

JAERI-M  
86-070

模擬高レベル廃棄物ガラス固化体の  
低流速浸出試験

1986年4月

清水 勇\*・上蘭 裕史

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）  
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城  
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.  
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department  
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1986

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 日立高速印刷株式会社

模擬高レベル廃棄物ガラス固化体の低流速浸出試験

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

清水 勇\*・上蘭 裕史

(1986年4月3日受理)

模擬高レベル廃棄物ガラス固化体の人工地下水中等での低流速浸出試験を行った。試験は主にMCC-4法に従って行い、流速は0.1, 0.01, 0.001ml/min.の3通りに設定した。温度は70℃, 浸出時間は28日までとした。

ガラス固化体の浸出量は一般に流速が高くなるほど多くなった。流速ゼロの静的浸出試験では、流速0.001ml/min.の場合と比較して浸出量が多い場合があり、特に浸出液のpHが上昇しやすい場合にこの傾向を認めた。

Na, B, Cs等の浸出量は一般にSiの浸出量より多くなり、低流速浸出試験でもSi-richの表面層の生成が考えられた。

使用した浸出液の中で、人工地下水は低い浸出率を与える傾向があり、浸出液中のイオンの効果が無視できないと思われた。又本実験の人工地下水中で浸出させたガラス固化体の表面変化は、別に行った実地下水中での変化とよく似ていることがわかった。

---

東海研究所：〒319-111茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

\* 東海大学学生研究生、現在 日本原子力研究所東海研究所保健物理部

Leaching Behavior of Simulated High-Level  
Waste Glass in Flowing Water

Isamu SHIMIZU\* and Hiroshi KAMIZONO  
Department of Environmental Safety Research,  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received April 3, 1986)

Simulated high-level waste glass was leached at 70°C for 28 days in various kinds of water by the MCC-4 flow leach test method and the MCC-1 static leach test method. One kind of water used was synthesized groundwater containing the cations of  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  and  $\text{Na}^+$ , and the anions of  $\text{HCO}_3^-$  and  $\text{SO}_4^{2-}$ . The other kinds of water were those containing the only one or two of the ions cited above. A leach test in deionized water was also carried out as a reference. The flow rates in the MCC-4 method were 0.1, 0.01 and 0.001 ml/min which correspond to those expected in natural geological formations.

The results obtained were summarized as follows:

(1) The normalized elemental mass loss (NL) for elements studied tended to increase with increasing flow rate. (2) The values of NL by the MCC-1 method were larger in the case of deionized water than those obtained by the MCC-4 method at the slowest flow rate of 0.001 ml/min. (3) The values of NL for Na, Cs and B tended to be larger than those for Si, indicating the formation of Si-rich surface layers, except in the case of the fastest flow rate of 0.1 ml/min. (4) The values of NL obtained in synthesized groundwater were generally smaller than those of other leachants studied, and the surface of the specimen leached in synthesized groundwater was

---

\* Tokai University, Student Researcher

similar to that leached in natural groundwater when observed by a scanning electron microscope.

Keywords; High-Level Waste, Glass Waste Form, Leachability, Dynamic Leach Tests, MCC-4, Synthesized Groundwater, Geologic Disposal

目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 実 験 .....	2
3. 結果と考察 .....	5
4. 結 語 .....	10
謝 辞 .....	10
文 献 .....	11
付 録 .....	13
図 表 .....	22

Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental .....	2
3. Results and Discussion .....	5
4. Conclusions .....	10
Acknowledgment .....	10
References .....	11
Appendixes .....	13
Tables and Figures .....	22

## 1. 緒 言

使用済核燃料の再処理から発生する高レベル廃液中の放射性核種は、漏洩や移行を防ぐために固化され、安定な地層中に封じ込めて隔離し、処分することが考えられている。現在では、ホウケイ酸ガラスとして固化することが有力である。

この固化体は、数十年の貯蔵期間をへて地層処分することが計画されている<sup>(1)</sup>。地層中に処分した固化体が、地下水と接触すると、固化体中の放射性核種は溶け出し、地下水と共に生物圏に運ばれる。

地層中の地下水の流れは、数百ℓ/年から数ℓ/年と広範囲に渡っており<sup>(2)</sup>、固化体の浸出現象にも影響を与えられている。従って、流水中の固化体の浸出現象を調べることは、安全評価上非常に重要となってくる。

ガラス固化体の浸出挙動を研究するために、浸出試験が行われる。浸出試験には数多くの方法があり、かつ数多くの因子があって、それらが測定結果に影響を及ぼす。今日では、浸出試験の結果を世界各国で比較検討できるように、様々な標準的試験方法が提案されている<sup>(3)(4)</sup>。

標準的な試験は、静的試験と動的試験に分けることができる。静的試験は、ガラス固化体を浸出液中に漬けておくという簡便なものである。代表的なものにMCC-1<sup>(4)</sup>と呼ばれる試験がある。一方、動的試験では、浸出液が連続的または周期的に取替えられる。1980年頃に、ColesやStrachanは、浸出液の組成や浸出液の流量を変化させた動的試験を行った<sup>(5)(6)</sup>。その後、MCC-4<sup>(4)</sup>と呼ばれる標準試験法を使った実験結果も幾つか報告されている<sup>(7)</sup>。

ガラス固化体の浸出に関する研究は、現在まで数多く行われているが、地下水を使った実験あるいは流水中での実験は少い。我々は、MCC-1とMCC-4の方法を参考にして、28日間の浸出試験を行い、人工地下水を用いた流水中と静水中でのガラス固化体の浸出挙動を比較し、検討した。

## 2. 実 験

### 2.1 装 置

図1がMCC-1の浸出試験装置である。一定の温度に保たれた恒温槽内に、浸出液（約50ml）とガラス固化体を入れた浸出容器を設置する。

図2がMCC-4の浸出試験装置である。貯蔵タンクに浸出液を入れておき、この浸出液をぜん動型のポンプによって恒温槽内の浸出容器（ガラス固化体と約37mlの浸出液が入る）の中へ送り込み、サイホンの原理によって浸出液を浸出容器の外へ送り出し、回収タンクに浸出液を溜める。

試験に用いた浸出容器（容量約60ml）、試料支持台、配管には、PFAテフロンを用いた。貯蔵タンク及び回収タンクには、ポリエチレン瓶を用いた。

### 2.2 条 件

恒温槽は25℃～200℃の範囲をカバーできるものを使用した。この時の温度分布は、恒温槽内の四隅の上中下、合計12点で測定した。試験期間中浸出容器は温度分布が70℃±1℃以内に保たれる範囲に設置した。

MCC-4では、ぜん動型のポンプを用いて3通りの流量を設定した。3通りの流量は、約0.1ml/min、約0.01ml/min、約0.001ml/minとした。このポンプは、指定した流量が±10%で可変できるものを使用した。流量の調節は、回収タンクに溜る浸出液を7日間に3回の重量測定をすることによって行った。

### 2.3 方 法

浸出液中の元素を分析するため、また固化体表面の観察をするために、浸出液と固化体のサンプリングを行う。

MCC-1では浸出容器を8個用いて、浸出液と固化体を3日目に1個、7日目に1個、14日目に2個、28日目に2個サンプリングした。ガラス固化体を入れてないブランク試験も行い、浸出液を28日目に2個サンプリングした。

MCC-4では浸出容器を9個用いた。3通りの流量に対し、浸出試験では各2個、またブランク試験では各1個用意した。ガラスと接触した後の浸出液とブランク試験に用いた浸出液は、7日目、14日目、21日目、28日目にサンプリングした。28日目には、ガラス固化体も取出した。

MCC-1、MCC-4共にサンプリングした浸出液は、pH測定用と元素分析用にわけた。また、ガラス固化体は、高純水中で約5秒間すすいだ後、自然乾燥させた。



MCC-1では、浸出容器内の浸出液のpHを測定した。MCC-4では、回収タンク内の浸出液のpHを測定した。但し、MCC-4の流量0.001ml/minのpH測定は、28日後の浸出容器内の浸出液のpHを測定した。

## 2.4 試料

試験に用いたガラス試料は、日本原子力研究所が作製したJW-D（表1）という非放射性の模擬廃棄物を含む試料である。ガラスの主成分は、ホウケイ酸ガラスを基にしているため、ケイ素、ホウ素等が多く含まれている。

模擬されている高レベル廃棄物は、ベータマン法による核種の生成崩壊解析コード（DCHA IN）により、使用済み核燃料（33,000MWD/T・UO<sub>2</sub>）の再処理から発生する核分裂生成物とアクチノイド元素、混入化学物質等を推定した結果から決められたものである<sup>(8)</sup>（放射性核種の存在量は再処理後5年経過した時点）。

テクネチウム、プロメチウムは、同一族に属するマンガン、ネオジウムで模擬されている。アクチノイド元素は、希土類元素中で原子配置やイオン半径、酸化物の構造において類似しているセリウムで模擬されている。

ガラス固化体の形状は1cm×1cm×1cmであり、表面は酸化セリウムの微粉末で鏡面研磨されている。

## 2.5 浸出液

実験に用いた浸出液は、蒸留水をイオン交換し、比抵抗が $10^{-18}\Omega\cdot\text{cm}$ である高純水を用いた。この高純水に実地下水の成分（表2）を参考にして、ナトリウムイオン、カルシウムイオン、マグネシウムイオン、炭酸イオン、硫酸イオン、を実地下水の濃度の平均値の半分にして加えたものを人工地下水（付録参照）とした。

濃度を半分にした理由は、予備的な試験において、人工地下水中に析出物が現れたために、MCC-4に用いた配管がつまる恐れがあると考えられたからである。また、硫酸、水酸化カルシウム、硫酸カルシウム、トリス、ヒドロキシメチル・アミノメタン（THAM）をそれぞれ加えたものも浸出液とした。濃度は、実地下水とほぼ同じにした。

pHは、高純水を除いて7～8に調整した。調整に用いた試薬は、硫酸水、人工地下水、THAM水に対してはTHAM、また水酸化カルシウム水に対しては、水酢酸である。

## 2.6 分析および使用装置

浸出後の浸出液中のナトリウム、セシウムに対しては、原子吸光分析装置（Atomic Absorption Spectroscopy: AAS）を用いて分析を行った。ケイ素、ホウ素、ストロンチウムに対しては、誘導結合プラズマ発光分析装置（Inductively Coupled Plasma: ICP）を用いて分析を行った。

浸出後の乾燥固化体表面の観察を行うために、光学顕微鏡を用いた。一部の試料については、エネルギー分散型元素分析装置付走査型電子顕微鏡（Scanning Electron Microscope with Energy Dispersive X-ray Analysis：SEM-EDX）を用いて観察を行い、さらに定性分析および半定量分析を行った。

## 2.7 浸出量の計算式

浸出量の計算には、下に示される規格化した元素浸出量（Normalized elemental mass loss：NL）と呼ばれる式を用いた。

$$NL_i = \frac{M_i}{F_i \cdot SA}$$

ここで、

NL<sub>i</sub> は、規格化した元素 i の浸出量（g/cm<sup>2</sup>）

M<sub>i</sub> は、浸出液中の元素 i の重量（g）

F<sub>i</sub> は、浸出前の固化体中の元素 i の重量割合

SA は、浸出前の試料表面積（cm<sup>2</sup>）を表している。

MCC-4 では、浸出液中の元素 i の重量を求める際につきの仮定と補正を行った。

仮定

- (1) 表面積（SA）は、浸出期間中ほぼ一定である（付録参照）。
- (2) 浸出容器の容量は一定である（付録参照）。
- (3) ICP, AAS による濃度測定において、検出限界値以下はゼロとする。（付録参照）。
- (4) 浸出容器内の浸出液と回収タンク内の浸出液の濃度は等しいとする。

補正

- (1) 回収タンク内の浸出液と浸出容器内の浸出液から、浸出液中の元素重量を決めた（付録参照）。
- (2) ぜん動型ポンプに使われているシリコンチューブからのケイ素の汚染については補正した（付録参照）。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 ぜん動型ポンプを用いた場合の流量の変化

設定した流量の変化を図3に示す。42日間の変動を平均すると次のようになった。

設定値 (ml/min)	実測値 (ml/min)
0.1	0.10 (1057 ± 19 ml/week)
	0.10 (1055 ± 53 ml/week)
0.01	0.011 (111 ± 9 ml/week)
	0.011 (106 ± 11 ml/week)
0.001	0.0018 (18 ± 11 ml/week)
	0.0014 (14 ± 1 ml/week)

以上のことから、時間と流量の間には直線関係が成立し、このポンプは実験期間中を通じて、安定した流量を供給したと考えられる。

#### 3.2 流量と浸出量の関係

図4と図5は、各流量に対する浸出量の時間変化の一例である。

図4は、高純水中でのホウ素の浸出量である。MCC-4では、流量が少くなるにつれて、浸出量も少くなる。それに対して、MCC-1での浸出量は、MCC-4の0.001 ml/min、0.01 ml/minの場合よりも多くなっている。

一方、図5は、水酸化カルシウム水中でのホウ素の浸出量を表している。MCC-4では、高純水の場合と同様に、流量が少くなるにつれて、浸出量も少くなっている。しかし、MCC-1の浸出量は0.001 ml/minの場合と同じ程度になっている。

流量と浸出量の関係を各浸出液、各元素について整理したのが表3である。MCC-1の浸出量がMCC-4の0.001 ml/minでの浸出量よりも明らかに多い場合を傾向A、MCC-1の浸出量がMCC-4の0.001 ml/minでの浸出量と同程度、もしくは、それ以下の場合を傾向B、明確な区別の付け難い場合をXとした。

この表を見てわかることは、浸出液に高純水を用いた場合にAの傾向が多くなり、またそれ以外の浸出液を用いた場合にBの傾向が多くなることである。

石黒達(1984年)の実験によれば<sup>(9)</sup>、浸出温度200℃、圧力100 kg/cm<sup>2</sup>、容器内SA/V比0.1 cm<sup>-1</sup>の実験条件で、我々が呼ぶBの傾向を得ている。従って、高純水を使用しても常にAの傾向になるとは限らない。

