



# 東海低レベル放射性廃棄物埋設事業所 収着分配係数取得試験について

---

2026年5月1日

日本原子力発電株式会社



## 目次

---

1. 検証試験計画
2. 収着分配係数取得試験の対応方針
3. 今後の審査フロー及び工程

# 1. 検証試験計画(1/3)

会合日	指摘事項(要旨)
2025年 10月27日	<p>●<b>検証試験の実施</b></p> <p>PHREEQC計算では, Coは<math>\text{Co}_3\text{O}_4</math>が, Euは<math>\text{Eu}(\text{CO}_3)\text{OH}(\text{cr})</math>が, 非常に低い溶解度で沈殿する。実環境ではこれらの沈殿ではなく, より溶解度が高く, 結晶性の低い固相が沈殿する可能性がある。このため, 試験条件設定をしっかりと行い, 溶解度の<b>検証試験を実施すること</b>。            具体的には以下。</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• 純水系でCo又はEuの水溶液を調整。</li> <li>• NaOH水溶液を添加してpHを段階的に上げ, Co又はEuの濃度を確認。</li> <li>• 濃度が下がっていれば沈殿したと判断でき, 沈殿が発生するpH及び溶解度が確認できる。</li> <li>• 炭酸が入らないようにグローブボックスで試験を行うこと。</li> <li>• 沈殿の時間経過を確認すること。</li> </ul> <p>それでも無理であれば議論の上で文献設定となる。</p>

## 検証試験の目的

### ●PHREEQC計算の溶解度の検証

- グローブボックスを用いた炭酸影響がない試験環境において, Co又はEu水溶液(純水ベース)にNaOH水溶液を添加してpHを段階的に上げ, ろ過後, 各pHにおけるCo又はEuの濃度を測定することで, 沈殿の有無を確認する。
- 沈殿が発生したpH及びCo又はEu濃度について, PHREEQC計算結果(pH, 濃度, 飽和状況, 溶解度制限固相等)との比較検証・考察を行う。

# 1. 検証試験計画(2/3)

## 試験条件(案)

項目	設定条件
対象金属イオン	Co, Eu
金属イオン濃度 <sup>※1</sup>	0.1 (mmol/L), 0.001 (mmol/L)
pH調整試薬	酸: HClO <sub>4</sub> , 塩基: NaOH
支持電解質試薬 <sup>※2</sup>	NaClO <sub>4</sub> (0.1 (mol/L))
pH条件	4, 6, 8, 10, 12.5 (±0.5)
水平振とう時間 <sup>※3</sup>	(水平振とう時間確認試験にて確認)
固液分離方法	0.2 μmメンブレンフィルタ
試験容器 <sup>※4</sup>	20 ml PP容器
使用グローブボックス環境 <sup>※5</sup>	N <sub>2</sub> 雰囲気環境下

※1: 金属イオン濃度は、既往文献<sup>※6</sup>を参照し、低濃度と高濃度の2種類を設定する。

※2: pH測定には、内部液をNaClO<sub>4</sub> (0.1 (mol/L))とした複合pH電極を使用する。

※3: 検証試験前に、検証試験と同様の条件にて水平振とう時間確認試験を実施し、沈殿生成に十分な時間を確認する。  
なお、予備的にグローブボックスなしの条件で実施した試験結果について、参考資料に示す。

