
		3	—	—	—		3.0×10^{-3}	2.8×10^1
		平均	7.0	376	2150		7.7×10^{-3}	1.0×10^1
	D	1	4.7	345	250	1.7×10^2	1.4×10^{-2}	1.2×10^2
		2	—	—	—		$< 1.0 \times 10^{-3}$	$> 1.7 \times 10^3$
		3	—	—	—		8.0×10^{-3}	2.1×10^2
		平均	4.7	345	250		1.1×10^{-2}	1.6×10^2
	E	1	4.3	339	324	1.7×10^2	2.6×10^{-1}	6.6×10^0
		2	—	—	—		1.5×10^{-1}	1.1×10^1
		3	—	—	—		1.2×10^{-1}	1.4×10^1
		平均	4.3	339	324		1.8×10^{-1}	9.5×10^0
F	1	7.3	360	710	2.8×10^2	2.5×10^{-1}	1.1×10^1	
	2	—	—	—		1.0×10^{-1}	2.8×10^1	
	3	—	—	—		1.0×10^{-1}	2.8×10^1	
	平均	7.3	360	710		1.5×10^{-1}	2.2×10^1	

表 3-5 鉍さい試料に対する Ra-226 の分配係数測定結果

元素	試料	繰返し 試験数	pH	Eh (mV)	EC (μ S/cm)	ブランク濃度 (cpm/ml)	試験後濃度 (cpm/ml)	分配係数 (m^3/kg)
Ra-226	A	1	5.8	321	2380	2.2×10^4	2.2×10^2	9.9×10^{-1}
		2	—	—	—		2.3×10^2	9.5×10^{-1}
		3	—	—	—		2.1×10^2	1.0×10^0
		平均	5.8	321	2380		2.2×10^2	9.9×10^{-1}
	B	1	6.7	348	2770	2.2×10^4	1.1×10^2	2.0×10^0
		2	—	—	—		9.7×10^1	2.3×10^0
		3	—	—	—		9.8×10^1	2.2×10^0
		平均	6.7	348	2770		1.0×10^2	2.2×10^0
	C	1	5.9	366	1880	2.2×10^4	3.0×10^2	7.2×10^{-1}
		2	—	—	—		3.3×10^2	6.6×10^{-1}
		3	—	—	—		3.2×10^2	6.8×10^{-1}
		平均	5.9	366	1880		3.2×10^2	6.8×10^{-1}
	D	1	4.3	401	240	2.3×10^4	2.9×10^2	7.8×10^{-1}
		2	—	—	—		3.3×10^2	6.9×10^{-1}
		3	—	—	—		1.6×10^2	1.4×10^0
		平均	4.3	401	240		2.6×10^2	8.7×10^{-1}
	E	1	4.1	376	300	2.2×10^4	5.7×10^1	4.0×10^0
		2	—	—	—		7.0×10^1	3.3×10^0
		3	—	—	—		1.1×10^2	2.1×10^0
		平均	4.1	376	300		7.9×10^1	2.9×10^0
F	1	7.8	320	620	1.8×10^2 (cps/ml)	4.5 cps/ml	3.9×10^{-1}	
	2	—	—	—		3.4 cps/ml	5.2×10^{-1}	
	3	—	—	—		6.1 cps/ml	2.9×10^{-1}	
	平均	7.8	320	620		4.8 cps/ml	3.8×10^{-1}	

4. まとめ

鉍さい試料（試料 A, B, C, D, E）について，U，Th，Ra-226 の溶出率及び分配係数を測定した。（平成 13 年度実施の試料 F は参考）

溶出率は，重金属等の土壤汚染について法令で定められている溶出試験法（環境庁告示 46 号法（平成 3 年））に準拠して大気雰囲気にて測定を行った。その結果，U の溶出率（土壌中の含有量から蒸留水中に溶出した量の割合）は試料間による差が大きく，試料 B では， 6×10^{-2} であったが，その他の試料では， $10^{-4} \sim 10^{-3}$ 程度であった。Th の溶出率は $10^{-5} \sim 10^{-4}$ 程度であり，この内，試料 B, C については溶出後の Th 濃度が検出下限値未満であったため数値の精度は低くなるが，それぞれ 6×10^{-5} 及び 4×10^{-5} と評価された。Ra-226 の溶出率についても溶出濃度が検出下限値未満であったため正確な評価はできなかったが， $10^{-3} \sim 10^{-2}$ 以下と推定された。

分配係数は，固液比 1.0 g / 10ml とし，各トレーサ液に大気雰囲気にて 7 日間浸漬させて測定した。その結果，U の分配係数は試料間による差が大きく， $0.02 \sim 0.7 \text{ m}^3/\text{kg}$ であった。Th の分配係数は試料 A では $0.47 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 E では $9.5 \text{ m}^3/\text{kg}$ であり，試料 B, C, D では液相中の Th 濃度が検出下限値未満となったため，数値の精度は低くなるが試料 B では $3 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 C では $10 \text{ m}^3/\text{kg}$ ，試料 D では $160 \text{ m}^3/\text{kg}$ と評価された。Ra-226 の分配係数は試料間の差は小さく， $0.38 \sim 2.9 \text{ m}^3/\text{kg}$ であった。

おわりに

核燃料サイクル開発機構の人形峠環境技術センターでは、鉍さいたい積場に対して、人形峠環境技術センターにおける鉍山跡の措置に関する基本計画に沿って跡措置が具体的に進められるが、安全解析による安全性の見通しをつけ、その見通しをより確かなものにするための対策を強化することを目指していることから、本役務においては、安全解析に必要な核種パラメータの一部として、鉍さい試料を対象に、放射性元素を含む種々の元素の溶出率を測定するとともに、ウラン、トリウム、ラジウムの分配係数を測定した。

鉍さいたい積場には、鉍さい以外にもサイト内で発生した不要物を長年たい積していること、また鉍さいそのものにも放射性核種濃度をはじめとて種々の特性に幅があること等から、今後、安全性の見通しをより確かなものとするため、鉍さいたい積場の安全解析用パラメータを整備するとともに、安全解析に有効かつ効率的に利用できるよう、データベースシステムを構築していくことが望まれる。