そこで、Aの傾向が得られた原因を考える為にpHの変化(図6)を見てみる。硫酸カルシウム水、水酸化カルシウム水、硫酸水、人工地下水では、MCC-1、MCC-4ともに有意の差は見られない。しかし、高純水の場合は、MCC-1とMCC-4で著しく差が見られる。

El-Shamy (1973年)の報告<sup>(10)</sup>から、pHが9付近を超えると浸出が促進すると考えられ、表3で傾向Aを示した一つの原因と考えられる。

MCC-4では、流量と共に浸出量が高くなる。これは流量の多い場合のほうが、流量の少ない場合と比べて、ガラス固化体から溶けだした各元素の濃度が固化体周辺でうすくなるため、溶液の飽和が起こりにくく、溶け易くなったためと考えられる。

Das (1969年)の報告によると<sup>(11)</sup>、ガラス固化体の浸出挙動を速度論的に考察した場合、対数プロットで表される傾きが議論になる。主として、傾きが1/2の場合は拡散律速、1の場合は溶解律速といわれている。

各流量における各浸出液中での各元素に対する浸出量の関係から、対数プロットで表わされる傾きをまとめた結果を表4に示す。

この表を見ると、ホウ素を除いてMCC-4のほうが傾きが1に近くなる。また、MCC-1では、THAM水、硫酸カルシウム水を除いて1/2に近くなることがわかる。これらのことから、MCC-4では溶解律速、MCC-1では拡散律速が主体になっていると考えられる。

### 3.3 各元素と浸出量の関係

図7と図8に各元素別の浸出量の一例を示す。

図7は、各元素の高純水中での浸出量を示している。この図からわかるように、MCC-4の流量0.001 ml/min、0.01 ml/minとMCC-1では、ナトリウム、ホウ素の浸出量が多い。

これに対してMCC-4の流量0.1 ml/minでは、ナトリウム、ホウ素よりもストロンチウムの浸出量が多い。

各浸出液について元素の浸出量を整理したものが表5である。この表からわかることは、浸出液の種類によらず、ナトリウム、ホウ素、セシウムの浸出量がストロンチウム、ケイ素の浸出量よりも多いことである。Clark達(1984年)の流水中での実験結果でも<sup>(12)</sup>、ナトリウム、ホウ素の浸出量はシリコンの浸出量よりも多くなっている。MCC-4は、流量0.1 ml/minを除いて、全体的にMCC-1と同じ傾向がみられる。即ち、ナトリウム、ホウ素の浸出量が多くなるのは、MCC-4の流量0.001 ml/min、0.01 ml/minとMCC-1の場合に見られる共通の現象であることがわかる。

これに対して、MCC-4の流量0.1 ml/minでは、ストロンチウムの浸出量が、ほとんどの浸出液中で最も多い。このことから、流量0.1 ml/min中の固化体表面層とそれ以外の流量中の固化体表面層の性質が違うと考えられる。

### 3.4 浸出液と浸出量の関係

図9と図10に各浸出液別の浸出量の一例を示す。

図9は、各浸出液中でのシリコンの浸出量を示している。この図からMCC-4、MCC-1共に硫酸カルシウム水中での浸出量が多くなっている。また、人工地下水では、浸出量が少なくなっている。

図10は、各浸出液中でのホウ素の浸出量を示している。図9と同様に、硫酸カルシウム水中での浸出量が多い。

各元素について浸出液の種類と浸出量の関係を整理したものが表6である。この表からMCC-1, MCC-4共に硫酸カルシウム水中での浸出量が多くなる傾向が認められた。また、人工地下水での浸出量が少くなる傾向も認められた。

Oka達(1979年)の実験によると<sup>(13)</sup>、溶液中にカルシウムイオンが存在する場合、カルシウムが沈澱してガラス固化体のアルカリ損傷を抑制すると報告している。しかし、我々が用いたpH 7~8程度の水酸化カルシウム水、硫酸カルシウム水では、この傾向は見られなかった。人工地下水での浸出が低くなる傾向から、人工地下水に含まれる成分のマグネシウムと炭酸イオンにつれて、さらに検討を行う必要があると考える。

### 3.5 光学顕微鏡による表面観察

図11, 図12, 図13, 図14は、浸出液に硫酸水、硫酸カルシウム水、高純水、水酸化カルシウム水を用いた場合の28日後の、乾燥固化体表面の光学顕微鏡写真である。

MCC-4において、表面層は流量が少くなるほど、乾燥後のひび割れが少くなっている。また、硫酸水、硫酸カルシウム水の場合には、MCC-4の流量0.001 ml/minの乾燥固化体表面とMCC-1の乾燥固化体表面が似ている。

### 3.6 SEM-EDXによる表面観察

図15 aは、硫酸カルシウム水を用いてMCC-4流量0.01 ml/minの条件で28日間浸出させた、斜め45°からの表面の写真である。表面層は乾燥後大きなひび割れができており、剝がれ易くなっている。

表面層上(図15 b)と表面層下(図15 c)で定性分析を行った。その結果が図16 b, 16 cである。比較のために、浸出を受ける前のガラス表面の定性分析の結果も図16 aに示す。

浸出を受ける前のガラスからは、ナトリウム、アルミニウム、ケイ素、ジルコニウム、モリブデン、カルシウム、ネオジウム、鉄のピークが明らかに認められる。一方、表面層からは、ナトリウムとモリブデンのピークが消えている。つまり、表面層からは、ナトリウムとモリブデンが溶けだしたと考えられる。また、表面層下は、まだ浸出が進んでないと考えられる。

ここで、ナトリウムの浸出量から表面層の厚さを計算してみる。

浸出前のガラス固化体重量は、2.7699 g、浸出したナトリウム量は、0.0015 g、固化体中の酸化ナトリウムの割合は、11.3 wt%。ここで、浸出前のナトリウムの量を計算すると次のようになる。

$$2.7699 \times 0.113 \times 46 / 62 = 0.2322$$

表面層の厚さをxとし、浸出後の固化体の一辺の変化を2xとすると、浸出後の固化体体積は

$(1 - 2x)^3$  で表せる。浸出前の固化体体積を1とすれば、次の関係が成立つ。

$$\frac{(1 - 2x)^3}{1} = \frac{0.2322 - 0.0015}{0.2322}$$

xについて解と、

$$(1 - 2x)^3 = 0.9935$$

$$1 - 2x = 0.9978$$

$$x = 0.0011$$

よって、表面層の厚さは11 $\mu$ mとなる。実際の写真上で表面層の厚さを測り、また斜め45°から写したことを考慮に入れて計算した結果を実測値とすると、

$$\frac{0.25 [\text{cm}] \times 2^{1/2} \times 43 [\mu\text{m}]}{2.3 [\text{cm}]} \approx 7 [\mu\text{m}]$$

よって、7 $\mu$ mと推定できる。

固化体の乾燥後の収縮を考えれば、計算から求めた表面層の厚さ11 $\mu$ mと、実測値による表面層の厚さ7 $\mu$ mは、ほぼ同じ程度の厚さと考えられる。このことは、表面層の厚さからナトリウムの浸出量が、予測できることを示唆する。

図17 aは、浸出を受ける前のガラス固化体の写真である。図17 bは、MCC-1を用いた人工地下水中で14日間浸出させたガラス固化体の乾燥後の写真である。図17 cは、上薮(1985年)による実地下水で1年7ヶ月間、14 $^{\circ}$ Cで浸出させたガラス固化体の乾燥後の写真である<sup>(14)</sup>。

実験条件に差は見られるが、図17 bと図17 cから、両方の表面は類似していると言える。即ち、我々が用いた人工地下水の実験で実地下水の実験を模擬できると考えられる。また、これらの表面に見られる10 $\mu$ m程度の溝ができることが、地下水での浸出に見られる特徴と考えられる。

ここで、試料は異なるが同様な結果を得た常温による実地下水で2年半浸出させた固化体と、人工地下水で28日間浸出させた固化体を用いて、ナトリウムの半定量分析を行った。浸出前に含まれる元素濃度を $C_0$ 、浸出後の元素濃度を $C$ とすると、常温で2年半浸出させた固化体の $C/C_0$ 値は約0.83、28日間浸出させた固化体の $C/C_0$ 値は約0.81となった。従って、70 $^{\circ}$ Cの人工地下水を浸出液に用いた場合の浸出時間を常温の実地下水で比較すると、約65分の1に相当する。

図18 aは、MCC-1における人工地下水中で、28日間浸出させたガラス固化体の乾燥表面である。

固化体表面には付着物が散在している。図18 bは、付着物の一部を拡大した写真である。この付着物について定性分析を行った結果、カルシウムのピークと共にランタン、ネオジウムの明確なピークを認めた。

Hermarsson 達(1985年)の論文でも<sup>(15)</sup>、同様な実験から、ランタン、セリウム、ネオジ

ウムに富む付着物が認められたと報告されている。

人工地下水で浸出された固化体表面に、これらの付着物が多く見られることや、人工地下水での固化体の浸出量が低いことなどから、これらの付着物に対して今後も検討を続ける必要があると考えられる。

図19は、MCC-4 流量  $0.1 \text{ ml/min}$  における水酸化カルシウム水中で浸出させた、ガラス固化体の乾燥表面である。

中央の付着物の定性分析の結果（図20）、カルシウム、ランタン、ネオジウムに富むことがわかった。それ以外の表面層上の突起物に対しては、表面層の一般的なスペクトル（図16 b）に似たスペクトルを得た。（図21）。さらにこれについてX線回折を行ったが、明らかなピークは認められなかった。

図22は、MCC-4 流量  $0.01 \text{ ml/min}$  における、硫酸カルシウム水中で浸出されたガラス固化体の乾燥表面である。左端の付着物について定性分析を行った結果、イオウとバリウムの明確なピークを認めた（図23）。このことから、この付着物は、硫酸カルシウム水中の硫酸イオンと、ガラス固化体中からのバリウムから成る硫酸バリウムと考えられる。

浸出試験では、浸出率での議論もされている。Coles（1984年）の行った低流速浸出試験において<sup>(5)</sup>、28日目の浸出率は、 $10^{-6} \sim 10^{-3} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$  程度である。我々の28日目の浸出率は、 $10^{-6} \sim 10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{day}$  程度である。彼の実験条件と我々の実験条件とでは多少異なるが、ほぼ同じ範囲の浸出率になっている。

#### 4. 結 語

流量と浸出量の関係からは、浸出液の種類によらず、流量0.001ml/minから0.1 ml/minの範囲で、流量の増加と共に浸出量も増加することがわかった。実際の処分場で想定される流量は、きわめて遅い場合があると考えられており、今後さらに少い流量での実験も望まれる。

浸出液の種類と浸出量の関係からは、人工地下水が最も低くなることがわかった。実際の地下水でも浸出量が低くなることが期待できる。

人工地下水と実地下水での固化体の表面観察から、70°C、28日間の浸出試験では、両者の固化体表面の変化が類似していることがわかった。このことは、人工地下水を用いた室内実験からも、ガラス固化体の浸出挙動の評価が行えることを示唆する。

本実験で得られた流水中での浸出データは、地層処分の安全評価上重要なものであり、さらに各種の地下水を用いた研究が必要と思われる。

#### 謝 辞

コメントをいただいた東海大学の 上田隆三教授に感謝します。



## 文 献

- 1) 日本原子力会議, "原子力年鑑60年版", pp161 - 171, (1985)
- 2) L.L. Hench et al. "High level waste immobilization forms" Nuclear and Chemical Waste Management, vol. 3, pp149-173, (1982)
- 3) J.E. Mendel "The management of leach rate: A review" Nuclear and Chemical Waste Management, vol. 3, pp149-173, (1982)
- 4) Materials Characterization Center, "Nuclear-waste materials handbook", DOE/TIC-11400, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, (1981)
- 5) D.G. Coles "A continuous-flow leach testing method for various nuclear waste forms" Nuclear and Chemical Waste Management, vol. 2, pp245-252, (1981)
- 6) D.M. Strachan et al. "Standard leach test for nuclear waste materials", Scientific Basis for nuclear Waste Management vol. 3, pp347-354 (1981)
- 7) D.M. Strachan "Effect of flow rate on the leaching of nuclear waste glass" Advances in Ceramics vol. 8 Nuclear waste management, pp12-18, (1984)
- 8) T. Banba et al. "Simulated HLLW compositions for cold test of waste management development JAERI-M 82-088, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai, Ibaraki (1982)
- 9) 石 黒 私信
- 10) T.M. El-Shamy, "The rate-determining step in the dealcalisation of silicate glass" Physics and Chemistry of Glass, vol. 14, pp18-19 (1973)
- 11) C.R. Das, "Theoretical aspects of the corrosion of glass" The glass industry, 50 [9] pp422-427, 483-485, (1969)
- 12) D.E. Clark et al. "Effect of flow on corrosion and surface film formation on an alkali borosilicate glass" Advances in Ceramics, vol. 8, Nuclear Waste management, pp19-29, (1984)
- 13) Y. Oka, "Calcium deposition on glass surface as an inhibition to alkaline attack" Journal of the American Ceramic Society, vol. 62, No.11-12, pp631-632, (1979)
- 14) H. Kamizono, "Leaching behavior of simulated high-level waste glass in groundwater" Journal of nuclear Materials vol. 127, pp242-248 (1985)

- 15) H.P. Hermansson, "Variables affecting leaching of Swedish nuclear waste glass" Nuclear and Chemical Waste Management, vol. 5, pp315-332, (1985)
- 16) R.K. Wing et al. "Inductively coupled plasma atomic emission spectroscopy: prominent lines "Applied Spectroscopy, vol. 33, pp208-219, (1979)

## 付 録

### 付録1 人工地下水1リットルの作り方

- (1)  $\text{CaSO}_4$ を約450mlの高純水に溶かし、続いて $\text{H}_2\text{SO}_4$ を加え、これをAとする。
- (2)  $\text{MgCO}_3$ を約450mlの高純水に加え、続いて $\text{CO}_2$ ガスを吹込み、これをBとする。
- (3) AとBの溶液を混ぜ、 $\text{MgCO}_3$ が完全に溶けるまで $\text{CO}_2$ ガスを吹込む。
- (4) THAMを加えて、pHを7～8に調整する。
- (5) 最後に高純水を加えて、この溶液の全量が1ℓになるようにする。