※4: 試験容器は数%硝酸溶液で一晩浸漬させ、使用前に純水で十分に洗浄後に使用する。

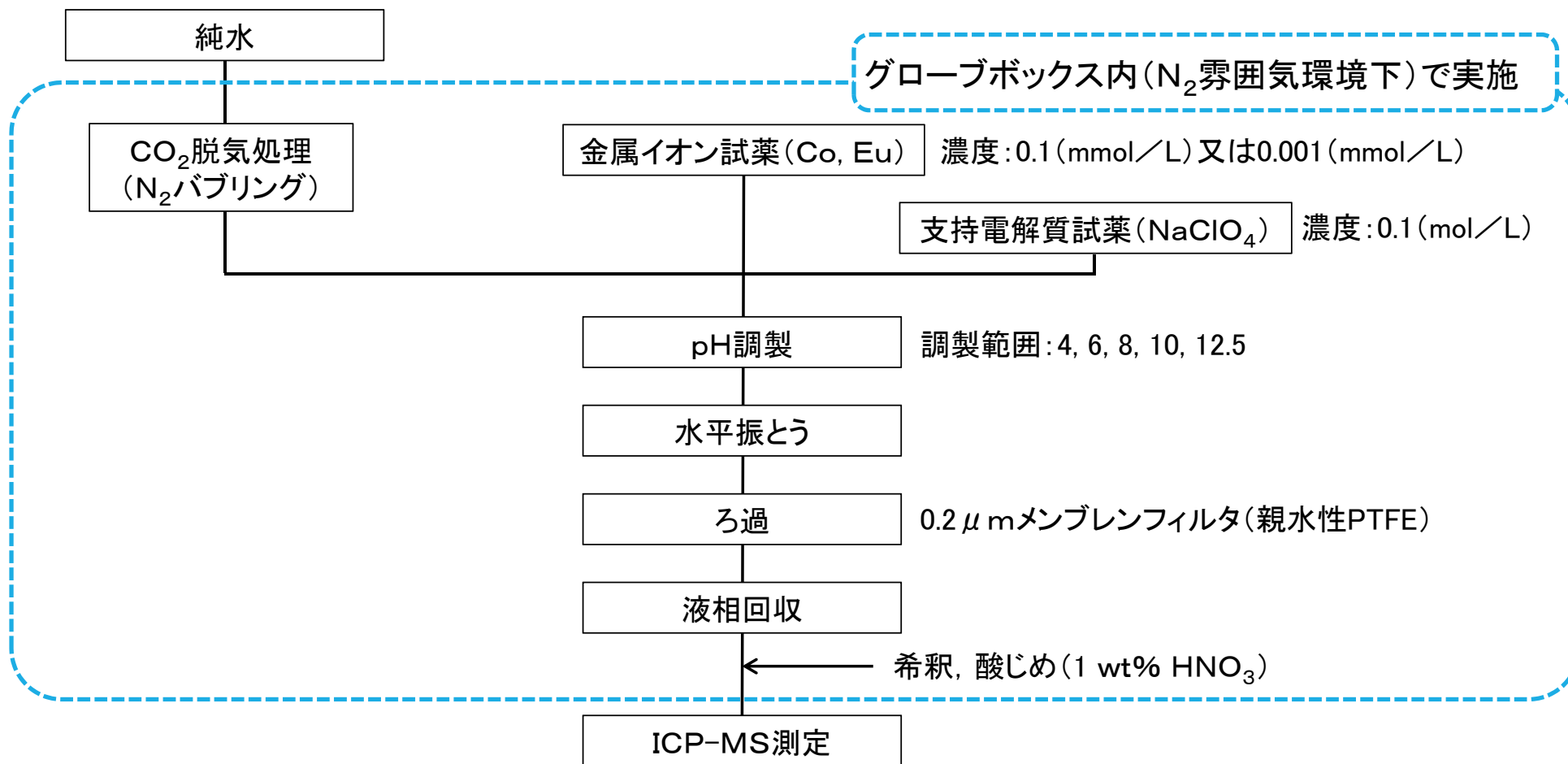
※5: N<sub>2</sub>ガスパージ並びに連続循環運転によるO<sub>2</sub>除去及び水分除去を行い、濃度計によりO<sub>2</sub>濃度を確認する。

※6: Inorganic cobalt species in seawater (B. COSOVIC, D. DEGOBBIS, H. BILINSKI and M. BRANICA)

A critical review of the solution chemistry, solubility, and thermodynamics of europium: Recent advances on the Eu(III) hydrolysis (Norbert Jordan, Tres Thoenen, Kastriot Spahiu, Jeffrey Kelling, Sebastian Starke, Vinzenz Brendler)

