

各種バリア材の分配係数について

H.2.9 改訂版

財団法人 原子力環境整備センター
株式会社 東芝
日揮株式会社
株式会社 日立製作所
三菱金属株式会社
三菱重工業株式会社

目 次

1. まえがき	1
2. 安全評価モデルに適用する分配係数	2
2.1 分配係数の定義	2
2.2 分配係数の取得方法	2
3. 試験方法	3
3.1 トレーサ	3
3.2 固相	4
3.3 液相	6
3.4 操作及び分析方法	8
4. 試験結果	13
5. まとめ	16
Appendix-1 使用する器具への吸着性に関する検討	20
Appendix-2 試験結果 (Phase-1)	23
Appendix-3 廃棄体の粒子密度及び間隙率の測定結果	30
Appendix-4 浸漬時間に関する検討	32

図・表一覧表

図 3-1	分配係数の測定法(1)	11
図 3-2	分配係数の測定法(2)	12
表 4-1①	^{14}C 分配係数測定結果(PWR発電所)	14
表 4-1②	^{14}C 分配係数測定結果(BWR発電所)	14
表 4-2	分配係数測定結果	15

1. まえがき

我が国の原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物を浅地中に安全に埋設処分するための検討が実施されてきている。浅地中に埋設処分される放射性廃棄物による一般公衆への影響、すなわち、一般公衆の受ける線量当量を評価するには、廃棄物を固型化した固化材、埋設施設を構成する人工バリア、及び埋設施設周辺の地層からなる天然バリアの各々のバリア効果を把握する必要がある。

本報は、このバリア効果を表すパラメータである分配係数について、安全評価上重要な放射性核種を対象に、青森県六ヶ所村に設置を計画している日本原燃産業(株)・低レベル放射性廃棄物埋設処分施設において実際に想定されるバリア材を用いて試験し、評価検討したものである。

2. 安全評価モデルに適用する分配係数

2.1 分配係数の定義

放射性核種は、人工バリアまたは天然バリアを構成する固相とバリア内間隙に存在する液相との間の吸着平衡関係に従って分配される。ここでは、次のように固相中の核種濃度と液相中の核種濃度の比を分配係数として定義する。

$$k_d = \frac{C_s}{C_l}$$

k_d : 分配係数 [ml/g]

C_s : 固相中の核種濃度 [$\mu\text{Ci/g}$]

C_l : 液相中の核種濃度 [$\mu\text{Ci/ml}$]

2.2 分配係数の取得方法

分配係数については、これまでにいくつかの研究がなされてきているが、種々の要因に依存するため、既往の文献データに加え、特定された条件下での分配係数を正確に導き出す必要がある。したがって、日本原燃産業(株)・低レベル放射性廃棄物埋設処分施設の安全評価モデルへ分配係数を適用するにあたっては、実際の施設を構成する人工バリア材及び埋設施設周辺から採取された実際の天然バリア材を使用し、想定される環境条件に近い試験系で実測された分配係数を適用することが現実的かつ合理的な方法と考えられる。

3. 試験方法

青森県六ヶ所村に設置が計画されている日本原燃産業(株)・低レベル放射性廃棄物埋設処分施設を対象に、安全評価上重要な核種である ^{14}C 、 ^{60}Co 、 ^{59}Ni 、 ^{63}Ni 、 ^{90}Sr 、 ^{94}Nb 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I 、 ^{137}Cs 、 ^{239}Pu 、 ^{241}Am に対し、分配係数を測定する。

なお、試験は、天然バリアを重点的に試験するPhase-1 とそれ以外のPhase-2 に分かれている。

〔Phase-1〕バリア材：土壌及び岩

核種： ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{90}Sr 、 ^{94}Nb 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I

〔Phase-2〕上記Phase-1 以外

3.1 トレーサ

(1) ^{14}C

^{14}C は種々の化学形態となる可能性があるが、廃棄物中の ^{14}C の化学形態を同定することが困難であるため、試験に使用するR I トレーサを決定することは難しい。このため、ここでは、発電所から発生する実廃棄体及び実濃縮廃液を用いて試験を実施し、核種濃度の分析は後述（3.4 項参照）のように炭酸イオンとして存在する ^{14}C を除いて行うことにする。

ただし、BWR発電所の実廃棄体及び実濃縮廃液については、含有される ^{14}C の大部分が炭酸イオンとして存在するため、主にPWR発電所の実廃棄体及び実濃縮廃液を用いて試験を実施する。なお、BWR発電所の実廃棄体及び実濃縮廃液についても、一部試験を実施する。

(2) ^{60}Co

R I 協会より購入した塩化物形態として存在するトレーサを適当な濃度に希釈して使用する。

(3) ^{59}Ni 、 ^{63}Ni

^{59}Ni については、 ^{63}Ni による試験で代用する。

R I 協会より購入した塩化物形態として存在するトレーサを適当な濃度に希釈して使用する。

(4) ^{90}Sr

^{90}Sr の他に、一部の試験で、 ^{85}Sr トレーサを用いて試験する。

R I協会より購入した塩化物形態として存在するトレーサを適当な濃度に希釈して使用する。

(5) ^{94}Nb

^{95}Nb で代用するが、Phase-1 でのみR Iトレーサを用いて試験を実施する。

R I協会より購入した塩化物形態として存在するトレーサを適当な濃度に希釈して使用する。

(6) ^{99}Tc

R I協会より購入した過テクネチウム酸アンモニウムの形態として存在するトレーサを適当な濃度に希釈して使用する。

(7) ^{129}I

Phase-1 では ^{125}I で代用する。

R I協会より購入したよう化ナトリウムの形態として存在するトレーサを適当な濃度に希釈して使用する。

(8) ^{137}Cs

R I協会より購入した塩化物形態として存在するトレーサを適当な濃度に希釈して使用する。

(9) ^{239}Pu

^{238}Pu で代用する。

液体シンチレーション法による ^{238}Pu の測定で妨害となるAmの除去とPuの価数をそろえるためTTAによる抽出を行った。

(10) ^{241}Am

R I協会より購入した硝酸溶液中に存在するトレーサを適当な濃度に希釈して使用する。

3.2 固相

対象バリア材は次の通りとする。

(a) セメント固化した廃棄物（以下、廃棄体と言う。）

(b) 埋設設備内に充填されるセメント系充填材（以下、モルタルと言う。）

- (c) 埋設設備を構成するコンクリート壁（以下、コンクリートと言う。）
- (d) 埋設設備の覆土となるベントナイトを混合した土壌（以下、ベントナイト混合土と言う。）
- (e) 施設周辺の地層を代表する土壌（以下、土壌と言う。）
- (f) 核種が移行する鷹架層を代表する岩盤（以下、岩と言う。）

(1) バリア材の種類

試験に用いる廃棄体及びバリア材の種類は次の通りとする。

① 廃棄体

PWR発電所においてはその大半がバーミキュライトセメントを固型化材とする固体化体であり、BWR発電所においてはその大半が高炉Cセメントを固型化材とする固体化体であることから

- ・ PWR濃縮廃液のバーミキュライトセメント固体化体
- ・ BWR濃縮廃液の高炉Cセメント固体化体

の2種類を試験体とする。

なお、 ^{14}C については、発電所から発生する実廃棄体によって試験する。

また、廃棄体の粒子密度及び間隙率についても併せて測定する。

② モルタル及びコンクリート

埋設設備設計上の計画配合条件による、モルタル及びコンクリートを試験体とする。

なお、設備を構成するモルタル及びコンクリート中のセメント成分が、初期にはアルカリ性であるものが経年的に中性化していくことが考えられる。この影響を確認するため、あらかじめ中性化させたモルタル及びコンクリートを用いた試験も行う。