## 付録2 浸出量の計算に用いた仮定の説明

(1) 仮定1：表面積（SA）は、浸出期間中ほぼ一定である。

実際には、表面層が形成されるため、固化体の形状は変化し、それと同時に表面積も変ると考えられる。そこで、表面積の変化をナトリウムの浸出量が最も多かった、水酸化カルシウム水中のMCC-4流量0.1 ml/minの場合で検討すると、以下のようなになった。

浸出前の固化体の形状：約1 cm×1 cm×1 cm

浸出したナトリウムの量：0.0019 g

固化体中の酸化ナトリウムの割合：11.3 wt %以上から、浸出前のナトリウムの量を計算すると次のようになる。

$$2.7469 \times 0.113 \times 46 / 62 = 0.2302 \text{ [ g ]}$$

浸出後の固化体の一辺の変化を2 Xとすると、浸出後の固化体の体積は $(1 - 2 X)^3$ で表せる。浸出前の固化体の体積を1とすれば、次の関係が成立つ。

$$\frac{(1 - 2 X)^3}{1} = \frac{0.2302 - 0.0019}{0.2302}$$

Xについて解と、

$$(1 - 2 X)^3 = 0.9917$$

$$1 - 2 X = 0.9972$$

$$X = 0.0014$$

浸出後の表面積の変化率は、

$$\frac{6 - 5.966}{6} \times 100 = 0.5667$$

よって、浸出前後の表面積の変化率は最大0.5667%となり無視できる。

(2) 仮定2：浸出容器の容量は一定である。

浸出容器内の浸出液は、サイホンの原理により、一定量が浸出容器の外へ出る仕組みになっている。そのため液面は常に変化している。外見では、約5 mmの幅を持って変化していた。

NLの計算の都合上、7日目、14日目、21日目の浸出液の量は、28日目の浸出液の実測から、37.3357ml（平均値）とした。ただし、28日目の浸出液量は、実測値を用いた。

(3) 仮定3：ICP，AASによる濃度測定において、検出限界値以下はゼロとする。

ICPについては文献に示されている検出限界値<sup>(16)</sup>の10倍以下をゼロとした。AASについては、実測値から経験的に検出限界値を決めた。

元素	我々の用いた検出限界値
ナトリウム	0.05
セシウム	0.05
ケイ素	0.12
ホウ素	0.048
ストロンチウム	0.0042

## 付録3 浸出量の計算に用いた補正の説明

- (1) 補正1：回収タンクの浸出液と浸出容器内の浸出液から浸出液中の元素重量を決めた。  
(表7)

サンプリング期間，0-7日目，7-14日目，14-21日目，21-28日目の回収タンクに溜る元素の重量をそれぞれ $M_7'$ ， $M_{14}'$ ， $M_{21}'$ ， $M_{28}'$ とし，また，浸出容器中の元素重量をそれぞれ $M_7''$ ， $M_{14}''$ ， $M_{21}''$ ， $M_{28}''$ とする。すると，おのおの7日間の元素重量はそれぞれ， $M_7' + M_7''$ ， $M_{14}' + (M_{14}'' - M_7'')$ ， $M_{21}' + (M_{21}'' - M_{14}'')$ ， $M_{28}' + (M_{28}'' - M_{21}'')$ となる。

積算した元素重量を考えると，期間0-7日目，0-14日目，0-21日目，0-28日目に対して，それぞれ， $M_7' + M_7''$ ， $M_7' + M_{14}' + M_{14}''$ ， $M_7' + M_{14}' + M_{21}' + M_{21}''$ ， $M_7' + M_{14}' + M_{21}' + M_{28}' + M_{28}''$ となる。

- (2) 補正2：ぜん動型ポンプに使われているシリコンチューブからのケイ素の汚染については補正した。

MCC-4のブランク試験の結果，ぜん動型ポンプに使われるシリコンチューブからのケイ素と考えられる汚染があった。従ってそれぞれの浸出液について，下記のケイ素の値を差し引いて補正した。

浸出液	流量 (ml/min)	ケイ素含有量 (g/min)
高純水	0.1	-
	0.01	1.08E-5
	0.001	4.73E-6
水酸化カルシウム水	0.1	-
	0.01	1.25E-5
	0.001	5.99E-6
硫酸カルシウム水	0.1	-
	0.01	-
	0.001	4.03E-6
THAM水	0.1	-
	0.01	1.11E-5
	0.001	4.86E-6
硫酸水	0.1	-
	0.01	1.34E-5
	0.001	5.18E-6
人工地下水	0.1	-
	0.01	1.74E-5
	0.001	6.24E-6

(-は、検出限界値以下)

## 付録4 ナトリウム, ストロンチウム, セシウム, ホウ素, ケイ素の浸出量

## ナトリウムの浸出量

Method μ/min	3	7	14	21	28	
MCC-1	1.8E-4	3.2E-4	5.0E-4		9.3E-4	高純水
0.1		5.7E-4	1.0E-3	1.4E-3	1.8E-3	
0.01		2.6E-4	4.2E-4	5.8E-4	7.1E-4	
0.001			2.4E-4	3.5E-4	4.0E-4	
MCC-1	3.6E-4	7.4E-4	1.4E-3		2.6E-3	CaSO <sub>4</sub> 水
0.1		8.0E-4	1.6E-3	2.4E-3	3.2E-3	
0.01		6.5E-4	1.4E-3	2.0E-3	2.7E-3	
0.001		4.0E-4	1.4E-3	2.1E-3	2.8E-3	
MCC-1	2.0E-4	2.7E-4	3.5E-4		6.7E-4	Ca(OH) <sub>2</sub> 水
0.1		6.0E-4	1.2E-3	1.8E-3	2.4E-3	
0.01		3.1E-4	6.4E-4	9.6E-4	1.3E-3	
0.001		2.2E-4	3.9E-4	5.1E-4	6.2E-4	
MCC-1	9.3E-5	3.3E-4	8.0E-4		9.3E-4	THAM水
0.1		2.4E-4	4.2E-4	6.1E-4	7.9E-4	
0.01		2.7E-4	8.8E-4	1.4E-3	2.0E-3	
0.001		3.0E-4	7.2E-4	7.2E-4	1.2E-3	
MCC-1	3.0E-4	5.2E-4	6.9E-4		1.0E-3	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 水
0.1		3.3E-4	5.7E-4	8.0E-4	1.0E-3	
0.01		4.8E-4	8.8E-4	1.1E-3	1.4E-3	
0.001		3.8E-4	6.5E-4	9.3E-4	1.1E-3	
MCC-1	7.5E-5	2.3E-4	2.2E-4		4.5E-4	人工地下水
0.1						
0.01						
0.001		5.1E-5	1.9E-4	3.1E-4	5.2E-4	

## ストロンチウムの浸出量

Method μ/min	3	7	14	21	28		
MCC-1 0.1 0.01 0.001	1.5E-4	2.8E-4 6.1E-4 1.7E-4	3.5E-4 1.3E-3 2.9E-4 1.6E-4		1.9E-3 4.3E-4 2.7E-4	3.5E-4 2.3E-3 5.2E-4 3.4E-4	高純水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	3.6E-4	5.7E-4 1.9E-3 6.9E-4 3.7E-4	1.0E-3 4.0E-3 1.4E-3 1.2E-3		6.4E-3 2.0E-3 1.6E-3	1.8E-3 8.7E-3 2.7E-3 2.1E-3	CaSO <sub>4</sub> 水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	3.0E-4	3.6E-4 3.8E-3 6.9E-4 3.3E-4	3.9E-4 7.8E-3 1.3E-3 5.3E-4		1.2E-2 2.0E-3 6.9E-4	6.2E-4 1.4E-2 2.5E-3 8.0E-4	Ca(OH) <sub>2</sub> 水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	7.0E-5	2.8E-4 5.0E-4 2.8E-4 2.3E-4	3.0E-4 9.4E-4 7.8E-4 4.6E-4		1.4E-3 1.2E-3 5.5E-4	3.7E-4 1.8E-3 1.7E-3 6.4E-4	THAM水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	2.1E-4	3.7E-4 6.2E-4 3.7E-4 2.6E-4	5.0E-4 1.2E-3 6.8E-4 4.6E-4		1.7E-3 7.9E-4 6.5E-4	6.4E-4 2.2E-3 1.1E-3 7.3E-4	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	1.1E-4	2.1E-4 3.6E-4 1.8E-4 1.0E-4	2.7E-4 7.5E-4 3.5E-4 2.2E-4		1.9E-3 4.9E-4 3.0E-4	4.5E-4 2.6E-3 6.4E-4 4.6E-4	人工地下水



## セシウムの浸出量

Method μ/min	3	7	14	21	28	
MCC-1 0.1 0.01 0.001	1.8E-4	3.2E-4	4.5E-4		7.9E-4	高純水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	4.1E-4	8.4E-4 6.7E-4 3.8E-4	1.5E-3 1.4E-3 1.4E-3		2.6E-3 2.7E-3 2.7E-3	CaSO <sub>4</sub> 水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	2.0E-4	2.7E-4 2.8E-4 1.9E-4	3.8E-4 6.0E-4 3.3E-4		7.7E-4 1.1E-3 5.4E-4	Ca(OH) <sub>2</sub> 水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	1.1E-4	3.6E-4 3.3E-4 2.8E-4	7.6E-4 9.5E-4 7.0E-4		8.9E-4 2.1E-3 1.1E-3	THAM水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	2.6E-4	4.2E-4 4.3E-4 3.1E-4	5.6E-4 8.8E-4 5.6E-4		7.6E-4 1.4E-3 9.2E-4	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	1.6E-4	2.5E-4 1.2E-4	2.6E-4 2.5E-4		5.5E-4 5.1E-4	人工地下水

## ホウ素の浸出量

Method μ/min	3	7	14	21	28	
MCC-1 0.1 0.01 0.001	1.8E-4	3.4E-4 6.6E-4 2.6E-4	5.4E-4 1.1E-3 4.3E-4 2.4E-4		1.0E-3 1.8E-3 7.2E-4 4.3E-4	高純水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	3.9E-4	8.2E-4 1.1E-3 9.0E-4 1.6E-3	1.4E-3 1.6E-3 1.1E-3 7.7E-4		2.6E-3 2.9E-3 2.3E-3 2.4E-3	CaSO <sub>4</sub> 水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	1.7E-4	2.1E-4 7.0E-4 4.0E-4 3.5E-4	3.2E-4 1.2E-3 5.5E-4 2.3E-4		6.2E-4 6.5E-3 1.1E-3 5.4E-4	Ca(OH) <sub>2</sub> 水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	9.9E-5	3.3E-4 4.2E-4 3.0E-4 3.1E-4	8.4E-4 7.9E-4 9.5E-4 7.8E-4		9.9E-4 1.4E-3 2.0E-3 1.4E-3	THAM水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	3.0E-4	5.3E-4 5.5E-4 4.9E-4 3.8E-4	7.3E-4 1.0E-3 9.1E-4 6.7E-4		1.1E-3 1.8E-3 1.4E-3 1.2E-3	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 水
MCC-1 0.1 0.01 0.001	1.3E-4	2.5E-4 3.8E-4 1.7E-4 1.1E-4	2.8E-4 7.1E-4 3.5E-4 2.3E-4		5.4E-4 2.1E-3 6.5E-4 5.1E-4	人工地下水

## ケイ素の浸出量

Method μ/min	3	7	14	21	28	
MCC-1	1.5E-4	2.8E-4	4.5E-4		7.7E-4	高純水
0.1		3.5E-4	7.6E-4	1.1E-4	1.5E-3	
0.01		1.0E-4	1.9E-4	2.5E-4	3.3E-4	
0.001			1.6E-4	2.8E-4	3.7E-4	
MCC-1	3.4E-4	7.3E-4	1.2E-3		1.6E-3	CaSO <sub>4</sub> 水
0.1		6.9E-4	1.3E-3	1.8E-3	2.7E-3	
0.01		5.4E-4	9.4E-4	1.2E-3	1.9E-3	
0.001		2.5E-4	6.9E-4	6.2E-4	1.5E-3	
MCC-1	1.6E-4	2.3E-4	2.9E-4		5.3E-4	Ca(OH) <sub>2</sub> 水
0.1		5.0E-4	8.4E-4	8.3E-4	1.4E-3	
0.01		2.4E-4	4.5E-4	4.9E-4	8.0E-4	
0.001		1.4E-4	2.1E-4	2.3E-4	3.9E-4	
MCC-1	5.7E-5	3.1E-4	4.6E-4		7.3E-4	THAM水
0.1		1.7E-4	3.0E-4	4.2E-4	5.3E-4	
0.01		2.8E-4	7.6E-4	1.2E-3	1.7E-3	
0.001		2.5E-4	6.1E-4	7.8E-4	1.1E-3	
MCC-1	6.3E-5	1.2E-4	2.1E-4		3.0E-4	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 水
0.1		1.3E-4	2.7E-4	3.8E-4	4.9E-4	
0.01		1.1E-4	2.6E-4	3.6E-4	4.6E-4	
0.001		9.3E-5	1.8E-4	2.9E-4	3.4E-4	
MCC-1	1.1E-4	2.1E-4	2.5E-4		4.4E-4	人工地下水
0.1		3.6E-4	5.9E-4	1.2E-3	1.7E-3	
0.01		1.4E-4	2.9E-4	4.2E-4	5.6E-4	
0.001		1.0E-4	2.1E-4	3.0E-4	4.4E-4	

☒ 表

Table 1 Composition of simulated high-level waste

Component	wt %	Component	wt %
Additives			
SiO <sub>2</sub>	48.49	Na <sub>2</sub> O	11.30
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18.58	CaO	1.87
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.00	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.96
Li <sub>2</sub> O	1.87	ZrO <sub>2</sub>	1.22
Simulated high-level waste			
Pb <sub>2</sub> O	0.12	BaO	0.63
SrO	0.34	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.51
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.20	CeO <sub>2</sub>	1.42
ZrO <sub>2</sub>	1.65	Pr <sub>6</sub> O <sub>11</sub>	0.50
MoO <sub>3</sub>	1.74	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.65
MnO <sub>2</sub>	0.26	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.33
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.59	Ag <sub>2</sub> O	0.03
CoO	0.12	CdO	0.03
NiO	0.33	SnO <sub>2</sub>	0.02
TeO <sub>2</sub>	0.23	Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.004
Cs <sub>2</sub> O	0.98	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.04

Table 2 Value of pH and composition of actual groundwater

pH	7.7 - 8.2
Chemical species analyzed (in mg/l):	
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.1 - 1.2
Na	23 - 28
K	1.6 - 3.1
Ca	75 - 164
Mg	41 - 176
Fe	<0.1
Mn	<0.1
Al	1.3 - 3.1
CHO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	410 - 550
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	51 - 730
Cl <sup>-</sup>	6
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	<1
PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>	<1
SiO <sub>2</sub>	<50

Table 3 Occurrence of the tendencies A, B and X under different conditions

element leachant	Na	Cs	B	Si	Sr
pure water	A	-	A	A	A
CaSO <sub>4</sub> water	X	X	X	A	B
Ca(OH) <sub>2</sub> water	B	B	B	A	B
THAM water	X	B	X	X	B
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> water	X	B	B	X	B
synthesized ground water	-	X	B	B	B

X: Obvious tendency was not observed.