# 1. 検証試験計画(3/3)

## 試験フロー(案)



## 2. 収着分配係数取得試験の対応方針(1/3)

会合日	指摘事項(要旨)
2025年 4月28日	<p>ブランク試験において、初期濃度のうち大部分は沈殿してしまったと考えられる。</p> <p>以下の核種、液相において、沈殿の生成が起きていて、分配係数は信頼性のある値ではないのではないかという懸念がある。</p> <p>Co:水酸化カルシウム水溶液 Eu:現地地下水, 水酸化カルシウム水溶液 Am:現地地下水, 水酸化カルシウム水溶液, 人工海水</p> <p>試験をやり直すこと。ホット条件で試験を実施するのは無理と考えており、コールド条件で特にICP-MS(例としてAgilent8900)を用いた測定など、検出限界の低い分析で追加試験を検討すること。</p> <p>その上で、試験が難しい場合は文献値となり、文献値を精査した上で設定すること。</p>
2025年 10月27日	<p>●収着分配係数取得試験の条件</p> <p>Co及びEuについて、カルサイト共沈影響を回避した以下2ケースの収着分配係数取得試験を実施すること。</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• ケース2':弱アルカリ性条件。 飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液を空気バブリングで炭酸平衡に調整し、カルサイト共沈後の上澄み液を採取(又はフィルタろ過)し、炭酸の影響がないグローブボックス内でCo又はEuを添加することで、カルサイト共沈の影響を回避する。</li> <li>• ケース3':強アルカリ性条件。 Caイオンに起因するカルサイト生成を排除するため、Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液ではなくNaOHを用いることで、カルサイト共沈を回避する。 Coについては、PHREEQC計算結果の支配化学種がCo(OH)<sub>2</sub>(中性)、Co(OH)<sub>3</sub><sup>-</sup>(アニオン)であり、Co<sup>2+</sup>(カチオン)としての存在は小さい。このため、Ca(OH)<sub>2</sub>に由来するCa<sup>2+</sup>イオン(カチオン)とCo<sup>2+</sup>(カチオン)の交換サイトをめぐる競争は生じず、Ca<sup>2+</sup>の有無は収着に影響しない。以上を踏まえ、アルカリ性溶液として、コンクリート溶出液を想定したCa(OH)<sub>2</sub>ではなく、NaOH水溶液を用いて収着分配係数取得試験を実施しても、得られる収着分配係数に有意な差は生じないと考えられる。 安全評価では、中性とアルカリ性で収着分配係数を設定し、保守的な方を採用するため、強アルカリ性条件の収着分配係数が取得できれば、従来の方針を変えずに安全評価の説明ができる。</li> </ul>

## 2. 収着分配係数取得試験の対応方針(2/3)

### 収着分配係数取得試験の目的

●以下の試験ケース(案)における収着分配係数の取得

No.	ケース	核種	pH調整試薬	液相ベース	pH	固相	n	審査会合指摘事項への対応
1	ケース2' ※1	Co	Ca(OH) <sub>2</sub>	現地地下水	8~9程度	du層	3	Coの水酸化カルシウム水溶液での試験やり直し
2	ケース3' ※2	Co	NaOH	純水	12~13程度	du層	3	
3	ケース2' ※1	Eu	Ca(OH) <sub>2</sub>	現地地下水	8~9程度	du層	3	Eu及びAm <sup>※3</sup> の水酸化カルシウム水溶液での試験やり直し
4	ケース3' ※2	Eu	NaOH	純水	12~13程度	du層	3	
5	ケース4	Eu	—	現地地下水	—	du層	3	Eu及びAm <sup>※3</sup> の現地地下水での試験やり直し
6	ケース5	Eu	—	人工海水	—	du層	3	Am <sup>※3</sup> の人工海水での試験やり直し

※1: ケース2': 弱アルカリ性条件

実環境でのコンクリート廃棄物からの溶出水が、廃棄物層を通過する過程でCO<sub>2</sub>平衡となり、pHが低下する状況を想定する。飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液を空気バブリングでCO<sub>2</sub>平衡状態に調整し、カルサイト共沈後の上澄み液を採取(又はフィルタろ過)し、CO<sub>2</sub>の影響がないグローブボックス内でCo又はEuを添加することで、カルサイト共沈の影響を回避する。

※2: ケース3': 強アルカリ性条件

Caイオンに起因するカルサイト生成を排除するため、Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液ではなくNaOHを用いることで、カルサイトの共沈を回避する。安全評価では、現地地下水及び高pHの条件で分配係数を設定し、保守的な方を採用することに鑑み、極端な高pH条件として設定する。