③ ベントナイト混合土

次の計画配合条件のものとする。

┌	段丘堆積層	85wt%
	Na型ベントナイト	15wt%

なお、段丘堆積層は六ヶ所サイトから採取する。

④ 土壌

核種の移行経路となる土壌のうち、主たる土壌である段丘堆積層を試験体とし、六ヶ所サイトから採取する。

⑤ 岩

核種の主な移行経路となる砂岩、及び一部の移行経路となる凝灰岩の2種類を試験体とし、六ヶ所サイトから採取する。

(2) バリア材条件

試験に供する各バリア材は次のように調整する。

① 廃棄体、モルタル及びコンクリート

42メッシュアンダーの粒径に粉砕する。

② ベントナイト混合土

20メッシュアンダーの粒径に調整する。

③ 土壌

Phase-1、Phase-2とも20メッシュアンダーの粒径に調整する。

④ 岩

Phase-1、Phase-2とも20メッシュアンダーの粒径に粉砕する。

3.3 液相

(1) 液相条件

本試験におけるバリア材（固相）と接触させる液相は次のように設定する。

① 廃棄体、モルタル及びコンクリート

上記のセメント系バリア材で構成される設備内の状況は、バリア材と純水とを模擬的に接触させることによりできる液相条件にほぼ類似していると考えられる。また、設備内の廃棄体に含有される硫酸ナトリウム及びほう酸ナトリウムの溶出に伴う影響も考慮する必要があると考えられる。

(a) ^{14}C

PWR発電所の実廃棄体及び実濃縮廃液については、あらかじめ、ほう酸イオンが含まれていることから、硫酸ナトリウムのみの影響確認試験を行う。

すなわち、標準的な試験液相として、廃棄体については純水を使用し、他のバ

リア材については実濃縮廃液を使用する。なお、濃縮廃液は、0.45 μmのフィルターによって濾過した後、ボロン濃度約0.1%に希釈したものを使用する。また、影響を確認するための試験液相としては、純水または希釈した濃縮廃液を設備内で想定される最大濃度に近い条件である3%の硫酸ナトリウム濃度に調整して使用する。

また、BWR発電所から発生する実廃棄体及び実濃縮廃液による試験については、廃棄体の場合には純水を使用し、他のバリア材の場合には実濃縮廃液を0.45 μmのフィルターによって濾過した後、硫酸イオン濃度を数%に希釈したものを使用する。

(b) その他の核種

標準的な試験液相としては純水を使用し、影響を確認するための試験液相としては、設備内で想定される最大濃度に近い条件である硫酸ナトリウム濃度3%の溶液、及びボロン濃度が0.1%となるようにほう酸ナトリウムを添加した溶液を使用する。

ただし、陰イオンの化学形態で溶液に存在すると考えられる⁹⁹Tc、¹²⁹Iについては、バリア材に対する吸着性が弱く分配係数があまり大きくないこと、及び化学形態の観点から共存イオンによる影響は小さいと考えられることから、ここでは、純水による試験のみ実施する。

② ベントナイト混合土、土壌及び岩

(a) ¹⁴C

PWR発電所の実濃縮廃液を0.45 μmのフィルターによって濾過した後、ボロン濃度約0.1%に希釈したものを使用する。

(b) その他の核種

実際の環境条件を模擬するため、Phase-1 については現地地下水、Phase-2 については実サイトから採取した土壌と接触させることにより作製した模擬地下水を、それぞれ試験液相として使用する。

(2) 浸漬条件

上記の液相に固相を浸漬する際の条件は次の通りとする。

① pH

接液環境で決まるpHとする。なお、 α 核種については、模擬トレーサを添加する前の液相のpHが維持されるよう、トレーサ添加後バリア材を浸漬する前にpH調整を行う。

② 雰囲気

サイト地下水の実測から、浅地層内の大半は酸化性雰囲気と考えられることから、大気開放下で浸漬を開始し、特に雰囲気制御は行わない。

③ 温度

浸漬中の温度については、Phase-1 は常温（室温）にし、Phase-2 は10℃一定に調整する。なお、六ヶ所サイト地下水の平均温度は10℃である。

3.4 操作及び分析方法

(1) 試験操作

核種別、バリア材（廃棄体含む）別の試験操作は、次の通りとする。

なお、試験操作をフロー図として、図3-1 及び図3-2 に示す。

	廃棄体	他のバリア材*1
^{14}C	実セメント固化体の粉末を3.3で前述した液相に浸漬させ、所定時間経過後に固相濃度及び液相濃度を測定し分配係数を求める。	3.3で前述した実濃縮廃液にバリア材を浸漬させ、所定時間経過後に固相濃度及び液相濃度を測定し分配係数を求める。
その他の核種	RIトレーサを含有させた模擬固化体の粉末を3.3で前述した液相に浸漬させ、所定時間経過後に固相濃度及び液相濃度を測定し分配係数を求める。	3.3で前述したRIトレーサを含有させた液相*2にバリア材を浸漬させ、所定時間経過後に固相濃度及び液相濃度を測定し分配係数を求める。

*1) 他のバリア材 : モルタル、コンクリート、ベントナイト混合土、
土壌、岩

*2) α 核種については、バリア材を浸漬する前の液相中の核種濃度が一定になるようにトレーサを追加添加する。

(2) 接液条件

固相と液相の接液条件は次の通りとする。

① 固液比

固液比とは固相と液相の重量比であり、次のように設定する。

ただし、 ^{99}Tc 及び ^{129}I は分配係数が小さいので、測定上の観点から、固液比を大きくする。

	核種	バリア材	固液比
Phase-1	^{99}Tc 及び ^{129}I 以外の核種	土壌及び岩	1/50
	^{99}Tc 及び ^{129}I	土壌及び岩	1/5 ~2/5
Phase-2	^{99}Tc 及び ^{129}I 以外の核種	全バリア材	1/10
	^{99}Tc 及び ^{129}I	廃棄体	3/10
		上記以外	3/5

② 浸漬期間

浸漬期間はPhase-1 では2日間、Phase-2 では7日間程度とする。

(Appendix-4を参照)

(3) 固液分離条件

上記の期間浸漬した後、Phase-1 では原則的にデカンテーション（懸濁した場合5A濾紙による濾過）、Phase-2 では0.45 μm のフィルターによる濾過によって固相と液相を分離する。なお、ベントナイト混合土については、遠心分離後0.45 μm のフィルターによる固液分離も実施する。

(4) 核種濃度の分析法

① ^{14}C

(a) PWR発電所の実廃棄体及び実濃縮廃液を使用して試験した試料を測定する場合

固相試料を分析する場合、適量の純水を添加する。各試料にpHが酸性になるよう適量の酸を添加した後、十分な時間通気し、試料中の炭酸成分を揮発させる。

次に、適当量の酸化剤及び酸化触媒を添加し、加熱しながら炭酸成分以外の¹⁴Cを酸化し、十分な時間通気することにより、発生する炭酸ガスを所定の吸収液にトラップする。吸収液中の¹⁴Cの放射能濃度を、液体シンチレーション測定器により測定し、これを¹⁴Cの核種濃度とする。