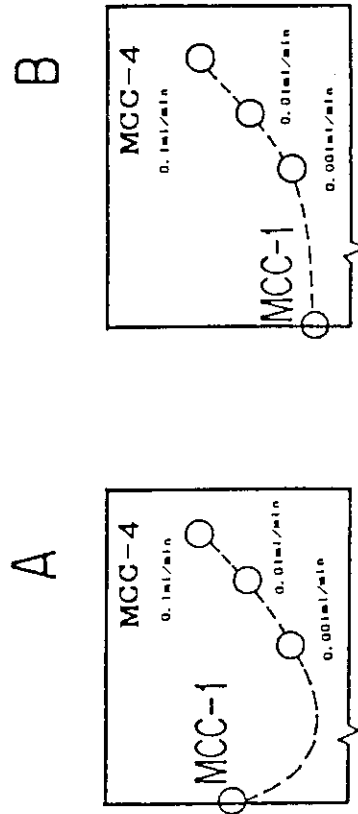


Table 4 Slope of the relation between NL and time in log-log plots

ele.	Flow rate ml/min	pure water	CaSO <sub>4</sub> water	Ca(OH) <sub>2</sub> water	THAM water	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> water	synthesized ground water
Si	0.1	○	○	◐	◐	○	○
	0.01	◑	◑	◑	○	○	○
	0.001	○	○	◐	○	○	○
Na	0.1	◑	○	○	◐	◑	
	0.01	◑	○	○	○	◑	
	0.001	◑	○	◑	○	◑	
B	0.1	◑	◑	○	◑	◑	○
	0.01	◑	◑	◑	○	◑	○
	0.001	◑	●	●	○	◑	○
Cs	0.1						
	0.01		○	○	○	◑	
	0.001		○	◑	○	◑	
Sr	0.1	○	○	○	○	○	○
	0.01	◑	○	○	○	◑	○
	0.001	○	○	◐	◑	◑	○

ele.	MCC-1	pure water	CaSO <sub>4</sub> water	Ca(OH) <sub>2</sub> water	THAM water	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> water	synthesized ground water
Si		◑	◑	●	○	◑	◑
Na		◑	◑	●	○	●	◑
B		◑	◑	●	○	●	◑
Cs		◑	◑	●	○	●	●
Sr		●	◑	●	◑	●	◑

- >0.9                      ◐ 0.7-0.6  
 ◑ 0.9-0.8                    ● ≤0.6  
 ◒ 0.8-0.7

Table 5 Order of the values of NL for elements under different conditions

leachant Method	pure water	CaSO <sub>4</sub> water	Ca(OH) <sub>2</sub> water	THAM water	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> water	synthesized ground water
MCC-1	B, Na Sr	B, Na, Cs Sr, Si	X	B, Na Sr	B, Na Sr	B, Cs X
MCC-4 ml/min	0.1	Sr Si	B, Na Sr, Si	Sr Si	Sr Si	X
	0.01	B, Na Si	Sr Si	X	B, Na, Cs Si	B, Sr Cs
	0.001	B Sr	Na, Cs Si	B Sr	B, Na Si	X

Upper side of each frame: Elements with large NL.

Lower side of each frame: Elements with small NL.

X: Obvious tendency was not observed.

Table 6 Order of the values of NL in different leachants

		B	Na	Cs	Si	Sr
MCC - 1		□ ●	□ ● ▲	□ ●	□ ○	□ ●
MCC - 4	0.1 ml/min	□ ■	▲ □ ● △	—	□ ○	▲ △
	0.01 ml/min	□ ●	□ ●	□ ●	□ △ ■	□ ▲ ■ ●
	0.001 ml/min	□ ● ■	□ ● ■ ▲	□ ●	□ △ X	● ■

● synthesized ground water    ▲ Ca(OH)<sub>2</sub> water    ■ pure water  
 ○ H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> water    △ THAM water    □ CaSO<sub>4</sub> water

Upper side of each frame: Effective to increase NL  
 for each element.

Lower side of each frame: Effective to decrease NL  
 for each element.

X: Obvious tendency was not observed.



Table 7 Correction for the calculation of  $M_i$

Sampling period	mass of the element in receiver bottles	mass of the element in Teflon (leaching) container	mass of the element leached out for a week
0 - 7	$M'_7$	$M''_7$	$M'_7 + M''_7$
7 - 14	$M'_{14}$	$M''_{14}$	$M'_{14} + (M''_{14} - M''_7)$
14 - 21	$M'_{21}$	$M''_{21}$	$M'_{21} + (M''_{21} - M''_{14})$
21 - 28	$M'_{28}$	$M''_{28}$	$M'_{28} + (M''_{28} - M''_{21})$

cumulative sampling period	cumulative mass of the element
0 - 7	$M'_7 + M''_7$
0 - 14	$M'_7 + M'_{14} + M''_{14}$
0 - 21	$M'_7 + M'_{14} + M'_{21} + M''_{21}$
0 - 28	$M'_7 + M'_{14} + M'_{21} + M'_{28} + M''_{28}$

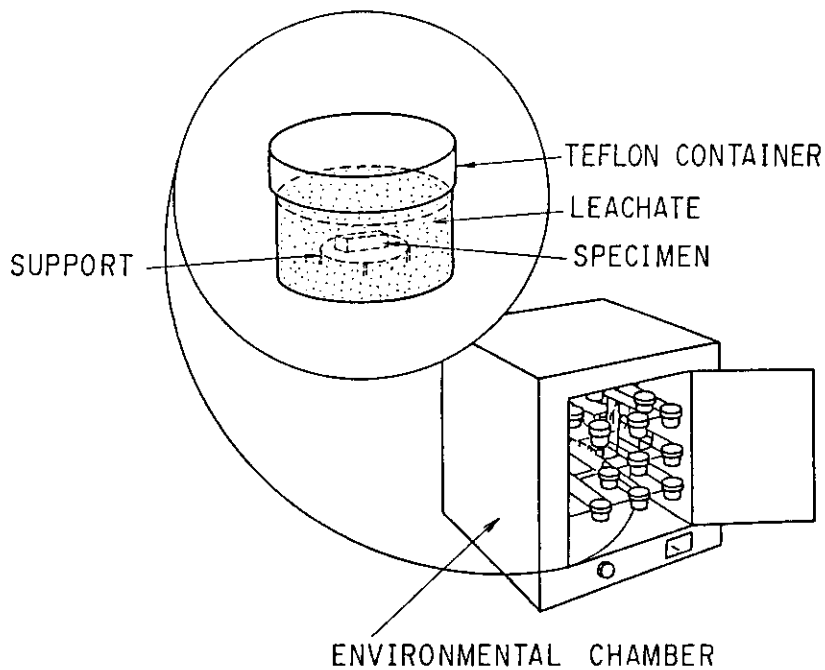


Fig. 1 MCC-1 Leach Test Apparatus

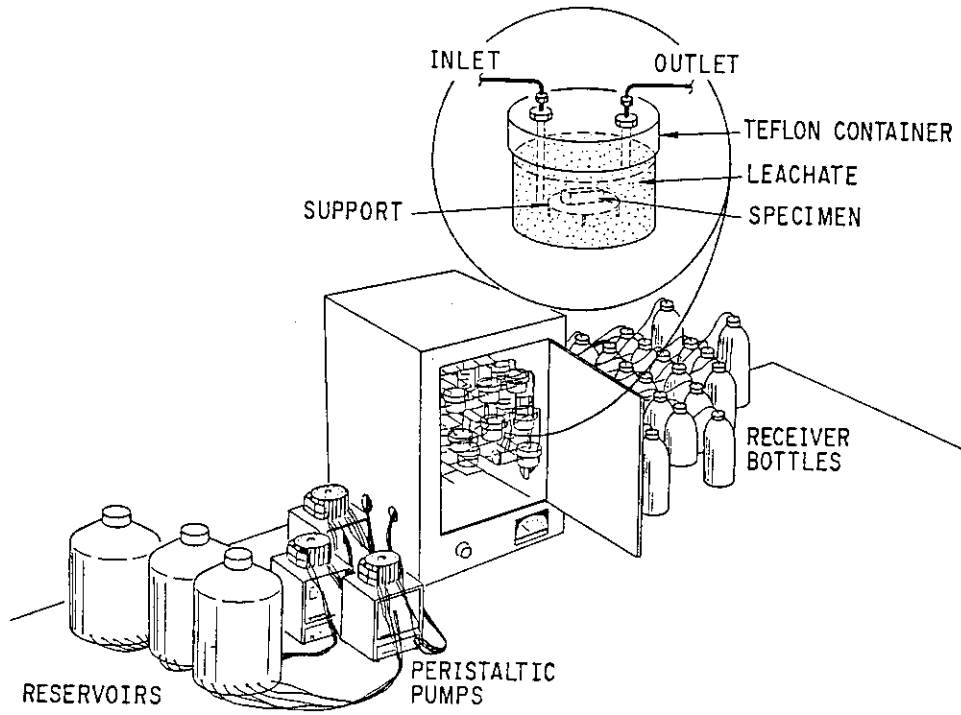


Fig. 2 MCC-4 Leach Test Apparatus<sup>(4)</sup>

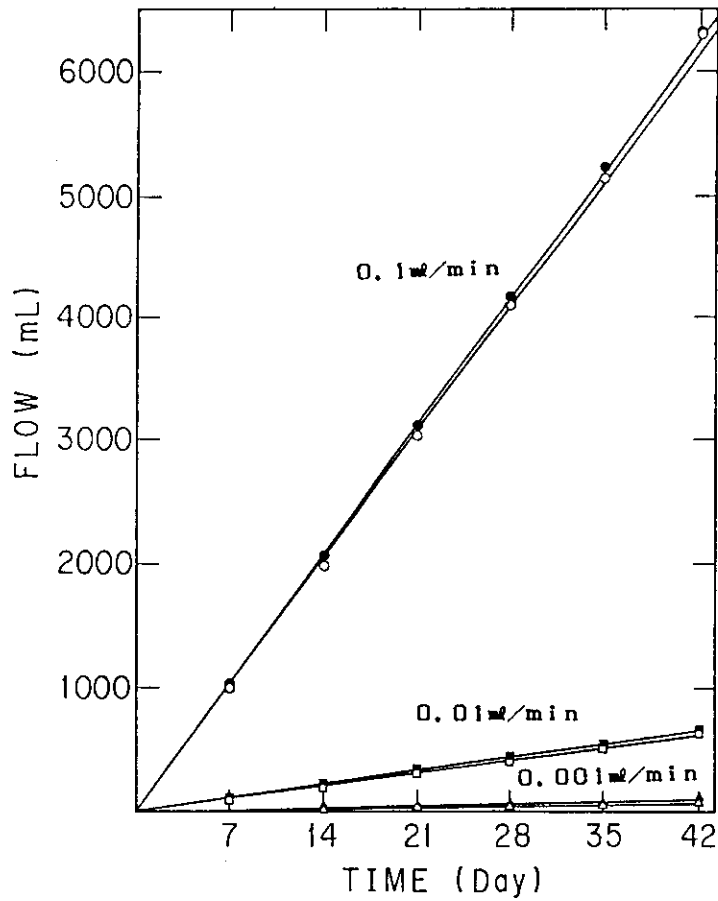


Fig. 3 Variation of flow

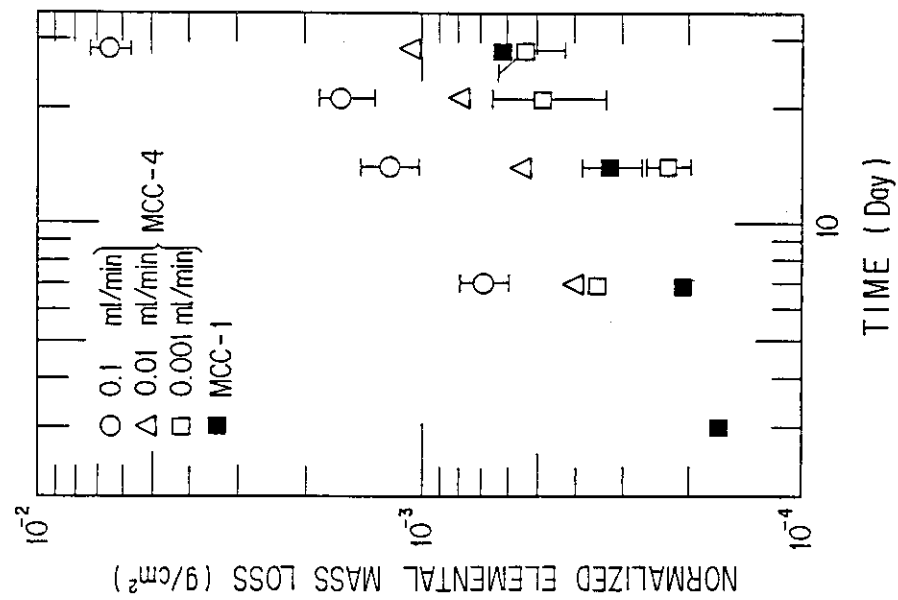


Fig. 5 NL vs. TIME for Boron in Ca(OH)<sub>2</sub> water

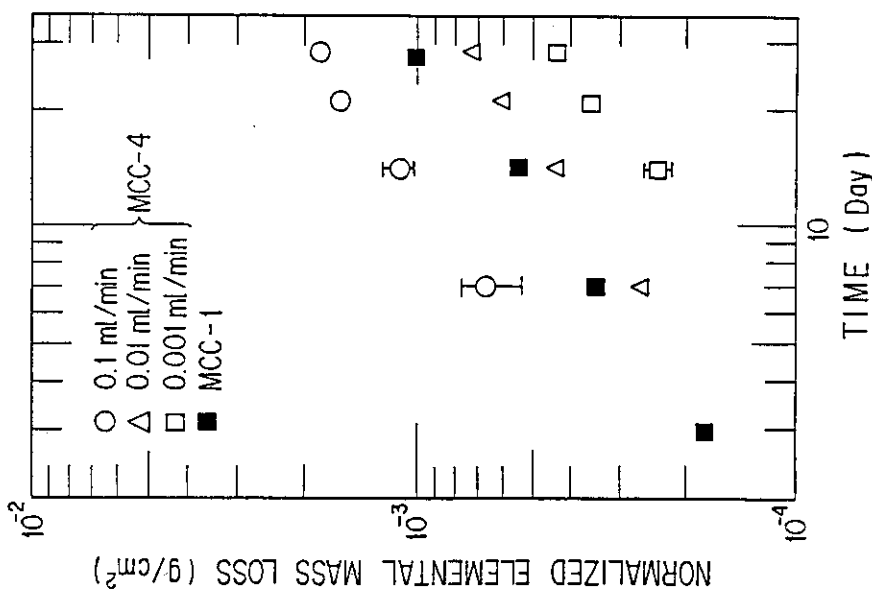


Fig. 4 NL vs. TIME for Boron in pure water

- ▽ MCC-1
- MCC-4 0.1ml/min
- ▲ MCC-4 0.01ml/min
- MCC-4 0.001ml/min (after 28day)

