

廃棄物屋外貯蔵ピット周辺土壤に対する
ウランの吸着挙動

1997年12月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所 技術開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, 4-33 O-aza-Muramatsu, Tokai-mura, Naka, Ibaraki-ken, 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

廃棄物屋外貯蔵ピット周辺土壤に対するウランの収着挙動

館 幸男*, 濵谷 朝紀*, 小原 幸利*,
内館 信幸*, 油井 三和*, 石川 博久*

要旨

廃棄物屋外貯蔵ピット周辺における土壤のウラン収着能力を把握し、ウランの環境中への移行評価へデータを資することを目的として、土壤に対するウランの収着試験、土壤からのウランの脱離試験、地下水水中におけるウランの溶解度試験を実施した。土壤試料は環境調査のために実施されたボーリングによって得られた土壤コアから採取したもので、A,B,C,D,5,12の6ボーリング地点、盛土層、砂丘砂層、上部礫層、埋設谷埋没砂質土層、埋設谷埋没粘性土層の5層を対象とした。

収着試験により得られた土壤へのウランの分配係数は $10^4 \sim 10^9 \text{ mol/g}$ の範囲の値を示し、地点毎、地層毎に大きく異なる結果となった。分配係数はpHに大きく依存し、pH6-7付近で最大となり、その前後でpH変化に伴い減少する傾向を示した。また、分配係数はフィルターでろ過した方が若干高くなる傾向であった。pH6-8の範囲で得られた分配係数を平均することにより各地層の分配係数を比較した結果、ろ過しない場合で粘性土層>盛土層>砂質土層>上部礫層>砂丘砂層の順となり、ろ過した場合には粘性土層と盛土層が逆転する結果となった。

脱離試験により得られた土壤からのU-238の脱離量は $10^{-7} \sim 10^{-9} \text{ mol/l}$ のオーダーであり、地点、地層（深度）によって異なる結果を示した。環境調査データとの比較から、各土壤からのU-238の脱離量は土壤コア中に含まれるU-238の量におおよそ比例していることが確認された。なお、脱離量は最大値でも約 $2 \times 10^{-7} \text{ mol/l}$ であり、収着試験におけるウランの初期濃度に比べ十分に低いことから、収着試験においてはバックグラウンドとして存在するU-238の影響は無視し得ることが確認された。

溶解度試験により得られた地点Aの地下水水中におけるウランの溶解度は $1 \times 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$ であり、収着試験における初期濃度の設定の妥当性が確認された。なお、地下水中のウラン濃度が 10^{-8} mol/l であることから、地下水中的ウラン濃度は溶解度よりもかなり低いことが確認された。

脱離試験結果に基づき分配係数を算出し、収着試験により得られた分配係数と比較を行った結果、全体的に脱離量から得られる分配係数の方が高くなる傾向が確認され、この原因として不可逆収着の寄与が考えられた。また、環境調査データに基づき原位置での分配係数を算出し同様の比較を行ったが、明確な傾向は得られなかった。

*動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室

PNC TN8410 98-010
1997年12月

廃棄物屋外貯蔵ピット周辺土壤に対するウランの吸着挙動

館 幸男*, 濱谷 朝紀*, 小原 幸利*,
内館 信幸*, 油井 三和*, 石川 博久*

要旨

廃棄物屋外貯蔵ピット周辺における土壤のウラン吸着能力を把握し、ウランの環境中への移行評価へデータを資することを目的として、土壤に対するウランの吸着試験、土壤からのウランの脱離試験、地下水におけるウランの溶解度試験を実施した。土壤試料は環境調査のために実施されたボーリングによって得られた土壤コアから採取したもので、A,B,C,D,5,12の6ボーリング地点、盛土層、砂丘砂層、上部礫層、埋設谷埋没砂質土層、埋設谷埋没粘性土層の5層を対象とした。

吸着試験により得られた土壤へのウランの分配係数は $10^4 \sim 10^9 \text{ mol/g}$ の範囲の値を示し、地点毎、地層毎に大きく異なる結果となった。分配係数はpHに大きく依存し、pH6-7付近で最大となり、その前後でpH変化に伴い減少する傾向を示した。また、分配係数はフィルターでろ過した方が若干高くなる傾向であった。pH6-8の範囲で得られた分配係数を平均することにより各地層の分配係数を比較した結果、ろ過しない場合で粘性土層>盛土層>砂質土層>上部礫層>砂丘砂層の順となり、ろ過した場合には粘性土層と盛土層が逆転する結果となった。

脱離試験により得られた土壤からのU-238の脱離量は $10^{-7} \sim 10^{-9} \text{ mol/l}$ のオーダーであり、地点、地層（深度）によって異なる結果を示した。環境調査データとの比較から、各土壤からのU-238の脱離量は土壤コア中に含まれるU-238の量におおよそ比例していることが確認された。なお、脱離量は最大値でも約 $2 \times 10^{-7} \text{ mol/l}$ であり、吸着試験におけるウランの初期濃度に比べ十分に低いことから、吸着試験においてはバックグラウンドとして存在するU-238の影響は無視し得ることが確認された。

溶解度試験により得られた地点Aの地下水におけるウランの溶解度は $1 \times 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$ であり、吸着試験における初期濃度の設定の妥当性が確認された。なお、地下水中的ウラン濃度が 10^{-8} オーダーであることから、地下水中的ウラン濃度は溶解度よりもかなり低いことが確認された。

脱離試験結果に基づき分配係数を算出し、吸着試験により得られた分配係数と比較を行った結果、全体的に脱離量から得られる分配係数の方が高くなる傾向が確認され、この原因として不可逆吸着の寄与が考えられた。また、環境調査データに基づき原位置での分配係数を算出し同様の比較を行つたが、明確な傾向は得られなかった。

*動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室

目次

1. はじめに	1
2. 土壌試料	2
3. 収着試験	13
3.1 目的	13
3.2 試料	13
3.3 試験条件及び手順	13
3.4 試験結果	14
4. 脱離試験	38
4.1 目的	38
4.2 試料	38
4.3 試験条件及び手順	38
4.4 試験結果	38
5. 溶解度試験	46
5.1 目的	46
5.2 試料	46
5.3 試験条件及び手順	46
5.4 試験結果	46
6. 脱離試験結果に基づく分配係数評価	49
6.1 目的	49
6.2 評価対象	49
6.3 評価方法	49
6.4 評価結果	49

7. 環境調査データからの原位置での分配係数評価	53
7.1 目的	53
7.2 評価対象	53
7.3 評価方法	53
7.4 評価結果	53
8. まとめ	57
9. 謝辞	58
添付資料 1 (環境評価データ)	59
添付資料 2 (廃棄物屋外貯蔵ピット周辺地下水の分析結果)	63
添付資料 3 (地下水中のウランのスペシエーション評価結果)	66

1. はじめに

廃棄物屋外貯蔵ピット周辺における土壤のウラン吸着能力を把握し、ウランの環境中への移行評価へデータを資することを目的として、廃棄物屋外貯蔵ピット周辺の土壤に対するウランの吸着試験を実施すると共に、土壤からのウランの脱離試験、地下水におけるウランの溶解度試験を実施した。また、脱離試験結果、環境調査データを用いて分配係数を評価し、吸着試験により得られた分配係数との比較を行った。本報告書では、これらの試験結果及び評価結果について報告する。

2. 土壌試料

試験に用いた土壌試料は、廃棄物屋外貯蔵ピット周辺の環境調査のために実施されたボーリングにより得られた土壌コアから採取したものである。図2-1に示す全ボーリング地点のうち、試験対象としてA,B,C,D,5,12の6地点を選定した。各ボーリング地点で得られた土壌コアからの土壌試料の採取については、図2-2に示す廃棄物屋外貯蔵ピット周辺の地質推定図に基づき、盛土層、砂丘砂層、上部礫層、埋没谷埋設砂質土層（砂質土層）、埋没谷埋設粘性土層（粘性土層）の5層から1試料づつ採取することとし、各ボーリング地点から5試料を採取した。ただし、地点12については埋没谷埋設粘性土層を除く4層から4試料を採取した。また、地点5については表層から1m毎に10試料（埋没谷埋設粘性土層を除く4層）を採取した。試験に用いた全土壌試料の試料名、ボーリング地点、表層からの深度、地層名を表2-1に示す。また、試験開始前の乾燥状態での各土壌試料の写真を図2-3～2-8に示す。

表2-1 土壌試料の試料名、ボーリング地点、深度、地層名

試料名	ボーリング地点	深度 (~m)	地層名
A-1	A	0	盛土層
A-6	A	5	砂丘砂層
A-9	A	8	上部礫層
A-11	A	10	埋没谷埋設砂質土層
A-15	A	14	埋没谷埋設粘性土層
B-1	B	0	盛土層
B-3*	B	2	砂丘砂層
B-6	B	5	上部礫層
B-10*	B	9	埋没谷埋設砂質土層
B-25*	B	24	埋没谷埋設粘性土層
C-1	C	0	盛土層
C-2*	C	1	砂丘砂層
C-4	C	3	上部礫層
C-8*	C	7	埋没谷埋設砂質土層
C-16*	C	15	埋没谷埋設粘性土層
D-1	D	0	盛土層
D-3*	D	2	砂丘砂層
D-5	D	4	上部礫層
D-9*	D	8	埋没谷埋設砂質土層
D-14*	D	13	埋没谷埋設粘性土層
12-1	12	0	盛土層
12-5	12	4	砂丘砂層
12-7	12	6	上部礫層
12-9	12	8	埋没谷埋設砂質土層
5-1	5	0	盛土層
5-2	5	1	盛土層
5-3	5	2	盛土層
5-4	5	3	盛土層
5-5	5	4	砂丘砂層
5-6	5	5	砂丘砂層
5-7	5	6	上部礫層
5-8	5	7	上部礫層
5-9	5	8	埋没谷埋設砂質土層
5-10	5	9	埋没谷埋設砂質土層

* 収着試験、脱離試験条件が一部異なる試料

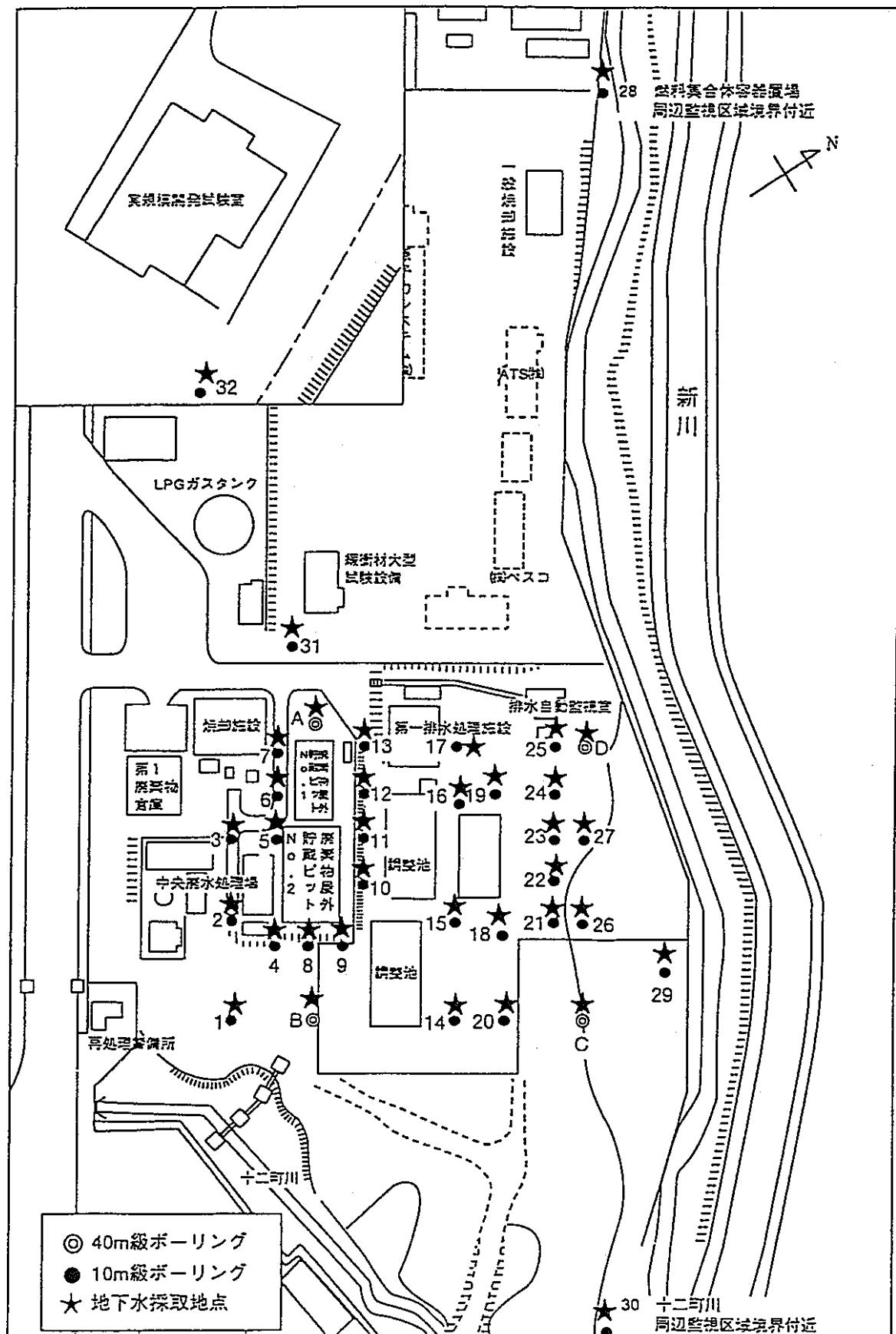
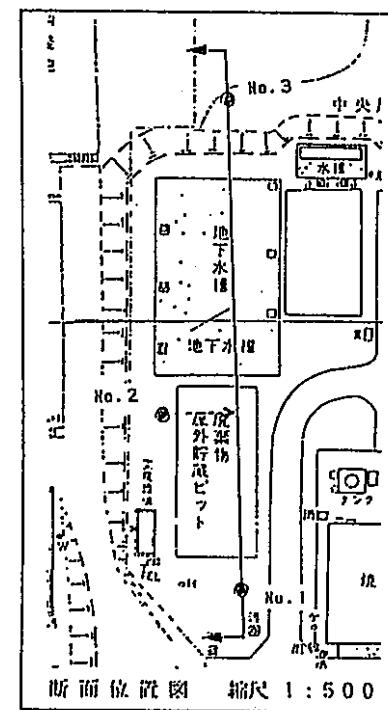
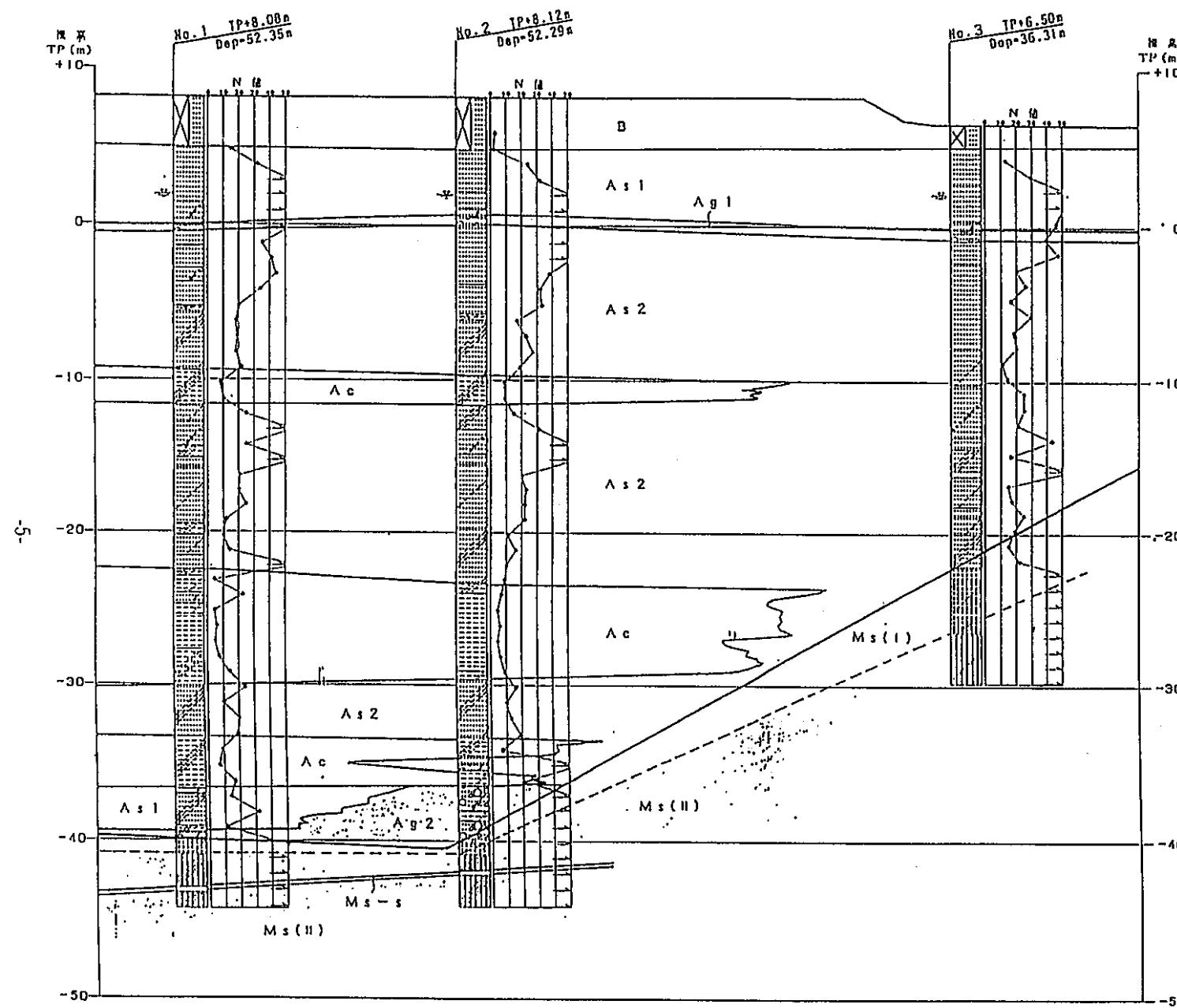


図2-1 環境調査におけるボーリング地点



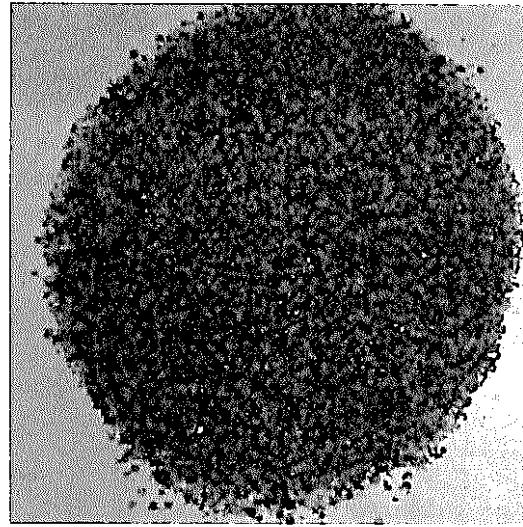
例		
地質時代	地層名	地層号
現世	擾土層	B
第 四 紀	砂丘砂層	As 1
	上部礫層	Ag 1
	埋没谷埋積砂質土層	As 2
	埋没谷埋積堆土層	Ac
	埋没谷基底礫層	Ag 2
新 第三 紀	多賀層風化部	Ms (I)
	多賀層	Ms (II)
	块状砂層	Ms-s