(b) BWR発電所の実廃棄体及び実濃縮廃液を使用して試験した試料を測定する場合

¹⁴Cの大部分が炭酸成分であることから、炭酸成分を含んだ¹⁴Cを分析する。すなわち、上記(a)中の酸の添加により炭酸成分を揮発させる操作を実施する代わりに、酸化加熱操作を実施し、発生する炭酸ガス中の¹⁴Cの放射能濃度を測定する。

なお、(a)及び(b)とも、試験に供した実廃棄体または実濃縮廃液の初期濃度を測定し固相及び液相試料の核種濃度についての物質収支を確認する。

② その他の核種

原則的に液相試料の核種濃度のみ測定し、固相試料の核種濃度は、次のようにして求める。

廃棄体：固相濃度は、固化体作製時のR Iトレーサ添加量と浸漬後の液相濃度から計算によって求める。

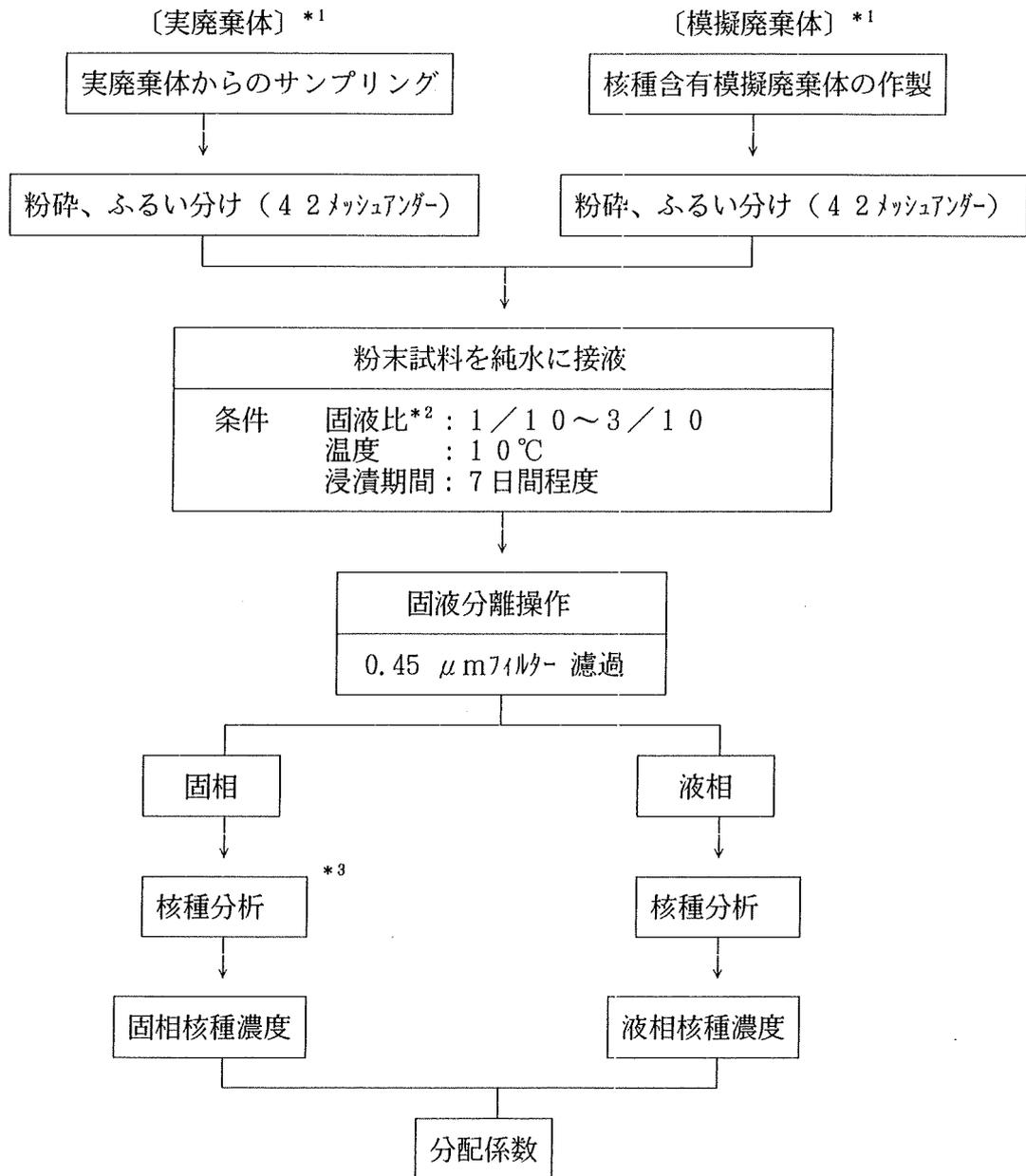
廃棄体以外のバリア材：固相濃度は、浸漬前後の液相濃度の変化量から計算によって求める。

液相試料の核種の放射能濃度は、Ge半導体検出器または液体シンチレーション測定器により測定する。

なお、濾過器具への核種の吸着に関して検討した結果をAppendix-1に示す。

図3-1 分配係数の測定法(1)