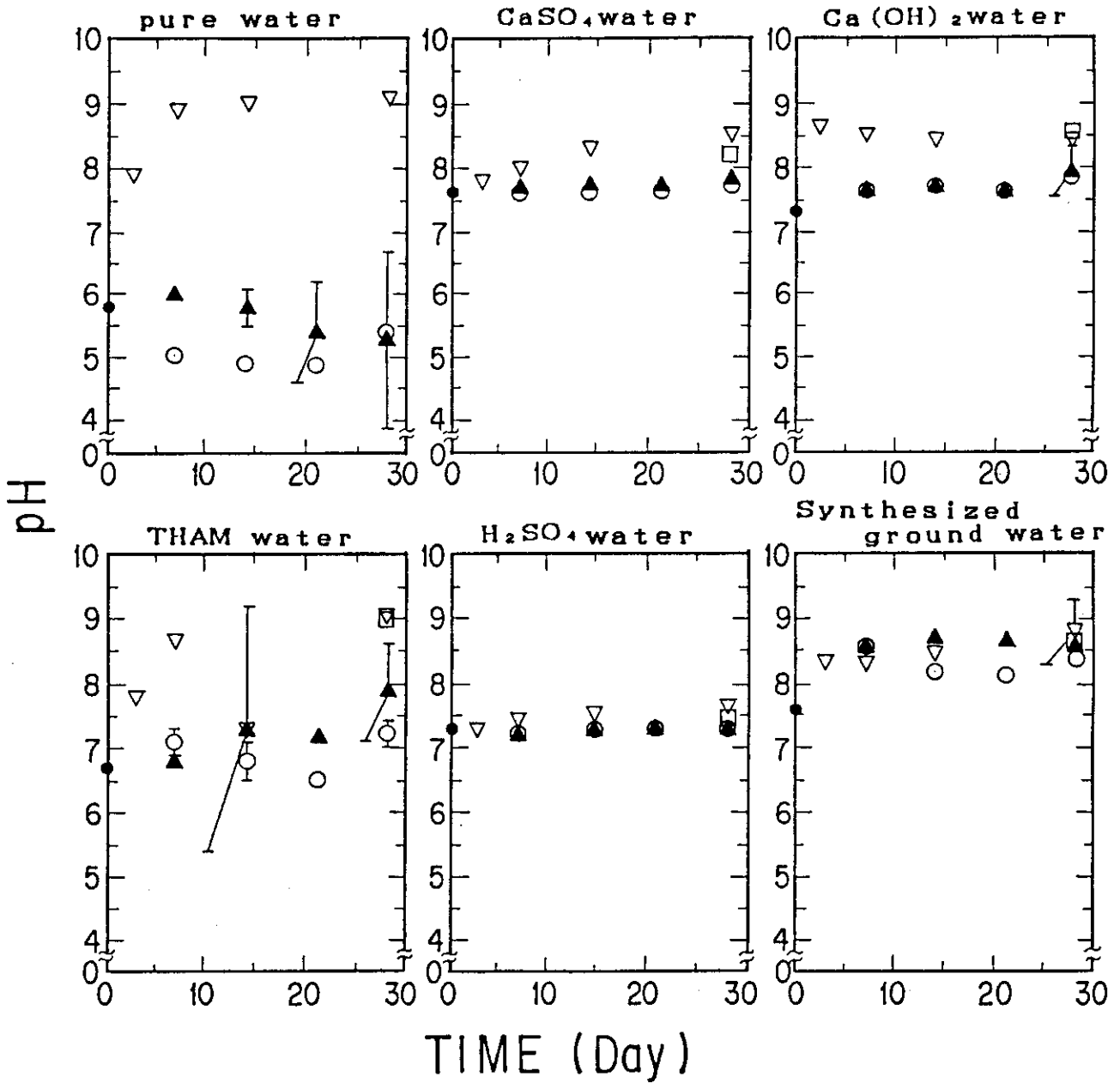


Fig. 6 The values of pH vs. time in days during leach tests

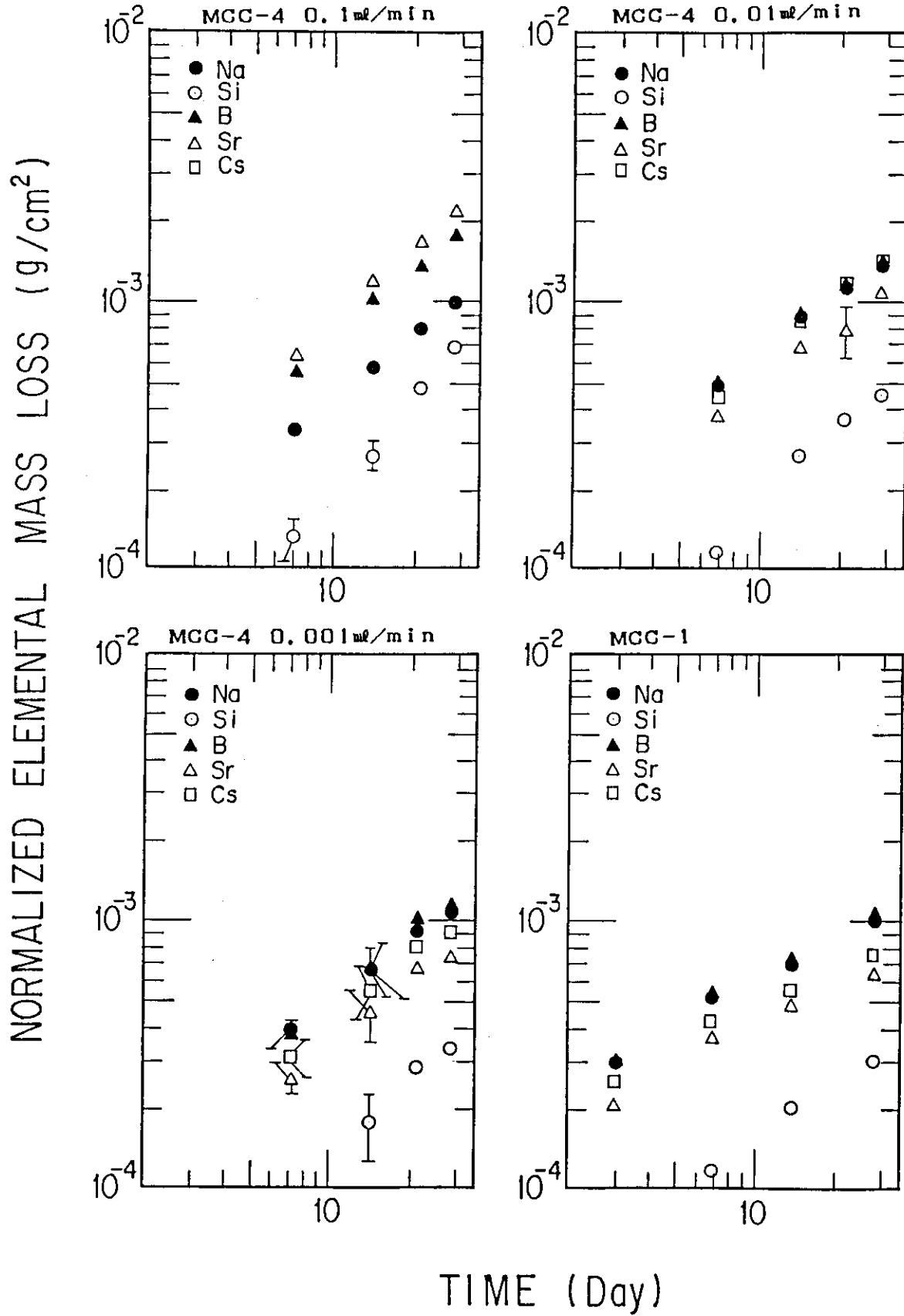


Fig. 7 NL vs. TIME for each element in pure water

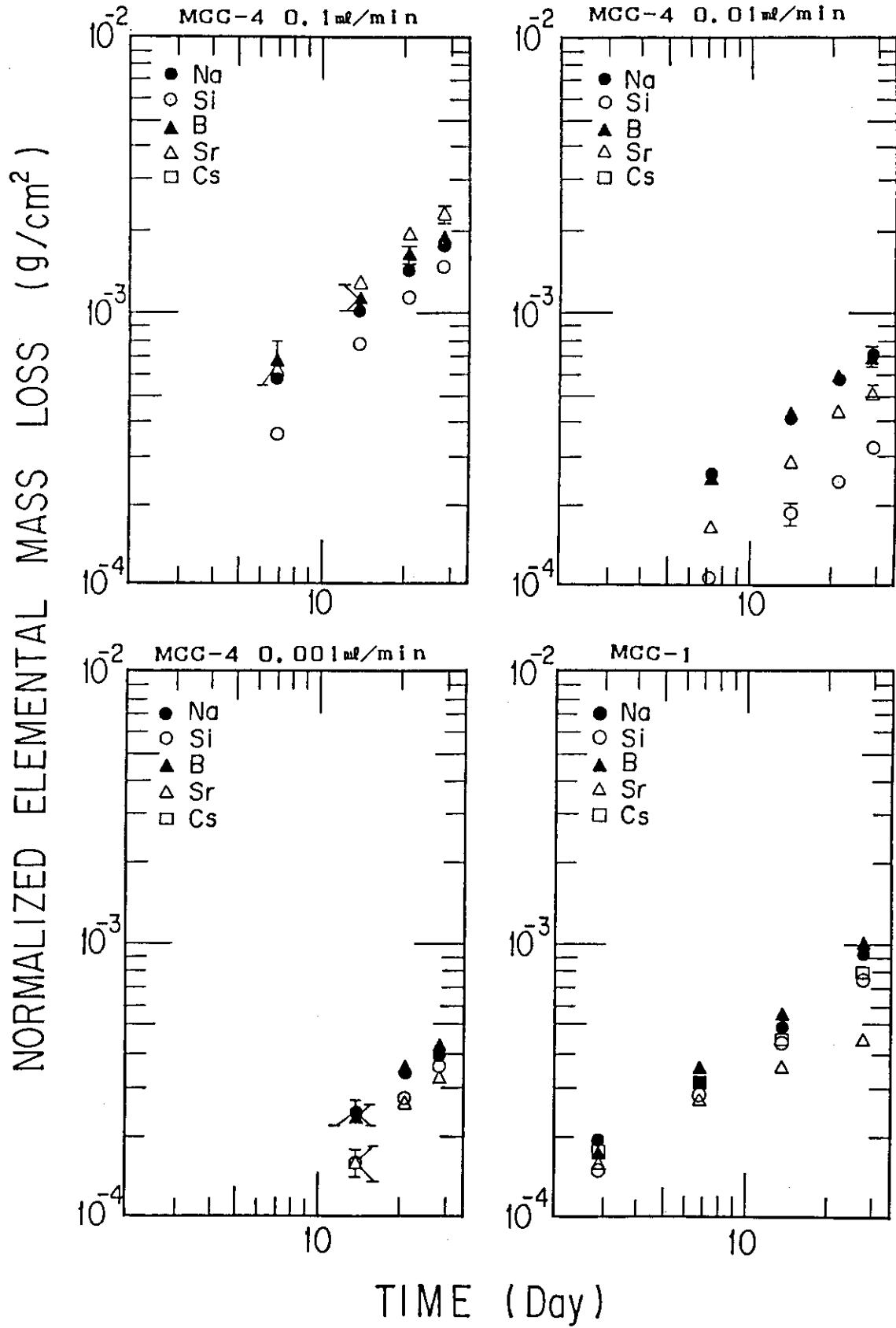


Fig. 8 NL vs. TIME for each element in H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> water