図2-2 廃棄物屋外貯蔵ピット周辺の地質推定断面図

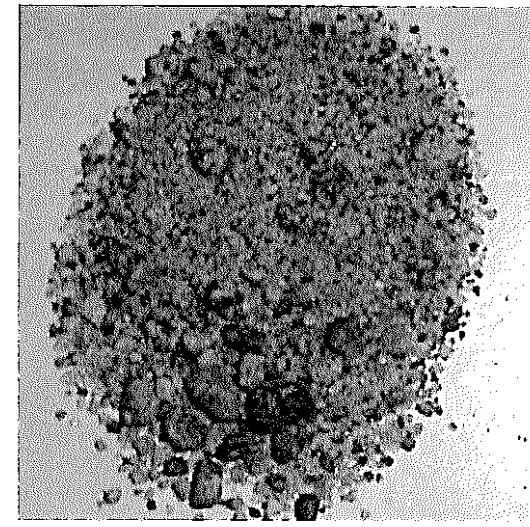
縮尺 1:250



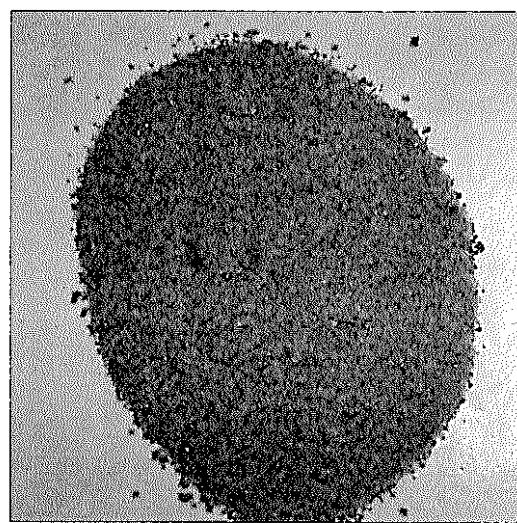
A-1
盛土層



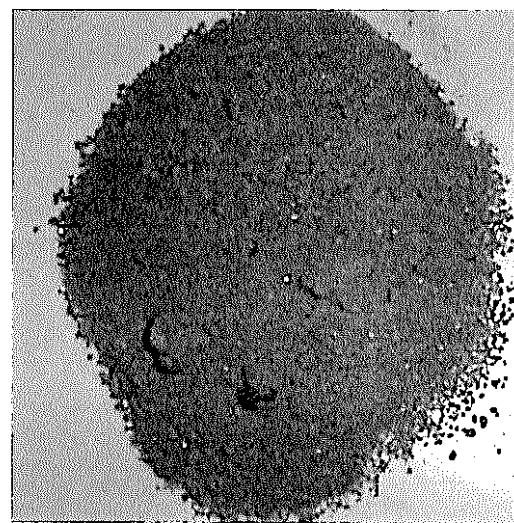
A-6
砂丘砂層



A-9
上部礫層

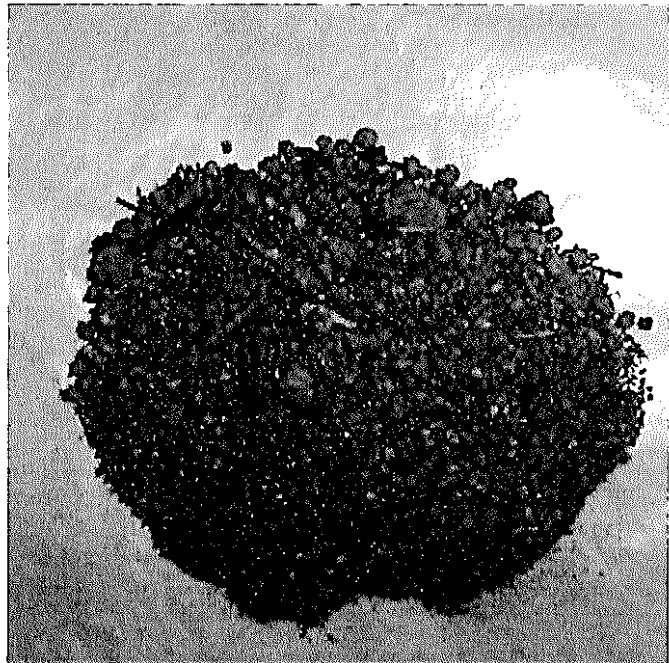


A-11
埋没谷埋設砂質土層

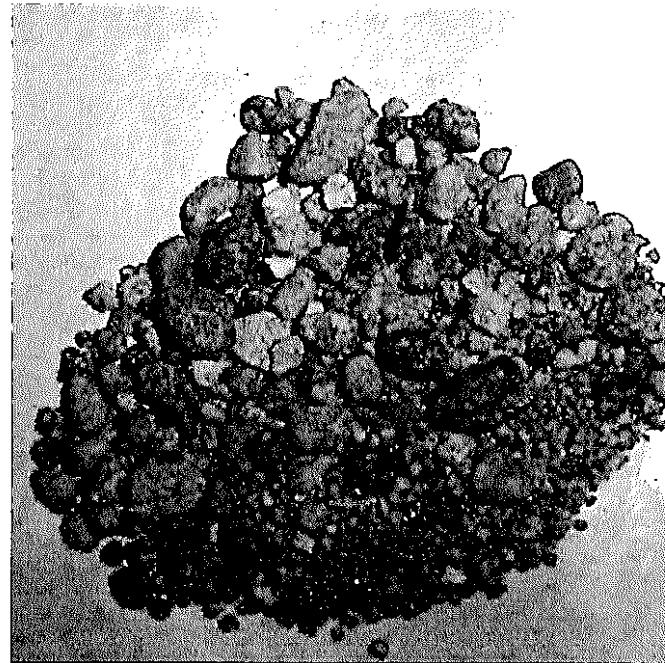


A-15
埋没谷埋設粘性土層

図2-3 ポーリング地点Aの土壤試料

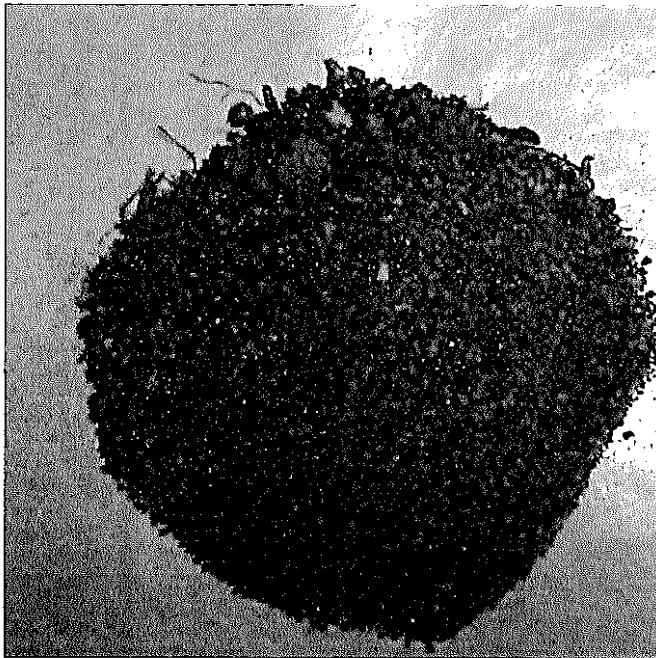


B-1
盛土層

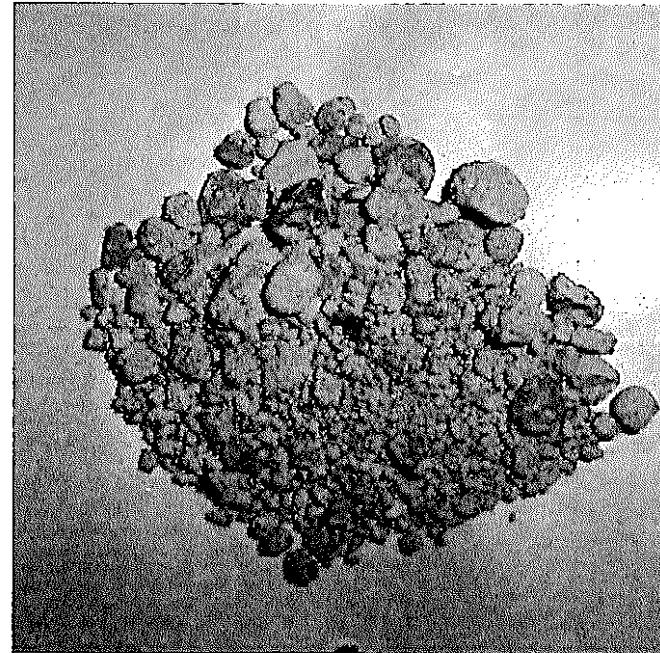


B-6
上部礫層

図2-4 ポーリング地点Bの土壤試料（盛土層、上部礫層のみ）

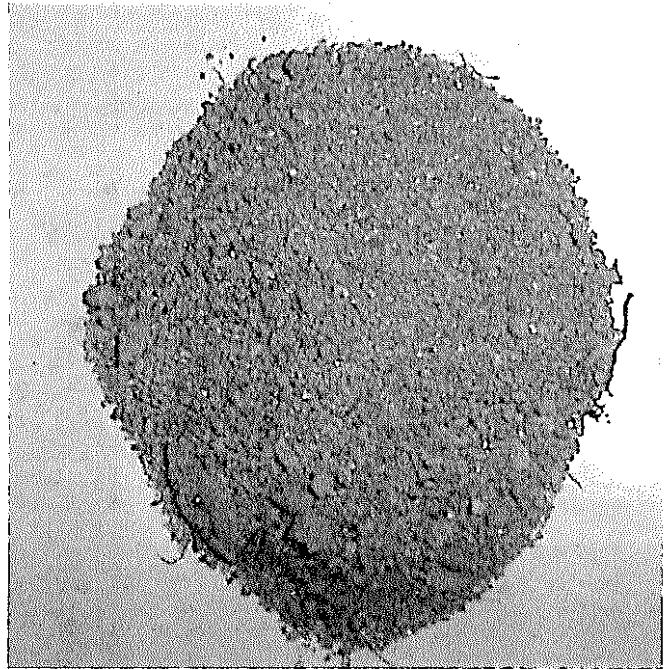


C-1
盛土層

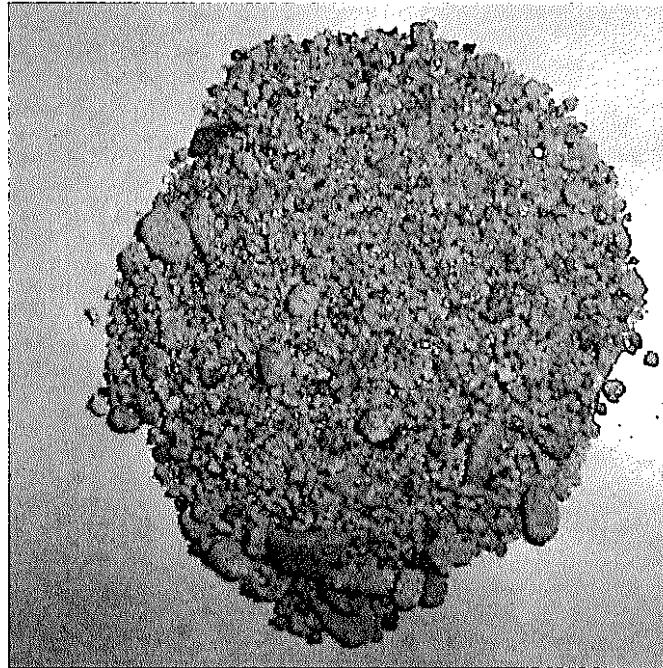


C-4
上部礫層

図2-5 ポーリング地点Cの土壤試料（盛土層、上部礫層のみ）

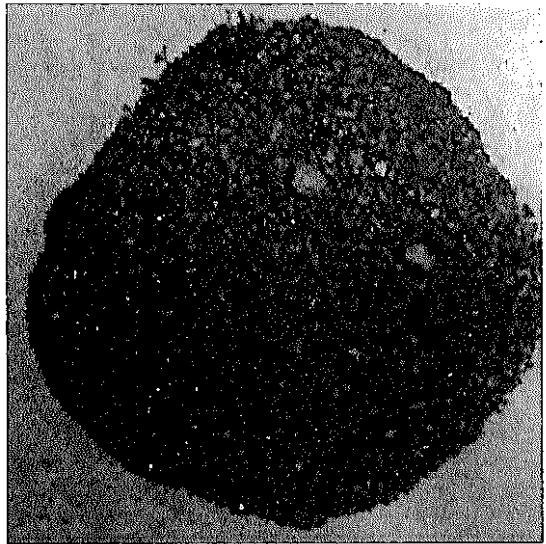


D-1
盛土層

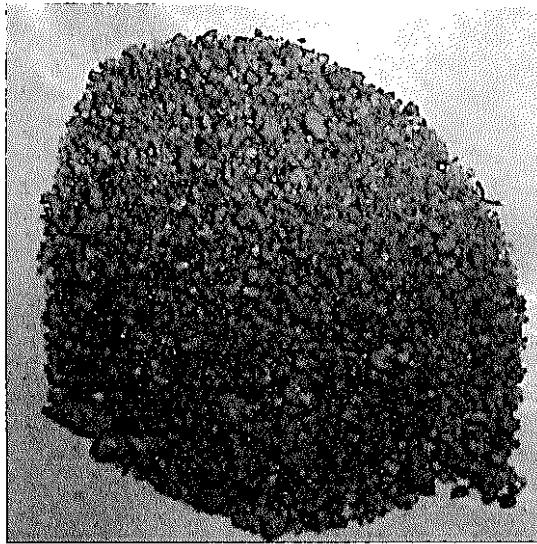


D-5
上部礫層

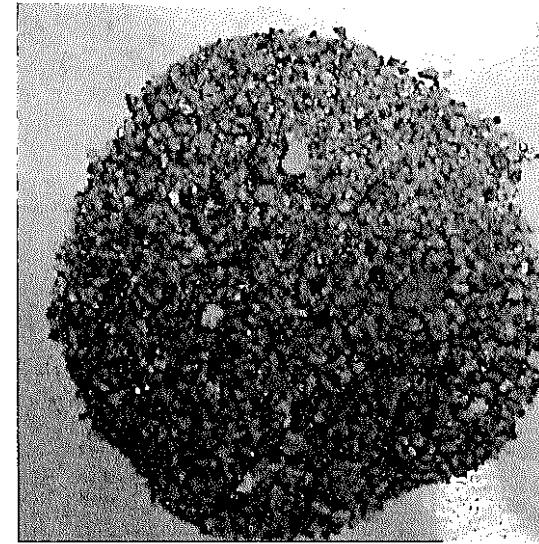
図2-6 ポーリング地点Dの土壤試料（盛土層，上部礫層のみ）



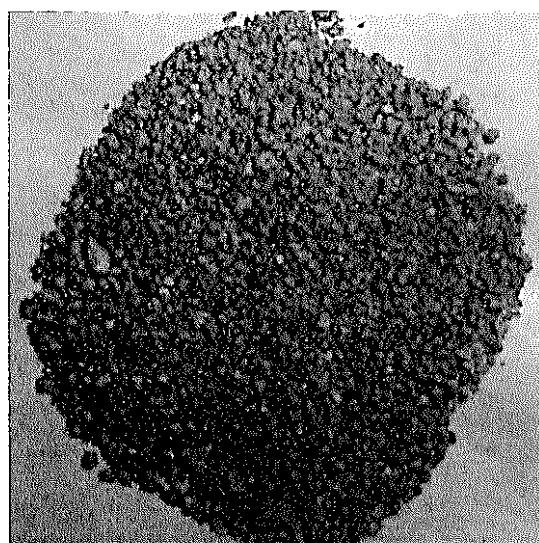
5-1
盛土層



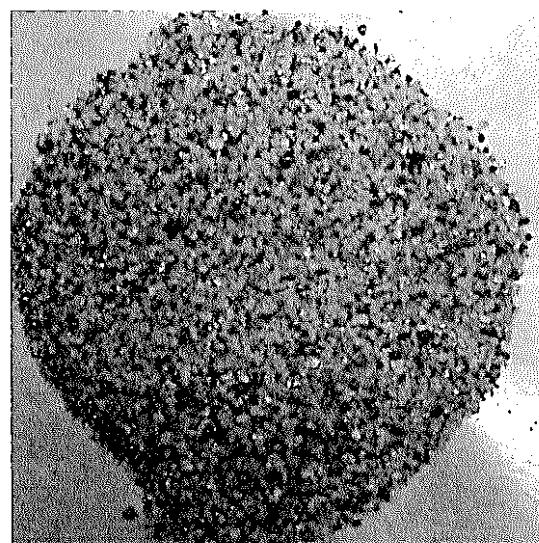
5-2
盛土層



5-3
盛土層

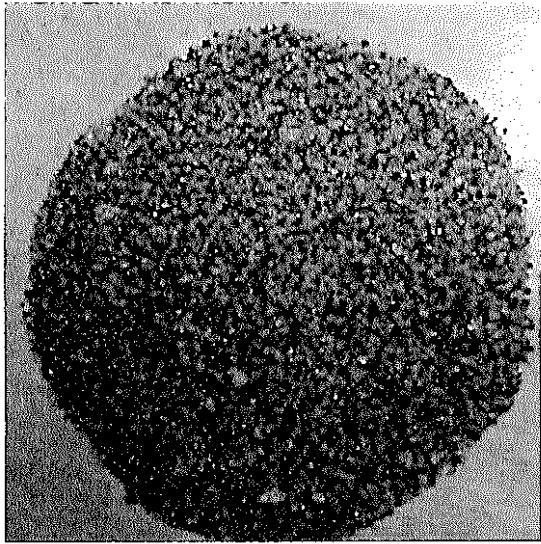


5-4
盛土層

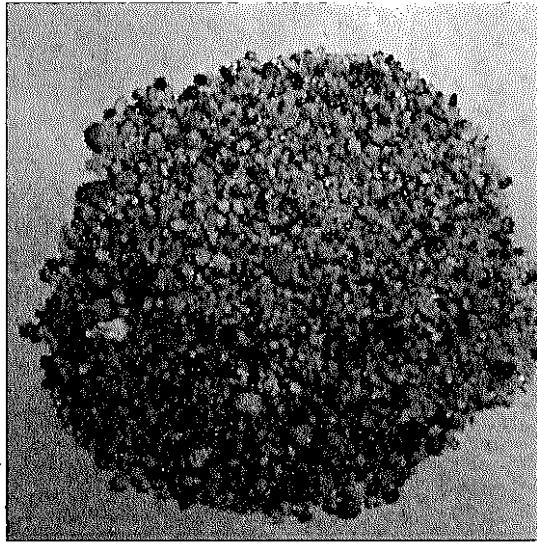


5-5
砂質砂層

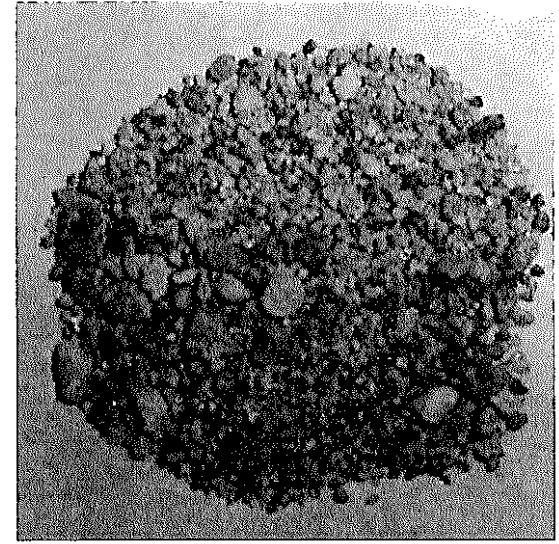
図2-7(1) ポーリング地点5の土壤試料



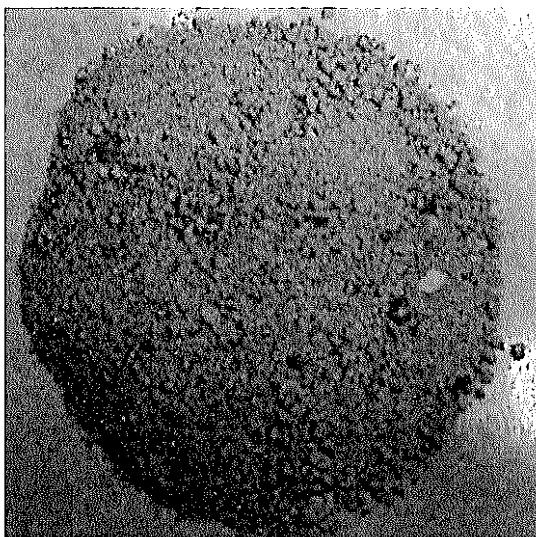
5-6
砂質砂層



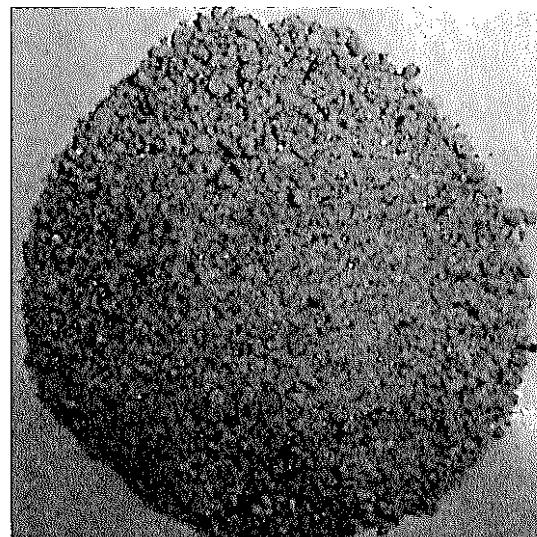
5-7
上部礫層



5-8
上部礫層

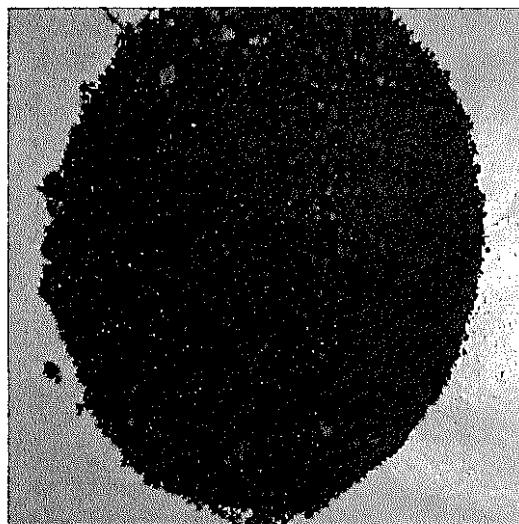


5-9
埋没谷埋設砂質土層

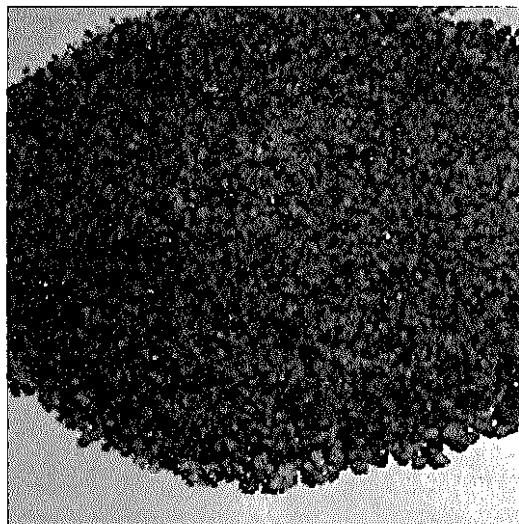


5-10
埋没谷埋設砂質土層

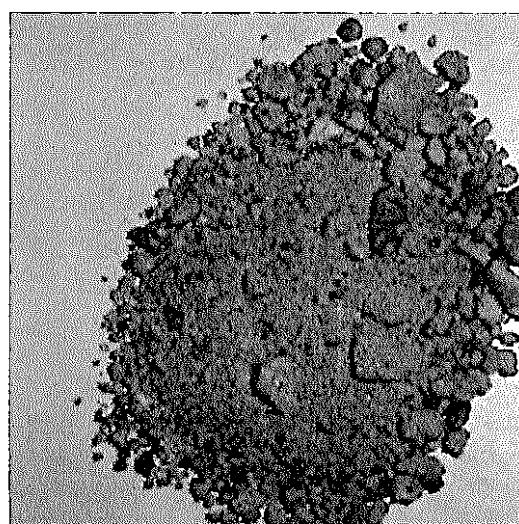
図2-7(2) ポーリング地点5の土壤試料



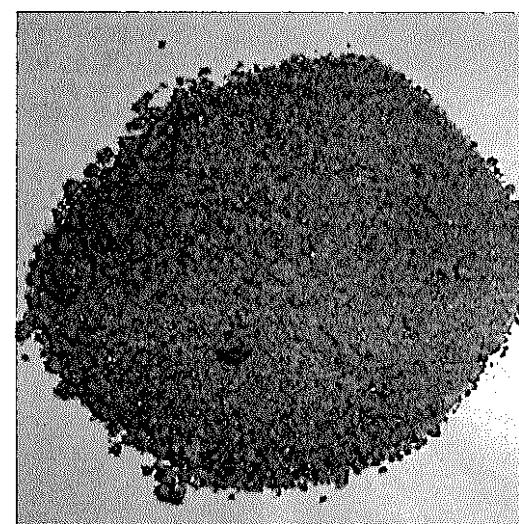
12-1
盛土層



12-2
砂丘砂層



12-3
上部礫層



12-4
埋没谷埋設砂質土層

図2-8 ポーリング地点12の土壤試料

3. 収着試験

3.1 目的

廃棄物屋外貯蔵ピット周辺の土壤に対するウランの収着試験を行い、土壤に対するウランの分配係数を取得し、土壤のウラン収着能力を把握することとする。

3.2 試料

表2-1に示す全土壤試料を対象とした。

3.3 試験条件及び手順

収着試験条件を表3-1に示す。収着試験は大気下、室温にて、バッチ法により行った。乾燥させた土壤試料を1g秤量し、蒸留水50mlとポリエチレン容器の中で混合した。ここで、土壤試料の秤量において、粉碎や粒径調整等の処理は特に行わなかったが、上部礫層に含まれる比較的大きい礫については除外した。数日間静置した後、U-233を含む硝酸溶液をU-233の初期濃度が約 2×10^{-5} mol/lとなるように添加した。その後、硝酸溶液の添加により低下したpHをNaOH溶液を用いて7.5付近に調整した。数日間静置した後、pHを測定し、試験液のサンプリングを行った。なお、試験期間中には時々試験容器を振とうさせた。サンプリングは試験液の上澄みを直接採取する方法と、 $0.45\mu\text{m}$ のメンブランフィルターを用いてろ過する方法の2通りで行った。サンプリング液中のU-233濃度は、ZnS(Ag)シンチレーションカウンターを用いて定量した。U-233以外の核種の影響を確認するために、いくつかのサンプリング液については α スペクトロメーターによる測定を行った。基本的に試験は繰り返し数3で行った。また、ウランの試験容器及びフィルターへの吸着の影響を把握するためのブランク試験も同時に行った。