※3: Amについては、化学アナログとなるEuの結果を用いて収着分配係数を設定する。

## 2. 収着分配係数取得試験の対応方針(3/3)

### 添加濃度の設定

- 収着分配係数取得試験において、イオン確認試験\*を実施し、以下の方針で、ICP-MS Agilent8900の検出限界以上、かつ、イオン沈殿が発生しない範囲の添加濃度を設定する。
  - ✓ ICP-MS Agilent8900によるCo及びEuの検出限界は1 ng/L程度となる。
  - ✓ 飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液では、共存するマトリクス成分の影響を除外するため、試験液を少なくとも1/10以上希釈する必要がある。
  - ✓ 試験液に対するCo及びEuの検出限界は0.01 μg/L(1 ng/Lの10倍)程度と想定する。
  - ✓ 試験液へのCo及びEuの添加濃度は、検出限界の0.01 μg/L程度より1桁高い0.1 μg/L及び2桁高い1 μg/Lに設定する。(1/10希釈した試験液についてICP-MS Agilent8900で10 ng~100 ng/Lの範囲内でCo及びEuの測定を試みる。)
  - ✓ 収着分配係数取得試験(本試験)では、イオン確認試験で沈殿が確認されなかった濃度条件を踏まえ、適切な添加濃度を設定する。

イオン確認試験における添加濃度(案)

対象元素	添加濃度	
Co添加濃度	0.1 (μg/L) = 1.7 × 10 <sup>-9</sup> (mol/L)	1 (μg/L) = 1.7 × 10 <sup>-8</sup> (mol/L)
Eu添加濃度	0.1 (μg/L) = 6.6 × 10 <sup>-10</sup> (mol/L)	1 (μg/L) = 6.6 × 10 <sup>-9</sup> (mol/L)

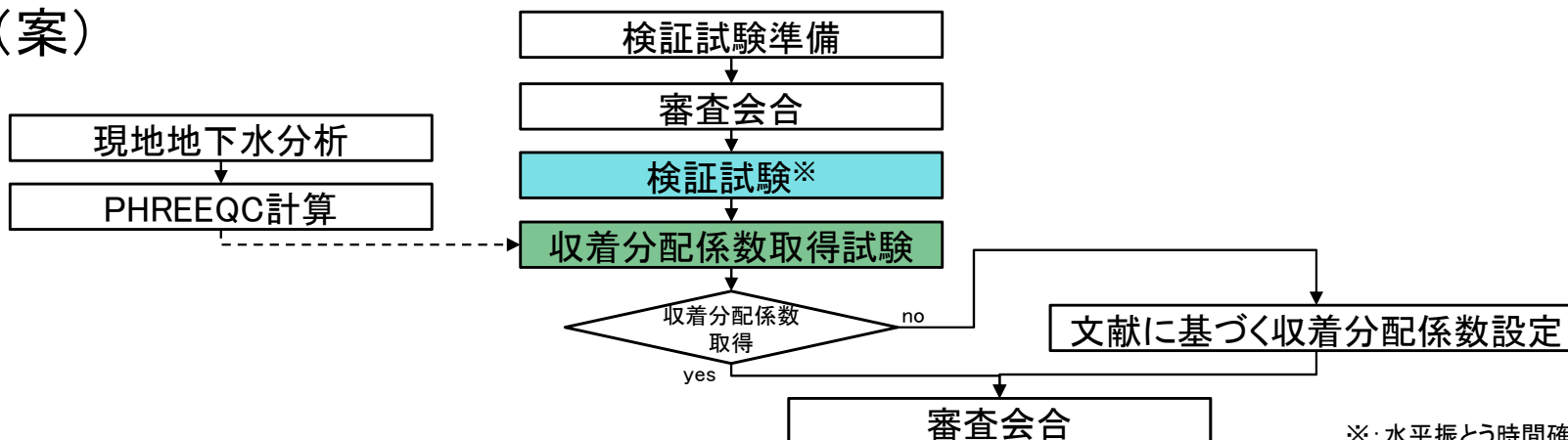
- イオン確認試験にて沈殿が確認される場合は、PHREEQC計算を行い、pH、濃度、飽和状況、溶解度制限固相等について、比較検証・考察を行う。
- 沈殿により収着分配係数取得試験が成立しないと判断される場合は、文献に基づき収着分配係数を設定する。