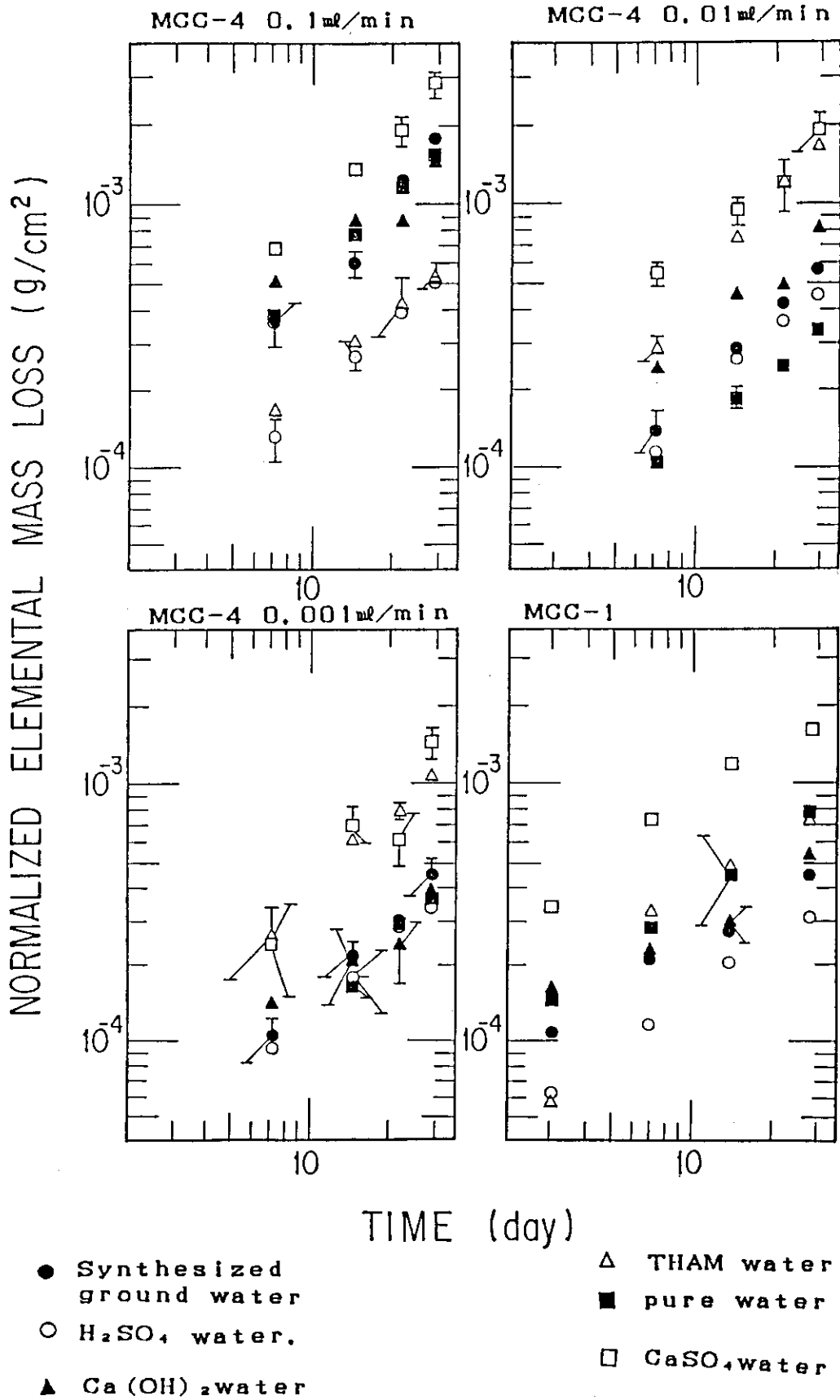


Fig. 9 Relationships between NL for silicon and TIME

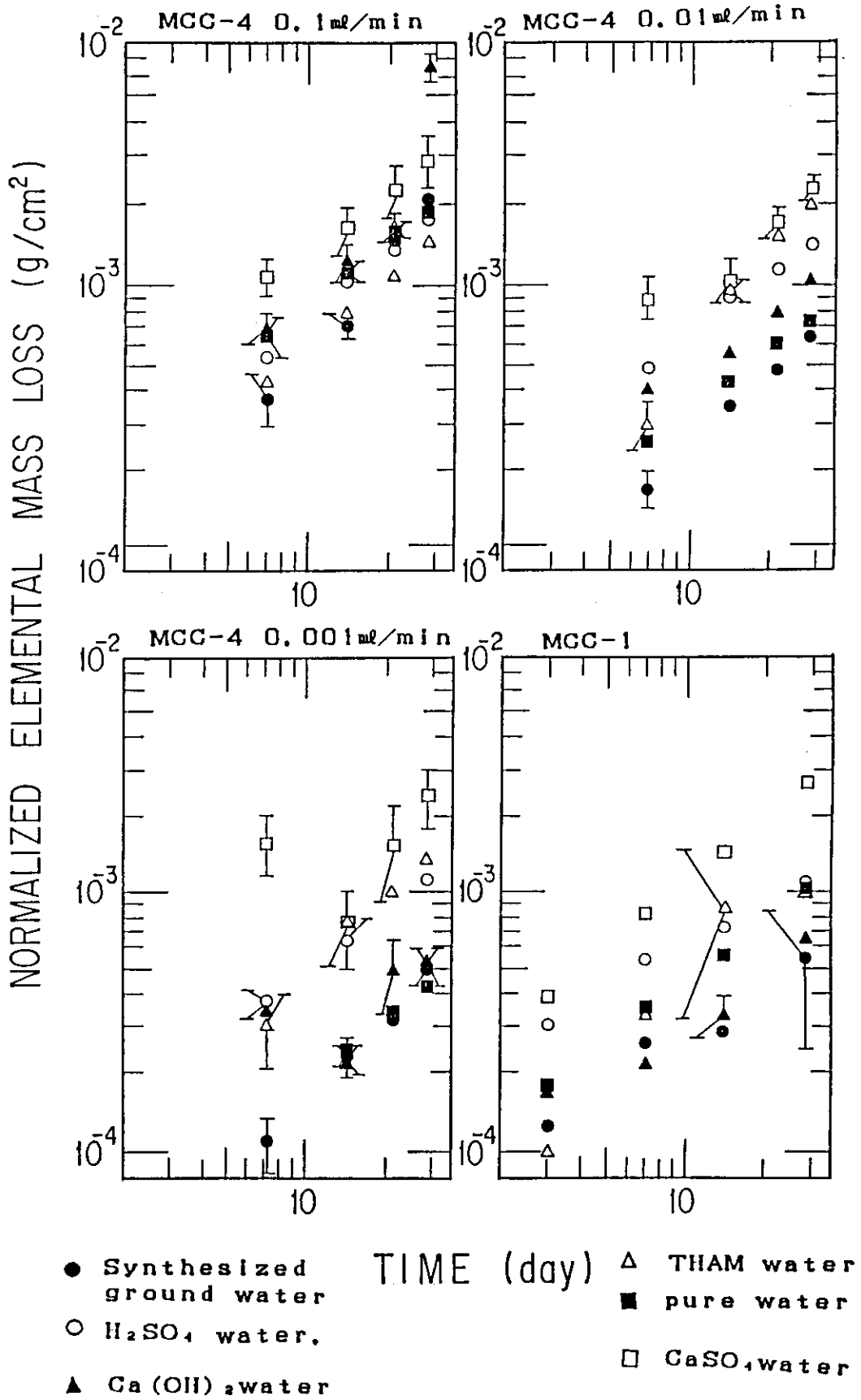


Fig. 10 Relationships between NL for boron and TIME



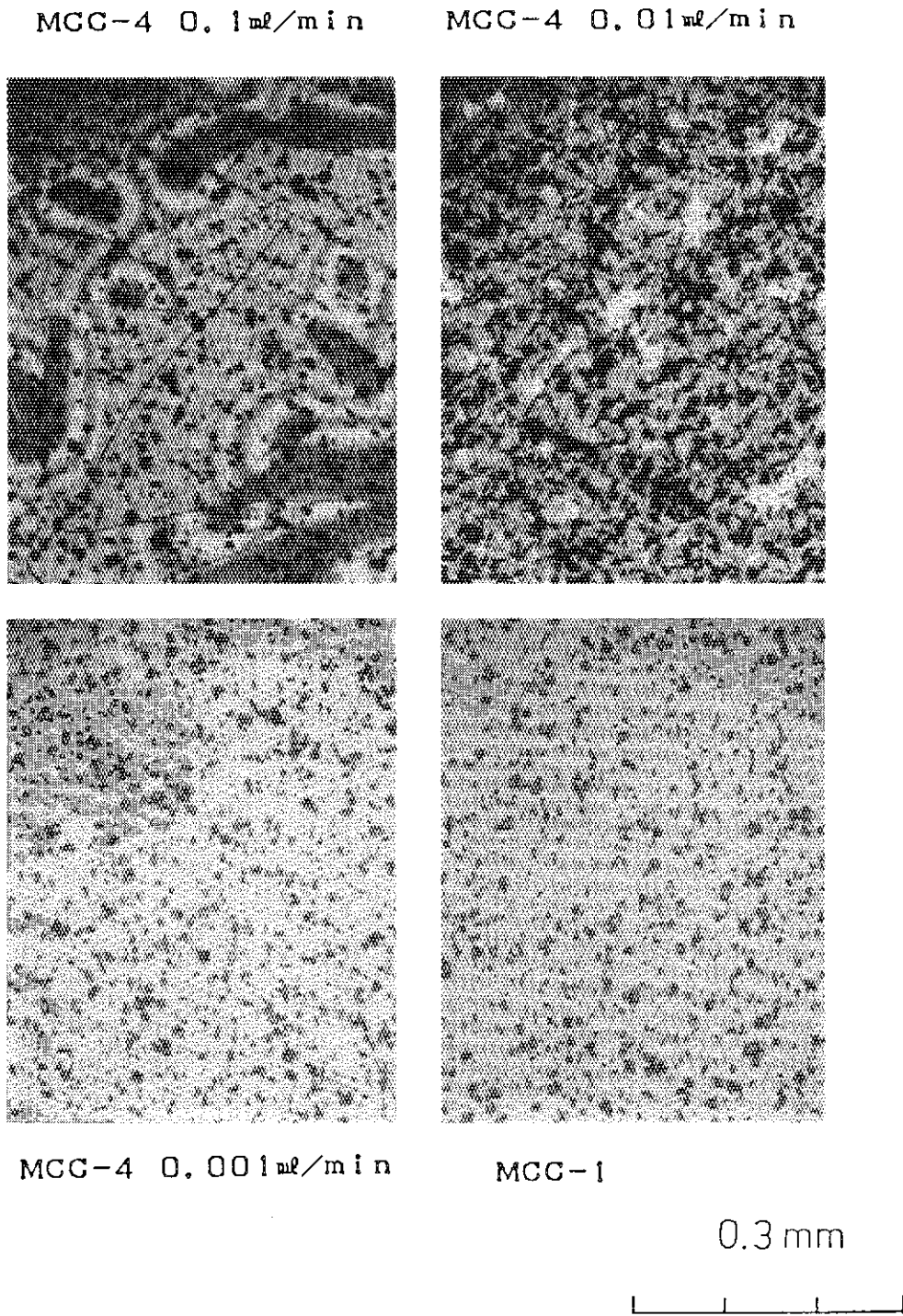
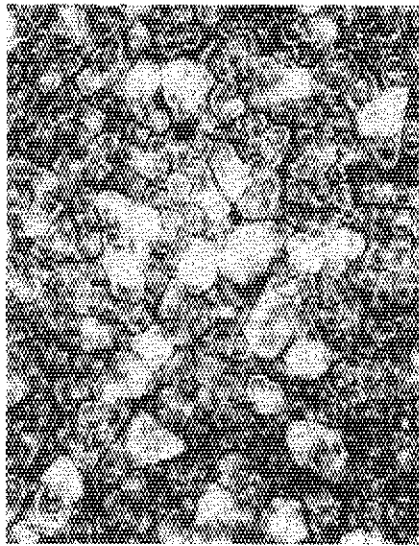
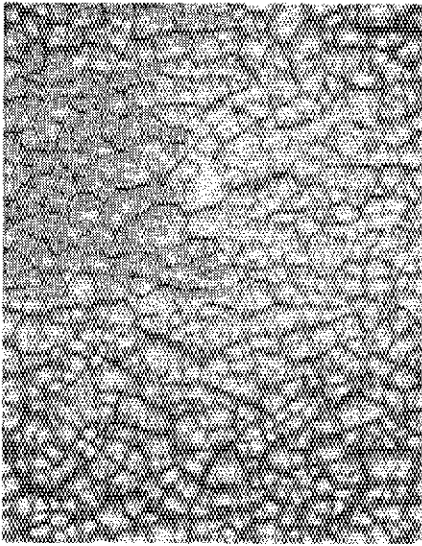
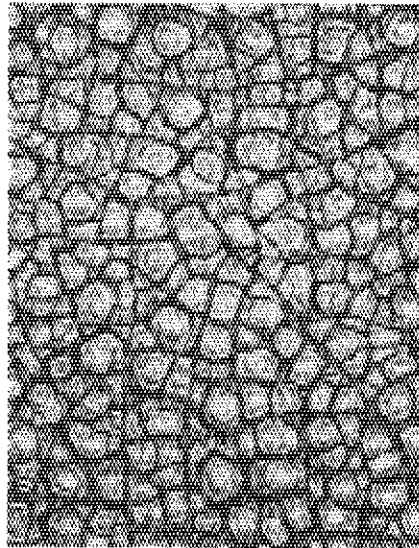
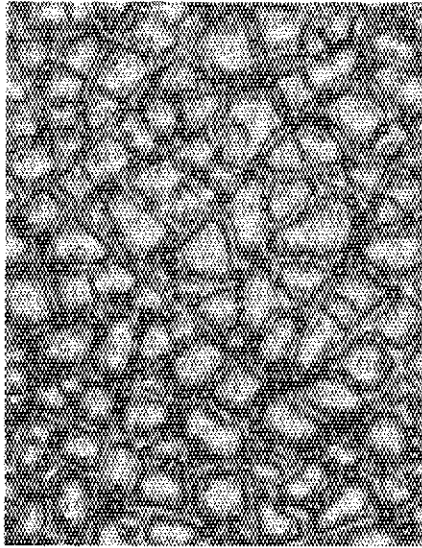


Fig. 11 Optical microphotographs of surface of the specimens leached at 70°C for 28 days in H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> water