1. 廃棄体



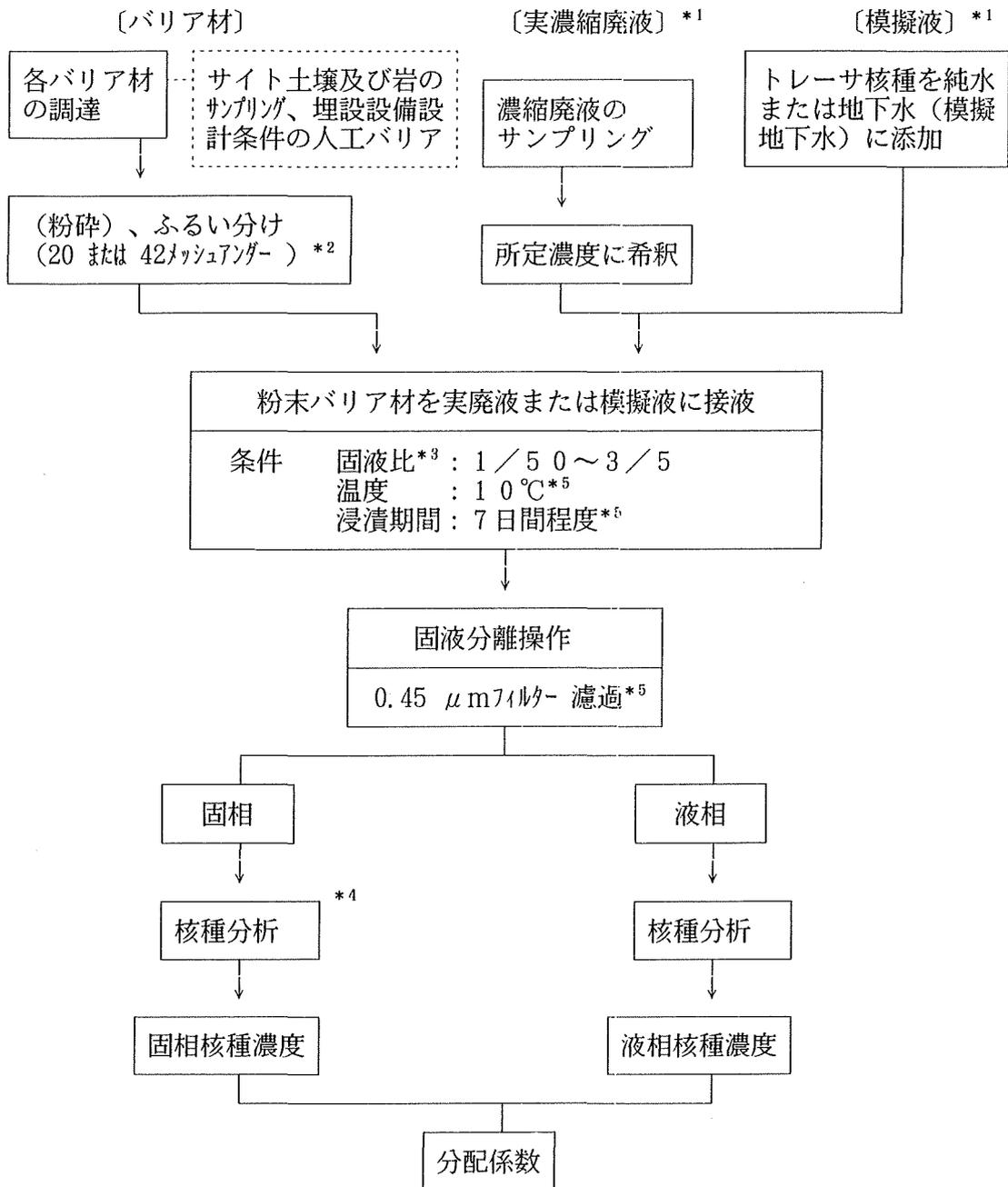
*1) ^{14}C は実廃棄体、その他の核種は模擬廃棄体

*2) ^{99}Tc 及び ^{129}I 以外は1/10、 ^{99}Tc 及び ^{129}I は3/10

*3) RIトレーサによる試験の場合、固相側の核種濃度の分析は実施せず、模擬廃棄体作製時のトレーサの添加濃度及び液相側の核種濃度から計算する。

図3-2 分配係数の測定法(2)

2. バリア材



*1) ^{14}C は実濃縮廃液、その他の核種は模擬液

*2) モルタル及びコンクリートは42メッシュアングー、ベントナイト混合土、土壌及び岩は20メッシュアングー

*3) ^{99}Tc 及び ^{129}I 以外は1/50~1/10、 ^{99}Tc 及び ^{129}I は1/5 ~ 3/5

*4) RI トレーサによる試験の場合、固相側の核種濃度は分析は実施せず、模擬液中の核種濃度及び液相側の核種濃度から計算する。

*5) Phase-1 では、温度：室温、浸漬期間：2日間、固液分離操作：原則としてデカンテーション

4. 試験結果

得られた試験結果について整理したものを表 4-1～4-2 に示す。なお、試験結果は原則として有効数字 2 桁で示す。

表 4-1①：PWR 発電所の実廃棄体及び実濃縮廃液による¹⁴Cに関する試験結果

表 4-1②：BWR 発電所の実廃棄体及び実濃縮廃液による¹⁴Cに関する試験結果

表 4-2 : ¹⁴C以外の核種に関する試験結果

なお、Phase-1 の試験結果については、Appendix-2に詳細に記述する。

また、廃棄体の粒子密度及び間隙率の測定結果については、Appendix-3に示す。

表 4-1① ¹⁴C 分配係数測定結果(PWR発電所)

分配係数[ml/g]

バリア材		液相	No. 1		No. 2		No. 3	
実廃棄体	純水		1	1.9E3, 890	1	340, 420	—	—
			2	170, 270	2	260, 210		
			3	2.0E3, 1.9E3	3	1.2E3, 790		
			4	350, 480				
			5	230				
	上記+3.0%硫酸 ソーダ		5	250, 450		—		—
モルタル	実濃縮廃液		6.2, 21		1.2		4.0, 4.8	
	上記+3.0%硫酸 ソーダ		7, 13		—		—	
中性化モルタル	実濃縮廃液		2.2, 3.8		—		—	
コンクリート	実濃縮廃液		2.3, 35		0.52		4.2, 7.8	
	上記+3.0%硫酸 ソーダ		7.2, 9.1		—		—	
中性化コンクリート	実濃縮廃液		6.8, 3.4		—		—	
バントナイト混合土	実濃縮廃液		0.5, 6.1		0.36		1.8, 1.3	
土壌	実濃縮廃液		0.6, 0.7		0.24		15.5, 21	
岩	凝灰岩		2.0, 1.1		0.61		3.2, 5.0	
	砂岩		1.5, 1.1		1.2		6.8, 8.5	

表 4-2② ¹⁴C分配係数測定結果(BWR発電所)

分配係数[ml/g]

バリア材		液相	No. 1		No. 2	
実廃棄体	純水		1	2.1E4	1	5.5E3, >6.4E3
			2	4.2E3, 5.1E3 3.0E3, 2.7E3		
モルタル	実濃縮廃液		130		120, 99	
コンクリート	実濃縮廃液		640		670, >590	

表4-2 分配係数測定結果

分配係数[m³/g]

バリア材	液相		核種								
			Co	Ni	Sr	Nb	Tc	I	Cs	Pu	Am
廃棄体	PWR	純水	1.4E4 1.5E4	1.0E5 8.3E4	45 46	—	0.58 0.76	130 120	85 80	>5.3E4 >5.3E4	4.3E4 5.2E4
		3.0%硫酸ソーダ	5.5E3 6.2E3	2.2E4 2.2E4	99 100	—	—	—	34 38	3.8E4 >5.6E4	5.2E4 3.8E4
	BWR	純水	250 250	450 450	1.9E3 1.8E3	—	830 1.2E3	2.7 2.75	4.8 5.3	>5.3E4 >5.3E4	>5.2E4 3.5E4
		0.1%ほう酸ソーダ	160 160	440 440	880 830	—	—	—	4.5 4.5	3.3E4 >5.6E4	>4.9E4 >4.9E4
モルタル	純水		4.8E3 5.1E3	3.7E3 3.8E3	29 24.5	—	0.22 0.44	0.38 0.37	130 100	>5.8E4 >5.8E4	>5.2E4 >5.2E4
	3.0%硫酸ソーダ		670 885	1.5E3 1.2E3	38 40	—	—	—	35 37	>5.3E4 >5.3E4	>6.1E4 >6.1E4
	0.1%ほう酸ソーダ		4.0E3 3.4E3	1.3E3	20.5 19	—	—	—	59 61	4.8E4 4.8E4	>5.6E4 >5.6E4
中性化モルタル	純水		1.7E3 3.6E3	510 380	81 65.5	—	0.76 0.70	0 0	770 1.0E3	1.3E4 1.1E4	>5.2E4 >5.2E4
コンクリート	純水		2.0E3 1.7E3	2.9E3 2.9E3	18 19	—	1.8 1.3	0.34 0.33	66 64	>6.1E4 >6.1E4	>7.2E4 >7.2E4
	3.0%硫酸ソーダ		160 150	420 590	33 42	—	—	—	32 34	>5.4E4 >5.4E4	>5.8E4 >5.8E4
	0.1%ほう酸ソーダ		425 410	100 62	20 4.6	—	—	—	40 52	3.7E4 3.3E4	>4.8E4 >4.8E4
中性化コンクリート	純水		4.3E3 1.1E4	880 810	110 120	—	0 0	0 0.01	850 1.1E3	4.8E4 4.6E4	6.5E4 >7.2E4
ベントナイト混合土			49 53	59 54	270 240	—	0 0	0 0	210 145	1.1E3 1.2E3	3.4E4 2.0E4
土 壤			27~ 3.3E3	6.7~ 1.9E3	7~ 880	90~ 1.6E3	0~ 10	0~ 14	140~ 1.1E4	5.9E3 2.3E3	4.8E3 5.9E3
岩	凝灰岩		80~ 4.4E3	130~ 1.9E3	21~ 9.7E3	230~ 530	0~ 0.59	0~ 0.33	300~ 1.3E4	2.4E2 2.5E2	1.8E3 1.8E3
	砂 岩		54~ 2.6E3	80~ 2.2E3	53~ 1.8E3	370~ 650	0~ 16	0~ 3.2	300~ 7.3E3	4.3E3 4.8E3	3.3E4 4.0E4