一部の試料（表2-1の*を付けた9試料）については、トレーサーとしてU-233ではなくU-238を用いて試験を行った。この場合、硝酸ウラニルを蒸留水に溶解させることによりU-238の濃度を 1×10^{-5} mol/lに調整した溶液に土壤試料を混合した。また、この際のpHがほとんど変化しないことから、pH調整は行わなかった。なお、U-238の定量にはICP-MSを用いた。

土壤に対するウランの分配係数は、収着試験及びブランク試験により得られたU-233あるいはU-238濃度を用いて次式によって算出した。

$$K_d = \frac{(C_b - C_t)}{C_t} \times \frac{L}{S} \quad (3-1)$$

K_d:分配係数 (ml/g)C_t: 試験液中のウラン濃度 (mol/l)C_b: ブランク中のウラン濃度 (mol/l)

L/S: 液相／固相比 (ml/g)

3.4 試験結果

収着試験により得られた試験液の最終pH、分配係数をボーリング地点毎に表3-2～3-7に示す。

また、試料毎の分配係数の平均値についても表中に示す。ただし、地点AについてはpH6-8の範囲で得られた分配係数を用いて平均値を算出した。なお、後述する脱離試験結果において得られたU-238の脱離量が収着試験におけるウランの初期濃度に比べ十分低いことから、分配係数は(3-1)式に基づき算出し、バックグラウンドとして存在するU-238の影響は考慮しなかった。

分配係数をpHに対してプロットしたものをボーリング地点毎に図3-1～3-6に示す。地点A（図3-1）ではpHのはらつきが非常に大きく、分配係数は10⁴～10⁰オーダーの広い範囲の値を示した。分配係数はpH6付近で最大となり、その前後で減少する傾向であった。中性付近のpHで比較すると、盛土層及び粘性土層の分配係数が最大で、他の3層は同程度の分配係数であった。地点B（図3-2）ではpHのはらつきは比較的小さく、分配係数は10³～10²オーダーであり、試料間の分配係数の差は比較的小さいという結果となった。分配係数は盛土層で最大、砂丘砂層で最小となり、他の3層は同程度であった。地点C（図3-3）では試料毎のpHはほぼ一定で、試料間のpHの差は大きくなつたが、分配係数の差は最大で1桁程度であった。単純に比較すると分配係数は上部礫層が最大を示し、次に盛土層及び粘性土層が同程度で続き、砂丘砂層及び砂質土層が最小であった。地点D（図3-4）でも試料間のpHの差は地点Cと同程度であり、ほとんどの分配係数は10²オーダーで、砂質土層、上部礫層が若干高めの分配係数を示したが、試料間の分配係数の差は非常に小さい結果となつた。地点E（図3-5）については表層から1m毎に採取した全10試料について分配係数を取得した。盛土層については若干はらつきが認められるものの、同じ地層から得られた試料の分配係数が同程度となることが確認された。分配係数は盛土層、砂質土層で最大を示し、上部礫層、砂丘砂層の順で小さくなつた。また、分配係数はpHの増加に伴い減少する

傾向を示し、この傾向は盛土層、砂丘砂層において特に顕著であった。地点12（図3-6）では試料間のpHのはらつきは非常に小さく、分配係数は上部礫層、砂質土層で最大となり、砂丘砂層、砂質土層の順で小さくなつた。分配係数の値及び傾向性はボーリング地点毎に異なる結果となつたが、全体的な傾向として砂丘砂層の分配係数が最も低いこと、盛土層の分配係数のはらつきが特に大きいことが確認された。また、分配係数はpHに強く依存することが確認され、分配係数はpH6-7付近で最大となり、その前後でpH変化に伴い減少する傾向を示した。なお、全体的に $0.45\mu m$ のフィルターでろ過した方が分配係数は若干高くなる傾向であった。

分配係数を地層毎にpHに対してプロットしたものを図3-7～3-11に示す。盛土層（図3-7）では分配係数は $10^4\sim 10^1 ml/g$ の広い範囲の値を示し、試料間のはらつきが大きく、またpHの影響が非常に大きいことが確認された。砂丘砂層（図3-8）については、試料間のはらつきは比較的小さく、全体的に分配係数は低い値となつた。高pHで得られた地点Aの結果を除き、分配係数は $10^2 ml/g$ 前後の値を示した。上部礫層（図3-9）についても試料間の分配係数のはらつきは小さく、一部の高pHの試料を除き $10^3\sim 10^2 ml/g$ の分配係数を示した。砂質土層（図3-10）では、地点Aの試料で得られた結果が他の試料と大きく異なる挙動を示したが、全体的に試料間のはらつきは小さく、中性付近のpHで $10^3\sim 10^2 ml/g$ の分配係数を示した。粘性土層（図3-11）については、試料間のはらつき及びpH依存性が小さく、広いpH範囲で $10^3\sim 10^2 ml/g$ オーダーの高い分配係数を示した。

全ての分配係数をpHに対してプロットしたものを、ろ過しない場合と $0.45\mu m$ のフィルターでろ過した場合に分けて図3-12、3-13に示す。分配係数は同じ地層でもはらつきがあり、また分配係数はpHに大きく依存することから、地層毎の分配係数を決定あるいは比較することは困難と言える。しかしながら、図3-12、3-13において大部分の分配係数がpH6-8の範囲で得られていることから、この範囲で得られた分配係数を単純に平均することにより、各地層の分配係数の比較を行つた。pH6-8の範囲で得られた各地層の分配係数の平均値を表3-8、図3-14に示す。分配係数の平均値は盛土層、粘性土層については $10^3 ml/g$ オーダー、その他の3層については $10^2 ml/g$ オーダーであり、ろ過しない場合で粘性土層>盛土層>砂質土層>上部礫層>砂丘砂層の順となり、ろ過した場合には粘性土層と盛土層が逆転する結果となつた。

表3-1 収着試験条件

実験方法；	バッチ法
固相；	表2-1に示す全試料
液相；	蒸留水（蒸留水－土壤平衡液）
試験容器；	ポリエチレン
液固比；	50 ml/g
トレーサー；	U-233 [U-238]
初期濃度；	約 2×10^{-5} mol/l [約 1×10^{-5} mol/l]
pH調整；	NaOH, HNO ₃ を用いて7.5付近に調整 [調整せず]
サンプリング方法； (固液分離方法)	試験液上澄みを直接採取（ろ過なし） または0.45 μmのメンプランフィルターによるろ過
雰囲気；	大気
温度；	室温
試験期間；	2~6日 [3日]
繰り返し数；	3（地点Aについては6）
ウラン濃度の定量方法；	ZnS(Ag)シンチレーションカウンター [ICP-MS]

[] 内は表2-1の*を付けた9試料に対する条件

表3-2 地点A土壤試料に対するウランの吸着試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	分配係数 (ml/g)		分配係数平均値 (ml/g) *	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
A-1 (盛土層)	1	6.3	5.2×10^3	8.4×10^3	4.0×10^3	8.2×10^3
	2	4.8	1.9×10^2	2.3×10^2		
	3	5.1	1.2×10^2	2.3×10^2		
	4	6.8	1.3×10^3	3.8×10^3		
	5	6.2	4.6×10^3	1.1×10^4		
	6	6.3	4.9×10^3	1.0×10^4		
A-6 (砂丘砂層)	1	7.7	2.1×10^1	6.8×10^1	3.6×10^1	6.5×10^1
	2	8.6	6.7×10^0	3.3×10^0		
	3	8.9	4.5×10^0	9.5×10^{-1}		
	4	7.7	1.0×10^2	1.7×10^2		
	5	7.8	1.6×10^1	7.3×10^0		
	6	7.9	8.3×10^0	1.2×10^1		
A-9 (上部礫層)	1	7.3	2.0×10^2	2.1×10^2	1.5×10^2	1.8×10^2
	2	8.9	1.2×10^1	2.2×10^1		
	3	6.9	2.0×10^2	2.1×10^2		
	4	7.6	1.5×10^2	1.9×10^2		
	5	7.9	1.7×10^1	4.7×10^1		
	6	7.5	1.8×10^2	2.4×10^2		
A-11 (砂質土層)	1	6.1	2.1×10^2	3.1×10^2	1.0×10^2	4.7×10^2
	2	6.2	1.1×10^2	2.2×10^2		
	3	4.5	3.6×10^1	3.4×10^1		
	4	6.8	6.7×10^1	1.0×10^3		
	5	7.0	4.8×10^1	5.2×10^2		
	6	6.5	8.2×10^1	2.9×10^2		
A-15 (粘性土層)	1	7.0	2.7×10^3	1.8×10^3	2.0×10^2	2.5×10^3
	2	6.3	3.00×10^3	3.6×10^3		
	3	5.8	2.7×10^3	3.4×10^3		
	4	7.5	6.7×10^2	1.7×10^3		
	5	7.1	1.5×10^3	2.3×10^3		
	6	6.9	2.0×10^3	3.4×10^3		

* pH6-8の範囲で得られた値の平均値

表3-3 地点B土壤試料に対するウランの収着試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	分配係数 (ml/g)		分配係数平均値 (ml/g)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
B-1 (盛土層)	1	6.6	2.9×10^3	3.3×10^3	2.2×10^3	3.2×10^3
	2	6.6	1.8×10^3	3.0×10^3		
	3	6.7	1.9×10^3	3.3×10^3		
B-3 (砂丘砂層)	1	7.0	1.2×10^2	2.7×10^2	9.2×10^1	1.9×10^2
	2	7.0	5.5×10^1	1.5×10^2		
	3	7.1	1.0×10^2	1.5×10^2		
B-6 (上部礫層)	1	7.0	4.2×10^2	7.7×10^2	3.7×10^2	5.0×10^2
	2	7.1	4.7×10^2	5.2×10^2		
	3	7.3	2.1×10^2	2.2×10^2		
B-10 (砂質土層)	1	7.2	4.7×10^2	3.6×10^2	4.8×10^2	3.9×10^2
	2	7.1	5.3×10^2	3.8×10^2		
	3	7.1	4.4×10^2	4.4×10^2		
B-25 (粘性土層)	1	7.5	2.7×10^2	3.1×10^2	2.8×10^2	3.1×10^2
	2	7.8	3.0×10^2	3.0×10^2		
	3	7.9	2.7×10^2	3.3×10^2		

表3-4 地点C土壤試料に対するウランの吸着試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	分配係数 (ml/g)		分配係数平均値 (ml/g)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
C-1 (盛土層)	1	7.2	2.1×10^2	1.8×10^2	2.2×10^2	2.0×10^2
	2	7.1	2.0×10^2	2.1×10^2		
	3	7.0	2.6×10^2	2.2×10^2		
C-2 (砂丘砂層)	1	6.0	6.1×10^1	6.7×10^1	8.5×10^1	4.9×10^1
	2	6.0	1.1×10^2	6.3×10^1		
	3	6.0	8.3×10^1	1.8×10^1		
C-4 (上部礫層)	1	7.2	1.2×10^3	1.1×10^3	1.0×10^3	1.2×10^3
	2	7.3	6.1×10^2	6.8×10^2		
	3	6.9	1.3×10^3	1.9×10^3		
C-8 (砂質土層)	1	9.0	5.8×10^1	4.9×10^1	5.5×10^1	4.5×10^1
	2	9.1	5.3×10^1	4.4×10^1		
	3	9.0	5.4×10^1	4.3×10^1		
C-16 (粘性土層)	1	8.8	2.3×10^2	2.4×10^2	2.3×10^2	2.4×10^2
	2	8.8	2.3×10^2	2.3×10^2		
	3	8.8	2.3×10^2	2.4×10^2		

表3-5 地点D土壤試料に対するウランの収着試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	分配係数 (ml/g)		分配係数平均値 (ml/g)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
D-1 (盛土層)	1	7.0	3.1×10^2	3.2×10^2	3.0×10^2	3.1×10^2
	2	6.9	3.8×10^2	4.0×10^2		
	3	6.7	1.9×10^2	2.2×10^2		
D-3 (砂丘砂層)	1	6.3	2.0×10^2	1.9×10^2	1.8×10^2	1.9×10^2
	2	6.4	2.0×10^2	1.6×10^2		
	3	6.3	1.5×10^2	2.1×10^2		
D-5 (上部礫層)	1	7.3	8.1×10^2	9.3×10^2	6.1×10^2	6.9×10^2
	2	7.5	3.0×10^2	2.4×10^2		
	3	6.9	7.3×10^2	9.0×10^2		
D-9 (砂質土層)	1	6.7	8.5×10^2	2.0×10^3	8.9×10^2	1.8×10^3
	2	6.7	8.5×10^2	1.3×10^3		
	3	6.7	9.8×10^2	2.0×10^3		
D-14 (粘性土層)	1	8.4	3.3×10^2	3.3×10^2	3.1×10^2	3.1×10^2
	2	8.5	2.8×10^2	2.9×10^2		
	3	8.4	3.1×10^2	3.2×10^2		

表3-6 地点5土壤試料に対するウランの吸着試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	分配係数 (ml/g)		分配係数平均値 (ml/g)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
5-1 (盛土層)	1	7.3	3.6×10^1	6.0×10^1	5.3×10^2	1.5×10^3
	2	6.3	1.3×10^3	3.8×10^3		
	3	6.7	2.2×10^2	7.1×10^2		
5-2 (盛土層)	1	7.0	6.0×10^2	1.7×10^3	8.8×10^2	1.5×10^3
	2	6.4	1.3×10^3	1.7×10^3		
	3	7.3	7.3×10^2	1.2×10^3		
5-3 (盛土層)	1	6.4	6.4×10^2	1.8×10^3	6.6×10^2	2.0×10^3
	2	6.8	3.6×10^2	2.3×10^3		
	3	6.4	9.9×10^2	1.9×10^3		
5-4 (盛土層)	1	6.9	8.6×10^2	1.6×10^3	1.3×10^3	1.7×10^3
	2	6.5	1.5×10^3	1.9×10^3		
	3	6.5	1.4×10^3	1.7×10^3		
5-5 (砂丘砂層)	1	7.4	5.0×10^1	7.6×10^1	8.3×10^1	1.8×10^2
	2	7.2	7.4×10^1	1.9×10^2		
	3	7.1	1.3×10^2	2.8×10^2		
5-6 (砂丘砂層)	1	7.0	1.5×10^2	4.5×10^2	1.4×10^2	3.8×10^2
	2	7.2	6.5×10^1	4.3×10^2		
	3	7.4	1.9×10^2	2.7×10^2		
5-7 (上部礫層)	1	7.1	3.3×10^2	3.7×10^2	2.6×10^2	2.9×10^2
	2	7.4	1.9×10^2	2.2×10^2		
	3	7.4	2.7×10^2	2.9×10^2		
5-8 (上部礫層)	1	7.4	3.9×10^2	4.4×10^2	4.4×10^2	6.1×10^2
	2	7.4	3.1×10^2	4.6×10^2		
	3	7.2	6.0×10^2	9.3×10^2		
5-9 (砂質土層)	1	7.2	9.7×10^2	9.2×10^2	1.1×10^3	1.0×10^3
	2	6.5	1.1×10^3	1.1×10^3		
	3	6.7	1.1×10^3	1.1×10^3		
5-10 (砂質土層)	1	7.1	9.8×10^2	8.0×10^2	9.7×10^2	8.6×10^2
	2	6.8	1.2×10^3	1.3×10^3		
	3	6.1	7.3×10^2	5.3×10^2		

表3-7 地点12土壤試料に対するウランの収着試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	分配係数 (ml/g)		分配係数平均値 (ml/g)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
12-1 (盛土層)	1	7.6	3.1×10^1	2.6×10^1	3.6×10^1	2.2×10^1
	2	7.6	3.7×10^1	2.1×10^1		
	3	7.7	3.9×10^1	1.8×10^1		
12-5 (砂丘砂層)	1	7.6	9.4×10^1	9.8×10^1	1.0×10^2	9.2×10^1
	2	7.6	8.9×10^1	8.9×10^1		
	3	7.6	1.2×10^2	9.0×10^1		
12-7 (上部礫層)	1	7.5	2.3×10^2	3.2×10^2	1.9×10^2	3.2×10^2
	2	7.6	1.7×10^2	3.2×10^2		
	3	7.6	1.7×10^2	3.3×10^2		
12-15 (砂質土層)	1	7.5	2.7×10^2	3.0×10^2	2.0×10^2	2.7×10^2
	2	7.6	2.0×10^2	2.0×10^2		
	3	7.6	1.5×10^2	3.1×10^2		