MCC-4 0.1 ml/min

MCC-4 0.01 ml/min



MCC-4 0.001 ml/min

MCC-1

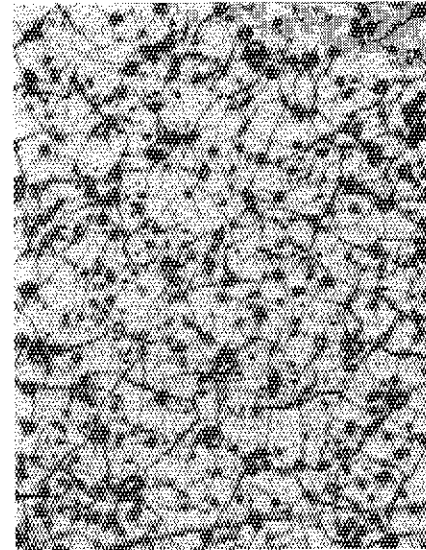
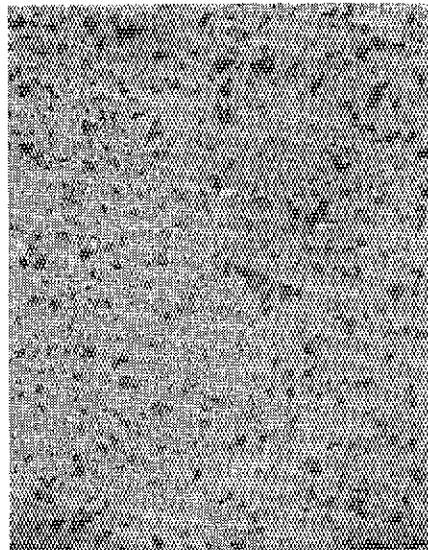
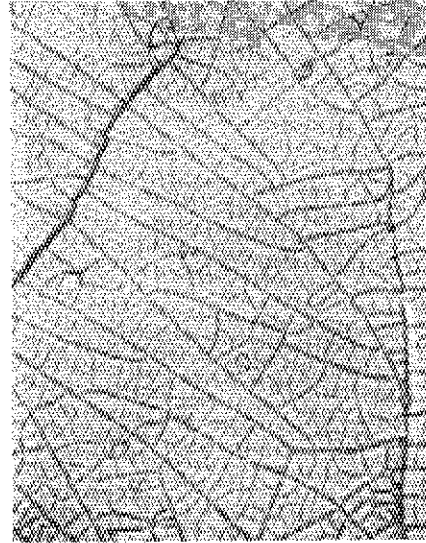
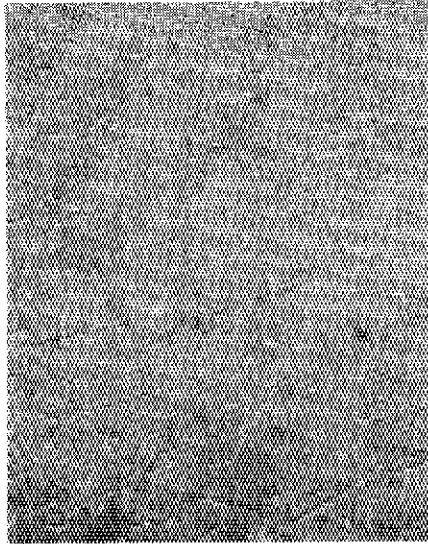
0.3 mm



Fig. 12 Optical microphotographs of surface of the specimens leached at 70°C for 28 days in  $\text{CaSO}_4$  water

MCC-4 0.1ml/min

MCC-4 0.01ml/min



MCC-4 0.001ml/min

MCC-1

0.3 mm

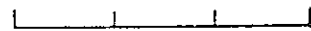


Fig. 13 Optical microphotographs of surface of the specimens leached at 70°C for 28 days in pure water

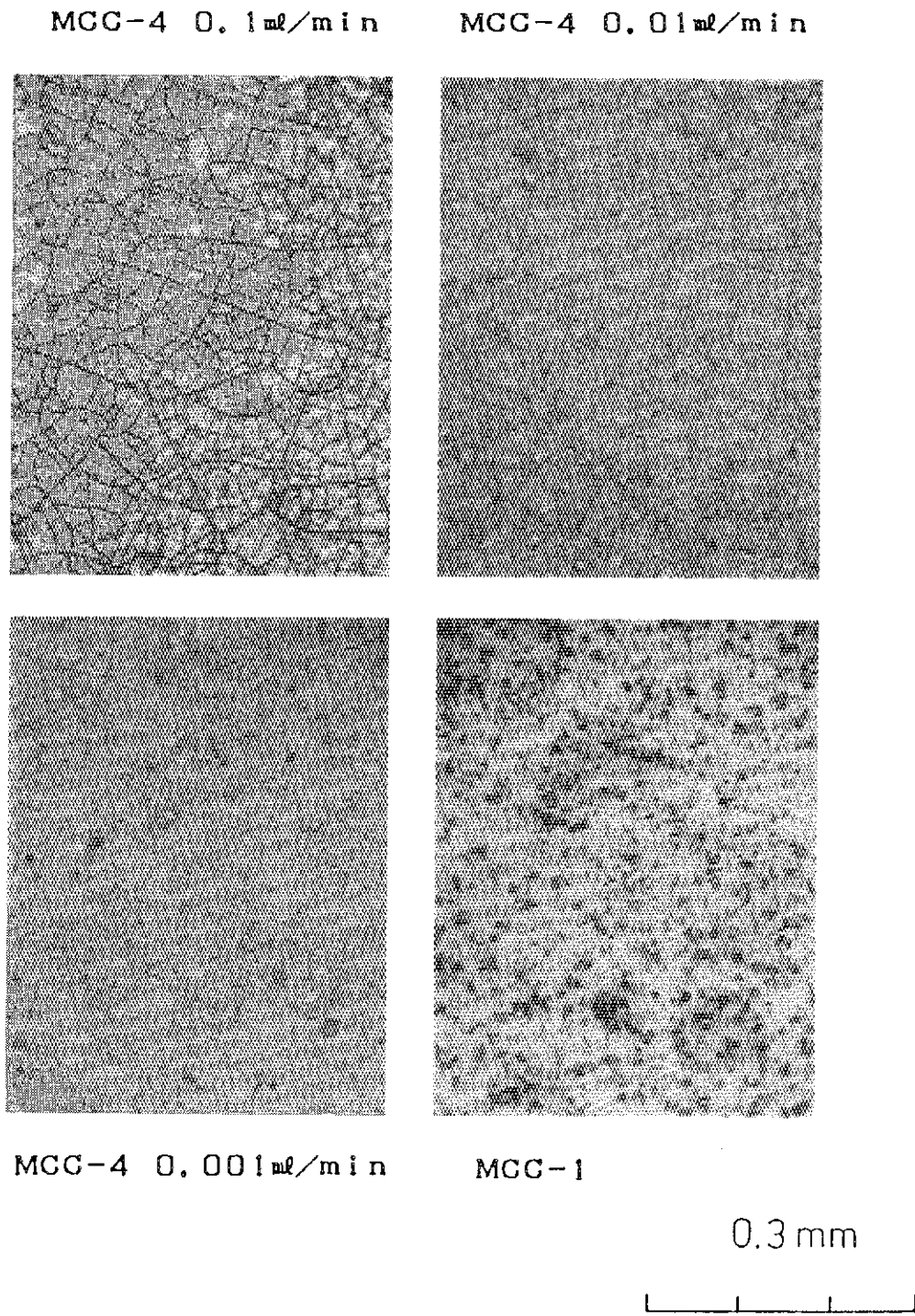


Fig. 14 Optical microphotographs of surface of the specimens leached at 70°C for 28 days in  $\text{Ca(OH)}_2$  water

Fig. 15a.

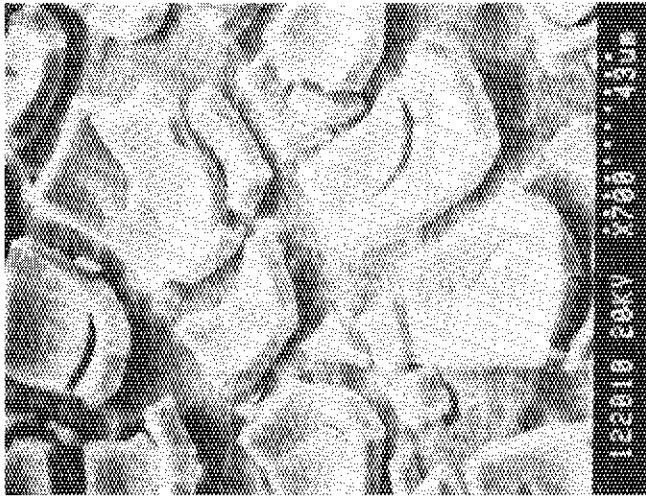


Fig. 15b.



Fig. 15c.

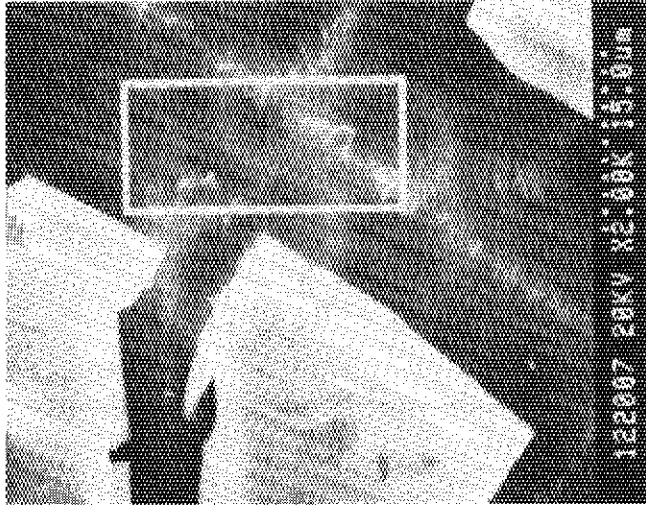


Fig. 15 Scanning electron microphotographs of the surface of specimens leached at 70°C for 28 days in CaSO<sub>4</sub> water by the MCC-4 with the flow rate of 0.01 ml/min

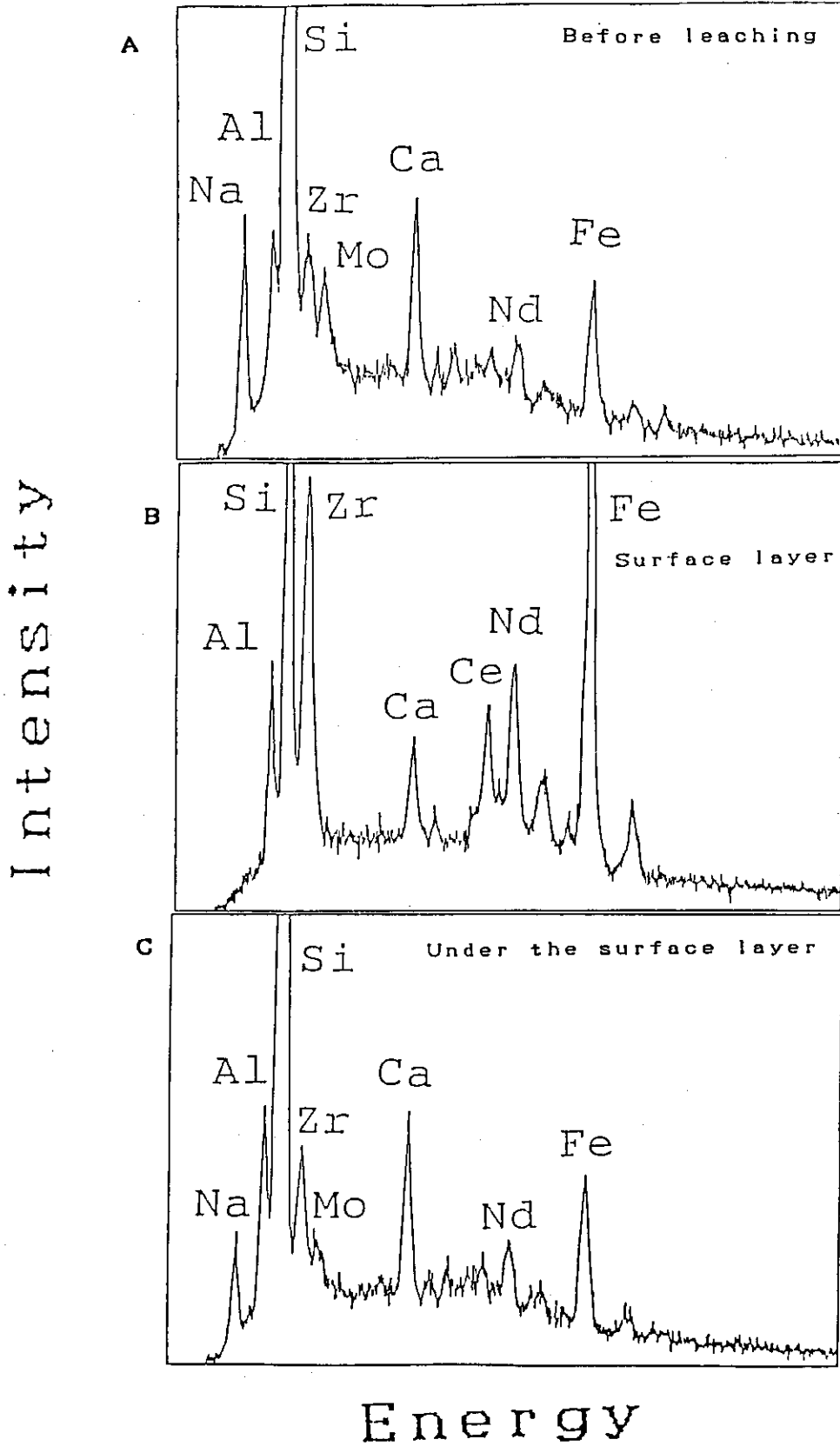


Fig. 16 SEM-EDX spectra of the surface of the specimen leached at 70°C for 28 days in CaSO<sub>4</sub> water with the flow rate of 0.01 ml/min