※:2025年に実施したイオン確認試験の内容を、参考資料に示す。



### 3. 今後の審査フロー及び工程

#### 審査フロー(案)



※: 水平振とう時間確認試験を含む。

#### 審査工程(案)

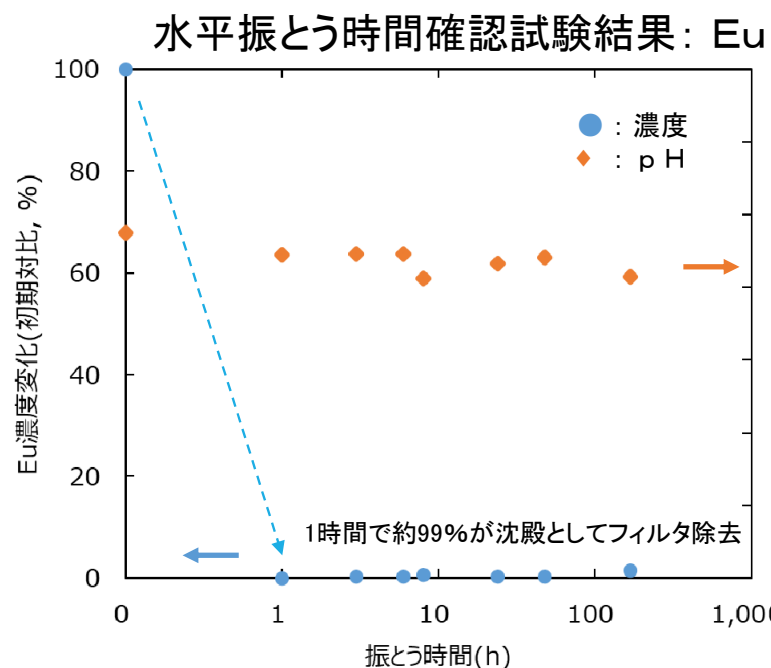
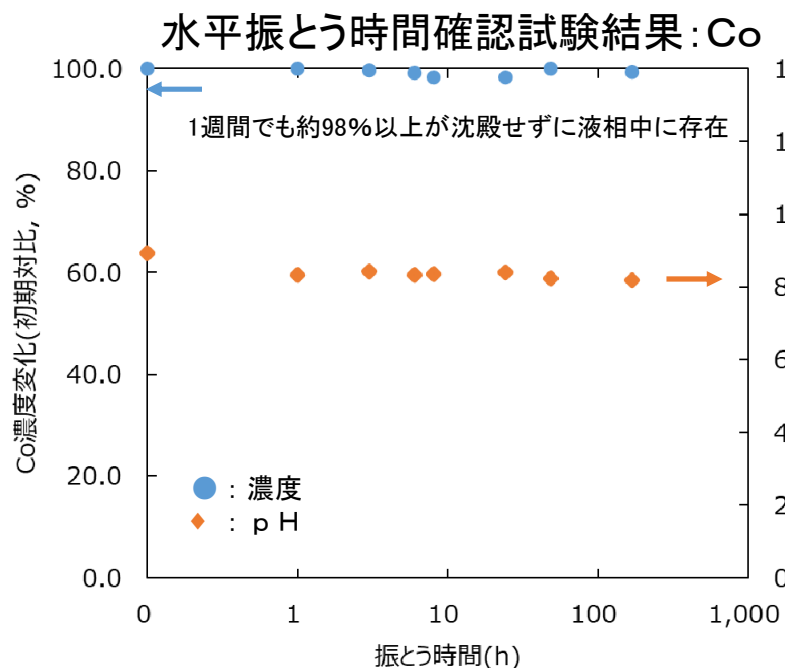
2025年度			2026年度									
1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	
検証試験準備(文献確認, ラボテスト, 試験計画作成)												
		▼ヒアリング		▽審査会合								
			▼ヒアリング		検証試験※							
						▽ヒアリング(検証試験結果の報告)						
						▽ヒアリング(収着分配係数取得試験計画の説明)						
							収着分配係数取得試験(イオン確認試験, 本試験)					
										▽ヒアリング		
										▽審査会合		
文献に基づく収着分配係数設定												
											安全評価	

- 検証試験終了後は速やかに収着分配係数取得試験を実施するとともに、検証試験の結果をヒアリングにて報告する。
- 収着分配係数取得試験にて収着分配係数が取得できないケースについては、文献に基づき分配係数を設定し、安全評価を行う。