□内の試験結果はAppendix-2に詳細に記述する。

5. まとめ

各核種について測定された結果をまとめると次の通りとなる。

(1) ^{14}C

① 廃棄体

分配係数は $200 \sim 2 \times 10^3$ (ml/g) 程度となっている。

硫酸ナトリウムの共存による影響は認められない。

② モルタル及びコンクリート

モルタル及びコンクリートの分配係数は、それぞれ $1 \sim 20$ (ml/g)、 $0.5 \sim 40$ (ml/g) 程度となっている。

硫酸ナトリウムの共存及びバリア材の中性化による影響は認められない。

③ ベントナイト混合土、土壌及び岩

ベントナイト混合土、土壌及び岩の分配係数は、それぞれ $0.4 \sim 6$ (ml/g)、 $0.2 \sim 20$ (ml/g)、 $0.6 \sim 9$ (ml/g) 程度となっている。

(2) ^{60}Co

① 廃棄体

PWRの廃棄体では、 $5 \times 10^3 \sim 2 \times 10^4$ (ml/g) 程度の分配係数が、BWRの廃棄体では、 200 (ml/g) 程度の分配係数がそれぞれ得られている。

② モルタル及びコンクリート

$200 \sim 10^4$ (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

モルタル及びコンクリートとも、硫酸ナトリウムの共存による影響が認められる。

③ ベントナイト混合土、土壌及び岩

$30 \sim 4 \times 10^3$ (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

(3) ^{63}Ni (^{59}Ni)

① 廃棄体

PWRの廃棄体では、 $2 \times 10^4 \sim 10^5$ (ml/g) 程度の分配係数が、BWRの廃棄体では、 400 (ml/g) 程度の分配係数がそれぞれ得られている。

② モルタル及びコンクリート

60 ~ 4×10^3 (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

モルタルについては中性化による影響が、またコンクリートについてはほう酸ナトリウムの共存による影響がそれぞれ認められる。

③ ベントナイト混合土、土壌及び岩

10 ~ 2×10^3 (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

(4) ^{90}Sr

① 廃棄体

PWRの廃棄体では、50~100 (ml/g) 程度の分配係数が、BWRの廃棄体では、 10^3 ~ 2×10^3 (ml/g) 程度の分配係数がそれぞれ得られている。

② モルタル及びコンクリート

5 ~ 100 (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

③ ベントナイト混合土、土壌及び岩

10 ~ 10^4 (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

(5) ^{94}Nb

土壌及び岩に対して、100 ~ 2×10^3 (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

(6) ^{99}Tc

① 廃棄体

PWRの廃棄体では、0.6 ~ 0.8 (ml/g) 程度の分配係数が、BWRの廃棄体では、 10^3 (ml/g) 程度の分配係数がそれぞれ得られている。

② モルタル及びコンクリート

0 ~ 2 (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

③ ベントナイト混合土、土壌及び岩

0 ~ 20 (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

(7) ^{129}I

① 廃棄体

PWRの廃棄体では、 100 (ml/g) 程度の分配係数が、BWRの廃棄体では、 3 (ml/g) 程度の分配係数がそれぞれ得られている。

② モルタル及びコンクリート

$0 \sim 0.4\text{ (ml/g)}$ 程度の分配係数が得られている。

③ ベントナイト混合土、土壌及び岩

$0 \sim 10\text{ (ml/g)}$ 程度の分配係数が得られている。

(8) ^{137}Cs

① 廃棄体

PWRの廃棄体では、 $30 \sim 90\text{ (ml/g)}$ 程度の分配係数が、BWRの廃棄体では、 5 (ml/g) 程度の分配係数がそれぞれ得られている。

② モルタル及びコンクリート

$30 \sim 10^3\text{ (ml/g)}$ 程度の分配係数が得られている。

③ ベントナイト混合土、土壌及び岩

$100 \sim 10^4\text{ (ml/g)}$ 程度の分配係数が得られている。

(9) ^{238}Pu

① 廃棄体

PWRの廃棄体、BWRの廃棄体ともに、 10^4 以上の分配係数が得られている。

② モルタル及びコンクリート

モルタル及びコンクリートともに 10^4 以上の分配係数が得られている。

③ ベントナイト混合土、土壌及び岩

ベントナイト混合土については、 10^3 (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

土壌については、 $2 \times 10^3 \sim 6 \times 10^3\text{ (ml/g)}$ 程度の分配係数が得られている。

砂岩については、 $4 \times 10^3\text{ (ml/g)}$ 程度の分配係数が得られている。

(10) ^{241}Am

① 廃棄体

PWRの廃棄体、BWRの廃棄体ともに、 10^4 以上の分配係数が得られている。

② モルタル及びコンクリート

モルタル及びコンクリートともに 10^4 以上の分配係数が得られている。

③ ベントナイト混合土、土壌及び岩

ベントナイト混合土及び砂岩については、 10^4 (ml/g) 以上の分配係数が得られている。

土壌については、 5×10^3 (ml/g) 程度の分配係数が得られている。

Appendix-1

使用する器具への吸着性に関する検討

め、濾過の影響は無関係である。

分配係数測定と同じ条件になるように ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、及び ^{99}Tc をそれぞれ模擬地下水で185Bq/mlに調液し、これを $0.45\mu\text{m}$ のメンブランフィルターで濾過して濾過前後の液相中核種濃度を分析することによって、濾紙及び濾過器具への核種の吸着を検討した。さらにもっとも影響があることが懸念された ^{137}Cs については、模擬地下水以外に健全なコンクリートもしくは健全なモルタルとイオン交換水を混合攪拌した時の上澄液も試験溶液として同じ操作を実施した。このとき用いた濾過器具はガラス製である。結果は、濾過前後で液相溶液中の核種濃度は変化しないことを示しており、いずれの核種においても濾紙及び濾過器具への吸着は無視できるものとして評価した。

通常ガラスの表面はわずかであるが負に帯電し、陽イオン形の核種は吸着するとされている。しかしこの影響度は溶液のイオン強度に依存し、イオン強度が高い場合には影響度は低くなる。ここで用いた模擬地下水もしくはコンクリートやモルタルとの混合攪拌により得られる溶液の液性は、濾過器具への吸着が無視できる程度のイオン強度であったと考えられる。

1. ^{14}C

^{14}C については、試験に供した実廃棄体及び実濃縮廃液の初期濃度を測定するとともに、浸漬終了後の試料を全量濾過して固相及び液相の核種濃度も測定している。これにより試験開始前と試験終了後の核種量の物質収支を調べ、試験器具への吸着は、ほとんど無視できることを確認した。