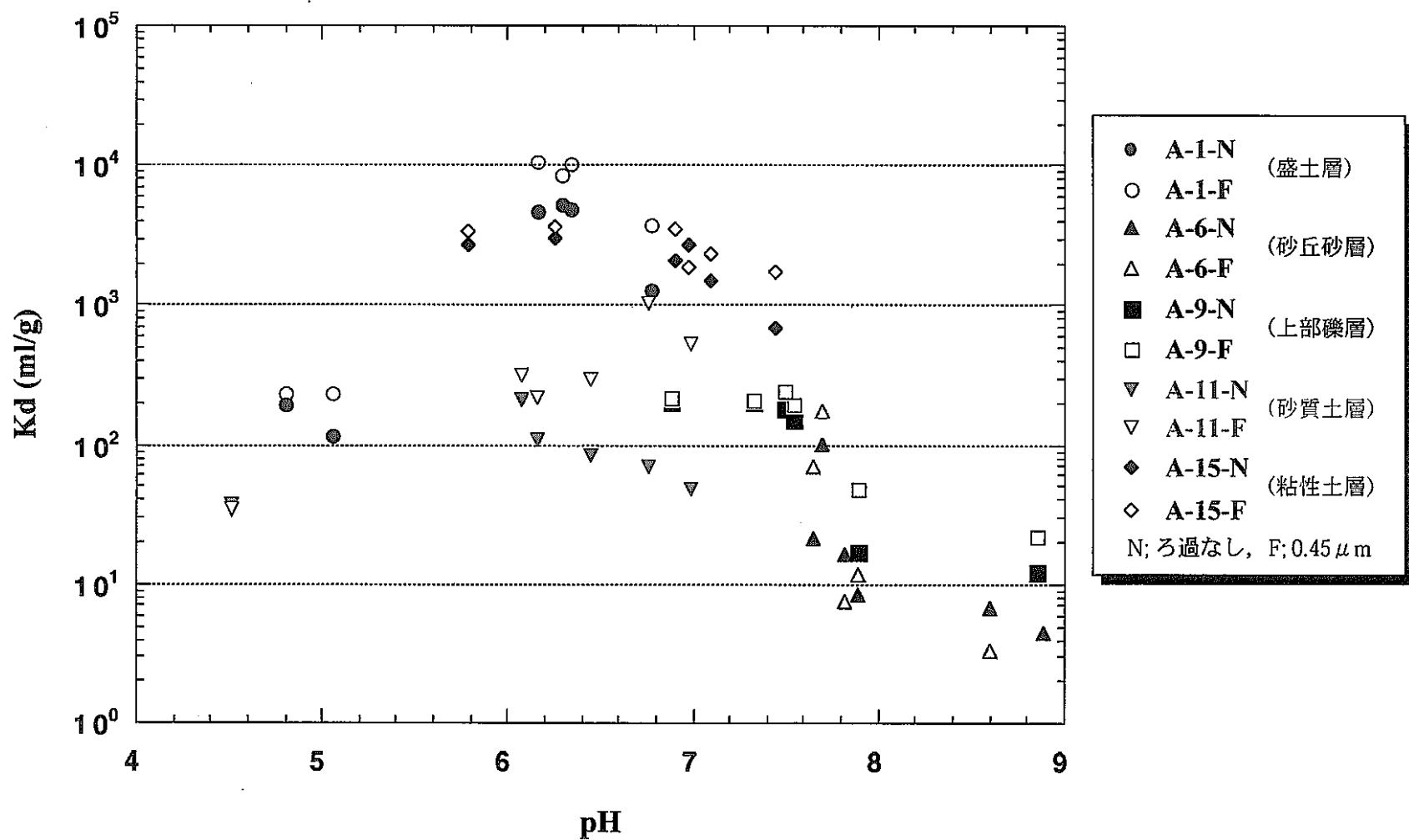


図3-1 地点A土壤試料に対するウランの分配係数

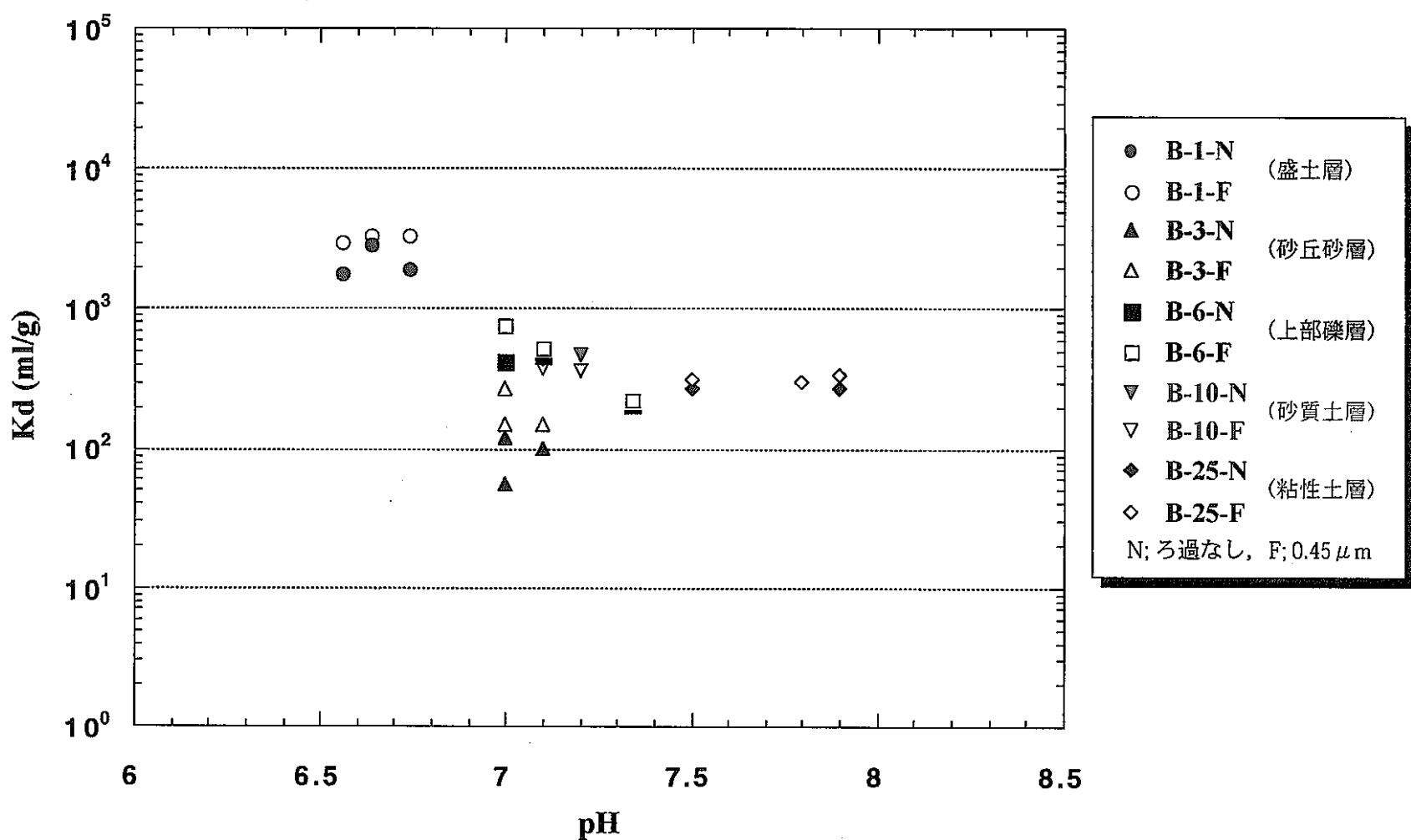


図3-2 地点B土壤試料に対するウランの分配係数

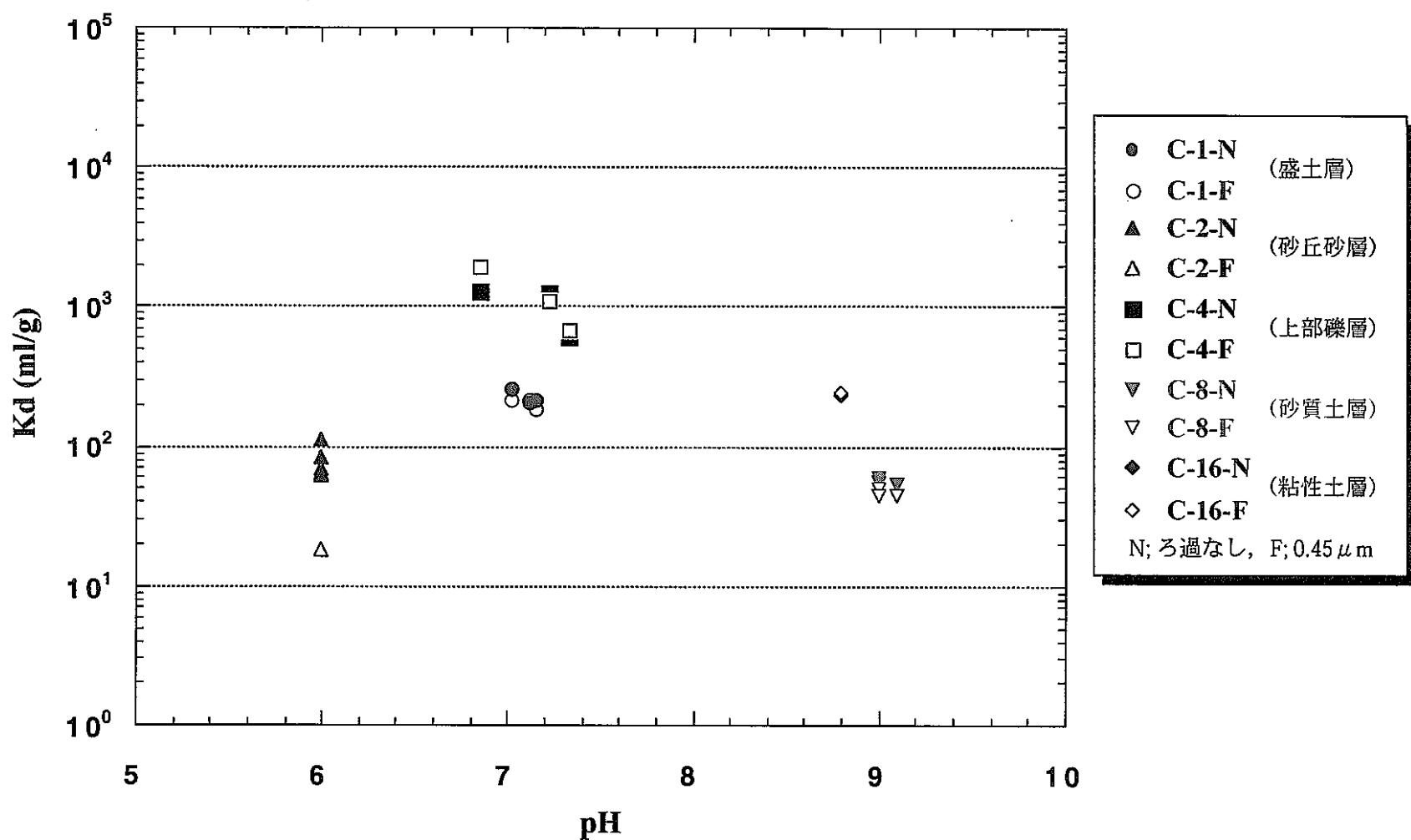


図3-3 地点C土壤試料に対するウランの分配係数

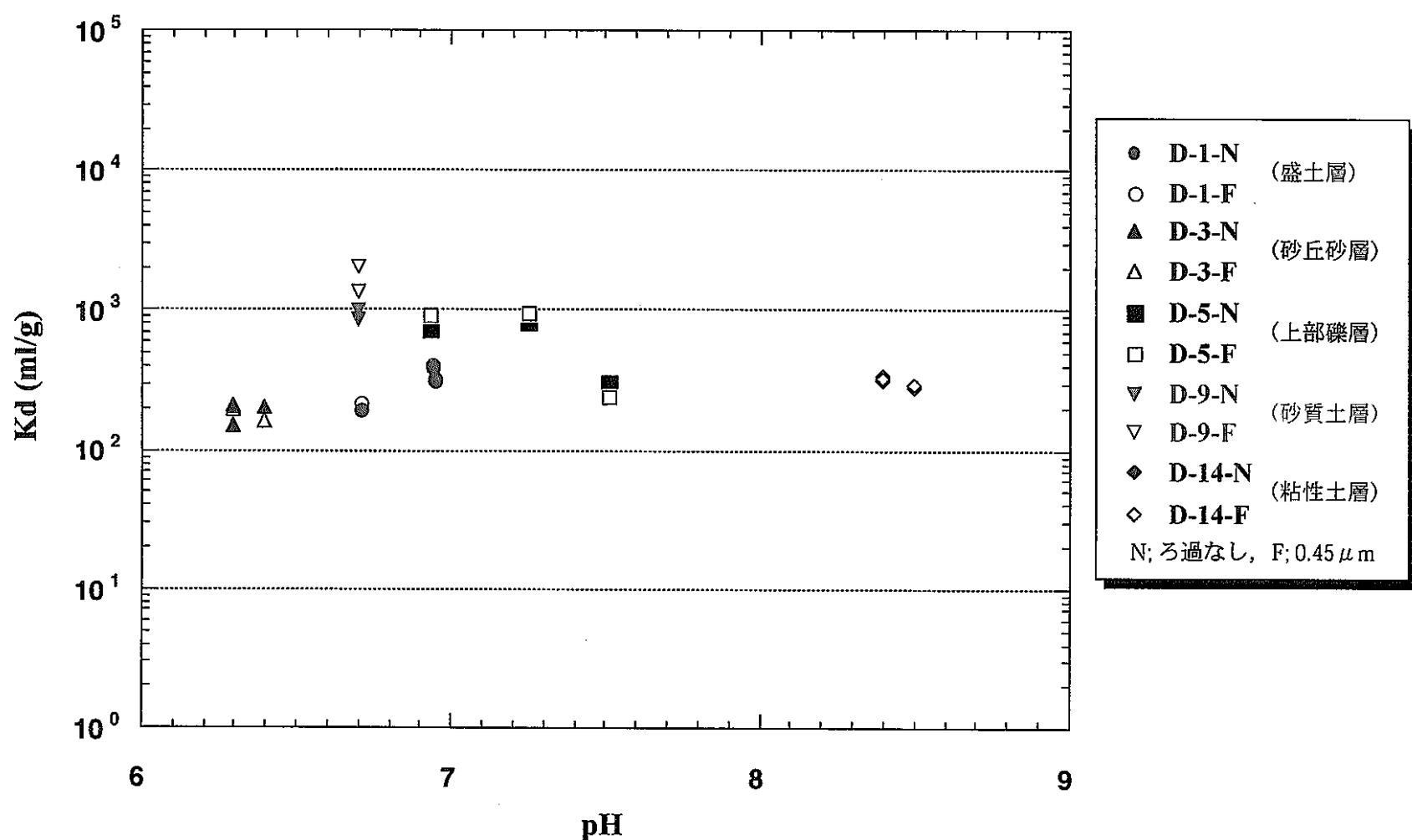


図3-4 地点D土壤試料に対するウランの分配係数

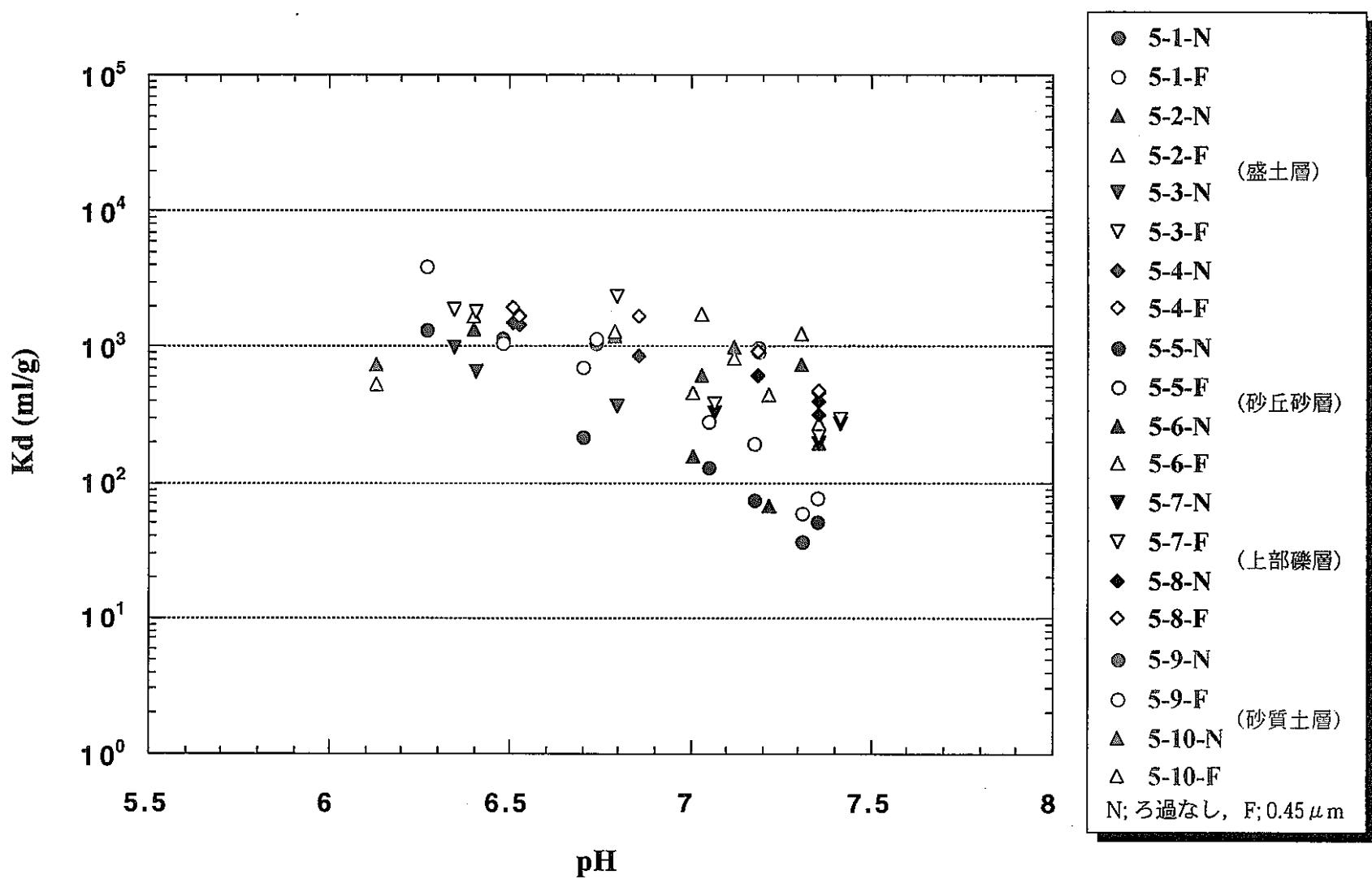


図3-5 地点5土壤試料に対するウランの分配係数

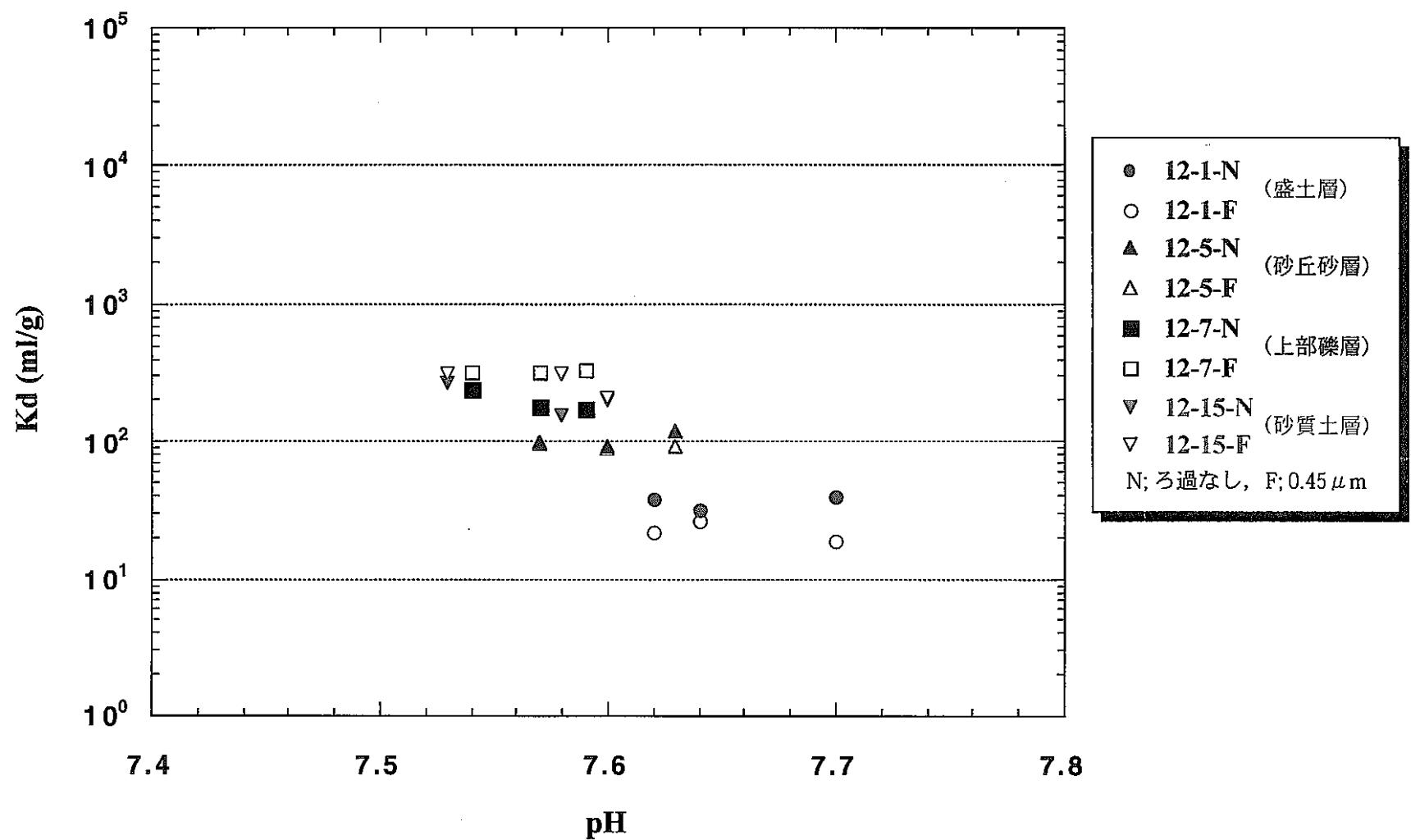


図3-6 地点12土壤試料に対するウランの分配係数

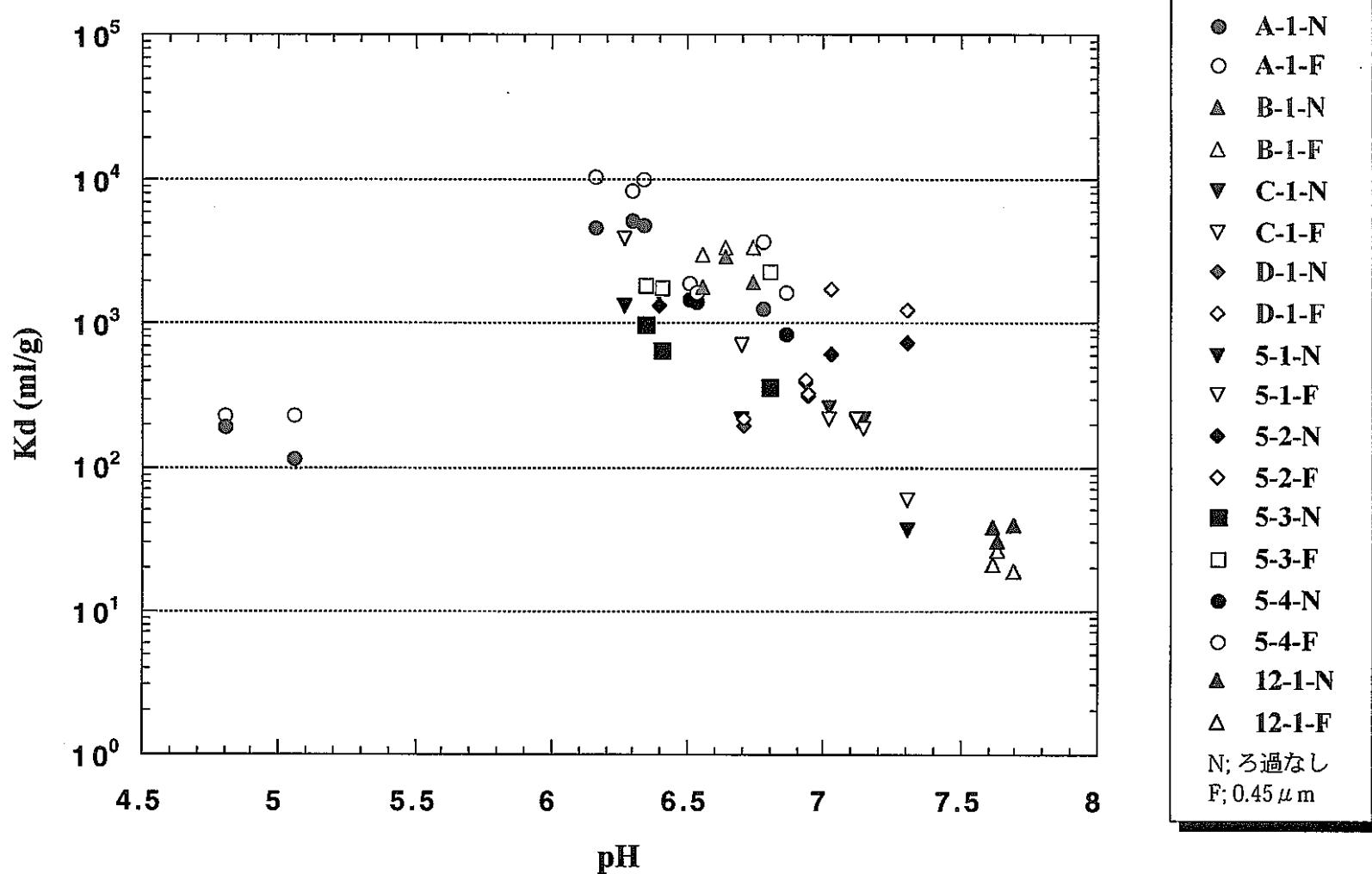