## (参考資料) 水平振とう時間

水平振とう時間を設定するため、既往文献※を参照し、試験にて1時間から1週間の範囲で沈殿生成の時間を確認した。

試験の結果、Coの濃度に有意な変化はなかった。また、Euの濃度は1時間で大きく低下し、それ以降は有意な変化はなかった。



**【試験条件】**  
 対象金属イオン: Co, Eu  
 金属イオン濃度: 0.1 (mmol/L)  
 pH条件: 9 (水平振とう後pH8程度に低下)  
 グローブボックスなし

※: Inorganic cobalt species in seawater (B. COSOVIC, D. DEGOBBIS, H. BILINSKI and M. BRANICA)  
 A critical review of the solution chemistry, solubility, and thermodynamics of europium: Recent advances on the Eu(III) hydrolysis (Norbert Jordan, Tres Thoenen, Kastriot Spahiu, Jeffrey Kelling, Sebastian Starke, Vinzenz Brendler)



# (参考資料) 2025年10月27日審査会合説明における各ケースのまとめ

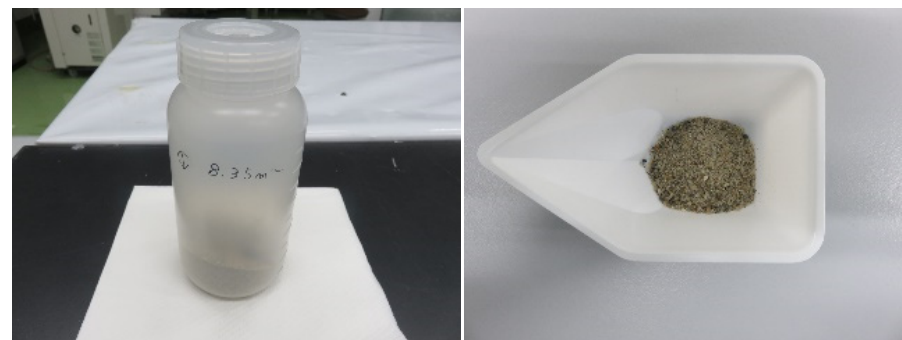
Co	条件概要	pH	検出限界(mol/L)	溶解度(mol/L)	溶解度制限固相	支配的化学種
ケース1	純水	7.0	$2 \times 10^{-11}$	$4 \times 10^{-9}$	Co <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (s)	Co <sup>2+</sup>
ケース2	飽和Ca(OH) <sub>2</sub> 水溶液	8.3	$2 \times 10^{-10}$	$2 \times 10^{-12}$	Co <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (s)	Co <sup>2+</sup> , CoCO <sub>3</sub> , Co(OH) <sup>+</sup>
ケース3	飽和Ca(OH) <sub>2</sub> 水溶液(高pH)	12.5	$2 \times 10^{-10}$	$2 \times 10^{-14}$	Co <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (s)	Co(OH) <sub>2</sub> , Co(OH) <sub>3</sub> <sup>-</sup>

Eu	条件概要	pH	検出限界(mol/L)	溶解度(mol/L)	溶解度制限固相	支配的化学種
ケース1	純水	6.8	$7 \times 10^{-12}$	沈殿なし	沈殿なし	Eu <sup>3+</sup> , Eu(OH) <sup>2+</sup>
ケース2	飽和Ca(OH) <sub>2</sub> 水溶液	8.3	$7 \times 10^{-11}$	$2 \times 10^{-10}$	Eu(CO <sub>3</sub> )(OH)(cr)	Eu(CO <sub>3</sub> ) <sup>+</sup> , Eu(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>-</sup>
ケース3	飽和Ca(OH) <sub>2</sub> 水溶液(高pH)	12.5	$7 \times 10^{-11}$	$2 \times 10^{-11}$	Eu(OH) <sub>3</sub> (cr)	Eu(OH) <sub>3</sub>

核種	Eu	条件概要	対応方針
Co	ケース2	飽和Ca(OH) <sub>2</sub> 水溶液	ICP-MS Agilent8900の検出限界以上で沈殿が発生しない試験条件を設定するのは困難であるため、 <b>文献に基づきKdを設定する。</b>
Eu	ケース2	飽和Ca(OH) <sub>2</sub> 水溶液	沈殿が発生しない条件が設定できる可能性があるため、 <b>Kd取得試験を実施する。</b> なお、Kd取得試験においては、可能な限りPHREEQC計算と同様の試験条件を設定するが、試験設備の都合等により、試験条件が変わる可能性がある。
	ケース4	現地地下水	ケース1(中性程度の条件)にて沈殿が発生しないことを踏まえれば、 $1 \times 10^{-9}$ (mol/L)程度以上の添加濃度を確保し、沈殿が発生しない条件が設定できる可能性がある。 このため、沈殿濃度の確認(PHREEQC計算)及び <b>Kd取得試験を実施する。</b> なお、PHREEQC計算においては、別途実施する現地地下水分析の結果を反映する。
	ケース5	人工海水	ケース1(中性程度の条件)にて沈殿が発生しないことを踏まえれば、 $1 \times 10^{-9}$ (mol/L)程度以上の添加濃度を確保し、沈殿が発生しない条件が設定できる可能性がある。 このため、沈殿濃度の確認(PHREEQC計算)及び <b>Kd取得試験を実施する。</b>