2. α 核種

濾過時における濾紙への吸着とテフロン容器への吸着が分配係数を求めるときに問題となると考えられるので、この2つの吸着について評価した。

(1) 濾紙への吸着

濾紙への吸着を調べるために濾過法により得られた分配係数と遠心分離法による分配係数を比較した。人工バリア材のうちBWRの廃棄体とモルタルを、また天然バリア材のうち土壌を用いた。バリア材のうちBWRの廃棄体は純水に、モルタルはトレーサを添加した純水に、土壌はトレーサを添加した模擬地下水に浸漬した。浸漬後のサンプルをミリポアフィルターで全量濾過し、濾液中のトレーサを定量し分配係数を求めた。また同様に浸漬した試料を全量遠心分離で固液分離後、上澄液のトレーサを定量し、分配係数を求めた。濾過法と遠心分離法ではほぼ同じ分配係数が得られたため、分配係数を求めるときに問題となるほどの濾紙への吸着はないものと評価した。

(2) テフロン容器への吸着

テフロン容器への吸着を評価した。(1)と同じバリア材と浸漬液で浸漬した試料の濾過分離に用いた容器を硝酸で洗浄し、洗浄液中のトレーサを求めた。得られた核種量を容器に吸着した核種量とみなした。容器の吸着量はすべて検出限界以下であり、分配係数を求めるときに問題となるほどの大きな吸着はないものと評価した。

3. RI核種

RI核種の分配係数を測定する際、測定容器壁、溶液濾過器具、濾紙等への核種の吸着が結果に影響を与える可能性がある。このうち測定容器壁への吸着については分配係数測定時に参照用のブランク試料を用いるという操作を行うことによって影響を排除している。ここでは、採取した試料を分析する前に実施する濾過時の影響に着目した。なお、Phase-1の測定では基本的に濾過をせず上澄液をそのまま採取して分析しているた

Appendix-2

試験結果 (Phase-1)

Phase-1 では天然バリア材を重点的に測定を実施した。対象とした天然バリア材は、土壌1種類（段丘堆積層）、岩2種類（軽石凝灰岩層、粗粒砂岩層）の3種類である。また核種としては、Co(^{60}Co)、Ni(^{63}Ni)、Sr(^{85}Sr 、 ^{90}Sr)、Nb(^{95}Nb)、Tc(^{99}Tc)、I(^{125}I)、Cs(^{137}Cs)を用いた。

測定結果のうち比較的高い分配係数を示したCo、Ni、Sr、Nb、及びCsの5核種については表A2-1に、比較的低い値を示したTc及びIの2核種については表A2-2に示した。表中に示した結果は、測定値を直接統計処理もしくは常用対数に変換して処理し、平均値及び標準偏差で示した。なお、Tc及びIについては0.00という分配係数が得られた場合があり、このままでは常用対数処理ができないので、一旦遅延係数(Rf)に換算してから統計処理を行い、結果を逆変換した。変換にあたっては $Rf=1+(1-\epsilon)/\epsilon \cdot \rho \cdot Kd$ の関係を適用し、用いた間隙率(ϵ)及び粒子密度(ρ)の値は表A2-3に示した。

また、図A2-1～A2-3は各バリア材ごとの測定値をヒストグラムで示したものである。表示にあたっては分配係数を常用対数に変換した値を用い、ヒストグラムの刻み巾は一律0.25とした。測定件数が多い場合には正規分布に近い分布をしている。

表 A2-1 Phase-1 分配係数測定結果 (陽イオン形核種)

バリア材	核種	測定 件数	分配係数測定結果 (ml/g)			
			直接処理* ¹	常用対数処理* ²	最小値～最大値	
土壌	Co	82	497 ± 527	295 (2.47±0.47)	27 ~ 3300	
	Ni	30	416 ± 449	240 (2.38±0.49)	6.7~ 1900	
	Sr	82	130 ± 150	75.9(1.88±0.47)	7 ~ 880	
	Nb	10	347 ± 441	214 (2.33±0.38)	90 ~ 1600	
	Cs	82	2250 ± 2250	1410 (3.15±0.43)	140 ~11000	
岩	凝灰岩	Co	264	1160 ± 780	912 (2.96±0.32)	80 ~ 4400
		Ni	152	450 ± 290	380 (2.58±0.24)	130 ~ 1900
		Sr	264	740 ± 1080	355 (2.55±0.53)	21 ~ 9700
		Nb	10	376 ± 115	355 (2.55±0.14)	230 ~ 530
		Cs	264	2290 ± 1590	1860 (3.27±0.28)	300 ~13000
	砂岩	Co	141	810 ± 548	631 (2.80±0.35)	54 ~ 2600
		Ni	81	649 ± 455	525 (2.72±0.29)	80 ~ 2200
		Sr	141	323 ± 245	257 (2.41±0.27)	53 ~ 1800
		Nb	5	494 ± 95	490 (2.69±0.08)	370 ~ 650
		Cs	141	1810 ± 1260	1480 (3.17±0.27)	300 ~ 7300

*¹平均値±1標準偏差で表示した。

*²平均値(対数平均値±1対数標準偏差)で表示した。ただし計算にあたって0.00は除外した。

表 A2-2 Phase-1 分配係数測定結果（陰イオン形核種）

バリア材	核種	測定 件数	分配係数測定結果 [ml/g]			
			直接処理* ¹	常用対数処理* ²	最小値～最大値	
土壌	Tc	12	1.82 ± 3.08	0.82 (3.72: 0.57±0.43)	0.00 ~ 10.2	
	I	12	1.31 ± 3.66	0.30 (2.00: 0.30±0.49)	0.00 ~ 13.8	
岩	凝灰岩	Tc	12	0.23 ± 0.18	0.21 (1.48: 0.17±0.12)	0.00 ~ 0.586
		I	12	0.06 ± 0.11	0.05 (1.12: 0.05±0.08)	0.00 ~ 0.331
	砂岩	Tc	12	1.95 ± 4.34	0.53 (2.82: 0.45±0.54)	0.00 ~ 16.0
		I	12	0.39 ± 0.86	0.17 (1.58: 0.20±0.32)	0.00 ~ 3.17

注)Kd=0.00を統計処理に組み込むため、一旦 $Rf = \frac{1}{\epsilon} + (1 - \epsilon) / \epsilon \cdot \rho \cdot Kd$ で変換し、結果を逆変換した。計算に用いた ϵ 及び ρ は表 A2-3 に示した。