図3-7 盛土層に対するウランの分配係数

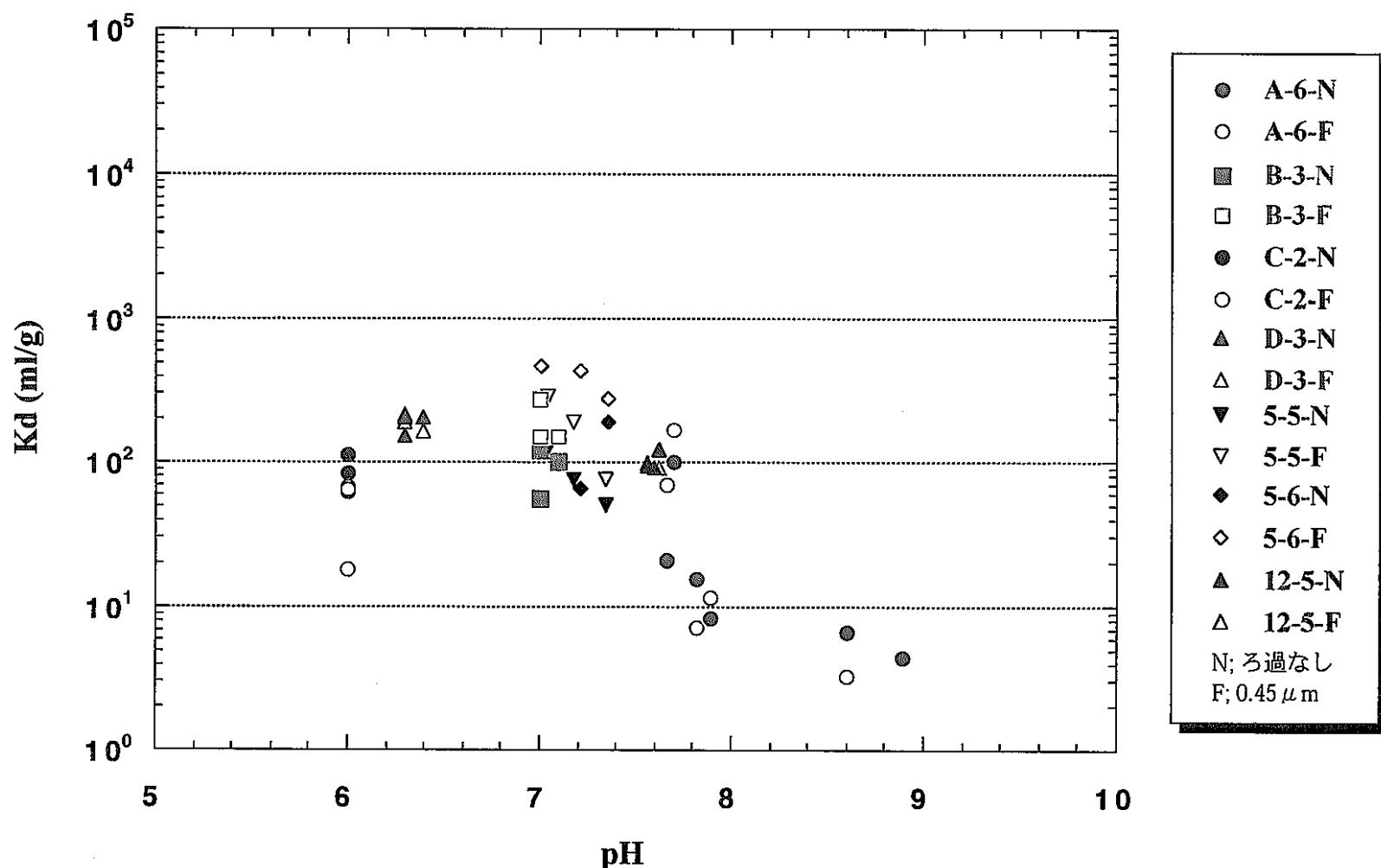


図3-8 砂丘砂層に対するウランの分配係数

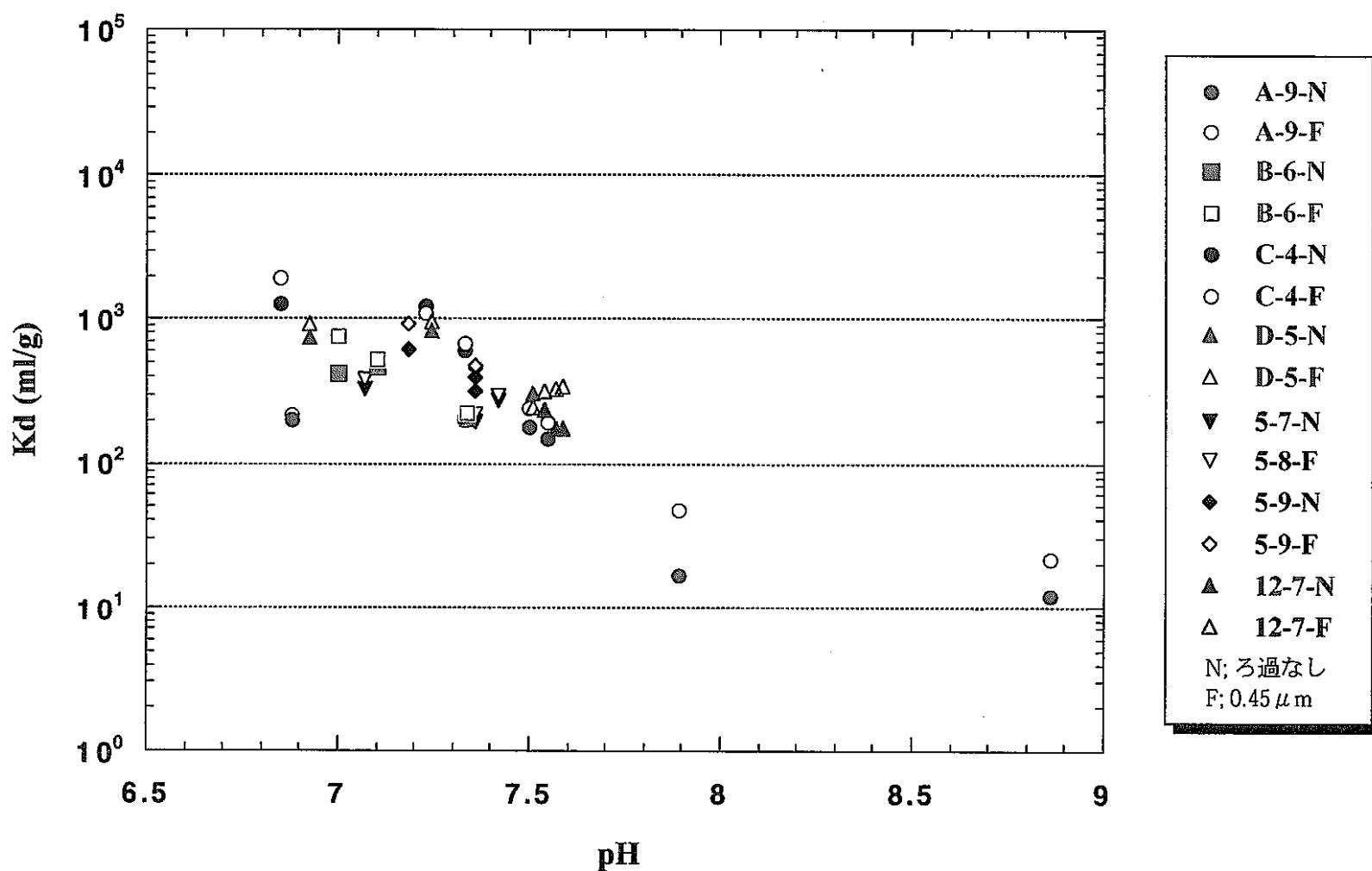


図3-9 上部礫層に対するウランの分配係数

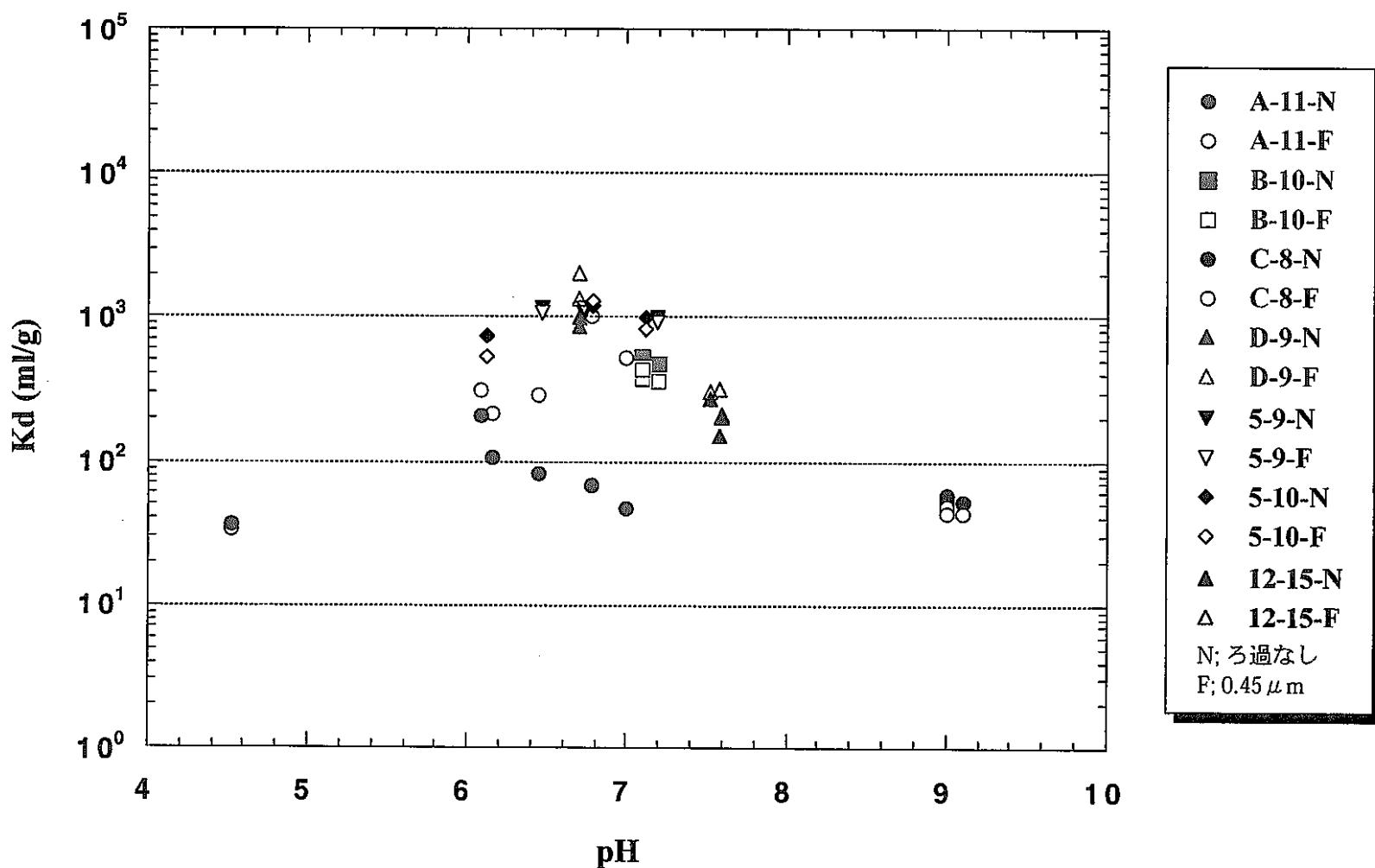


図3-10 砂質土層に対するウランの分配係数

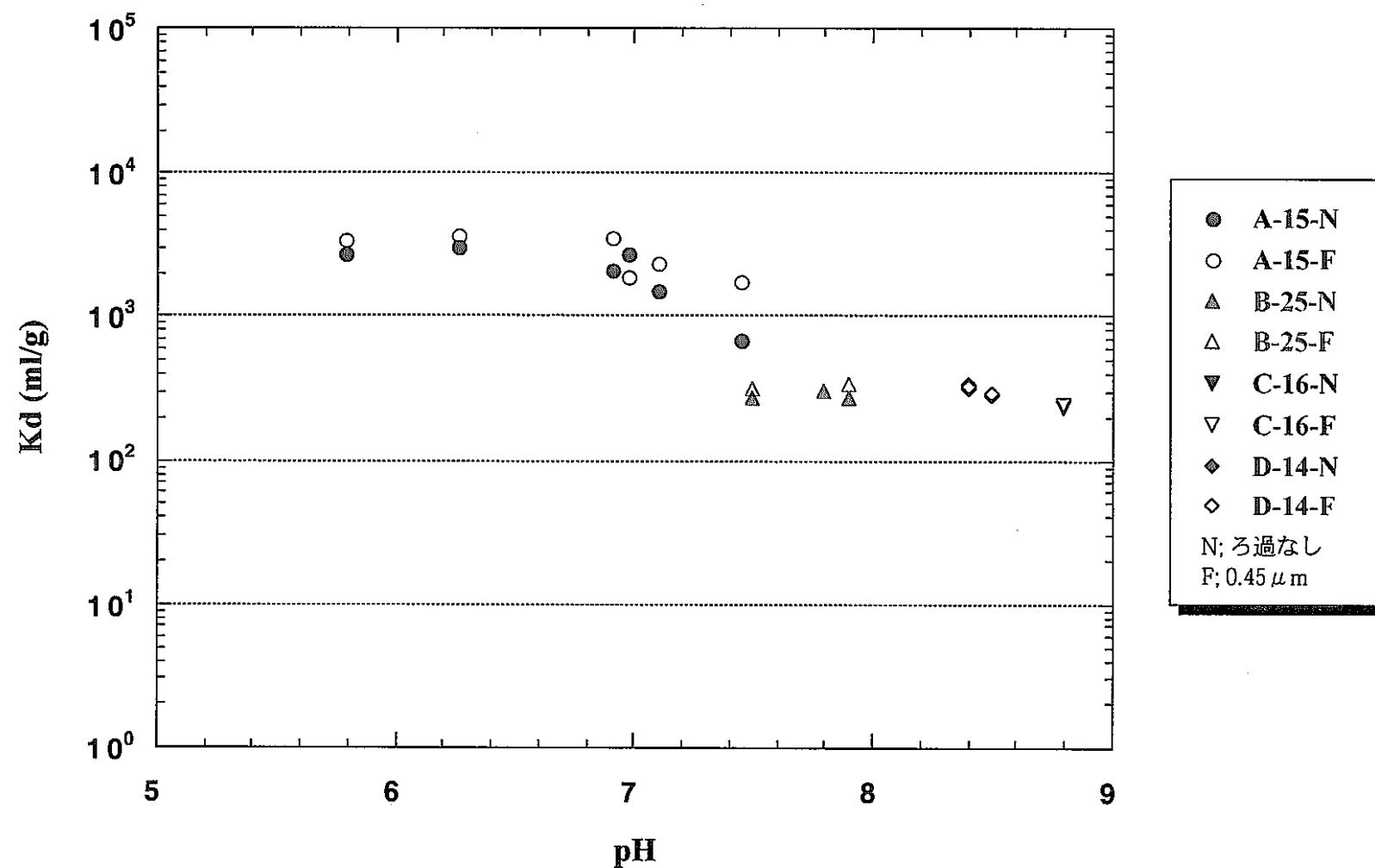


図3-11 粘性土層に対するウランの分配係数

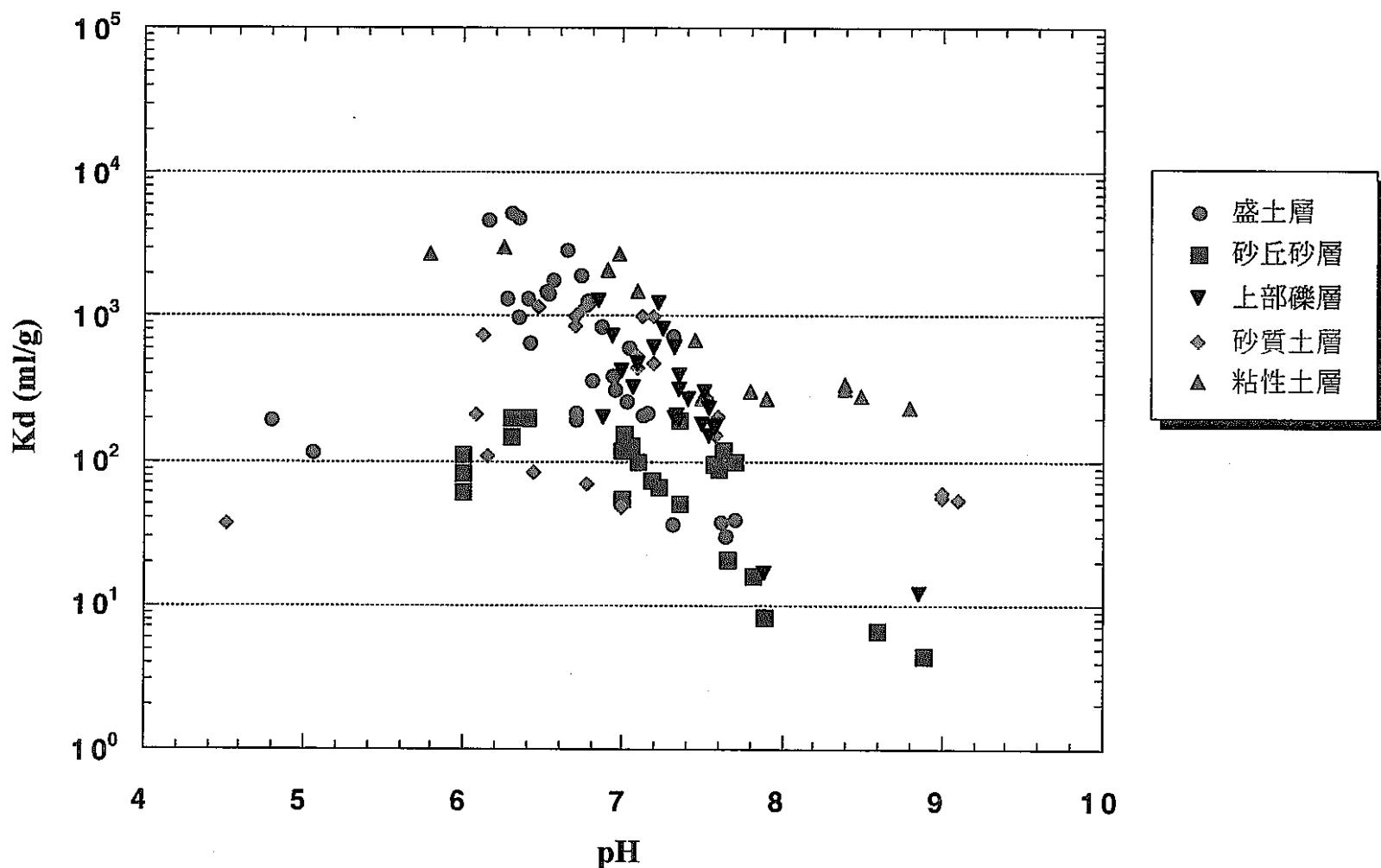


図3-12 土壤に対するウランの分配係数（全サンプル、ろ過なし）

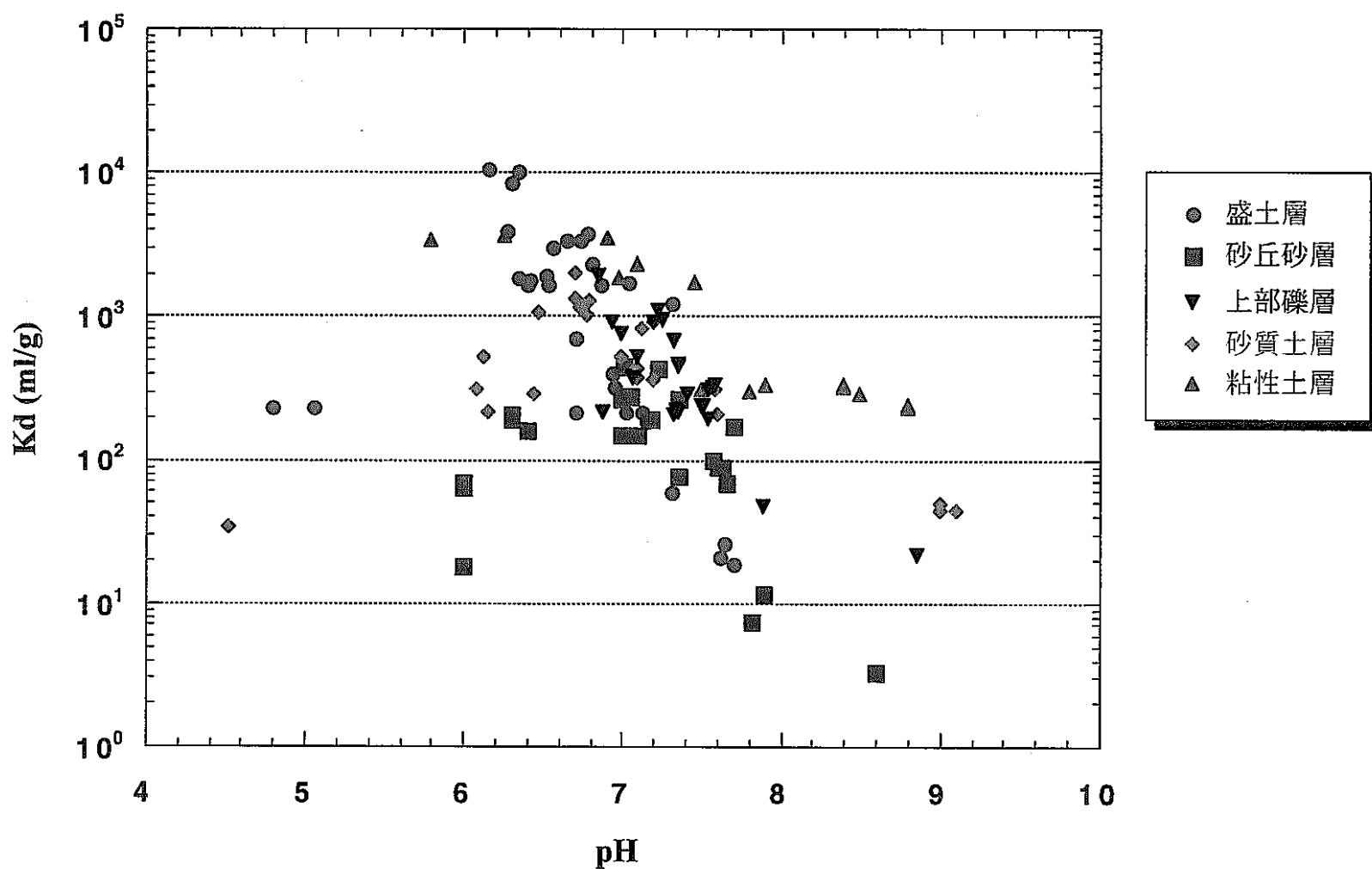
図3-13 土壤に対するウランの分配係数 (全サンプル, $0.45 \mu\text{m}$)