ICP-MS Agilent8900を用いた非放射性(コールド)条件での収着分配係数取得試験の成立性を確認するため、Co及びEuのイオン単体が定量可能な濃度を認するイオン確認試験を実施

試験No.		1		2		
項目		溶出確認		沈殿/イオン割合確認		
内容		固相(du層)からのCo, Eu溶出量の確認		Ca(OH) <sub>2</sub> 水溶液条件における添加Co, Euの沈殿/イオン割合の確認		
対象元素		<sup>59</sup> Co, <sup>153</sup> Eu		<sup>59</sup> Co, <sup>153</sup> Eu		
Co 添加濃度	(μg/L)	—		10	100	1000
	(mol/L)	—		1.7E-7	1.7E-6	1.7E-5
Eu 添加濃度	(μg/L)	—		10	100	1000
	(mol/L)	—		6.6E-8	6.6E-7	6.6E-6
固相		du層		—		
液相		純水	飽和Ca(OH) <sub>2</sub> 水溶液	飽和Ca(OH) <sub>2</sub> 水溶液		
液固比		10(50mL/5g)		—		
振とう方法		水平振とう		水平振とう		
振とう期間		12日間		3日間		
ろ過		0.45 μmフィルタ		0.45 μmフィルタ		
濃度測定		ICP-MS Agilent8900 (No Gasモード)		ICP-MS Agilent8900 (No Gasモード)		
n数		2	2	1	1	1



固相(du層砂)



振とう状況

ICP-MS Agilent8900

注)参考資料の数値情報は未確定なため、本試験の結果は参考値とし、別途評価又は試験を実施する。

### 試験No.1 溶出確認

- ① Euは純水, 飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液いずれもICP-MSで検出されず, 固相(du層)からのEuの溶出がないことを確認した。
- ② Coは純水, 飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液いずれも, ICP-MSで検出されることを確認した。
- ③ 固相(du層)を共存させていない飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液からもICP-MSでCoが検出された。
- ④ 飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液でCoが検出された要因は以下が考えられる。
  - Ca(OH)<sub>2</sub>試薬に含有する不純物Coのコンタミネーションの影響
  - Caは4種類の安定同位体※<sup>1</sup>が天然に存在しており, そのうち<sup>43</sup>Caが<sup>16</sup>Oと結合してCaO(質量数:59)を生成することで, ICP-MSの測定において<sup>59</sup>Coと干渉している影響※<sup>2</sup>

※1: <sup>40</sup>Ca(97%), <sup>42</sup>Ca(0.65%), <sup>43</sup>Ca(0.14%), <sup>44</sup>Ca(2.1%)

※2: <sup>44</sup>Ca+<sup>16</sup>O(質量数:60)についてもICP-MS測定で干渉していることを確認



ICP-MSの定量下限濃度及び飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液のバックグラウンドを超える条件(液相濃度:> 10 μg/L)において添加したCo, Euがイオンとして存在できれば, コールド条件でも分配係数取得試験を成立させることができる可能性も想定し, 試験No.2を実施した。

### 試験No.2 沈殿/イオン割合確認

- ① Coを添加した飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液の反応後のCoイオン濃度は, 試験No.1で確認したバックグラウンド相当まで低下してしまうことを確認した。
- ② Euを添加した飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液の反応後のEuイオン濃度は, ICP-MSの定量下限値未満まで低下してしまうことを確認した。



飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液の液相条件では, ICP-MSの定量下限濃度及び飽和Ca(OH)<sub>2</sub>水溶液のバックグラウンドを超える濃度でCo, Euを添加しても沈殿が生成して0.45 μmフィルタのろ過で除去されてしまうため, 現状のICP-MSのコンディションではイオンのCo, Eu測定が困難。

注) 参考資料の数値情報は未確定なため, 本試験の結果は参考値とし, 別途評価又は試験を実施する。