*¹ 平均値 ± 1 標準偏差 で表示した。

*² 平均値 (Rfの平均値 : Rfの対数平均値 ± 1 対数標準偏差) で表示した。

表 A2-3 計算に用いた間隙率及び粒子密度

バリア材		間隙率 (ϵ , [-])	粒子密度 (ρ , [g/cm ³])
土壌		0.45	2.7
岩	凝灰岩	0.52	2.5
	砂岩	0.44	2.7

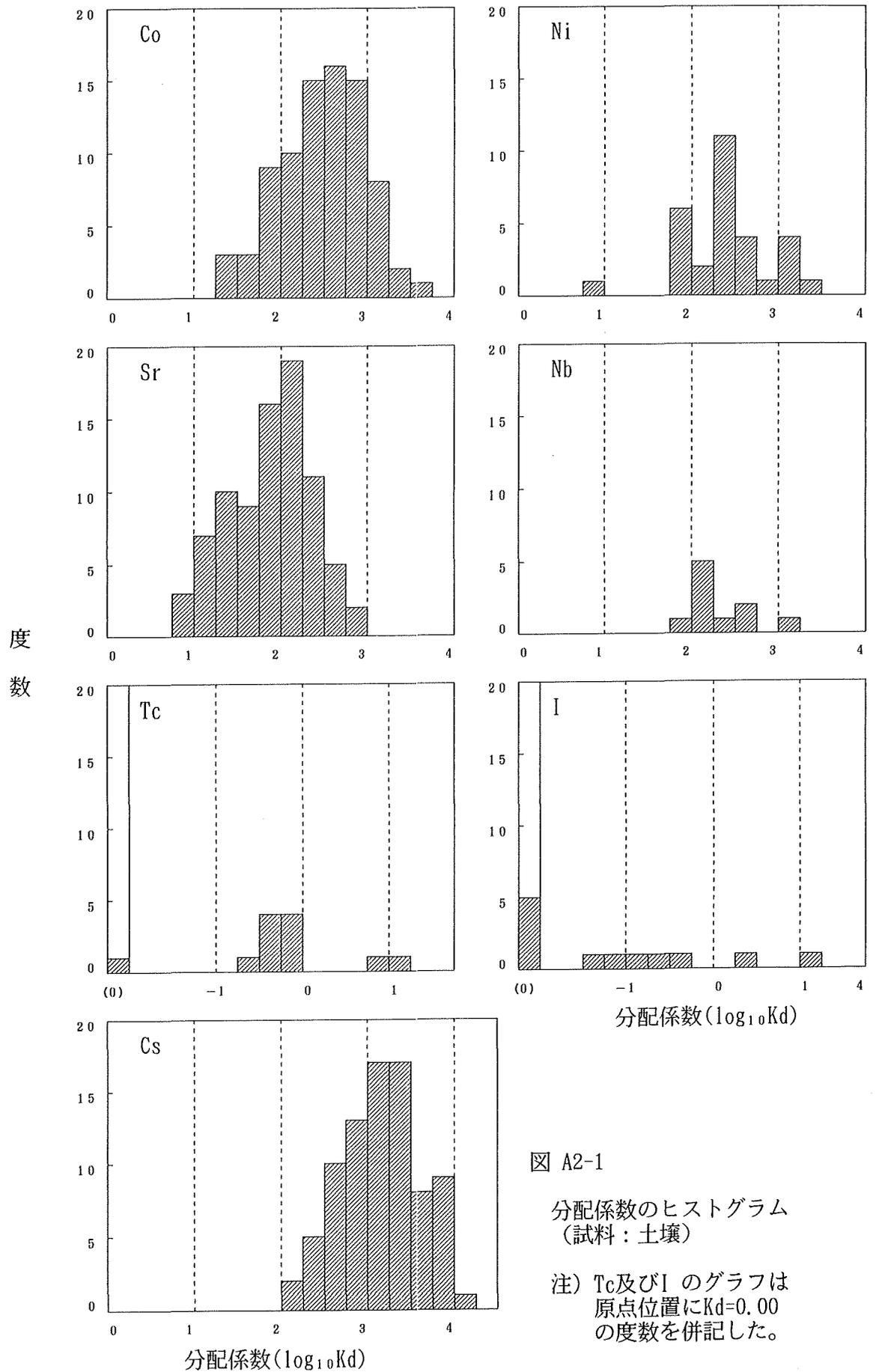


図 A2-1

分配係数のヒストグラム
(試料：土壌)

注) Tc及びI のグラフは
原点位置に $K_d=0.00$
の度数を併記した。

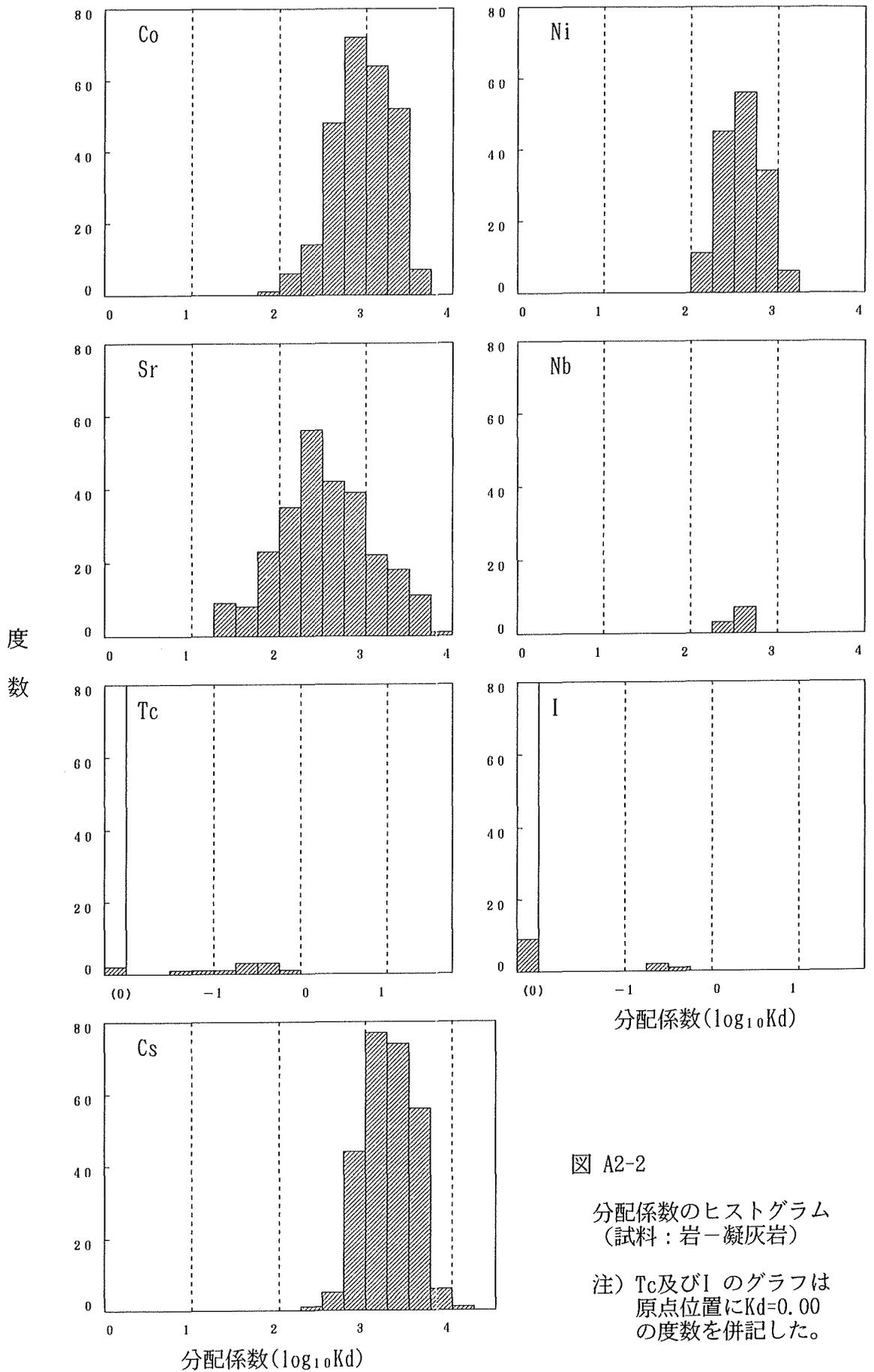


図 A2-2

分配係数のヒストグラム
(試料: 岩-凝灰岩)