表3-8 各地層の分配係数の平均値 (pH 6-8)

地層名	pH	分配係数平均値 (ml/g)	
		ろ過なし	ろ過あり (0.45μm)
盛土層	6.8	1.2×10^3	2.3×10^3
砂丘砂層	7.1	9.9×10^1	1.6×10^2
上部礫層	7.3	4.1×10^2	5.1×10^2
砂質土層	6.9	5.7×10^2	7.7×10^2
粘性土層	7.2	1.3×10^3	1.7×10^3

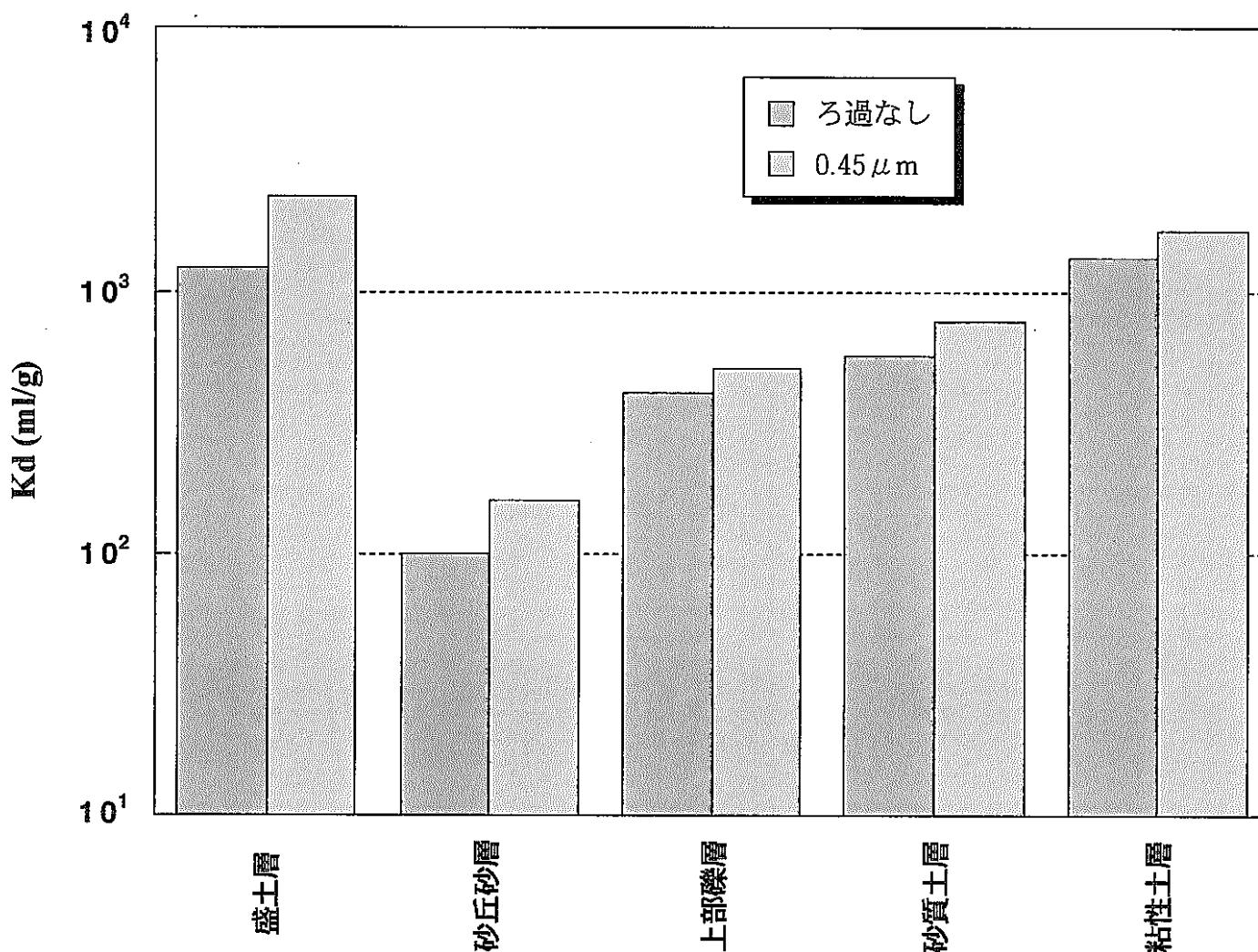


図3-14 各地層に対するウランの分配係数

4. 脱離試験

4.1 目的

廃棄物屋外貯蔵ピット周辺土壤からのウランの脱離量を測定し、土壤中にバックグラウンドとして存在するウランが収着試験に与える影響を把握すると共に、脱離量からの分配係数評価に資することを目的とする。

4.2 試料

表2-1に示す全土壤試料を対象とした。

4.3 試験条件及び手順

脱離試験条件を表4-1に示す。脱離試験は大気下、室温にて、バッチ法により行った。土壤試料を収着試験と同様の方法で1g秤量し、蒸留水50mlとポリエチレン容器の中で混合した。数日間静置した後、一部の試料（表2-1の*を付けた9試料）を除き、HNO₃あるいはNaOHを用いてpHを7.5付近に調整した。数日間振とう、静置した後、試験液のpH測定及びサンプリングを行った。サンプリングは収着試験同様、試験液の上澄みを直接採取する方法と、0.45 μmのメンブランフィルターを用いてろ過する方法の2通りで行った。サンプリング液中のU-238濃度の定量はICP-MS（定量下限値 2.1×10^{-9} mol/l (0.5ppb)）により行った。なお、全ての試験は繰り返し数3で行った。

4.4 試験結果

脱離試験により得られた試験液の最終pH、脱離量、各試料毎の平均値をポーリング地点毎に表4-2～4-7に示す。脱離量（脱離液濃度）は 10^{-7} ～ 10^{-9} mol/lオーダーの値を示し、地点、地層（深度）によって異なる結果を示した。また、0.45 μmのフィルターでろ過した方が脱離量は低くなる傾向であった。環境調査によって得られた土壤コア中のU-238の測定結果（添付資料1）と比較してみると、U-238の脱離量が土壤コア中に含まれるU-238の量におおよそ比例していることがわかる。例えば、脱離量が比較的高かった地点5で得られたデータを見てみると、脱離量と土壤コア中のU-238の量はいずれも試料5-1から5-4にかけて増加傾向を示し、5-5以降徐々に減少しており、両者の傾向が一致していることが確認できる。なお、脱離量は最大値でも約 2×10^{-7} mol/lであり、収着試験におけるウランの初期濃度（ $1 \sim 2 \times 10^{-5}$ mol/l）に比べ十分に低いことから、収着試験においてはバックグラウンドとして存在するU-238の影響を無視し得ることが確認された。

表4-1 脱離試験条件

実験方法；	バッチ法
固相；	表2-1に示す全試料
液相；	蒸留水（蒸留水－土壤平衡液）
試験容器；	ポリエチレン
液固比；	50 mL/g
pH調整；	NaOH,HNO ₃ を用いて7.5付近に調整 [調整せず]
サンプリング方法； (固液分離方法)	試験液上澄みを直接採取（ろ過なし） または0.45μmのメンブランフィルターによるろ過
雰囲気；	大気
温度；	室温
試験期間；	3～6日 [3日]
繰り返し数；	3
ウラン濃度の定量方法；	ICP-MS

[] 内は表2-1の*を付けた9試料に対する条件

表4-2 地点A土壤試料からのウランの脱離試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	脱離量 (mol/l)		脱離量平均値 (mol/l)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
A-1 (盛土層)	1	5.2	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹
	2	5.3	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
	3	5.2	2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
A-6 (砂丘砂層)	1	7.1	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹
	2	7.1	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
	3	7.0	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
A-9 (上部礫層)	1	6.9	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹
	2	7.1	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
	3	6.9	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
A-11 (砂質土層)	1	6.5	2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹
	2	6.5	2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
	3	6.6	2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
A-15 (粘性土層)	1	8.0	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹
	2	8.2	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
	3	8.4	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		

表4-3 地点B土壤試料からのウランの脱離試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	脱離量 (mol/l)		脱離量平均値 (mol/l)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
B-1 (盛土層)	1	7.4	4.4×10^{-8}	1.1×10^{-8}	3.9×10^{-8}	8.2×10^{-9}
	2	7.3	3.3×10^{-8}	4.6×10^{-9}		
	3	7.5	4.1×10^{-8}	9.1×10^{-9}		
B-3 (砂丘砂層)	1	6.8	2.4×10^{-9}	$<2.1 \times 10^{-9}$	4.3×10^{-9}	$<2.2 \times 10^{-9}$
	2	7.3	3.9×10^{-9}	$<2.1 \times 10^{-9}$		
	3	7.0	6.5×10^{-9}	2.3×10^{-9}		
B-6 (上部礫層)	1	7.3	$<2.1 \times 10^{-9}$	$<2.1 \times 10^{-9}$	$<2.1 \times 10^{-9}$	$<2.1 \times 10^{-9}$
	2	7.4	$<2.1 \times 10^{-9}$	$<2.1 \times 10^{-9}$		
	3	7.5	$<2.1 \times 10^{-9}$	$<2.1 \times 10^{-9}$		
B-10 (砂質土層)	1	7.0	2.6×10^{-8}	2.2×10^{-9}	1.2×10^{-8}	3.9×10^{-9}
	2	7.3	8.2×10^{-9}	5.4×10^{-9}		
	3	7.2	3.2×10^{-9}	4.2×10^{-9}		
B-25 (粘性土層)	1	7.8	3.6×10^{-8}	2.9×10^{-9}	1.4×10^{-8}	3.5×10^{-9}
	2	7.6	3.7×10^{-9}	4.6×10^{-9}		
	3	7.6	2.9×10^{-9}	3.0×10^{-9}		

表4-4 地点C土壤試料からのウランの脱離試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	脱離量 (mol/l)		脱離量平均値 (mol/l)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
C-1 (盛土層)	1	7.0	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹
	2	6.7	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
	3	6.7	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
C-2 (砂丘砂層)	1	6.6	3.9×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.9×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹
	2	6.5	2.6×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
	3	6.6	< 2.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
C-4 (上部礫層)	1	7.3	4.5×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	4.6×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹
	2	7.5	4.2×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
	3	7.3	5.1×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹		
C-8 (砂質土層)	1	9.0	2.2×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹	1.2×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹
	2	9.1	3.6×10 ⁻⁹	3.8×10 ⁻⁹		
	3	9.2	2.9×10 ⁻⁸	2.3×10 ⁻⁹		
C-16 (粘性土層)	1	8.9	1.5×10 ⁻⁸	2.1×10 ⁻⁹	1.6×10 ⁻⁹	< 2.1×10 ⁻⁹
	2	8.9	4.1×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹		
	3	8.9	2.9×10 ⁻⁸	< 2.1×10 ⁻⁹		

表4-5 地点D土壤試料からのウランの脱離試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	脱離量 (mol/l)		脱離量平均値 (mol/l)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
D-1 (盛土層)	1	7.1	8.4×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$	8.5×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$
	2	6.8	8.5×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
	3	6.7	8.6×10^{-9}	2.2×10^{-9}		
D-3 (砂丘砂層)	1	7.3	$< 2.1 \times 10^{-9}$	4.0×10^{-9}	$< 5.0 \times 10^{-9}$	$< 2.7 \times 10^{-9}$
	2	7.1	6.4×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
	3	6.8	6.4×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
D-5 (上部礫層)	1	7.3	1.2×10^{-7}	4.6×10^{-9}	1.2×10^{-7}	4.2×10^{-9}
	2	7.1	1.1×10^{-7}	4.4×10^{-9}		
	3	7.0	1.2×10^{-7}	3.6×10^{-9}		
D-9 (砂質土層)	1	7.0	1.6×10^{-8}	$< 2.1 \times 10^{-9}$	1.3×10^{-8}	$< 2.1 \times 10^{-9}$
	2	7.0	2.2×10^{-8}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
	3	7.1	2.4×10^{-8}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
D-14 (粘性土層)	1	8.6	2.8×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$	3.4×10^{-9}	$< 4.2 \times 10^{-9}$
	2	8.6	3.5×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
	3	8.6	4.0×10^{-9}	8.4×10^{-9}		

表4-6 地点5土壤試料からのウランの脱離試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	脱離量 (mol/l)		脱離量平均値 (mol/l)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
5-1 (盛土層)	1	6.6	4.2×10^{-8}	1.8×10^{-8}	4.0×10^{-8}	1.8×10^{-8}
	2	6.6	3.1×10^{-8}	1.6×10^{-8}		
	3	6.6	4.6×10^{-8}	1.9×10^{-8}		
5-2 (盛土層)	1	7.3	5.1×10^{-8}	1.0×10^{-8}	6.6×10^{-8}	1.2×10^{-8}
	2	7.3	7.1×10^{-8}	1.3×10^{-8}		
	3	7.4	7.7×10^{-8}	1.2×10^{-8}		
5-3 (盛土層)	1	7.4	9.1×10^{-8}	2.4×10^{-8}	1.1×10^{-7}	3.6×10^{-8}
	2	8.1	9.8×10^{-8}	4.3×10^{-8}		
	3	7.8	1.4×10^{-7}	4.1×10^{-8}		
5-4 (盛土層)	1	7.9	2.0×10^{-7}	1.2×10^{-7}	2.2×10^{-7}	1.4×10^{-7}
	2	8.3	2.3×10^{-7}	1.4×10^{-7}		
	3	8.3	2.3×10^{-7}	1.6×10^{-7}		
5-5 (砂丘砂層)	1	7.3	1.5×10^{-8}	7.6×10^{-9}	1.5×10^{-8}	9.2×10^{-9}
	2	7.9	1.4×10^{-8}	8.9×10^{-9}		
	3	7.8	1.5×10^{-8}	1.1×10^{-8}		
5-6 (砂丘砂層)	1	7.5	1.2×10^{-8}	5.3×10^{-9}	1.1×10^{-8}	6.2×10^{-9}
	2	7.6	1.0×10^{-8}	6.1×10^{-9}		
	3	7.4	1.1×10^{-8}	7.2×10^{-9}		
5-7 (上部礫層)	1	7.2	5.7×10^{-9}	2.6×10^{-9}	5.6×10^{-9}	2.7×10^{-9}
	2	7.3	6.0×10^{-9}	3.0×10^{-9}		
	3	7.1	5.2×10^{-9}	2.5×10^{-9}		
5-8 (上部礫層)	1	7.3	3.7×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$	3.2×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$
	2	7.3	2.7×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
	3	7.1	3.3×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
5-9 (砂質土層)	1	7.3	3.9×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 2.7 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$
	2	7.1	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
	3	7.3	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
5-10 (砂質土層)	1	7.4	$< 2.1 \times 10^{-9}$			
	2	7.4	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
	3	7.3	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$		

表4-7 地点12土壤試料からのウランの脱離試験結果

試料名 (地層名)	繰返し	pH	脱離量 (mol/l)		脱離量平均値 (mol/l)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
12-1 (盛土層)	1	9.4	1.3×10^{-7}	9.7×10^{-8}	9.9×10^{-8}	7.4×10^{-8}
	2	9.7	9.5×10^{-8}	7.1×10^{-8}		
	3	9.8	7.3×10^{-8}	5.4×10^{-8}		
12-5 (砂丘砂層)	1	8.2	3.2×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$	3.4×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$
	2	7.8	4.1×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
	3	7.7	2.9×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
12-7 (上部礫層)	1	7.6	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 2.6 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$
	2	7.3	2.9×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
	3	7.2	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
12-9 (砂質土層)	1	9.1	3.4×10^{-9}	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 3.1 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$
	2	9.2	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$		
	3	9.2	$< 2.1 \times 10^{-9}$	$< 2.1 \times 10^{-9}$		

5. 溶解度試験

5.1 目的

ウラン廃棄物屋外貯蔵ピット周辺の地下水中のウランの溶解度を測定し、収着試験において設定したウランの初期濃度の妥当性を確認するとともに、ウランの環境中への移行評価に資することを目的とする。

5.2 試料

ボーリング地点Aの地下水水面付近から採取した地下水を用いた。

5.3 試験条件及び手順

溶解度試験条件を表5-1に示す。溶解度試験は大気下、室温において、過飽和側からのバッチ法により行った。地下水中にU-233の初期濃度が約 1×10^{-2} mol/lとなるようにU-233を含む硝酸溶液を添加した後、NaOHを用いて地下水のpHを7.5付近に調整した。5日間静置した後、試験液のpH測定及びサンプリングを行った。サンプリングは試験液の上澄みを直接採取する方法と、0.45μmのメンブランフィルターを用いてろ過する方法の2通りで行った。なお、試験期間中には時々試験容器を振とうさせた。サンプリング液中のU-233濃度は、ZnS(Ag)シンチレーションカウンターを用いて定量した。また、バックグラウンドとして地下水中に含まれるU-238の影響を評価するために、ICP-MSによる地下水中的U-238濃度の測定を行った。溶解度試験についても繰り返し数は3とした。

5.4 試験結果

地下水中にU-233を含む硝酸溶液を添加した後にNaOHを用いてpHを7.5付近に調整した際、試験容器内に黄色の沈殿物の生成が確認された。溶解度試験により得られた試験液の最終pH、溶解度を表5-2に示す。地下水でのウランの溶解度は $4.8 \times 10^{-5} \sim 1.0 \times 10^{-4}$ mol/lであり、収着試験において設定した初期濃度 ($1 \sim 2 \times 10^{-5}$ mol/l) は溶解度以下であることが確認された。また、サンプリング方法の違いによる溶解度の差異は認められなかった。なお、ICP-MSにより測定された地下水中的U-238濃度は 1.5×10^{-8} mol/lであり、地下水中的U-238濃度は溶解度よりかなり低いことが確認された。

表5-1 溶解度試験条件

実験方法；	バッチ法（過飽和側から）
液相；	廃棄物屋外貯蔵ピット周辺土壤中の地下水 (ボーリング地点A, 深度約6.7m)
液量；	20ml
試験容器；	テフロン
pH調整；	NaOH, HNO ₃ を用いて7.5付近に調整
サンプリング方法； (固液分離方法)	試験液上澄みを直接採取（ろ過なし） または0.45μmのメンプランフィルターによるろ過
雰囲気；	大気
温度；	室温
試験期間；	5日
繰り返し数；	3
ウラン濃度の定量方法；	ZnS(Ag)シンチレーションカウンター
その他；	バックグラウンドのU-238の影響評価のため, 地下水中のU-238の濃度測定を実施

表5-2 ウランの溶解度試験結果

地下水採取地点	繰返し	pH	溶解度 (mol/l)		溶解度 (mol/l)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
ボーリング地点 A	1	7.2	9.0×10^{-5}	1.0×10^{-4}	7.9×10^{-5}	8.5×10^{-5}
	2	7.1	1.0×10^{-4}	9.4×10^{-5}		
	3	7.4	4.8×10^{-5}	5.8×10^{-5}		

※地下水分析結果

pH; 7.59 U-238濃度; 1.5×10^{-8} mol/l

6. 脱離試験結果に基づく分配係数評価

6.1 目的

脱離試験によって得られたU-238の脱離量と環境調査によって得られた土壤中に含まれるU-238の量から分配係数を算出し、吸着試験により得られた分配係数と比較することとする。

6.2 評価対象

脱離試験を実施した表2-1に示す全土壤試料を対象とした。

6.3 評価方法

脱離試験において得られた各試料のU-238の脱離量と環境調査により得られた同一試料に含まれるU-238の量（添付資料1）から、次式に基づき分配係数を算出した。

$$K_d = \frac{\left(\frac{C_s}{L/S/1000} - C_d \right)}{C_d} \times \frac{L}{S} \quad (6-1)$$

K_d: 分配係数 (ml/g)

C_s: 単位重量当たりの土壤に含まれるU-238の量 (mol/g)

C_d: 脱離試験液中のU-238の濃度 (mol/l)

L/S: 液相／固相比 (ml/g)

6.4 評価結果

(6-1)式により得られた脱離試験に基づく分配係数を表6-1に示す。また、これらの分配係数を吸着試験で得られた分配係数と共に図6-1に示す。ここで、脱離量がICP-MSの定量下限値以下になった試料に関しては、分配係数は定量下限値を用いて計算される値以上として表され、この場合、脱離試験と吸着試験のそれぞれから得られる分配係数を単純に比較することはできない。ボーリング地点毎に比較してみると、比較的高い脱離量が得られた地点5では、脱離試験に基づく分配係数と吸着試験により得られた分配係数との間に相関があり、いずれの試料についても脱離試験から得られた分配係数の方が吸着試験の分配係数よりも数倍～1桁程度高くなる傾向が確認さ

れた。A,12の試料についても程度の差はあるが、脱離試験から得られた分配係数の方が高くなる傾向を示した。一方、B,C,Dの試料については、A,5,12のような明確な傾向は確認されず、一部の試料においては脱離試験から得られた分配係数の方が低くなった。しかしながら、全体的には脱離量から得られた分配係数の方が収着試験から得られた分配係数よりも高くなる傾向であり、この原因として不可逆収着の寄与が考えられる。