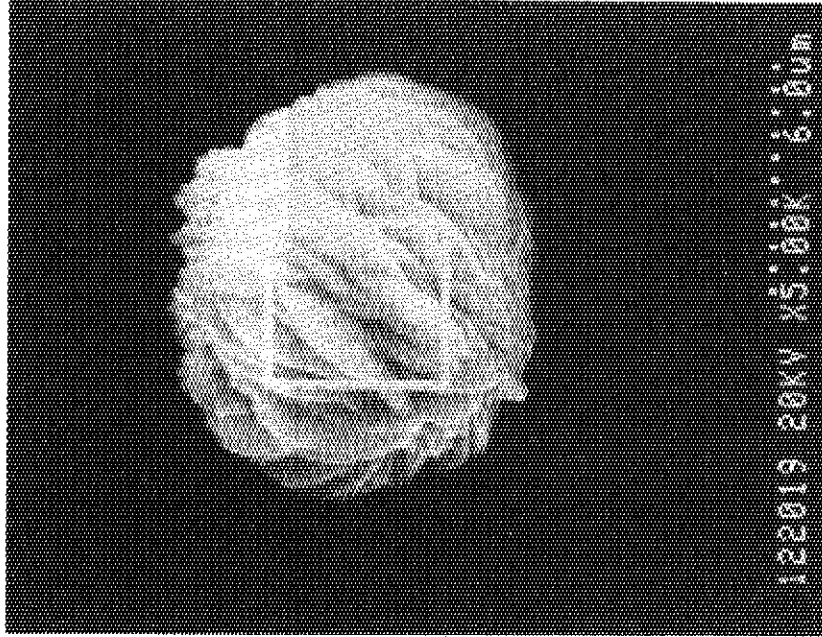


C

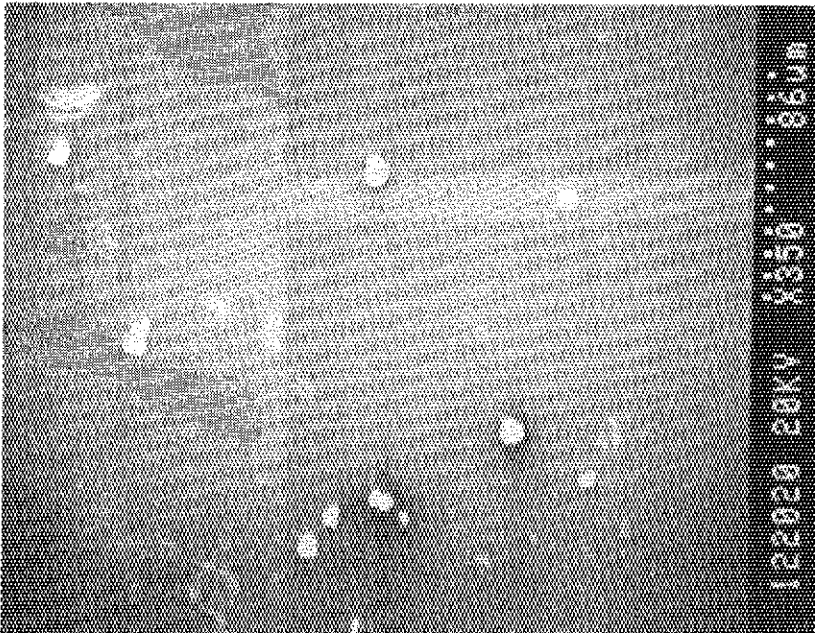
B

A

Fig. 17 Scanning electron microphotographs of the surface of the specimen before leaching(A), the specimens leached in synthesized groundwater(B) and natural groundwater(C)



B



A

Fig. 18 Scanning electron microphotographs of the particles precipitated on the surface of the specimen leached at 70°C for 28 days in synthesized groundwater by the MCC-1



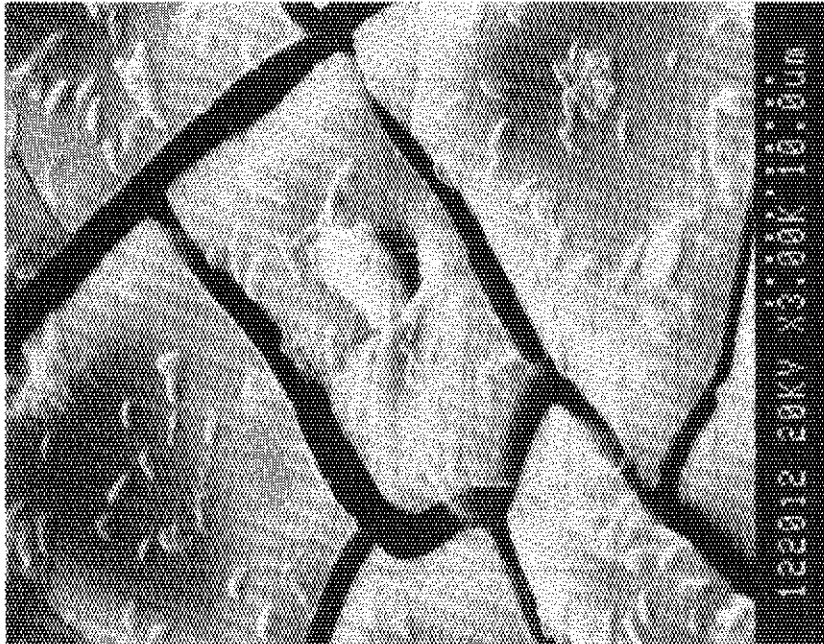
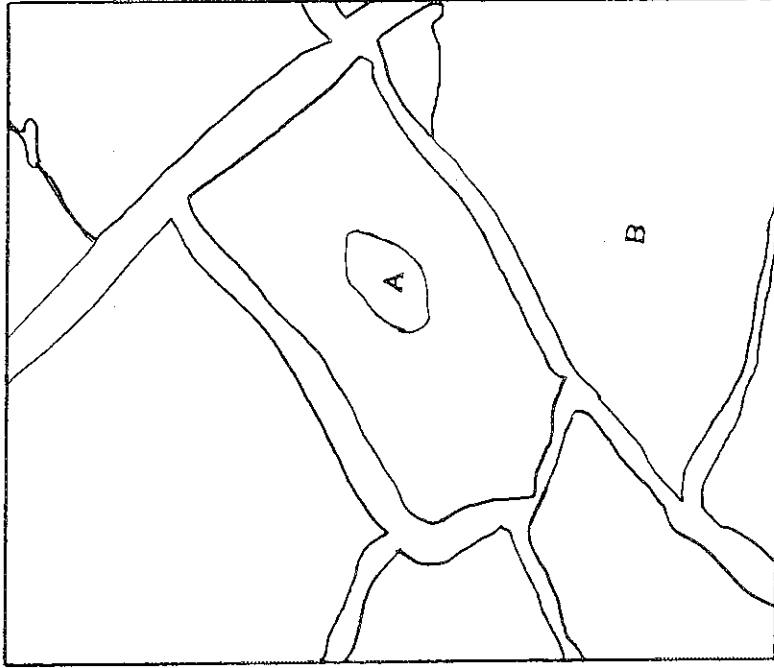


Fig. 19 Scanning electron microphotograph of the surface of the specimen  
leached at 70°C for 28 days in  $\text{Ca(OH)}_2$  water by the MCC-4 with  
the flow rate of 0.1 ml/min

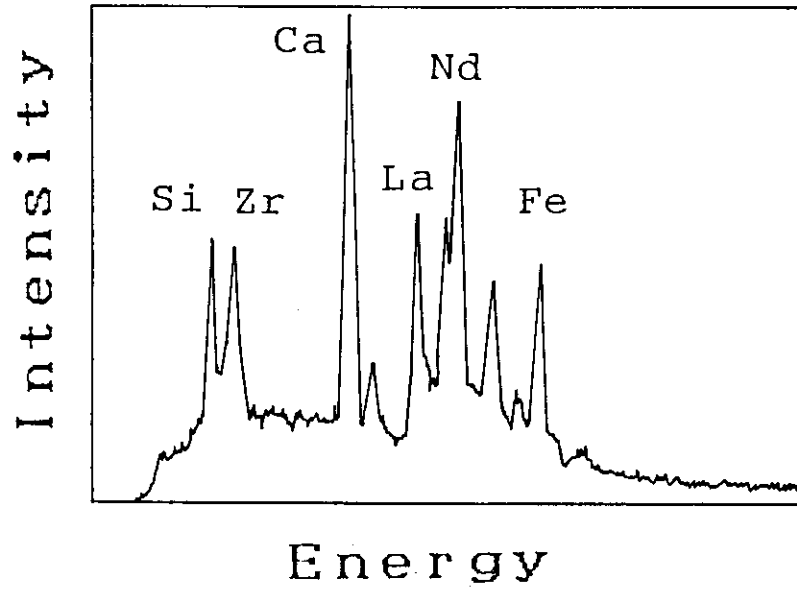


Fig. 20 SEM-EDX spectrum from the particle (A) corresponding to Fig. 19

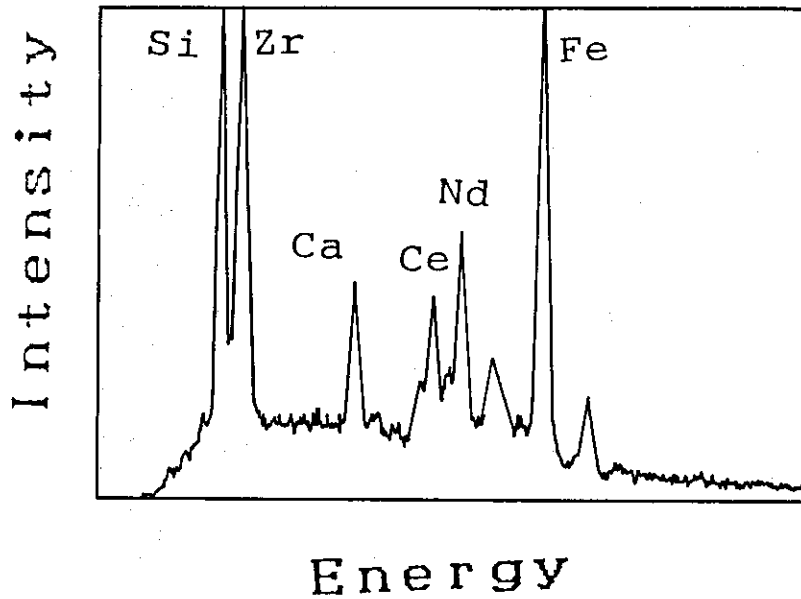


Fig. 21 SEM-EDX spectrum from the part(B) corresponding to Fig. 19

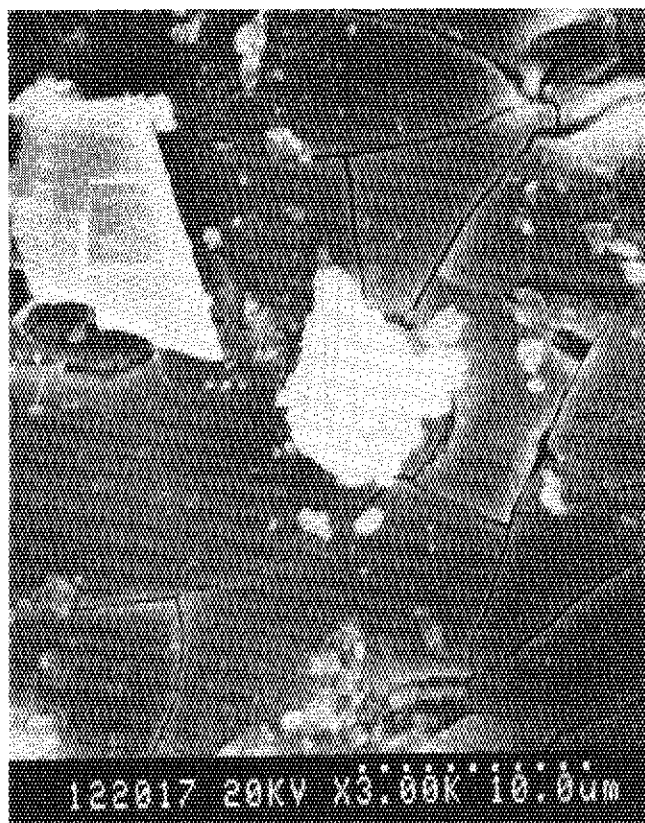


Fig. 22 Scanning electron microphotograph of the particle precipitated on the surface of the specimen leached at 70°C for 28 days in  $H_2SO_4$  water with the flow rate of 0.01 ml/min

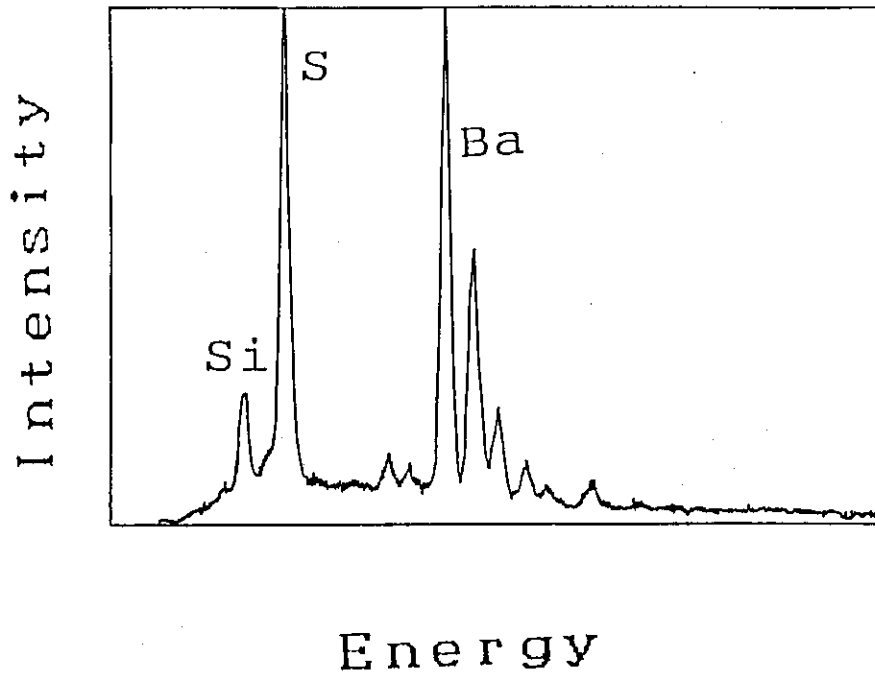


Fig. 23 SEM-EDX spectrum from the square in Fig. 22