注) Tc及びI のグラフは
原点位置に $K_d=0.00$
の度数を併記した。

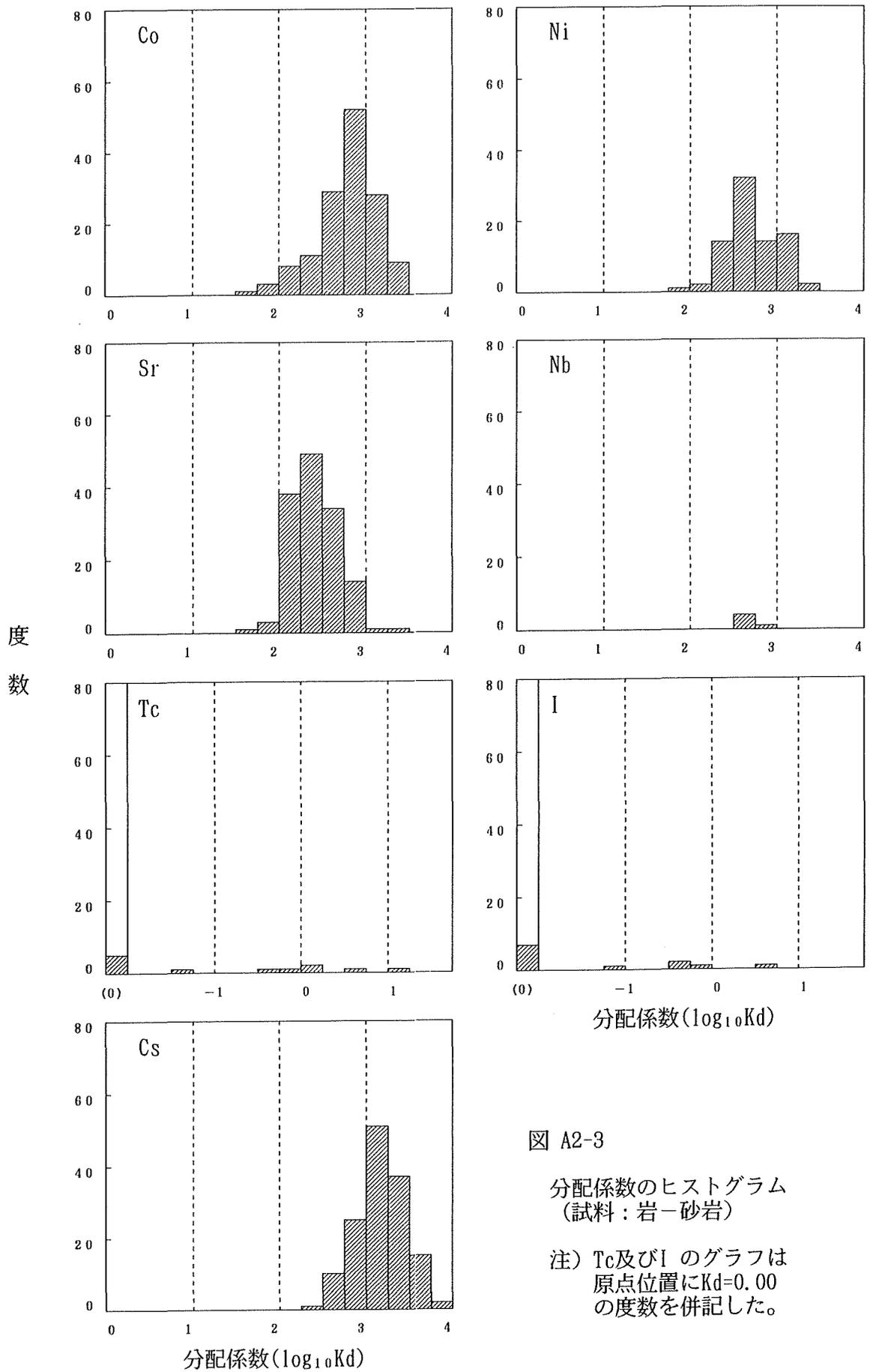


図 A2-3

分配係数のヒストグラム
(試料：岩-砂岩)

注) Tc及びI のグラフは
原点位置に $K_d=0.00$
の度数を併記した。

Appendix-3

廃棄体の粒子密度及び間隙率の測定

廃棄体の粒子密度と間隙率を以下のようにして測定した。

(1) 測定法

粒子密度：He気相置換法

既知容積の容器に粉体試料を入れ、Heで加圧した後、既知容積の容器に連結させる。気体の膨張により圧力が変わり、圧力、体積測定値から試料の真体積が求まる。試料重量と真体積から真比重を求める。

間隙率：水銀圧入法

乾燥試料を所定測定セルに充填し、50 mmHg以下に真空引きする。水銀をセル内に導入する。ここまでの試料重量、水銀重量、セル体積値からかさ密度が求まる。次に加圧しながら水銀を圧入し、その浸入量を測定する。この場合、60 Å以下の空隙には水銀は浸入しない。これら測定値から間隙率を求める。

(2) 測定対象

- ・ BWR濃縮廃液／高炉Cセメント
- ・ PWR濃縮廃液／バーミキュライトセメント

(3) 測定結果

廃棄体種類	粒子密度 [g/cm ³]	間隙率 [-]
BWR濃縮廃液／高炉Cセメント	2.46	0.32
PWR濃縮廃液／バーミキュライトセメント	2.40	0.21

Appendix-4

浸漬時間に関する検討

本試験においては、固相の粒径を比較的細かく調整しているため（42または20メッシュ以下）、平衡到達に要する時間は短いものと考えられる。

廃棄体を除くバリア材の分配係数測定試験は、液相から固相への吸着平衡反応であるため、たとえ浸漬時間が短く分配平衡到達前の過渡状態にあったとしても、得られる分配係数は安全側の小さな値を与えることになる。また、平衡到達後、長時間の浸漬によるバリア材の劣化による影響については、人工バリア材では中性化した試料により別途試験していること、天然バリア材では実際のサイトから採取した試料及び現地地下水あるいは模擬地下水を用いて試験しているため変質の影響はないと想定されることから、問題ないと考えられる。

一方、廃棄体については、安全評価上重要な¹⁴C（実廃棄体による）及びα核種（模擬廃棄体による）について浸漬時間を変えて試験を行い、以下に示すようにほとんど影響ない結果が得られている。また、他の核種に比較して分配係数が大きく得られているこれら2核種について影響がないことから、他の核種についてもあらかた影響ないと予想される。

1. ¹⁴C¹⁾

2)

浸漬時間	廃棄体
18日	340, 420
48日	240

3)

浸漬時間	廃棄体
7日	310, 380
30日	430

分配係数[ml/g]

2. α 核種

(Pu)

4)

浸漬時間	PWR 廃棄体	BWR 廃棄体
7日	> 5. 3 E 4	> 5. 3 E 4
	> 5. 3 E 4	> 5. 3 E 4
30日	> 5. 3 E 4	> 5. 6 E 4

(Am)

5)

浸漬時間	PWR 廃棄体	BWR 廃棄体
7日	4. 3 E 4	> 5. 2 E 4
	5. 2 E 4	3. 5 E 4
30日	> 4. 9 E 4	> 5. 2 E 4

分配係数[m ℓ /g]

- 1) 液相は純水。浸漬時間以外の試験条件は本文3章に準じている。
- 2) 「表4-1 ①」No. 2
- 3) 別途試験を行ったサンプル
- 4) 「表4-2 Pu」のサンプル
- 5) 「表4-2 Am」のサンプル

〔各種バリア材の分配係数について〕

初 版 ; 平成元年 10月 発行

第2版 ; 平成2年 9月 発行