図6-1 脱離試験結果に基づく分配係数

試料名	環境調査結果		脱離試験結果		分配係数	
	乾燥土壤中のU-238		脱離液中のU-238 (mol/l)		Kd (ml/g)	
	Bq/kg	mol/g	ろ過なし	0.45 μm	ろ過なし	0.45 μm
A-1	180	6.1E-8	< 2.1E-9	< 2.1E-9	> 2.9E+4	> 2.9E+4
A-6	2.6	8.8E-10	< 2.1E-9	< 2.1E-9	> 3.7E+2	> 3.7E+2
A-9	4.4	1.5E-9	< 2.1E-9	< 2.1E-9	> 6.6E+2	> 6.6E+2
A-11	4.2	1.4E-9	2.1E-9	< 2.1E-9	6.3E+2	> 6.3E+2
A-15	6.2	2.1E-9	< 2.1E-9	< 2.1E-9	> 9.5E+2	> 9.5E+2
B-1	120	4.1E-8	3.9E-8	8.2E-9	9.8E+2	4.9E+3
B-3	1.1	3.7E-10	4.3E-9	< 2.2E-9	3.7E+1	> 1.2E+2
B-6	2.7	9.1E-10	< 2.1E-9	< 2.1E-9	> 3.8E+2	> 3.8E+2
B-10	3.6	1.2E-9	1.2E-8	3.9E-9	4.8E+1	2.6E+2
B-25	11	3.7E-9	1.4E-8	3.5E-9	2.1E+2	1.0E+3
C-1	1.7	5.7E-10	< 2.1E-9	< 2.1E-9	> 2.2E+2	> 2.2E+2
C-2	1.7	5.7E-10	< 2.9E-9	< 2.1E-9	> 1.5E+2	> 2.2E+2
C-4	2	6.8E-10	4.6E-9	< 2.1E-9	9.7E+1	> 2.7E+2
C-8	6.5	2.2E-9	1.2E-8	< 2.1E-9	1.4E+2	> 7.5E+2
C-16	20	6.8E-9	1.6E-8	< 2.1E-9	3.7E+2	> 3.2E+3
D-1	8.3	2.8E-9	8.5E-9	< 2.1E-9	2.8E+2	> 1.3E+3
D-3	1.8	6.1E-10	< 5.0E-9	< 2.7E-9	> 7.2E+1	> 1.7E+2
D-5	120	4.1E-8	1.2E-7	4.2E-9	3.0E+2	9.6E+3
D-9	4.4	1.5E-9	1.3E-8	< 2.1E-9	6.0E+1	> 6.6E+2
D-14	16	5.4E-9	3.4E-9	< 4.2E-9	1.5E+3	> 1.2E+3
12-1	380	1.3E-7	9.9E-8	7.4E-8	1.2E+3	1.7E+3
12-5	30	1.0E-8	3.4E-9	< 2.1E-9	2.9E+3	> 4.8E+3
12-7	3.4	1.2E-9	< 2.6E-9	< 2.1E-9	> 3.9E+2	> 5.0E+2
12-9	5.2	1.8E-9	< 3.1E-9	< 2.1E-9	> 5.2E+2	> 7.9E+2
5-1	310	1.1E-7	4.0E-8	1.8E-8	2.6E+3	5.9E+3
5-2	360	1.2E-7	6.6E-8	1.2E-8	1.8E+3	1.0E+4
5-3	750	2.5E-7	1.1E-7	3.6E-8	2.3E+3	7.0E+3
5-4	2200	7.4E-7	2.2E-7	1.4E-7	3.3E+3	5.3E+3
5-5	37	1.3E-8	1.5E-8	9.2E-9	8.0E+2	1.3E+3
5-6	23	7.8E-9	1.1E-8	6.2E-9	6.6E+2	1.2E+3
5-7	40	1.4E-8	5.6E-9	2.7E-9	2.3E+3	5.0E+3
5-8	29	9.8E-9	3.2E-9	< 2.1E-9	3.0E+3	> 4.6E+3
5-9	3.8	1.3E-9	< 2.7E-9	< 2.1E-9	> 4.3E+2	> 5.6E+2
5-10	2.5	8.4E-10	< 2.1E-9	< 2.1E-9	> 3.5E+2	> 3.5E+2

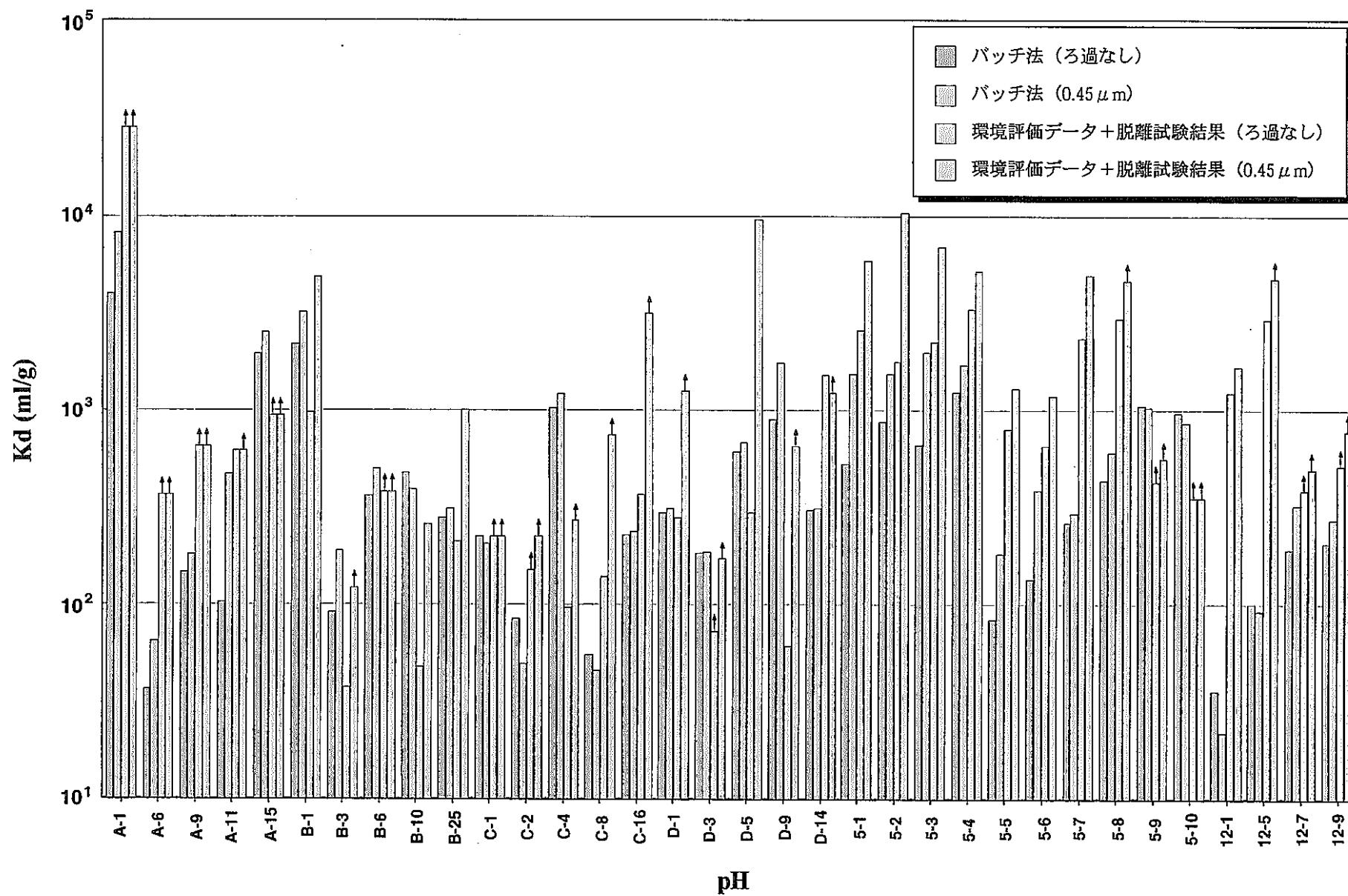


図6-1 環境評価データと脱離試験結果から得られた分配係数とバッチ法により得られた分配係数との比較

7. 環境調査データに基づく原位置での分配係数評価

7.1 目的

環境調査において得られたデータを用いて原位置における分配係数を算出し、収着試験により得られた分配係数と比較することを目的とする。

7.2 評価対象

環境調査として地下水中のU-238濃度が測定された全ボーリング地点（図2-1参照）の地下水面上付近を対象とする。

7.3 評価方法

原位置でのウランの分配係数は、環境調査により得られた各ボーリング地点の地下水面上付近の地下水中のウラン濃度及び土壤中に含まれるウラン濃度（添付資料1）から、以下の式を用いて算出した。ここで、土壤中のウラン濃度は表層から1m間隔で測定されており、地下水が採取された深度に最も近い深度で得られたデータを用いることとした。ただし、地下水採取深度が土壤中のウラン濃度の2つの測定深度の中間付近（0.5±0.2m）に位置する場合、上下2つのデータの平均値を用いて分配係数を算出した。

$$K_d = \frac{C_s}{C_g} \quad (7-1)$$

C_s；土壤中のウラン濃度(Bq/kg)

C_g；地下水中のウラン濃度(Bq/l)

7.4 評価結果

環境調査データから得られた原位置での分配係数を表7-1に示す。分配係数は10⁴～10¹ml/gの範囲にばらつき、ボーリング地点によって大きく異なる結果となった。収着試験の対象としたボーリング地点における原位置での分配係数を、収着試験により得られた分配係数と共に図7-1に示す。ここで、環境調査データが得られた深度と収着試験の対象とした試料を採取した深度が異なり、また、地下水が採取された地点の地層が不明であるため、地下水面上下に位置する試料（砂丘砂層と上部礫層）に対して得られた分配係数を比較対象とした。ボーリング地点5では砂

丘砂層と上部礫層のいずれと比較した場合も原位置での分配係数の方が低く、また、地点Cにおいては上部礫層と比較した場合に原位置での分配係数の方が低くなつた。それ以外では、環境調査データから得られた原位置での分配係数は収着試験により得られた値と比較して、同程度あるいは1桁程度高い値を示した。全体的に原位置での分配係数は収着試験の分配係数よりも高く、また、原位置での分配係数は砂丘砂層よりも上部礫層の分配係数に近い傾向が見られるものの、明確な傾向とは言い難い結果となつた。

表7-1 環境調査データに基づく原位置での分配係数

ボーリング 地点	地下水			土壤		分配係数 (ml/g)
	U-238濃度(mol/l)	pH	深度(m)	U-238濃度(mol/kg)	深度(m)	
A	5.4E-09	7.40	-6.56	2.5E-06	6.5*	4.6E+02
B	1.6E-09	8.00	-4.49	6.6E-07	4.5*	4.1E+02
C	2.2E-09	8.40	-2.53	5.7E-07	2.5*	2.6E+02
D	8.1E-09	7.50	-3.92	4.1E-05	4.0	5.0E+03
1	1.8E-09	6.80	-4.65	5.2E-07	4.5*	2.9E+02
2	8.1E-09	8.20	-6.70	5.2E-07	6.5*	6.5E+01
3	1.1E-10	11.50	-6.61	1.0E-06	6.5*	9.0E+03
4	9.5E-09	6.70	-5.19	1.0E-06	5.0	1.1E+02
5	2.2E-07	9.40	-6.90	9.8E-06	7.0	4.5E+01
6	9.5E-09	10.30	-6.85	4.1E-06	7.0	4.3E+02
7	1.4E-10	6.70	-6.93	4.1E-07	7.0	2.9E+03
8	1.7E-09	6.60	-4.47	1.3E-06	4.5*	7.9E+02
9	2.4E-09	6.80	-4.58	5.6E-07	4.5*	2.4E+02
10	8.8E-08	6.80	-4.77	1.5E-05	5.0	1.7E+02
11	7.4E-08	9.10	-4.90	7.4E-06	5.0	1.0E+02
12	2.0E-08	9.10	-5.22	1.4E-05	5.0	7.2E+02
13	1.1E-06	8.30	-4.81	7.1E-05	5.0	6.6E+01
14	3.7E-09	9.70	-4.96	1.0E-06	5.0	2.8E+02
15	1.0E-07	6.90	-5.02	7.4E-05	5.0	7.3E+02
16	1.9E-08	6.70	-5.00	9.1E-06	5.0	4.8E+02
17	1.6E-09	6.70	-5.11	1.5E-05	5.0	9.2E+03
18	1.9E-09	11.30	-5.37	1.2E-04	5.5*	6.4E+04
19	1.5E-07	7.20	-5.08	4.1E-05	5.0	2.7E+02
20	7.4E-09	7.00	-5.71	8.1E-07	6.0	1.1E+02
21	9.5E-09	9.90	-4.24	4.4E-05	4.0	4.6E+03
22	5.4E-08	8.60	-4.89	2.8E-05	5.0	5.2E+02
23	7.4E-07	8.70	-5.13	9.1E-05	5.0	1.2E+02
24	4.1E-07	7.10	-5.19	7.1E-05	5.0	1.8E+02
25	9.5E-09	6.80	-5.44	1.3E-05	5.5*	1.4E+03
26	1.1E-08	7.30	-3.25	4.7E-05	3.0	4.1E+03
27	1.3E-07	7.10	-4.01	2.2E-05	4.0	1.7E+02
28	5.1E-09	9.00	-6.71	2.0E-06	7.0	3.9E+02
29	3.2E-08	6.70	-3.89	1.4E-05	4.0	4.3E+02
30	1.2E-08	7.40	-4.19	2.4E-06	4.0	1.9E+02
31	6.8E-10	6.60	-7.05	9.8E-07	7.0	1.5E+03
32	<1.1e-11	11.30	-5.07	7.1E-07	5.0	>6.4E+4

* ±0.5mの2つのデータの平均値

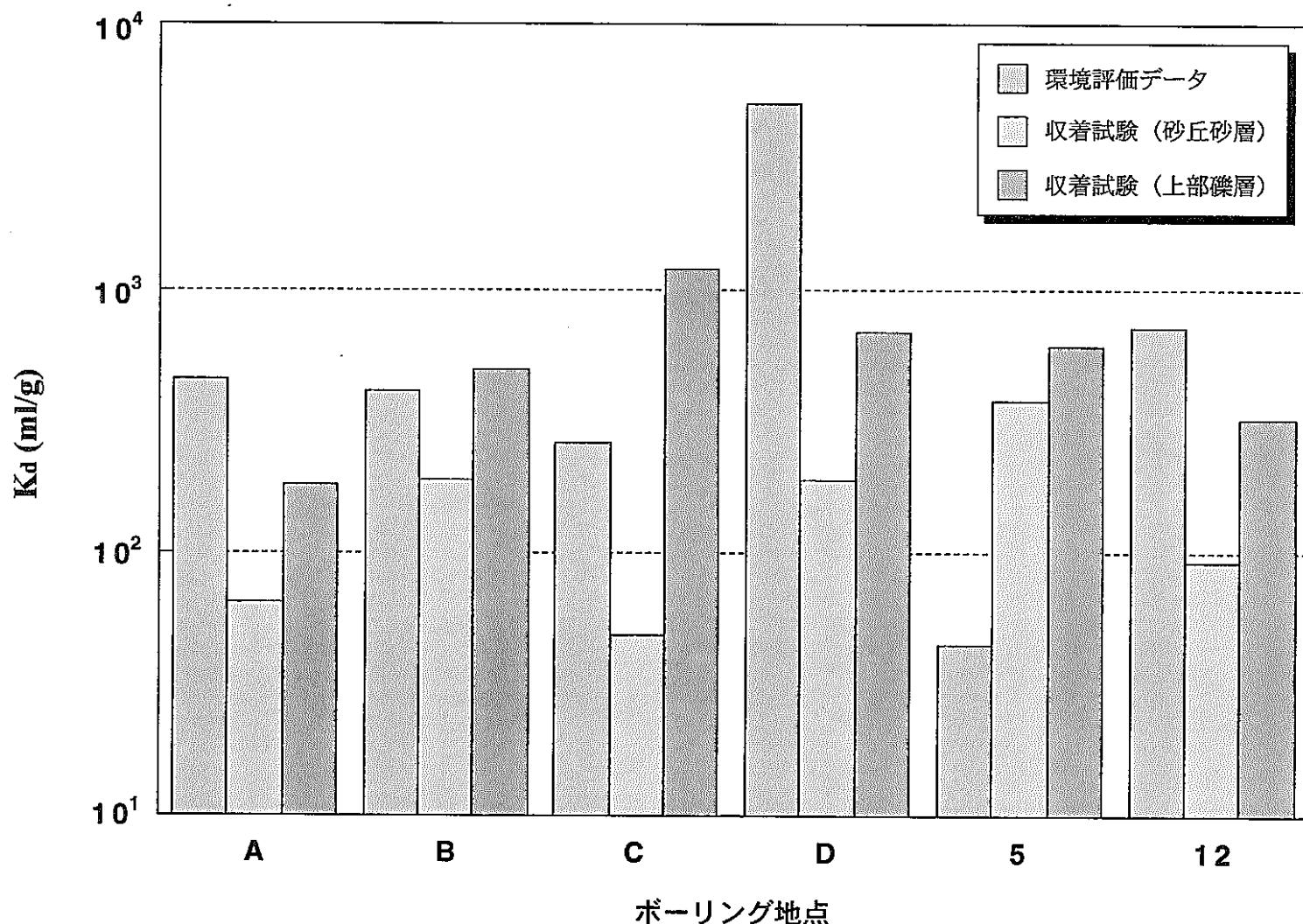


図7-1 環境調査データと収着試験から得られた分配係数の比較

8. まとめ

廃棄物屋外貯蔵ピット周辺における土壤のウラン吸着能力を把握し、ウランの環境中への移行評価へデータを資することを目的として、土壤に対するウランの吸着試験、土壤からのウランの脱離試験、地下水水中におけるウランの溶解度試験を実施した。土壤試料は環境調査のために実施されたボーリングによって得られた土壤コアから採取したもので、ボーリング地点はA,B,C,D,5,12の6地点、地層は盛土層、砂丘砂層、上部礫層、埋設谷埋没砂質土層、埋設谷埋没粘性土層の5層を対象とした。

吸着試験は大気下、室温において、U-233もしくはU-238をトレーサーとしたバッチ法により行った。分配係数は $10^4 \sim 10^6 \text{ ml/g}$ の範囲の値を示し、地点毎、地層毎に大きく異なる結果となつた。また、分配係数はpHに大きく依存し、pH6-7付近で最大となり、その前後でpH変化に伴い減少する傾向を示した。なお、分配係数はフィルターでろ過した方が若干高くなる傾向であった。pH6-8の範囲で得られた分配係数を単純に平均することにより、各地層の分配係数の比較を行つた。分配係数の平均値は盛土層、粘性土層については 10^3 ml/g オーダー、その他の3層については 10^2 ml/g オーダーであり、ろ過しない場合で粘性土層>盛土層>砂質土層>上部礫層>砂丘砂層の順となり、ろ過した場合には粘性土層と盛土層が逆転する結果となつた。

脱離試験は大気下、室温においてバッチ法により行った。脱離量は $10^{-7} \sim 10^{-9} \text{ mol/l}$ のオーダーであり、ボーリング地点、地層によって大きく異なる結果を示した。環境調査によって得られた土壤コア中のU-238の測定結果と比較から、各土壤からのU-238の脱離量は土壤コア中に含まれるU-238の量におおよそ比例していることが確認された。なお、脱離量は最大値でも約 $2 \times 10^{-7} \text{ mol/l}$ であり、吸着試験におけるウランの初期濃度に比べ十分に低いことから、吸着試験においてはバッケグラウンドとして存在するU-238の影響は無視できることが確認された。

溶解度試験はボーリング地点Aから採取された地下水を用い、大気下、室温において過飽和側から行った。得られた溶解度は $1 \times 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$ の範囲の値を示し、吸着試験における初期濃度の設定の妥当性が確認された。また、地下水中的ウラン濃度が 10^{-8} mol/l であることから、地下水中的ウラン濃度は溶解度よりもかなり低いことが確認された。

脱離試験結果に基づき分配係数を算出し、吸着試験により得られた分配係数と比較を行つた。全体的に脱離量から得られる分配係数の方が高くなる傾向が確認され、この原因として不可逆吸着の寄与が考えられた。また、環境調査データに基づき原位置での分配係数を算出し同様の比較を行つたが、明確な傾向は得られなかつた。

9. 謝辞

収着試験、脱離試験、溶解度試験の実施にあたっては、環境技術開発部地層処分開発室の山田一夫担当役、黒羽光彦主査、加川昭夫副主研、岡崎充宏氏、西川義朗氏、乾真一氏に御協力頂きました。別添資料2の地下水データの取得及び別添資料3のスペシエーション評価においては、環境技術開発部地層処分開発室の芦田敬主査、濱谷早苗研究員、吉田泰氏に御協力頂きました。安全管理部環境安全課の方々には土壤試料の採取に御協力頂いた他、別添試料1の環境調査データを御提供頂きました。再処理技術開発部アクチニドプロセス分析開発室の方々には、収着試験及び脱離試験におけるICP-MS、 α スペクトロメーターによる分析、別添資料2の地下水の分析に御協力頂きました。再処理工場工務部分析課の方々には、別添資料2の地下水の分析に御協力頂きました。収着試験及び脱離試験の一部は三菱マテリアル株式会社にて実施して頂いたものであり、加藤博康氏、上田真三氏をはじめ多数の方々に御協力頂きました。以上これらの方々に深く感謝致します。

添付資料 1

環境調査データ

(安全管理部環境安全課により取得されたデータ)

表1(1) 土壌コア中のU-238の測定結果

(単位: Bq/kg乾土)

	1地点	2地点	3地点	4地点	5地点	6地点	7地点	8地点	9地点	10地点
0~1m	3.6	27	22	260	310	190	7.8	320	120	370
1~2m	2.6	5.0	13	9.8	360	390	15	4.7	39	410
2~3m	1.3	2.3	3.0	26	750	150	6.6	3.2	12	370
3~4m	1.2	2.3	3.0	2.0	2200	88	3.0	1.4	2.2	160
4~5m	1.3	1.1	1.6	1.5	37	2.7	1.8	1.7	1.2	59
5~6m	1.8	1.2	1.2	3.1	23	1.3	1.1	6.2	2.1	43
6~7m	3.7	1.1	3.7	4.7	40	3.5	1.2	2.9	3.7	10
7~8m	3.7	2.0	2.4	2.6	29	12	1.2	3.7	2.5	6.6
8~9m	5.7	2.0	3.0	4.6	3.8	6.1	3.3	5.1	4.6	8.5
9~10m	3.7	3.7	3.5	5.6	2.5	3.3	2.6	4.4	3.0	6.9

	11地点	12地点	13地点	14地点	15地点	16地点	17地点	18地点	19地点	20地点
0~1m	340	380	77	39	97	86	84	14	55	4.6
1~2m	28	2.5	23	2.7	1300	81	130	3.1	70	2.5
2~3m	11	2.1	24	2.4	62	21	130	2.4	30	1.7
3~4m	14	3.4	25	2.4	50	23	39	2.8	27	4.4
4~5m	11	30	79	2.3	95	98	40	140	31	1.1
5~6m	22	42	210	3.1	220	27	44	470	120	1.4
6~7m	9.0	3.4	30	2.7	5.7	4.6	4.1	250	19	2.4
7~8m	3.9	3.3	5.7	3.2	5.1	3.1	3.0	500	2.9	2.4
8~9m	5.2	4.5	3.7	4.2	6.6	5.0	4.8	6.1	2.7	3.6
9~10m	5.9	4.2	3.4	5.2	7.1	3.2	5.7	5.8	5.6	4.4

	21地点	22地点	23地点	24地点	25地点	26地点	27地点	28地点	29地点	30地点
0~1m	13	10	14	40	37	3.9	3.6	67	3.2	5.0
1~2m	2.4	2.5	2.4	2.5	3.0	1.5	1.5	77	2.0	3.7
2~3m	3.6	2.5	1.3	3.3	7.4	41	1.7	42	2.2	2.9
3~4m	15	5.0	1.7	2.1	1.6	140	200	20	12	1.7
4~5m	130	160	110	70	42	2.9	66	6.8	41	7.0
5~6m	11	83	270	210	69	2.4	3.9	17	2.9	4.5
6~7m	3.3	9.8	4.9	77	9.6	3.6	5.0	15	2.6	3.6
7~8m	3.8	5.8	5.5	3.1	4.5	2.7	4.2	5.8	5.3	3.6
8~9m	3.2	6.1	5.9	4.3	4.6	6.3	3.9	2.4	5.5	5.2
9~10m	4.7	5.1	4.4	6.3	4.8	3.5	3.6	4.5	5.5	5.6

	31地点	32地点
0~1m	16	3.9
1~2m	53	5.1
2~3m	8.5	1.8
3~4m	2.6	2.1
4~5m	1.0	2.6
5~6m	0.94	2.1
6~7m	4.8	1.9
7~8m	2.9	1.7
8~9m	7.3	2.0
9~10m	3.0	5.5

表1(2) 土壌コア中のU-238の測定結果
(単位: Bq/kg乾土)

	A地点	B地点	C地点	D地点
0~1m	180	120	1.7	8.3
1~2m	570	6.6	1.7	1.5
2~3m	37	1.1	1.4	1.8
3~4m	5.7	1.7	2.0	3.2
4~5m	1.6	1.2	2.6	120
5~6m	2.6	2.7	3.5	14
6~7m	10	3.5	2.7	5.6
7~8m	4.8	4.0	6.5	3.2
8~9m	4.4	4.3	3.8	4.4
9~10m	3.1	3.6	2.9	4.0
10~11m	4.2	4.9	7.9	3.7
11~12m	3.8	3.4	9.8	4.1
12~13m	4.1	5.4	13	11
13~14m	4.3	8.1	11	16
14~15m	6.2	7.3	8.1	14
15~16m	10	8.0	20	10
16~17m	7.9	4.2	12	14
17~18m	8.0	4.3	8.1	7.4
18~19m	10	9.7	9.5	28
19~20m	9.2	4.0	10	15
20~21m	8.5	7.7	11	9.2
21~22m	6.9	7.8	9.8	9.0
22~23m	10	11	8.0	9.8
23~24m	13	6.7	4.0	8.1
24~25m	5.2	11	3.8	11
25~26m	6.7	17	8.1	12
26~27m	7.0	14	10	9.7
27~28m	10	15	15	7.8
28~29m	21		8.3	5.7
29~30m	5.4		15	6.7
30~31m	2.7			15
31~32m	18			42
32~33m	10			5.4
33~34m	9.5			11
34~35m	25			20
35~36m	18			11
36~37m	47			5.7
37~38m	27			9.0
38~39m	9.3			13
39~40m	9.8			10
40~41m	11			11
41~42m	6.9			7.3
42~43m	11			9.5
43~44m	13			9.1
44~45m	14			10
45~46m	9.5			5.5
46~47m	11			7.2
47~48m	12			9.3
48~49m	7.5			7.8
49~50m	11			
50~51m	8.4			

表2 地下水分析結果

場所	採取日	U-238 (Bq/L)	Cl ⁻ (ppm)	F ⁻ (ppm)	SO ₄ ²⁻ (ppm)	pH	モル濃度比(注)			GL+TP(m)
							①F/Cl	②SO ₄ /F	③SO ₄ /Cl	
A	9/10	1.6E-02	190	0.09	45.4	7.4	8.9E-04	1.0E+02	8.8E-02	1.50
B	9/11	4.8E-03	65	0.18	3.2	8.0	5.2E-03	3.5E+00	1.8E-02	1.39
C	9/8	6.6E-03	89	0.12	1.2	8.4	2.5E-03	2.0E+00	5.0E-03	1.09
D	9/17	2.4E-02	250	0.17	1.4	7.5	1.3E-03	1.6E+00	2.1E-03	1.15
1	9/17	5.4E-03	32	0.10	60.8	6.8	5.8E-03	1.2E+02	7.0E-01	1.64
2	9/10	2.4E-02	10	0.21	70.6	8.2	3.9E-02	6.7E+01	2.6E+00	1.41
3	9/10	3.4E-04	11	0.41	62.8	11.5	7.0E-02	3.0E+01	2.1E+00	1.38
4	9/17	2.8E-02	22	0.08	79.5	6.7	6.8E-03	2.0E+02	1.3E+00	1.47
5	9/10	6.4E-01	11	0.38	89.7	9.4	6.5E-02	4.7E+01	3.0E+00	1.29
6	9/10	2.8E-02	11	0.32	65.3	10.3	5.4E-02	4.0E+01	2.2E+00	1.29
7	9/10	4.2E-04	19	0.19	25.1	6.7	1.9E-02	2.6E+01	4.9E-01	1.24
8	9/17	5.0E-03	15	0.06	44.2	6.6	7.5E-03	1.5E+02	1.1E+00	1.40
9	9/17	7.0E-03	31	<0.05	57.9	6.8	-	-	6.9E-01	1.32
10	10/13	2.6E-01	19	0.10	128	6.8	9.8E-03	2.5E+02	2.5E+00	1.01
11	9/17	2.2E-01	21	0.15	93.1	9.1	1.3E-02	1.2E+02	1.6E+00	1.12
12	9/17	5.8E-02	19	0.16	75.0	9.1	1.6E-02	9.3E+01	1.5E+00	1.18
13	9/17	3.2E+00	8.5	0.27	105	8.3	5.9E-02	7.7E+01	4.6E+00	1.13
14	9/11	1.1E-02	32	0.19	64.1	9.7	1.1E-02	6.7E+01	7.4E-01	0.93
15	10/13	3.0E-01	27	0.08	58.7	6.9	5.5E-03	1.5E+02	8.0E-01	0.85
16	9/17	5.6E-02	20	0.19	98.1	6.7	1.8E-02	1.0E+02	1.8E+00	0.91
17	10/13	4.8E-03	18	0.07	73.8	6.7	7.3E-03	2.1E+02	1.5E+00	0.69
18	9/17	5.6E-03	18	0.26	100	11.3	2.7E-02	7.6E+01	2.1E+00	0.92
19	9/17	4.4E-01	12	0.11	65	7.2	1.7E-02	1.2E+02	2.0E+00	0.81
20	9/8	2.2E-02	43	0.05	90	7.0	2.2E-03	3.6E+02	7.7E-01	0.71
21	9/17	2.8E-02	17	0.27	110	9.9	3.0E-02	8.1E+01	2.4E+00	0.73
22	9/17	1.6E-01	24	0.18	96	8.6	1.4E-02	1.1E+02	1.5E+00	0.69
23	9/17	2.2E+00	21	0.14	120	8.7	1.2E-02	1.7E+02	2.1E+00	0.66
24	9/17	1.2E+00	19	0.14	100	7.1	1.4E-02	1.4E+02	1.9E+00	0.59
25	9/17	2.8E-02	21	0.10	86	6.8	8.9E-03	1.7E+02	1.5E+00	0.51
26	9/17	3.4E-02	26	<0.05	69	7.3	-	-	9.1E-01	0.58
27	9/8	3.8E-01	15	0.11	96	7.1	1.4E-02	1.7E+02	2.4E+00	0.33
28	9/17	1.5E-02	55	0.09	120	9.0	3.1E-03	2.6E+02	8.1E-01	0.73
29	9/8	9.6E-02	27	0.06	62	6.7	4.2E-03	2.0E+02	8.5E-01	0.34
30	9/17	3.6E-02	33	0.08	62	7.4	4.5E-03	1.5E+02	6.9E-01	1.00
31	9/17	2.0E-03	15	0.06	36	6.6	7.5E-03	1.2E+02	8.9E-01	1.16
32	9/17	D.L.(<3.4E-5)	110	0.22	100	11.3	3.7E-03	9.0E+01	3.4E-01	1.04

参考 貯蔵ピット中U-238, Cl⁻, F⁻, SO₄²⁻, pH測定結果

場所	U-238 (Bq/L)	Cl ⁻ (ppm)	F ⁻ (ppm)	SO ₄ ²⁻ (ppm)	pH	モル濃度比(注)		
						①F/Cl	②SO ₄ /F	③SO ₄ /Cl
ピットA	9.9E+03	1440	83.7	700	9.14	1.1E-01	1.7E+00	1.8E-01
ピットB	9.0E+03	3240	31.4	240	9.25	1.8E-02	1.5E+00	2.7E-02
ピットC	1.4E+01	47.1	4.8	3.6	8.56	1.9E-01	1.5E-01	2.8E-02
ピットD	4.0E+03	1130	51.2	121	9.21	8.5E-02	4.7E-01	4.0E-02
ピットE	5.4E+02	79.2	4.1	36.6	8.85	9.7E-02	1.8E+00	1.7E-01

(注) イオン濃度比の計算式(モル濃度比)

①=(F/19)/(Cl⁻/35.5) ②=(SO₄²⁻/96)/(F/19) ③=(SO₄²⁻/96)/(Cl⁻/35.5)

※ Fの質量数=19, Cl⁻の質量数=35.5, SO₄²⁻の質量数=32÷16×4=96

添付資料 2

廃棄物屋外貯蔵ピット周辺地下水の分析結果

(再処理工場工務部分析課、再処理技術開発部アクチニドプロセス・分析開発室、
環境技術開発部地層処分開発室により取得されたデータ)

表1 廃棄物屋外貯蔵ピット周辺地下水のpH, Eh測定結果

ポーリング地点	採取日	地下水水面 (G.L.m)	pH		Eh(mV)	
			ろ過なし	0.45μm	ろ過なし	0.45μm
A	9/1	-7.00	7.40	7.59	326	235
B	8/29	-4.85	7.28	7.39	150	183
C	8/29	-2.96	6.99	7.10	92	105
D	9/1	-4.63	7.83	7.98	241	235
2	9/2	-6.56	6.89	7.01	372	352
5	9/1	-7.50	7.27	7.43	275	276
7	9/1	-6.78	7.40	7.50	284	247
9	9/1	-4.67	6.85	7.00	232	172
11	9/1	-4.90	6.46	6.58	196	183
12	9/2	-5.00	8.62	8.64	390	380
13	9/1	-4.80	6.79	6.93	221	240
18	9/8	-5.20	6.90	6.90	344	320
19	9/8	-5.70	9.73	9.77	361	344
26	9/1	-3.43	7.37	7.47	241	241
27	9/1	-4.10	7.23	7.38	130	142
28	9/1	-6.60	7.07	7.19	208	252
29	9/1	-3.86	8.02	8.06	191	203
30	9/1	-4.30	7.40	7.59	369	374
31	9/1	-7.80	6.90	7.03	116	113
32	9/2	-5.30	8.02	8.14	384	371

表2 廃棄物屋外貯蔵ピット周辺地下水 (A, B, C, D, 5, 12) の組成分析結果

成分	濃度 (ppm) ^{*2}												分析方法 ^{*3}
	A		B		C		D		5		12		
ボーリング地点	分析課	AAS	分析課	AAS	分析課	AAS	分析課	AAS	分析課	AAS	分析課	AAS	分析方法 ^{*3}
U	<0.67	-	<0.67	-	<0.67	-	<0.67	-	<0.67	-	<0.67	-	ICP-AES
Li	0.37	-	<0.33	-	<0.33	-	<0.33	-	<0.33	-	<0.33	-	ICP-AES
B	<0.96	-	<0.96	-	<0.96	-	<0.96	-	<0.96	-	<0.96	-	ICP-AES
Na	67	58.8	42	36.5	56	47.0	67	56.7	82	70.0	49	39.1	ICP-AES F-AAS
Mg	15	16.4	16	12.8	21	16.1	15	11.1	26	20.1	19	14.5	ICP-AES ICP-AES
Al	<0.42	<0.2	<0.42	<0.2	<0.42	<0.2	<0.42	<0.2	<0.42	<0.2	<0.42	<0.2	ICP-AES ICP-AES
Si	7.9	-	6.8	-	12	-	9.8	-	9.9	-	6.9	-	ICP-AES -
K	18	14.2	7.8	6.5	9.8	8.4	8.7	6.0	15	10.8	9.4	7.6	ICP-AES F-AAS
Ca	31	36.0	34	27.3	37	29.8	41	31.9	45	59.5	37	29.5	ICP-AES ICP-AES
Cr	<0.26	-	<0.26	-	<0.26	-	<0.26	-	<0.26	-	<0.26	-	ICP-AES -
Fe	<0.14	<0.2	<0.14	<0.2	2.1	1.9	<0.14	<0.2	<0.14	<0.2	<0.14	<0.2	ICP-AES ICP-AES
F ⁻	N.D.	0.3	N.D.	0.2	N.D.	<0.1	N.D.	0.3	N.D.	0.3	N.D.	0.3	IC IC
Cl ⁻	19	24.0	23	35.2	18	29.9	20	31.2	23	27.7	13	20.1	IC IC
CO ₃ ²⁻	240	-	88	-	130	-	130	-	290	-	150	-	IC -
NO ₂ ⁻	N.D.	-	N.D.	-	N.D.	-	N.D.	-	N.D.	-	N.D.	-	IC -
NO ₃ ⁻	N.D.	-	15	-	N.D.	-	N.D.	-	14	-	N.D.	-	IC -
SO ₄ ²⁻	61	58.1	68	66.4	88	87.8	90	89.4	120	116	57	58.0	IC IC
PO ₄ ³⁻	-	<3	-	<3	-	<3	-	<0.3	-	<3	-	<3	-
TOC	-	7	-	4	-	1	-	3	-	12	-	3	-
TC	-	56	-	24	-	31	-	32	-	61	-	36	-
IC	-	49.3	-	20.4	-	29.3	-	29.0	-	48.6	-	33.6	-
TOC	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	TOC

¹ 分析課；再処理工場工務部分析課, AAS；再処理技術開発部アクチニドプロセス・分析開発室² < ; 定量下限値以下, N.D. ; 検出下限値以下³ ICP-AES ; ICP発光分光分析法, F-AAS ; フレームレス原子吸光分析法, IC ; イオンクロマトグラフ分析法, TOC ; 全有機炭素分析法

添付資料 3

地下水中のウランのスペシエーション評価結果

表1 廃棄物屋外貯蔵ピット周辺地下水でのウランのスペシエーション評価結果
-熱力学データPNC-TDB及び地球化学コードPHREEQEを用いた平衡計算結果-

ボーリング 地点	地下水条件 ¹			平衡計算結果		
	pH	Eh (mV)	U-238濃度 (mol/l) ²	化学種	濃度(mol/l)	分配率 (%)
A	7.40	326	5.4×10^{-9}	$\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$ $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ $\text{UO}_2\text{CO}_3(\text{aq})$ UO_2PO_4^-	3.5×10^{-9} 1.2×10^{-9} 3.8×10^{-10} 1.6×10^{-10} 5.9×10^{-11}	65 23 7 3 1
B	7.28	150	1.6×10^{-9}	$\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$ $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ $\text{UO}_2\text{CO}_3(\text{aq})$ UO_2PO_4^- $\text{UO}_2(\text{OH})_3^-$	9.9×10^{-10} 4.4×10^{-10} 7.2×10^{-11} 6.4×10^{-11} 2.4×10^{-11}	62 28 5 4 1
C	6.99	92	2.2×10^{-9}	$\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$ $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ $\text{UO}_2\text{CO}_3(\text{aq})$ UO_2PO_4^- $\text{UO}_2\text{HPO}_4(\text{aq})$	1.2×10^{-9} 6.8×10^{-10} 1.8×10^{-10} 1.0×10^{-10} 2.2×10^{-11}	52 31 8 5 1
D	7.83	241	8.1×10^{-9}	$\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$ $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ $\text{UO}_2(\text{OH})_3^-$ $\text{UO}_2\text{CO}_3(\text{aq})$	3.5×10^{-9} 3.3×10^{-9} 6.3×10^{-10} 3.1×10^{-10} 9.8×10^{-11}	43 40 8 4 1
5	7.27	275	2.2×10^{-7}	$\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$ $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ $\text{UO}_2\text{CO}_3(\text{aq})$ UO_2PO_4^-	1.4×10^{-7} 4.8×10^{-8} 1.4×10^{-8} 8.2×10^{-9} 2.6×10^{-9}	65 22 6 4 1
12	8.62	390	2.0×10^{-8}	$\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$ $\text{UO}_2(\text{OH})_3^-$	7.3×10^{-9} 6.1×10^{-9} 4.3×10^{-9} 2.5×10^{-9}	36 31 22 13

¹ 共存イオン濃度は添付資料2に示した地下水組成分析データ（AAS実施）を用いた。

² 添付資料2に示した環境調査データを用いた。

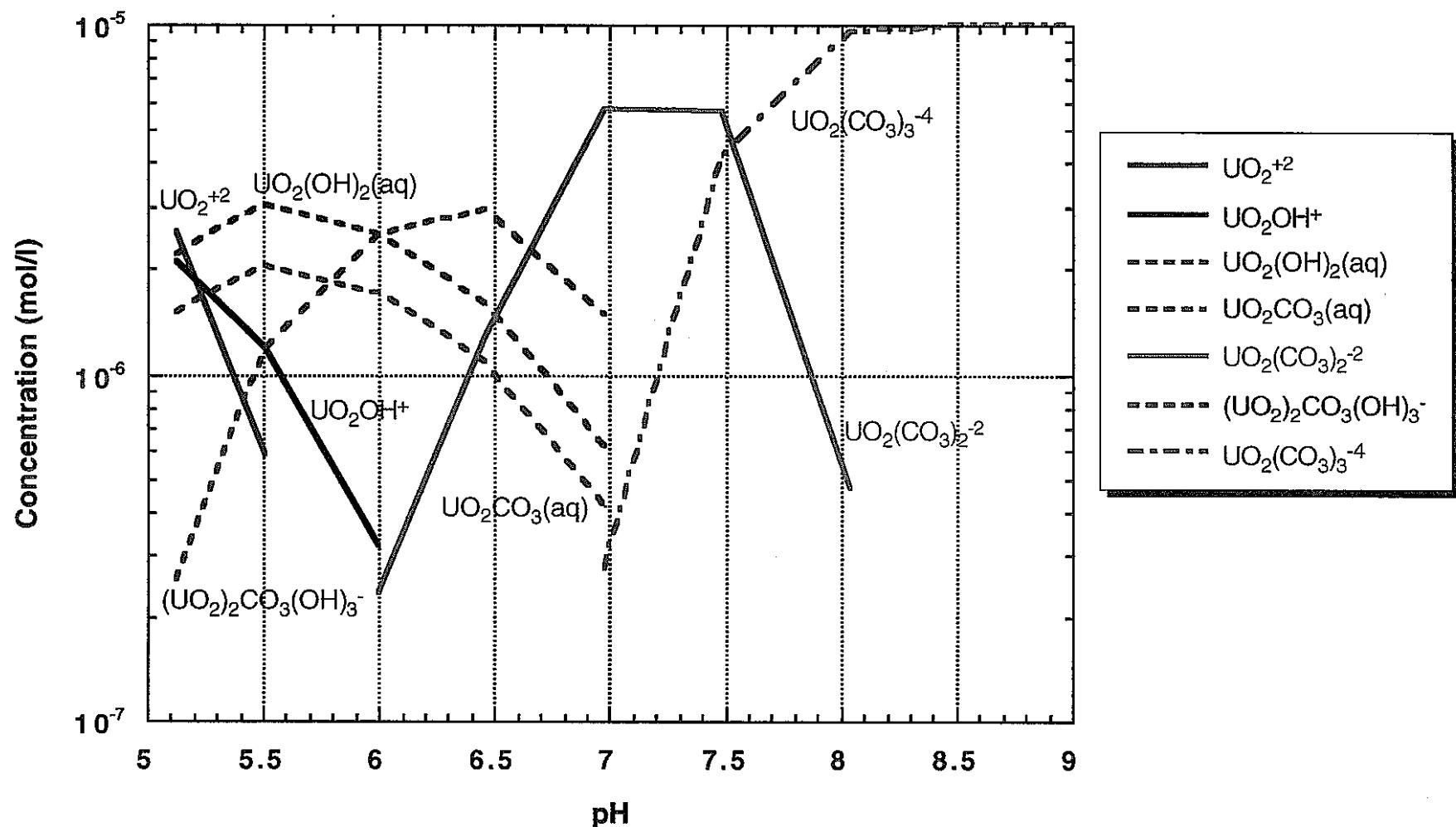


図1 ウランのスペシェーションのpH依存性

-熱力学データPNC-TDB及び地球化学コードPHREEQEを用いた平衡計算結果-

(蒸留水、ウラン濃度； 1×10^{-5} mol/l, P_{CO_2} : -3.5 (atmosphere), P_{CO_2} = -2.0 (ground water))